



HAL
open science

Évolutions microstructurales et comportement en fluage à haute température d'un acier inoxydable austénitique

Lucie Mateus Freire

► **To cite this version:**

Lucie Mateus Freire. Évolutions microstructurales et comportement en fluage à haute température d'un acier inoxydable austénitique. Matériaux. Université Paris sciences et lettres, 2018. Français. NNT : 2018PSLEM016 . tel-01906250

HAL Id: tel-01906250

<https://pastel.hal.science/tel-01906250>

Submitted on 26 Oct 2018

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.

THÈSE DE DOCTORAT

de l'Université de recherche Paris Sciences et Lettres
PSL Research University

Préparée à MINES ParisTech

Evolutions microstructurales et comportement en fluage à
haute température d'un acier inoxydable austénitique

Ecole doctorale n°432

SCIENCES DES METIERS DE L'INGENIEUR

Spécialité SCIENCES ET GENIE DES MATERIAUX

COMPOSITION DU JURY :

M. PRIMA Frédéric
Chimie ParisTech, Président

M. HUG Eric
Université de Normandie, Rapporteur

M. THILLY Ludovic
Université de Poitiers, Rapporteur

Mme BLAT-YRIEIX Martine
EDF, Membre du jury

M. COURCELLE Arnaud
CEA, Membre du jury

Mme GOURGUES-LORENZON Anne-Françoise
MINES ParisTech, Membre du jury

**Soutenue par Lucie MATEUS FREIRE
le 20 mars 2018**

Dirigée par **Anne-Françoise
GOURGUES-LORENZON**



*“Face à la roche, le ruisseau l’emporte toujours, non pas par la force
mais par la persévérance.”*

H. Jackson Brown

Remerciements

Ce travail de thèse n'aurait pas été aussi riche sans toutes les personnes qui m'ont appris, qui m'ont soutenue et avec qui j'ai passé un peu plus de 3 ans entre le Centre des Matériaux et le CEA de Saclay.

Mes premiers remerciements vont à l'ensemble des membres du jury qui m'ont fait l'honneur de partager leur expertise et leur conseils afin d'améliorer le rendu de ce manuscrit.

Ensuite, je tenais sincèrement remercier ma directrice de thèse, **Anne-Françoise Gourgues**. Ce fut un plaisir d'apprendre à ses côtés lors de cette thèse. Je la remercie infiniment pour m'avoir toujours soutenue dans les bons, comme dans les mauvais moments. Un grand merci pour sa patience et pour le temps qu'elle m'a généreusement consacré.

Je remercie ensuite mon encadrant de thèse, **Arnaud Courcelle**, pour son expertise et les conseils qu'il a pu me transmettre au long de ces 3 années. Merci également de m'avoir consacré du temps afin de réaliser des images de qualité au MET du CEA Saclay. Merci également à **Emma Piozin** d'avoir co-encadré cette thèse et pour ses conseils.

Je remercie les anciens et actuels membres du laboratoire LCMI du CEA de Saclay et particulièrement :

- **Benoît Tanguy** et **Valéry Vandenberghe** pour leur accueil au sein du LCMI ;
- **Toute l'équipe du LCMI**, et notamment **Roger Limon, Bruno Boisdenghien, Matthew Bono, David Le Boulch, Eric Leroy, Johann Pegaitaz, Claire Ritter, Catherine Payet, Guillaume Zumpicchiati, Pierre-Olivier Barrioz, Elie Paccou** et **Tom Petit** pour leur joie et leur bonne humeur ;
- **Mikaël Kountchou** pour sa gentillesse, sa bienveillance et pour les travaux qu'il a mené avec succès sur l'AIM1 (SAT, recuits à 650°C entre autres) ;
- **Emilien Curtet** pour avoir choisi de réaliser son stage sur l'AIM1 et d'avoir pu enrichir ce manuscrit avec tous ces beaux résultats obtenus à 750°C ;
- Merci également à **Julien Le Corre** pour le travail fourni lors de son stage sur la synthèse des essais réalisés à 650°C et pour les caractérisations d'éprouvettes ;
- **Bénédicte Verhaeghe, Catherine Desserouer** et **Véronique Cloute-Cazalaa** pour leur disponibilité et pour la précieuse aide qu'elles ont pu m'apporter, notamment pour la préparation des lames minces.

Merci également à **Thomas Guilbert** qui m'a permis de réaliser tous les recuits thermiques présentés dans cette thèse. Merci à **Baptiste Rouxel** d'avoir accepté de partager son précieux temps de faisceaux pour les mesures DNPA et à **Marie-Hélène Berger** pour son aide dans la mise en place des expériences et des analyses DNPA.

Merci à **Cédric Sauder** et **James Braun** pour avoir eu la gentillesse de réaliser quelques recuits supplémentaires à 950°C.

Je remercie **Florence Porcher** pour le temps qu'elle a pu consacrer à la réalisation des essais de diffraction des neutrons et pour l'aide qu'elle a pu apporter au dépouillement des résultats.

Je tenais également à exprimer mes remerciements à **Michel Tabarant** ainsi que **Fabien Rouillard** pour le temps investi aux analyses chimiques des échantillons recuits.

Merci infiniment à **Jean-Marie Gentzbittel** pour l'ensemble des essais de fluage réalisés à 650°C et 750°C et des expertises réalisées au CEA de Grenoble sur les éprouvettes rompues.

Je tenais également à remercier chaleureusement toutes les personnes du Centre des Matériaux et en particulier :

- Les anciens et les nouveaux du « *bureau magique* » : **Frank Tankoua** (aussi connu sous le nom de Frank 1), **Sylvain Dépinoy, Hubert Salmon-Legagneur** (qui a également eu la joie de s'attaquer

aux essais de fluage sur un acier pour les gaines d'ASTRID), **Hélène Godin**, **Franck Tioguem** (dit Franck 2) et **Nicolas Cliche**. Je remercie aussi **Alexandre Hermant** qui m'a encouragé pendant mes deux premières années de thèse.

- Les anciens membres de l'équipe MM (devenue MIMEX) : **Abdenour Meddour**, qui s'est toujours montré disponible ; **Stéphanie Dang**, pour la formation express et efficace à la corrélation d'images ; **Anne Laurent**, qui a réalisé mes premières cartographies EBSD. Un grand merci à **Régis Clément** pour sa disponibilité, sa gentillesse et sa patience. Sans oublier tous les moments que l'on a passé devant cette machine de fluage qui, je dois le reconnaître, nous a fait pas mal de nœuds au cerveau ! Merci également à **Jérôme Crépin**, ancien responsable du groupe et actuellement directeur du CDM.
- Tous les **membres de l'atelier JPE** : **René Cluzet**, **Frédéric Coutard**, **Christophe Meurin**, **Vasco Cabral-Lopes** et **Jean-Pierre Etourneau**, qui nous a quittés bien trop tôt. Merci pour votre sympathie et pour m'avoir rendu un nombre incalculable de services (usinage de pièces pour la machine de fluage, d'éprouvettes, de lames minces etc.). Je vous remercie également pour tous les moments passés en votre compagnie ;
- **Mohammed Sennour**, pour les images MET qui permettent de décorer ce manuscrit de belles illustrations. Merci également pour les différentes discussions que nous avons partagées, toujours très intéressantes ;
- **Fabrice Gaslain**, pour sa bonne humeur et son expertise sur tout ce qui touche de près ou de loin à la microscopie ;
- **Lynh-Thy**, pour son dynamisme, sa motivation et les analyses réalisées à la microsonde ;
- **Gérard Brabant**, pour ces moments de partage lors des observations et pour les images de fractographies de qualité et répliques réalisés au MEB ;
- **Jean-Christophe Teissedre**, pour le temps qu'il a pu consacrer au développement du logiciel Ariane permettant le suivi de la déformation lors des essais de fluage ;
- **Cédric Toussaint**, pour son aide concernant le contrôle et la réalisation des thermocouples de la machine de fluage ;
- **Vladimir Esin**, pour la formation et l'aide qu'il m'a apporté concernant le logiciel Thermo-Calc et pour les précieux conseils ;
- Merci à **Cécilie Duhamel**, **Marie-Hélène Berger**, **Claudine Dévémy**, **Sarojinee Bonneville** pour les discussions lors des différents déjeuners que nous avons pu partager à la cafétéria ;
- **Odile Adam**, notre super documentaliste, que j'ai embêté bien plus d'une fois avec des articles toujours plus « exotiques » et qui a consacré énormément de temps à parfaire la bibliographie de cette thèse.

Je remercie également ma **famille** pour le soutien qu'elle a su m'apporter.

Enfin, un grand merci à **Bertrand** pour m'avoir supportée, accompagnée et encouragée en toutes circonstances.

Table des matières

Remerciements	5
Table des matières	7
Introduction générale	13
Chapitre I Métallurgie structurale des aciers inoxydables austénitiques et caractérisations de l'AIM1 à l'état de réception	17
1. Eléments de métallurgie des aciers inoxydables austénitiques	18
1.1. Stabilité thermodynamique des phases	18
1.2. Rôle des principaux éléments d'alliage	20
1.3. Energie de Défaut d'Empilement (EDE).....	22
1.4. Conclusion concernant les éléments de métallurgie d'aciers inoxydables.....	24
2. Présentation de l'alliage AIM1	24
2.1. Composition chimique.....	24
2.2. Fabrication et mise en forme du matériau.....	25
3. Caractérisation du matériau de l'étude	26
3.1. Géométrie.....	26
3.2. Composition chimique.....	27
3.3. Taille de grains et précipités primaires.....	28
3.4. Microstructure d'écrouissage.....	30
3.5. Microdureté	34
3.6. Conclusion sur le matériau à l'état de réception	36
4. Conclusion concernant la métallurgie structurale des aciers inoxydables austénitiques et caractérisations de l'AIM1 à l'état de réception	37

Chapitre II Evolutions microstructurales au cours d'un maintien à haute température sans contrainte appliquée	39
1. Etat de l'art : précipitation et phénomènes de restauration et recristallisation	40
1.1. Précipitation	40
1.1.2. Domaine d'existence des précipités à l'équilibre.....	48
1.1.3. Cinétique de précipitation.....	52
1.2. Restauration	56
1.3. Recristallisation.....	61
1.4. Bilan de l'état de l'art et positionnement des travaux.....	66
2. Evolutions microstructurales de l'AIM1 au cours de recuits isothermes.....	67
2.1. Démarche expérimentale et choix des températures et temps de maintien	67
2.2. Etude de la précipitation	69
2.3. Détermination de la cinétique de restauration	80
2.4. Détermination de la cinétique de recristallisation	85
2.5. Evolution de la microdureté et comparaison avec les cinétiques de restauration et de recristallisation	91
2.6. Etablissement d'un modèle d'adoucissement empirique pour l'AIM1.....	96
2.7. Conclusion des résultats des évolutions microstructurales de l'AIM1 au cours de recuits isothermes.....	101
3. Conclusion concernant les évolutions microstructurales au cours de recuits isothermes.....	102

Chapitre III Comportement viscoplastique de l'AIM1 à 650°C et 750°C.....	103
1. Etat de l'art : mécanismes de déformation et de rupture en fluage des aciers proches de l'AIM1	104
1.1. L'essai de fluage.....	104
1.2. Régimes de déformation viscoplastique	106
1.3. Modes de rupture à haute température et représentation paramétrique du temps à rupture en fluage.....	109
1.4. Comportement mécanique entre 650°C et 800°C des aciers austénitiques stabilisés au titane	110
1.4.1. Comportement en traction à chaud.....	111
1.4.2. Comportement viscoplastique macroscopique	115
1.4.3. Mécanismes physiques régissant le comportement viscoplastique	118
1.4.4. Comportement à rupture.....	121
1.5. Conclusion de l'état de l'art concernant le comportement en fluage des aciers ayant une composition proche de l'AIM1	124
2. Comportement en fluage sous air de l'AIM1 à 650°C et 750°C.....	124
2.1. Protocoles expérimentaux et conditions d'essai	125
2.2. Comportement viscoplastique	128
2.3. Représentation du lien entre la vitesse de déformation minimale et le temps à rupture	133
2.4. Expertises des éprouvettes après essai.....	135
2.5. Examen des éprouvettes sur coupes polies après essai	139
2.6. Conclusion concernant le comportement viscoplastique de l'AIM1	147
3. Conclusion du comportement viscoplastique d'un acier stabilisé à 650°C et 750°C.	147

Chapitre IV Etude du comportement en fluage uniaxial de l'AIM1 à 850°C et à 950°C.....	149
1. Etat de l'art : comportement mécanique des 15-15Ti au-dessus de 850°C.....	150
1.1. Comportement viscoplastique	150
1.2. Comportement à rupture	152
1.3. Conclusion sur le comportement en fluage à haute température	154
2. Présentation de l'essai de fluage sous vide à haute température	154
3. Résultats et discussion des essais à 850°C.....	159
3.1. Comportement macroscopique	159
3.2. Microstructure des éprouvettes après essai	165
3.3. Conclusion concernant le comportement en fluage à 850°C.....	168
4. Résultats et discussion des essais à 950°C.....	168
4.1. Comportement macroscopique et comparaison avec les essais à 850°C.....	168
4.2. Microstructure des éprouvettes après essai	176
4.2.1. Observations en zone déformée après les essais menés à rupture (hors striction) 176	
4.2.2. Observation des coupes en zone de rupture	182
4.3. Evolution de la microstructure de l'AIM1 de référence au cours d'un essai de fluage : essais interrompus à 950°C sous 40 MPa	186
4.4. Conclusion concernant le comportement en fluage à 950°C.....	192
5. Interactions entre évolution microstructurale et comportement viscoplastique à haute température.....	193
5.1. Relecture des courbes de fluage à la lumière de l'évolution microstructurale.....	193
5.2. Conclusion sur l'interaction entre l'évolution microstructurale et le comportement viscoplastique à haute température.....	194
6. Conclusion concernant le comportement en fluage de l'AIM1 à 850°C et à 950°C	195

Conclusion générale et perspectives	197
1. Conclusion générale	197
2. Perspectives	200
Références bibliographiques.....	203
Annexes	210
Annexe 1 – Méthode pour observations métallographiques	211
1. Préparation d'échantillons pour observations par microscopie optique et électronique	211
2. Conditions d'acquisition EBSD et dépouillement	212
3. Protocole expérimental pour la réalisation de répliques extractives au carbone sur l'AIM1	215
Annexe 2 – Précipités susceptibles de se former dans les aciers inoxydables austénitiques stabilisés après traitements thermiques isothermes	217
Annexe 3 – Détermination de la taille et de la fraction volumique des précipités secondaires par Diffraction des Neutrons aux Petits Angles (DNPA)	219
1. Principe de la DNPA.....	219
2. Traitement des données	222
Annexe 4 – Mesure de densité de dislocations par diffraction des neutrons.....	225
1. Présentation du dispositif expérimental.....	225
2. Méthode de dépouillement.....	226

Introduction générale

Les travaux de recherche objet de ce mémoire de thèse s'inscrivent dans le cadre du projet ASTRID (Advanced Sodium Technological Reactor for Industrial Demonstration), qui concerne l'étude d'un prototype de réacteur à neutrons rapides refroidi au sodium (RNR-Na) de génération IV. L'AIM1 (Austenitic Improved Material #1), qui est un acier inoxydable austénitique à 15%Cr-15%Ni, stabilisé au titane et optimisé en éléments mineurs, a été choisi comme premier matériau de gainage des éléments combustibles. La gaine constitue la première barrière de confinement des produits de fission, elle doit ainsi pouvoir supporter des conditions d'irradiation et de température sévères.

L'optimisation de la composition de l'AIM1 en éléments mineurs, en particulier en titane, en carbone, en silicium et en phosphore permet de limiter le gonflement sous irradiation de l'AIM1, par rapport aux aciers inoxydables 316Ti ou non stabilisés (Lee et al. 1984 ; Hamilton et al. 1989 ; Dubuisson et al. 1990 ; Delalande 1992).

Les avantages de l'utilisation des aciers stabilisés au titane et écrouis à froid sont nombreux (par comparaison avec les aciers non stabilisés). Notamment, la formation d'une population de précipités nanométriques de type TiC permet de:

- Limiter la sensibilité à la corrosion intergranulaire en limitant la formation de carbures de chrome de type $M_{23}C_6$;
- Limiter la fragilisation sous irradiation due à l'hélium (Kesternich et Rothaut 1981) ;
- Diminuer le gonflement dû à l'irradiation par plusieurs mécanismes complexes (stabilisation du réseau de dislocations sous irradiation, influence des éléments en solution solide sur la mobilité des défauts ponctuels, influence de la nano-précipitation sur le piégeage des défauts ponctuels (Lee et al. 1984));
- Améliorer les propriétés mécaniques à chaud, en introduisant un durcissement structural, que ce soit sous vieillissement thermique ou sous irradiation (Kesternich 1988) et en retardant la restauration des dislocations et les phénomènes de recristallisation.

Cette nano-précipitation (aussi appelée précipitation secondaire) est optimisée à l'aide d'un traitement thermique préalable d'hypertrempe ayant pour objectif de remettre en solution solide une grande partie du titane et du carbone. Pour permettre une précipitation la plus homogène possible des nano-TiC en service, les gaines sont écrouies à froid (taux d'écrouissage entre 20 à 25%) après le traitement d'hypertrempe. Le réseau de dislocations ainsi créé contribue à diminuer le gonflement sous irradiation.

Néanmoins, en conditions incidentelles et accidentelles hypothétiques, le comportement de l'AIM1 est encore mal connu, notamment dans le domaine de température 700°C-1000°C pour des durées allant de quelques minutes à quelques jours. Par exemple, l'un des scénarii de transitoires incidentels envisagés considère une perte d'alimentation des pompes primaires sans chute de barre, provoquant une augmentation rapide de la température de la gaine (scénario ULOF, Unprotected Loss of Flow). La température d'ébullition du réfrigérant primaire est d'environ 930°C. Les calculs prévoient une augmentation rapide de la température de la gaine dans de telles conditions (Figure 0.1).

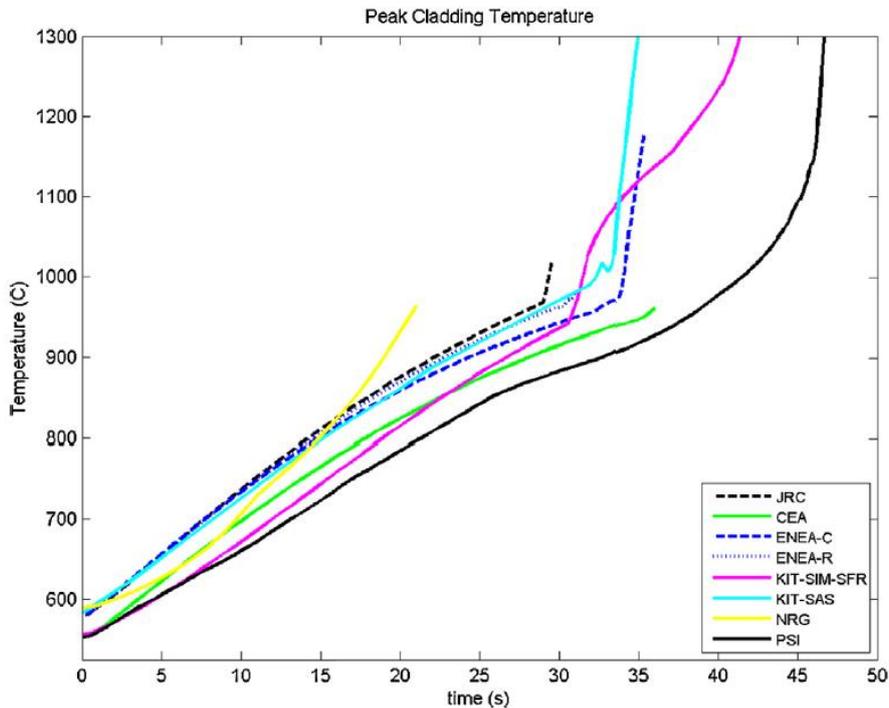


Figure 0.1 – Prévisions par différents codes de calcul de l’augmentation de la température maximale des gaines pour des réacteurs rapides au sodium pendant un transitoire thermique incidentel de type ULOF (Unprotected Loss Of Flow) – Ce scénario prend en compte un arrêt de la pompe primaire sans chute des barres de contrôle (Lazaro et al. 2014).

Dans la gamme de température d’intérêt pour les transitoires thermiques incidentels, des phénomènes de restauration voire de recristallisation du matériau sont susceptibles de se produire. Cet adoucissement du matériau peut nuire aux propriétés mécaniques (notamment à la résistance au fluage) et mener à une déformation diamétrale de la gaine en fluage (sans rupture). Dans ces conditions et en l’absence de rupture prématurée de la gaine, les canaux de refroidissement de l’assemblage peuvent rapidement s’obstruer et conduire à une situation d’accident grave (Pelletier 2013).

La température maximale en conditions nominales d’utilisation des RNR-Na classiques comme Phénix en France est de 650°C. La base de données en fluage disponible au début de ces travaux de thèse est ainsi conséquente pour cette température. Or, pour des températures supérieures, les informations concernant les propriétés en fluage de l’AIM1 sont limitées voire inexistantes à 850°C et 950°C y compris sur matériau non irradié.

Dans le but de mieux comprendre les évolutions métallurgiques et mécaniques de l’AIM1 entre 650°C et 950°C, le comportement du matériau dans des conditions isothermes est détaillé dans cette thèse. L’étude du matériau à 650°C permet de faire la transition entre les données en conditions nominales d’utilisation et les données en transitoires thermiques incidentels. Du fait que les données de la littérature sur ce sujet sont encore peu nombreuses, l’effort a porté sur l’évolution microstructurale sous sollicitation thermomécanique, en dehors de tout effet d’irradiation.

Afin de dissocier les effets liés au vieillissement thermique seul de ceux liés à une sollicitation mécanique à chaud, la démarche de l’étude a comporté deux parties, menées en parallèle, qui sont :

- La caractérisation de l'évolution métallurgique au cours de traitements thermiques isothermes sans contrainte appliquée, appelés « recuits » dans ce mémoire ;
- L'étude du comportement mécanique en fluage uniaxial isotherme.

En cohérence avec cette démarche, le manuscrit a été construit en quatre chapitres.

Le **Chapitre 1** présente quelques éléments de métallurgie des aciers inoxydables austénitiques afin d'introduire l'alliage de l'étude. Les principales caractéristiques de l'AIM1 après mise en forme, traitement d'hypertrempe et écrouissage à froid (considéré comme étant le matériau de référence pour notre étude) sont décrites.

Le **Chapitre 2** concerne l'étude des évolutions microstructurales à haute température sans contrainte appliquée. La première partie de ce chapitre dresse l'état de l'art des caractérisations métallurgiques au cours de recuits réalisés sur des 15-15Ti. La deuxième partie présente la démarche expérimentale utilisée pour les recuits réalisés dans cette thèse. Les évolutions de la précipitation, de la restauration et de la recristallisation au cours de ces recuits sont ensuite abordées.

Dans le **Chapitre 3** une étude du comportement en fluage de l'AIM1 à température modérée (650°C-750°C) est présentée. Dans un premier temps, on décrit les mécanismes de déformation et de rupture en fluage des aciers les plus proches du matériau de l'étude. Dans un second temps, les protocoles expérimentaux et les conditions d'essai sont détaillés. On s'attache ensuite à l'étude du comportement viscoplastique et de la rupture ainsi qu'aux résultats des caractérisations microstructurales post-mortem des éprouvettes.

Le **Chapitre 4** présente l'étude du comportement en fluage de l'AIM1 à plus haute température (850°C-950°C). Dans ce dernier chapitre, un état de l'art des quelques données disponibles est d'abord dressé ; le protocole expérimental ainsi que les résultats de fluage sont ensuite décrits. On s'attache ensuite aux mécanismes de déformation et de rupture avant d'approfondir l'étude de l'évolution microstructurale au cours de ces essais de fluage.

Chapitre I

Métallurgie structurale des aciers inoxydables austénitiques et caractérisations de l'AIM1 à l'état de réception

Sommaire

1. Eléments de métallurgie des aciers inoxydables austénitiques	18
1.1. Stabilité thermodynamique des phases	18
1.2. Rôle des principaux éléments d'alliage	20
1.3. Energie de Défaut d'Empilement (EDE).....	22
1.4. Conclusion concernant les éléments de métallurgie d'aciers inoxydables	24
2. Présentation de l'alliage AIM1	24
2.1. Composition chimique	24
2.2. Fabrication et mise en forme du matériau	25
3. Caractérisation du matériau de l'étude	26
3.1. Géométrie	26
3.2. Composition chimique	27
3.3. Taille de grains et précipités primaires	28
3.4. Microstructure d'écrouissage.....	30
3.5. Microdureté	34
3.6. Conclusion sur le matériau à l'état de réception	36
4. Conclusion concernant la métallurgie structurale des aciers inoxydables austénitiques et caractérisations de l'AIM1 à l'état de réception	37

Ce premier chapitre présente les études et les caractérisations du matériau « à l'état de réception », après mise en forme de la gaine de combustible. La première partie regroupe l'état de l'art concernant la métallurgie des aciers inoxydables austénitiques. La seconde partie porte sur la composition et les conditions de fabrication de l'AIM1. La troisième partie est consacrée à la caractérisation métallurgique de la nuance objet de ces travaux de thèse.

1. Éléments de métallurgie des aciers inoxydables austénitiques

Les aciers inoxydables austénitiques, de structure cubique à faces centrées, sont très utilisés dans l'industrie pour leur stabilité dans une large gamme de températures. En plus de leur grande résistance à la corrosion, les nuances durcies par précipitation possèdent une stabilité microstructurale et une très bonne tenue mécanique. Les aciers austénitiques stabilisés constituent (entre autres) d'excellents candidats en tant que matériaux de structure pour les réacteurs nucléaires de quatrième génération.

1.1. Stabilité thermodynamique des phases

La transformation de l'austénite (structure cubique à faces centrées) en martensite (de structure hexagonale ϵ ou quadratique centrée α') peut avoir lieu soit par refroidissement rapide (depuis 1050-1100°C), soit par déformation à froid (martensite d'écroissage). La température à partir de laquelle débute cette transformation, M_s , peut être estimée par la relation de (Pickering 1984) déterminée pour des aciers inoxydables austénitiques ¹:

$$M_s(^{\circ}\text{C}) = 502 - 810(\%C) - 1230(\%N) - 13(\%Mn) - 30(\%Ni) - 12(\%Cr) - 54(\%Cu) - 6(\%Mo)$$

L'addition d'éléments mineurs comme le carbone ou l'azote abaisse fortement la température de début de transformation martensitique. La valeur de M_s calculée pour l'AIM1 est de -236°C.

La température de transformation à partir de laquelle 50% de martensite est formée pour une déformation plastique de 30% est estimée à l'aide du calcul de M_{d30} (Pickering 1984):

$$M_{d30}(^{\circ}\text{C}) = 497 - 462(\%C + \%N) - 9,2(\%Si) - 8,1(\%Mn) - 13,7(\%Cr) - 20(\%Ni) - 18,5(\%Mo)$$

Notons que l'ajout de Ni inhibe la formation de martensite, mais que l'ajout d'éléments stabilisants comme le titane, non pris en compte dans la relation de Pickering, diminue la présence de carbone en solution solide, et par conséquent peut favoriser cette transformation. La valeur de M_{d30} pour l'AIM1 est de -106°C. Dans l'hypothèse où la totalité du carbone se trouve sous forme de carbures, cette température passe à -60°C.

La transformation de l'austénite en martensite (par refroidissement rapide ou par écroissage) est donc fortement improbable pour un acier de type AIM1 au-dessus de la température ambiante. Par conséquent, la transformation martensitique ne sera pas abordée dans ce manuscrit.

La notion de Cr et Ni équivalent (Cr_{eq} et Ni_{eq}) permet de rendre compte du pouvoir alphagène ou gammagène de chaque élément chimique pour un acier donné. Le chrome étant alphagène (tendance à privilégier la formation de ferrite) et le nickel gammagène (tendance à privilégier la formation de l'austénite), un coefficient de 1 leur est attribué. La valeur calculée de Cr_{eq} et de Ni_{eq} permet dans certains cas d'utiliser des relations donnant un bon estimateur du chemin de solidification et par conséquent de la ou des phase(s) dans un acier.

¹ Les compositions sont données en pourcentage massique.

Par exemple, les relations empiriques établies par (Pickering 1984) proposent :

$$Ni_{eq} = \%Ni + 0,5(\%Mn) + 21(\%C) + 11,5(\%N) \quad (1.1)$$

$$Cr_{eq} = \%Cr + 3,0(\%Si) + \%Mo + 10(\%Ti)^2 + 4,0(\%Nb) \quad (1.2)$$

Pour un acier 15-15Ti de type AIM1, on obtient une valeur de Ni_{eq} de 18% et Cr_{eq} de 20%, soit un rapport Cr_{eq}/Ni_{eq} de 0,9 (acier totalement austénitique (Suutala 1983)). Ces valeurs sont proches de celles issues des relations de Schaeffler (Figure 1.1) avec un Ni_{eq} de 19% et un Cr_{eq} de 17%. La structure 100% austénitique de l'AIM1 est alors prédite (absence de ferrite).

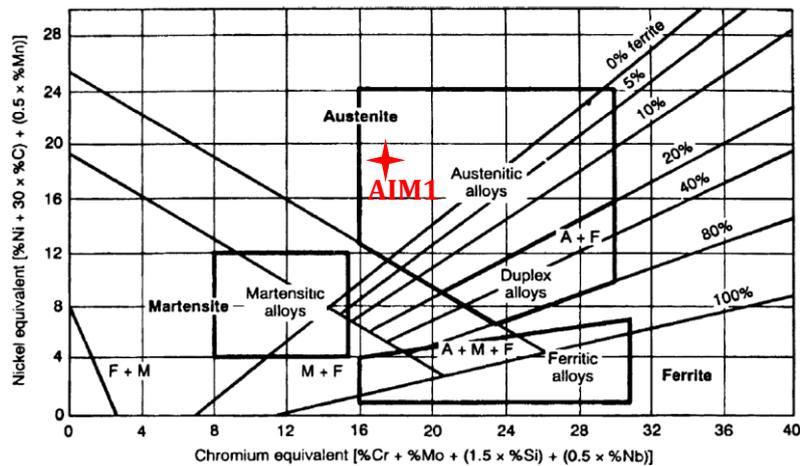


Figure 1.1 - Diagramme de Schaeffler reconstitué pour des aciers inoxydables d'après (Padilha et Rios 2002). Ce diagramme ne prend pas en compte la vitesse de refroidissement.

Une coupe du diagramme ternaire Fe-Cr-Ni, pour une composition en fer de 70% est présentée sur la Figure 1.2. La flèche rouge permet de situer le chemin de solidification d'un acier contenant 15% de chrome et 15% de nickel et admet un domaine 100% austénitique.

² Avec $\%Ti$ (effectif) = $\%Ti - 4[(\%C - 0,03) + \%N]$ et $\%Nb$ (effectif) = $\%Nb - 8[(\%C - 0,03) + \%N]$ qui permet d'obtenir le pourcentage massique en titane et niobium libres.

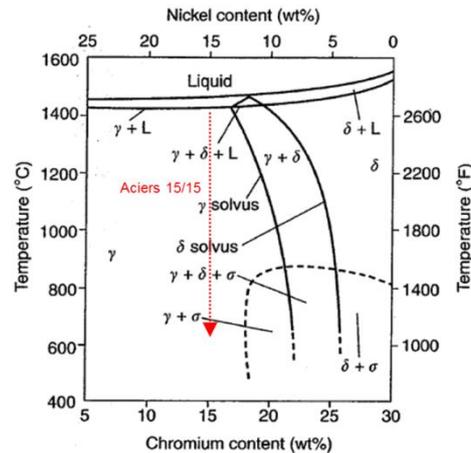


Figure 1.2 - Section isoplèthe du diagramme ternaire Fe-Cr-Ni pour 70% de fer, d'après (Lippold et Kotecki 2005).

La Figure 1.2 est présentée ici en guise d'illustration, une étude plus précise des phases en présence sera donnée à l'aide de calculs Thermo-Calc présentés dans le Chapitre 2.

1.2. Rôle des principaux éléments d'alliage

- Chrome et nickel

Le chrome permet de conférer aux aciers leur caractère inoxydable. Cependant une trop haute teneur en chrome et en carbone favorise une précipitation de carbures de type $M_{23}C_6$ dans les joints de grains, ce qui entraîne une sensibilité à la corrosion intergranulaire (Lacombe, Baroux, et Béranger 1990). De plus, le chrome, élément alphagène, restreint le domaine de l'austénite γ et favorise l'apparition de la ferrite. En revanche, une teneur en nickel suffisante (supérieure à 10%) permet d'assurer la stabilité de l'austénite à température ambiante, ce qui est le cas pour l'AIM1. La teneur en nickel des 15-15Ti est aussi plus élevée que pour les 321 ou 316Ti (Ni autour de 10%) afin d'améliorer la résistance au gonflement (Johnston et al. 1974).

- Carbone

Le carbone est l'un des éléments les plus durcissants en solution solide interstitielle (Lacombe, Baroux, et Béranger 1990). Le carbone, élément gammagène, confère de bonnes propriétés mécaniques par précipitation de carbures avec les éléments carburigènes (comme le titane ou le niobium).

- Azote

L'azote, fortement gammagène, est l'élément le plus durcissant en solution solide. Il permet aussi d'améliorer la durée de vie en fluage, du fait de son interaction en solution solide avec les dislocations, mais diminue la ductilité.

- Titane

Le titane est un élément alphagène. Son ajout permet de limiter la corrosion intergranulaire provoquée par la déchromisation aux joints de grains (due à la présence de carbures de chrome de type M_7C_3 et $M_{23}C_6$). Le titane, qui est un élément très carburigène, favorise la formation de carbures de titane, et ainsi, réduit la formation des carbures de chrome (Pardo et al. 2007 ; Grot et Spruiell 1975; Gustafson 2000), jouant également un rôle durcissant. Le terme « stabilisé » signifie que le stabilisant (ici le titane) permet de limiter la corrosion intergranulaire.

Les alliages stabilisés au titane sont connus pour être moins sensibles au gonflement sous irradiation et à la fragilisation due à l'hélium (Padilha et al. 1982; Kesternich et Rothaut 1981; Kesternich et Meertens 1986).

- Molybdène

Le molybdène est ajouté aux aciers austénitiques pour offrir une meilleure résistance à la corrosion (en milieu acide notamment). Le molybdène est un élément fortement alphasène qui agit par solution solide de substitution et encourage la précipitation de carbures. Le molybdène a également tendance à augmenter l'énergie de défaut d'empilement (partie 1.3).

Cependant, la teneur en molybdène doit être contrôlée car celui-ci favorise la précipitation de la phase σ et de phases de Laves (pour des expositions prolongées à haute température ou en irradiation), qui peuvent être nocives pour les propriétés mécaniques. Pour éviter cette précipitation, la diminution de la teneur en molybdène n'est pas nécessaire si la précipitation de carbures de titane et phosphures est maximisée en optimisant les concentrations en carbone, titane et phosphore.

- Bore

(Garcia-Borquez et Kesternich 1984; Schanz et Padilha 1980)³ ont montré que le bore ségrège aux joints de grains et précipite sous forme de borures, ce qui pourrait renforcer ces joints (Lacombe, Baroux, et Béranger 1990).

L'un des autres effets bénéfiques du bore est qu'il diminue la formation de phases de Laves dans les aciers inoxydables austénitiques de type 316 stabilisé (Maziasz et Jitsukawa, 1987).

- Silicium

Le silicium (alphasène) accroît la résistance à l'oxydation à haute température. Les dernières générations de 15-15Ti sont cependant dopées en silicium (teneur entre 0,8 et 1% massique) pour améliorer la résistance au gonflement d'irradiation.

- Phosphore

De manière générale, le phosphore est considéré comme étant une impureté dans les aciers. En effet, la présence de cet élément rend l'alliage plus difficile à souder et peut impliquer une ségrégation dans les joints de grains. Cependant, il a été montré sur les 316Ti et les 15-15Ti que l'ajout de phosphore a un effet bénéfique sur la résistance au gonflement sous irradiation (Delalande 1992)

³ Pour l'étude de (Garcia-Borquez et Kesternich 1984), la composition de l'acier est (%massique) : 14,9Ni-15,3Cr-1,3Mo-1,9Mn-0,3Si-0,3Ti-0,1C-0,0038B. Les borures ont été observés pour des températures comprises entre 800 et 1000°C.

Concernant la publication de (Schanz et Padilha 1980), trois aciers ont été étudiés avec une teneur en bore comprise entre 30 et 100 ppm (%massique). Leur composition est la suivante (pour chaque élément on a (teneur minimale-teneur maximale): (14,6-15,4)Ni-(14,6-15,5)Cr-(1,14-1,25)Mo-(1,7-2,0)Mn-(0,39-0,46)Si-(0,37-0,46)Ti-(0,09-0,10)C-(0,003-0,007)P-(0,004-0,01)S-(0,009-0,015)Co. Les borures ont été observés pour des températures comprises entre 700 et 1050°C.

1.3. Energie de Défaut d'Empilement (EDE)

Les déformations à froid d'aciers inoxydables austénitiques se traduisent par l'apparition de défauts d'empilement, de bandes de déformation et de macles mécaniques (ou macles de déformation). (El-Danaf et al. 1999) ont montré qu'une faible EDE favorise l'augmentation de la densité de dislocations. Ces macles se forment soit par cisaillement de l'austénite, soit par superposition de défauts d'empilement (Marshall 1984).

En général, une faible EDE favorise la dissociation d'une dislocation parfaite en dislocations partielles et implique un glissement dévié des dislocations plus difficile, diminuant ainsi leur mobilité. La redistribution des dislocations lors d'un écrouissage à froid implique que les cellules de dislocations sont moins favorisées. Par ailleurs, la recombinaison des dislocations est rendue difficile, ce qui entraîne une restauration difficile également. Au contraire, un acier à forte EDE aura tendance à favoriser la restauration dynamique lors de la déformation à chaud (Humphreys et Hatherly 2004).

L'addition de certains éléments peut influencer sur la valeur de l'EDE, notamment le carbone qui a tendance à la faire augmenter. Des relations empiriques, permettant de calculer une EDE à température ambiante, ont été établies par (Lacombe, Baroux, et Béranger 1990) et (Schramm et Reed 1975). Les résultats des calculs de l'EDE pour l'AIM1 sont présentés dans le **Tableau 1.1**. La pondération des éléments pour les deux équations est différente pour les deux relations du fait qu'elles n'ont pas été établies avec les mêmes compositions. Le carbone augmente fortement l'EDE avec un coefficient multiplicatif de $410 \text{ mJ.m}^{-2}.\% \text{massique}^{-1}$ dans la relation (1.3), alors que cet élément n'est pas pris en compte dans la relation (1.4). Inversement, l'équation (1.4) tient compte du molybdène contrairement à l'équation (1.3). Les effets du chrome et du manganèse ne sont pas dans le même sens pour les deux relations. Les relations établies par les auteurs sont donc des indicateurs à prendre avec précaution et montrent la difficulté d'estimer l'EDE de manière précise.

Néanmoins, les deux valeurs calculées par les deux formules sont similaires. La valeur de l'EDE plutôt élevée pour l'AIM1 est comparable à celle de l'acier allemand DIN 1.4970. L'observation de la microstructure de cet acier au microscope optique suffit pour mettre en évidence la présence de nombreuses macles de déformation dans le DIN 1.4970 écroui à froid (**Figure 1.3 b**).

(Lacombe, Baroux, et Béranger 1990)	(Schramm et Reed 1975)
$25,7 + 2(\%Ni) - 0,9(\%Cr) - 1,2(\%Mn) - 77(\%N) - 13(\%Si) + 410(\%C)$ (1.3)	$-53 + 6,2(\%Ni) + 0,7(\%Cr) + 3,2(\%Mn) + 9,3(\%Mo)$ (1.4)
71 mJ.m^{-2}	67 mJ.m^{-2}

Tableau 1.1 - Estimations de l'EDE à température ambiante pour l'AIM1 à l'aide des relations empiriques formulées par (Lacombe et al. 1990; Schramm et Reed 1975).

(Padilha et al. 2003) ont pu mettre en évidence la présence d'une microstructure très maclée des aciers austénitiques écrouis à froid ce qui est caractéristique d'alliages à faible EDE. En général, les aciers inoxydables austénitiques sont dits à faible EDE bien que la gamme soit assez large (entre 10 et 50 mJ.m^{-2}) (cf. **Tableau 1.2**). Ceci montre que l'estimation de l'EDE par les formules du **Tableau 1.1** est à prendre avec précaution.

Type	UNS N°	Werkstoff Nr.	C	Mn	Si	Cr	Ni	Mo	Other	SFE (mJ/m ²)
301	S30100	1.4310	<0.15	<2.0	<1.0	16.0-18.0	6.0-8.0	---	---	<16
304	S30400	1.4301	<0.08	<2.0	<1.0	18.0-20.0	8.0-10.5	---	---	9.2-32.5
304L	S30403	1.4306	<0.03	<2.0	<1.0	18.0-20.0	8.0-12.0	---	---	9.2-41.8
316	S31600	1.4401	<0.08	<2.0	<1.0	16.0-18.0	10.0-14.0	2.0-3.0	---	34.6-80.7
316L	S31603	1.4404	<0.03	<2.0	<1.0	16.0-18.0	10.0-14.0	2.0-3.0	---	34.6-80.7
321	S32100	1.4541	<0.08	<2.0	<1.0	17.0-19.0	9.0-12.0	---	Ti>5 X%C	14.7-41.1
347	S34700	1.4550	<0.08	<2.0	<1.0	17.0-19.0	9.0-13.0	---	Nb>10 X%C	14.7-47.3
370(*)	S37000	1.4970	0.08-0.12	<2.0	0.3-0.55	14.5-15.5	14.5-15.5	1.0-1.4	Ti=	56.4-73.4
370	S37000	1.4970	0.08-0.12	1.6-2.0	0.25-0.45	14.5-15.5	15.0-16.0	1.05-1.4	Ti=	65.0-76.5

(*) German nuclear specification

Tableau 1.2 - Récapitulatif des EDE pour des aciers inoxydables austénitiques d'après (Padilha, et al. 2003), calculées avec l'équation de (Schramm et Reed 1975).

D'après (Padilha et al. 2003), les aciers AISI 316 et DIN 1.4970 possèdent l'EDE la plus élevée par rapport aux autres aciers inoxydables mentionnés dans le **Tableau 1.2** (dû au molybdène), ce qui se traduit par une tendance à l'organisation des dislocations sous forme de cellules (**Figure 1.3**). L'EDE tend à augmenter avec la température (Rémy et al. 1978; Marshall 1984).

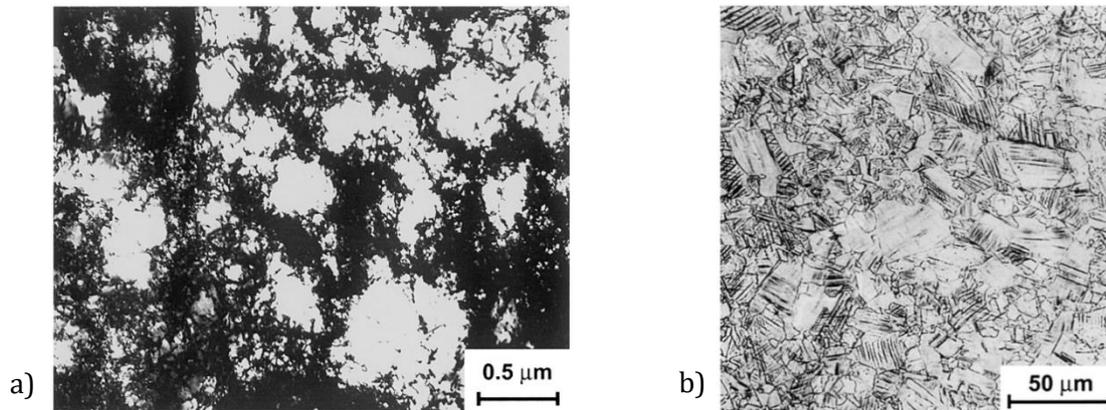


Figure 1.3 - a) Cellules de dislocations d'un acier 1.4970 écroui à froid à 15% observées au MET et b) cliché de la microstructure maclée réalisé par microscopie optique (Padilha, Plaut, et Rios 2003).

1.4. Conclusion concernant les éléments de métallurgie d'aciers inoxydables

La teneur en nickel dans les 15-15Ti permet de conserver une structure de matrice 100% austénitique. Les éléments hautement gammagènes tels que l'azote ou le carbone contribuent également à la stabilité de cette phase.

Le titane permet de stabiliser la structure par limitation de la précipitation de carbures de chrome, précipités très nocifs pour les propriétés mécaniques à haute température en conditions oxydantes. L'ajout de bore permet également d'améliorer les propriétés en fluage à haute température.

Les aciers inoxydables austénitiques sont des matériaux à faible EDE, ce qui facilite la formation de macles. La valeur de l'EDE, pouvant évoluer avec la température et la composition des éléments en solution solide, régit les mécanismes de restauration et de recristallisation à chaud.

2. Présentation de l'alliage AIM1

La spécification de l'AIM1 est le résultat de nombreuses années de R&D en France et à l'international pour limiter le gonflement d'irradiation tout en gardant de bonnes propriétés mécaniques en traction et en fluage. Les gaines en 316 hypertrempés, utilisées dans les premiers cœurs de réacteur à neutrons rapides ont été rapidement remplacées par des gaines en 316 stabilisés au titane et utilisées à l'état écroui sans traitement thermique après écrouissage. Les études qui ont montré l'effet bénéfique du Ni sur la résistance au gonflement ont ensuite fait évoluer la spécification du matériau de gaines vers le 15-15Ti.

2.1. Composition chimique

L'AIM1 résulte des travaux d'optimisation du 15-15Ti en éléments mineurs en particulier le silicium et le phosphore. La spécification de la composition chimique de l'AIM1 est comparée à celles d'autres aciers de type 15-15Ti dans le [Tableau 1.3](#).

Composition (% weight)	C	Cr	Ni	Mo	Si	Mn	Ti	P	B	
1.4970 (Ger.)	0.1	15	15	1.2	0.4	1.5	0.5	-	0.005	
PFBR D9 (India)	0.035-0.050	13.5-14.5	14.5-15.5	2.0-2.5	0.50-0.75	1.65-2.35	5.0 x C-7.5 x C	0.02 max.	0.001-0.002	
ASTM A771 (D9) (USA)	0.05	12.5-14.5	14.5-16.5	1.5-2.5	0.5-1.0	1.65-2.35	0.1-0.4	0.04	0.002	
ChS-68 (Russia)	0.065	16	15	2.2	0.5	1.6	0.35	-	0.0035	
JPCA (Japan)	0.06	14.2	15.6	2.3	0.5	1.8	0.24	0.03	-	
AIM1	Min	0.08	14	14	1.3	0.7	1.0	0.30	0.03	0.003
	Max	0.1	16	16	1.7	0.9	2.0	0.50	0.05	0.008

Tableau 1.3 – Composition de l'AIM1 et comparaison avec d'autres 15-15 stabilisés au titane étudiés ou destinés à être utilisés comme matériaux de cœur de réacteurs à neutrons rapides en France et dans le monde, d'après (INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY 2012).

Les principales différences entre ces nuances de 15-15Ti portent sur les teneurs en éléments mineurs en particulier le Ti, C, Mo, Si et B qui ont fait l'objet d'études approfondies en France et à l'international. Les dernières générations de 15-15Ti optimisés comme l'AIM1 ou les D9 présentent cependant des caractéristiques très proches : un contrôle du rapport Ti/C, une teneur élevée en Si (entre 0.5 et 1%), en P (entre 200 et 500 ppm) et une teneur en bore contrôlée entre

10 et 80 ppm. Du Nb est parfois ajouté dans certaines nuances avancées en plus du Ti pour obtenir une double stabilisation potentiellement plus performante du point de vue de la résistance au gonflement. Une évolution de l'AIM1 (AIM2) avec une double stabilisation Ti, Nb est à l'étude au CEA (Rouxel 2016).

2.2. Fabrication et mise en forme du matériau

La fabrication industrielle des tubes de gaines pour le nucléaire nécessite de nombreuses étapes. Après la coulée en lingot réalisée par les aciéristes, une double fusion du lingot a lieu à l'aide des procédés VIM (fusion sous vide par induction) et VAR (refusion à l'arc sous vide) pour mieux affiner la composition chimique. La première étape de mise en forme consiste en un forgeage ou un laminage à chaud qui permet d'obtenir un rondin. L'obtention des premières ébauches de tube est faite par les tubistes grâce à une extrusion à chaud. Les tubes sont ensuite obtenus après plusieurs étapes de laminage et d'étirage avec des traitements thermiques intermédiaires sous atmosphère d'hydrogène à partir de ces ébauches creuses.

Les dernières opérations de fabrication qui jouent un grand rôle sur la microstructure de l'état de réception consistent en une hypertrempe suivie d'un écrouissage par étirage à froid sur mandrin pour obtenir les tubes aux dimensions de la gaine (voir [Figure 1.4](#)). Pour l'AIM1, aucun traitement thermique n'est effectué après l'écrouissage à froid.

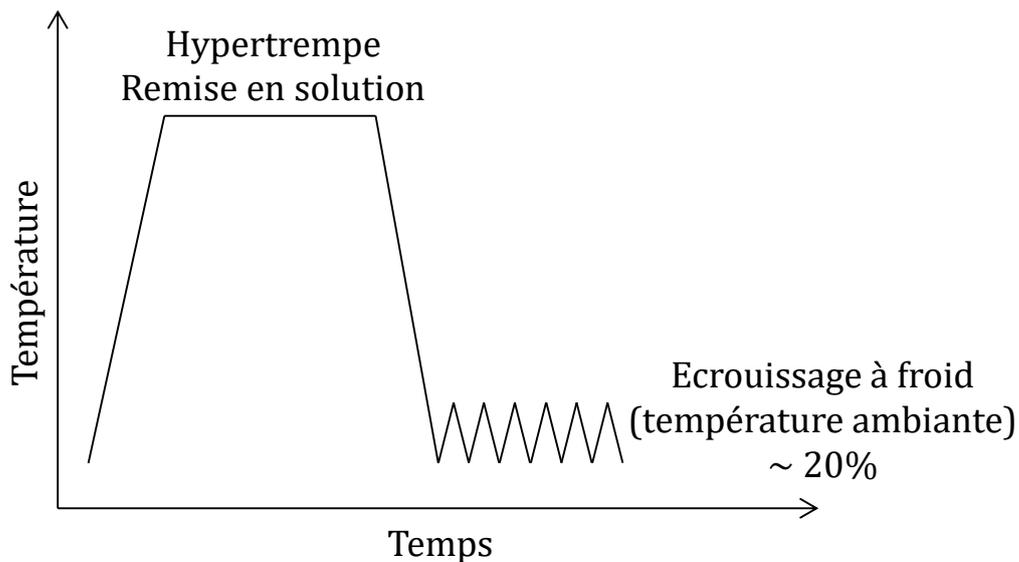


Figure 1.4 - Dernières étapes de fabrication des gaines de combustible en AIM1 (D'après le « Fascicule de spécification FS211I tubes de gaines et gaines » 1998).

Ces dernières étapes permettent une optimisation de la précipitation en service. Le traitement thermique d'hypertrempe permet de dissoudre une grande partie des précipités tout en conservant la taille de grain spécifiée ($5 < G_{ASTM} < 9$). Cette étape est importante et permet une remise en solution maximale du carbone et du titane. La vitesse de trempe doit être suffisamment rapide pour éviter une précipitation de carbures. Les caractéristiques précises du dernier traitement thermique d'hypertrempe (température, temps de stabilisation, vitesse de refroidissement) ne sont pas détaillées dans ce manuscrit par souci de confidentialité. A la suite de cette étape, le matériau totalement recristallisé n'admet qu'une faible densité de dislocations (de l'ordre de 10^{12} à 10^{13} m^{-2}).

L'écroissage à froid (par étirage) est réalisé, en partie, pour limiter le gonflement d'irradiation. En effet, les dislocations agissent comme des puits de défauts favorisant les recombinaisons sous irradiation, et diminuent ainsi la création de cavités (principale cause du gonflement des gaines). Il faut cependant veiller à ne pas induire trop d'écroissage pour éviter un début de restauration et de recristallisation précoce des gaines de combustible en service.

Par ailleurs, l'écroissage final à froid permet une précipitation homogène des carbures de titane nanométriques pendant le service permettant un épinglage optimal des dislocations, ce qui retarde leur réarrangement dû à la restauration (Vasudevan et al. 1996b; Maziasz et McHargue 1987). Un écroissage aux alentours de 20% à froid est préconisé pour permettre une résistance optimale aux phénomènes de restauration et recristallisation (Vasudevan et al. 1996a; Vasudevan et al. 1994).

Le matériau étudié est par conception instable à haute température, une précipitation est donc attendue lors d'un maintien à chaud qui, en laboratoire, est réalisé par traitements thermiques. L'état de l'art à ce sujet est présenté dans la [partie 1.1](#) du [Chapitre 2](#).

3. Caractérisation du matériau de l'étude

Cette partie présente les résultats des caractérisations de l'AIM1 de l'étude, très importants pour la comparaison des microstructures à chaud détaillées dans le [Chapitre 2](#). Les éléments comme la taille de grains, l'état de précipitation et la microstructure d'écroissage sont à prendre en compte. Le protocole pour les préparations métallographiques sur gaine est présenté dans la [partie 1](#) de l'[Annexe 1](#). La procédure et les calculs utilisés pour le dépouillement des cartographies obtenues par diffraction des électrons rétrodiffusés (EBSD) sont présentés dans la [partie 2](#) de l'[Annexe 1](#). L'analyse chimique a été vérifiée à l'aide de la microsonde de Castaing. La mesure de taille de grains a été réalisée au microscope optique après attaque électrolytique et comparée avec les cartographies EBSD. Les précipités ont été observés au microscope optique et par microscopie électronique en transmission (MET). La microstructure d'écroissage a été caractérisée au MEB par des cartographies EBSD, mais également au MET.

3.1. Géométrie

Les tubes d'AIM1 étudié dans cette thèse proviennent d'une fabrication industrielle de tubes de gaines pour le réacteur à neutrons rapides Superphénix. Suite à l'arrêt de Superphénix, ces tubes n'ont pas été mis en pile. Le lot nommé G0 a été utilisé. Le diamètre externe de la gaine est de 8.50 mm pour une épaisseur spécifiée à 0.565 mm (diamètre interne 7.37 mm).

3.2. Composition chimique

Composition (%massique)	C	Cr	Ni	Mo	Si	Mn	Ti	P	B
Spécification min.	0,080	14	14	1,30	0,70	1,00	0,30	0,030	0,003
Spécification max.	0,100	16	16	1,70	0,90	2,00	0,50	0,050	0,008
Analyse chimique	0,098 CIR ⁴	14,64 SEO ⁵	15,32 SEO	1,45 SEO	0,83 SEO	1,53 SEO	0,42 SEO	0,044 SEO	0,006 SEO
Analyse Microsonde (matrice)	-	15	15	1,5	0,80	1,6	0,23	0,050	-

Tableau 1.4 – Composition chimique du matériau de l'étude vérifiée par des analyses (les méthodes utilisées pour chaque élément sont indiquées sous les valeurs correspondant à chaque élément) et à la microsonde de Castaing. Les autres éléments présents à l'état d'impuretés ne sont pas détaillés dans ce tableau (teneur massique < 0.03%).

La composition chimique du matériau de l'étude est présentée dans le **Tableau 1.4**.

L'homogénéité spatiale de la composition chimique du matériau a été étudiée à l'aide de trois profils dans l'épaisseur du tube à la microsonde de Castaing. La teneur en éléments obtenue est en accord avec l'analyse chimique et la spécification de l'AIM1. La teneur en titane dans la matrice est plus faible de moitié que celle indiquée dans la spécification de l'AIM1. Ces résultats sont en accord avec les travaux de (Courtin 2016), qui estime une teneur en titane en solution solide (les plus petits précipités primaires de 200 nm sont inclus) entre 0,20 et 0,27% (pour un traitement thermique d'hypertrempe à 1130°C). Ces résultats sont cohérents notamment avec la présence de gros précipités primaires sur l'état de réception. Cela explique la teneur environ deux fois plus faible en titane en solution solide obtenue en microsonde par rapport à celle mesurée sur l'ensemble du matériau.

⁴ CIR : Combustion à détection infra-rouge

⁵ SEO : Spectrométrie d'émission optique

3.3. Taille de grains et précipités primaires

La mesure de la taille de grains a été déterminée par la méthode décrite dans (Norme ASTM E112-12) sur une métallographie après attaque électrolytique obtenue à grandissement $\times 200$. Le traçage d'un cercle de diamètre correspondant à $200\ \mu\text{m}$ sur l'échantillon permet un comptage de plus de 100 grains, ce qui est conforme à la norme. Le nombre de grains total est comptabilisé à partir du nombre de grains à l'intérieur du disque et interceptés par le cercle. Les macles n'ont pas été prises en compte lors du comptage des grains. Des calculs de taille de grains ont été également réalisés à partir des mesures MEB/EBSD en guise de comparaison (Tableau 1.5). Le calcul de la taille de grain par EBSD a été effectué en éliminant les macles afin de pouvoir comparer cette méthode de comptage en EBSD avec la méthode utilisée à l'aide du microscope optique. La détermination de la taille de grains a été réalisée sur les deux plans (r,θ) et (z,θ) du tube, schématisés sur la Figure 1.6.

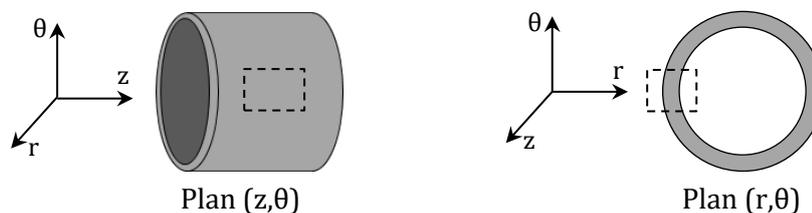


Figure 1.6 - Schémas des différents plans de coupe du tube.

Taille de grains (μm)	Microscope optique	MEB/EBSD
Dans le plan (r,θ)	30 (165 grains)	31 (157 grains)
Dans le plan (z,θ)	32 (150 grains)	33 (138 grains)

Tableau 1.5 - Récapitulatif des tailles de grains calculés par la méthode ASTM au microscope optique après attaque électrolytique et par MEB/EBSD.

La taille de grains moyenne de l'AIM1 à l'état de réception vaut $30 \pm 5\ \mu\text{m}$, soit une taille de grains G équivalente à 7 selon la norme ASTM ce qui est conforme à la spécification ($5 < G_{\text{ASTM}} < 9$). Les valeurs déterminées au microscope optique et en EBSD sont cohérentes. Il n'a pas de variation de la taille de grains avec le plan de coupe. Du fait des niveaux de déformation appliqués, l'étirage à froid n'a pas induit une variation significative de la taille de grains selon l'axe z et les grains restent equiaxes. L'incertitude de $5\ \mu\text{m}$ est supérieure à la réduction de diamètre (10%) lors d'un écrouissage à froid de 20%. Cela implique que l'incertitude ne dépend pas du plan de prélèvement. Par ailleurs, il a été montré dans la thèse de (Courtin 2016), que la texturation n'est pas très prononcée pour le 15-15Ti de référence étiré à froid. Une légère texturation de fibre selon les composantes $\langle 111 \rangle$ et $\langle 200 \rangle$ est néanmoins observée (Figure 1.7).

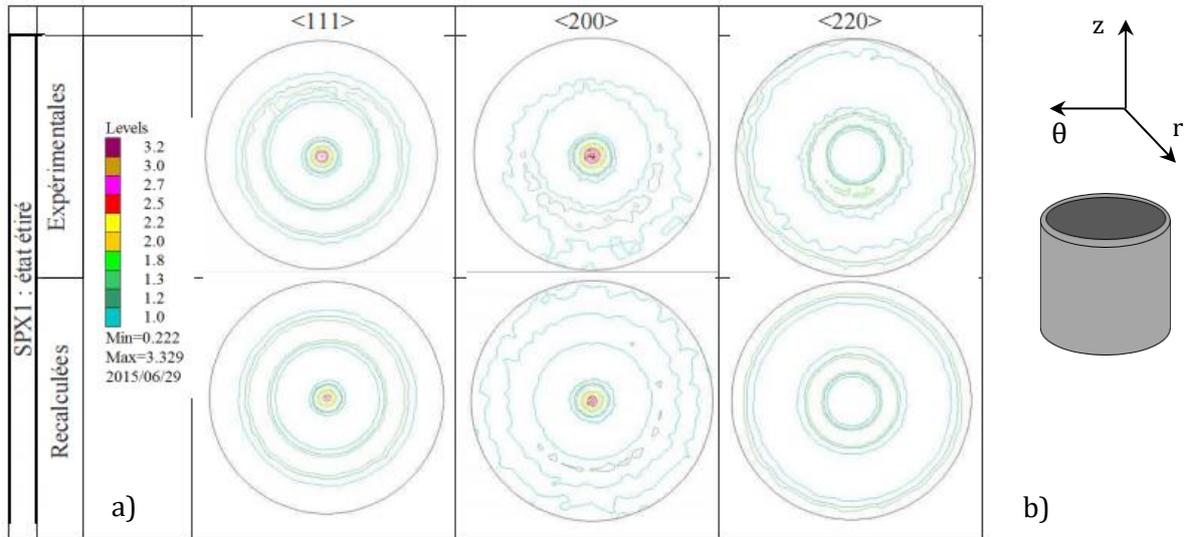


Figure 1.7 – a) Représentations de la texture par les figures de pôles expérimentales et recalculés par (Courtin 2016) pour l'AIM1 étiré et b) repère associé à la figure de pôle (z au centre). Ces résultats ont été obtenus par diffraction des neutrons.

L'indice de texture rend compte de l'état global de la texture. (Courtin 2016) a déterminé un indice de texture de 1,37 pour l'AIM1 étiré, ce qui est proche de la valeur attendue pour un matériau isotrope ($I = 1$ pour une absence de texture).

Les précipités observés sont cohérents à ceux trouvés dans les thèses de (Rouxel 2016) (Kountchou 2017) et (Courtin 2016) sur des fabrications proches de l'AIM1 et sont présentés sur la **Figure 1.8**.

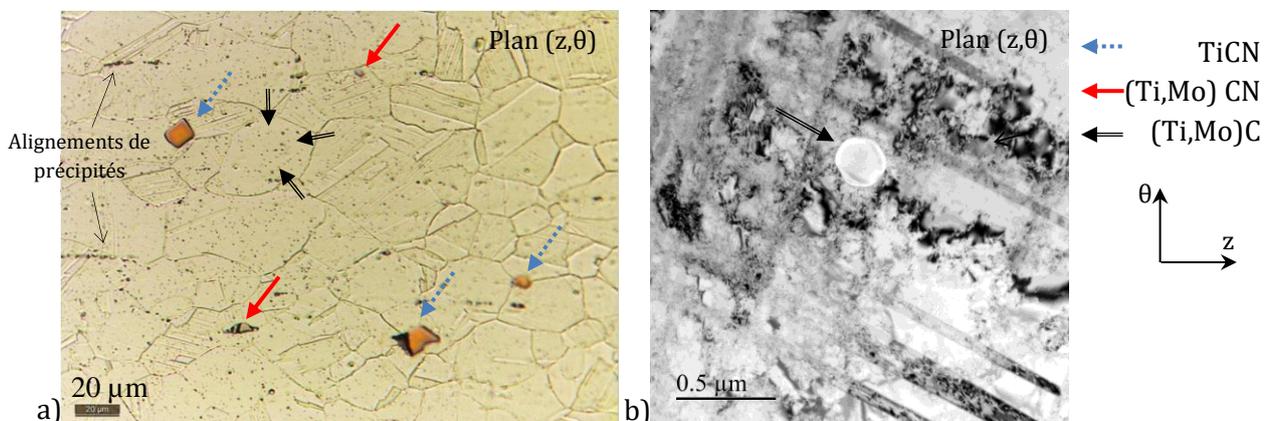


Figure 1.8 – Images prises a) au microscope optique après attaque électrolytique mettant en évidence les précipités primaires pour l'état de réception, b) au MET d'un (Ti, Mo)C primaire (non dissous après le traitement thermique d'hypertrempe) observé en champ clair sur lame mince.

Les précipités de type $Ti(C,N)$ sont reconnaissables en microscopie optique par leur morphologie polygonale et leur couleur orangée (flèches bleues de la **Figure 1.8 a**). Ces précipités ont une structure « cœur-coquille » avec un « cœur » enrichi en azote et en titane, et avec des bords enrichis en carbone (Courtin 2016). Les $Ti(C,N)$ ou $Ti_4C_2S_2$ sont indiqués par les flèches rouges sur la **Figure 1.8 a**. Leur taille est de l'ordre du micromètre.

De plus fins précipités intragranulaires de type $(Ti,Mo)C$ sont indiqués par les flèches noires dans la **Figure 1.8 a**. Leur taille est de l'ordre de 200 nm et leur répartition est homogène dans la matrice.

Certains déchaussements de ces précipités dus probablement à l'étirage à froid sont parfois observés, ce qui sera sans incidence sur le comportement à chaud. Les précipités (Ti,Mo)C sont répartis de manière homogène et sont présents dans les grains et dans les joints de grain. Les observations dans le sens d'étirage montrent un alignement de ces précipités selon l'axe z. Aucun carbure de chrome n'a été observé sur le matériau de référence, y compris au MET.

3.4. Microstructure d'écroissage

Comme il était attendu d'après les observations de (Padilha, Plaut, et Rios 2003) sur un acier 1.4970, et d'après les observations de (Mandal, Bhaduri, et Sarma 2009) sur un acier D9, de nombreuses macles sont observées sur l'AIM1. Au MEB/EBSD (Figure 1.9 a), deux types de macles sont distinguées. Les plus épaisses, appelées macles de recuit, se forment lors de la recristallisation (Mandal, Bhaduri, et Sarma 2009). Par conséquent, les macles de recuit observées sur le matériau de réception ont été créées lors du traitement thermique d'hypertrempe qui induit une recristallisation. Leurs joints sont généralement rectilignes, mais il n'est pas rare d'observer des joints de macles légèrement dentelés ou courbés, probablement dû à la déformation engendrée ensuite par l'écroissage à froid (Figure 1.9 a). Les macles plus fines, appelées macles de déformation, sont à peine reconnaissables au microscope optique après attaque électrolytique et sont mieux mis en évidence au MEB/EBSD (Figure 1.9 a) et au MET (Figure 1.9 b). L'épaisseur de ces macles est de l'ordre de 10 à 20 nm. Cette faible épaisseur explique la difficulté de la détection de ces macles au MEB/EBSD (épaisseur parfois plus fine que le pas de la cartographie). La superposition de la cartographie de qualité des clichés de diffraction (IQ) avec la cartographie des orientations codées selon une figure de pôle inverse (IPF) (Figure 1.9 a) permet néanmoins de les deviner. Ces macles sont désorientées de 60° par rapport à la matrice et peuvent être mises en évidence par endroits par la révélation des joints de macles de type $\Sigma 3$. En suivant le critère communément retenu, l'écart maximal à la coïncidence $\Sigma 3$ utilisé pour définir les macles est donné par le critère de Brandon (Brandon 1966) :

$$\Delta\theta = 15^\circ \Sigma^{-1/2} \quad (1.4)$$

La désorientation maximale tolérée par le logiciel comme écart à la coïncidence est donc de $8,7^\circ$ pour des macles $\Sigma 3$.

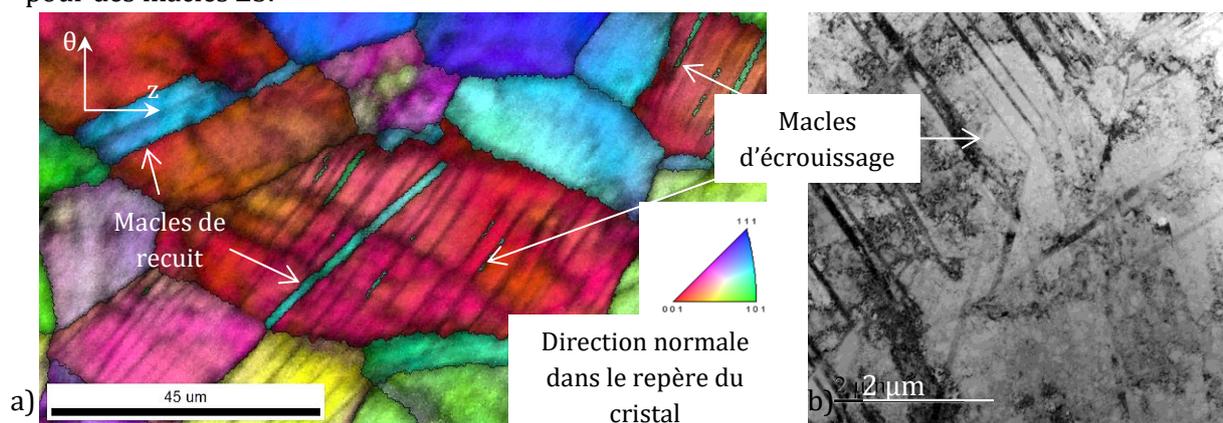


Figure 1.9 - a) Cartographie IPF(r) et IQ avec un pas de $0,3 \mu\text{m}$ et b) image prise au MET (champ clair) mettant en évidence les macles de recuit et de déformation de l'état de réception.

Le maillage mécanique de cet acier suggère une énergie de défaut d'empilement faible à température ambiante.

La caractérisation qualitative de l'état de déformation du matériau de référence a été réalisée plus en détail au MEB/EBSD et au MET.

- Caractérisation de l'état d'écroutissage au MEB/EBSD :

La représentation en cartographie IPF (r) rend compte des directions cristallographiques des grains parallèles à la direction \vec{r} . Des cartographies IPF (r) du matériau de référence écroui et du matériau hypertrempé sont présentées sur la **Figure 1.10**. Cet état hypertrempé a été obtenu à partir d'une gaine écrouie à 20 % à froid puis traitée thermiquement à 1140°C pendant 2 min pour l'obtention d'une microstructure totalement recristallisée. Les joints de grains et de macles sont tracés en noir (désorientation entre 15° et 180°). L'orientation cristallographique des grains n'admet pas d'orientation particulière, quelle que soit la direction utilisée dans le repère du cristal, ce qui est cohérent avec les mesures de texture de (Courtin 2016). L'écroutissage à froid n'a donc pas engendré de texturation significative de l'acier (**Figure 1.10 a**).

Par ailleurs, au sein des grains, des gradients d'orientation cristalline (se traduisant par des gradients de couleur sur les cartographies en mode IPF) sont observés, contrairement à ce que l'on observe sur l'IPF du matériau hypertrempé (**Figure 1.10 b**). Ce résultat peut s'interpréter par des désorientations internes des grains dues au gradient de densité de dislocations géométriquement nécessaires induit par l'écroutissage à froid.

La distribution des angles de désorientation des joints et la perte de coïncidence des macles sont présentées sur la **Figure 1.11**. Les joints désorientés aux alentours de 60° correspondent à des joints de macles $\Sigma 3$. La fraction de joints de ces macles est de 30%. D'autre part, 16% des joints sont désorientés d'environ 5°. Ces faibles désorientations témoignent de la déformation des grains écrouis. De plus, le graphique CSL (Coincidence Site Lattice), illustrant la déviation des joints $\Sigma 3$, permet également de mettre en évidence l'état de déformation du matériau. En effet, une perte de coïncidence des macles de recuit par rapport à la désorientation idéale 60° $\langle 111 \rangle$ est constatée (**Figure 1.11**). La distribution de désorientations pour un CFC sans texture est donnée par le calcul de Mackenzie (décrit dans la thèse de (Thomas 2005)) qui correspond au bruit de fond de la **Figure 1.11 a**).

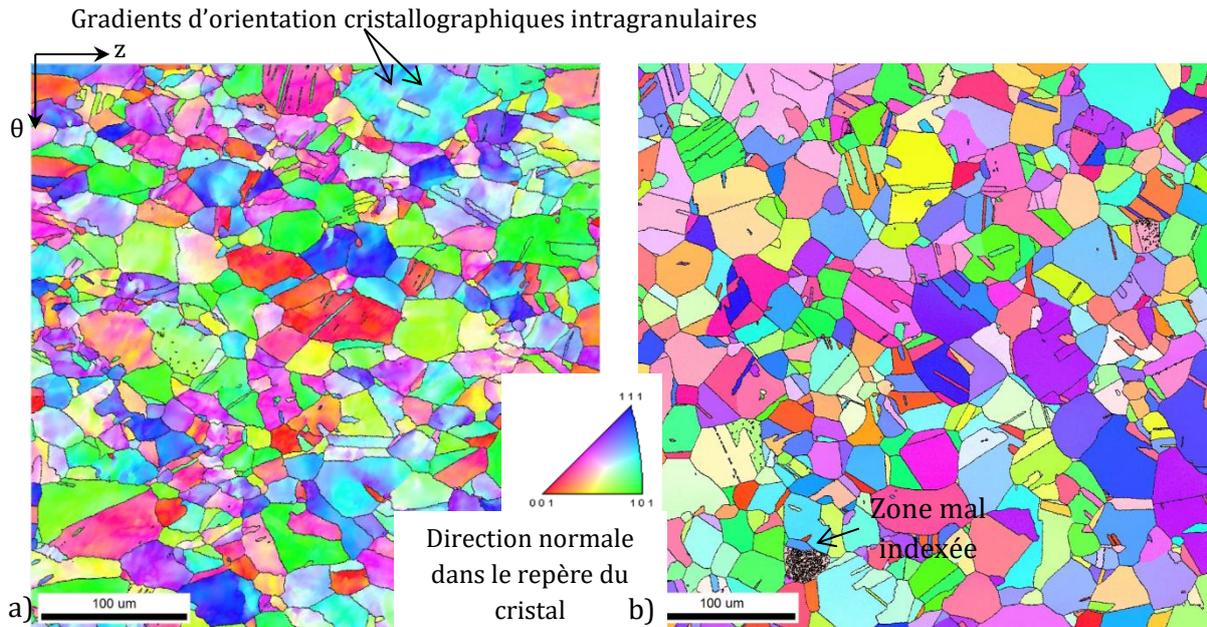


Figure 1.10 - Cartographie IPF du matériau à l'état a) de réception et b) hypertrempé.

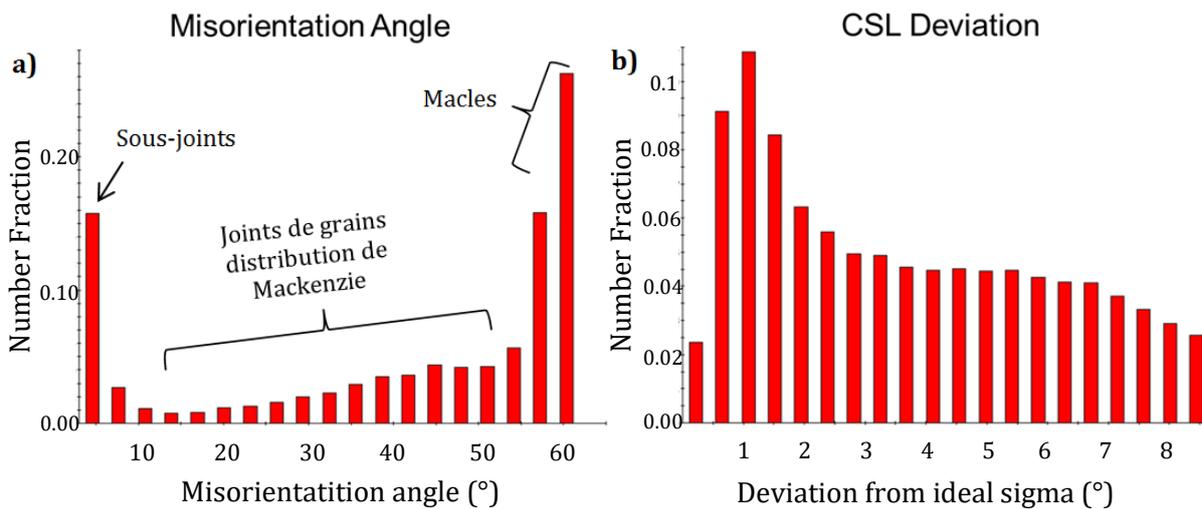


Figure 1.11 - a) Histogramme des angles de désorientation et b) déviation CSL pour un $\Sigma 3$.

Le résultat du calcul Grain Orientation Spread (GOS) qui permet de déterminer la déformation moyenne de chaque grain est présenté sur la **Figure 1.12** (la méthode est présentée dans l'**Annexe 1, partie 2**). La cartographie du matériau écroui est présentée sur la (**Figure 1.12 a**) et la cartographie du matériau hypertrempé sur la (**Figure 1.12 b**). La microstructure de l'état de réception est globalement homogène, avec une désorientation moyenne des grains comprise entre 2° et 5° (environ 82% de grains jaunes). Les grains sont majoritairement déformés voire très déformés (environ 13% de grains rouges). Cette microstructure contraste avec celle de l'état hypertrempé dont les grains portent une faible désorientation interne, ce qui est caractéristique d'une microstructure totalement recristallisée (96% de grains bleus). Notons par ailleurs que la présence de $\Sigma 3$ est divisée par deux pour l'état de réception par rapport à l'état hypertrempé. Ce constat pourrait s'expliquer par le fait que l'érouissage à froid perturbe la désorientation des macles.

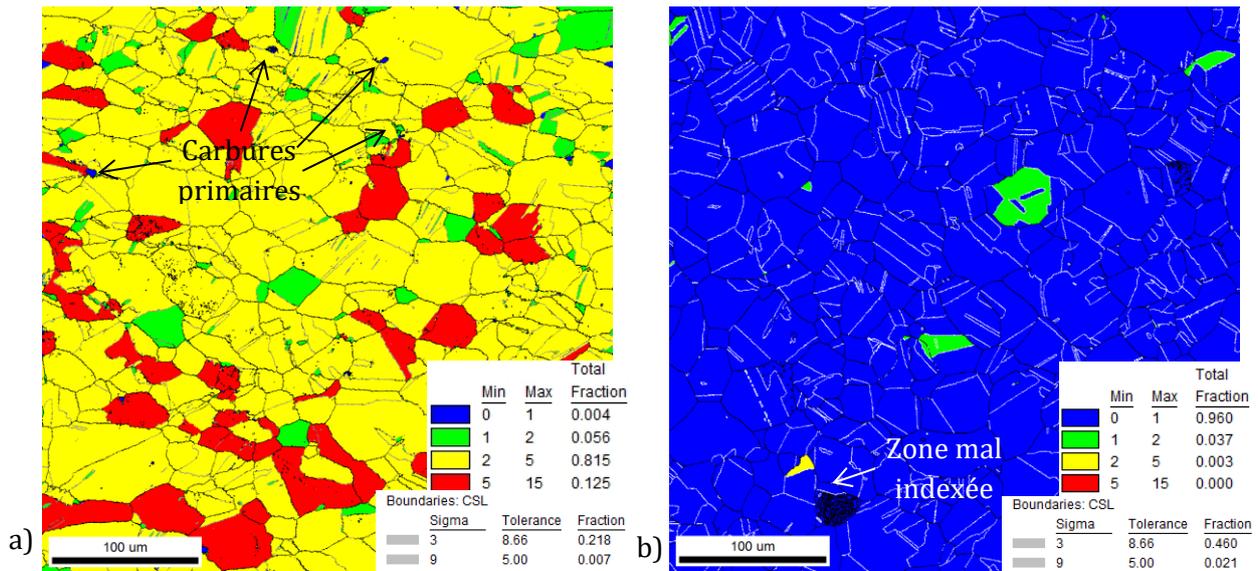


Figure 1.12 - Cartographie GOS pour a) l'état de réception et b) l'état hypertrempé avec les joints de coïncidence $\Sigma 3$ et $\Sigma 9$ en gris clair et les joints de grains (désorientation supérieure à 15°) en noir.

Les histogrammes du GOS sont présentés sur la Figure 1.13. La distribution pour l'état de réception est centrée entre 2 et 4° et est davantage étalée par rapport à la distribution de l'état hypertrempé, centrée entre 0 et 1° .

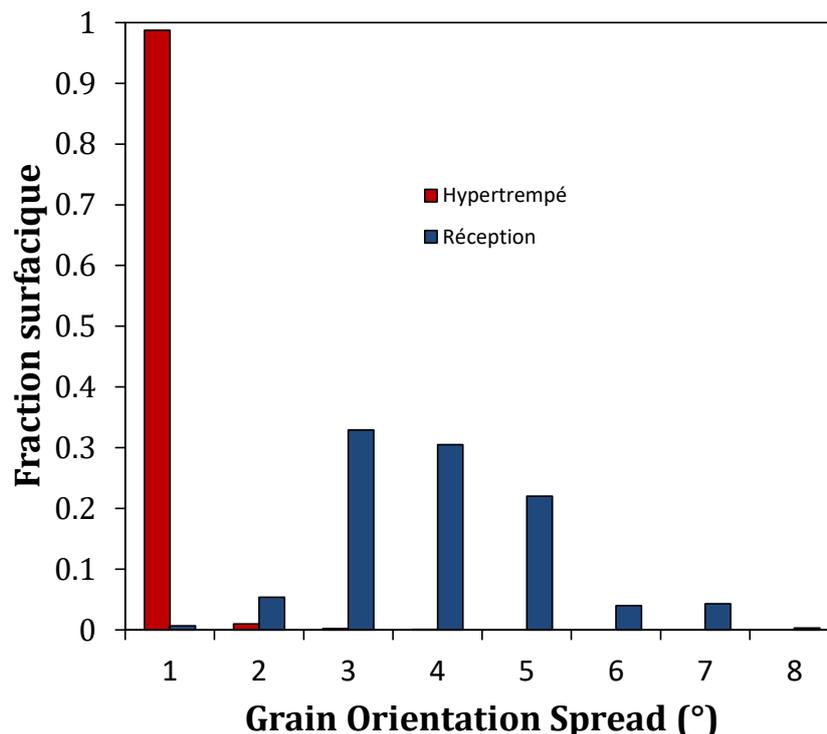


Figure 1.13 - Histogramme GOS pour l'état de réception et l'état hypertrempé.

- Caractérisation de l'état d'écroutissage au MET :

Contrairement à l'EBSD, le MET ne donnera pas lieu à une quantification des structures de déformation du fait des effets d'échantillonnage notamment.

Une densité de dislocations élevée a été constatée au MET, rendant les observations particulièrement difficiles pour l'état écroui à froid (Figure 1.14). La densité de dislocations

reportée dans la littérature est entre 3×10^{15} et $4 \times 10^{15} \text{ m}^{-2}$ après écrouissage à froid à 20% pour un acier 316L (Murugesan et al. 2012). Des structures semblables à des cellules de dislocations sont observées par endroits.

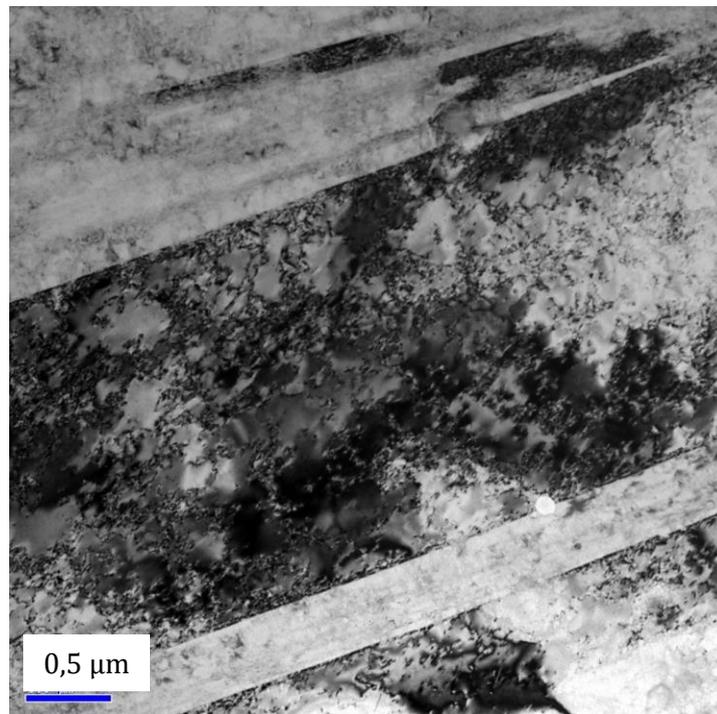


Figure 1.14 - Image en champ clair de l'AIM1 à l'état de réception illustrant la forte densité de dislocations et la présence de macles.

3.5. Microdureté

Des mesures de microdureté Vickers ont été réalisées. La méthode ainsi que les résultats présentés dans ce paragraphe seront pris comme référence pour la suite du manuscrit. Les échantillons sont préalablement préparés par polissage (pâte diamantée) jusqu'à la granulométrie $1 \mu\text{m}$ et éventuellement attaqués pour la révélation des joints de grains.

Les mesures sont réalisées sous une charge de 100 g pendant une durée de 10 secondes pour chaque empreinte. Cette charge a été choisie afin d'obtenir une taille d'empreinte faible ($30 \mu\text{m}$) pour la réalisation d'un nombre suffisant d'empreintes dans l'épaisseur (plan (r, θ)). Le fait d'avoir des petites empreintes peut cependant induire une forte dispersion si le matériau est hétérogène.

Des mesures de microdureté ont également été réalisées dans le plan (θ, z) . La dureté moyenne est indépendante du plan choisi, avec des valeurs de $282 \pm 11^6 \text{ HV}_{0,1}$ pour le plan (r, θ) et $279 \pm 11 \text{ HV}_{0,1}$ pour le plan (θ, z) .

Les mesures dans le plan (r, θ) suivant 4 profils sont présentées sur la **Figure 1.15 a** et les empreintes illustrées sur la **Figure 1.15 b**. La dispersion des valeurs est relativement importante avec un écart type de $15 \text{ HV}_{0,1}$ et une différence de $61 \text{ HV}_{0,1}$ entre les valeurs minimale et maximale. Cette dispersion, se retrouve également dans le plan (r, θ) , avec un écart-type de $11 \text{ HV}_{0,1}$ et une

⁶ L'incertitude a été déterminée à partir de l'écart type des 40 mesures.

différence de 52 HV_{0,1} entre les valeurs minimale et maximale. Les valeurs de microdureté ont tendance à être légèrement plus élevées en bord externe qu'en bord interne. La dispersion des résultats est sensiblement la même quel que soit le profil réalisé.

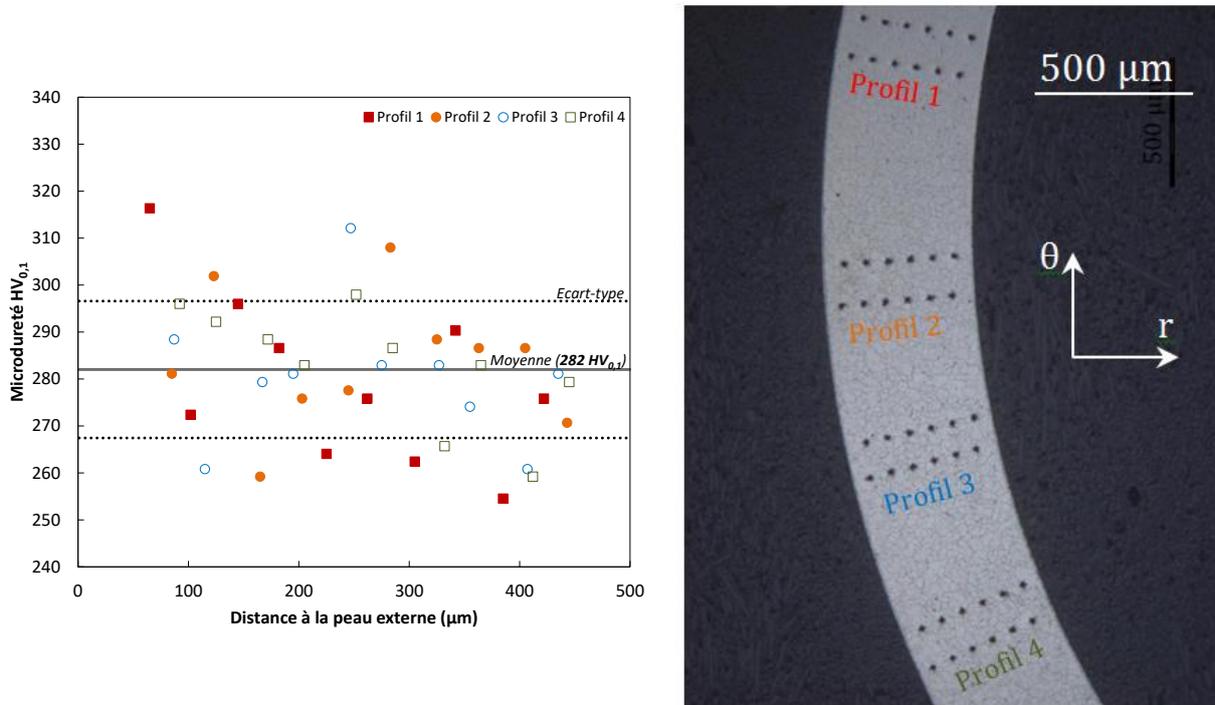


Figure 1.15 - a) Résultats de microdureté montrant la moyenne et l'écart-type calculés sur l'ensemble des quatre profils et b) image au microscope optique illustrant les différents profils réalisés.

La microdureté moyenne mentionnée dans la littérature vaut environ 300 HV_{0,1} (et 280 HV₁₀) pour des aciers de type 15-15Ti, hypertrempés entre 1100°C et 1200°C puis écrouis à 20 % (Delalande 1992; Courtin 2016; Sidhom 1983). Les résultats de la thèse sont cohérents avec ceux de la littérature.

La dispersion observée est liée à l'écrouissage à froid du matériau de réception. Comme il a été montré dans le paragraphe 3.3, les déformations intragranulaires ne sont pas homogènes, et les grains peuvent être plus ou moins déformés ce qui pourrait expliquer au moins en partie la dispersion observée. En guise de comparaison, des essais de microdureté ont été réalisés sur le matériau hypertrempé. La valeur moyenne obtenue est alors 156 HV_{0,1}, et l'écart type est divisé par deux par rapport à l'état écroui de 20% (7 HV_{0,1}). La forte densité de dislocations de l'état écroui permet donc d'augmenter la dureté moyenne de 125 HV_{0,1} et d'expliquer (au moins en partie) la dispersion des résultats dans les deux plans étudiés.

3.6. Conclusion sur le matériau à l'état de réception

La composition mesurée à la microsonde de Castaing et par une analyse chimique réalisée par Bureau Veritas permet de situer l'AIM1 dans la famille des aciers inoxydables austénitiques et stabilisés au titane. Comme le montre les profils microsonde et de microdureté, le matériau présente une bonne homogénéité de composition (absence de ségrégation) dans l'épaisseur de la gaine. Les caractéristiques de la matrice (taille de grains, état de déformation, maillage, microdureté) et des précipités sont cohérentes avec la spécification de l'AIM1 et les données relevées dans la littérature sur des nuances proches de l'AIM1.

L'étirage à froid conduit à un état d'érouissage très hétérogène pour l'AIM1, la dispersion des valeurs de microdureté permet de l'illustrer. A la suite de traitements thermiques ou d'essais mécaniques à chaud, les évolutions microstructurales pourraient potentiellement conserver cette hétérogénéité. C'est pourquoi, l'utilisation du MEB (tailles des cartographies, contre-essais sur le même échantillon) a été privilégiée dans ces travaux, par rapport au MET (dans la mesure du possible), pour limiter au maximum les éventuels effets d'échantillonnage.

Par ailleurs, le matériau de référence est dans un état microstructural qui sera instable à chaud : l'hypertrempe permet d'obtenir une solution solide sursaturée et l'érouissage à température ambiante induit de nombreuses dislocations. Ces dislocations sont des sites potentiels de germination des carbures de titane pendant les traitements thermiques et sont amenées à disparaître par restauration et recristallisation.

4. Conclusion concernant la métallurgie structurale des aciers inoxydables austénitiques et caractérisations de l'AIM1 à l'état de réception

Ce premier chapitre présente les caractéristiques et les caractérisations du matériau de l'étude à l'état de réception. L'AIM1 est un acier inoxydable 100% austénitique grâce à sa composition riche en nickel et en chrome. Les dernières étapes de fabrication de la gaine de combustible en AIM1 permettent une remise en solution maximale du titane et du carbone en solution solide et un écrouissage à froid de 20% pour limiter le gonflement sous irradiation. La microstructure de l'état de réception hérite de ces procédés de mise en forme, ce qui peut être vérifié par la présence de/d'une :

- Précipités primaires, d'un diamètre supérieur ou égal à 200 nm, non dissous suite aux traitements thermiques d'hypertrempe. La présence de carbures de chrome n'a pas été observée ;
- Macles de recuit (épaisses), apparues lors de la recristallisation complète du matériau pendant le traitement thermique d'hypertrempe précédant l'écrouissage à froid ;
- Macles de déformation (fines), apparues lors de la déformation à froid ;
- Importante densité de dislocations et gradients d'orientation cristalline, observés au MEB/EBSD et au MET, liés à la déformation à froid. La forte dispersion des résultats de microdureté a été attribuée à l'hétérogénéité des déformations dans les grains et de la différence de désorientation moyenne d'un grain à l'autre (calculée grâce au GOS).

Le nombre de macles présentes dans les microstructures de 15-15Ti indique que l'EDE pour ce type de matériau est faible.

L'instabilité et l'hétérogénéité du matériau de réception discutées dans ce chapitre permettra de comparer et de mieux comprendre les évolutions microstructurales à chaud présentées dans le Chapitre 2.

Chapitre II

Evolution microstructurales au cours d'un maintien à haute température sans contrainte appliquée

Sommaire

1. Etat de l'art : précipitation et phénomènes de restauration et recristallisation	40
1.1. Précipitation.....	40
1.1.1. Nature et cinétique de précipitation dans les 15-15Ti	40
1.1.2. Domaine d'existence des précipités à l'équilibre	48
1.1.3. Cinétique de précipitation	52
1.2. Restauration.....	56
1.3. Recristallisation	61
1.4. Bilan de l'état de l'art et positionnement des travaux	66
2. Evolutions microstructurales de l'AIM1 au cours de recuits isothermes.....	67
2.1. Démarche expérimentale et choix des températures et temps de maintien.....	67
2.2. Etude de la précipitation.....	69
2.3. Détermination de la cinétique de restauration.....	80
2.4. Détermination de la cinétique de recristallisation.....	85
2.5. Evolution de la microdureté et comparaison avec les cinétiques de restauration et de recristallisation.....	91
2.6. Etablissement d'un modèle d'adoucissement empirique pour l'AIM1	96
2.7. Conclusion des résultats des évolutions microstructurales de l'AIM1 au cours de recuits isothermes.....	101
3. Conclusion concernant les évolutions microstructurales au cours de recuits isothermes.....	102

Ce deuxième chapitre concerne les évolutions métallurgiques de l'acier de l'étude en conditions isothermes sans chargement mécanique appliqué en regard des données existantes pour d'autres aciers austénitiques stabilisés. Une première partie présente l'état de l'art concernant les phénomènes adoucissants de restauration et de recristallisation de ces aciers, ainsi que la précipitation après traitements thermiques. Une deuxième partie concerne les résultats du

matériau de l'étude. Une troisième et dernière partie présente une synthèse des résultats expérimentaux obtenus par le biais de modèles analytiques.

1. Etat de l'art : précipitation et phénomènes de restauration et recristallisation

Compte tenu de l'instabilité du matériau de référence (**Chapitre 1**), la précipitation intervient très rapidement dans ce matériau pré-écroui, c'est pourquoi la précipitation de 15-15Ti est présentée dans le premier paragraphe. Les nuances présentées dans ce chapitre sont dans un état hyperecroui puis écroui à froid, sauf mention du contraire. Néanmoins, lors de la comparaison entre les résultats obtenus sur les différents 15-15 Ti et les résultats obtenus sur l'AIM1, certaines précautions sont à prendre compte tenu des différents procédés de mise en forme et les différentes chimies pouvant mener à des différences d'évolutions microstructurales et de comportements mécaniques.

1.1. Précipitation

1.1.1. Nature et cinétique de précipitation dans les 15-15Ti

Différentes natures et morphologies de précipités sont observées en fonction des gammes de temps et de températures étudiées. Ce paragraphe détaille les différents précipités observés.

- Carbures de titane (TiC ou (Ti,Mo)C) :
 - *Solubilité des TiC*

De manière générale on distingue deux types de population de TiC (Kesternich 1985a):

- Les précipités primaires formés pendant la solidification de l'alliage, d'une taille comprise entre 200 nm et 1 µm dans le matériau hyperecroui qui ne sont pas dissous au cours du traitement thermique d'hyperecroui. La solubilité des carbures de titane dans les aciers stabilisés de type 18Cr-12Ni est donnée par la relation (Lacombe et al. 1990) :
 - $\text{Log}[\text{Ti}][\text{C}] = 2,97 - \frac{6780}{T(\text{K})}$
- Les précipités secondaires très fins, d'une taille inférieure à 30 nm, qui se dissolvent lors du traitement thermique d'hyperecroui. Ils précipitent de nouveau suite à des maintiens à des températures inférieures à 1100°C, préférentiellement sur les dislocations. Ils sont observables en inter et intragranulaire (Todd et Ren 1989)⁷. Ces résultats sont à prendre avec précaution, car l'acier étudié par les auteurs (Todd et Ren 1989) contient de nombreux éléments carburigènes, ce qui pourrait modifier la précipitation en intergranulaire par rapport à l'AIM1 (par traînage de soluté par exemple).

⁷ Caractérisations réalisées sur un acier écroui à 5,6% de composition : 0,076C-0,12Si-2,04Mn-16,20Ni-13,90Cr-0,27Ti-0,15Nb-0,52V-2,46Mo-0,024P-0,015S-0,02N-0,005B-0,008Co.

La faible solubilité du titane et du carbone dans l'austénite implique qu'une bonne partie de ces éléments se trouve dans les précipités primaires même après le traitement thermique d'hypertrempe (Kesternich et Nandedkar 1991; Delalande 1992; Kesternich et Meertens 1986). Par conséquent, la teneur en titane et en carbone disponible en solution solide pour la précipitation de carbures de titane secondaires est inférieure à la teneur globale.

La structure cristalline de ces précipités est de type NaCl, et la substitution d'atomes de titane avec des atomes de molybdène et parfois de chrome est fréquente (Kesternich et Nandedkar 1991). Bien que ces précipités puissent se former sans la présence de molybdène, les TiC possèdent une forte affinité avec cet élément (Lee et Mansur 2000). Environ 20% de molybdène (pourcentage massique des éléments métalliques) est présent dans les TiC (Courtin 2015), (Rouxel 2016). Les données cristallographiques associées aux TiC sont détaillées dans le [Tableau A2.1](#) de l'[Annexe 2](#).

○ *Effet de la température sur la distribution des TiC secondaires*

(Kesternich 1985a) a étudié la précipitation des nanocarbures sur un acier DIN 1.4970 écroui à froid puis traité thermiquement. L'auteur a fait part de ses difficultés à observer ces fins TiC sur un état écroui, d'une part car ils sont très fins (diamètre inférieur à la dizaine de nanomètres), et d'autre part car le champ de déformation élastique induit par la présence des dislocations obscurcit l'image réalisée au MET. Il a utilisé pour ce faire la technique des franges de Moiré (Phillips 1966), sans pour autant détailler les conditions de grandissement ni l'axe de zone utilisé. Dans les thèses de (Kountchou 2018; Rouxel 2016), les TiC secondaires sont mis en évidence en condition deux ondes B=002 (champ clair).

La germination des TiC dans l'austénite est difficile, c'est pourquoi ils germent sur les défauts tels que les dislocations, les défauts d'empilement et les joints de grains incohérents (Kesternich 1985b; Kesternich 1988). Par conséquent, la présence de dislocations est essentielle pour la germination de TiC secondaires, comme l'ont montré (Kesternich 1985a; Kesternich et Meertens 1986; Todd et Ren 1989; Gopalan et al. 1998) en mettant en évidence l'absence de TiC secondaires dans un acier non écroui. Todd et Ren 1989 ont observé la présence de TiC dans les joints de grains. La présence de TiC secondaires sur un matériau hypertrempe puis traité thermiquement, sur des dislocations proches de TiC primaires a également été observée (Todd et Ren 1989). Cette germination s'explique par un gradient de déformation d'origine thermique, puisque la dilatation thermique est différente entre la matrice et le précipité, plastifiant ainsi localement la matrice au refroidissement. Les auteurs ont aussi conclu que la précipitation des TiC secondaires est contrôlée par la restauration des dislocations jusqu'à la température de 900°C (sur un matériau écroui à 15%). Les dislocations augmentent localement la concentration en soluté, ce qui favorise la germination de TiC dans les zones où les dislocations ont interagi ou se sont annihilées. La contribution des atmosphères de Cottrell des deux dislocations permet d'augmenter la sursaturation locale en titane et en carbone. Lorsque les TiC sont suffisamment gros pour épingler les dislocations, la restauration s'arrête et le grossissement des TiC cesse (fin de croissance). La barrière interfaciale joue également un rôle sur l'arrêt de la croissance des précipités.

Les TiC secondaires sont connus pour leur stabilité jusqu'à 3000 h à 800°C (Todd et Ren 1989) et 17 ans à environ 600°C (Leitnaker et Bentley 1977). Cette stabilité est principalement due à la solubilité du titane et du carbone dans la matrice à l'énergie d'interface particule-matrice relativement réduite, de la cohérence de la précipitation et de la diffusivité titane et du carbone (Kesternich 1985a).

De plus, (Kesternich 1985a) a montré que pour une température de 750°C, la vitesse de croissance est relativement rapide jusqu'à un temps de maintien de 0,2 h avec une taille de précipités de 4 nm. Ce diamètre se stabilise ensuite à 7 nm pour une durée de maintien jusqu'à 2000 h (cf. **Figure 2.1**). La taille des précipités en fonction du temps de maintien à 750°C est bien plus basse par comparaison avec les prédictions des modèles classiques de croissance par diffusion, ce qui confirme cette grande stabilité morphologique des TiC secondaires.

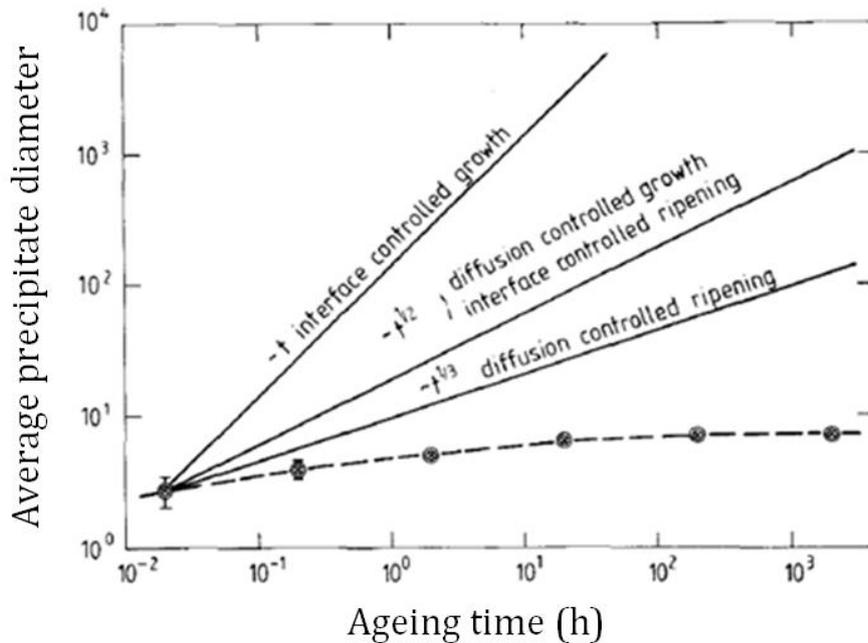


Figure 2.1 – Taille des TiC mesurée par MET après 15% d'écroutissage à froid et un traitement thermique à 750°C en fonction du temps de maintien pour un DIN 1.4970 (Kesternich 1985a).

○ Optimisation de la distribution des TiC en condition de service

La fraction de ces précipités dans la matrice dépend de la sursaturation en élément stabilisant. Autrement dit, la température et le temps de traitement d'hypertrempe doivent être les plus élevés possible afin que la remise en solution solide du titane dans la matrice soit maximale (Todd et Ren 1989 ; Courtin 2016 ; Sidhom 1983).

Une fois ces paramètres optimisés, la précipitation fine et dense des carbures de titane est bénéfique pour limiter le gonflement car elle permet de piéger les défauts sous irradiation et stabiliser le réseau de dislocations (Lee et Mansur 2000).

(Kesternich 1988) a montré une dépendance du diamètre des TiC envers le taux d'écroutissage à froid, après un traitement thermique de 800°C pendant 24 h (**Figure 2.2**).

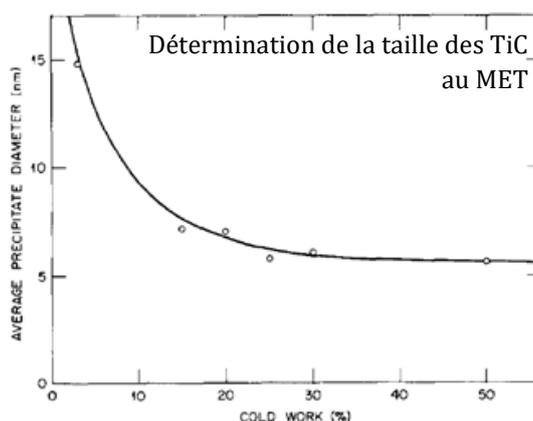


Figure 2.2 - Taille moyenne des précipités de type TiC dans un acier inoxydable austénitique DIN 1.4970 après un traitement thermique à 800°C pendant 24 h en fonction du taux d'érouissage à froid préalable, d'après (Kesternich 1988).

La taille des précipités diminue de manière monotone avec l'augmentation du taux d'érouissage. L'auteur observe une taille de 15 nm pour un érouissage à froid de 3% et une taille de 7,2 nm pour un érouissage à froid de 15% (Tableau 2.1). Ce résultat s'explique du fait que la densité de dislocations est plus faible pour un érouissage de 3%, la probabilité pour que les dislocations interagissent ou s'annihilent est donc plus faible, ce qui implique moins de sites à forte sursaturation en titane et en carbone donc moins de sites de germination pour des faibles taux de déformation.

Auteurs	Érouissage à froid	Conditions du traitement thermique	Taille des TiC secondaires (nm)
(Kesternich et Meertens 1986)	1.4970 (15 % éroui)	600°C, 100 h 650°C, 100 h 800°C, 24 h 900°C, 100 h 1000°C, 24 h	Pas de TiC secondaires 4,5 7,2 8,0 (NRX*) 30 (RX**) Présents (non quantifiés)
(Kesternich 1988)	1.4970 (15 % à 50 % éroui)	550°C ⁸ 650°C 800°C 900°C	Pas de TiC secondaires 4,5 (NRX) 7,1 (NRX) et 22 (RX) 8,4 (NRX) et 28 (RX)

*NRX : Valeur pour des grains Non Recristallisés ; **RX : Valeur pour des grains Recristallisés

Tableau 2.1 - Récapitulatif de la taille des nano-précipités (mesure par observations au MET) de TiC en fonction des conditions du traitement thermique et du taux d'érouissage à froid pour des aciers inoxydables austénitiques 1.4970 – écart à la moyenne et fraction volumique non renseignées.

○ Déstabilisation de la précipitation à haute température

Les résultats présentés dans le Tableau 2.1, montrent également qu'à partir de 950°C, la taille des TiC dans les grains recristallisés est quadruplée (environ 30 nm) par rapport aux TiC dans les grains encore érouis (7 nm). (Kesternich et Meertens 1986) ont observé une précipitation inhomogène au sein des grains recristallisés avec des zones dépourvues de précipités. Par conséquent, les auteurs ont suggéré une dissolution des TiC présents dans les anciens grains

⁸ Temps de maintien non renseigné pour toutes les températures indiquées.

écrouis lors du passage du front de recristallisation. La reprécipitation de TiC de 30 nm se déroulerait à l'interface grains recristallisé/grain écroui. (Kesternich et Meertens 1986) supposent notamment que la cinétique de croissance des TiC augmente par le biais du mécanisme de mûrissement d'Ostwald. L'évolution de la taille des TiC est alors gouvernée par la recristallisation (Kesternich 1985a; Kesternich et Meertens 1986; Ghuezaïel 1985; Delalande 1992). Les auteurs ont également mis en évidence une précipitation des TiC parallèles les uns aux autres dans un grain donné, ce qui indique une précipitation sur les anciens joints de macle lors de l'avancée du front de recristallisation (Figure 2.3). Ce phénomène pourrait s'expliquer par l'augmentation de la concentration en soluté dans le joint en mouvement, ce qui favoriserait cette reprécipitation.

Par conséquent l'optimisation de la précipitation en carbures de titane n'est valable que pour un état non recristallisé. Une fois recristallisé, la taille des précipités est plus de 4 fois plus élevée par rapport aux grains écrouis et la distribution spatiale est hétérogène (le long d'anciens joints de macles, macles initialement présentes dans les grains écrouis).

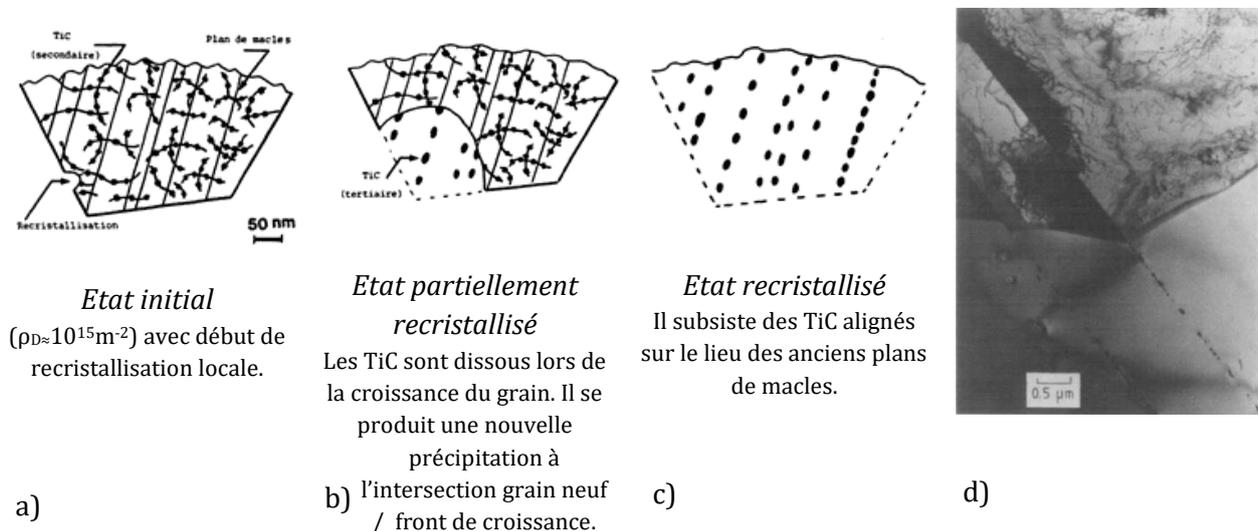


Figure 2.3 - a), b) et c) Schémas d'après (Ghuezaïel 1985) montrant la croissance d'un grain recristallisé dans un grain maclé et présentant un réseau de dislocations épinglé par des carbures primaires ; d) illustration du phénomène dans un acier DIN 1.4970 par (Kesternich et Meertens 1986).

- Carbures de chrome ($M_{23}C_6$ et M_6C)

Les carbures de chrome, de structure CFC, sont classiquement observés dans les aciers inoxydables austénitiques et sont notamment connus pour favoriser la corrosion intergranulaire. En effet, les précipités $M_{23}C_6$ sont localisés dans les joints de grains et les bandes de déformation, ce qui entraîne une sensibilisation à la rupture dans les joints en conditions oxydantes. La composition de ces précipités étant assez variable en fonction de la composition en éléments mineurs, les éléments chimiques mentionnés ici sont strictement limités au chrome, fer, nickel, et molybdène (Annexe 2). L'addition de titane réduit la présence de $M_{23}C_6$ car le carbone précipite davantage sous forme de carbures de type TiC. Cependant, l'ajout de phosphore favorise la formation de $M_{23}C_6$ ou de phase η (ou M_6C) car le titane précipite partiellement avec le phosphore pour former des phosphures, il y a donc moins de titane disponible pour former des TiC. Cette diminution de TiC implique une augmentation de la teneur en carbone disponible, permettant une précipitation de $M_{23}C_6$. Les $M_{23}C_6$ ne sont plus stables au-delà de 900°C (Padilha et al. 1999). Leur

cinétique de précipitation est rapide ; ils sont présents au bout de 12 min à 800°C pour un 15-15Ti d'après (Todd et Ren 1989). La taille de ces précipités est de l'ordre de 1 µm.

La phase η (ou M_6C), de structure CFC, est présente dans les aciers inoxydables austénitiques enrichis en carbone, silicium et molybdène. Cette phase résulterait d'un enrichissement des éléments métalliques M de la phase $M_{23}C_6$ en molybdène.

- Borures de chrome (M_xB_y)

(Schanz et Padilha 1980) ont étudié la précipitation des borures de type M_2B sur des aciers DIN 1.4970 en variant la teneur globale en bore entre 30 et 100 ppm. Dans la littérature, cette phase est répertoriée comme étant orthorhombique ou tétragonale (structure de type Al_2Cu). Une synthèse des caractéristiques cristallographiques pour les borures de type M_2B et M_4B réalisée par (Garcia-Borquez et Kesternich 1984) est présentée dans le [Tableau A2.1](#) de [Annexe 2](#).

Le ratio Fe/Cr (calculé en pourcentage massique) pour les précipités de type $(Cr,Fe)_2B$ est compris entre 0,210 et 0,316.

(Garcia-Borquez et Kesternich 1984) ont montré, en particulier pour les M_4B , que cette phase précipite préférentiellement aux joints de grains, et notamment sur des joints triples. La présence de ces précipités en intragranulaire n'est cependant pas exclue. Le domaine d'existence en température des borures dépend de la teneur globale en bore. Ce domaine est compris entre 700°C et 1100°C pour des teneurs en bore comprises entre 38 et 100 ppm (Garcia-Borquez et Kesternich 1984; Schanz et Padilha 1980). La taille de ces précipités⁹ dépend de la température du traitement thermique et varie entre 350 et 900 nm (Garcia-Borquez et Kesternich 1984). (Kesternich et Meertens 1986) ont pu observer des borures mesurant jusqu'à 3 µm de diamètre pour un traitement thermique de 1000°C pendant 24 h¹⁰. Ces précipités se caractérisent aussi par un nombre important de défauts plans qui permettent de les distinguer des carbures en MET conventionnelle.

- Phosphures (M_xP)

Pour des aciers suffisamment enrichis en phosphore (> 200 ppm), de nombreux auteurs ont montré la présence de phosphures (dans des aciers mono stabilisés au titane ou multi stabilisés au titane, niobium et vanadium) de morphologie de type aiguille (Delalande 1992 ; Lee and Mansur 2000). Les paramètres de maille et les structures sont présentés dans le [Tableau A2.1](#) de [Annexe 2](#).

⁹ Pour un acier 65,9Fe-14,9Ni-15,3Cr-1,3Mo-1,9Mn-0,3Si-0,3Ti-0,1C-0,0038B avec traitement d'hypertrempe à 1100°C et écroui à froid 15%.

¹⁰ Pour un acier DIN 1.4970 contenant 0,006% de bore.

La stœchiométrie de ces précipités peut varier de M_3P à M_2P en fonction de la teneur globale en phosphore dans l'acier. (Delalande 1992) a récapitulé les compositions chimiques moyennes des phosphures (en pourcentages massiques et atomiques), elles sont présentées dans le **Tableau 2.2**.

316TiP (900 ppm de phosphore) Structure (Fe,Ti)₂P	Fe	Cr	Ni	Mn	Mo	Si	Ti	Nb	V	P
% massique (structure hexagonale)	30,0	10,1	9,1	0,64	9,0	1,8	24,6	-	0,26	14,4
% atomique (structure hexagonale)	26,0	9,5	7,8	0,7	4,6	2,8	25,6	-	-	22,6
% massique (structure orthorhombique)	30,1	4,1	11,6	0,38	7,3	0,15	27,1	0,06	0,28	18,8
% atomique (structure orthorhombique)	25,7	3,7	9,5	0,3	3,4	0,5	27,3	-	0,1	29,4

Tableau 2.2 – Composition chimique moyenne des phosphures déterminée par EDX au MET sur des aciers 316TiP (Delalande 1992) après traitement thermique à 750°C pendant 2000 h.

Notons que la composition chimique varie peu entre les deux structures cristallographiques (sauf pour le chrome dont la teneur est plus faible pour la structure orthorhombique). La présence de stabilisants (ici le titane) dans les aciers inoxydables austénitiques 316Ti est nécessaire pour la précipitation de ces phosphures. Ceci a été montré par (Delalande 1992) en comparant la précipitation d'un acier 316 P avec un 316TiP¹¹.

La **Figure 2.4** illustre leur morphologie à l'aide de clichés réalisés au MET par (Leitnaker et Bentley 1977). Bien que la nature de ces précipités n'ait pas été identifiée par les auteurs, la présence de 300 ppm en phosphore dans l'acier étudié laisse à penser que ces aiguilles sont effectivement des précipités de type phosphures.

Selon (Maziasz et McHargue 1987; Delalande 1992), les phosphures permettraient, tout comme les TiC secondaires, de stabiliser le réseau de dislocations et ainsi de retarder les phénomènes de restauration et de recristallisation.

¹¹ Précipitation étudiée après un traitement thermique à 750°C pendant 2000 h sur un acier préalablement hypereutecté et écroui à froid.

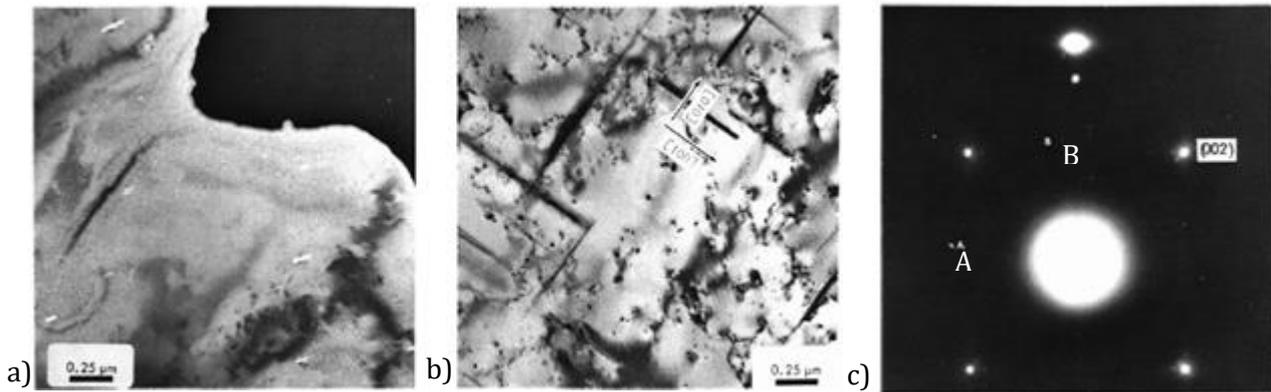


Figure 2.4 – Mise en évidence de précipités de type aiguille sur un acier 321 a) en champ sombre b) en champ clair et c) cliché de diffraction (taches A et B) (Leitnaker et Bentley 1977).

La précipitation de ces phosphures aurait pour impact une augmentation de la résistance au fluage des aciers inoxydables austénitiques de type 316Ti et 15-15Ti enrichis en phosphore (Ghuezaiel 1985; Delalande 1992). Les phosphures sont présents dans des aciers mono et multi stabilisés à la suite de traitements thermiques entre 650°C et 800°C (Delalande 1992). L'auteur a également montré que la longueur de ces aiguilles pouvait augmenter d'un facteur trois en multipliant par 10 le temps de maintien à 750°C (500 nm au bout de 200 h contre 1,5 μm pour 2000 h de maintien). (Todd et Ren 1989) ont également observé une longueur de 1 μm pour un traitement thermique de 800°C pendant 3000 h de maintien, ce qui suggère une très grande stabilité de ces précipités pour des maintiens longs dans ce domaine de température.

Après un traitement thermique, les aiguilles de phosphures sont réparties de manière plus fine dans les échantillons écrouis que dans les non écrouis (Todd et Ren 1989). La précipitation de phosphures serait donc facilitée par la présence de dislocations. (Lee et Mansur 2000 ; Todd et Ren 1989) suggèrent même une association phosphures/dislocations. (Lee et Mansur 2000) ont montré que la formation de ces phosphures est très lente (absence au bout de 24 h à 600°C et à 675°C, présence à partir de 500 h à 600°C et à 675°C).

- Phases intermétalliques

La plupart du temps, les phases intermétalliques sont réputées indésirables.

Les caractéristiques des phases intermétalliques sont répertoriées en détail dans l'[Annexe 2](#).

Les phases de Laves :

Les phases de Laves sont susceptibles d'être trouvées dans tous les alliages contenant du Mo (2% massique minimum (Maziasz 1978)) et constituent la seule phase intermétallique observée dans l'alliage étudié¹² par (Lee et Mansur 2000) pour des temps de maintiens longs entre 650°C et 850°C. Les sites de germination de cette phase sont les dislocations, les joints de macles et joints de grains et les bandes de déformation. Ces précipités sont facilement reconnaissables grâce à leur morphologie en latte. Les phases de Laves contiennent environ 33% atomique de Mo et la stœchiométrie vérifie un ratio M_2Mo (avec M contenant du fer, chrome, ou silicium). Il y a compétition entre la cinétique de précipitation des phases de Laves et des TiC, car les phases de

¹² Alliage de type Fe-15Ni-13Cr, stabilisé au titane (0,22 %) et au niobium (0,4-0,2%).

Laves sont inhibées par la présence de TiC (moins de molybdène disponible en solution solide). (Delalande 1992) a montré l'existence de ces phases de Laves dans des aciers 15-15TiNbV à partir de 750°C. (Delalande 1992) a aussi montré que la présence de phosphore limite l'apparition de cette phase. (Todd et Ren 1989) n'ont pas observé de phases de Laves, même pour des temps prolongés à 800°C¹³.

La phase σ :

La composition de la phase σ est présentée dans le **Tableau A2.1** de l'**Annexe 2**. Cette phase est observée dans les joints triples, les joints de grains et les joints de macles.

Bien que l'AIM1 soit largement dans le domaine de l'austénite, cet acier est potentiellement susceptible de contenir de la phase σ (à l'équilibre thermodynamique) à 500°C et 850°C. En effet, (Weiss et Stickler 1972) ont montré la présence de cette phase dans un acier 316 stabilisé au titane (pour une teneur en molybdène comprise entre 2,05 et 2,6%). Dans la littérature, la phase σ est connue pour précipiter beaucoup plus vite dans la ferrite (décomposition eutectoïde) que dans l'austénite (Padilha et Rios 2002). Sa présence est favorisée par la présence de ferrite résiduelle dans les aciers austénitiques. La présence de cette phase σ dans l'AIM1 pour des traitements thermiques à des temps prolongés est donc fortement improbable dans la gamme de température de l'étude, du fait que l'AIM1 ne contient pas de ferrite résiduelle.

La phase χ :

La composition de la phase χ est présentée dans le **Tableau A2.1** de l'**Annexe 2**. Tout comme les phases de Laves et la phase σ , la phase χ est également observable dans les joints de grains, de macles et les jonctions triples de certains aciers inoxydables austénitiques. La précipitation de cette phase se fait pour des temps très longs. Cette phase a été observée sur des aciers 316 et 321 par (Grot et Spruiell 1975) indépendamment du taux d'érouissage, mais pas sur des DIN 1.4970, ni des D9, dont la composition se rapproche plus de l'AIM1. Les observations (Grot et Spruiell 1975) montrent qu'il est très difficile de distinguer la phase σ de la phase χ en imagerie simple (un cliché de diffraction est nécessaire pour distinguer les deux phases).

Compte tenu des observations réalisées dans la bibliographie, la présence de phases intermétalliques dans l'AIM1 est fortement improbable.

1.1.2. Domaine d'existence des précipités à l'équilibre

Afin de préciser la stabilité des différentes phases, des calculs à l'équilibre pour déterminer le domaine d'existence des précipités en fonction de la température ont été réalisés dans cette étude, à l'aide du logiciel Thermo-Calc. La base TCFE7 (version 7.0) dédiée aux aciers et alliages ferreux a été utilisée et a été utilisée comme base bibliographique pour cette partie. Avant de présenter les résultats, il faut rappeler que les calculs :

- Sont à l'équilibre thermodynamique et utilisent la base disponible ;
- Ne tiennent pas compte de l'effet d'histoire (distinction carbures primaires /carbures secondaires) ;
- Ne tiennent pas compte de l'effet de l'érouissage sur les phases en présence.

¹³ Caractérisations réalisées sur un acier éroui à 5,6% de composition : 0,076C-0,12Si-2,04Mn-16,20Ni-13,90Cr-0,27Ti-0,15Nb-0,52V-2,46Mo-0,024P-0,015S-0,02N-0,005B.

La composition nominale utilisée pour les calculs est celle mentionnée dans la [partie 3.1](#) du [Chapitre 1](#). Les domaines d'existence obtenus sont présentés dans la [Figure 2.5 a](#)¹⁴. Les précipités de type borures (Cr_2B) sont théoriquement stables quelle que soit la température. La présence des phosphures de type M_3P est prédite jusqu'à environ 875°C. Les carbures de chrome sont également prédits jusqu'à 800°C, ce qui est légèrement en dessous du domaine trouvé expérimentalement dans la littérature (jusqu'à environ 850°C, cf. [Tableau 2.3](#)). Les carbures de titane sont présents dans toute la gamme de température. Thermo-Calc prédit la présence de MnS, qui n'est pas répertoriée dans la littérature pour les aciers stabilisés. La présence de $\text{Ti}_4\text{C}_2\text{S}_2$ a été observée sur l'AIM1 (Courtin 2016).

La composition utilisée pour le calcul a ensuite été modifiée en tenant compte des éléments Ti, C et N restants en solution solide pour déterminer la contribution de la précipitation des carbures de titane secondaires (cela suppose que les TiC primaires sont inertes par rapport aux autres phases prédites par le calcul). La composition utilisée pour obtenir le graphique de la [Figure 2.5 b](#) est déduite de la fraction massique de ces éléments en solution solide dans l'austénite à la température d'hypertrempe de 1150°C (carbures primaires seuls), avec :

- $[\text{Ti}]_{\text{ss}} = 0,083\%$
- $[\text{C}]_{\text{ss}} = 0,028\%$
- $[\text{N}]_{\text{ss}} = 1,8 \cdot 10^{-6}\%$

La valeur de la teneur en titane semble cohérente par rapport aux résultats donnés à l'aide de la microsonde de Castaing présentés dans le chapitre 1. En effet, le pourcentage massique en titane est surestimé (prise en compte des carbures primaires).

Le [Tableau 2.3](#) récapitule les fractions volumiques des carbures de titane secondaires estimées à partir de ces calculs pour les températures allant de 650°C à 950°C. Pour la température de 650°C et un temps de maintien de 2000 h, (Rouxel 2016) a déterminé une fraction volumique de 0,32%, ce qui est bien supérieur au résultat calculé à l'équilibre par Thermo-Calc (0,18%). Ce résultat pourrait être dû :

- A une ségrégation de titane et de carbone sur les dislocations, ce que Thermo-Calc ne peut pas prendre en compte ;
- A une mauvaise hypothèse concernant la composition de départ, qui considère qu'au cours du procédé, tous les carbures de titane formés (ou ayant grossi) à l'état solide ont disparu et ne sont plus stables à l'hypertrempe.

Ce résultat ne peut pas être entièrement expliqué par le molybdène non pris en compte par Thermo-Calc dans les carbures de titane.

¹⁴ Les phases σ , χ , de Laves, B_2M et M_3B_2 ont été rejetées du calcul afin qu'il soit plus représentatif des résultats expérimentaux se trouvant dans la littérature pour des aciers de type 15-15Ti stabilisés.

Notons par ailleurs que la fraction volumique prédite par Thermo-Calc ne diminue pas de manière significative avec la température.

Température	Fraction volumique de TiC (%)
650°C	0,18
750°C	0,18
850°C	0,17
950°C	0,15

Tableau 2.3 – Fractions volumiques des carbures de titane secondaires allant de 650°C à 950°C.

D'autres calculs ont été réalisés pour les teneurs à la dernière goutte de liquide (1290°C) (cf. **Figure 2.5 c**) avec les teneurs suivantes :

- $[Ti]_{ss} = 0,18\%$
- $[C]_{ss} = 0,050\%$
- $[N]_{ss} = 1,2 \cdot 10^{-5}\%$

La fraction volumique déterminée à partir de Thermo-Calc pour cette composition à 650°C coïncide davantage avec le résultat de (Rouxel 2016) et vaut 0,37%.

Lorsque les teneurs en titane, carbone et azote sont modifiées, les domaines d'existence des $M_2B_{\text{tétra}}$, Cr_2B_{ortho} , MnS et $Ti_4C_2S_2$ ne sont pas affectés.

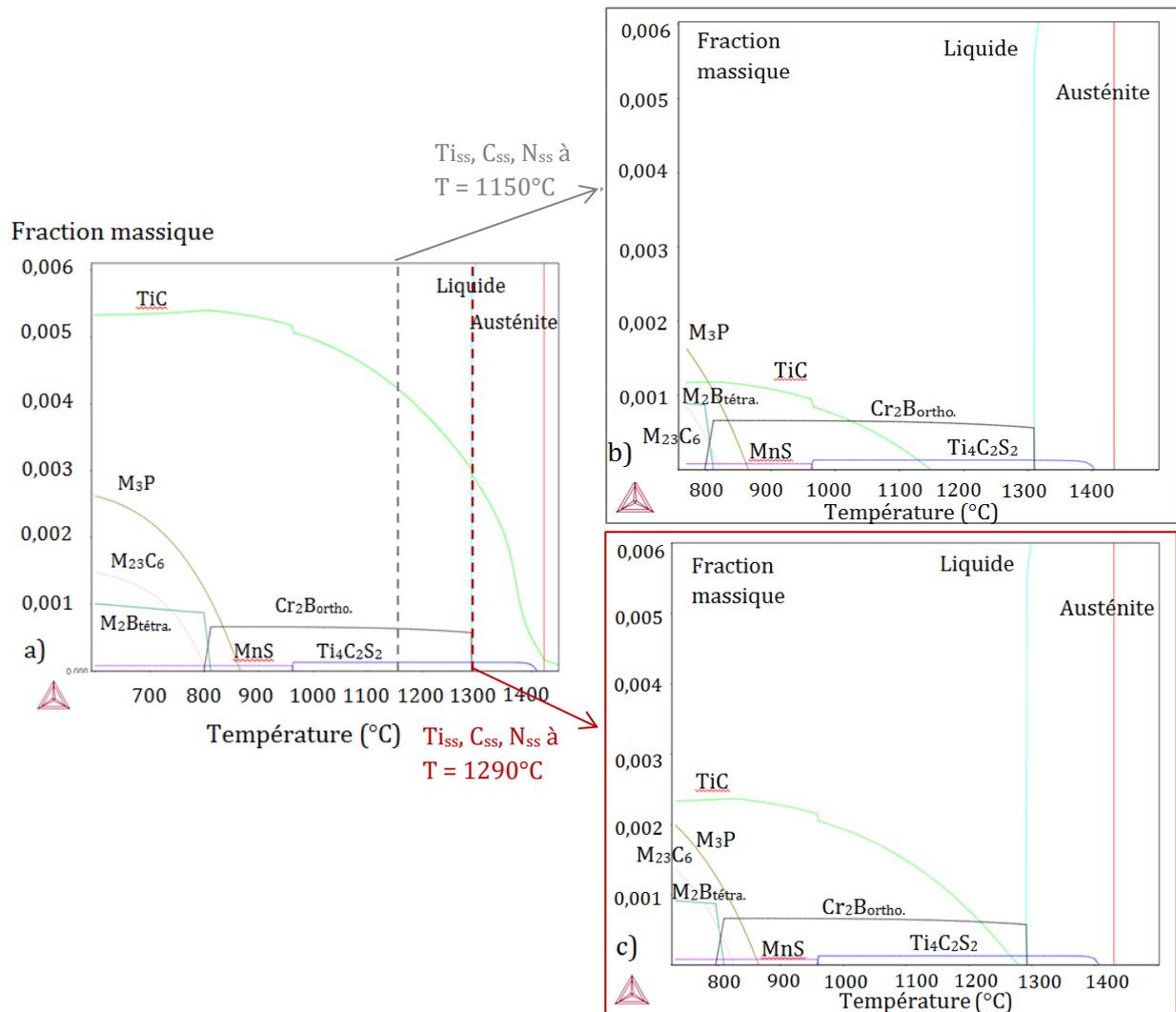


Figure 2.5 – Fraction massique des phases présentes en fonction de la température avec a) la composition nominale, b) une teneur en titane, carbone et azote en solution solide correspondant à la température d'hypertempe ($T=1150^{\circ}\text{C}$) et c) une teneur en titane, carbone et azote en solution solide au solidus estimé ($T = 1290^{\circ}\text{C}$).

La prédiction par Thermo-Calc peut-être très utile pour déterminer les phases attendues lors de maintiens longs à haute température. Néanmoins, certaines imperfections de la prédiction ont été constatées. Notamment, la teneur en molybdène n'apparaît pas dans la composition des carbures de titane, les phosphures ne possèdent pas de titane. Il existe des désaccords entre les prédictions faites par Thermo-Calc et les résultats de la bibliographique, l'origine pourrait être dû au fait que le matériau reste hors équilibre. Les évolutions de la précipitation prédites par Thermo-Calc peuvent être résumées :

- **Intermétalliques** : Aucune phase intermétallique, comme la ferrite δ , n'a été obtenues. Ce résultat est cohérent avec les études réalisées sur des 15-15Ti ;
- **Carbures de titane** : La fraction massique est trop élevée et ne contient pas de molybdène contrairement aux observations de la littérature. Il y a également une diminution de la fraction au passage MnS/Ti₄C₂S₂, qui n'a pas lieu car aucune précipitation de MnS n'a été observée expérimentalement ;
- **Phosphures** : Seuls les M₃P ont été prédits alors que les observations expérimentales ont montré la présence de M₂P et M₃P ;

- **Borures** : Deux types de borures ont été prédits, les Cr_2B de structure orthorhombique pour $T \geq 800^\circ\text{C}$ et les M_2B de structure tétragonale pour $T \leq 800^\circ\text{C}$. Le domaine de stabilité des borures est compris entre 600°C et 1300°C d'après les calculs, le domaine déterminé expérimentalement est moins étendu (700°C - 1100°C). Cela pourrait s'expliquer par des problèmes de cinétique de précipitation à 700°C .
- **Sulfures** : L'apparition de MnS dans les calculs Thermo-Calc est probablement liée à des raisons de cinétique, car cette phase n'a pas été observée expérimentalement.

Les calculs réalisés à l'aide de Thermo-Calc ne sont donc pas représentatifs des résultats obtenus après des recuits longs. Des écarts entre les calculs Thermo-Calc et les résultats expérimentaux obtenus dans cette thèse sont donc probables.

La présence de borures et de phosphures n'a jamais été étudiée pour le cas particulier de l'AIM1 à des températures supérieures à 850°C . Par ailleurs, aucune distinction n'a été réalisée dans la littérature concernant la nature des précipités de type M_{23}C_6 et ceux de type M_2B et Cr_2B , qui coexistent à $T \leq 850^\circ\text{C}$.

1.1.3. Cinétique de précipitation

D'après le paragraphe précédent, il est nécessaire de partir d'un matériau hypereffréché puis effréché à froid afin d'obtenir de bonnes teneurs en solution solide et les sites de précipitation désirés.

Par ailleurs, la stabilité des précipités dépend fortement de la composition chimique de l'alliage et des traitements thermomécaniques réalisés lors de la mise en forme. L'effet de composition chimique initiale est un paramètre très important, les aciers de type AIM1 sont ainsi conçus pour favoriser des précipités tels que les TiC et les M_xP en contrôlant la teneur en titane, en phosphore et en carbone. Afin de représenter au mieux les cinétiques de précipitation, un diagramme Temps-Température-Précipitation (TTP) a été présenté par (Padilha, Schanz, et Anderko 1982) sur un acier 15-15Ti (DIN 1,4970¹⁵) hypereffréché à partir de 1130°C pendant 30 minutes puis effréché à froid de 15% (Figure 2.6 a) (la vitesse de chauffage n'est pas mentionnée). La précipitation simultanée de borures de type $(\text{Cr,Fe})_2\text{B}$ (ou M_2B) est possible avec les M_{23}C_6 et les carbures de titane (Kesternich et Meertens 1986). En revanche, les études menées par (Grot et Spruiell 1975) et (Todd et Ren 1989) ne montrent pas de précipitation de ces borures pour leurs aciers (teneur en bore non mentionnée mais dans doute trop faible). Les diagrammes TTP présentés sur les Figures 2.6 b et c mettent en évidence la présence de phases σ et χ avec un nez à 750°C et un temps de maintien de 0,2 h et 20 h. Néanmoins, l'absence de phase σ est montrée sur l'acier 321. Cela pourrait être dû à l'absence de molybdène ou à l'absence de ferrite résiduelle pour cet acier.

La présence de la phase χ est surprenante pour l'acier 321 (Figure 2.6 c), car cette nuance ne contient pas de molybdène.

Aucun diagramme n'est disponible pour l'AIM1, néanmoins les trois aciers dont les diagrammes sont présentés sur la Figure 2.6 permettent de tirer des informations concernant les cinétiques de précipitation. Pour l'acier :

¹⁵ DIN 1.4970 de composition 0,090C-0,46Si-1,70Mn-15,00Ni-14,60Cr-0,46Ti-<0,05Nb-1,25Mo-0,003P-0,004S-0,07Cu-0,01N-0,005B-0,013Co.

- 321 : il ne contient pas de phosphore, de bore, ni de molybdène mais la teneur en carbone et titane permet la précipitation de TiC. La seule température de nez se trouve vers 750°C avec la précipitation de $M_{23}C_6$ et de la phase χ ;
- 316 stabilisé au titane modifié : il ne contient pas de phosphore, ni de bore d'où l'absence de phosphures et de borures après recuits. Cet acier contient du molybdène mais contient moins de titane que l'AIM1 et le 321. Tout comme l'acier 321, ce 316 stabilisé au titane possède un nez de température à 750°C, avec la précipitation de $M_{23}C_6$ puis celle des phases σ et χ . La présence de ferrite δ pourrait favoriser l'apparition de ces phases intermétalliques.
- DIN 1.4970 : il ne contient du bore mais pas de phosphore. La composition de cet acier est la plus proche de celle de l'AIM1. Le DIN 1.4970 possède deux nez : le premier se situe à une température de 700°C avec la précipitation de $M_{23}C_6$ et le deuxième à 900°C avec la précipitation de M_2B . La précipitation de $M_{23}C_6$ intervient plus tôt pour le DIN que pour les deux autres aciers. Le diagramme réalisé par (Padilha, Schanz, et Anderko 1982) est le seul qui décrit la cinétique de précipitation des borures puisque le DIN est le seul qui contienne du bore.

Ces résultats suggèrent la précipitation rapide des carbures de titane, des $M_{23}C_6$ (15 min à 750°C ou 700°C au plus tôt) et des borures (quelques minutes à 900°C au plus tôt).

Aucun diagramme TTP n'est disponible pour des aciers stabilisés au titane et contenant suffisamment de phosphore pour la précipitation de phosphures.

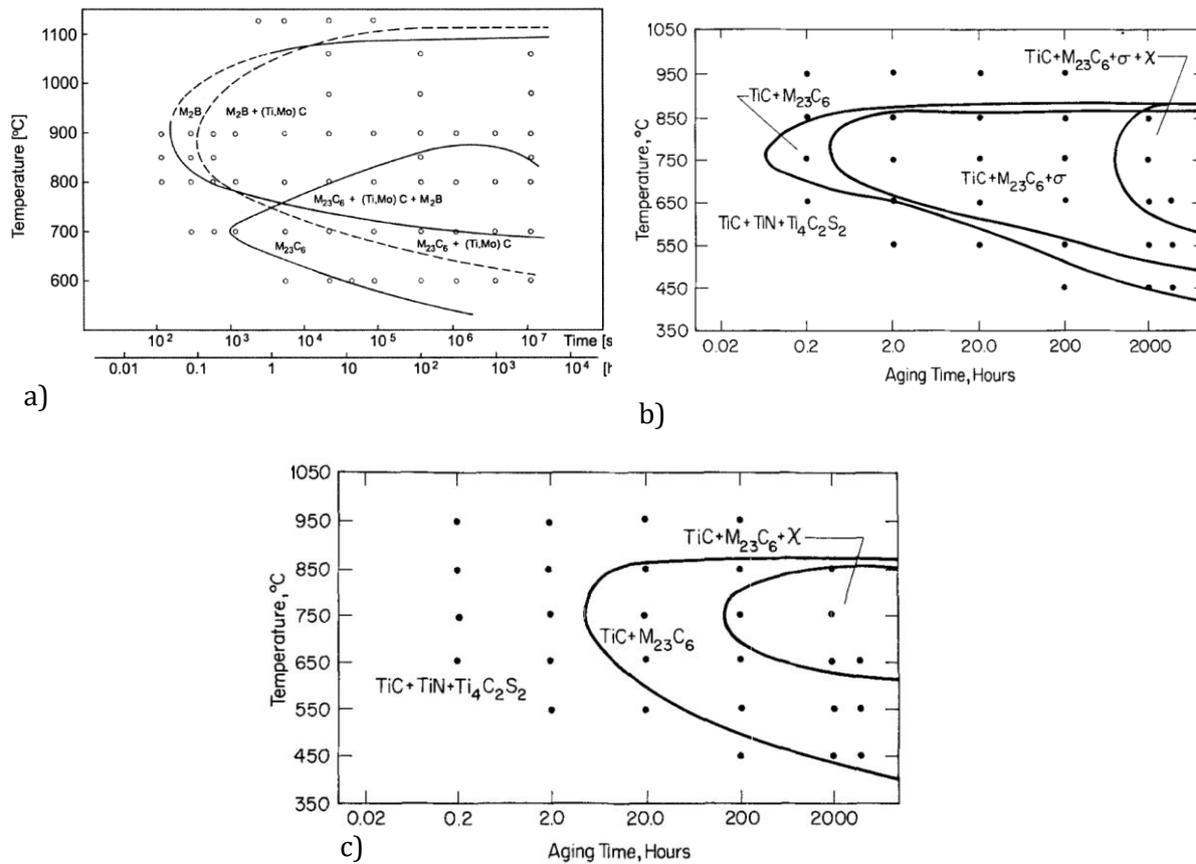


Figure 2.6 – Diagrammes TTP d'aciers stabilisés a) DIN 1.490 écroui à 15% sans phosphore (Padilha et al. 1982), b) 316TiM¹⁶ écroui de 20% (Grot et Spruiell 1975), et c) 321¹⁷ écroui de 20% (Grot et Spruiell 1975) (aciers à bas phosphore et bore).

Le **Tableau 2.4** synthétise les précipités susceptibles d'être présents pour des aciers austénitiques stabilisés au titane et enrichis en phosphore (d'après les diagrammes TTP de la **Figure 2.6**).

L'**Annexe 2** récapitule les caractéristiques des phases intermétalliques et des précipités pouvant être présents dans les aciers inoxydables austénitiques stabilisés.

¹⁶ Il s'agit d'un acier 316 stabilisé au titane modifié et mis en forme par matricage : 0,057C-17,52Cr-13,96Ni-2,51Mo-0,29Ti-1,41Mn-0,03Si-0,005P-0,004S-0,004N.

¹⁷ Acier 321 de composition : 0,06C-17,48Cr-9,58Ni-0,50Ti-1,69Mn-0,54Si-0,012P-0,006S-0,011N.

Températures	Précipités présents	Temps de maintien nécessaire
650°C	TiN Ti ₄ C ₂ S ₂ TiC primaires TiC secondaires M ₂₃ C ₆ M ₂ P ou M ₃ P	Présents avant recuit Présents avant recuit Présents avant recuit 100 h (taille suffisante pour observations) Dès 1 h - 16 h Non mentionné
750°C	TiN Ti ₄ C ₂ S ₂ TiC primaires TiC secondaires M ₂₃ C ₆ M ₂ B M ₂ P ou M ₃ P	Présents avant recuit Présents avant recuit Présents avant recuit Dès 1 min de recuit Dès 0,1 h - 12 h Dès 1 h 200 h (pas de données avant)
850°C	TiN Ti ₄ C ₂ S ₂ TiC primaires TiC secondaires M ₂₃ C ₆ M ₂ B	Présents avant recuit Présents avant recuit Présents avant recuit Dès 1 min de recuit Dès 15 h Dès 5 min de recuit
950°C	TiN Ti ₄ C ₂ S ₂ TiC primaires TiC secondaires M ₂ B	Présents avant recuit Présents avant recuit Présents avant recuit Dès 1 min de recuit (croissance rapide) Dès 5 min de recuit
1100°C- 1200°C	Dissolution des précipités (sauf primaires : TiN, Ti ₄ C ₂ S ₂ , et TiC)	

Tableau 2.4 – Précipités susceptibles d'être présents après maintien isotherme de l'AIM1.

Ce tableau et les informations de la [partie 1.1](#) de ce chapitre permettent de mieux cerner l'état de précipitation attendue pour l'AIM1. La prochaine partie concerne le devenir des dislocations après recuit (restauration), qui jouent un rôle important dans la précipitation des carbures de titane et la stabilisation de la structure.

1.2. Restauration

La restauration se caractérise par l'annihilation des dislocations ayant des vecteurs de Burgers opposés et des vecteurs de ligne de même sens et par un réarrangement des dislocations restantes. A haute température, le phénomène de montée des dislocations est activé grâce à la diffusion atomique qui permet notamment aux dislocations coin de se mouvoir perpendiculairement à leur plan de glissement. Le glissement dévié est également un phénomène pouvant intervenir à haute température et permet aux dislocations d'éviter d'éventuels obstacles et de changer de plan de glissement lors de leur mouvement.

Généralement, le réarrangement des dislocations conduit à la formation de parois de cellules puis progressivement à la formation de sous-grains (bien visibles dans les alliages ayant une EDE élevée). Les phénomènes de restauration dépendent de l'EDE (qui augmente avec la température). En effet, plus l'EDE est élevée et plus les dislocations seront mobiles (en favorisant le glissement dévié et l'activation de plusieurs systèmes de glissement), ce qui facilitera l'annihilation et le réarrangement des dislocations en sous-grains. Dans le cas d'une faible EDE, les dislocations dévient difficilement, la restauration a donc une cinétique plus lente, les mécanismes adoucissants à haute température sont ainsi majoritairement gouvernés par la recristallisation (si $T > T_{\text{recristallisation}}$).

La précipitation des carbures de titane secondaires freine le mouvement des dislocations en les épinglant, retardant ainsi ces mécanismes de réarrangement/annihilation¹⁸ (Vasudevan, Venkadesan, et Sivaprasad 1996). Ces auteurs ont montré que la présence de fins TiC pouvait retarder l'apparition de la restauration et de la recristallisation. Le ratio $\text{Ti}/(\text{C}+6/7\text{N})$ ¹⁹ optimal pour obtenir une fraction volumique élevée de ces TiC secondaires est de 3,67 (Figure 2.7 a). Le ratio pour l'AIM1, calculé à partir de l'analyse Bureau Veritas (Chapitre 1) est très proche, et vaut 4,0. Les auteurs ont ensuite procédé à des essais de traction et des mesures de microdureté pour différents ratios et températures. Ils ont pu établir un diagramme TTS (Temperature Time Softening) présenté sur la Figure 2.7 b. Ils ont pu vérifier que le rapport montrant la meilleure résistance à l'adoucissement vaut également 3,67 (valeur qui permet l'obtention la plus proche de la stœchiométrie atomique) et ainsi en déduire l'effet bénéfique de cette nanoprécipitation (les auteurs n'ont pas déterminé la taille de ces TiC). Les processus de restauration (et de recristallisation) sont ainsi retardés pour un rapport de stabilisation proche de la stœchiométrie atomique. Il y a donc une interaction entre la précipitation et la restauration pour ces aciers stabilisés.

Les courbes de la Figure 2.7 b suivent des tendances identiques, avec un adoucissement plus lent à 750°C par rapport aux autres températures étudiées (même la température de 700°C, qui est plus basse). Le lien de cause à effet passe par la taille des nano-précipités mais cela n'a pas été montré par les auteurs.

¹⁸ Pour un acier D9 avec une teneur en titane qui varie entre 0,21 et 0,42 (3 alliages étudiés). La composition pour les autres éléments est la suivante : 0,05C-15Ni-15Cr-2,2Mo-1,5Mn-0,50Si-0,006N-0,003S-0,01P-0,001B-0,01Co-0,02Ta+Nb. Les alliages sont hypertrempés à 1070°C puis écrouis à froid à 20% avant les traitements thermiques.

¹⁹ Il s'agit d'un rapport des teneurs en pourcentage massique.

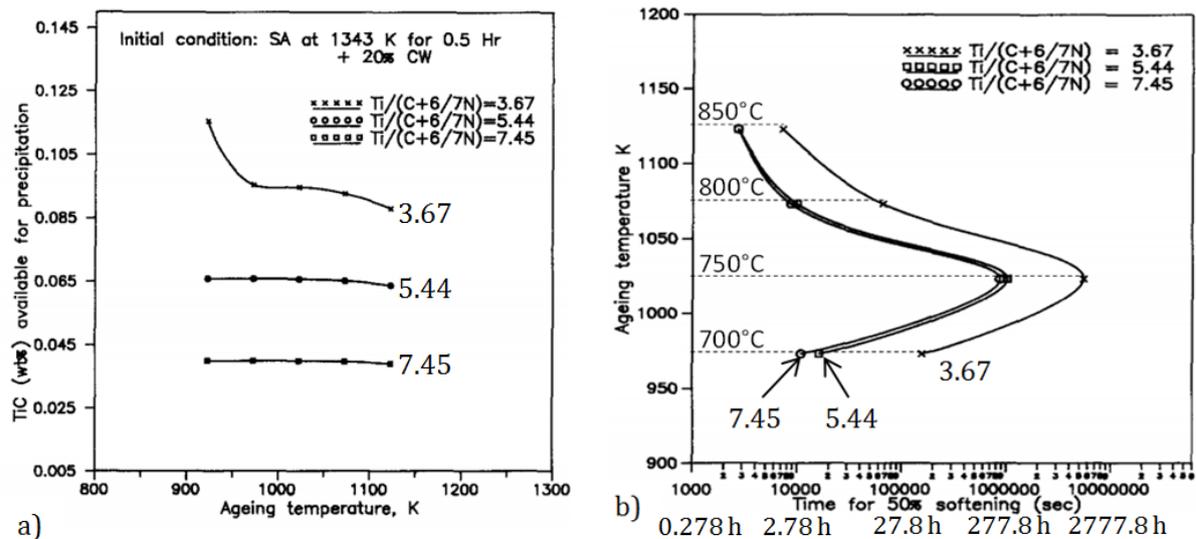


Figure 2.7 - a) Quantité de TiC disponible pour la précipitation de précipités secondaires et b) temps pour obtenir 50% d'adoucissement pour des ratios $Ti/(C+6/7N)$ (en teneurs massiques) de 3,67 (stœchiométrie), 5,44 et 7,45 (Vasudevan, Venkadesan, et Sivaprasad 1996).

La Figure 2.8 a illustre la résistance d'un acier DIN 1.4970 face aux phénomènes adoucissants de restauration et de recristallisation à l'aide de mesures de microdureté Vickers (charge 1 kg) après recuit. Une perte de dureté de 45% est notable à 900°C pour un temps de maintien d'environ 100 h. Ce résultat est probablement lié à de la recristallisation à cette température (cf. paragraphe 1.3). L'adoucissement progressif (avant l'asymptote aux temps longs) sur la Figure 2.8 a est attribué à de la restauration.

Dans la thèse de (Sidhom 1983)²⁰, l'évolution de la valeur de la microdureté pour des traitements thermiques à 950°C en fonction du temps de maintien dépend très fortement de la température du traitement thermique d'hypertrempe initiale (Figure 2.8 b). Pour une température d'hypertrempe de 1100°C, la valeur de microdureté diminue très rapidement et se stabilise pour atteindre sa valeur minimale (160 HV₁₀) dès 25 min de maintien à 950°C. Pour une température d'hypertrempe de 1200°C, la valeur de la microdureté diminue progressivement et ne se stabilise pour atteindre sa valeur minimale (170 HV₁₀) qu'à partir de 150 min de maintien à 950°C. Il y a également l'existence d'un double palier pour les températures d'hypertrempe de 1200°C et de 1300°C avec un écart pour le dernier palier pour les temps longs qui dépend de l'hypertrempe. Cet écart pourrait s'expliquer par la présence de précipités encore présents aux temps longs (qui serait d'autant plus important que la température d'hypertrempe est élevée, permettant une remise en solution du titane et du carbone plus importante). Notons par ailleurs que l'asymptote est beaucoup plus faible pour l'acier DIN 1.4970 (120 HV₁, cf. Figure 2.8 a) que pour l'acier 15-15Ti (160 HV₁₀ pour une hypertrempe à 1100°C, cf. Figure 2.8 b) alors que les températures et les temps de maintien des hypertrempes sont similaires. Par ailleurs, ces deux aciers ne possèdent pas de phosphore, cette différence ne peut donc pas s'expliquer par la présence de phosphore en solution solide.

²⁰ Pour un acier de type 15-15Ti écroui à froid (20%) et de composition massique 65Fe-16Cr-15Ni-0,10C-0,54Ti-1,3Mo-1,8Mn-0,61Si-0,01N-0,005B (pas de phosphures attendus).

Ces résultats montrent l'importance de la remise en solution du titane et du carbone lors du traitement thermique d'hypertrempe (plus la température est élevée et plus la remise en solution du titane et du carbone est efficace). Cette remise en solution va permettre d'optimiser la précipitation de carbures de titane secondaires lors de traitement thermiques ultérieurs, et donc de résister davantage aux phénomènes de restauration des dislocations et de recristallisation. Il faut cependant faire un compromis et veiller à ce que la température et le temps de maintien de l'hypertrempe ne soit pas trop élevée afin d'éviter un grossissement significatif du grain austénitique et une éventuelle décarburation.

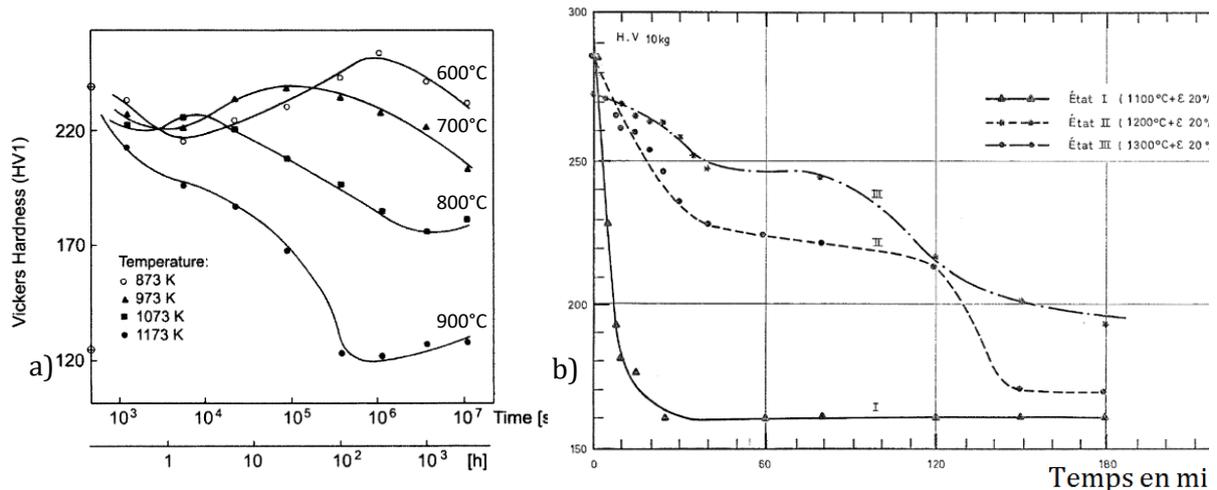


Figure 2.8 – Courbes de microdureté a) en fonction de la température et du temps de maintien entre 600 et 900°C pour un acier de type DIN 1.4970 hypertrempe à 1130°C pendant 30 min puis écroui de 15% à froid (Padilha, Plaut, et Rios 2003) et b) en fonction du temps de maintien à 950°C pour différentes températures d'hypertrempe (15-15Ti écroui à froid), d'après (Sidhom 1983).

La restauration a été mise en évidence par calorimétrie différentielle à balayage (ou DSC pour Differential Scanning Calorimetry) avec une vitesse de montée en température de 5°C/min (Tripathy et al. 2013) sur un D9²¹ très déformé (taux d'écrouissage entre 70% et 85% à froid). Le maximum du pic exothermique, correspondant aux mécanismes de restauration, se situait à 540°C. Cette valeur basse s'explique par le fort taux d'écrouissage de la nuance étudiée, puisqu'aucun adoucissement n'a été détecté en dessous de 650°C par (Delalande 1992) dont l'acier était écroui à 20%.

Les mécanismes des premiers stades de la restauration jusqu'à 600°C ($t < 8,3$ h) ont été étudiés sur un alliage 15-15Ti (D9), sous forme de poudre²², par diffraction des rayons X (Chowdhury et al. 2011). L'analyse Rietveld a permis d'estimer l'évolution de la taille moyenne des structures de dislocations (sous-grains de diamètres compris entre 14 et 29 nm) ainsi que la densité de dislocations (données qualitatives sur les temps et les tailles). Les auteurs mettent en évidence

²¹ Acier de composition : 14,4Cr-15,4Ni-2,4Mo-2,36Mn-0,25Ti-0,04C-0,05P.

²² La poudre a été obtenue à partir de tiges recuites à 1100°C pendant 30 min. La poudre a été préparée à l'aide d'une lime à bijoux finement filetée, seules les particules d'une taille de 74-88 μm ont été extraites.

les différents mécanismes classiques résumés sur la **Figure 2.9**. Les mêmes stades de restauration ont été proposés par (Humphreys et Hatherly 2004).

La comparaison entre des analyses par diffraction réalisées sur poudre n'est pas représentative des résultats pouvant être obtenus sur matériau massif. En effet, la poudre est très écrouie et n'admet pas de texture préférentielle (homogène) alors que les 15-15Ti écrouis à froid sont plus hétérogènes (**Chapitre 1**).

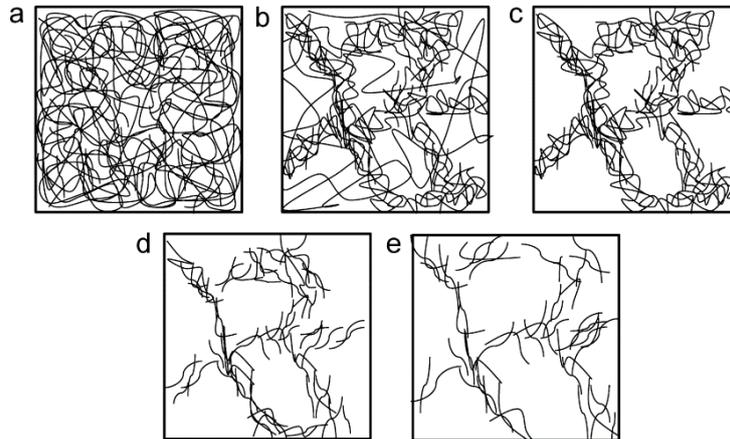


Figure 2.9 – Représentation schématique des différents stades intervenant lors de la restauration selon (Chowdhury et al. 2011)(températures comprises entre 30°C et 600°C) : a) microstructure fortement déformée avec une distribution aléatoire des dislocations, b) début du réarrangement c) réarrangement des dislocations en sous-grains d) annihilation des dislocations dans les parois e) grossissement des sous grains. L'échelle de temps n'est pas mentionnée par les auteurs.

(Kesternich et Meertens 1986)²³ ont étudié par MET la microstructure de dislocations après traitement thermique. Ils mesurent une densité moyenne de dislocations de $15 \times 10^{14} \text{ m}^{-2}$ (inchangée par rapport à l'état initial) après traitement thermique à 600°C, 100 h contre une densité de $6 \times 10^{14} \text{ m}^{-2}$ après traitement thermique à 800°C, 24 h (pas de sous grains observés sur échantillons restaurés). Cette diminution de densité de dislocations n'est pas significative compte tenu de l'incertitude de mesure de cette grandeur sur lame mince.

Pour les températures de 600°C-650°C pas ou peu de restauration a été mise en évidence. L'absence d'adoucissement pour ces basses températures, si elle est accompagnée de restauration, montre qu'elle ne gouverne pas à elle seule la résistance mécanique de la microstructure (compensation par le durcissement, probablement dû à la précipitation). Pour des températures plus élevées l'adoucissement progressif de la **Figure 2.8 a** a été attribué à de la restauration. Pour la température de 900°C l'adoucissement stable après 100 h de maintien est attribué à de la recristallisation.

Il existe peu de données quantitatives à des températures supérieures à 600°C concernant la restauration des aciers de type 15-15Ti.

²³ Etude réalisée sur un acier DIN 1.4970 écroui à 15% à froid avant maintien isotherme.

1.3. Recristallisation

Pour pouvoir recristalliser pendant un traitement thermique, le matériau doit avoir été préalablement déformé. Le moteur principal de la recristallisation est l'énergie stockée, liée à la densité de dislocations et aux contraintes internes résultantes.

Les mécanismes de recristallisation primaire peuvent être généralement de deux types :

- La **recristallisation continue** gouvernée par la désorientation progressive des sous-joints les uns par rapport aux autres (formés par le réarrangement des dislocations lors de la restauration) jusqu'à l'obtention de nouveaux grains (typique des microstructures restaurant facilement (EDE élevée)). L'évolution de la microstructure est homogène dans le volume du métal.
- La **recristallisation discontinue** contrôlée par un mécanisme de germination puis de croissance de nouveaux grains principalement aux anciens joints de grains (typique des matériaux à basse EDE restaurant lentement).

D'une façon générale, la pression permettant la croissance des grains recristallisés est la résultante des pressions motrices et retardatrices de cette croissance (Humphreys et Hatherly 2004; Rios et al. 2005). Un exemple de modèle de recristallisation, pour un unique grain dans un milieu infini, conduit à la relation suivante :

$$P = P_D - P_Z - P_C - P_s = \frac{\rho G b^2}{2} - \frac{3F_V \gamma_b}{d} - \frac{2\gamma_b}{R} - \left(\frac{v}{M} + \frac{\alpha c_0 v}{1 + \alpha \alpha' v^2} \right) \quad (2.1)$$

Avec :

- P_D la pression motrice liée à la déformation plastique de la matrice (énergie stockée), en supposant la croissance d'un grain recristallisé dans une matrice écrouie. La densité de dislocations ρ est exprimée en m^{-2} . G correspond au module de cisaillement et b est le vecteur de Burgers des dislocations ;
- P_Z la pression de Zener liée à l'épinglage du joint par les précipités (pression de freinage retardant la recristallisation). F_V est la fraction volumique des précipités. L'énergie du joint de grains γ_b est de l'ordre de $0,5 J.m^{-2}$. Les forces d'épinglage du joint par les précipités sont très complexes et dépendent :
 - o De la forme de ces précipités (plus l'excentricité est élevée et plus la force d'épinglage augmente) ;
 - o De la cohérence du précipité par rapport à la matrice ;
 - o De la répartition spatiale des précipités (espacement entre les précipités) ;
- P_C la pression liée à la courbure du joint (relation de Gibbs-Thomson) ;
- P_s la pression de freinage due au traînage de soluté sur le joint de grain. L'expression de l'équation (2.1) est tirée du modèle classique de Cahn-Lücke-Stüwe (CLS) qui prend en compte les joints de faibles et de fortes célérités. Néanmoins, cette pression ne peut être déterminée que qualitativement car les paramètres mis en jeu sont difficiles à quantifier (c_0 la concentration en soluté ; v la vitesse de déplacement du joint ; M la mobilité du joint en l'absence de soluté ; α une constante qui dépend de la forme du coefficient de diffusion du soluté et de la forme de l'énergie de liaison entre l'atome de soluté et le joint, elle-même mal connue).

Un grain recristallisé ne pourra croître que si la pression P est positive.

Les paramètres influençant la cinétique de recristallisation statique sont la composition chimique, le taux d'écrouissage à froid, la vitesse de chauffage, la température et le temps de maintien. Comme montré précédemment, certains éléments chimiques peuvent ralentir la migration des

joints de grains par traînage de solutés, ce qui est le cas du molybdène (Bouet 2000) et par épinglage (via la précipitation).

La relation de Johnson Mehl Avrami Kolmogorov (JMAK) est très utilisée pour modéliser de manière phénoménologique la fraction de grains recristallisés d'un matériau en fonction du temps de maintien pour une température T donnée :

$$X_v = 1 - \exp(-Bt^n) \quad (2.2)$$

Avec :

- X_v la fraction de grains recristallisés ;
- t le temps de maintien ;
- n le coefficient d'Avrami ;
- B est une constante de vitesse généralement dépendante de la température.

Le coefficient d'Avrami vaut théoriquement 4 pour une vitesse de germination et de croissance constantes pendant la recristallisation (sites de germination distribués aléatoirement). Pour des aciers inoxydables austénitiques, ce coefficient est souvent proche de 1 (Barraclough et Sellars 1979; Mandal, Sivaprasad, et Dube 2007).

Il est possible de constater des écarts à cette loi si d'autres phénomènes interviennent pendant la recristallisation (précipitation, dissolution de précipités etc.).

D'après (Martins, Plaut, et Padilha 1998), dans des aciers inoxydables de type 304 et 304L, hypereutectés et écrouis à froid, la germination de nouveaux grains se fait au niveau des bandes de déformation et des joints de grains (recristallisation discontinue). Par ailleurs, les précipités non dissous après le traitement thermique, comme les carbures ou les nitrures de titane primaires par exemple (précipités de l'ordre de 1 μm), sont en pratique plus durs que la matrice. Comme ils sont suffisamment gros et espacés, ils peuvent générer des gradients de déformation et des contraintes internes lors de l'étape d'écrouissage préalable et devenir des sites de germination privilégiés (phénomène Particle Stimulated Nucleation - PSN) (Humphreys et Hatherly 2004).

La comparaison des températures de début de recristallisation entre un acier 316TiM et un acier 321²⁴ a été menée par (Grot et Spruiell 1975) et est illustrée sur la **Figure 2.10**. Pour un même taux d'écrouissage (20%), la recristallisation du 316TiM est initiée plus rapidement que la recristallisation du 321. Il est cependant difficile de savoir si cette différence est due au procédé de fabrication ou à la composition chimique. L'effet du taux d'écrouissage sur le début de recristallisation a également été étudié par les auteurs pour le 316TiM. Pour une même température, plus le taux d'écrouissage est faible et plus la recristallisation est initiée pour des temps plus longs (évolutions classiques compte-tenu de l'énergie emmagasinée par l'écrouissage) mais la dépendance envers la température de maintien semble la même.

²⁴ Le 316TiM est stabilisé et écroui de 10 à 40% par matriçage de barres. Sa composition est : 0,057C-17,52Cr-13,96Ni-2,51Mo-0,29Ti-1,41Mn-0,03Si-0,005P-0,004S-0,004N. Le 321 est quant à lui un tube étiré à froid de composition : 0,06C-17,48Cr-9,58Ni-0,50Ti-1,69Mn-0,54Si-0,012P-0,006S-0,011N.

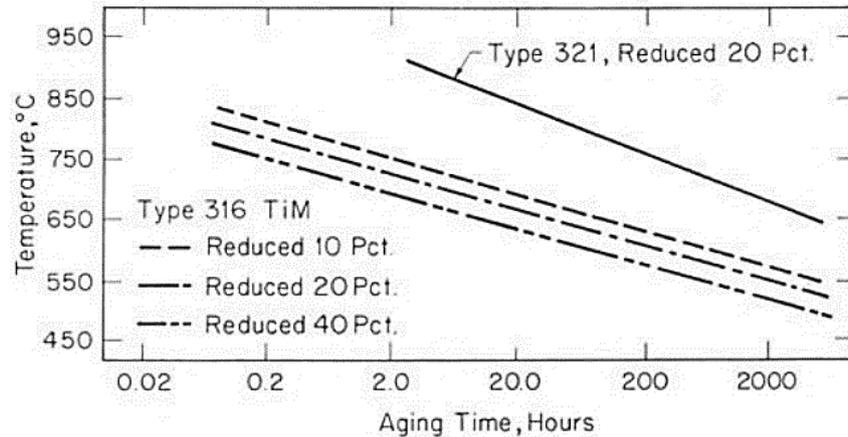
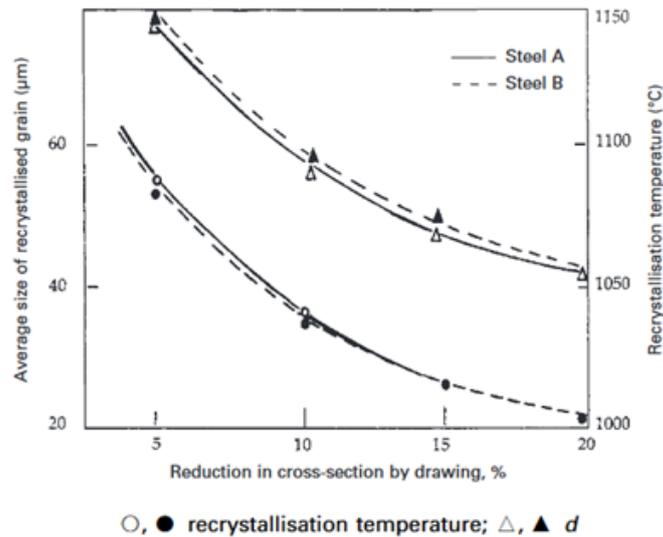


Figure 2.10 - Température de début de recristallisation pour un 316TiM et un 321 écroui à froid à 20% d'après (Grot et Spruiell 1975).

(Mandiang et al. 2000) ont déterminé des températures de début de recristallisation (à l'aide d'un microscope optique) ainsi que la taille des grains recristallisés pour deux aciers 316Ti. La **Figure 2.11** montre une forte diminution de la taille des grains recristallisés lorsque l'on augmente le taux d'écrouissage à froid. Ce résultat pourrait s'expliquer du fait que l'énergie stockée augmente quand le taux d'écrouissage augmente, ce qui augmenterait la densité de sites de germination de nouveaux grains. Pour un écrouissage à froid de 20% suivi de 15 minutes de maintien à haute température, les auteurs ont observé un début de recristallisation à 900°C et une recristallisation totale pour une température de 1000°C. Par ailleurs, ces résultats montrent que d'après les compositions de l'acier A et de l'acier B rappelées sur la **Figure 2.11**, il n'y a pas d'effet notable de la teneur en phosphore sur la cinétique de recristallisation dans les conditions étudiées. Par ailleurs, les précipités de type M_3P ont été observés dans l'acier B sur lame mince au MET.

(Kesternich et Meertens 1986) ont observé un début de recristallisation sur un acier DIN 1.4970 (pré-écrouissage de 15%) à partir de 900°C pour 20 h de maintien. La recristallisation de cet acier à 900°C est bien plus lente comparée à celle des aciers étudiés par (Mandiang et al. 2000).



Steel	C	Si	Mn	P	S	Cr	Mo	Ni	Al	B	N	Nb	Ti	Fe
A	0.080	0.640	1.680	5×10^{-6}	0.005	17.00	2.060	13.85	0.015	0.003	0.004	0.004	0.420	Bal.
B	0.066	0.620	1.800	1.500	0.004	16.60	2.260	13.80	0.028	0.003	0.004	0.004	0.380	Bal.

Figure 2.11 – Taille moyenne des grains recristallisés et température de recristallisation (température conduisant à une recristallisation totale pour 15 minutes de traitement thermique) en fonction de l'écroissage à froid (Mandiang et al. 2000). La teneur des éléments pour les aciers est présentée en pourcentage massique.

La précipitation joue également un rôle sur la recristallisation dans les aciers stabilisés. Il a été montré dans la littérature que les carbures peuvent ralentir la recristallisation par épinglage des joints (Spruiell et al. 1973; Martins, Plaut, and Padilha 1998; Vasudevan, Venkadesan, and Sivaprasad 1996). Par ailleurs, comme pour les mécanismes de restauration présentés précédemment, (Vasudevan, Venkadesan, et Sivaprasad 1996) ont pu déterminer un ratio $Ti/(C+6/7N)$ optimum de 3,67 permettant de rehausser la température de début de recristallisation et diminuer sa cinétique. En effet, aucune recristallisation n'a été observée après des recuits à 750°C pendant 100 h et 1000 h pour l'acier dont le ratio est de 3,67, contrairement aux aciers dont les ratios sont de 5,44 et 7,45. La recristallisation de cet acier (ratio = 3,67) intervient partiellement après 100 h de maintien à 800°C et est totale après 100 h à 850°C. Les aciers stabilisés au titane recristallisent donc moins facilement que les aciers non stabilisés, grâce à la présence des TiC secondaires.

Après croissance des grains recristallisés, des phénomènes de croissance anormale peuvent se produire. Cette croissance est régie par la dissolution des précipités de taille supérieure à 30 nm dans un certain domaine de température (grains déjà recristallisés). La croissance anormale est caractérisée par une croissance très rapide des grains conduisant à une distribution bimodale de la taille de grains finale. La croissance normale quant-à-elle est caractérisée par une augmentation monomodale de la taille de grains. Il est plus probable d'avoir de la croissance anormale dans des aciers stabilisés, dans des domaines de températures proches de la dissolution des carbures secondaire. En effet, la dissolution de ces précipités n'étant pas homogène, cela peut provoquer une croissance rapide de grains par endroits puisqu'une fois dissous, les carbures n'entravent plus la mobilité des joints. La croissance continue est caractéristique d'une microstructure dont les grains croissent tous à la même vitesse, conduisant à une distribution monomodale (Padilha, Plaut, and Rios 2003). D'après la Figure 2.12, aucune croissance de grains n'est observée en

dessous de 1100°C (et un maintien de 200 min) pour un DIN 1.4970. A contrario, on considère que la croissance des grains est significative à partir de 950°C pour un acier non stabilisé (Padilha, Dutra, et Randle 1999 ; Stanley et Perrotta 1969 ; Padilha, Plaut, et Rios 2003). La **Figure 2.12** montre que le domaine de croissance normale intervient à des températures plus élevées ($T > 1200^\circ\text{C}$) que pour la croissance anormale (dissolution totale des nanoprécipités libérant ainsi les joints, ce qui permet aux grains de tous croître à la même vitesse). On ne s'attend donc pas à observer de la croissance anormale dans la gamme de température étudiée dans la thèse ($T \leq 1000^\circ\text{C}$).

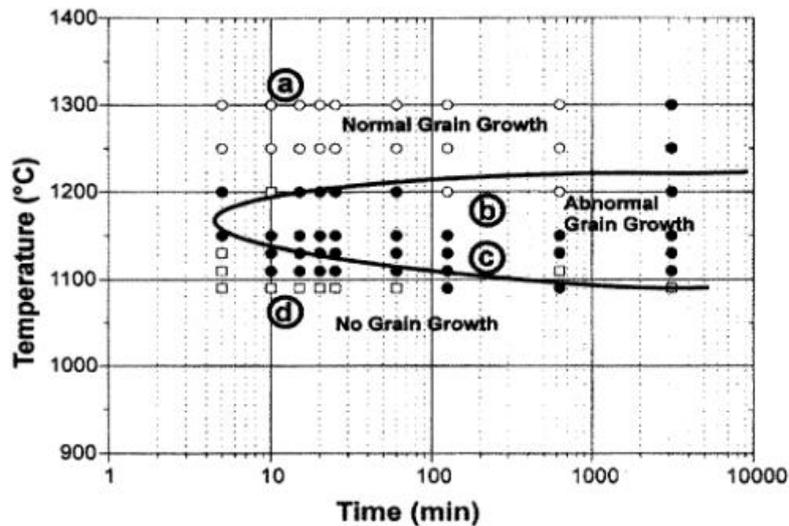


Figure 2.12 – Diagramme température-temps représentant les domaines de croissance normale et anormale des grains recristallisés pour un acier DIN 1.4970 (taux d'écroissage à froid non mentionné) (Padilha, Plaut, et Rios 2003).

La caractérisation de la restauration pour les 15-15Ti a essentiellement été réalisée aux températures de service. Peu de données sont disponibles à plus haute température (quelques mesures de densités de dislocations ont été reportées).

Le début de la recristallisation intervient généralement vers 900°C et dépend du matériau de référence (composition, température d'hypertrempe, pré-écrouissage). La mise en évidence de la recristallisation a été réalisée par interprétation des résultats de microdureté mais également par observations au microscope optique.

Néanmoins, les évolutions de la matrice dans le domaine 650°C-1000°C n'ont pas été clairement détaillées (cinétiques de restauration et de recristallisation).

1.4. Bilan de l'état de l'art et positionnement des travaux

Cette partie bibliographique permet de synthétiser les connaissances en termes d'évolutions microstructurales lors de maintiens isothermes pour des aciers inoxydables stabilisés au titane écrouis à froid.

La présence de **TiC secondaires** est attendue dès 650°C. La taille de ces précipités dépend peu de la température, à condition qu'elle soit en dessous de la température de recristallisation. Au-delà de cette température, deux populations de **TiC secondaires** sont prévues :

- Dans les grains encore écrouis, la taille **n'excède pas 10 nm** ;
- Dans les nouveaux grains recristallisés, la taille est **de l'ordre de 30 nm**.

La spécificité de l'AIM1 en comparaison avec les aciers DIN, est qu'il contient ~400 ppm de phosphore. Cet acier est ainsi susceptible de créer des **phosphures** après traitement thermique à haute température (entre 650°C et 750°C d'après les données existantes). En complément des **carbures de titane, ces phosphures** ont l'avantage de limiter le gonflement sous irradiation par effet d'épinglage des dislocations. Cependant, l'effet de l'ajout de phosphore sur les propriétés mécaniques à haute température et sur la restauration et la recristallisation n'a jamais été étudié.

Les précipités de type **borures et carbures de chrome** (avec une taille comprise entre 1 et 3 μm) présents dans les joints de grains, sont susceptibles de coexister à 750°C et 850°C. A plus basse température (650°C), les **carbures de chrome** sont présents contrairement aux **borures**. A plus haute température (au-delà de 900°C), seuls les **borures** sont susceptibles de se former dans les joints.

Notons que ces précipités de grandes tailles pourraient favoriser un endommagement lors d'essais de fluage, ce que l'on vérifiera sur fractographie. Par ailleurs, les calculs thermodynamiques ne permettent de prédire que partiellement les phases existantes, d'où la nécessité de réaliser des expertises sur l'AIM1.

Les **phases χ et σ** sont observées dans les 316Ti, ce qui est probablement dû à la forte teneur en molybdène et à la présence de ferrite résiduelle par comparaison avec les autres aciers stabilisés. Pour l'acier DIN 1.4970, la présence de ces phases n'a pas été rapportée dans la littérature.

L'évolution de la **restauration** des dislocations après maintiens isothermes pour ce type d'acier a été très peu étudiée dans la littérature. Néanmoins, ces **phénomènes de restauration** ne sont pas marqués à 650°C.

Pour l'acier DIN 1.4970 (écroui 15 %), dont la composition est très similaire à l'AIM1, le début de **recristallisation** est observé pour une température de 900°C à partir de 20 h, mais les **températures** et les **temps de recristallisation** de l'AIM1 ne sont pas connus. **La cinétique de recristallisation a été peu étudiée** et peut être affectée par les effets de traînage de solutés (éléments en solution solide) et d'épinglage de joints (en plus de l'épinglage des dislocations), ce qui est le cas pour les aciers stabilisés au titane mentionnés dans la littérature.

La littérature a permis de mettre en évidence la complexité de l'évolution métallurgique des 15-15Ti. Au cours d'un recuit isotherme il existe une compétition entre les phénomènes de **précipitation/dissolution** et de **restauration/recristallisation** dans la gamme de température étudiée.

Les travaux de thèse qui seront présentés dans la suite de ce chapitre permettent d'obtenir des références microstructurales sans contrainte appliquée (par comparaison avec les essais de fluage). Par ailleurs, les expertises menées sur échantillons recuits permettent de compléter ou de vérifier la base de données existante pour le cas de l'AIM1.

2. Evolutions microstructurales de l'AIM1 au cours de recuits isothermes

Cette partie caractérise les évolutions microstructurales de l'AIM1 au cours de recuits isothermes (état de précipitation, de restauration et de recristallisation).

2.1. Démarche expérimentale et choix des températures et temps de maintien

Les recuits sont isothermes pour pouvoir être comparés avec les données existantes dans la littérature mais aussi avec les microstructures des éprouvettes de fluage. Les 5 températures choisies pour l'étude décrite dans ce chapitre sont : 650°C, 750°C²⁵, 850°C, 950°C et 1000°C. Ces températures permettent un bon compromis entre l'étendue du domaine d'étude et la nécessité de disposer de cinétiques précises en temps. Les temps pour chaque température ont été choisis par rapport aux cinétiques attendues. Les différents dispositifs utilisés sont ainsi adaptés aux différents temps et températures.

Les recuits isothermes ont été réalisés au CEA Saclay (SRMA/LA2M).

Pour 650°C, les « temps courts » à 750°C (maximum 100 h) et les « temps longs » à 850°C (maximum 200 h) et 950°C (maximum 20 h), les recuits ont été réalisés dans un four de marque PYROX 2 fonctionnant sous balayage d'hélium. Pour les temps de recuit plus longs à 750°C, un four sous air MF4 a été utilisé. Les échantillons traités sous air ont été ampoulés dans le but d'éviter une éventuelle décarburation. La température est contrôlée dans l'enceinte à l'aide de thermocouples situés au centre du four. Le gradient de température maximal le long des échantillons de 15 cm de long est de 10°C.

Afin d'avoir une vitesse de chauffage contrôlée, un dilatomètre de trempe vertical a été utilisé pour les recuits à 850°C et 950°C, aux temps courts ($t < 1$ h) et à 1000°C (pour tous les temps). Le **Tableau 2.5** synthétise les différents dispositifs utilisés en fonction des températures et des temps de maintien.

Recuits	Dilatometre	PYROX 2	MF4
650°C (jusqu'à 100 h)		X	
750°C (entre 1 min et 100 h)		X	
750°C (entre 100 h et 3000 h)			X
850°C (entre 1 min et 1 h)	X		
850°C (entre 2 h et 200 h)		X	
950°C (entre 1 min et 1 h)	X		
950°C (entre 2 h et 20 h)		X	
1000°C (entre 1 min et 1 h)	X		

Tableau 2.5 – Synthèse des dispositifs de recuits utilisés pour les conditions de température et de temps étudiés dans la thèse.

La vitesse de chauffage de l'échantillon est d'environ 10°C.s⁻¹ pour le four PYROX2 (enfournement à chaud). La vitesse de refroidissement est comprise entre 1 et 10°C.s⁻¹. Le gradient thermique est d'environ 1°C par cm d'échantillon. Les échantillons sont des demi-tubes

²⁵ Les recuits et les caractérisations à 750°C ont été réalisés dans le cadre du stage d'Emilien Curtet, d'après (Curtet 2017).

d'environ 7 cm de long (cf. **Figure 2.13 b**) et sont enveloppés d'un film d'acier inoxydable austénitique 304 afin de limiter leur oxydation. Les mesures de températures sont prises dans le four.

Les temps de maintien dans le four sont de 2 à 100 h après stabilisation (environ 5 min après enfournement à chaud) à 650°C et à 850°C. Le refroidissement se fait sous balayage d'hélium.



Figure 2.13 – Photographies a) du four PYROX2 et b) d'un échantillon après traitement thermique.

Pour les recuits réalisés au dilatomètre, le cycle thermique est identique à celui réalisé pour les essais de fluage. La vitesse de chauffage de l'échantillon est d'environ 5°C.s⁻¹ (300°C. min⁻¹) jusqu'à 800°C pour un recuit à 850°C, 900°C pour un recuit à 950°C et 950°C pour un recuit à 1000°C (**Figure 2.14**). Afin de limiter un dépassement de la température de consigne, la vitesse de chauffage est ensuite diminuée à 20°C.min⁻¹ avant d'atteindre la température souhaitée (cela correspond à 2,5 min pour atteindre la température de recuit). Ce cycle thermique est identique à celui utilisé pour les essais de fluage à haute température (cf. **Chapitre 4**). Le recuit est fait sous balayage d'hélium. La vitesse de refroidissement est comprise entre 100 et 200°C.s⁻¹ avec une trempe hélium + air.

Les échantillons sont des tuiles de 3 mm de largeur et d'environ 10 mm de longueur. Le gradient thermique est inférieur à 5°C sur l'ensemble de l'échantillon.

Les recuits au dilatomètre permettent également d'obtenir le coefficient de dilatation α ($\alpha = \frac{\Delta L/L_0}{\Delta T}$) du matériau. Cependant, les recuits effectués en cours de ces travaux ne permettent d'obtenir qu'un coefficient de dilatation apparent car les courbes obtenues tiennent compte de la dilatation thermique du support en silice qui permet le maintien de l'échantillon. De plus, les échantillons utilisés ici sont des « tuiles usinées maison » dont les bords ne sont pas parfaitement plans, cela peut donc avoir un impact sur les mesures de longueur nécessaire pour la détermination de α . Par conséquent, les coefficients de dilatation thermique n'ont pas été obtenus de manière quantitative pour l'AIM1 seul mais sont de l'ordre de 1,7.10⁻⁵ °C⁻¹ en tenant compte du support en silice. Cette valeur est en accord avec le coefficient obtenu pour un 316 (Grujicic et Zhao 1998) qui est compris entre 1,7 et 1,8. 10⁻⁵ °C⁻¹ (pour 800°C < T < 1000°C).

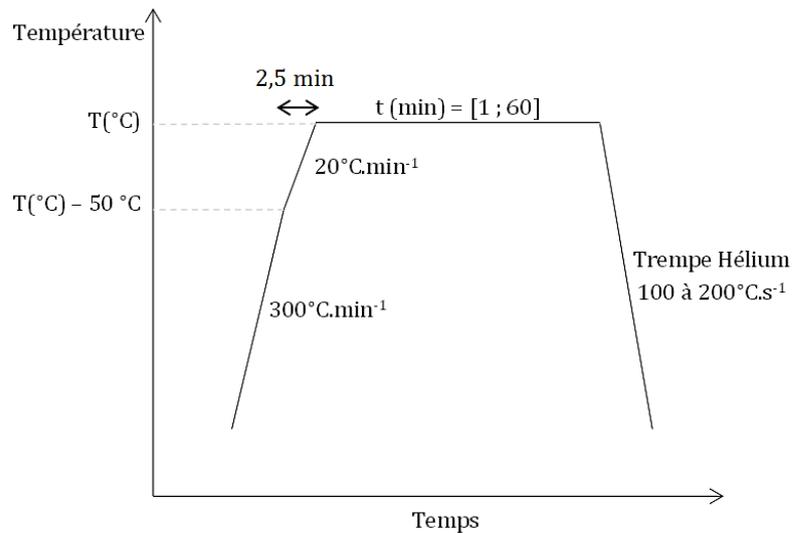


Figure 2.14 – Cycle thermique utilisé pour les recuits au dilatomètre.

2.2. Etude de la précipitation

La précipitation a été caractérisée à 850°C et 950°C dans le cadre de cette thèse. Le protocole pour la réalisation de répliques extractives présenté pour l'étude de la précipitation dans cette thèse est détaillé dans l'[Annexe 1 partie 3](#). Les expertises concernant la précipitation de l'AIM1 à 650°C ont été réalisées par (Rouxel 2016; Kountchou Tawokam 2018) et sont reprises brièvement dans cette partie. La méthode de dépouillement DNPA utilisée dans la thèse de (Rouxel 2016) est la même que celle utilisée dans cette thèse²⁶, à l'exception du nombre de population de précipités pris en compte (deux populations pour la thèse de (Rouxel 2016) contre une pour cette thèse). L'état de la précipitation n'a pas pu être étudié à 750°C par manque de temps.

La fraction volumique des TiC secondaires a été déterminée par MET et DNPA. Des cartographies EDX ont été réalisées sur répliques extractives au carbone pour caractériser la nature des précipités intergranulaires (borures, carbures).

Etude de la précipitation à 650°C :

La taille et la fraction volumique des carbures de titane secondaires à 650°C ont été déterminées sur l'AIM1 à l'aide du MET et de la DNPA (Diffraction des Neutrons aux Petits Angles) dans la thèse de (Rouxel 2016) ([Figure 2.15](#)). Pour cette température la précipitation a lieu dès les premières minutes de maintien. Par ailleurs, comme l'ont montré les études dans d'autres aciers stabilisés, le diamètre de ces carbures se stabilise pour les temps longs (de 50 h à 2000 h le diamètre augmente de 5 nm à 5,6 nm). Rappelons que (Kesternich 1985a) a déterminé une taille de 7 nm pour un recuit à 750°C pendant 2000 h, ces résultats sont cohérents avec ceux de (Rouxel 2016).

²⁶ La chimie des carbures de titane est également identique avec la prise en compte du molybdène (20% massique soit 7% atomique, d'après des analyses SAT réalisées par (Kountchou Tawokam 2018)).

La fraction volumique calculée sur (Ti, Mo)C se stabilise également pour des temps de maintien longs.

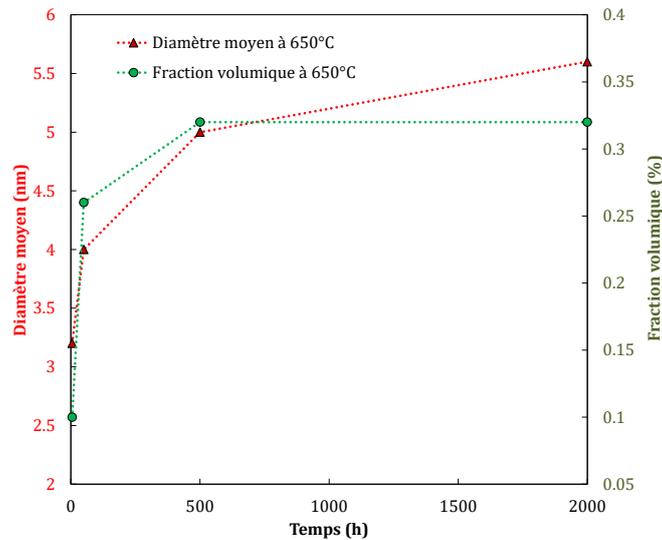


Figure 2.15 – Evolution du diamètre moyen et de la fraction volumique des carbures de titane secondaires en fonction du temps de maintien à 650°C (données tirées de (Rouxel 2016)).

(Kountchou Tawokam 2018) a observé la présence de phosphures à 650°C, avec une taille de l'ordre de quelques nanomètres pour des temps de maintien allant jusqu'à 100 h. Cette précipitation limite la ségrégation du phosphore aux joints de grains. La présence de phosphures pourrait perturber les distributions attribuées aux seuls carbures, néanmoins ces perturbations n'ont pas été détectées dans la thèse de (Rouxel 2016).

Etude de la précipitation à 850°C :

- Carbures de titane

Le diamètre des carbures de titane étant inférieur à 10 nm (grains non recristallisés), le MET et la DNPA ont été les deux méthodes utilisées pour la caractérisation de ces précipités. La présentation de la technique DNPA et la méthode de dépouillement associée sont présentées dans l'Annexe 3.

Les images MET ont été prises en condition deux ondes $g=(200)$ proche d'un axe de zone B = [011], afin de révéler les carbures de titane grâce à la technique des franges de Moiré (Figure 2.16 a et b). Pour chaque échantillon, les images utilisées pour le calcul des distributions en tailles et des fractions volumiques des précipités ont été prises au même grandissement (x350 k) et dans 3 zones différentes (3 grains différents).

L'épaisseur de la lame étant bien supérieure (60 nm minimum) à la distance entre précipités (environ 15 nm en moyenne à 850°C), le calcul de la fraction volumique sur lame mince est ainsi pertinent et permet de compléter et de comparer les données DNPA. La quantification en taille et en fraction volumique au MET ont été réalisées sur environ 200 précipités pour chaque condition de recuit isotherme.

Les carbures ont une morphologie de type polyèdre équiaxe. Ces précipités sont répartis de manière homogène sur les dislocations dans les grains écrouis. Le traitement d'images a été réalisé à l'aide du logiciel ImageJ, avec un traçage manuel des contours des précipités. L'aire de chaque précipité projeté sur le plan perpendiculaire au faisceau d'électrons est ainsi déterminée,

ce qui permet l'obtention du diamètre moyen de cercle équivalent pour les états traités pendant 2 h, 10 h, 24 h et 100 h. L'incertitude sur la détermination du diamètre moyen est de 0,5 nm pour un précipité (précision du contour) et de 0,5 nm sur l'ensemble (effet d'échantillonnage déterminé pour le comptage de 200 et de 700 précipités pour le même échantillon).

Pour déterminer une fraction volumique, l'épaisseur de chaque zone analysée a été obtenue par la spectroscopie de perte d'énergie des électrons (EELS) et est comprise entre 60 nm et 130 nm.

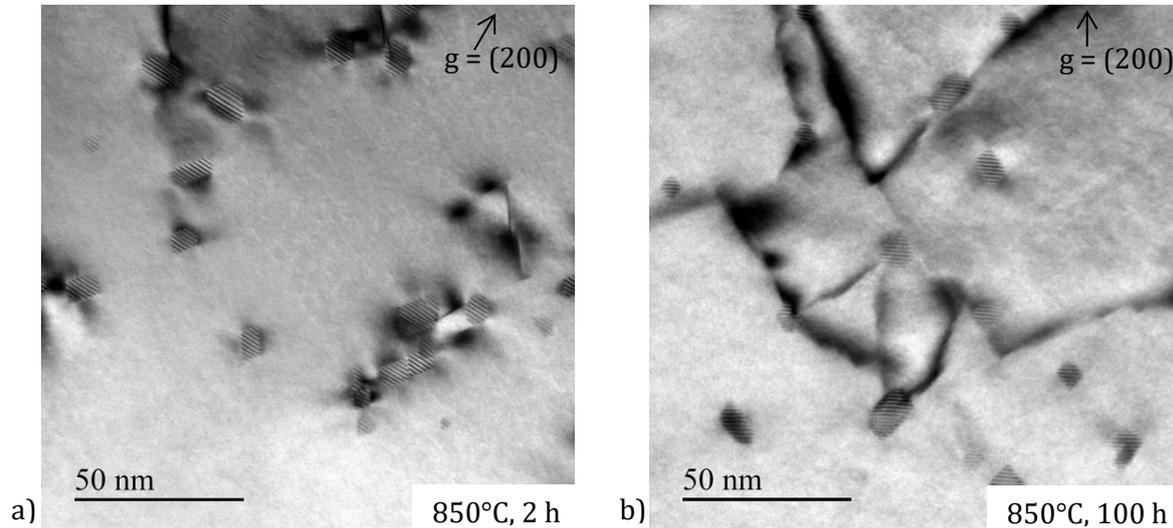


Figure 2.16– Images MET en champ clair en condition deux ondes (200) obtenues sur des carbures de titane secondaires pour les états traités thermiquement à 850°C a) pendant 2 h et b) pendant 100 h.

Les résultats des mesures sur images MET ont été comparés avec les données obtenues grâce à la DNPA sur la [Figure 2.17](#). Le diamètre et la fraction volumique reportés sur le graphique sont des moyennes. Tout comme à 650°C, la taille des précipités et la fraction volumique se stabilisent pour des maintiens prolongés à 850°C (diamètre de l'ordre de 7 nm pour 24h et 100 h de maintien). Le diamètre moyen pour des temps prolongés ne montre pas de grossissement conséquent entre les traitements thermiques à 650°C et à 850°C (2 nm de différence).

A 850°C, l'évolution de la fraction volumique en fonction du temps de maintien obtenue en imagerie est cohérente avec celle obtenue grâce à la DNPA. Elle ne suit cependant pas la même tendance par rapport aux résultats à 650°C car la fraction volumique tend à diminuer avant 24 h de maintien, alors qu'à 650°C la fraction a tendance à augmenter pour des temps courts. Néanmoins, cette diminution n'est pas significative compte tenu de l'incertitude de mesure. La différence entre la fraction déterminée à 650°C et celle déterminée à 850°C pourrait s'expliquer par une perte des nano-précipités due à une restauration plus avancée à 850°C. La stabilisation du diamètre moyen et de la fraction (0,11%), permet de confirmer la grande résistance au grossissement des carbures de titane pour des temps de maintien longs, tant que le grain n'a pas recristallisé.

Pour les états recuits dont une partie de la microstructure a recristallisé à 850°C ([partie 2.4](#)), seul un autre type de population de carbures de titane est observé dans les zones recristallisées. Leur taille est supérieure à 30 nm et ces précipités sont souvent alignés ([Figure 2.18](#)), ce qui est en accord avec la littérature.

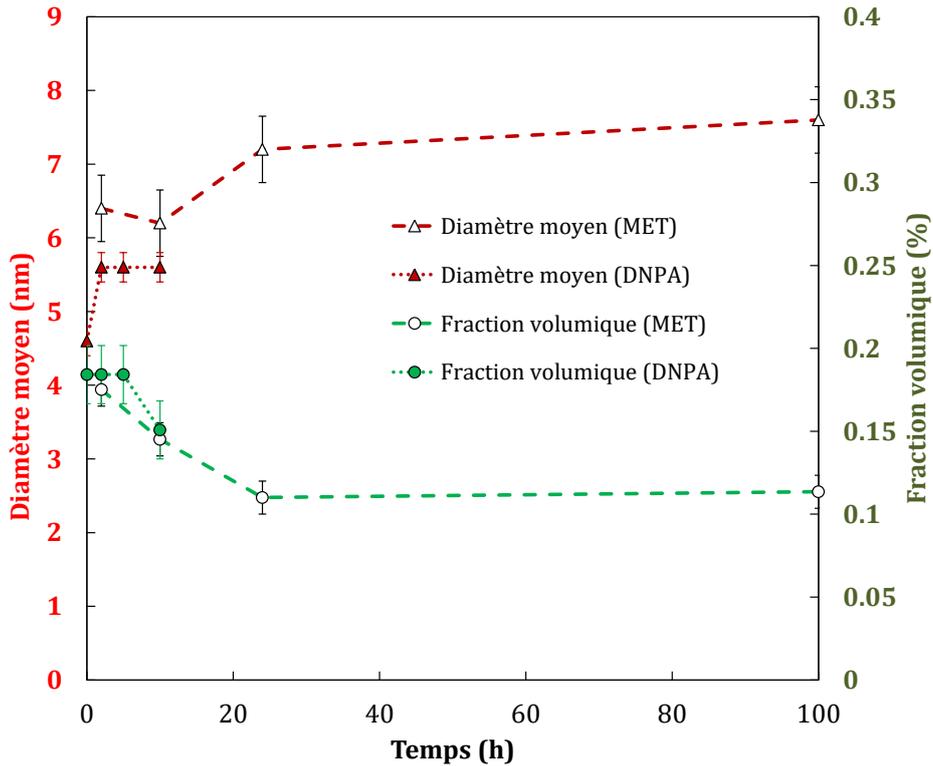


Figure 2.17 – Evolutions du diamètre équivalent moyen et de la fraction volumique des carbures de titane secondaires (dans les grains écrouis) en fonction du temps de maintien à 850°C déterminés en DNPA et au MET.

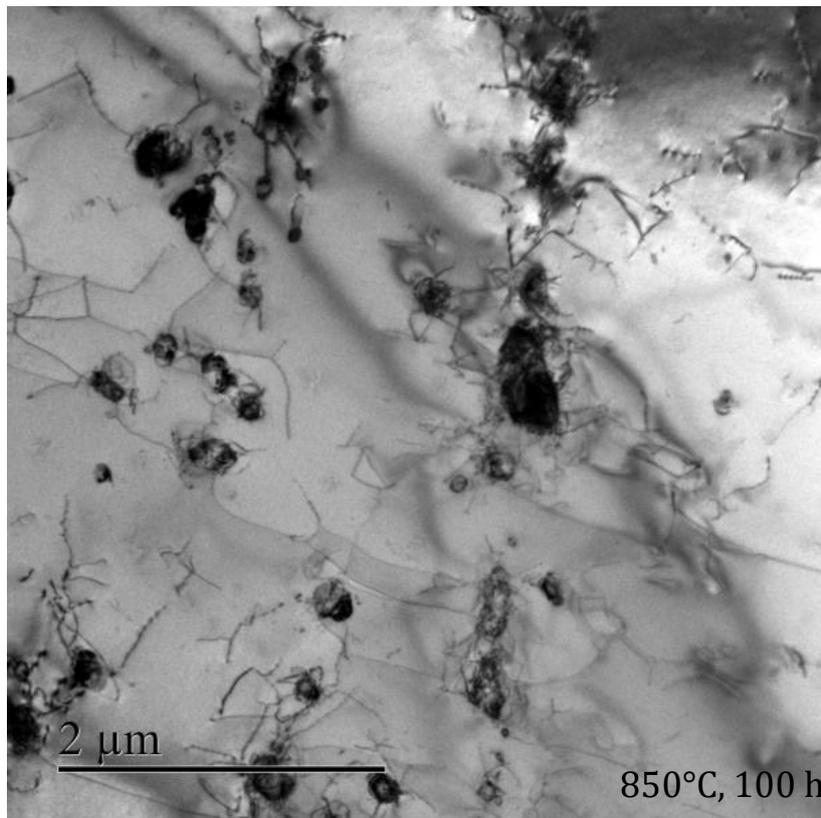


Figure 2.18 – Image MET en champ clair de carbures de titane secondaires alignés dans un grain recristallisé. Certains débris de dislocations peuvent être observés dans ces grains.

- Phosphures

D'après les données présentes dans la littérature, une précipitation d'aiguilles de phosphures est attendue à 750°C (Delalande 1992) et à 800°C (Rouxel 2016). Par ailleurs, les calculs réalisés à l'aide de Thermo-Calc ([partie 1.1.2](#)) prévoient l'existence de ces précipités entre 850°C et 900°C. Des répliques extractives au carbone réalisées sur des échantillons traités ont permis une meilleure observation de ces phosphures par rapport aux observations sur lame minces. L'utilisation de répliques extractives permet de s'affranchir du contraste créé par les dislocations. Néanmoins, la préparation pour l'obtention des répliques peut modifier l'orientation initiale des phosphures par rapport à la matrice.

Deux exemples d'images prises au MEB sur réplique extractive pour l'état recuit à 850°C, 100 h sont présentés sur la [Figure 2.19](#). Ces précipités sont répartis de manière homogène en intragranulaire ([Figure 2.19 a](#)). Un appauvrissement en aiguilles près des joints de grains est parfois observé, comme le montre la [Figure 2.19 b](#). Leur longueur est de l'ordre de 1 μm pour les recuits les plus longs et semble augmenter avec la durée du recuit (comparaisons avec les [Figures 2.19 a](#) et [Figure 2.19 c](#)), comme l'a indiqué (Delalande 1992). Ces aiguilles n'ont pas été observées pour 2 h de maintien sur répliques extractives. Une première hypothèse serait que ces aiguilles soient trop fines et cohérentes pour ce temps, ce qui rendrait difficile leur extraction sur le film de carbone. Une deuxième hypothèse serait qu'un temps de maintien inférieur à 2 h ne soit pas suffisant pour permettre la précipitation des aiguilles. Une troisième hypothèse serait que les phosphures soient trop petits pour ces temps de maintien, ce qui les rend inaccessibles sur répliques. Ces hypothèses n'ont pas pu être vérifiées suite à la difficulté d'observation et d'identification de ces aiguilles sur lame mince.

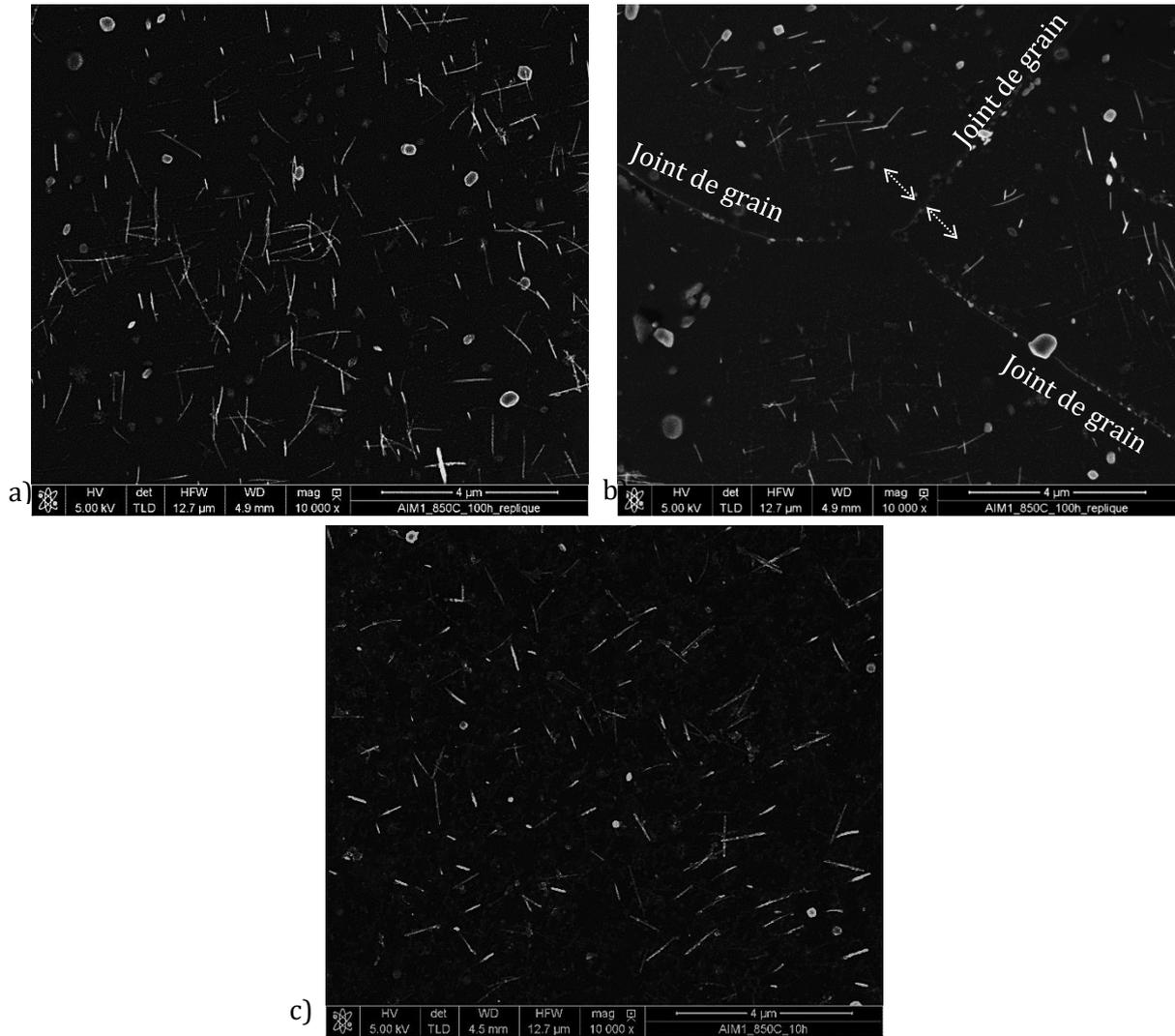


Figure 2.19 – Images MEB d’une réplique extractive au carbone de l’état traité thermiquement à 850°C, 100h dans une zone a) intragranulaire, b) comportant des joints de grains (les flèches indiquent l’absence de phosphures dans les joints de grains) et c) une zone intragranulaire de l’état recuit à 850°C, 10 h.

L’image MET de la [Figure 2.20](#) montre une association possible entre les carbures de titane primaires et les aiguilles : une association entre le titane et le phosphore a d’ailleurs été mise en évidence dans la thèse de (Kountchou Tawokam 2018) grâce à des analyses SAT. La présence d’un stabilisant étant nécessaire pour la précipitation des aiguilles, la concentration en titane dans les carbures primaires pourrait constituer un bon initiateur pour la précipitation des phosphures. Ces associations doivent cependant être davantage étudiées, sur lame mince par exemple (nombre d’associations, orientations...).

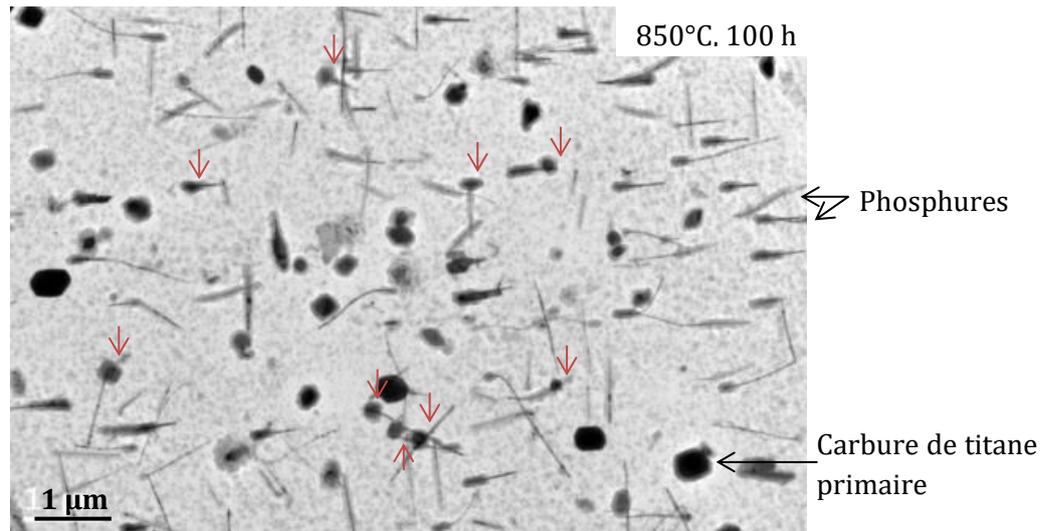


Figure 2.20 – Image MET d'une réplique extractive au carbone sur l'état recuit à 850°C pendant 100 h montrant les aiguilles de phosphures et les carbures de titane primaires. Les flèches rouges indiquent une association carbures primaires-aiguilles sur la réplique.

La caractérisation de la précipitation à 850°C a permis de mettre en évidence la présence d'aiguilles qui croissent et se densifient avec le temps de maintien. Il a également été observé une diminution du nombre de phosphures à proximité des joints, ce qui pourrait indiquer un appauvrissement en phosphore dans ces joints (risque de rupture intergranulaire avec le phosphore en solution solide dans les joints ?). Le début de la précipitation (détectable sur réplique) a été déterminé à partir de 10 h de maintien à 850°C.

- Précipités enrichis en chrome

Afin d'avoir une information générale sur la distribution des précipités intragranulaires, des cartographies EDX ont été réalisées au MEB Nova NanoSEM 450 sur répliques. Le temps d'acquisition pour chaque cartographie est d'environ 30 min. Cette méthode a permis de distinguer les précipités de type carbure de chrome des précipités de type borure avec une meilleure statistique qu'au MET. En effet, d'après la littérature ([Tableau A2.1](#)), les carbures de chrome contiennent du molybdène (12% massique minimum) contrairement aux borures (cf. [Figure 2.21](#)).

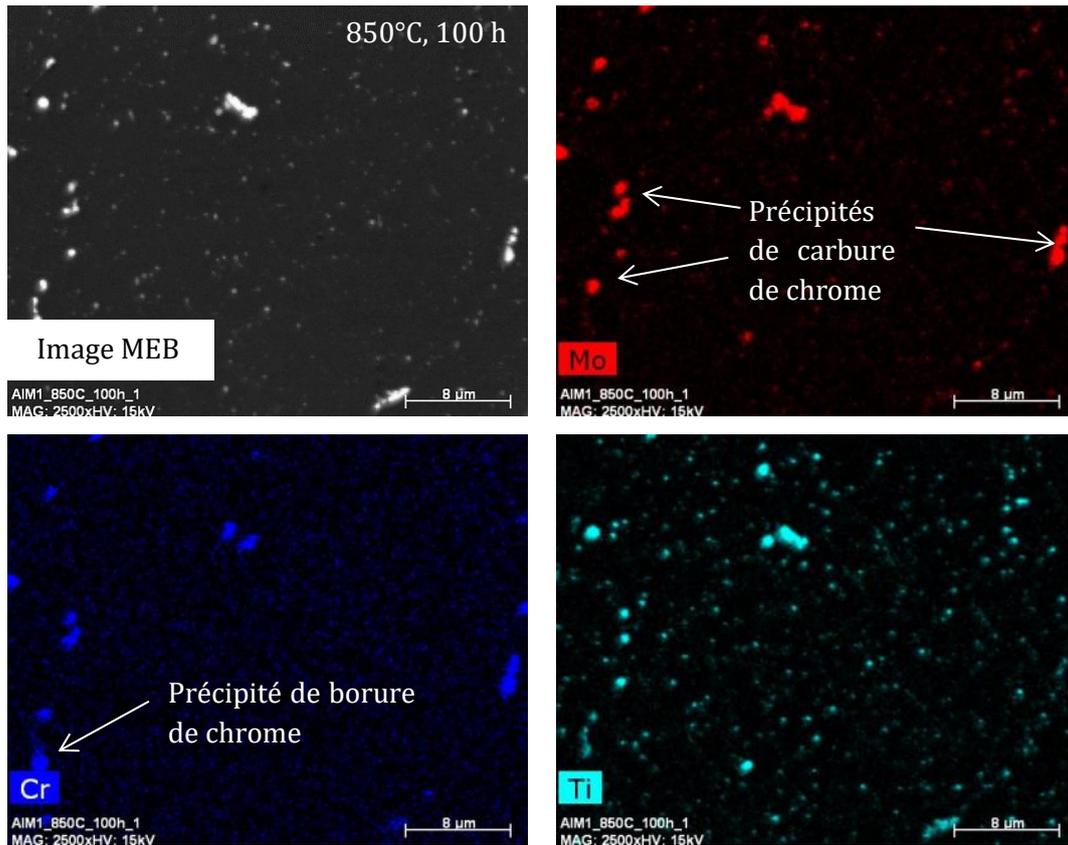


Figure 2.21 – Cartographies EDX au MEB sur réplique extractive au carbone de l'état traité thermiquement à 850°C, 100 h.

A 850°C, les deux types de précipités semblent coexister quel que soit le temps de maintien, y compris sur un même joint de grains.

La précipitation des borures dans l'AIM1 n'a pas été étudiée dans la littérature, notamment pour des températures au-delà de 850°C.

Des observations sur lames minces ont permis de mettre en évidence la présence de précipités fautés, situés principalement dans les joints de grains (Figure 2.22). Afin de déterminer s'il s'agit bien d'un précipité de type borure (comme l'avaient affirmé (Garcia-Borquez et Kesternich 1984) pour un acier DIN 1.4970), la technique d'imagerie filtrée en énergie EFTEM a été utilisée. L'EFTEM a permis de vérifier que ce type de précipité est bien un précipité enrichi en bore (Figure 2.23), ne contenant ni molybdène, ni titane. Une étude de la structure cristallographique de précipités identiques est présentée après recuit à 950°C.

Concernant les carbures de chrome, leur répartition spatiale est peu dense. Par conséquent, aucun carbure de chrome n'a été observé au MET.

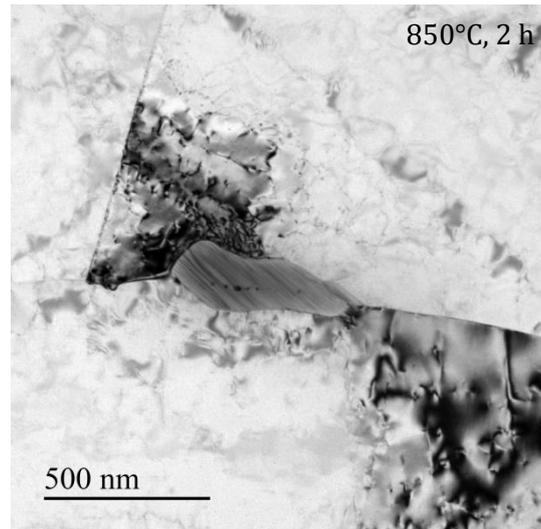


Figure 2.22 – Image MET en champ clair d'un précipité fauté intergranulaire pour l'état traité à 850°C, 2 h.

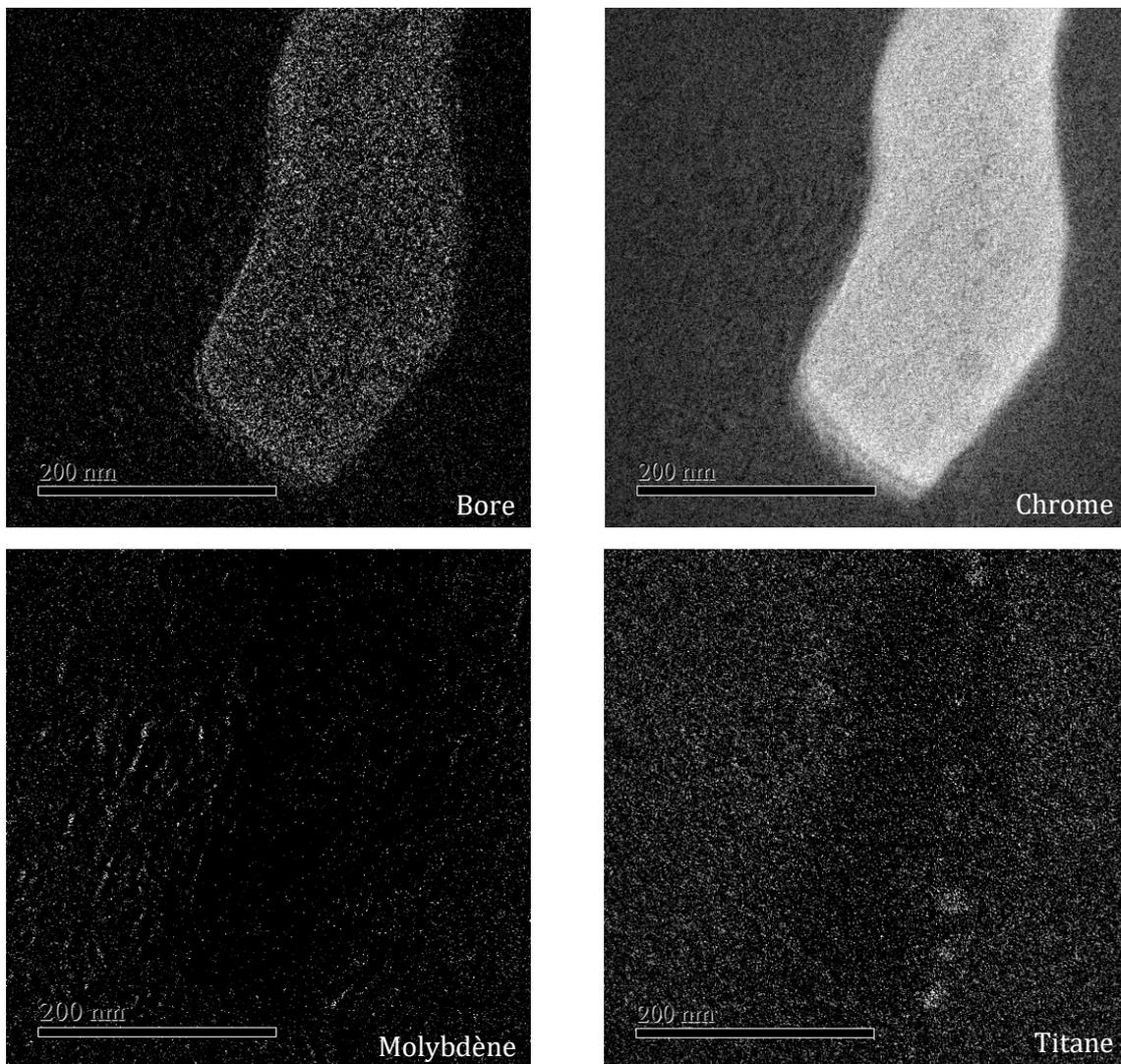


Figure 2.23 – Cartographies EFTEM du précipité intergranulaire présenté sur la Figure 2.22 (avec une rotation de 90° de l'image par rapport en champ clair de la Figure 2.22).

Etude de la précipitation à 950°C :

- Carbures de titane

La précipitation des carbures de titane secondaires a lieu, comme pour la température de 850°C, dans les grains écrouis (pour les diamètres inférieurs à 10 nm) et dans les grains recristallisés (pour les diamètres supérieurs à 30 nm). Dans la mesure où la cinétique de recristallisation est très rapide à 950°C (cf. [partie 2.4](#)), la population de carbures de titane secondaires de quelques nanomètres de diamètre est réduite par rapport à 850°C dès les premières heures de maintien. Le diamètre de ces précipités nanométriques vaut 7 nm en moyenne en début de recristallisation et la fraction volumique est de 0,100 (950°C, 30 min). Ce diamètre moyen et la fraction volumique sont du même ordre de grandeur que ceux déterminés à 850°C 24 h et 100 h. La cinétique de croissance des petits précipités secondaires est ainsi environ 50 fois plus rapide à 950°C par rapport à 850°C (comparaison avec les temps nécessaires pour atteindre la même taille). La quantification de la taille de ces précipités n'a pas été réalisée au-delà de 30 min, compte tenu de la recristallisation rapide à 950°C. En ce qui concerne la population dans les grains recristallisés, la [Figure 2.24](#) illustre l'alignement des « gros » carbures de titane secondaires formés à l'interface grain recristallisé-grain écroui.

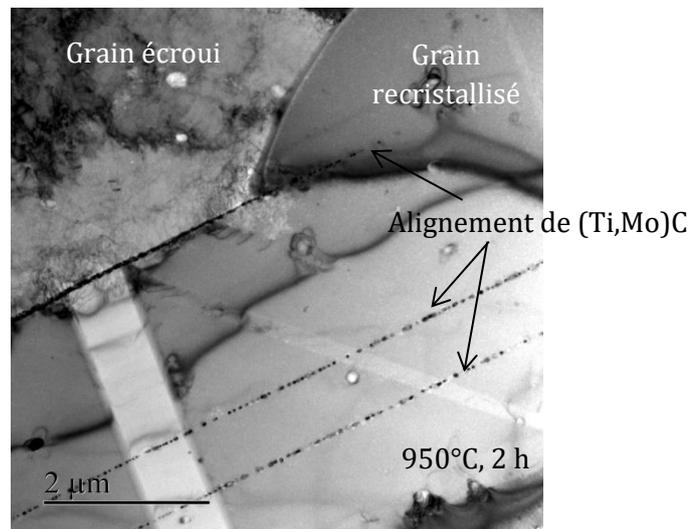


Figure 2.24 – Image MET en champ clair sur lame mince de l'état traité 2 h à 950°C, montrant l'alignement de précipités secondaires dans un grain recristallisé (phénomène systématiquement observé sur lame mince).

La taille des précipités dans les grains recristallisés augmente avec le temps de maintien (diamètre de 40 nm à 950°C, 2 h contre 80 nm à 950°C, 20 h).

- Phosphures

Aucune aiguille n'a été observée sur réplique pour cette température, ce qui est cohérent avec les calculs réalisés sur Thermo-Calc qui prévoient une instabilité de ces précipités à partir de 950°C ([partie 1.1.2](#)).

- Précipités enrichis en chrome

Aucun précipité de type carbure de chrome n'a pu être identifié à l'aide de clichés de diffraction au MET pour les recuits à 950°C pendant 30 min et 2 h. Les clichés de diffraction réalisés sur des précipités au bord du trou de la lame mince indiquent que les précipités enrichis en chrome analysés sont des borures de chrome. Ces borures sont répartis de manière hétérogène et sont

majoritairement situés dans les joints de grains (certains précipités sont aussi observés en intragranulaire).

Deux types de structures ont ainsi été identifiés : l'une est tétragonale (Figure 2.25) et l'autre orthorhombique (Figure 2.26). Ces deux structures sont prédites via le logiciel Thermo-Calc (partie 1.1.2), néanmoins la structure tétragonale ne devrait pas apparaître au-delà de 900°C d'après les calculs. Or, ladite structure semble exister à 950°C pour des traitements thermiques de 2 h de maintien. Pour des temps de maintien plus longs, la structure orthorhombique semble prédominer, conformément à leur plus grande stabilité suggérée par les calculs Thermo-Calc. Une analyse EFTEM sur le précipité de la Figure 2.25 permet de quantifier 34% atomique de bore et 66% atomiques de chrome. Ce résultat permet de confirmer la stœchiométrie Cr_2B .

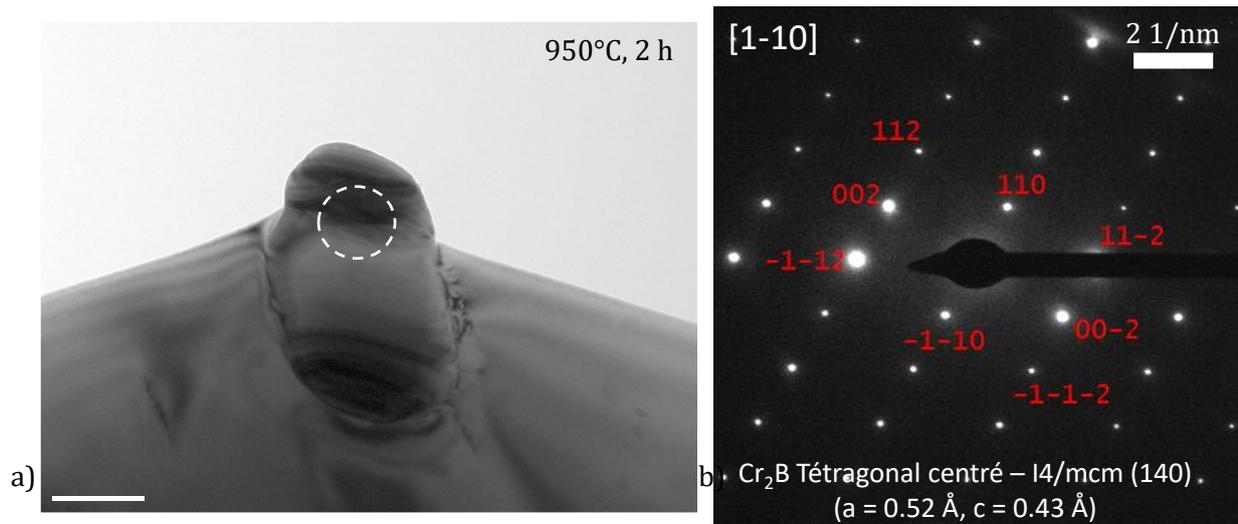


Figure 2.25 - a) Image MET d'un borure et b) cliché de diffraction obtenu sur la zone entourée. Recuit à 950°C pendant 2 h.

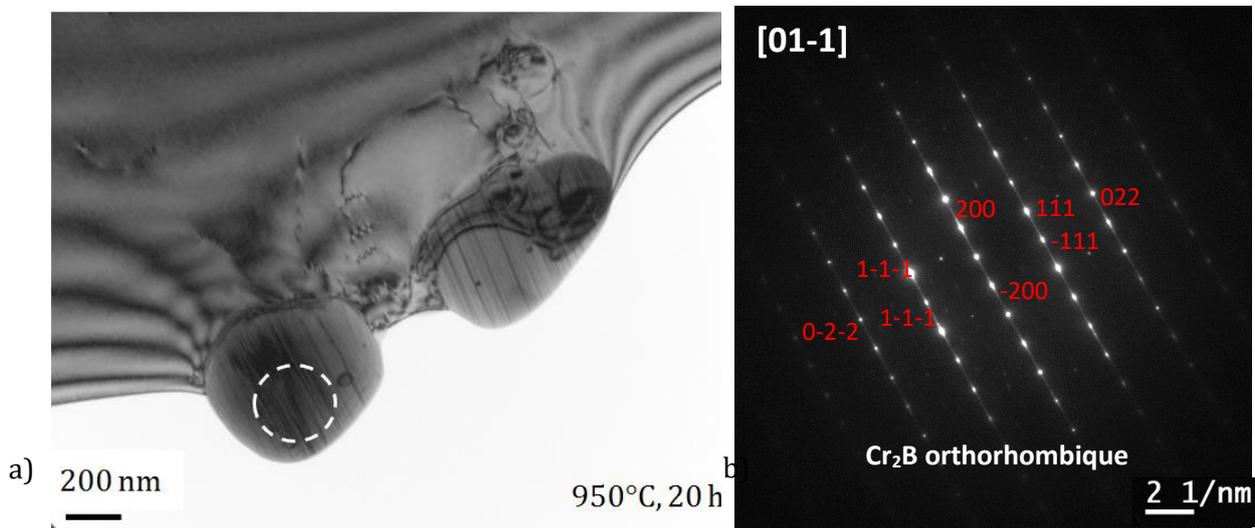


Figure 2.26 - a) Image MET de deux borures fautés et b) cliché de diffraction obtenu sur la zone entourée. Les trainées diffuses sur le cliché de diffraction sont dues aux défauts. Recuit à 950°C pendant 2 h.

L'étude de l'évolution de la précipitation au cours de recuits à 850°C et 950°C a permis de mettre en évidence une cinétique de précipitation des carbures de titane rapide pour ces températures (précipitation dès la première minute de recuit). Comme montré dans la littérature

pour des températures plus basses, la taille et la fraction volumique de ces précipités se stabilisent dès les 10 premières heures de maintien à 850°C. A 950°C, les carbures de titane dans les grains écrouis ne dépasseront pas les 7 nm avant l'apparition de la recristallisation. La taille des précipités dans les grains recristallisés (diamètre > 30 nm) est bien plus élevée par rapport aux grains écrouis. La précipitation se fait préférentiellement au niveau du front de recristallisation à l'interface joint de macle/grain recristallisé, menant à un alignement de carbures de titane secondaires.

La présence d'aiguilles de phosphures a été observée à 850°C dès 10 h de maintien (sur répliques). D'autres caractérisations seraient à envisager afin de déterminer si ces phosphures sont présents à des temps de maintiens plus courts.

Les précipités de types carbures de chrome et de type borures ont pu être identifiés à l'aide de cartographies EDX sur répliques extractives (au MEB). Aucun carbure de chrome n'a pu être identifié au MET. Les borures sont quant-à-eux très reconnaissables grâce à leurs plans fautes visibles en imagerie MET en champ clair. Deux types de structures ont pu être mises en évidence pour ces borures : la structure tétragonale et la structure orthorhombique.

2.3. Détermination de la cinétique de restauration

Pour cette section, nous nous intéressons à l'évolution de la matrice après différents recuits. Des observations indiquent que les macles mécaniques sont encore présentes lors de la restauration, comme on le verra par la suite, notamment à l'aide de la [Figure 2.30](#).

Les mesures de densité de dislocations sur lames minces étant peu représentatives, la mesure par la technique de diffraction des neutrons a été utilisée. La diffraction des neutrons ne nécessite pas de préparation particulière, il n'y a donc pas d'artéfacts liés à l'état de surface des échantillons, contrairement à la diffraction des rayons X. Par ailleurs, la technique permet une interaction sur un volume plus élevé (environ 500000 grains).

Le principe de la diffraction des neutrons est détaillé dans l'[Annexe 4](#).

Cette méthode permet donc de suivre les évolutions de la restauration en fonction de la température et du temps de maintien, par l'affinement des pics des familles de plans (hkl). En effet, la largeur des pics à mi-hauteur est due aux :

- Effets intrinsèques au matériau, comme la taille des domaines diffractants (aussi appelé taille des cristallites) et la distorsion du réseau cristallin ;
- Effets de l'appareillage.

Sur les états restaurés en EBSD il n'a été observé ni sous-grains, ni évolution de la taille de grains après recuits isothermes. L'absence de structure cellulaire a également été confirmée sur lame mince. La taille des cristallites n'évoluant pas quelle que soit la température et le temps de maintien, les variations des largeurs des pics sont principalement dues aux distorsions du réseau cristallin créées par les dislocations.

Par ailleurs les effets de l'appareillage sont déterminés à partir d'un échantillon étalon afin d'en déduire leur contribution au signal traité.

La [Figure 2.27](#) illustre la procédure d'affinement de pics pour 3 conditions.

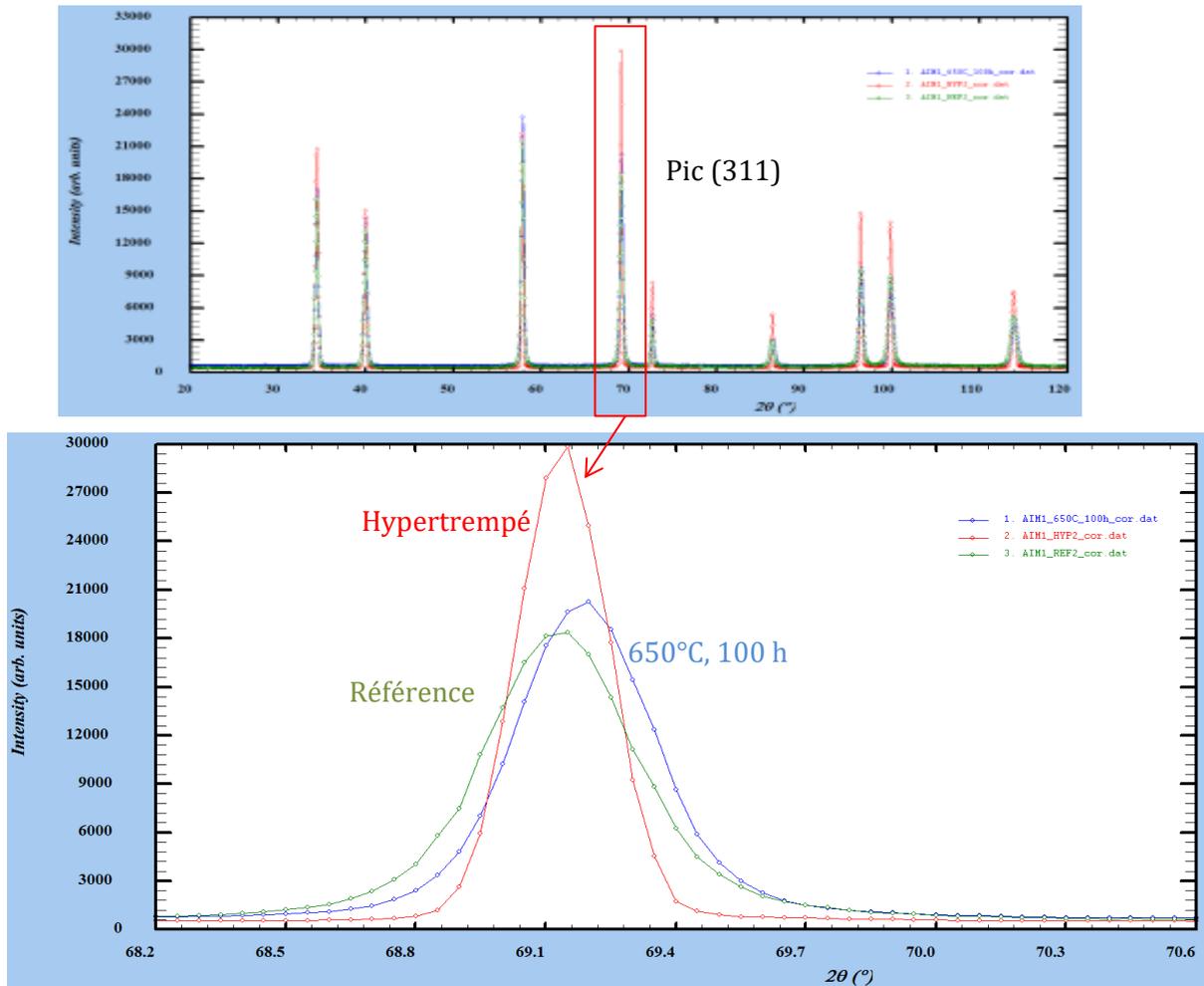


Figure 2.27 – Comparaison des pics (311) pour l'état de référence, l'état hypertempéré et l'état traité thermiquement à 650°C pendant 100 h.

Le matériau de référence, écroui, admet la largeur à mi-hauteur la plus élevée. La largeur du pic pour l'état hypertempéré est plus faible, ce qui est dû à une plus faible densité de dislocations. Le pic de l'échantillon recuit 650°C, 100 h est décalé vers les angles 2θ plus élevés par rapport aux deux autres. Ce décalage pourrait s'expliquer par un effet de précipitation après traitement thermique impliquant un appauvrissement en titane et en carbone en solution solide, ce qui conduirait globalement à une variation du paramètre de maille. (Sidhom 1983) a montré que la présence des éléments en solution solide avait tendance à augmenter le paramètre de maille, impliquant une augmentation des distances interréticulaires. Pour que les conditions de diffraction de Bragg soient vérifiées à longueur d'onde constante, l'angle θ doit être diminué pour les états enrichis en titane et en carbone en solution solide, ce qui est le cas pour l'état de référence et l'état hypertempéré. Ce phénomène de décalage est présent pour tous les pics des échantillons traités thermiquement et étudiés en diffraction des neutrons. De plus, les macles et de possibles contraintes internes pourraient influencer la position voire la largeur des pics de diffraction.

Le graphique montrant l'évolution de la largeur des pics de diffraction en fonction du temps de maintien et de la température du traitement thermique est présenté sur la Figure 2.27. Les données issues de 5 pics montrent des tendances très proches, pour une température donnée. Notons par ailleurs, que le manque de données pour les temps courts à 1000°C ($t < 1$ min) ne permet pas de tracer avec précision la courbe dans ce domaine de temps. Par conséquent, une

interpolation plus réaliste a été représentée (la chute à 1000°C est a priori plus rapide qu'à 950°C pour les temps faibles).

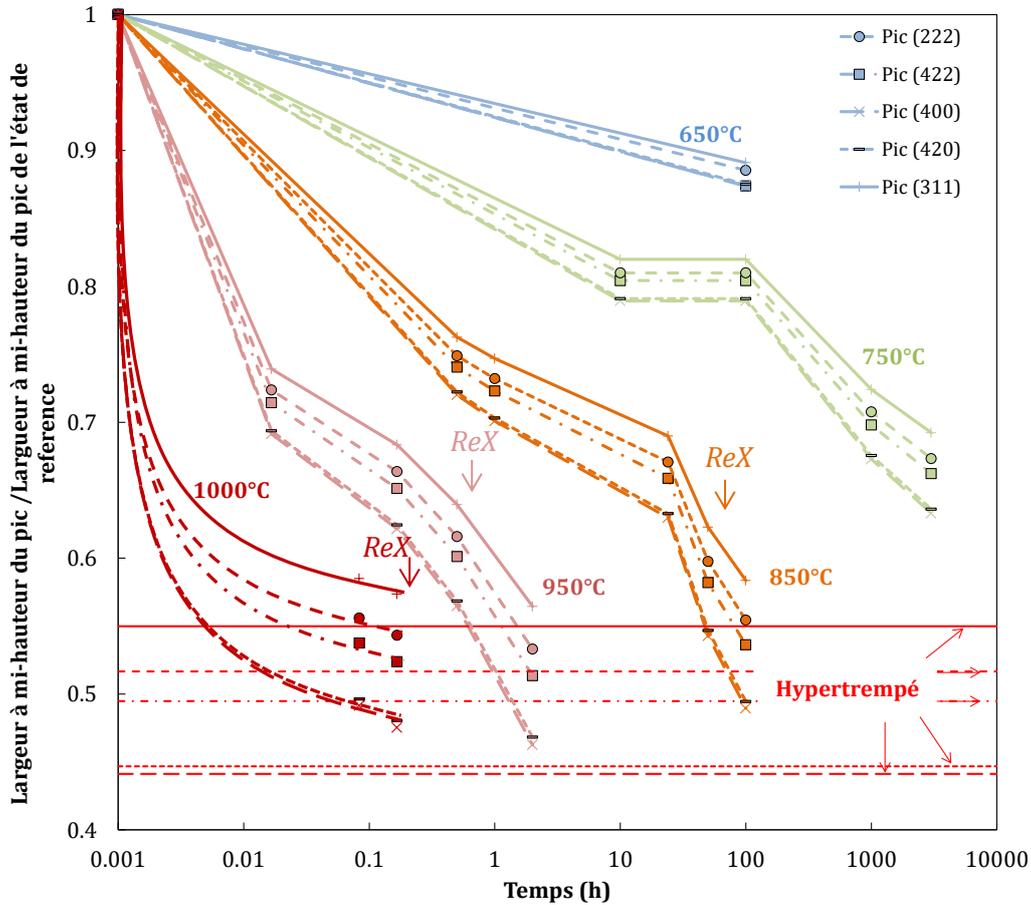


Figure 2.27 – Graphique représentant la largeur des pics (222), (422), (400), (420) et (311) à mi-hauteur normalisée par rapport à la largeur à mi-hauteur de ces mêmes pics pour l'état de référence en fonction du temps de maintien à 650°C, 750°C, 850°C, 950°C et 1000°C. Les flèches indiquant la mention « ReX » représente le temps de début de recristallisation.

La restauration intervient dès 100 h à 650°C. A 750°C, la densité de dislocations semble rester stable entre 10 h et 100 h, puis diminue de manière plus conséquente à partir de 100 h. A 850°C, une rupture de pente est constatée à partir de 24 h de maintien. A 950°C et à 1000°C une restauration importante intervient dès les premières minutes de recuit.

La densité de dislocations et les micro-distorsions sont reliées par la relation de (Williamson et Smallman 1956) :

$$\rho = \frac{k \varepsilon^2}{b^2} \quad (2.3)$$

Avec :

- ρ , la densité de dislocations ;
- k , une constante dont la valeur est propre au matériau étudié ;
- b , le vecteur de Burgers ;
- ε , les micro-distorsions.

Il n'existe pas de relation phénoménologique entre la largeur à mi-hauteur des pics et l'obtention des micro-distorsions. C'est pourquoi, les valeurs des densités obtenues grâce à la relation de (Williamson et Smallman 1956) sont à prendre avec précaution.

Afin de quantifier la densité de dislocations au temps t et à la température T sans avoir à déterminer k , la relation (2.3) s'écrit :

$$\frac{\rho_{(t,T)}}{\rho_{\text{référence}}} = \frac{\varepsilon_{(t,T)}^2}{\varepsilon_{\text{référence}}^2} \quad (2.4)$$

L'évolution du rapport des densités de dislocations en fonction du temps et de la température est présentée sur la Figure 2.28. Pour les états recristallisés aucune valeur de densité de dislocations n'a pu être obtenue par affinement, ce qui explique l'absence de certains points sur la Figure 2.28.

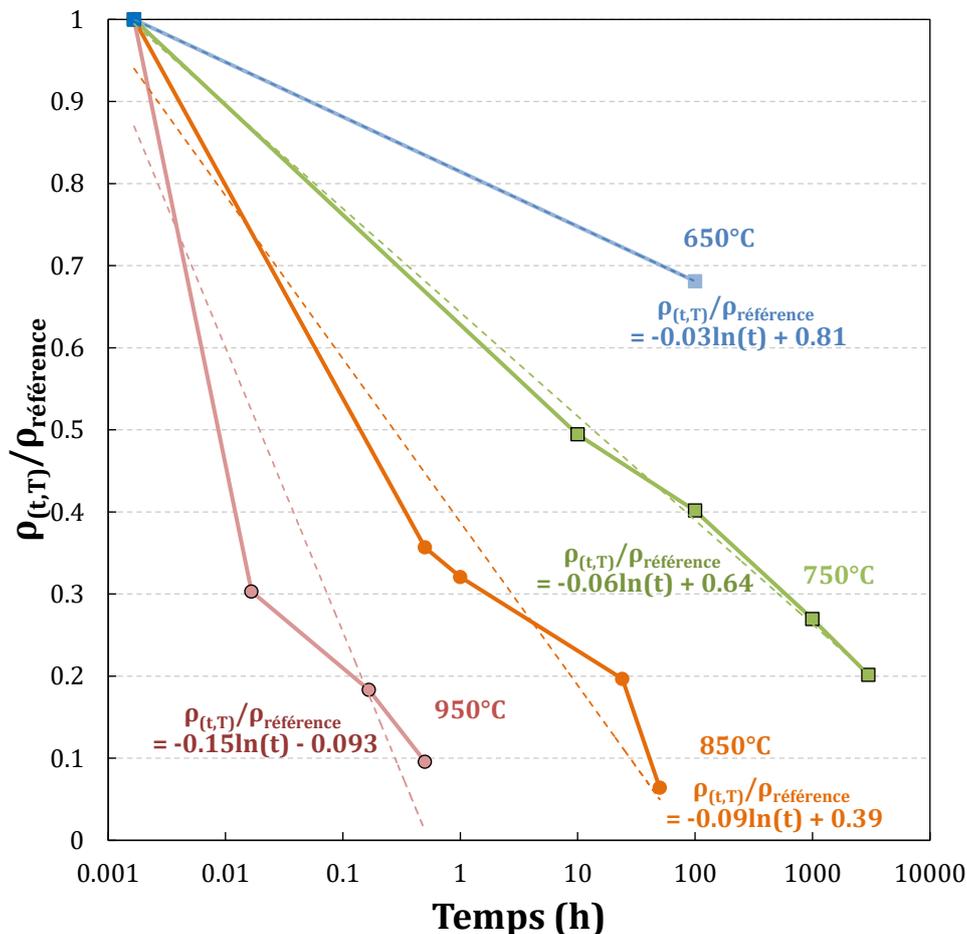


Figure 2.28 – Evolution des densités de dislocations normalisées par rapport à l'état de référence en fonction du temps de maintien pour chaque température.

Le Tableau 2.6 récapitule la diminution de la densité de dislocations par rapport à l'état de référence pour les recuits réalisés. Notons qu'au-delà de 10 h de maintien à 750°C, plus de la moitié des dislocations a été annihilée au cours de la restauration. En ce qui concerne les recuits à 850°C, la densité de dislocations a diminué de 64 % pour 30 min de maintien. Au bout de 24 h, la densité chute de 80 % pour atteindre une chute de 94 % pour 50 h de maintien (matériau non recristallisé). A 950°C, la cinétique de restauration est très rapide, la densité de dislocations est diminuée de 70 % au bout de 1 min de maintien. Pour un traitement thermique de 30 min à 950°C, 90 % des dislocations ont été annihilées.

Température	Temps	1 - ($\rho/\rho_{\text{référence}}$)	
650°C	100 h	32 %	
750°C	10 h	51 %	
	100 h	60 %	
	1000 h	73 %	✦ $\rho(1000 \text{ h}, 750^\circ\text{C}) = [20 - 30 \%] \rho_{\text{réf}}$
	3000 h	80 %	★ $\rho(3000 \text{ h}, 750^\circ\text{C}) = [10 - 20 \%] \rho_{\text{réf}}$
850°C	30 min	64 %	
	1 h	68 %	
	24 h	80 %	★ $\rho(24 \text{ h}, 850^\circ\text{C}) = [10 - 20 \%] \rho_{\text{réf}}$
	50 h	94 %	✦ $\rho(50 \text{ h}, 850^\circ\text{C}) = [0 - 10 \%] \rho_{\text{réf}}$
950°C	1 min	70 %	✦ $\rho(1 \text{ min}, 950^\circ\text{C}) = [20 - 30 \%] \rho_{\text{réf}}$
	10 min	82 %	★ $\rho(10 \text{ min}, 950^\circ\text{C}) = [10 - 20 \%] \rho_{\text{réf}}$
	30 min	90 %	✦ $\rho(30 \text{ min}, 950^\circ\text{C}) = [0 - 10 \%] \rho_{\text{réf}}$

Tableau 2.6 – Récapitulatif de la diminution de densité de dislocations par rapport à l'état de réception pour les différents recuits réalisés.

La comparaison de l'évolution des densités de dislocations avec celle de la microdureté est présentée dans la **partie 2.5** de ce chapitre.

2.4. Détermination de la cinétique de recristallisation

Les phénomènes de recristallisation se caractérisent par l'apparition et le développement de nouveaux grains. La méthode de caractérisation MEB/EBSD permet d'obtenir des désorientations moyennes internes à chaque grain (*Grains Orientation Spread* (GOS)) qui sont représentatives de la densité de dislocations géométriquement nécessaires (rotations cristallines internes au grain) et donc de l'état de déformation du matériau.

Pour un état complètement recristallisé, la distribution du GOS est monomodale ; elle est centrée sur une valeur moyenne de désorientations internes inférieure à 1°, les grains recristallisés sont alors représentés par des grains bleus (cf. état hypertempéré [Figure 2.29](#)). La fraction de grains recristallisés est également accessible via les cartographies GOS. Pour l'état de réception, qui est très déformé ([Chapitre 1, partie 3.3](#)), la désorientation moyenne est supérieure à 2°.

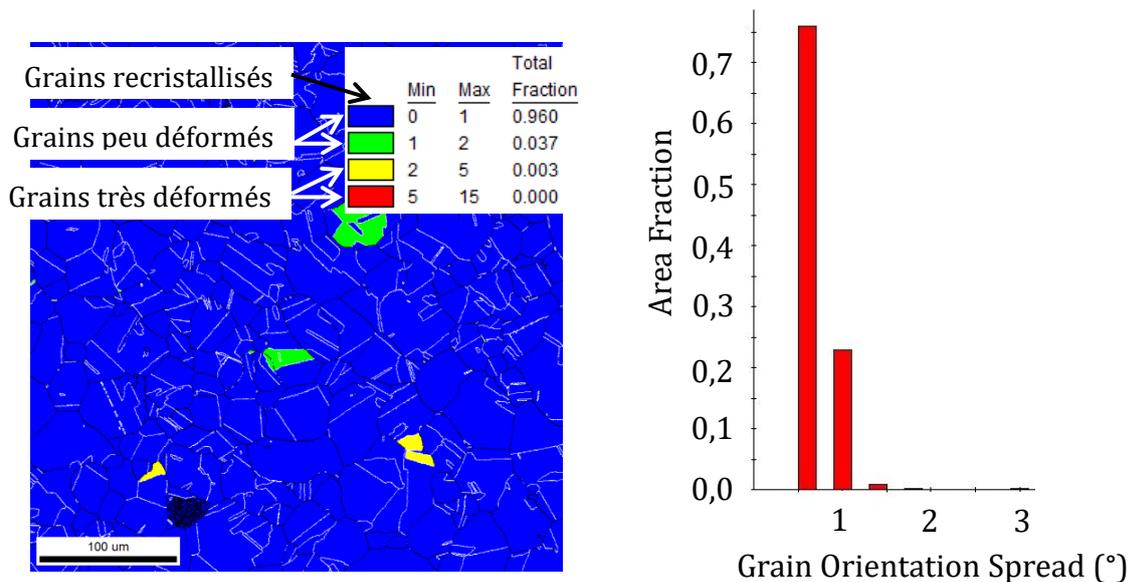


Figure 2.29 - a) Cartographie GOS et b) histogramme GOS pour l'état hypertempéré (totalement recristallisé).

Pour chaque température et temps de maintien étudiés, des cartographies EBSD ont été réalisées afin de déterminer la fraction de grains recristallisés. A 750°C, les cartographies n'ont montré aucune recristallisation jusqu'à 3000 h (durée maximale étudiée). L'évolution de la recristallisation a donc été étudiée à 850°C, 950°C et 1000°C, grâce aux cartographies GOS. A noter que l'analyse des cartographies GOS superposées avec les cartographies IQ ne montrent pas de démaclage évident des macles de déformation en fonction de la température. De plus, à la suite de recuits, aucun début de recristallisation n'a été observé aux joints de macles. La réalisation d'observations in-situ pourrait permettre de mieux comprendre l'évolution de ces macles au cours de recuits.

A 850°C, la recristallisation intervient entre 50 h et 100 h de maintien (50% de grains recristallisés pour 100 h).

Pour la température de 950°C, l'évolution de la recristallisation en fonction du temps de maintien est présentée sur la [Figure 2.30](#). La recristallisation intervient à partir de 30 min à 950°C, ce qui indique une cinétique bien plus rapide qu'à 850°C. La cartographie de l'état recuit à 950°C, 30 min suggère une apparition de la recristallisation aux joints de grains et aux joints triples, synonyme

d'une recristallisation discontinue. Certains grains jaunes ou verts (minoritaires) sont encore présents sur l'état quasiment recristallisé à 950°C, 10 h et 20 h. Cela peut s'expliquer par l'hétérogénéité du matériau et donc de la différence d'écroissance d'un grain à l'autre. Ces grains résiduels sont probablement restaurés et ne possèdent plus assez d'énergie pour initier la recristallisation ou être englobés par les autres grains recristallisés en cours de croissance. Par ailleurs, les macles de déformation sont présentes jusqu'au début de la recristallisation (**Figure 2.30** – 950°C, 30 min).

A 1000°C, l'AIM1 recristallise dès la première minute de maintien et est totalement recristallisé au bout d'une heure.

Les mesures de la taille de grains ne montrent pas d'évolutions significatives de la taille de grains avec la température et avec le temps de maintien (taille moyenne n'excédant pas 40 μm). En effet, les petits grains croissent rapidement mais ne dépassent pas la taille des grains initiaux.

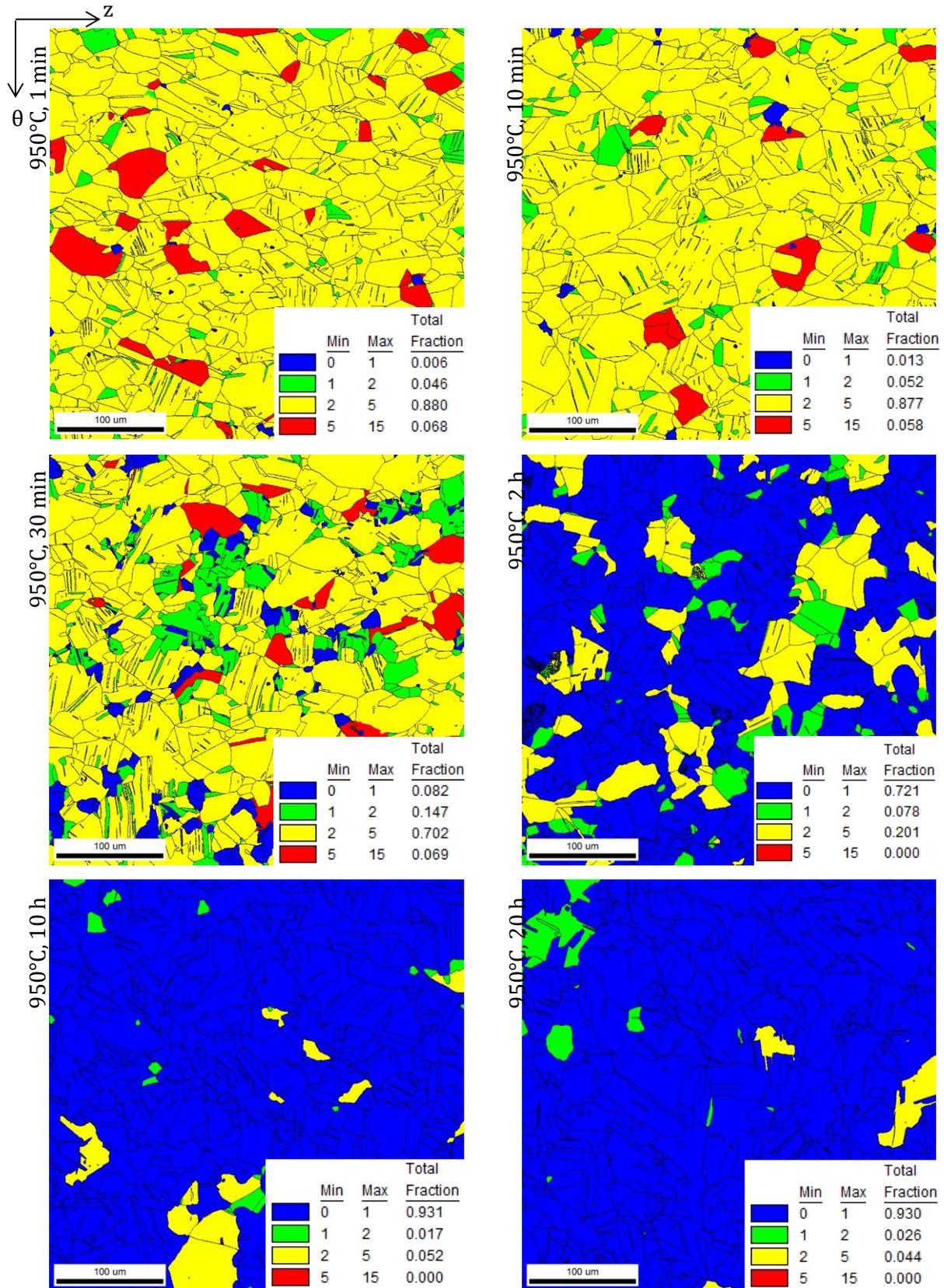


Figure 2.30 – Cartographies GOS dans le plan (θ, z) montrant l'évolution de la recristallisation en fonction du temps de maintien à 950°C.

Des observations complémentaires ont été réalisées au MET. La **Figure 2.31 a** montre l'épinglage d'un joint de grain par un gros précipités et probablement d'autres petits précipités (flèches rouges), modifiant ainsi la courbure classique des joints de grains recrystallisés. La **Figure 2.31 b** illustre un grain recrystallisé ne contenant que quelques dislocations, ce qui contraste avec la microstructure de l'état de réception montrée dans le **Chapitre 1**. Les précipités gênent donc la migration des joints à 850°C mais ne l'empêchent pas.

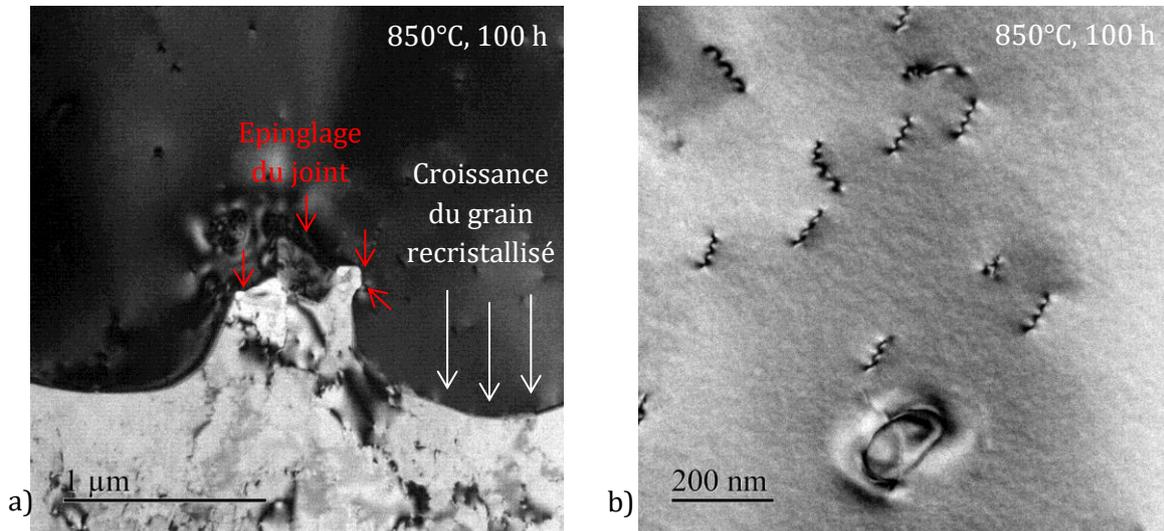


Figure 2.31 – Images MET a) d'un joint de grains épinglé par des précipités et b) d'une zone montrant un grain recrystallisé avec la présence d'un précipité primaire.

Les cinétiques de recrystallisation ont pu être décrites à l'aide de la relation JMAK décrite dans l'équation 2.2 de la **partie 1.3** de ce chapitre. Les fractions recrystallisées obtenues expérimentalement ont permis de déterminer les coefficients n et B de la loi JMAK pour chaque température (**Figure 2.32 a**).

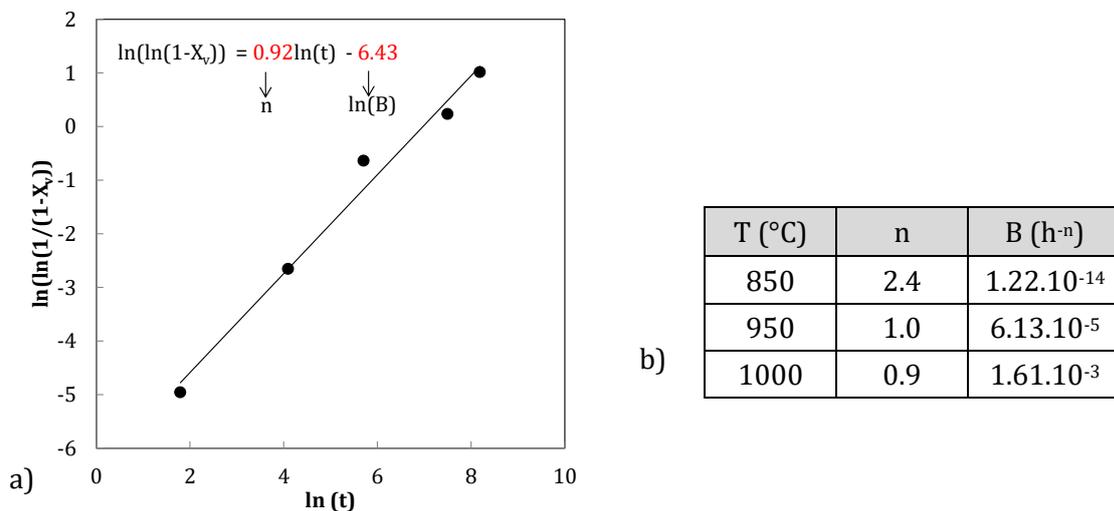


Figure 2.32 – a) Courbe permettant l'obtention des coefficients n et B à partir de la fraction de grains recrystallisés et du temps de maintien à 1000°C et b) tableau récapitulatif des coefficients de la loi JMAK pour différentes températures.

La **Figure 2.32 b** récapitule les valeurs des coefficients n et B pour les températures de 850°C, 950°C et 1000°C. Ces coefficients sont très proches pour 950°C et 1000°C avec n proche de 1 mais avec un début de recristallisation légèrement plus tardif à 950°C (**Figure 2.33**). Notons par ailleurs que pour le recuit à 950°C pendant 2 h la fraction recristallisée expérimentale est bien plus élevée (72%) que celle prédite par le modèle (30%). Cette différence pourrait être due à une hétérogénéité du matériau.

A 850°C, la valeur de n a plus que doublé avec une valeur de 2,4, ce qui se traduit par une sigmoïde plus « brutale ». Rappelons que la loi JMAK a pour hypothèses une germination aléatoire et uniforme et une croissance identique dans toutes les directions, elle ne prend pas en compte la précipitation et les éventuels effets d'épinglage de joints. Or, la précipitation est relativement complexe pour la température de 850°C (**partie 2.2**), ce qui laisse à penser qu'elle peut jouer un rôle dans la cinétique de recristallisation. Par ailleurs, le maclage abondant de l'AIM1 pourrait également jouer un rôle sur les mécanismes de recristallisation. La valeur de n pour la température de 850°C est dans la limite supérieure des valeurs trouvées dans la littérature, qui sont comprises entre 0,5 et 2 pour des aciers inoxydables austénitiques (Barraclough et Sellars 1979). La valeur de B pour 850°C est bien plus faible par rapport à 950°C et 1000°C, ce qui est synonyme d'un temps d'incubation bien plus long à 850°C par rapport aux autres températures. De manière générale, la loi JMAK permet de décrire les résultats de manière satisfaisante. Notons cependant qu'il s'agit d'une relation empirique et ne permet en aucun cas de décrire les mécanismes physiques liés à la recristallisation de l'AIM1.

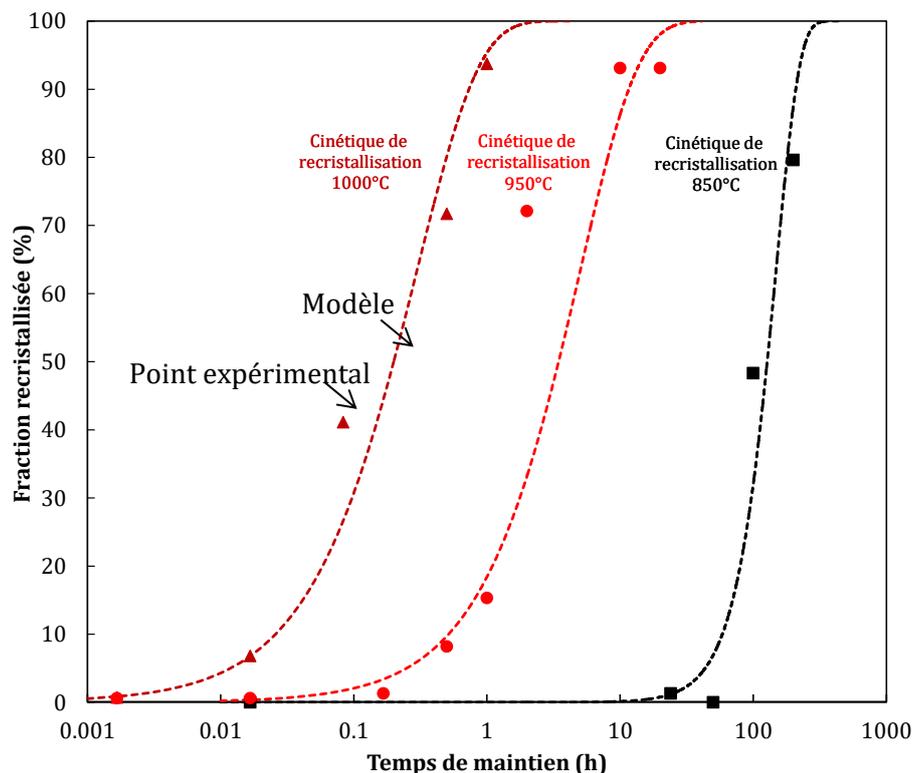


Figure 2.33 – Cinétique de recristallisation ajustée par une loi JMAK sur des points expérimentaux à 850°C, 950°C et 1000°C.

Il n'est pas possible de paramétrer l'ensemble des courbes en fonction de la température puisque la dépendance de n avec T est encore mal connue. Afin de déterminer des énergies d'activation,

on peut paramétrer $t_{0,5}$ en fonction de la température à l'aide de la relation établie par (Barraclough et Sellars 1979) décrite ci-dessous :

$$t_{0,5} = A \exp\left(\frac{Q_{rex}}{RT}\right) \quad (2.5)$$

Avec :

- $t_{0,5}$, le temps correspondant à 50% de grains recristallisés (h) ;
- A , qui dépend de la taille D_0 de grain de départ, du coefficient Z de Zener Hollomon;
- Q_{rex} , l'énergie d'activation (J.mol^{-1}) ;
- T , la température du recuit isotherme (K) ;
- R , la constante des gaz parfaits prise à $8,314 \text{ J.K}^{-1}.\text{mol}^{-1}$.

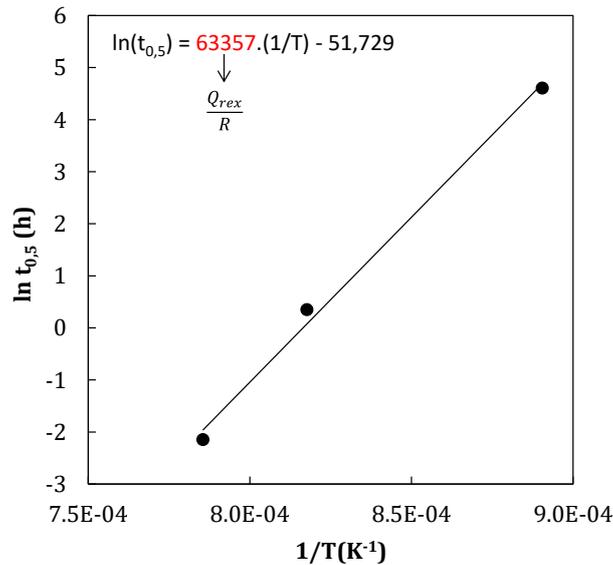


Figure 2.34 – Régression linéaire permettant l'obtention de l'énergie d'activation de la recristallisation, déterminée à partir des données à 850°C, 950°C et 1000°C.

L'énergie d'activation nécessaire pour obtenir 50% de recristallisation de l'AIM1 est de 527 kJ.mol^{-1} . Cette valeur obtenue est plus élevée que les valeurs de la littérature compris entre 336 kJ.mol^{-1} (acier D9 stabilisé) et 425 kJ.mol^{-1} (acier 304 non stabilisé) (Tripathy et al. 2013 ; Barraclough et Sellars 1979). Cela pourrait s'expliquer par la présence d'autres phénomènes qui peuvent demander plus d'énergie pour initier la recristallisation (éléments en solution solide, complexité de la précipitation). Par ailleurs, l'étude pour des températures complémentaires pourrait être intéressante afin d'obtenir davantage de points et donc une valeur de Q_{rex} plus précise.

La cinétique de recristallisation obtenue par la loi JMAK est un outil très efficace, mais les courbes sont difficilement interpolables (valeurs de n et B trop différentes à 850°C par rapport à 950°C et 1000°C) à d'autres températures. Il serait intéressant d'étudier la cinétique à des températures intermédiaires afin d'obtenir une tendance sur l'évolution de n et de B avec la température de recuit.

A 850°C, la recristallisation n'intervient pas avant 24 h, on ne s'attend donc pas à recristalliser lors d'un essai de fluage à 850°C (essais avec un temps à rupture inférieur à 10 h) (Chapitre 4). Cependant, une éventuelle recristallisation induite par la contrainte appliquée n'est pas à écarter. Pour ce qui est des essais à 950°C, la recristallisation pendant les essais de fluage est attendue,

mais l'application d'une contrainte influencera-t-elle de manière significative la cinétique de recristallisation (**Chapitre 4**) ?

Les **parties 2.2, 2.3 et 2.4** ont présenté respectivement les études de la précipitation, de la restauration et de la recristallisation. On s'intéresse à la suite de ces parties aux effets résultants de ces différents phénomènes (**partie 2.5**).

2.5. Evolution de la microdureté et comparaison avec les cinétiques de restauration et de recristallisation

Afin de caractériser de manière quantitative l'adoucissement de l'AIM1 en fonction de la température et du temps de maintien, des mesures de microdureté Vickers ont été réalisées (protocole **partie 3.4** du **Chapitre 1**). Notons néanmoins que les mesures de dureté ne permettent pas d'obtenir le comportement élastoplastique du matériau de manière très précise. Dans ce sens, il aurait été judicieux de réaliser des essais de traction sur les échantillons recuits. Toutefois, la matière disponible pour la réalisation des essais de traction est insuffisante pour les échantillons recuits au dilatomètre (tuiles d'environ 1 cm de longueur). Par ailleurs, l'utilisation d'échantillons trop longs dans le four PYROX 2 aurait induit des gradients thermiques trop importants.

Par conséquent, la **Figure 2.35** présente les résultats de microdureté pour les températures de 650°C, 750°C, 850°C, 950°C et 1000°C. En guise de comparaison, les lignes horizontales indiquent la microdureté moyenne pour l'état de réception (282 HV_{0,1}) et pour l'état hypertrempé (156 HV_{0,1}). Notons que la dispersion des mesures de dureté ne diminue pas au cours du recuit, y compris après recristallisation (950°C, 20 h et 1000°C, 1 h). L'interprétation des résultats ne concernera que l'étude des tendances sur les valeurs moyennes.

La valeur de la microdureté pour les traitements thermiques à **650°C** ne varie pas jusqu'à 100 h. Une restauration modérée est attendue pour cette température. Néanmoins, la précipitation peut avoir un effet durcissant malgré l'appauvrissement de la solution solide qui en résulte, c'est pourquoi une comparaison des résultats de microdureté avec l'étude de la restauration par la méthode de diffraction des neutrons est nécessaire. Des études sont menées dans la thèse de (Curtet 2017) afin d'étudier la contribution du durcissement par précipitation pour un état non restauré (T = 500°C).

Pour la température de **750°C**, la valeur de la microdureté diminue légèrement entre 2 h et 100 h. Au-delà de 100 h, une chute de la dureté est observée pour atteindre 224 HV_{0,1} au bout de 3000 h de traitement thermique.

A **850°C**, la diminution de dureté intervient beaucoup plus tôt, dès les premières minutes de maintien. La dureté se stabilise ensuite autour de 250 HV_{0,1} entre 30 min et 24 h de recuit. Une chute de la dureté après 24 h est constatée, pour atteindre une dureté de 176 HV_{0,1} au bout de 200 h de traitement thermique.

Pour les températures de **950°C** et **1000°C** l'évolution de la microdureté suit globalement les mêmes tendances. Le matériau s'adoucit dès la première minute de maintien pour ces deux températures. La valeur moyenne de la microdureté en fonction du temps diminue de manière quasi-logarithmique jusqu'à atteindre une stabilisation entre 180 et 190 HV_{0,1} (à partir de 30 min à 1000°C et à partir de 2 h à 950°C).

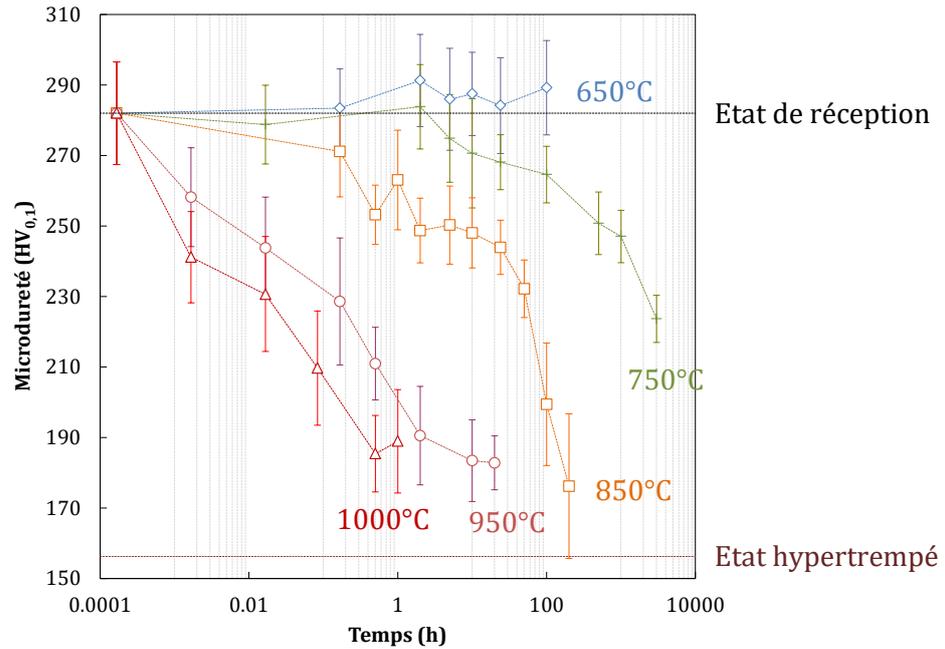


Figure 2.35 – Evolution des valeurs moyennes de microdureté en fonction de la température et du temps de maintien.

L'évolution de la densité relative de dislocations déterminée par la diffraction des neutrons a été comparée avec les résultats de microdureté sur la [Figure 2.36](#). Globalement, les évolutions de la dureté et de la densité de dislocations suivent les mêmes tendances. Pour les températures et les temps de maintien présentés sur la [Figure 2.36](#), la perte de dureté est due à la restauration. En effet, les courbes montrent une bonne corrélation entre les mesures de dureté et l'état de restauration estimé. La contribution du durcissement par précipitation des nano-précipités est a priori constante puisque ces précipités évoluent peu en taille et en fraction pour une température donnée et dans l'intervalle de temps pour lequel il est constaté une évolution de dureté et de l'état de restauration. La corrélation entre la restauration et la dureté est probablement un lien de cause à effet, l'adoucissement est essentiellement dû à la restauration.

Cependant, pour les recuits de 650°C, 100 h et 850°C, 1 h, une légère augmentation de la dureté est constatée, malgré une diminution de la densité de dislocations. Ce résultat pourrait s'expliquer par un durcissement de l'acier par précipitation des (Ti, Mo)C nanométriques qui n'est pas compensé par l'adoucissement dû à la restauration. Néanmoins, il peut paraître étonnant que ce durcissement intervienne pour ces températures et temps particuliers (notamment pour l'état 850°C, 1 h), d'autant plus que la taille des nanoprecipités augmente et se stabilise très vite dans le temps. En effet, les tailles des précipités pour 850°C, 30 min et 850°C, 1 h sont sensiblement identiques (diamètre entre 5 et 6 nm). Le durcissement devrait alors être équivalent, voire plus faible pour la durée du traitement 1 h compte tenu de la diminution de la densité de dislocations par rapport à 30 min. Par ailleurs, l'hétérogénéité du matériau de référence peut également induire des hétérogénéités de précipitation, mais aussi de restauration. Cela pourrait induire une dispersion des résultats mesurés à une échelle plus locale en dureté qu'en diffraction des neutrons (taille de l'empreinte en dureté de l'ordre d'un grain austénitique contre l'analyse de l'ordre de 500000 grains en diffraction des neutrons). Ceci peut être démontré par les résultats de microdureté et la valeur de l'écart-type associé à chaque valeur moyenne.

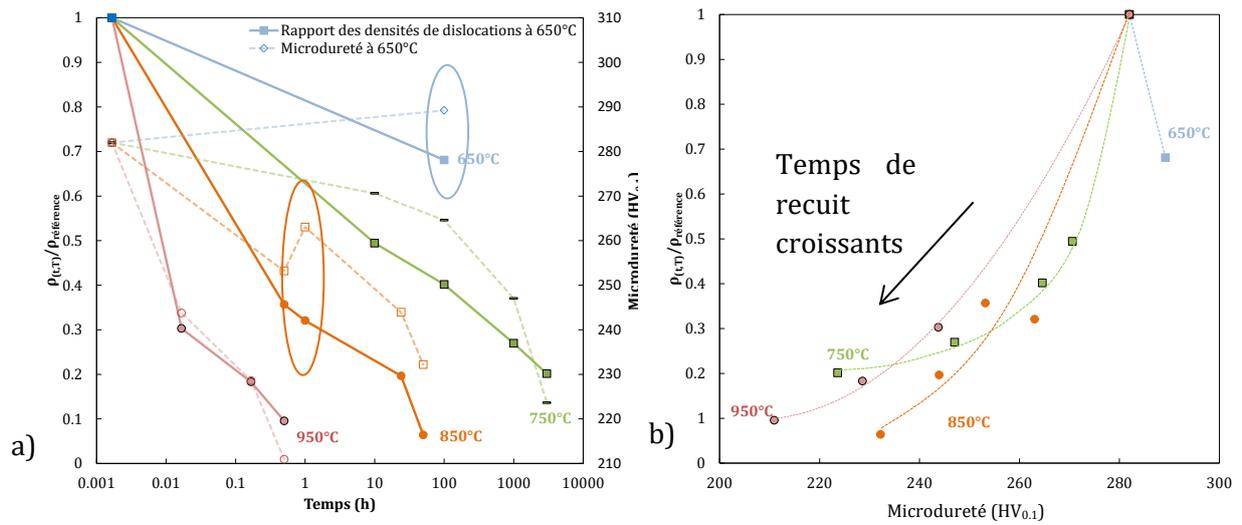


Figure 2.36 - a) Comparaison des évolutions de la microdureté et de la densité de dislocations en fonction de la température et du temps de maintien et b) évolution de la densité relative de dislocations en fonction de la microdureté.

L'évolution des résultats de microdureté est comparée avec les cinétiques de recristallisation sur la **Figure 2.37 a** et **b**. Ces figures permettent de rendre compte de l'adoucissement dû à la recristallisation.

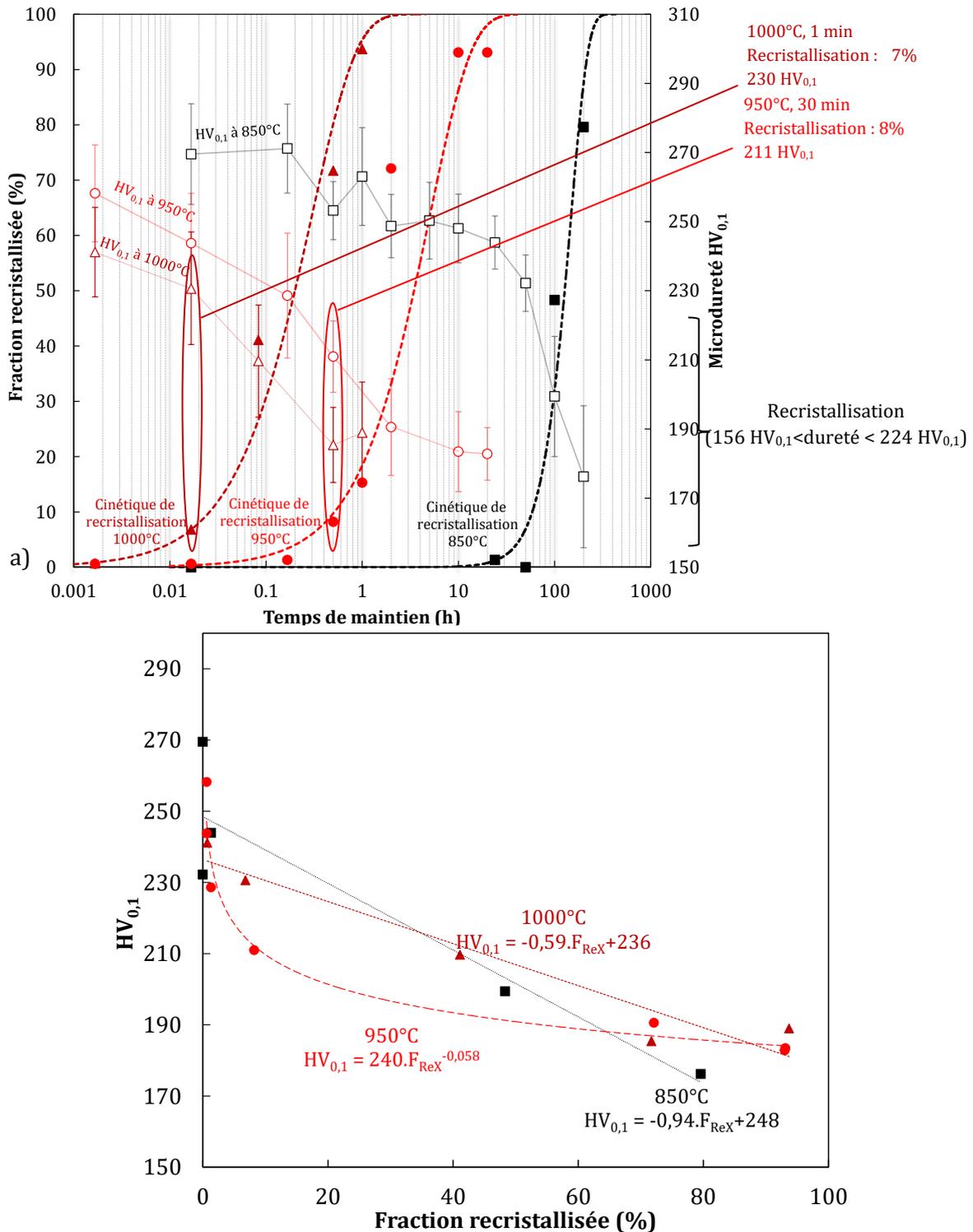


Figure 2.37 – a) Comparaison de la cinétique de recristallisation avec les évolutions des mesures de microdureté en fonction de la température et du temps de maintien et **b)** Evolution de la dureté en fonction de la fraction de grains recristallisés à 850°C, 950°C et 1000°C.

De manière générale, pour une microdureté en-dessous de 230 HV_{0,1}, le matériau est au moins partiellement recristallisé. En effet, lorsqu'un début de recristallisation a été observé, la microdureté n'excède pas cette valeur (1000°C, 1 min, 950°C, 30 min et 850°C, 50 h). Néanmoins, pour la condition 750°C, 3000 h la valeur de microdureté est de 224 HV_{0,1}, mais aucune recristallisation n'a été identifiée. 224 HV_{0,1} est donc une estimation de la valeur minimale due à la restauration avant le début de recristallisation, bien que cette valeur moyenne pourrait varier pour toutes les températures. En effet, les duretés sur microstructures peu recristallisées semblent très peu varier. La valeur de dureté pour l'AIM1 totalement recristallisé est de l'ordre de 180 HV_{0,1}. Il est important de noter que cette valeur est beaucoup plus élevée que pour l'état hypertrempé (différence de 24 HV_{0,1}, **Figure 2.36 a**). Cette différence pourrait être due à la présence de carbures de titane pour les états traités thermiquement, contrairement à l'état hypertrempé. Rappelons cependant que la répartition spatiale des précipités pour les états recristallisés est hétérogène et qu'elle est plus grossière par rapport aux états écrouis ou partiellement recristallisés. Cela pourrait expliquer la dispersion des résultats de dureté qui reste encore élevée, même pour des états totalement recristallisés (mais non hypertrempés). Par ailleurs, pour ces états, certains grains écrouis résiduels persistent. Ce phénomène peut alors être une source d'hétérogénéité et induire un durcissement local par rapport aux grains recristallisés.

Il y a peu d'effet de la température de recuit si ce n'est une accélération des cinétiques de restauration et de recristallisation. La nature des précipités (autres que les carbures de titane secondaires) joue peu. Pour résumer les liens entre les évolutions microstructurales et les évolutions de dureté au cours des recuits :

- Il existe un état plus ou moins précipité et dont la restauration est faible (T= 650°C) avec une dureté d'environ 280 HV_{0,1} ;
- L'adoucissement de la dureté dépend fortement de la restauration jusqu'à 220 HV_{0,1} ;
- La dureté évolue très peu en fonction de la fraction recristallisée ;
- La dureté se stabilise à 180 HV_{0,1} pour les états totalement recristallisés mais contenant encore des carbures de titane secondaires d'une taille supérieure à 30 nm et des précipités enrichis en chrome ;
- La dureté est de 156 HV après un traitement thermique d'hypertrempe (dissolution complète des carbures de titane secondaires, des carbures de chrome et microstructure totalement recristallisée).

2.6. Etablissement d'un modèle d'adoucissement empirique pour l'AIM1

Un modèle simplifié présentant l'évolution de la dureté en fonction de la température et du temps été déterminé pour l'AIM1 à partir des résultats expérimentaux obtenus dans cette thèse.

L'évolution de la valeur de la dureté dépend fortement de l'état de restauration (et par conséquent de la densité de dislocations). Après la restauration, le phénomène de recristallisation va continuer d'adoucir le matériau jusqu'à ce que les grains soient tous recristallisés (dépendance de la dureté envers la fraction de grains recristallisés). D'autres phénomènes vont compenser les effets adoucissants de la restauration et de la recristallisation, comme la nano-précipitation de carbures de titane et le durcissement lié à la présence d'éléments en solution solide.

Néanmoins, il est très complexe de déterminer la contribution de ces effets durcissants à partir des données disponibles étant donné que la microstructure évolue constamment près des dislocations (précipitation, ségrégation du carbone et du titane). Il n'est donc pas possible de dissocier *a priori*, par des contributions additives indépendantes, l'effet de forêt, l'effet de solution solide et l'effet de la population de précipités. A titre d'exemple, il a été montré qu'à 650°C pour un recuit de 100 h, la valeur de la dureté ne varie pas de manière significative, or, la densité de dislocations a été réduite de 30% par rapport à l'état initial, ce qui aurait dû avoir pour conséquence une diminution de la dureté. Cela signifie qu'un autre effet durcissant a compensé la chute de dureté lié à la diminution de la densité de dislocations. Ce durcissement est certainement lié à la présence de carbures de titane nanométriques et ce dès les premières minutes de maintien à cette température.

Par conséquent, pour le modèle utilisé ici, les contributions autres que l'effet de la densité de dislocations sont prises en compte implicitement via un terme global regroupant le durcissement par solution solide et le durcissement par la présence de nano-carbures de titane sur les dislocations. L'hypothèse étant que l'évolution de la taille des précipités (taille comprise entre 4 nm et 7 nm) et la concentration des éléments près des dislocations ne fait pas varier de manière significative la dureté lors de la restauration. La contribution globale du durcissement par solution solide et par précipitation est ainsi supposée indépendante de la température et du temps.

Le modèle proposé dans cette partie a été établi à partir de microstructures et de valeurs de microdureté connues (cf. Figure 2.38).

Tout d'abord, l'évolution de la densité de dislocations par le mécanisme de restauration a été modélisée à partir de la relation (2.6). Elle a été établie à partir de la relation de (Stüwe, Padilha, et Siciliano 2002) modifiée en rajoutant un exposant k . La relation (2.6) est plus adaptée à l'évolution de la densité de dislocations par rapport à celle de (Stüwe, Padilha, et Siciliano 2002).

$$\rho(T,t) = \rho_{\infty} + \frac{t_e^{k(T)}}{t^k + t_e^{k(T)}} (\rho_0 - \rho_{\infty}) \quad (2.6)$$

Avec :

- ρ la densité de dislocations pour une température et un temps de recuit donné ;
- ρ_{∞} , la densité de dislocations pour des temps infinis (valeur prise pour l'état hypertrempé : $\rho_{\infty} = 7.10^{13} \text{ m}^{-2}$) ;
- ρ_0 , la densité de dislocations pour $t = 0$ (valeur prise pour l'état de référence : $\rho_0 = 1.10^{15} \text{ m}^{-2}$) ;
- t , le temps de recuit;
- $t_e(T)$, le temps caractéristique de restauration pour la température T à ajuster ;
- k , une constante à ajuster.

L'avantage de cette relation (2.6) est qu'elle est applicable pour des temps proches de zéro, ce qui n'est pas le cas pour les relations logarithmiques obtenues dans la partie 2.3 de ce chapitre.

Les courbes tracées à partir des valeurs obtenues grâce à la relation (2.6) sont comparées avec les données expérimentales obtenues par diffraction des neutrons sur la Figure 2.39.

L'évolution de la dureté lors de la restauration peut alors être obtenue grâce à la relation (2.7) :

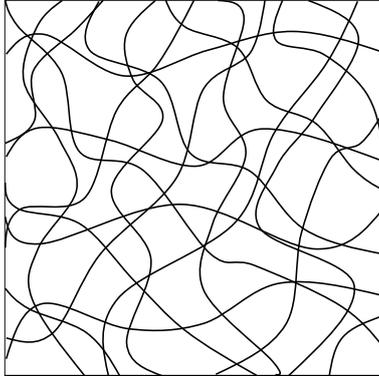
$$HV_{res}(T,t) = HV_{ref} - (HV_{ref} - HV_{res100\%}) \times \left(1 - \sqrt{\frac{\rho(T,t)}{\rho_0}}\right) \quad (2.7)$$

Avec :

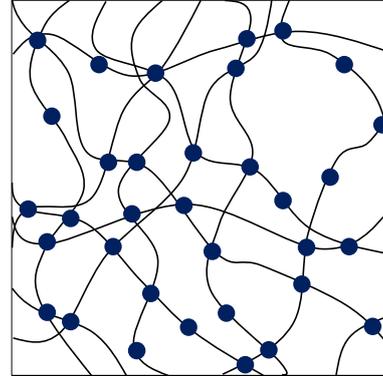
- HV_{ref} la valeur de microdureté pour l'état de référence prise à 282 HV_{0,1} ;
- $HV_{res100\%}$ la valeur de microdureté pour un état totalement restauré et contenant des nano-précipités.

↓ Diminue faiblement
 ↓↓ Diminue modérément
 ↓↓↓ Diminue fortement
 ↓↓↓↓ Diminue très fortement
Par rapport à l'état de référence

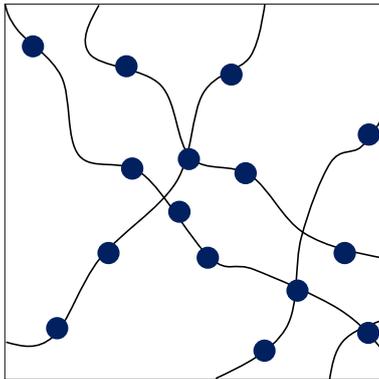
↑ Augmente faiblement
 ↑↑ Augmente modérément
 ↑↑↑ Augmente fortement
 ↑↑↑↑ Augmente très fortement
Par rapport à l'état de référence



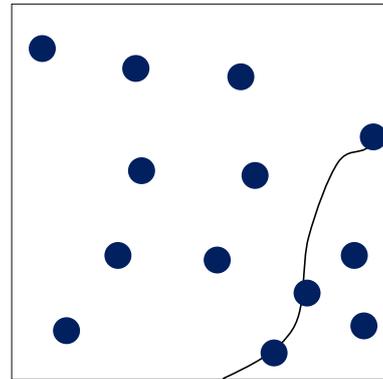
HVref = 282 HV_{0,1}
 HV(solution solide)
 HV(dislocations)



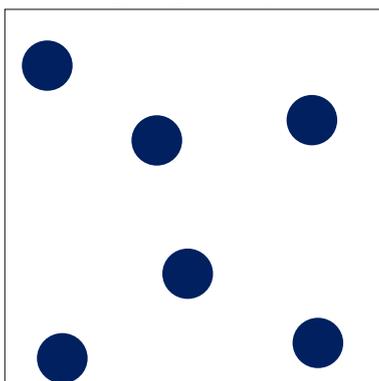
HVref(t=0) = 282 HV_{0,1} (T = 650°C, t < 100 h)
 HV(solution solide) ↓
 HV(dislocations) ↓↓
 HV(précipitation) ↑↑↑



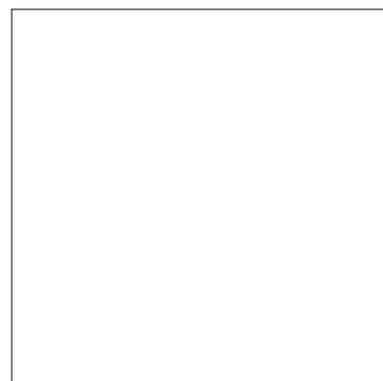
HVres80% = 230 HV_{0,1} (T = 850°C, t = 50 h)
 HV(solution solide) ↓
 HV(dislocations) ↓↓↓
 HV(précipitation) ↑↑↑



HVres100% (T) (230 < HV_{0,1} < 180)
 HV(solution solide) ↓
 HV(dislocations) ↓↓↓
 HV(précipitation) ↑↑



HVrec100% 180 HV_{0,1} (T = 950°C, t = 20 h)
 HV(solution solide) ↓
 HV(dislocations) ↓↓↓↓
 HV(précipitation) ↑



HVhyp = 156 HV_{0,1}
 HV(solution solide)
 HV(dislocations) ↓↓↓↓

Figure 2.38 – Schémas de différents états microstructuraux avec les valeurs de microdureté associées.

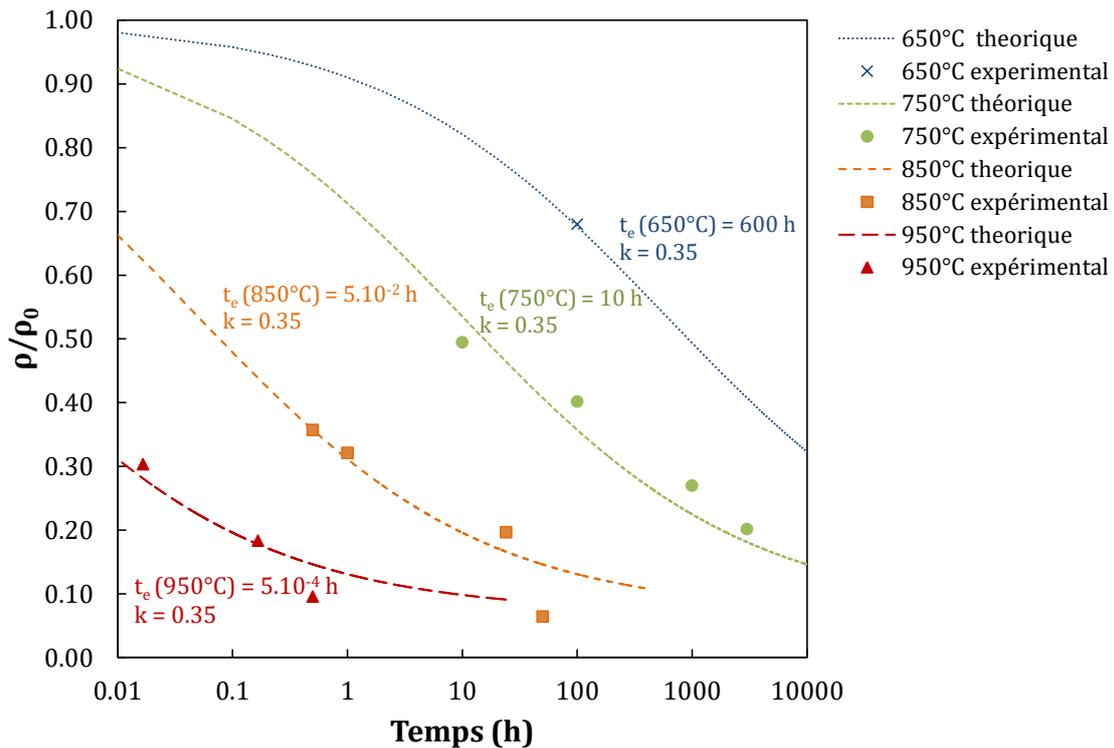


Figure 2.39 – Evolution de la densité de dislocations théorique en fonction du temps et comparaison avec les données expérimentales obtenues par diffraction des neutrons ($T = 650^{\circ}\text{C}$, 750°C , 850°C et 950°C).

Etant donné qu'aucune recristallisation n'a été mise en évidence à 650°C et 750°C pour les conditions de recuits présentés dans cette thèse, l'évolution de la dureté pour ces températures peut être décrite par la relation (2.7). L'évolution de la dureté calculée par le modèle et la comparaison avec les mesures de dureté expérimentales en fonction du temps sont présentées sur la Figure 2.40.

La courbe théorique pour la température de 650°C sous-estime les valeurs de microdureté expérimentales. Cette sous-estimation ($10 \text{ HV}_{0,1}$ pour $t = 100 \text{ h}$) est néanmoins acceptable compte tenu de la forte dispersion des mesures de microdureté.

Pour les températures de 850°C et 950°C , la diminution de la dureté est régie à la fois par la restauration et la recristallisation (à partir de 100 h à 850°C et de 30 min à 950°C). L'évolution de la dureté pour ces températures peut être décrite par la relation (2.8).

$$HV_{res+rec} = HV_{res}(T,t) \times (1 - X_{rec}(T,t)) + HV_{rec100\%} \times X_{rec}(T,t) \quad (2.8)$$

Avec :

- $HV_{res}(T,t)$, la valeur de microdureté pour l'état restauré déterminée à partir de la relation (2.7);
- $X_{rec}(T,t)$, la fraction des grains recristallisés pour la température T et le temps t déterminée à partir de la loi JMAK établies sur les analyses EBSD –GOS ;
- $HV_{rec100\%}$, la valeur de microdureté pour un état 100% recristallisé et contenant des nano-précipités d'une taille supérieure à 30 nm (prise à $180 \text{ HV}_{0,1}$) ;

Les comparaisons des évolutions des valeurs de microdureté modélisées et expérimentales à 850°C et 950°C sont présentées sur la **Figure 2.41**.

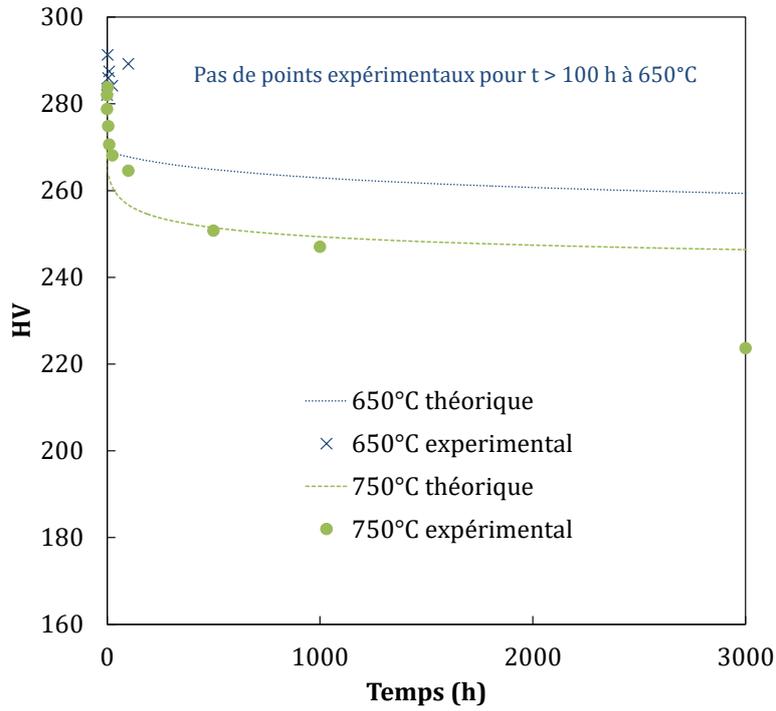


Figure 2.40 - Evolutions de la dureté modélisée et expérimentale en fonction du temps à 650°C et à 750°C.

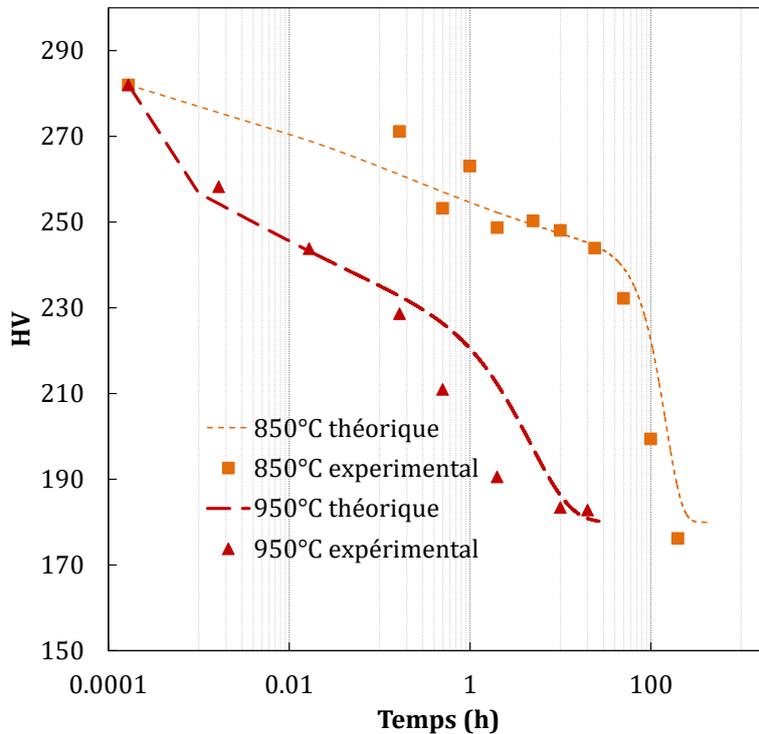


Figure 2.41 - Evolutions de la dureté modélisée et expérimentale en fonction du temps à 850°C et à 950°C.

Le modèle empirique décrit raisonnablement l'évolution de la dureté mesurée expérimentalement.

Le **Tableau 2.7** présente les différents paramètres ajustés du modèle.

Température (°C)	t_e (h)	k	HVres100%	HVrec100%	HVref	n (Loi JMAK)	B (h ⁻¹) (Loi JMAK)
650	600	0,35	220	-	282	-	-
750	10	0,35	220	-	282	-	-
850	0,05	0,35	220	180	282	2,43	$1,22 \cdot 10^{-14}$
950	0,0005	0,35	200	180	282	0,99	$6,13 \cdot 10^{-5}$

Tableau 2.7 – Valeurs des différents paramètres utilisés pour le modèle de dureté.

Avec :

- t_e le temps caractéristique de restauration pour la température T ;
- k , une constante à ajuster par rapport à la densité de dislocations expérimentale ;
- $HVres100\%$, la dureté pour atteindre une restauration théorique de 100% (zéro dislocations) ;
- $HVrec100\%$, la dureté pour un état 100% recristallisé pris à 180 HV_{0,1} ;
- $HVref$, la dureté de l'état de référence écroui à froid ;
- n , coefficient de la loi JMAK ajusté pour la température T (partie 2.4 de ce chapitre) ;
- B , coefficient de la loi JMAK ajusté pour la température T (partie 2.4 de ce chapitre).
-

2.7. Conclusion des résultats des évolutions microstructurales de l'AIM1 au cours de recuits isothermes

Les observations sur répliques extractives au carbone mettent en évidence la présence d'aiguilles de phosphures à 850°C mais une absence à 950°C. La mesure des tailles et fractions volumiques de TiC permettant d'avoir une idée qualitative sur le durcissement induit par ces précipités. Les observations sur lames minces confirment les deux populations de carbures de titane pour les états partiellement recristallisés. La présence de précipités répartis majoritairement en intergranulaire (borures), peuvent être bénéfiques pour une meilleure résistance mécanique en renforçant les joints de grains.

L'étude de l'évolution microstructurale permet d'avoir une meilleure connaissance des domaines de restauration et de recristallisation de l'AIM1 après traitements thermiques. Une caractérisation quantitative de la restauration a pu être réalisée grâce à une mesure de largeur des pics de diffraction des neutrons à mi-hauteur et une détermination des micro-distorsions. La cinétique de recristallisation de l'AIM1 a été déterminée pour les températures de 850°C, 950°C et 1000°C à partir d'analyse EBSD et modélisée par une loi de type JMAK. Une comparaison de ces résultats avec les mesures de microdureté a permis d'établir un modèle d'adoucissement pour l'AIM1.

3. Conclusion concernant les évolutions microstructurales au cours de recuits isothermes

Les résultats de la thèse permettent de mettre en évidence la présence d'aiguilles de phosphures (à 850°C, mais pas à 950°C), de précipités enrichis en chrome (pour toutes les températures) et de carbures de titane primaires et secondaires. La détermination de l'existence de ces précipités est importante car elle peut influencer les propriétés mécaniques à chaud (durcissement ou fragilisation). Par conséquent, la taille et la fraction volumique des carbures de titane secondaires ont été déterminées par MET et par DNPA. Les résultats montrent une stabilisation rapide de ces grandeurs pour les grains écrouis.

Les phénomènes de restauration et de recristallisation ont pu être qualifiés et quantifiés pour différents temps et différentes températures.

L'évolution de la dureté est principalement contrôlée par l'adoucissement dû à la restauration jusqu'à 220 HV_{0,1}. Les états recuits ayant une dureté inférieure à cette valeur sont recristallisés. Après recristallisation, les valeurs de la dureté varient peu et se stabilisent vers 180 HV_{0,1} (pour les états complètement recristallisés), ce qui correspond à 24 HV_{0,1} de plus que la valeur de dureté pour l'AIM1 hypertrempé. Cela montre l'effet durcissant des carbures de titane (même si leur taille est supérieure à 30 nm dans les matériaux recristallisés).

Par ailleurs, l'hétérogénéité de la microdureté est conservée après traitements thermiques par rapport à l'état de réception (grande dispersion des mesures).

Le modèle empirique proposé dans cette thèse permet de décrire raisonnablement l'évolution de la dureté expérimentale.

L'étude détaillée dans ce chapitre permet de mieux cerner les évolutions microstructurales dans la gamme de température qui nous intéresse. On peut ainsi attendre les effets de ces évolutions sur le comportement en fluage :

- A 650°C et 750°C, la restauration est modérée et aucune recristallisation n'est à prévoir (pour des temps d'essais inférieurs à 3000 h). Les carbures de titane sont fins (diamètre entre 5 et 6 nm) et les précipités enrichis en chrome sont en cours de formation. Le matériau sera *a priori* extrêmement dur, qu'en sera-t-il de sa ductilité en fluage ? Par ailleurs, une sollicitation mécanique à ces températures modifiera-t-elle les cinétiques de restauration ?
- A 850°C et 950°C, on attend une restauration très rapide des éprouvettes (dès les premières minutes) voire une recristallisation au cours des essais de fluage (début de recristallisation dès 30 min à 950°C). La sollicitation mécanique changera-t-elle les cinétiques de recristallisation ?

Les carbures de titane ne seront *a priori* pas plus gros que 7 nm, et la coexistence des précipités de type carbures de chrome et borures de chrome dans les joints de grains est à prévoir. La présence de phosphures à 850°C dans les grains austénitiques et la déplétion observée près de certains joints modifiera-t-elle le comportement à la rupture ?

Chapitre III

Comportement viscoplastique de l'AIM1 à 650°C et 750°C

Sommaire

1. Etat de l'art : mécanismes de déformation et de rupture en fluage des aciers proches de l'AIM1	104
1.1. L'essai de fluage	104
1.2. Régimes de déformation viscoplastique.....	106
1.3. Modes de rupture à haute température et représentation paramétrique du temps à rupture en fluage.....	109
1.4. Comportement mécanique entre 650°C et 800°C des aciers austénitiques stabilisés au titane	110
1.4.1. Comportement en traction à chaud	111
1.4.2. Comportement viscoplastique macroscopique.....	115
1.4.3. Mécanismes physiques régissant le comportement viscoplastique.....	118
1.4.4. Comportement à rupture	121
1.5. Conclusion de l'état de l'art concernant le comportement en fluage des aciers ayant une composition proche de l'AIM1	124
2. Comportement en fluage sous air de l'AIM1 à 650°C et 750°C	124
2.1. Protocoles expérimentaux et conditions d'essai	125
2.2. Comportement viscoplastique.....	128
2.3. Représentation du lien entre la vitesse de déformation minimale et le temps à rupture	133
2.4. Expertises des éprouvettes après essai	135
2.5. Examen des éprouvettes sur coupes polies après essai.....	139
2.6. Conclusion concernant le comportement viscoplastique de l'AIM1	147
3. Conclusion du comportement viscoplastique d'un acier stabilisé à 650°C et 750°C.	147

L'étude du comportement viscoplastique est détaillée sur 2 chapitres :

- Ce chapitre qui décrit l'état de l'art aux basses températures ($T \leq 800^\circ\text{C}$) et l'exploitation des essais de fluage à 650°C et 750°C ;
- Le chapitre suivant qui présente essentiellement la réalisation et l'exploitation des essais de fluage à hautes températures ($T \geq 850^\circ\text{C}$). Ce choix d'organisation de chapitres a été motivé par une évolution microstructurale très rapide pour ces températures par rapport à $T \leq 750^\circ\text{C}$.

Pour ce troisième chapitre nous présenterons dans la première partie l'état de l'art concernant le comportement à la déformation et à la rupture d'aciers inoxydables austénitiques stabilisés. La deuxième partie sera dédiée à l'étude du fluage à 650°C et 750°C. Le comportement au fluage est étudié sous deux aspects qui sont :

- La réponse macroscopique par rapport au chargement mécanique (déformation et rupture) ;
- L'évolution métallurgique sous contrainte (microstructure).

1. Etat de l'art : mécanismes de déformation et de rupture en fluage des aciers proches de l'AIM1

1.1. L'essai de fluage

Pour pouvoir permettre une déformation de fluage détectable, la température doit être supérieure à $\sim 0,50T_f$ (ce qui correspond à une température d'environ 700°C) pour les aciers austénitiques. Les essais de fluage sont réalisés sous une charge constante et généralement en traction.

La courbe représentant la déformation en fonction du temps est composée classiquement de 3 stades (Figure 3.1 a) :

- Le fluage primaire (I), qui se déroule au début de l'essai. Il correspond principalement à un durcissement lié à la création de nouvelles dislocations²⁷. De plus, la précipitation pour les aciers stabilisés intervient dès les premières minutes ($T > 600^\circ\text{C}$) et peut accentuer le durcissement par épinglage des dislocations. Le stade primaire est susceptible d'être davantage accentué pour les conditions où la précipitation sera la plus fine et la plus dense (basses températures). La vitesse de fluage diminue progressivement, jusqu'au stade secondaire ;
- Le fluage secondaire (II), à la suite du fluage primaire, est caractérisé par une évolution linéaire de la déformation en fonction du temps. La vitesse de déformation est constante et sa valeur minimale, qui est une grandeur caractéristique en fluage, peut être déterminée. La vitesse minimale de déformation dans le secondaire est couramment utilisée en ingénierie pour les calculs de dimensionnement. Le phénomène physique associé aux essais de fluage est l'écoulement à haute température, qui est à la fois thermiquement activé et irréversible.

La vitesse de déformation de ce régime peut ainsi être décrite suivant une loi de type loi d'Arrhenius (3.1) :

$$\dot{\epsilon} = A\sigma^n e^{-Q/RT} \quad (3.1)$$

Avec :

- o A , une constante ;
- o n , le coefficient de Norton ;
- o Q , l'énergie d'activation de la déformation viscoplastique dans le régime considéré ;
- o R , la constante des gaz parfaits ;
- o T , la température.

Les valeurs de A , n et Q dépendent du matériau, de la contrainte et de la température (dans un certain régime ces valeurs sont constantes). A des niveaux de contraintes élevés, cette

²⁷ Notons que lors d'un essai de fluage il y a une compétition entre la création (solicitation mécanique) et la restauration (annihilation et réarrangement des dislocations dû au recuit) de dislocations à tous les stades.

relation n'est plus vérifiée, ce qui se traduit par une rupture de pente dans la courbe représentant la vitesse de déformation en fonction de la contrainte (appelée *power law breakdown*).

Le mécanisme physique à l'échelle de la microstructure se traduit par une compensation de l'érouissage due à la création des dislocations avec une annihilation et un réarrangement de ces dislocations par restauration. Compte tenu des résultats obtenus dans le **Chapitre 2**, le stade secondaire est susceptible d'être long à 650°C, puisque la restauration est assez lente pour cette température (diminution de la densité de dislocations de 32% au bout de 100 h de maintien (**Chapitre 2**);

- Le fluage tertiaire (III), correspond à une accélération rapide de la déformation et à une augmentation de l'allongement jusqu'à rupture. Ce dernier stade est dominé par des évolutions métallurgiques instables comme :
 - La striction. La contrainte n'est plus constante car la géométrie de l'éprouvette change avec la déformation (diminution de la section) ;
 - L'endommagement, qui se traduit principalement par la cavitation et la fissuration du matériau. L'endommagement est probable notamment pour l'AIM1, la précipitation se situe en inter et en intragranulaire quelle que soit la température (précipités de type TiC primaires, carbures de chrome et borures à basse température) ;
 - La localisation de la déformation due à la striction ;
 - L'adoucissement par une évolution microstructurale liée à la précipitation (apparition, disparition, croissance de précipités), la restauration ou la recristallisation. La présence de recristallisation n'est pas attendue au cours d'essais de fluage à basses températures ($T < 750^\circ\text{C}$), d'après le **Chapitre 2**.

Les effets d'environnement peuvent accélérer l'entrée dans le stade tertiaire ou augmenter la vitesse de fluage dans ce stade.

Notons qu'expérimentalement, la présence de ces trois régimes n'est pas systématique car ils sont fortement dépendants de la contrainte, de la température et de l'état initial.

La (**Figure 3.1**) donne une évolution qualitative des courbes de fluage en fonction des niveaux de température et de contrainte. Plus la contrainte ou la température sont élevées et plus la vitesse de déformation sera élevée.

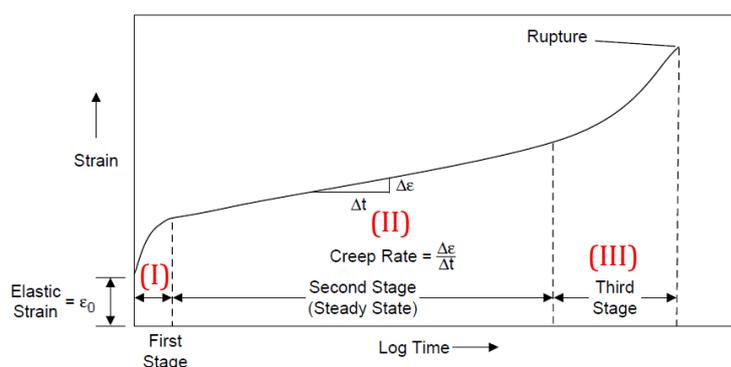


Figure 3.1 – Courbe de fluage schématisant la déformation en fonction du temps avec les stades (I), (II) et (III), d'après (Campbell 2008).

En comparant l'état de l'art et des résultats obtenus concernant les évolutions microstructurales après recuit (**Chapitre 2**), il est probable qu'à 650°C et 750°C les évolutions de la matrice soient faibles (restauration modérée). Les précipités secondaires fins (1 – 3 nm) sont attendus dès le

début des essais. La valeur du coefficient de Norton sera *a priori* élevée du fait des contraintes internes induites par la présence de ces précipités.

1.2. Régimes de déformation viscoplastique

A haute température, plusieurs mécanismes de déformation peuvent se dérouler simultanément lors d'un essai de fluage. Néanmoins, la nature du processus prédominant dépend à la fois de la contrainte et de la température.

Les principaux régimes rencontrés en fluage sont :

- **Le fluage par dislocations.** Le coefficient de Norton n est compris généralement entre 3 et 10 pour les aciers stabilisés au titane (Latha et al. 2010). Les valeurs de coefficient n élevés traduisent des contraintes internes non négligeables, ce qui est le cas pour des aciers comme l'AIM1. Les dislocations subissent alors une *contrainte effective*, qui correspond à $\sigma_{\text{effective}} = (\sigma_{\infty} - \sigma_{\text{interne}})$, avec σ_{∞} la contrainte macroscopique et σ_{interne} la contrainte interne. Une contrainte interne de 136 MPa a été obtenue sur un acier D9²⁸ avec un coefficient n fixé à 4 pour des essais réalisés à 650°C (Latha et al. 2010).

A chaud, une nouvelle manière de franchir les systèmes de glissement est possible telle que le **glissement dévié** des dislocations. Lors de leur parcours, les dislocations peuvent rencontrer des obstacles (tels que les TiC secondaires pour l'AIM1). Si la température est suffisamment élevée, la diffusion des lacunes va permettre la **montée** de ces dislocations et donc d'éviter ces obstacles. Dans certains cas, la vitesse du processus est contrôlée par la diffusion des lacunes ou des atomes favorisant la **montée** des dislocations plutôt que le glissement. Dans le cas du « *power law breakdown* » (fortes contraintes), le processus de déformation est contrôlé par le **glissement** des dislocations plutôt que par la montée ;

Le fluage par dislocations peut être accompagné par une **recristallisation dynamique** par vagues, si la température est suffisamment élevée. La germination et la croissance de ces grains non écrouis peuvent intervenir de manière successive pouvant entraîner de nouvelles phases de fluage primaire (observées pour les alliages de Ni, Cu, Pb et Al (structure CFC) un exemple pour le cas du plomb pur est présenté sur la [Figure 3.2](#)). Notons que la Figure 3.2 montre l'effet de la durée de prétraitement sur le démarrage de la seconde vague. En effet, plus le temps de recuit avant essai est court et plus la vague apparaît tôt. Cela peut s'expliquer par l'énergie emmagasinée est plus élevée pour des temps de maintiens courts. Ce phénomène indique que la phase de recristallisation intervient plus rapidement par rapport aux éprouvettes recuites pendant un temps long. Le coefficient n et l'énergie d'activation Q peuvent être modifiés par rapport à un état non recristallisé ;

²⁸ Acier de composition : 0,04C-15,15Ni-14,04Cr-2,25Mo-0,26Ti-0,61Si-1,78Mn-0,007P-0,006Al-0,0015B-0,0037N.

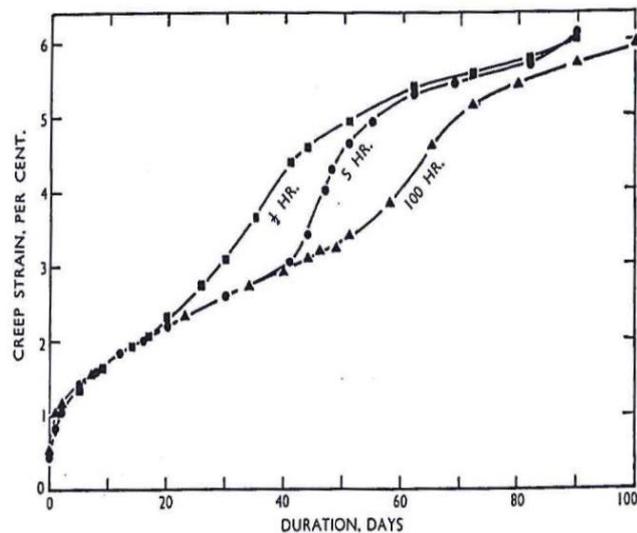


Figure 3.2 – Courbe de déformation en fonction du temps pour du plomb pur (préalablement recuit à 100°C pendant 0,5 h, 5 h et 100 h) testé sous une contrainte de 2,7 MPa à 100°C, d'après (Gifkins 1958).

- **Le fluage contrôlé par le glissement aux joints de grains.** Le coefficient de Norton vaut généralement autour de 2. Ce mécanisme est très endommageant car les joints triples sont très sollicités. Compte tenu de la présence de nombreux carbures dans les joints de grains de l'AIM1 (Chapitre 2), ce mécanisme ne sera probablement pas observé dans notre cas ;
- **Le fluage par diffusion des défauts ponctuels.** Le coefficient de Norton n vaut autour de 1. Les deux types de fluage par diffusion sont :
 - **Le fluage de Nabarro-Herring** qui se fait par diffusion des lacunes du grain vers les joints de grains impliquant une elongation du grain dans le sens de chargement. Compte tenu du domaine de température et de vitesse de déformation étudié ici, il sera peu probable d'observer ce type de mécanisme ;
 - **Le fluage de Coble** qui se fait par diffusion des atomes dans les joints de grains. Juste avant la rupture, ce mécanisme s'accompagne de glissements aux joints, ce qui entraîne le plus souvent l'apparition de fissures intergranulaires. Afin d'éviter cela, la précipitation aux joints peut éviter ce type de rupture.

L'ensemble des régimes détaillés ci-dessus est regroupé dans le diagramme proposé par (Frost et Ashby 1982). Il permet de déterminer de manière qualitative le régime de déformation principal pour un matériau et une taille de grains donnée sous une sollicitation donnée (en termes de température et de contrainte). Le diagramme pour l'acier 316 hypere trempé avec une taille de grains de 50 μm est présenté sur la Figure 3.3. Ce diagramme est celui qui se rapproche le plus de la composition et de la taille de grains du matériau de l'étude. Il faut néanmoins prendre des précautions quant-aux délimitations des différents mécanismes, car cette carte ne prend pas en compte la précipitation de carbures nanométriques, ni l'écrouissage à froid initialement présents pour l'AIM1. Par ailleurs, les données expérimentales utilisées pour le calcul des vitesses de déformation en cisaillement ont parfois été extrapolées. Quant au domaine de recristallisation dynamique, il a été construit à partir des conditions dans lesquelles la recristallisation dynamique a été observée ou attendue, mais toutes les données expérimentales sont principalement répertoriées dans le régime de fluage par dislocations (Figure 3.4).

Par ailleurs, les données utilisées ne prennent pas en compte les éventuels effets d'environnement.

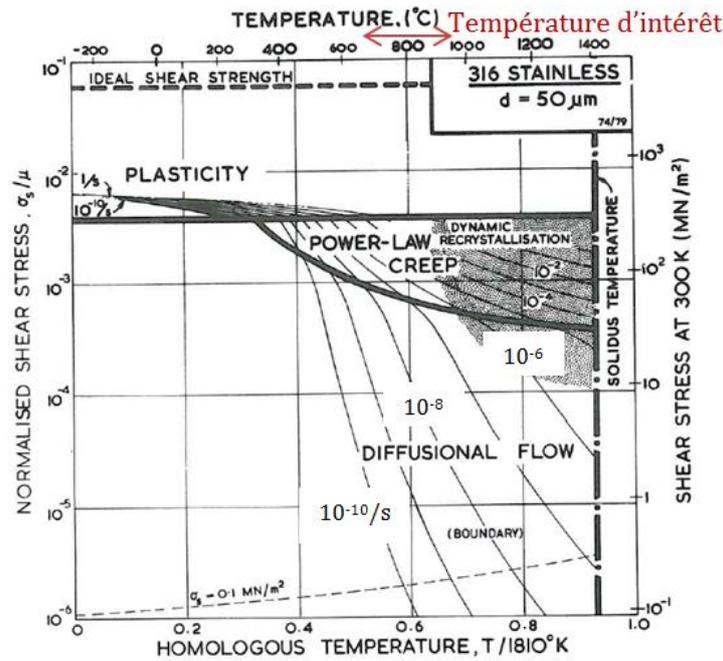


Figure 3.3 – Diagramme représentant les mécanismes de déformation à haute température pour un acier 316 avec une taille de grains de 50 µm (Frost et Ashby 1982).

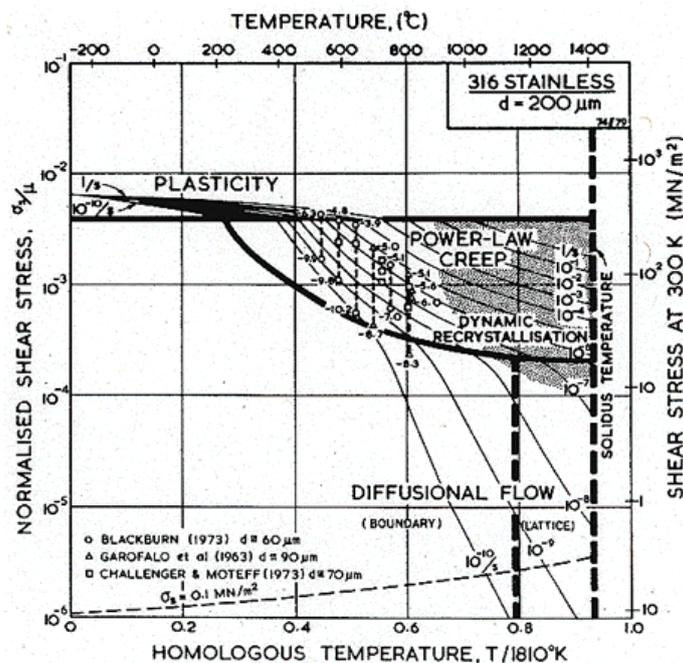


Figure 3.4 – Diagramme représentant les mécanismes de déformation à haute température pour un acier 316 avec une taille de grains de 200 µm, d'après (Frost et Ashby 1982). Les données utilisées par (Frost et Ashby 1982) sont indiquées par les marqueurs.

Dans le cas d'un chargement uniaxial selon un axe z , la contrainte de cisaillement σ_s s'exprime en fonction de la contrainte appliquée σ_z par la relation (3.2) :

$$\sigma_s = \sigma_z / \sqrt{3} \quad (3.2)$$

Dans le diagramme de (Frost et Ashby 1982), cette contrainte est divisée par le module de cisaillement μ , obtenu grâce à la relation (3.3) :

$$\mu = \frac{E}{2 \cdot (1 + \nu)} \quad (3.3)$$

Avec :

- E le module d'Young (MPa) ;
- ν le coefficient de Poisson ($\nu = 0,3$ pour les aciers inoxydables).

La valeur de μ vaut 56 MPa à 650°C, 53 MPa à 750°C, 50 MPa à 850°C et 47 MPa à 950°C (d'après la recommandation (Petesh 2015) pour le module d'Young de l'AIM1).

De même, la vitesse de déformation en cisaillement en contrainte uniaxiale est déterminée en fonction de la vitesse minimale de fluage par la relation (3.4) :

$$\dot{\gamma} = \sqrt{3} \dot{\epsilon}_{min} \quad (3.4)$$

Notons que la vitesse de déformation est calculée en supposant une contrainte constante et un régime stationnaire. Par ailleurs les valeurs expérimentales sont interpolées à partir de données existantes dans le domaine de régime de fluage par dislocations.

Pour conclure cette partie, le régime de déformation de type fluage par dislocations est attendu pour l'AIM1, compte tenu des domaines de température (650°C-950°C) et de contrainte explorés (40 MPa - 440 MPa). Pour le comportement à 950°C, peu de données existent concernant la forme des courbes (déformation en fonction du temps). Par ailleurs, le domaine de recristallisation dynamique estimé par (Frost et Ashby 1982) possède probablement des incertitudes, compte tenu du manque de données disponibles pour ce régime et que les cinétiques de recristallisation d'un 316 hypereffort ne sont pas comparables à celles de 15-15Ti écrouis à froid. Les résultats présentés dans le [Chapitre 2](#) pourraient indiquer la présence d'une recristallisation pendant l'essai de fluage à 950°C.

1.3. Modes de rupture à haute température et représentation paramétrique du temps à rupture en fluage

Les différents types de ruptures sont présentés sur la [Figure 3.5](#). La rupture (1) est caractérisée une réduction de section de 100%. Ce mode de rupture est associé à de fortes vitesses de déformation et par conséquent peut se référer aux vitesses obtenues lors de la mise en forme à chaud (de l'ordre de 1 s^{-1}). Les mécanismes de restauration et de recristallisation dynamique peuvent intervenir pour ce type de rupture.

La rupture (2) est classiquement appelée rupture transgranulaire ductile. Elle est caractérisée par la germination, la croissance et la coalescence de cavités jusqu'à la rupture de l'éprouvette. Ces cavités sont généralement initiées autour d'inclusions, comme les précipités grossiers par exemple.

La rupture (3) est appelée rupture intergranulaire. Elle est caractérisée par une germination et une croissance de microfissures localisées principalement aux joints de grains. Ce mode de rupture intervient généralement pour les très faibles contraintes de fluage (régime de *Coble*).

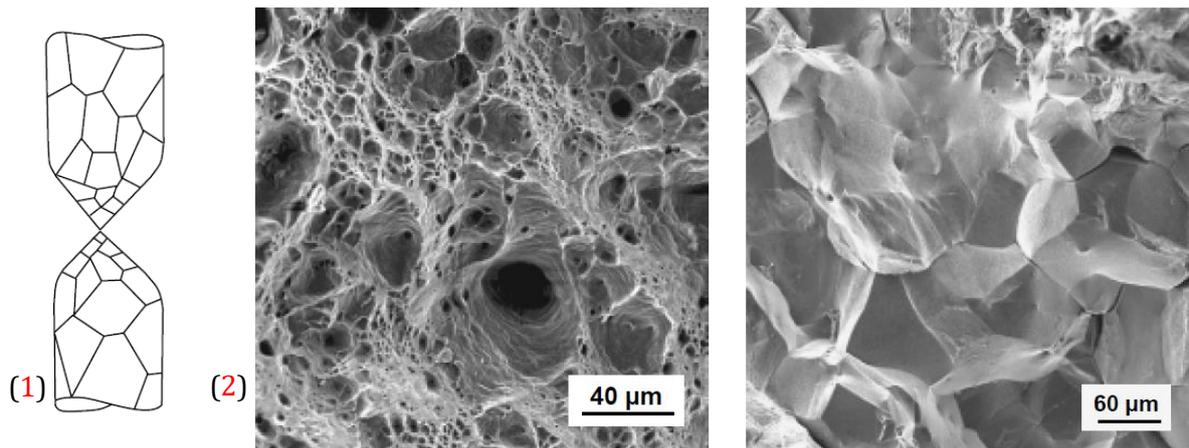


Figure 3.5 – (1) Schéma d'une rupture 100% ductile (Courtney 2000) et fractographies montrant (2) une rupture transgranulaire ductile d'un acier 316L(N) hypertrempé et testé en traction à 600°C (vitesse de déformation = $5.10^{-4}s^{-1}$) et (3) une rupture intergranulaire fragile sur une éprouvette en acier 316H hypertrempé testée à 600°C ($t_r = 45,7$ h), d'après (Auzoux 2004).

La relation de Monkman-Grant permet de relier la déformation minimale en fluage au temps à rupture (Monkman et Grant 1956) :

$$\log t_r + m \log \dot{\epsilon}_{min} = C \quad (3.5)$$

Avec :

- t_r le temps à rupture ;
- $\dot{\epsilon}_{min}$ la vitesse de déformation minimale en fluage ;
- m et C des constantes.

Expérimentalement, on représente le temps à rupture en fonction de la vitesse minimale de fluage en échelle bilogarithmique.

Le coefficient m de la relation de Monkman-Grant a une valeur proche de 1 pour un 316LN (Kim, Kim, et Ryu 2002).

1.4. Comportement mécanique entre 650°C et 800°C des aciers austénitiques stabilisés au titane

Le domaine de température présenté dans ce paragraphe est compris entre 650°C et 800°C. En effet, les données pour ces températures sont assez riches, puisqu'elles se rapprochent davantage des conditions de service pour les RNR-Na. Les résultats de cette thèse viendront enrichir cette base déjà existante (paragraphe 2 de ce chapitre).

Les compositions des aciers de ce chapitre sont présentées dans le **Tableau 3.1**. Notons que la nuance 15-15Ti lot VG (données CEA) est un des premiers 15-15Ti précurseur de l'AIM1 fabriqués pour le réacteur Phénix, et sa composition est proche de celle du DIN1.4970. Par ailleurs, la base de données CEA contient des essais de fluage sur différents lots, mais par soucis de simplification, la discussion se portera sur le lot VG pour lequel le plus grand nombre d'essais a été réalisé.

Composition (% massique)	C	Ni	Cr	Mo	Ti	Si	Mn	P	B	Ecrouissage à froid
D9 (indien) (Latha et al. 2010 ; Mathew et al. 2014a)	0,04	15,15	14,04	2,25	0,26	0,61	1,78	0,007	0,002	20%
DIN 1.4970 (Abou Zahra et Schroeder 1982)	0,095	15,0	15,1	1,3	0,3	0,31	1,81	-	0,005	13%
15-15Ti (Fujiwara, Uchida, et Ohta 1995)	0,062	14,86	14,68	2,51	<0,01	0,58	1,48	0,024	0,006	20%
	0,073	15,12	14,91	2,53	1,09	0,81	1,79	0,027	0,008	
15-15Ti lot VG (Maillard 1994)	0,110	15,04	15,23	1,18 1,29	0,40 0,45	0,46 0,50	1,88	0,007 0,009	0,005 0,004	20%
AIM1	Min.	0,08	14	14	1,3	0,30	0,7	1,0	0,03	Environ 20%
	Max.	0,1	16	16	1,7	0,50	0,9	2,0	0,05	

Tableau 3.1 – Composition des 15-15Ti présentés dans ce chapitre.

1.4.1. Comportement en traction à chaud

Les essais de traction réalisés entre 600°C et 1000°C par (Petersen, Schanz, et Leistikow 1988)²⁹, permettent d'avoir un ordre de grandeur des valeurs de la limite d'élasticité ($R_{p0,2}$) et de la résistance maximale avant rupture (R_m) pour un acier inoxydable austénitique stabilisé au titane et écroui à froid de 15% (sans phosphore) (Figure 4.1).

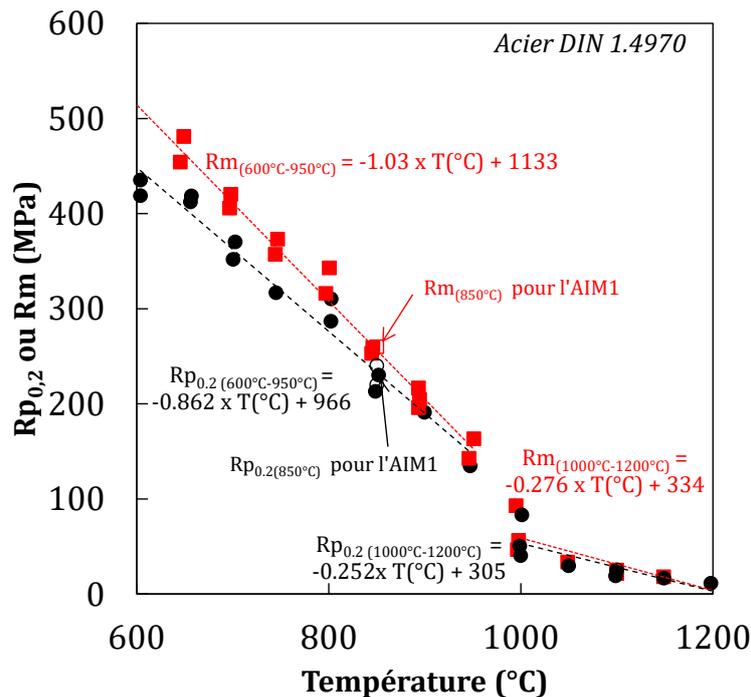


Figure 4.1- Evolutions de la limite d'élasticité et de la résistance mécanique maximale avant rupture en fonction de la température (vitesse de déformation initiale = 3.10^{-4}s^{-1}), données tirées de (Petersen, Schanz, et Leistikow 1988).

²⁹ Essais réalisés sur une barre d'un acier DIN 1.4970 préalablement hypertrempée à 1100°C pendant 30 min, écrouie à 15%, puis traitée thermiquement à 850°C pendant 2 h (sous argon) ($HV_{30} \approx 156$).

Pour la vitesse de déformation considérée ($3.10^{-4}s^{-1}$), les évolutions de $R_{p0,2}$ et de R_m en fonction de la température sont similaires, avec une décroissance monotone jusqu'à 950°C, puis avec une rupture de pente entre 950°C et 1000°C. La dépendance en température au-dessus de 1000°C est néanmoins plus faible que celle observée pour des températures inférieures à 950°C.

Dans le domaine de température entre 850°C et 950°C, il existe une forte sensibilité envers la température d'essai. Le $R_{p0,2}$ à 850°C et 950°C vaut respectivement 230 MPa et 147 MPa. Le R_m à 850°C et 950°C vaut respectivement 258 MPa et 155 MPa. On constate qu'à partir de 850°C les valeurs de R_m sont quasiment égales aux valeurs de $R_{p0,2}$, ce qui indique une perte importante de la capacité d'écroutissage. D'après les auteurs, ce phénomène pourrait s'expliquer par une restauration importante ou par une évolution microstructurale adoucissante permettant de diminuer la force des obstacles (par grossissement des précipités ou par recristallisation) au mouvement des dislocations (effet couplé ou non avec de la restauration dynamique).

Ces valeurs de limite d'élasticité et de la contrainte maximale avant rupture ne sont valables que pour ces vitesses de déformation et la géométrie des éprouvettes de l'étude. C'est pourquoi lesdites valeurs doivent être utilisées avec précaution.

Les faibles valeurs de $R_{p0,2}$ et de R_m à partir de 1000°C, peuvent s'expliquer par une cinétique de recristallisation rapide pour ces températures ([Chapitre 2](#)). Les tests de traction dès 1000°C sont ainsi réalisés sur des matériaux *a priori* recristallisés (et avec des précipités secondaires grossiers, voire absents), d'où des résistances mécaniques en traction faibles entre 1000°C et 1200°C. En revanche, aucune évolution significative du $R_{p0,2}$ ou du R_m n'est observable notamment lors de la dissolution des TiC secondaires. En effet, la croissance anormale des grains couplée à la dissolution des TiC secondaires à partir de 1100°C est très probable (Padilha, Dutra, et Randle 1999; Stanley et Perrotta 1969; Padilha, Plaut, et Rios 2003), ce qui n'est pas visible sur le comportement mécanique macroscopique dans les conditions explorées.

Les lois d'évolutions de $R_{p0,2}$ et de R_m en fonction de la température déterminées par (Petersen, Schanz, et Leistikow 1988) sont décrites dans le [Tableau 4.1](#).

(Petersen, Schanz, et Leistikow 1988)
<p><u>Entre 600°C et 950°C :</u> $R_{p0,2} = -0,862.T(^{\circ}C) + 966 \text{ MPa}$ $R_m = -1,03.T(^{\circ}C) + 1133 \text{ MPa}$</p>
<p><u>Entre 1000°C et 1200°C :</u> $R_{p0,2} = -0,252.T(^{\circ}C) + 305 \text{ MPa}$ $R_m = -0,276.T(^{\circ}C) + 334 \text{ MPa}$</p>

Tableau 4.2- Lois déterminant l'évolution de $R_{p0,2}$ et de R_m en fonction de la température pour les études de (Petersen, Schanz, et Leistikow 1988).

(Gavoille et Courcelle 2017) au CEA Saclay ont également étudié l'influence de la vitesse de déformation sur les propriétés de traction des 15-15Ti à très haute température. Les essais ont été réalisés avec des précédentes générations de 15-15Ti écroui à ~20% sans P et avec une teneur moindre en Si. Les essais de traction ont été réalisés sur des éprouvettes usinées dans des gaines d'AIM1 en sens axial. Les essais ont été menés à trois températures différentes (850, 1050 et 1250°C) et à trois vitesses de déformation (0.1, 1 et 10 s⁻¹). Deux vitesses de montée en température ont été testées : 0.5°C/s et 10°C/s. Le chauffage de l'éprouvette par effet Joule est utilisé pour contrôler la vitesse de montée en température et la température d'essai finale.

Comme attendu, les contraintes $R_{p0,2}$ et R_m diminuent quand la vitesse de déformation diminue (cf. Figure 4.2).

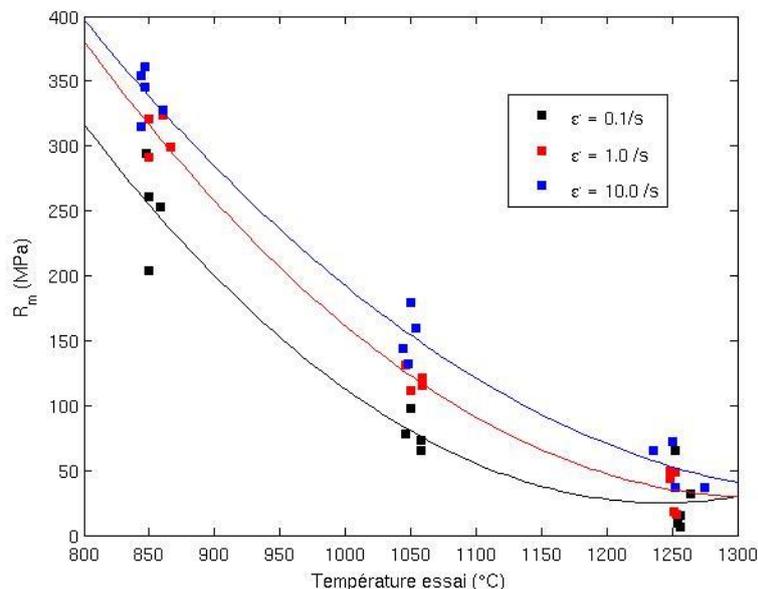


Figure 4.2 – Influence de la vitesse de déformation sur les valeurs de R_m en fonction de la température (Gavoille et Courcelle 2017).

L'évolution de l'allongement à rupture en fonction de la température est présentée sur la Figure 4.3 (Petersen, Schanz, et Leistikow 1988). Une évolution faible de l'allongement à rupture est constatée en dessous de 900°C (allongement compris entre 10% et 20%). Au-delà de cette température, l'allongement à rupture augmente très fortement pour atteindre entre 60% et 70% à partir de 1000°C. Notons par ailleurs que la dispersion des résultats est tout aussi importante au-delà de 1000°C et peut être due à :

- Un changement d'environnement : les essais au-delà de 1000°C sont réalisés sous vide, les essais en dessous de 1000°C sont réalisés sous air. Les essais réalisés sous air pourraient fragiliser les éprouvettes et/ou les décarburer par oxydation (Chapitre 3) ;
- Une croissance de grains hétérogène due à une croissance anormale des grains recristallisés. L'état métallurgique en zone de rupture n'étant pas mentionné dans la littérature, il est difficile de s'avancer sur cette hypothèse. Néanmoins, les cartes d'Ashby pour ces hautes températures montrent une possibilité de recristallisation dynamique (cf. Chapitre 3, Figure 3.3 et Figure 3.4).

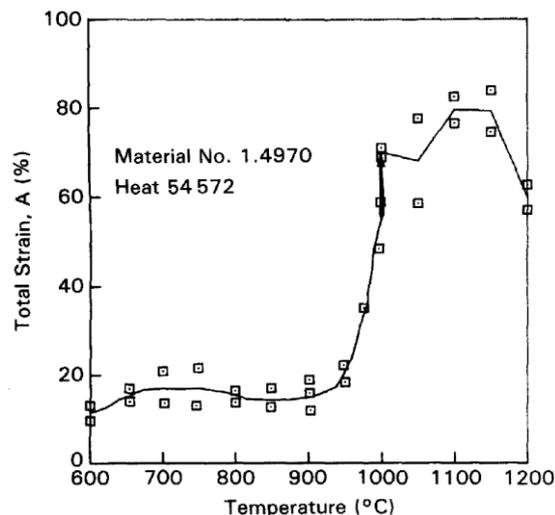


Figure 4.3 – Evolution de l'allongement à rupture en fonction de la température (Petersen, Schanz, et Leistikow 1988).

Les résultats de (Petersen, Schanz, et Leistikow 1988) permettent de fixer des limites des contraintes à appliquer pour les essais de fluage à 850°C et à 950°C. Ces valeurs doivent être inférieures au $R_{p0,2}$ qui sont de 230 MPa à 850°C et de 147 MPa à 950°C. Il faut néanmoins rappeler les différences qu'il peut y avoir entre le matériau étudié par (Petersen, Schanz, et Leistikow 1988) et l'AIM1. Le DIN 1.4970 est un légèrement moins écroui que l'AIM1 (15% contre ~ 20% pour l'AIM1). Les éprouvettes dans l'étude de (Petersen, Schanz, et Leistikow 1988) sont également traitées thermiquement avant les essais de fluage à 850°C pendant 2 h, contrairement aux essais réalisés dans cette thèse. D'après les résultats du [Chapitre 2](#), de la restauration serait attendue après un tel recuit. Les TiC secondaires ont précipité, ce qui peut avoir un effet durcissant dès le début de l'essai de fluage. Néanmoins, la précipitation intervenant très tôt à cette température, le recuit de 2h à 850°C devrait globalement adoucir le matériau, compte tenu de la durée des essais. Par ailleurs, le DIN 1.4970 ne contient pas de phosphore contrairement à l'AIM1. Un essai de traction réalisé sous vide à 850°C (vitesse de mise en charge entre 0,4 et 4 MPa.s⁻¹), dans le cadre de la thèse, permet d'obtenir un $R_{p0,2}$ compris entre 220 MPa et 240 MPa et un R_m de 260 MPa pour l'AIM1, ce qui est cohérent avec les valeurs déterminées à 850°C pour l'acier DIN 1.4970 ([Figure 4.1 a](#)).

Par ailleurs, les résultats de (Petersen, Schanz, et Leistikow 1988) permettent d'avoir un ordre d'idée de l'allongement à rupture à 850°C et à 950°C (autour de 20%). Cette valeur d'allongement n'est pas directement extrapolable aux essais de fluage présentés dans les parties [2](#) et [3](#) de ce chapitre, puisque l'allongement à rupture dépend du caractère fragile ou ductile de la rupture. L'environnement des essais réalisés par (Petersen, Schanz, et Leistikow 1988) est le même que celui des essais présentés dans ce chapitre, néanmoins il est important de préciser qu'il se s'agit pas de la même géométrie d'éprouvette.

1.4.2. Comportement viscoplastique macroscopique

Données à 650°C :

(Latha et al. 2010) ont réalisé des essais de fluage pour des contraintes entre 125 et 300 MPa sur un acier D9. Les auteurs ont pu déterminer un coefficient de Norton de 5 pour les faibles contraintes (en dessous de 150 MPa) et de 10 pour les fortes contraintes. Le régime de déformation principale est ainsi attribué au fluage dislocations. On peut ainsi supposer que le coefficient de Norton aussi élevé aux fortes contraintes est probablement lié aux interactions dislocations-nanoprécipités. La matrice est ainsi renforcée par épinglage des dislocations, qui permet de retarder la restauration.

Néanmoins, cet acier D9 contient deux fois moins de carbone et de titane par rapport à l'AIM1. La précipitation de carbures de titane et le durcissement par le carbone en solution solide sont probablement moins efficaces pour le D9 que pour l'AIM1. Par ailleurs, la haute teneur en molybdène du D9 entraîne l'apparition de phases de Laves, ce qui peut avoir des conséquences néfastes sur les propriétés en fluage, car elles peuvent induire de l'endommagement intergranulaire (paragraphe 1.4.3). Une meilleure résistance au fluage est donc attendue pour l'AIM1 que pour le D9.

(Latha et al. 2010) ont également déterminé les valeurs de l'énergie d'activation apparente pour les contraintes mentionnées dans le **Tableau 3.2**.

Température	Contrainte (MPa)	Energie d'activation Q_{fluage} (kJ.mol ⁻¹)
650°C	125	160±16
	175	460±10
	225	475±36

Tableau 3.2 – Valeurs de l'énergie d'activation apparente en fluage en fonction de la contrainte appliquée (domaine de température : 650°C - 750°C) pour un acier D9, (Latha et al. 2010).

Données à 700°C :

(Latha et al. 2008) ont comparé le comportement en fluage uniaxial d'un acier 316³⁰ avec celui d'un acier de type D9 (cf. **Tableau 3.1**), tous deux écrouis à froid (taux d'écrouissage 20%). Le coefficient de Norton vaut autour de 9 pour le D9 et l'acier 316 (pour des contraintes entre 125 et 250 MPa pour le D9 et entre 100 et 220 MPa pour le 316). La même valeur du coefficient de Norton traduit un même régime de déformation viscoplastique pour les deux matériaux, contrôlé par le déplacement des dislocations. Par ailleurs, ce coefficient de Norton a également été déterminé pour un acier DIN 1.4970³¹ à 700°C (About Zahra et Schroeder 1982) et vaut 9, ce qui est cohérent avec ces résultats.

Toutefois, l'acier D9 admet de plus faibles vitesses de déformation, ce qui traduit une meilleure résistance au fluage par rapport au 316 (**Figure 3.6 a**), (Latha et al. 2008). Des observations au MET de l'acier D9 (temps à rupture de 8100 h) mettent en évidence la présence d'une sous structure de dislocations, synonyme d'une restauration lors de l'essai de fluage.

³⁰ Pour un 316 de composition : 0,04C-13,59Ni-17,10Cr-2,38Mo-0,33Si-1,88Mn-0,009S-0,009P-0,005Al-0,0044N.

³¹ Valeur déterminée à partir des tests (chargement uniaxial) réalisés sous vide.

La représentation de Monkman-Grant montre que l'acier D9 admet une vitesse minimale de déformation plus faible pour un temps à rupture donné par rapport à l'acier 316. Le coefficient m vaut 0,72 pour l'acier D9 et 0,66 pour l'acier 316 (Figure 3.6 b). Ces valeurs de m sont cohérentes avec celle déterminée sur un acier DIN 1.4970 à cette température ((Cautaerts et al. 2017) qui déterminent un m égal à 0,61 à 700°C).

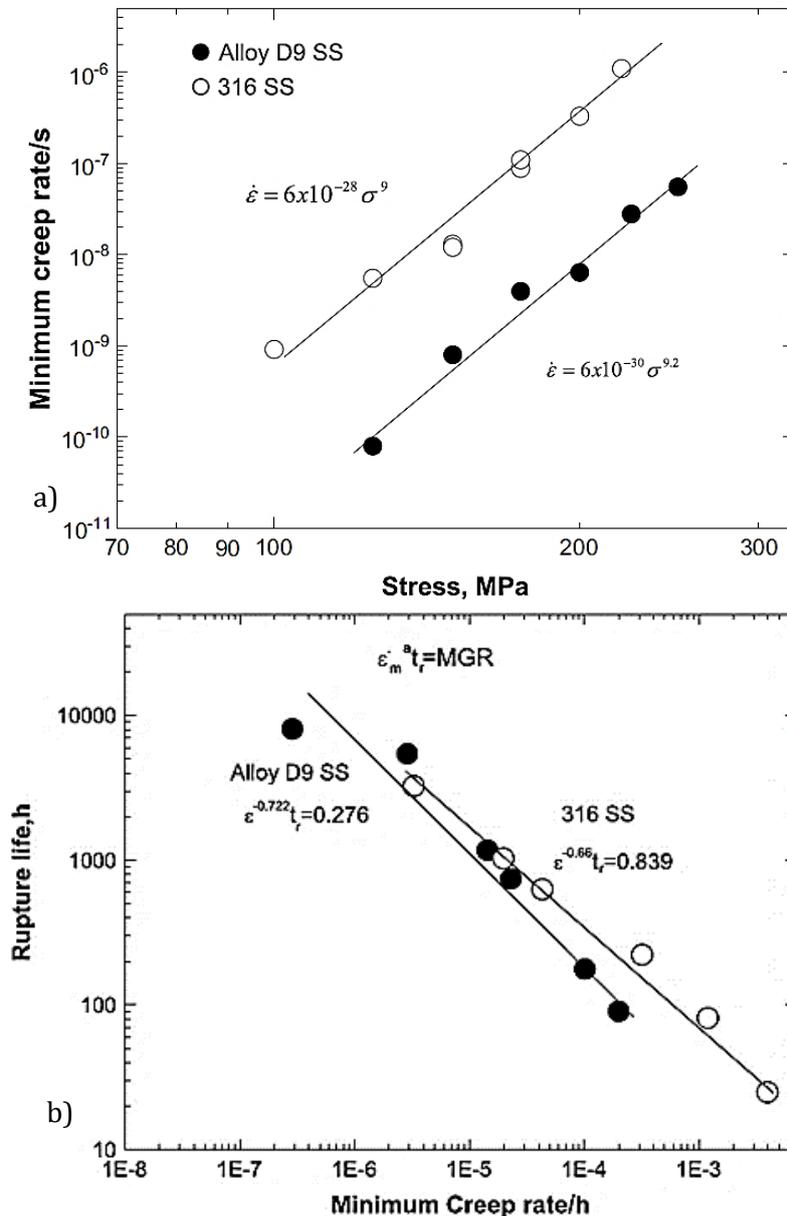


Figure 3.6 – Comparaison des courbes a) de Norton et b) de Monkman-Grant des aciers de type 316 et D9 testés en fluage axial à 700°C, d'après (Latha et al. 2008).

Ces résultats confirment l'effet bénéfique des carbures de titane sur la résistance au fluage pour cette température et les contraintes étudiées. En effet, le titane est connu pour améliorer les propriétés en fluage. Les carbures de titane secondaires précipitent sur les dislocations et restent stables en termes de taille et de fraction volumique (Chapitre 2). Ces précipités renforcent donc la résistance à la déformation viscoplastique. L'interaction du titane en solution solide avec ces dislocations permet également aux aciers stabilisés au titane de mieux résister au fluage (Marshall 1984).

(Fujiwara, Uchida, et Ohta 1994) ont étudié l'influence de la teneur en titane sur la tenue en fluage des 15-15Ti (Figure 3.7 a). Les résultats montrent que le temps à rupture est augmenté avec la teneur en titane (jusqu'à 0,3% en masse). Cependant, pour une teneur en titane au-delà de 0,5% avec une teneur en carbone de 0,07%, le temps à rupture diminue. La teneur en titane optimale pour garantir une meilleure résistance à l'écoulement en fluage est donc située entre 0,25 et 0,50% (Lacombe, Baroux, et Béranger 1990; Fujiwara, Uchida, et Ohta 1994) pour un écrouissage à froid de 20% (Figure 3.7 b). (Fujiwara, Uchida, et Ohta 1994) ont montré que cela correspond à un rapport Ti/C de 5 (calcul réalisé à partir du pourcentage massique des deux éléments).

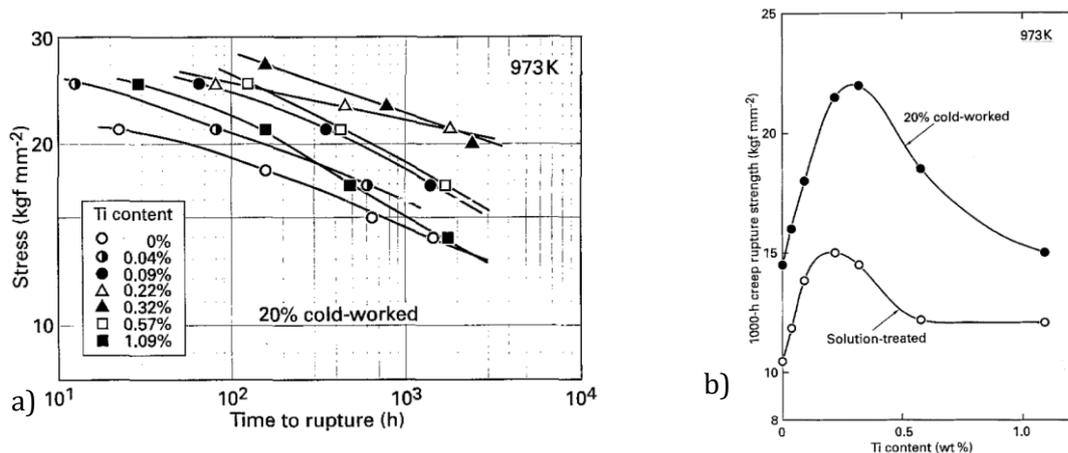


Figure 3.7 - a) Effet de la teneur en titane sur le temps à rupture et b) détermination de la teneur optimale en titane pour obtenir la meilleure résistance en fluage à 700°C sur un acier 15Cr-15Ni-2,5Mo-0,07C (contenant entre 0,004 et 0,008% d'azote) hyperefflué puis écroui à 20% à froid (Fujiwara, Uchida, et Ohta 1994).

(Hamilton et al. 1989) ont étudié l'influence de la teneur en bore sur les propriétés mécaniques en fluage d'un acier de type D9³² écroui à froid (taux d'écrouissage de 23%). Les auteurs ont montré que pour une teneur en phosphore fixe (comprise entre 0,01 et 0,08%), plus la teneur en bore est élevée, plus le temps à rupture en fluage augmente (Figure 3.8 a). Cet effet est d'autant plus marqué que la teneur en phosphore augmente. Néanmoins, au-delà de 0,003% de bore, l'évolution du temps à rupture en fonction de la contrainte ne dépend plus de la teneur en bore (Figure 3.8 b).

³² Avec une composition de base : Fe-13,6Cr-15,6Ni-2,2Mn-1,8Mo-0,8Si-0,3Ti-0,05C-0,005S.

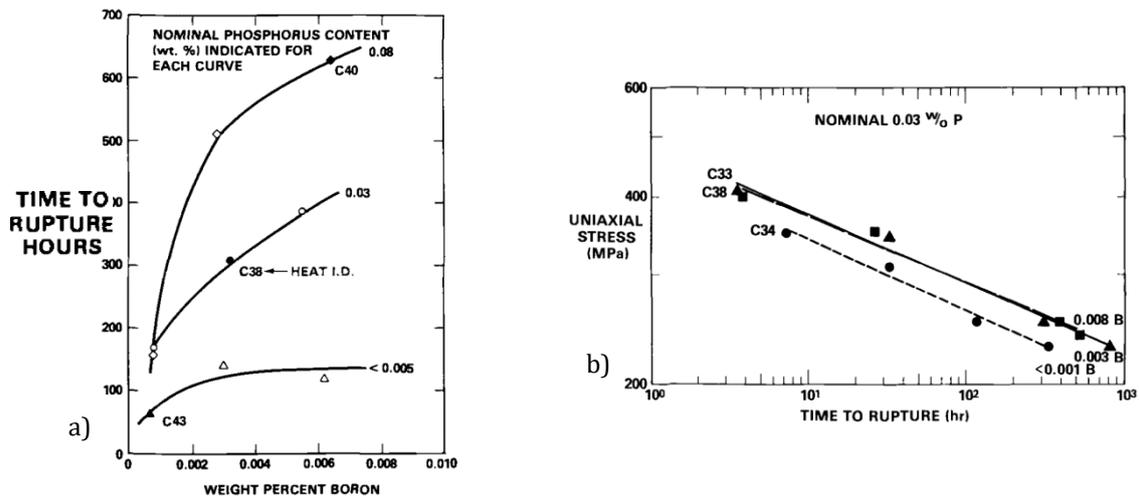


Figure 3.8 – Résultats de fluage pour un 15-15Ti écroui 23% a) testé à 704°C sous 250 MPa : effet de la teneur en bore et phosphore sur le temps à rupture et b) contrainte (entre 210 MPa et 450 MPa) en fonction du temps à rupture pour une teneur en bore comprise entre 0,001 et 0,008% (Hamilton et al. 1989). Les résultats présentés ici ont été obtenus à partir d'essais de fluage uniaxiaux réalisés sous air.

1.4.3. Mécanismes physiques régissant le comportement viscoplastique

Un récapitulatif des courbes de Norton disponibles dans la littérature pour des 15-15Ti est présenté sur la Figure 3.9, montrant peu de données entre 750°C et 800°C, il faudrait donc compléter les résultats avec d'autres essais afin d'avoir des données en fluage plus fiables. Les essais de fluage ont été réalisés de 650°C à 850°C sur la Figure 3.9 a. Ces courbes représentent la vitesse minimale de déformation en fonction de la contrainte équivalente. Les marqueurs pleins correspondent aux données CEA sur les 15-15Ti³³ et les marqueurs non pleins correspondent aux données obtenues par (Latha et al. 2010 ; Mathew et al. 2014) sur l'acier D9 écroui à 20%. Le coefficient de Norton est compris entre 5 et 14, ce qui se traduit par une déformation en fluage contrôlée par les dislocations. Globalement, le coefficient de Norton diminue avec la température, ce qui pourrait expliquer un épinglage des dislocations par les précipités moins efficace car :

- Les précipités seraient de plus en plus grossiers avec la température et devraient interagir de moins en moins avec les dislocations. Or, dans le Chapitre 2, nous avons montré une grande stabilité des nano précipités car leur taille n'évolue pas de manière significative pour les temps de maintien longs. Néanmoins, la fraction volumique semble être plus faible à 850°C par rapport à 650°C (Chapitre 2) ;
- Les contraintes testées à plus basses températures sont élevées (la contrainte équivalente minimale à 650°C est de 220 MPa), ce qui laisserait à penser que le domaine du « *power-law breakdown* » a déjà été atteint. Les dislocations glisseraient plus difficilement qu'elles ne montent, menant à un épinglage plus efficace et donc à un durcissement plus élevé pour ces basses températures.

Ces hypothèses supposent que :

³³ Essais de fluage uniaxiaux réalisés sur tubes avec bouchons soudés sous air.

- L'exposant élevé de Norton prend en compte une contrainte effective (contrainte macroscopique – contrainte interne) et que les contraintes internes augmentent quand la température diminue ;
- Le phénomène limitant la mobilité des dislocations est le franchissement des précipités ;
- Le franchissement se fait par contournement des précipités.

La résistance au fluage est meilleure pour les 15-15Ti VG par rapport à l'acier D9, qui contient moitié moins de carbone et de titane (Figure 3.9 b). Le carbone restant en solution solide et la densité de précipités seraient moins élevés pour le D9 que pour le 15-15Ti VG. Néanmoins, les conditions d'essai telles que l'environnement (air, vide, gaz inerte) ne sont pas mentionnées dans ces publications. Par ailleurs, l'acier DIN 1.4970 est également moins résistant au fluage que les 15-15Ti VG testés au CEA. Ce résultat pourrait s'expliquer par un écrouissage de 13% à froid de l'acier DIN 1.4970 au lieu de 20% pour le 15-15Ti lot VG. Il a été montré dans le Chapitre 2 que la précipitation des TiC secondaires se fait sur les dislocations. Un écrouissage de 13% n'est pas un taux d'écrouissage optimal pour une précipitation fine et dense (Kesternich et Meertens 1986; Kesternich 1988), ce qui pourrait jouer sur les propriétés mécaniques.

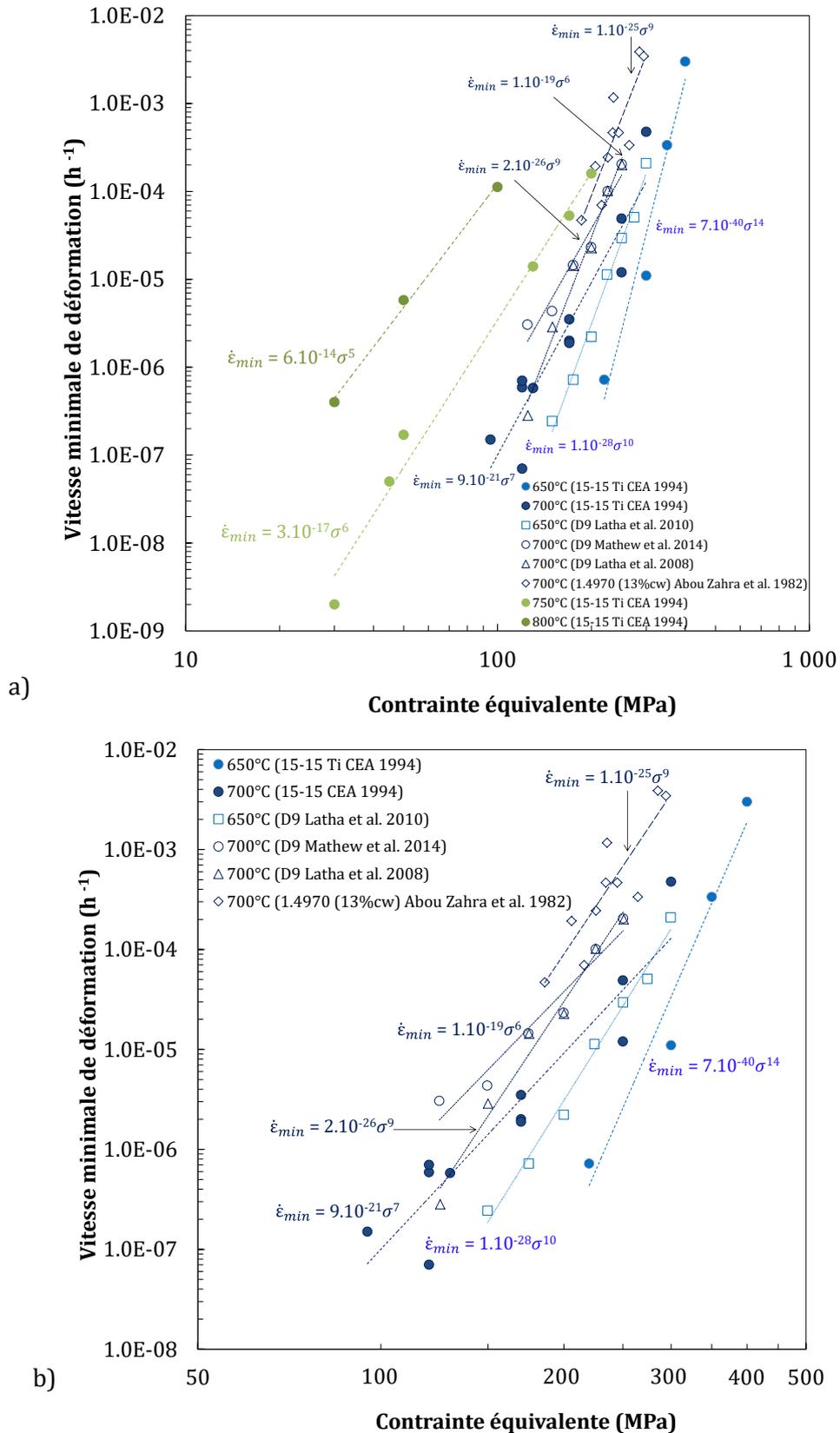


Figure 3.9 – a) Courbes de Norton pour des aciers 15-15Ti testés au CEA représentées par des marqueurs pleins, les données pour les aciers de type D9 et DIN 1.4970 sont représentées par des symboles vides. b) Courbes de Norton pour les températures particulières de 650°C et 700°C, les symboles carrés représentent les données obtenues à partir d'un acier D9, les symboles triangulaires correspondent aux données obtenues sur un acier DIN 1.4970 (d'après (Latha et al. 2010 ; Abou Zahra et Schroeder 1982; Mathew et al. 2014; Maillard 1994)).

1.4.4. Comportement à rupture

- Modes de rupture observés

Essais réalisés à 650°C :

Les auteurs (Latha et al. 2010) ont mis en évidence un allongement à rupture de l'acier D9 compris entre 0,03 et 0,10, ce qui est très faible. Des observations des coupes longitudinales des éprouvettes ont montré un endommagement intergranulaire de cet acier pour une sollicitation de 175 MPa. En effet, la **Figure 3.10** montre la présence de cavités aux joints triples dans tout le volume, mais aucune fissure n'est constatée. L'apparition de ces cavités peut être due à la présence des phases de Laves (teneur en molybdène élevée de 2,25% massique).

Par ailleurs, on peut noter que les auteurs ne précisent pas l'environnement dans lequel ont été réalisés les essais.

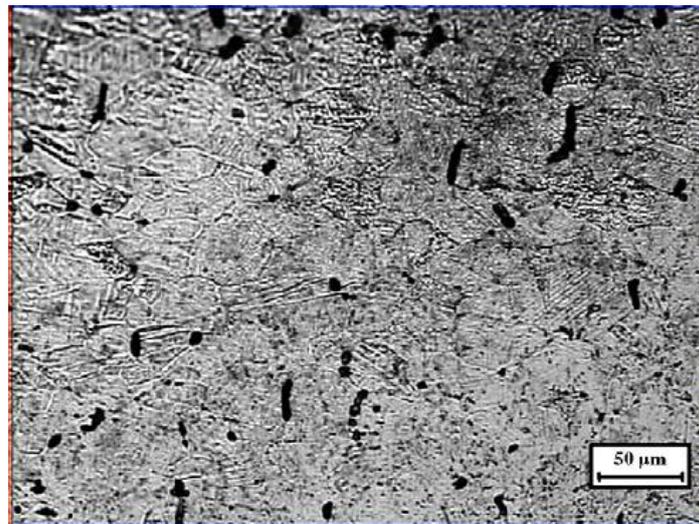


Figure 3.10 – Microstructure de l'acier D9 après essai de fluage à 650°C sous 175 MPa (Latha et al. 2010).

Essais réalisés à 700°C :

Pour cette température et des contraintes entre 125 et 250 MPa (Latha et al. 2008), des coupes des éprouvettes montrent de l'endommagement intergranulaire.

En revanche, des observations des surfaces de rupture d'un acier DIN 1.4970 montrent une rupture transgranulaire ductile pour toutes les contraintes testées à 700°C (Abou Zahra et Schroeder 1982) (essais de fluage réalisés sous vide). Néanmoins, certaines amorces intergranulaires récurrentes sont observées sur le bord des éprouvettes. Les auteurs les ont attribuées à des défauts liés à l'usinage par électroérosion des éprouvettes.

- Comparaisons des comportements à rupture entre 600°C et 800°C

Pour pouvoir comparer les essais de fluage à partir de 600°C, une base de données est disponible sur l'acier DIN 1.4970. (Cautaerts et al. 2017) ont pu synthétiser les données acquises depuis les années 1970 et comparer les temps à rupture en fonction de la contrainte et de la température. Les tendances sont présentées sur la **Figure 3.11 a**.

L'ensemble de ces données permet d'avoir un comportement global plus fiable pour chaque température. Néanmoins, ces essais n'ont pas été réalisés dans des conditions totalement

identiques. Notamment, certains essais ont été réalisés par pression interne et d'autres en fluage uniaxial, d'où la présentation des données en contrainte équivalente.

Par ailleurs, ces essais ont été réalisés sur aciers DIN 1.4970 écrouis (et parfois recuits avant essais). Sur le graphique de la **Figure 3.11 a**, les marqueurs pleins représentent les essais réalisés sur matériau écroui et les marqueurs vides représentent les données des essais réalisés sur matériau écroui puis recuit (800°C, 2 h). Le but de ces essais est de déterminer l'influence des prétraitements thermiques sur les propriétés mécaniques. En effet, ce recuit permet de modifier la microstructure de départ pour en comprendre l'effet sur les propriétés en fluage. Aucune information sur les microstructures n'est disponible, mais les résultats du Chapitre 2 permettent d'affirmer la présence de TiC secondaires après un recuit de 800°C pendant 2 h. Néanmoins, la réalisation des recuits après écrouissage peut induire une légère différence d'états métallurgiques (dus aux différences de vitesses de chauffage et/ou de refroidissement), ce qui peut ensuite influencer sur le comportement mécanique en fluage. Ces différences pourraient expliquer la dispersion des résultats sur les éprouvettes écrouies puis recuites, notamment à 700°C.

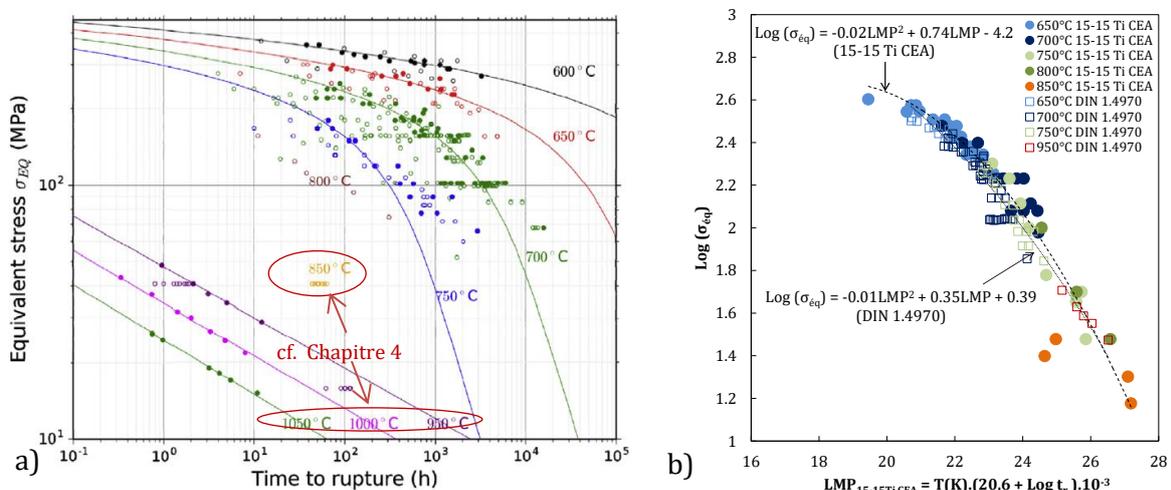


Figure 3.11 - a) Graphique représentant la contrainte équivalente en fonction du temps à rupture, d'après (Cautaerts et al. 2017) tiré des données de (Schäfer et Kempe 1983) et b) représentation permettant la prédiction du temps à rupture en fonction de la contrainte équivalente et du paramètre LMP pour les 15-15Ti testés au CEA (marqueurs circulaires et pleins) et pour le DIN 1.4970 (marqueurs rectangulaires et vides), d'après le graphique de la Figure 3.9 a.

Les conditions d'essai dans les différentes études (machines de fluage, mesure d'allongement, contrôle de la température, environnement etc.) peuvent différer (peu d'informations sont disponibles dans les articles). Ces différences de protocoles expérimentaux pourraient mener à une importante dispersion (facteur 10 à 700°C). La dispersion est davantage marquée pour la température de 700°C, où une plus grande quantité d'essais a été réalisée.

D'après la **Figure 3.11 a**, plus la température augmente et plus la contrainte est faible pour un temps à rupture donné, ce qui suit une évolution classique. En dessous de 750°C les courbes évoluent de la même manière en fonction de la température : on note une rupture entre les basses et les fortes contraintes. Cela pourrait être dû à la transition du « *power-law breakdown* ».

La **Figure 3.11 b** est une représentation très utilisée pour la prédiction du temps à rupture en fluage. La contrainte équivalente est exprimée en fonction du paramètre LMP de Larson-Miller. Ce paramètre prend en compte à la fois la température d'essai et le temps à rupture associé pour un essai donné. Les données pour l'acier de type DIN 1.4970 et pour les aciers 15-15Ti testés au CEA sont répertoriées sur le graphique de la **Figure 3.11 b**. Pour l'obtention du paramètre de Larson

Miller (LMP), une constante propre au matériau égal à 20,6 a été utilisé (Maillard 1994). Les évolutions des courbes de Larson-Miller sont identiques pour le 15-15Ti CEA et pour le DIN 1.4970. Les points expérimentaux sont représentés par une loi polynômiale de degré 2 pour les deux matériaux.

La **Figure 3.12** est une représentation de Monkman-Grant pour l'acier DIN 1.4970 (d'après (Cautaearts et al. 2017)) et pour des aciers 15-15Ti CEA (Maillard 1994). L'exposant m est cohérent avec celui déterminé dans la littérature, avec une valeur d'environ 0.8 (Kim, Kim, et Ryu 2002; Monkman et Grant 1956; Phaniraj et al. 2003). La valeur de m est proche de celles de la **Figure 3.6**. Les courbes de Monkman-Grant pour le 15-15Ti CEA et l'acier 1.4970 suivent des tendances proches du fait que ces deux matériaux possèdent des mécanismes de déformation similaires.

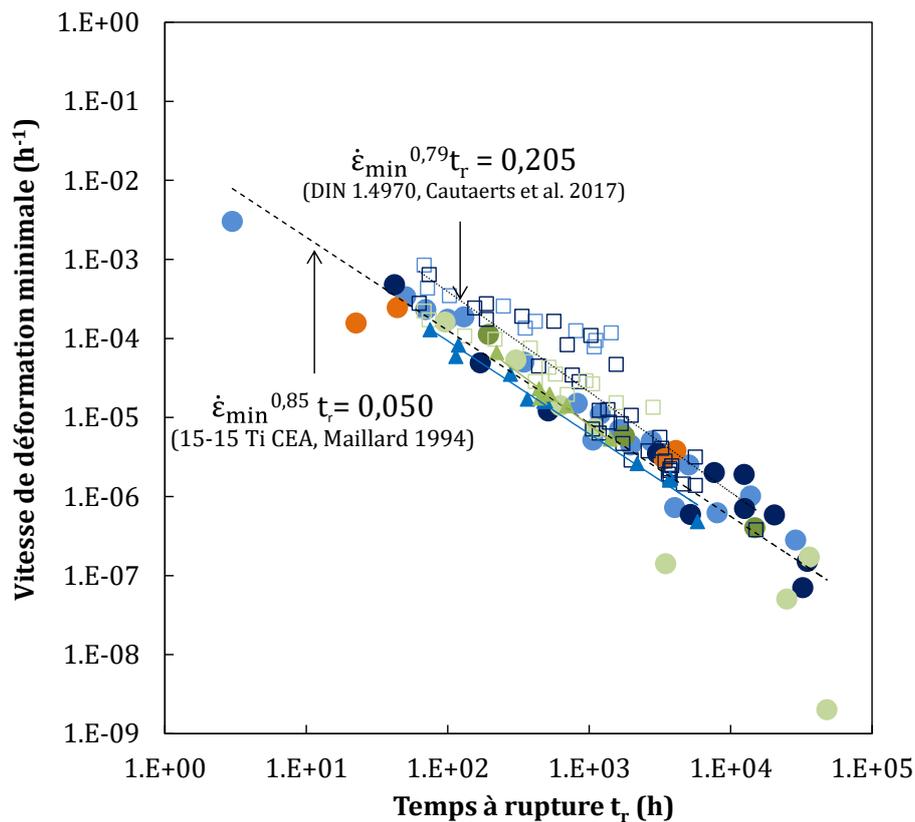


Figure 3.12 – Représentation de Monkman-Grant pour l'acier DIN 1.4970 et pour les aciers 15-15Ti testés au CEA.

1.5. Conclusion de l'état de l'art concernant le comportement en fluage des aciers ayant une composition proche de l'AIM1

Il existe une base de données de fluage conséquente aux basses températures (entre 650°C et 750°C) pour des aciers 15-15Ti ayant une composition proche de l'AIM1. En effet, ces températures sont proches de la température maximale de la gaine d'un réacteur à neutrons rapides en conditions nominales. Cependant, les données expérimentales en fluage sont très rares au-dessus de 850°C ([Chapitre 4](#)) ce qui justifie ce travail de thèse.

Les 15-15Ti testés au CEA, précurseur de l'AIM1, possèdent une très bonne résistance au fluage, grâce à la précipitation optimisée des carbures de titane secondaires à haute température. Ces précipités vont permettre un durcissement par effet d'épinglage des dislocations.

Le principal mécanisme de déformation mis en jeu lors des essais de fluage serait contrôlé par la montée des dislocations aux plus faibles contraintes et par le glissement des dislocations pour des contraintes élevées.

L'étude des éprouvettes après essais de fluage montre des résultats différents en fonction des aciers. Dans les conditions de contraintes et de températures disponibles, les ruptures sont majoritairement transgranulaires ductile pour les aciers DIN 1.4970. L'allongement à rupture pour des températures inférieures à 700°C est limité et n'excède pas 0,10.

Les expertises d'éprouvettes après les essais de fluage à basse température sont rares dans la littérature pour des aciers ayant une composition similaire à l'AIM1. C'est pourquoi, dans la suite de ce chapitre, il sera présenté le comportement viscoplastique à basse température et une expertise approfondie des éprouvettes après essais dans le but de mieux comprendre les mécanismes de rupture.

2. Comportement en fluage sous air de l'AIM1 à 650°C et 750°C

Les essais à 650°C et 750°C ont été réalisés à charge constante au CEA de Grenoble, au CEA de Saclay et à EDF. Le choix des contraintes en fluage a été déterminé à partir des propriétés en traction dans la partie 1.4.1 du [Chapitre 3](#) (cf. [Figure 3.13](#)).

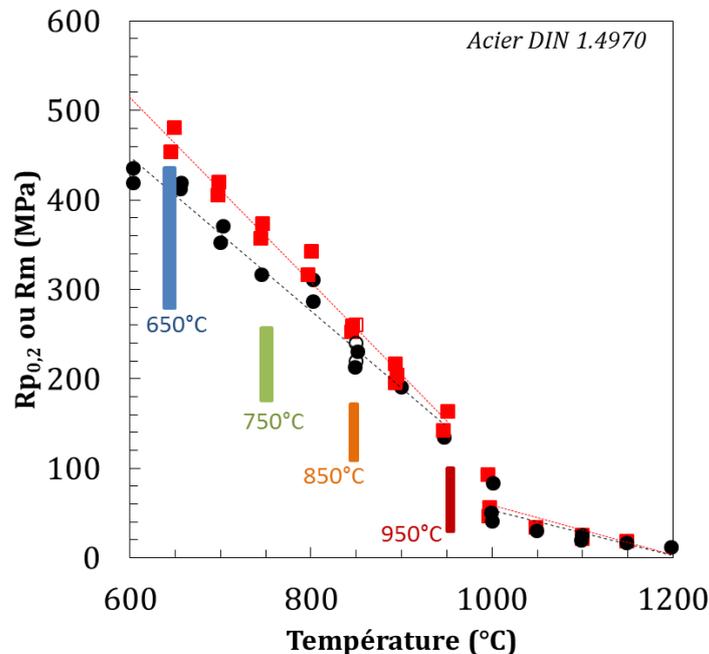


Figure 3.13 – Comparaison des contraintes appliquées pour les essais de fluage en fonction de la température avec les propriétés mécaniques de traction en fonction de la température de l'acier DIN 1.4970, d'après (Petersen, Schanz, et Leistikow 1988).

Tous les essais présentés dans cette partie ont été réalisés sous air pour des raisons de disponibilité des machines car la durée des essais peut atteindre plusieurs mois. Par ailleurs, des éprouvettes en AIM1 testées en traction à 650°C n'ont montré qu'une formation d'oxyde de chrome, la formation d'une couche duplex ne serait donc pas attendue.

Le protocole expérimental, les géométries des éprouvettes et les conditions d'essais sont détaillés dans le paragraphe 2.1.

2.1. Protocoles expérimentaux et conditions d'essai

Essais de fluage au CEA de Grenoble :

Les essais de fluage au CEA de Grenoble ont été réalisés au sein du laboratoire LCA. Les éprouvettes utilisées pour réaliser les essais sont des éprouvettes de type tuile (Figure 3.14 a). La longueur de la zone utile est de 30 mm. Ces éprouvettes sont directement usinées dans la gaine ce qui permet d'éviter le soudage avec des bouchons (qui a posé des difficultés lors de tests préliminaires). La fixation des éprouvettes à la machine de fluage se fait à l'aide de mors en Inconel 617 en insérant les têtes des éprouvettes sur les mors supérieur et inférieur (Figure 3.14 b). Des capteurs de déplacement capacitifs fixés sur les mors permettent de suivre leurs déplacements relatifs au cours des essais de fluage. Deux marques de part et d'autre de la partie utile de l'éprouvette sont faites afin d'obtenir l'allongement de l'éprouvette en fin d'essai dans cette zone. Ces marques sont encore bien visibles pour une mesure post-mortem.

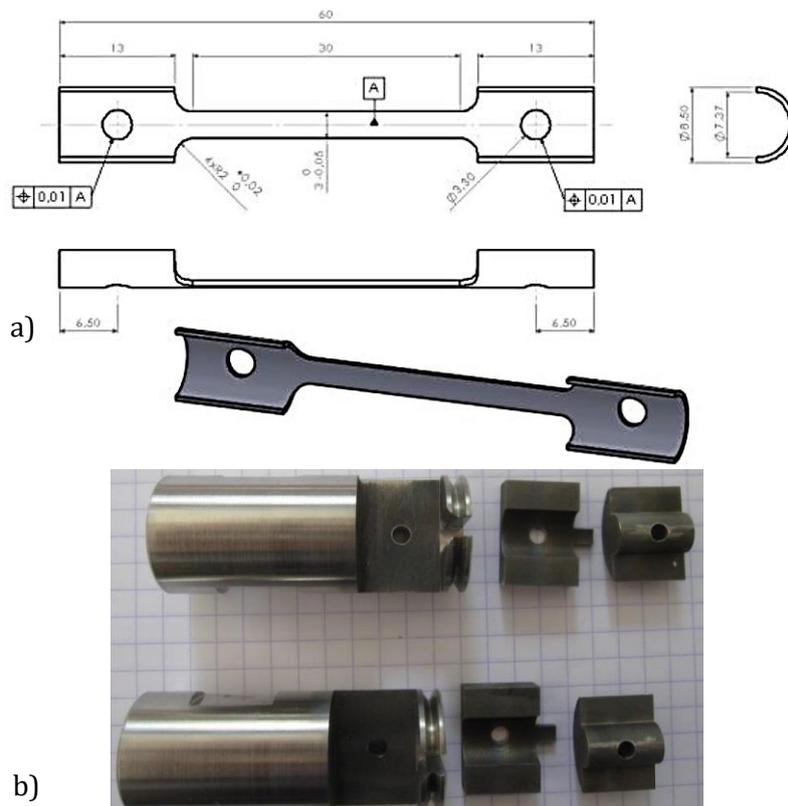


Figure 3.14 - a) Plan des éprouvettes de type tuile et b) photographie des mors utilisés, d'après (Gentzbittel et Calapez 2016).

La machine de fluage Mayes à bras de levier est équipée d'un four résistif coulissant vertical. Le dispositif de suivi de la température est constitué de 3 thermocouples ligaturés directement sur la partie utile de l'éprouvette. La température souhaitée est atteinte au bout de 2 h puis 1 h est ajoutée pour permettre la stabilisation de la température. Ce chauffage et cette stabilisation sont

nécessaires pour assurer une température homogène. L'arrêt du four est automatique avec une vitesse de refroidissement quasi-linéaire de 2,8°C/min jusqu'à 520°C et une vitesse de 1,6°C/min de 520°C à 300°C. Le gradient de température maximal autorisé sur la partie utile de l'éprouvette est de 3°C.

Une photographie de l'éprouvette montée avant un essai de fluage est présentée sur la **Figure 3.15**.

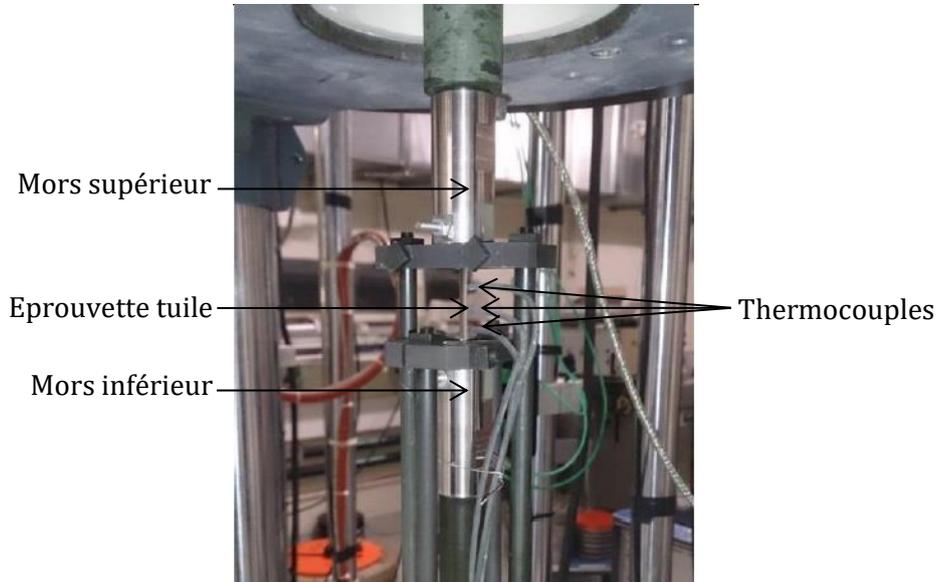


Figure 3.15 – Photographie de l'éprouvette montée sur la machine avant essai de fluage (mors neufs), d'après (Gentzittel et Calapez 2016).

Essais de fluage au CEA de Saclay :

Un essai de fluage a été réalisé à 750°C sous 200 MPa sur une éprouvette avec bouchons soudés. Le détail des résultats sera discuté dans les parties 2.2, 2.3 et 2.4.

Les autres essais ont été réalisés sur tuiles afin de pouvoir comparer avec les essais réalisés au CEA de Grenoble. Les éprouvettes sont fixées entre deux mors avec un système équipé de deux glissières afin d'assurer l'alignement du dispositif et éviter une flexion éventuelle de l'éprouvettes (cf. **Figure 3.16**).

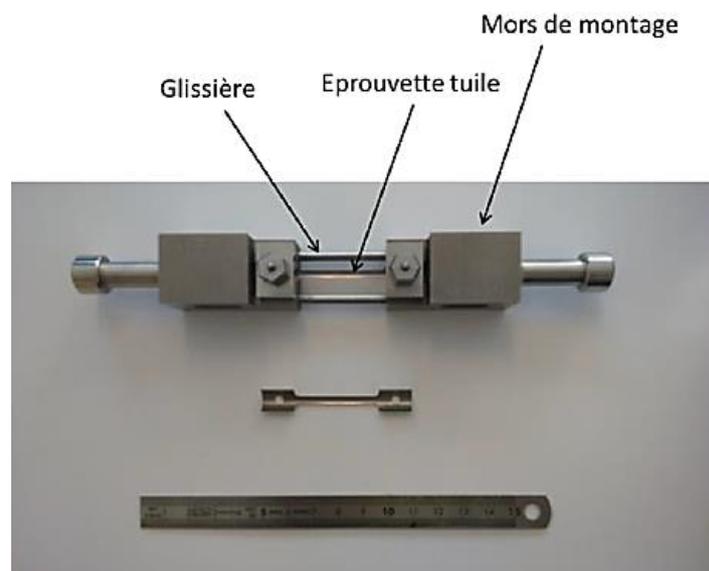


Figure 3.16 – Dispositif d'amarrage d'une éprouvette tuile (CEA Saclay),

La machine d'essai est munie d'un système à bras de levier, qui permet d'amplifier la charge appliquée à l'aide de poids. Le suivi de température se fait à l'aide de 3 thermocouples ligaturés sur la partie utile de l'éprouvette. Le gradient de température maximal autorisé sur la partie utile de l'éprouvette est de 3°C (four résistif 3 zones).

L'allongement est obtenu à l'aide d'un extensomètre LVDT fixé sur des tiges rigides qui sont elles-mêmes positionnées aux extrémités de l'éprouvette.

Essais de fluage à EDF

Ces essais ont été réalisés sous air sur des éprouvettes de géométrie tubulaires de 150 mm de long. L'amarrage des éprouvettes se fait à l'aide d'un système d'olive. Tout comme les essais réalisés au CEA, le four utilisé est un four résistif.

Récapitulatif des essais réalisés à 650° et 750°C :

L'ensemble des essais réalisés à 650°C et 750°C est présenté dans le **Tableau 3.3**. Ces essais sont réalisés jusqu'à rupture de l'éprouvette et ont ainsi duré plusieurs mois pour certains d'entre eux.

Afin de vérifier la reproductibilité des essais dans les différents laboratoires, des essais à 750°C sous 200 MPa ont été réalisés à la fois à EDF, au CEA de Grenoble et au CEA de Saclay. Cette condition a été choisie afin d'obtenir un temps à rupture assez court pour pouvoir comparer les résultats assez rapidement.

D'autres essais ont été réalisés dans les mêmes conditions au CEA de Grenoble et au CEA de Saclay (650°C sous 400 MPa et 750°C sous 230 MPa). Pour simplifier la lecture du manuscrit, les noms des éprouvettes ont été homogénéisés avec la convention suivante : AIM1-LABO-TEMPERATURE-CONTRAINTE-NOM.

Température	Nom éprouvette	Contrainte (MPa)	Dispositif d'essai
650°C	AIM1-EDF-650-280	280	EDF
	AIM1-EDF-650-300	300	EDF
	AIM1-GRE-650-350-FLU1	350	CEA Grenoble
	AIM1-SAC-650-380-T9	380	CEA Saclay
	AIM1-SAC-650-400-T7	400	CEA Saclay
	AIM1-GRE-650-400-FLU2	400	CEA Grenoble
	AIM1-GRE-650-400-FLU3	400	CEA Grenoble
	AIM1-SAC-650-410-T8	410	CEA Saclay
	AIM1-SAC-650-420-T10	420	CEA Saclay
	AIM1-SAC-650-440-T11	440	CEA Saclay
750°C	AIM1-GRE-750-175-FLU6	175	CEA Grenoble
	AIM1-SAC-750-200-BS1	200	CEA Saclay
	AIM1-EDF-750-200	200	EDF
	AIM1-GRE-750-200-FLU5	200	CEA Grenoble
	AIM1-SAC-750-230-T3	230	CEA Saclay
	AIM1-GRE-750-230-FLU4	230	CEA Grenoble

Tableau 3.3 – Ensemble des essais réalisés à 650°C et 750°C.

2.2. Comportement viscoplastique

Les courbes de fluage représentant la déformation en fonction du temps pour les essais à 650°C réalisés sur tuile au CEA de Grenoble et Saclay et sur tube à EDF sont présentées sur la [Figure 3.17](#).

Toutes les courbes présentent les trois stades classiques en fluage ([Figure 3.17 b](#)). Comme attendu, la vitesse de déformation dans le stade secondaire augmente avec la contrainte appliquée.

La valeur de l'allongement à rupture est très dispersée, mais n'excède pas 0,09 pour la majorité des essais réalisés. Ce résultat peut s'expliquer car l'allongement à rupture correspond au dernier point d'acquisition et non à l'allongement mesuré après rupture. L'allongement ainsi déterminé est tributaire de la fréquence d'acquisition basse compte tenu de la durée des essais. Par ailleurs, l'allongement en début de tertiaire est très faible avec une valeur inférieure à 0,01.

Pour un dispositif d'essai donné, les courbes obtenues sont très reproductibles (EDF-650-300-1 et EDF-650-300-2; AIM1-GRE-650-400-FLU2 et AIM1-GRE-650-400-FLU3) ([Figure 3.17 b](#)). Toutefois pour un même jeu de conditions testées (température, charge), les essais réalisés au CEA de Grenoble sont plus longs par rapport à ceux réalisés au CEA de Saclay et la vitesse de déformation minimale est plus faible pour les essais réalisés au CEA de Grenoble par

rapport aux essais réalisés au CEA de Saclay (comparaison des essais FLU2 et FLU3 par rapport à T7).

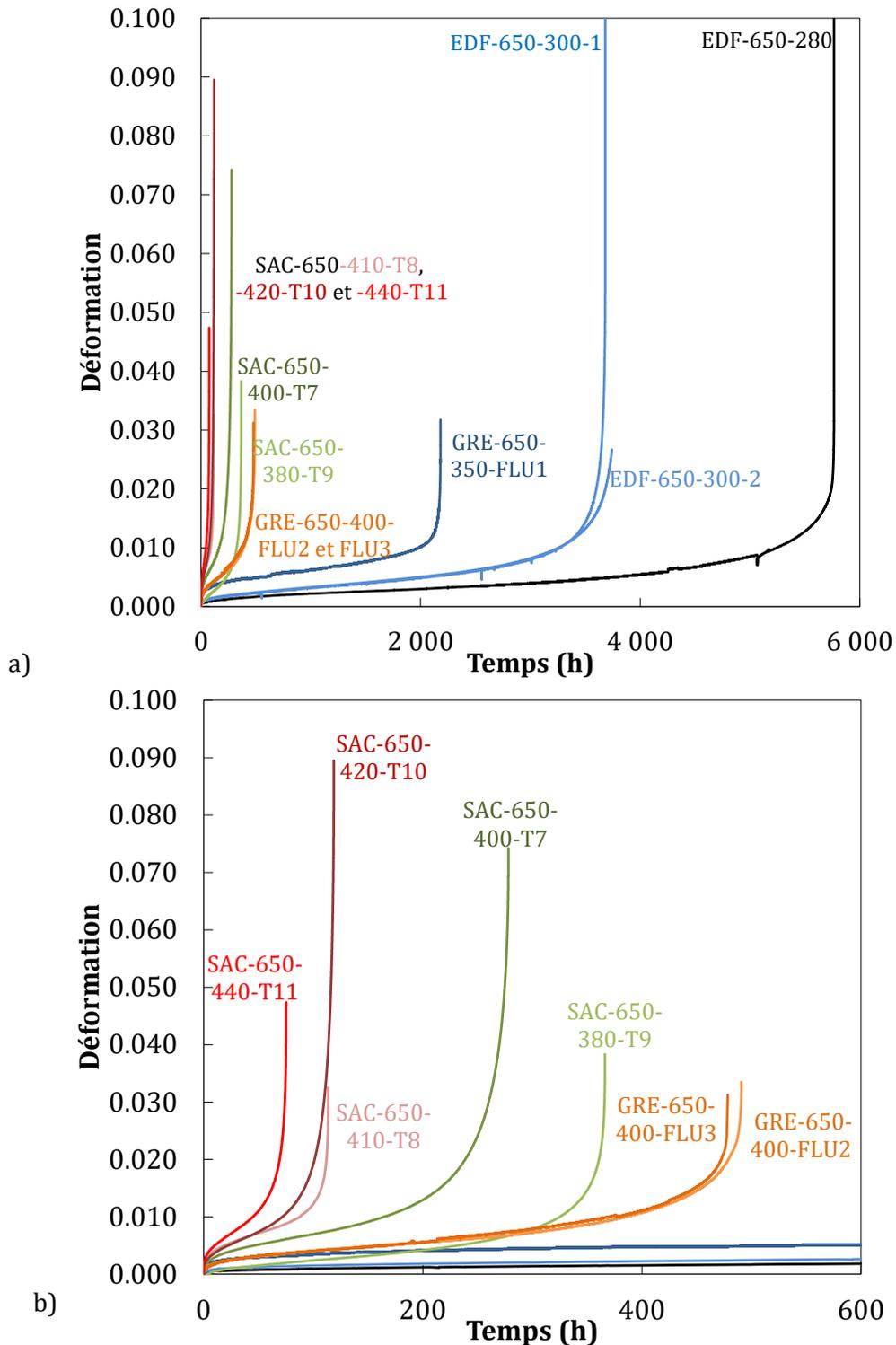


Figure 3.17 – Courbes de fluage à 650°C a) de l'ensemble des essais et b) des essais réalisés entre 400 MPa et 440 MPa.

La différence de comportement entre les essais réalisés au CEA de Grenoble et ceux réalisés au CEA de Saclay ne peut s'expliquer par la géométrie des éprouvettes car les essais ont tous été réalisés sur tuile. L'effet de la température pourrait jouer un rôle, car malgré le faible gradient le long de la partie utile (3°C) dans les deux protocoles, la consigne suivie peut varier d'un dispositif

à l'autre. Compte tenu de la faible évolution de la matrice à 650°C (**Chapitre 2**), il serait peu probable qu'un gradient de 2°C puisse influencer sur le comportement en fluage. Afin de tenter d'expliquer ces différences de comportement, des expertises microstructurales des éprouvettes rompues ont été réalisées (paragraphe 2.5).

Les valeurs des caractéristiques en fluage des essais réalisés à 650°C sont présentées dans le **Tableau 3.4**.

T(°C)	Nom éprouvette	σ (MPa)	$\dot{\epsilon}_{min}$ (h ⁻¹)	$t_{rupture}$ (h)	$\epsilon_{rupture}$ ³⁴	$t_{tertiaire}$ (h) ³⁵	$\epsilon_{tertiaire}$
650	AIM1-EDF-650-280	280	4.80.10 ⁻⁰⁷	5833	0.22	4664	0.0466
	AIM1-EDF-650-300-1	300	1.70.10 ⁻⁰⁶	3742	0.027	2916	0.0288
	AIM1-EDF-650-300-2	300	1.60.10 ⁻⁰⁶	3696	0.16	2679	0.0268
	AIM1-GRE-650-350-FLU1	350	2.60.10 ⁻⁰⁶	2181	0.030	1708	0.0083
	AIM1-SAC-650-380-T9	380	1.70.10 ⁻⁰⁵	366	0.038	251	0.0056
	AIM1-SAC-650-380-T7	400	3.50.10 ⁻⁰⁵	278	0.074	152	0.0092
	AIM1-GRE-650-400-FLU2	400	1.60.10 ⁻⁰⁵	491	0.033	346	0.0092
	AIM1-GRE-650-400-FLU3	400	1.60.10 ⁻⁰⁵	478	0.031	347	0.0091
	AIM1-SAC-650-410-T8	410	5.90.10 ⁻⁰⁵	114	0.033	92	0.0106
	AIM1-SAC-650-420-T10	420	8.30.10 ⁻⁰⁵	119	0.089	73	0.0102
	AIM1-SAC-650-440-T11	440	1.30.10 ⁻⁰⁴	75	0.047	46	0.0102

Tableau 3.4 – Valeurs des caractéristiques en fluage extraites des essais réalisés à 650°C.

Essais réalisés à 750°C :

Les courbes représentant la déformation en fonction du temps à 750°C sont présentées sur la **Figure 3.18**. Tout comme pour les essais réalisés à 650°C, les trois stades sont marqués sauf pour l'essai réalisé avec l'éprouvette bouchons soudés pour lequel le stade primaire est moins visible par rapport aux essais réalisés sur tuile à la même contrainte (200 MPa).

La durée relative du stade tertiaire par rapport à la durée totale de l'essai est plus longue par comparaison avec les essais réalisés à 650°C. L'allongement à rupture atteint au maximum 0,06 et allongement en début de tertiaire est en dessous de 0,01 ce qui est comparable aux résultats des essais à 650°C. L'instabilité n'apparaît qu'à partir de 1% de déformation, par conséquent, la

³⁴ Allongement déterminé à partir du dernier point d'acquisition.

³⁵ Il s'agit du temps de début du stade tertiaire.

³⁶ Il s'agit de la déformation au début du stade tertiaire.

contrainte évolue peu au cours de la partie permettant le dimensionnement en termes de durée de vie (stades primaire et secondaire).

De la même manière que pour les essais réalisés à 650°C, l'essai réalisé sous 200 MPa au CEA de Grenoble est plus long que l'essai réalisé au CEA de Saclay pour la même contrainte. Par comparaison avec l'essai réalisé à EDF, l'essai réalisé au CEA de Grenoble est également plus long. L'essai réalisé à EDF admet un temps à rupture compris entre l'essai réalisé à Saclay et l'essai réalisé à Grenoble.

Malgré ces différences, pour une même condition d'essai les vitesses de déformation minimales et les temps à rupture obtenus diffèrent de moins d'un facteur deux, ce qui est généralement considéré comme acceptable en fluage.

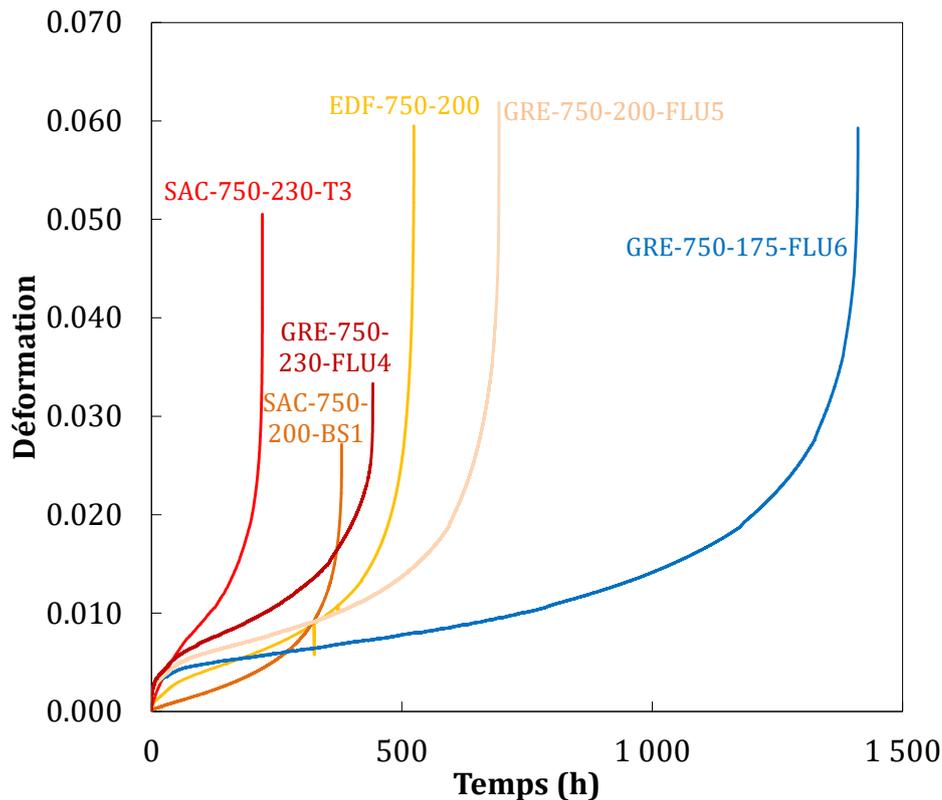


Figure 3.18 – Courbes de fluage de l'ensemble des essais réalisés à 750°C.

Les valeurs des caractéristiques en fluage des essais réalisés à 750°C sont présentées dans le **Tableau 3.5**.

T(°C)	Nom éprouvette	σ (MPa)	$\dot{\epsilon}_{min}$ (h ⁻¹)	$t_{rupture}$ (h)	$\epsilon_{rupture}^{37}$	$t_{tertiaire}$ (h)	$\epsilon_{tertiaire}$
750	AIM1-GRE-750-175-FLU6	175	$7.40.10^{-05}$	1410	0.060	639	0.009
	AIM1-SAC-750-200-BS1	200	$1.76.10^{-05}$	449	0.029	203	0.04
	AIM1-EDF-750-200	200	$1.97.10^{-05}$	524	0.055	306	0.008
	AIM1-GRE-750-200-FLU5	200	$1.40.10^{-05}$	694	0.062	355	0.01
	AIM1-SAC-750-230-T3	230	$6.62.10^{-05}$	222	0.051	140	0.012

³⁷ Allongement déterminé à partir du dernier point d'acquisition.

	AIM1-GRE-750-230-FLU4	230	2.30.10 ⁻⁰⁵	442	0.033	227	0.01
--	-----------------------	-----	------------------------	-----	-------	-----	------

Tableau 3.5 – Valeurs de caractéristiques en fluage extraites des essais réalisés à 750°C.

Courbes de Norton à 650°C et 750°C :

La représentation des données à l'aide des courbes de Norton des essais réalisés à 650°C et 750°C est présentée sur la Figure 3.19.

Ces courbes de Norton permettent également d'avoir un ordre d'idée des mécanismes de déformation mis en jeu, à l'aide de la valeur du coefficient n . Ce coefficient vaut 11 à 650°C et 6 à 750°C, ce qui traduit un mécanisme de déformation principalement contrôlée par le fluage-dislocations.

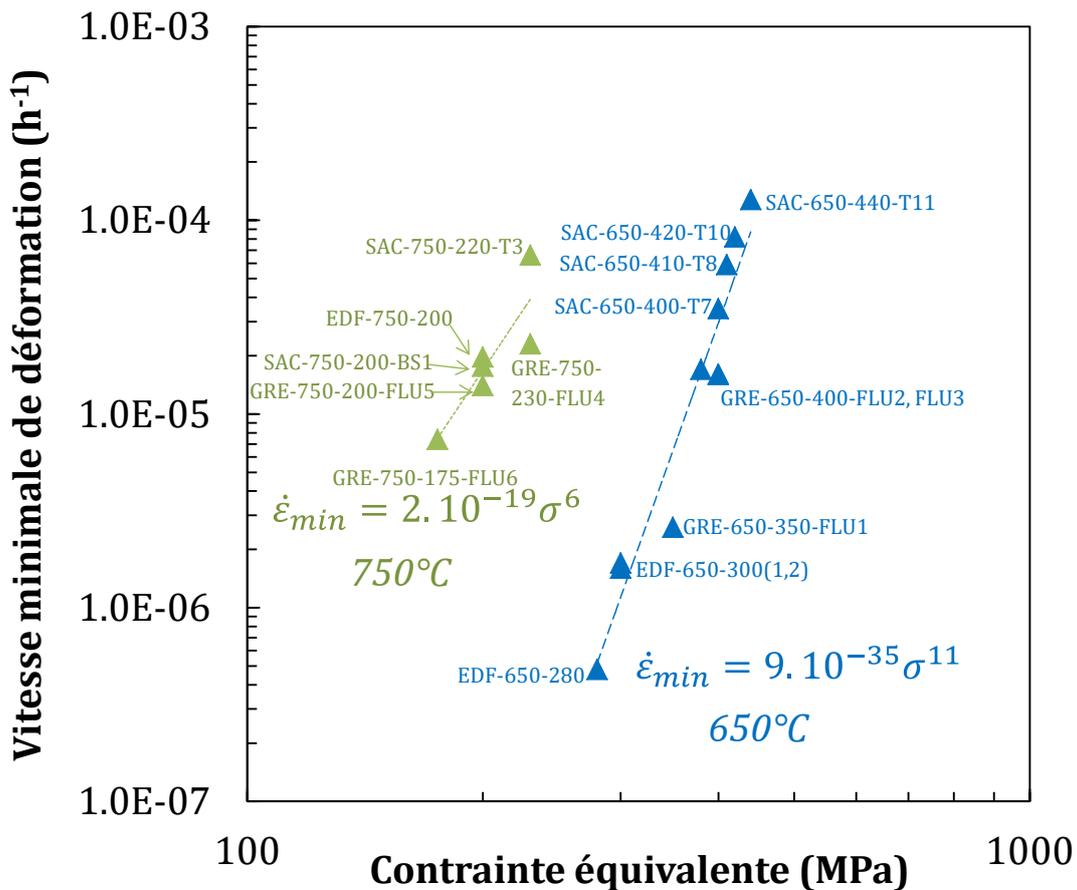


Figure 3.19 – Comparaison des courbes de Norton des essais réalisés à 650°C et 750°C.

Les courbes de Norton obtenues lors de cette étude ont été comparées avec celles des années antérieures pour des essais réalisés sur des prédécesseurs de l'AIM1 (Figure 3.20). Les valeurs de n sont cohérentes entre les différents alliages. Par ailleurs, la modification de l'exposant de Norton entre 650°C et 750°C est notable, ce qui pourrait s'expliquer par des changements microstructuraux entre ces deux températures.

Pour une température (650°C ou 750°C) et une contrainte équivalente données, la vitesse minimale de déformation est environ 10 fois plus faible pour l'AIM1 par rapport aux autres matériaux. L'AIM1 admet ainsi une meilleure résistance au fluage par rapport aux autres 15-15Ti. La courbe pour l'AIM1 à 750°C est quasiment superposée à celle obtenue pour ses précurseurs à 700°C.

La présence de phosphore, la précipitation d'aiguilles de phosphures et l'ajout du silicium dans l'AIM1 pourrait jouer un rôle sur le meilleur comportement de l'AIM1 lot G0. Pour rappel, des phosphures ont été observés dans l'AIM1 à 850°C (Chapitre 2) et (Kountchou 2017) a observé par sonde atomique tomographique des germes de phosphures nanométriques dans l'AIM1 après 100h de traitement thermique à 650°C. Il est donc fortement probable de voir apparaître ces phosphures pendant les essais de fluage dans l'AIM1.

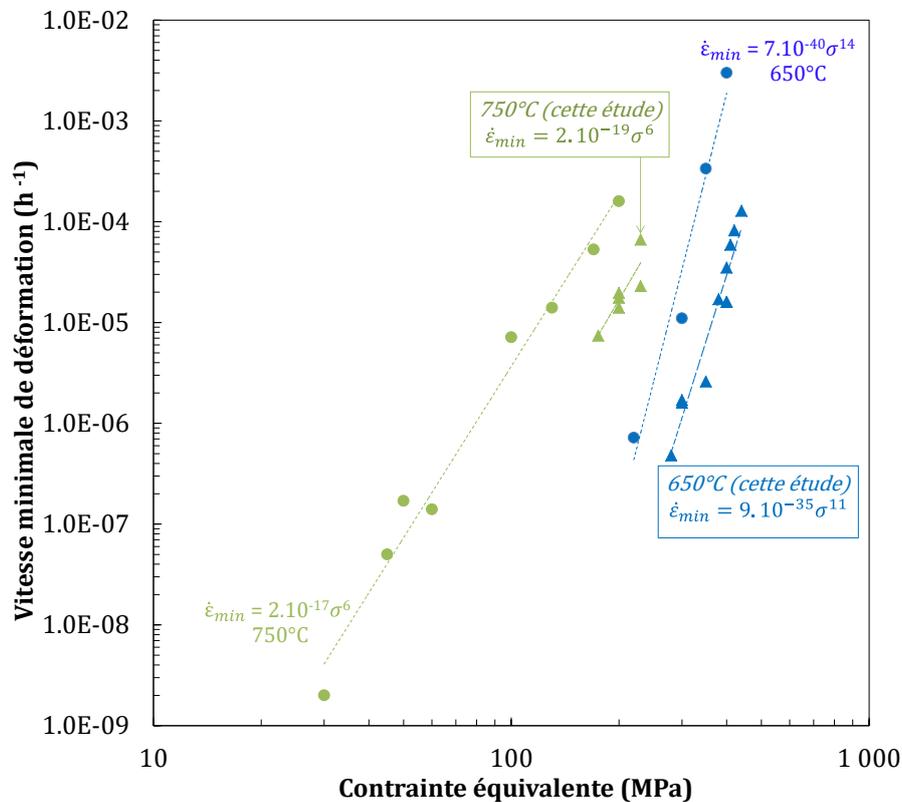


Figure 3.20 – Comparaison des courbes de Norton des essais réalisés pour des 15-15Ti CEA avec les essais réalisés dans le cadre de la thèse à 650°C (triangles bleus) et à 750°C (triangles verts).

2.3. Représentation du lien entre la vitesse de déformation minimale et le temps à rupture

Les valeurs des vitesses minimales de déformation et des temps à rupture à 650°C et 750°C ont été utilisées pour tracer les courbes de Monkman-Grant présentées sur la Figure 3.21.

Les deux courbes suivent bien une loi puissance. Le comportement est similaire à 650°C et à 750°C, avec une valeur de coefficient m proche de 1 pour ces deux températures ($m = 0,85$ à 650°C et $m = 0,76$ à 750°C).

Les nouvelles données à 650°C et 750°C ont été comparées avec les données disponibles pour les prédécesseurs de l'AIM1. Les points correspondants sont regroupés sur la Figure 3.22. Les nouveaux points à 650°C et à 750°C sont parfaitement intégrés dans la base de données déjà existante compte tenu de la dispersion des points sur le graphique.

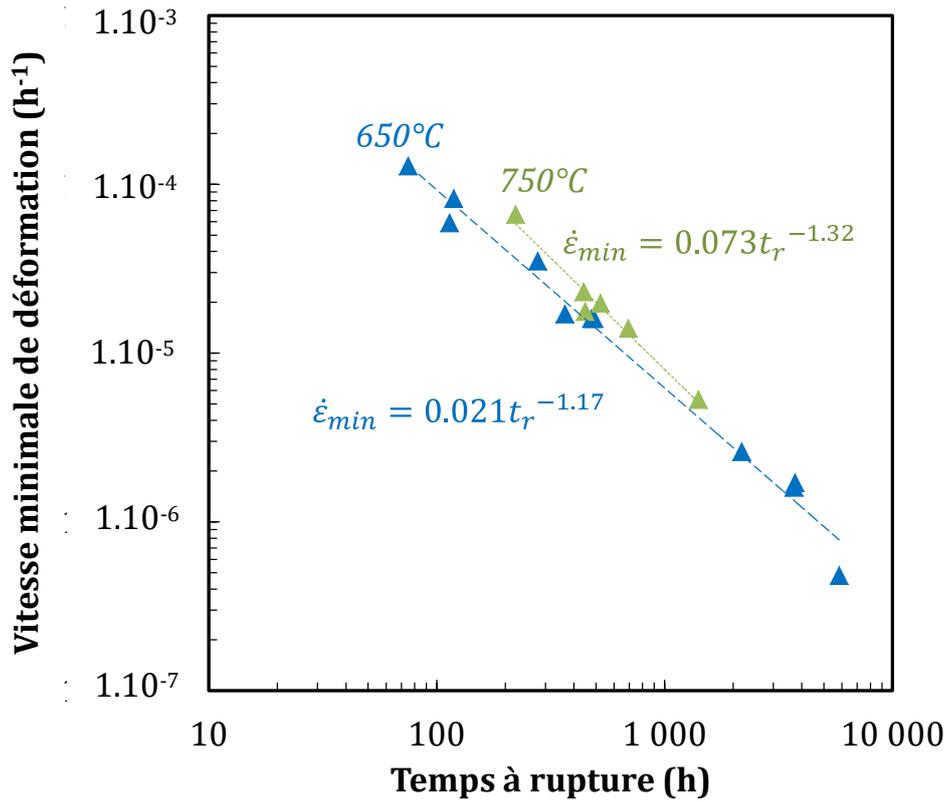


Figure 3.21 – Courbes de Monkman-Grant tracées à partir des essais réalisés à 650°C et 750°C.

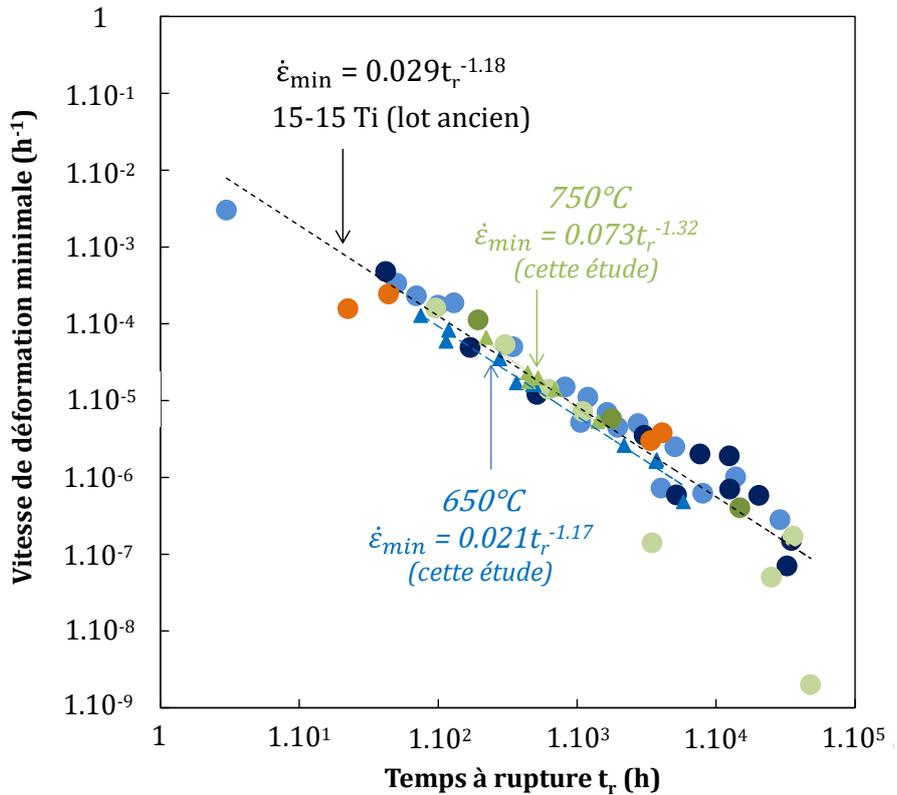


Figure 3.22 – Courbes de Monkman-Grant d'essais réalisés pour les anciens lots de 15-15Ti (ronds pleins) et comparaison avec les nouvelles courbes de Monkman-Grant (triangles pleins) tirées des essais réalisés à 650°C et 750°C.

Les valeurs des temps à rupture des essais à 650°C et 750°C ont été utilisées pour tracer les courbes de Larson-Miller. Les résultats obtenus ont été placés dans le graphique représentant le logarithme de la contrainte équivalente en fonction du paramètre LMP de Larson-Miller (Figure 3.23). Ce graphique contient les données déjà existantes pour les précurseurs de l'AIM1.

Les nouveaux points ajoutés pour les températures de 650°C et 750°C sont situés au-dessus des résultats déjà existants, sans pour autant modifier de manière significative l'équation polynomiale $\text{Log}(\sigma_{\text{éq}}) = f(\text{LMP})$ ajustée sur l'ensemble des résultats. Ce résultat confirme néanmoins une meilleure tenue au fluage de l'AIM1 optimisé par rapport à ses prédécesseurs.

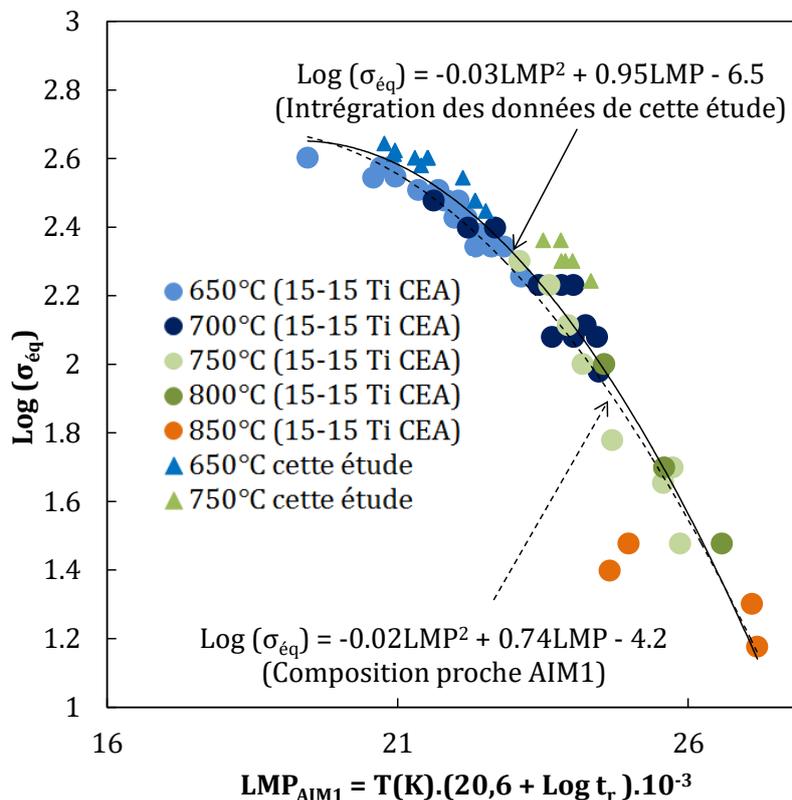


Figure 3.23 – Intégration des résultats des nouveaux essais réalisés à 650°C et 750°C à la courbe de prévision du temps à rupture à l'aide du paramètre de Larson-Miller.

2.4. Expertises des éprouvettes après essai

Afin de déterminer les modes de rupture de l'AIM1, des observations des surfaces de rupture des éprouvettes rompues à 650°C et 750°C ont été réalisées.

Essais réalisés à 650°C :

Le mode de rupture des éprouvettes testées à 650°C est majoritairement transgranulaire ductile à cupules (Figure 3.24 a, Figure 3.25 a et Figure 3.26). Néanmoins certaines zones très rugueuses pourraient s'apparenter à une rupture intergranulaire (Figure 3.24 b et Figure 3.25 b). En effet, des facettes sont observées, ayant une taille du même ordre de grandeur que la taille des grains austénitiques de l'AIM1 (30 µm). Ces zones sont observées majoritairement sur les chants des surfaces de rupture des éprouvettes bijambes (CEA Grenoble et CEA Saclay) et sur le bord interne pour les éprouvettes tubulaires (EDF).

Notons néanmoins une absence de ces zones intergranulaires sur le faciès des éprouvettes testées sous fortes contraintes (Figure 3.24).

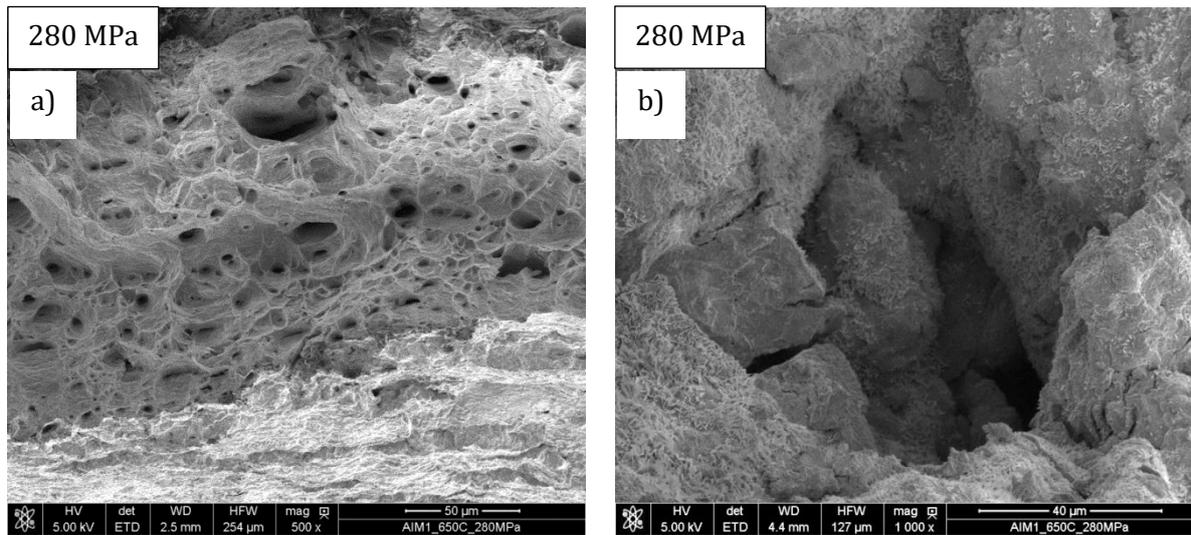


Figure 3.24 – Surface de rupture a) transgranulaire ductile à cupules et b) zone de rupture intergranulaire localisée de l'éprouvette AIM1-EDF-650-280.

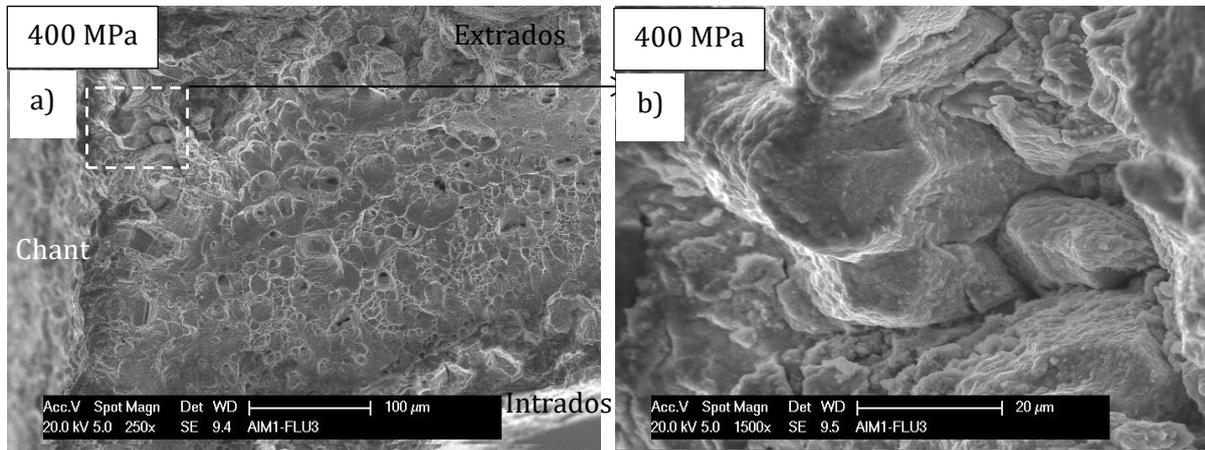


Figure 3.25 – Surface de rupture a) majoritairement transgranulaire ductile à cupules et b) zone intergranulaire de l'éprouvette AIM1-GRE-650-400-FLU3, fractographies réalisées au CEA de Grenoble.

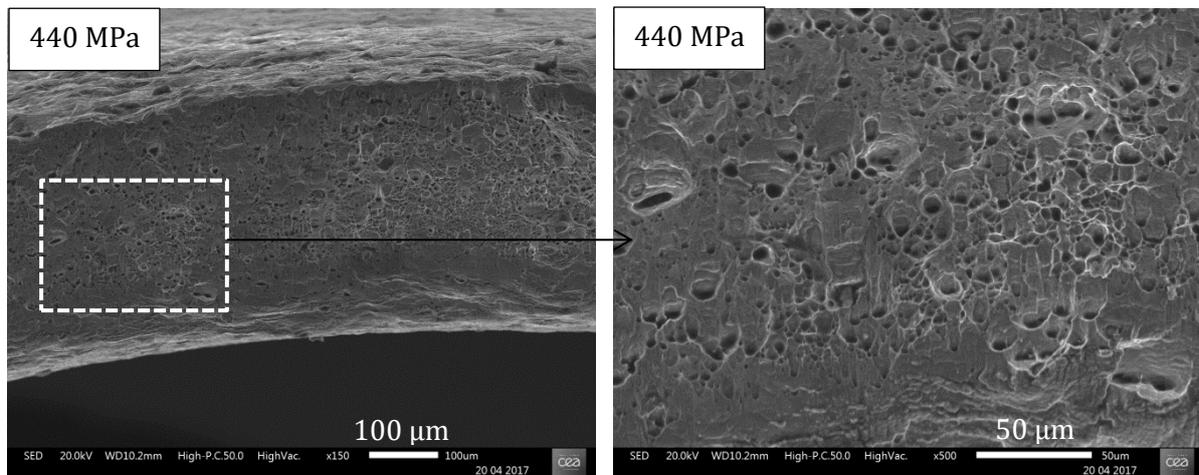


Figure 3.26 – a) Surface de rupture ductile à cupules de l'éprouvette AIM1-SAC-650-440-T11 et b) agrandissement de la Figure 3.24 a

Essais réalisés à 750°C :

Les surfaces de rupture des éprouvettes testées à 750°C sont similaires à celles testées à 650°C. Le mode de rupture est majoritairement transgranulaire ductile à cupules (Figure 3.27 a, Figure 3.28 a, Figure 3.29 a et b et Figure 3.30 a) avec la présence de zones d'apparence intergranulaire sur les chants des éprouvettes (Figure 3.27 b, Figure 3.28 b et Figure 3.30 b). Ces zones en bordure des surfaces de rupture sont très oxydées par rapport au reste du faciès, ce qui suggère qu'il s'agit de zones de rupture ayant été davantage exposées à l'oxydation. Ces observations pourraient ainsi supposer que la rupture a d'abord eu lieu sur les bords par fissuration intergranulaire stable puis sur le reste de l'éprouvette de manière ductile.

Pour cette température, la présence de ces zones n'est pas forcément visible sur toutes les surfaces de rupture. En effet, sur l'éprouvette GRE-750-200-FLU5 (200 MPa) (Figure 3.29), aucune zone intergranulaire n'est observée. Néanmoins, des zones intergranulaires ont pu être mises en évidence pour une contrainte plus élevée de 230 MPa (Figure 3.30). L'expertise en coupe des éprouvettes est nécessaire afin d'expliquer l'absence de zones intergranulaires pour l'éprouvette AIM1-750-200-FLU5 (présentée dans la partie 2.6 de ce chapitre).

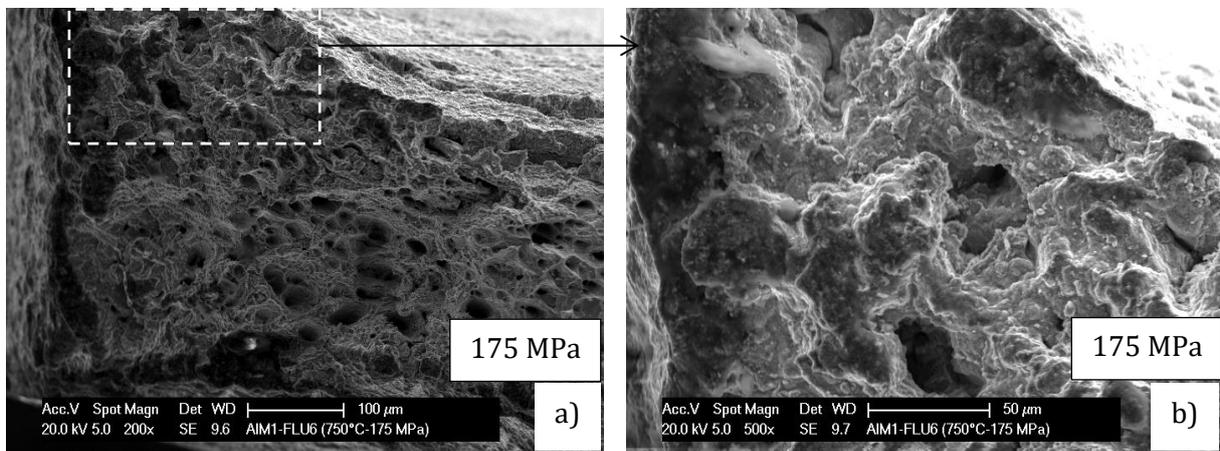


Figure 3.27 – Surface de rupture a) majoritairement ductile à cupules et b) zone intergranulaire de l'éprouvette AIM1-750-175-FLU6, fractographies réalisées au CEA de Grenoble.

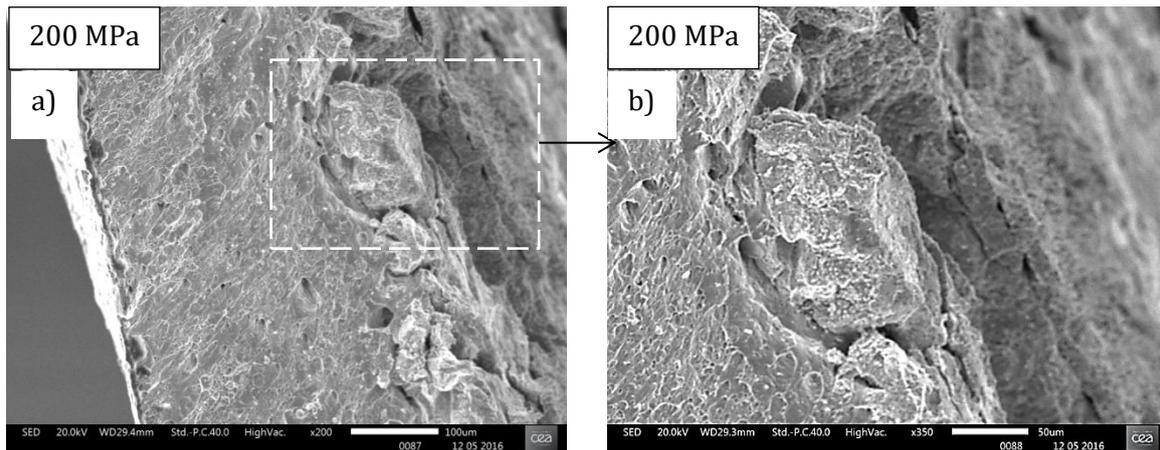


Figure 3.28 – Surface de rupture a) majoritairement transgranulaire ductile à cupules et b) zone intergranulaire de l'éprouvette AIM1-SAC-750-200-BS1.

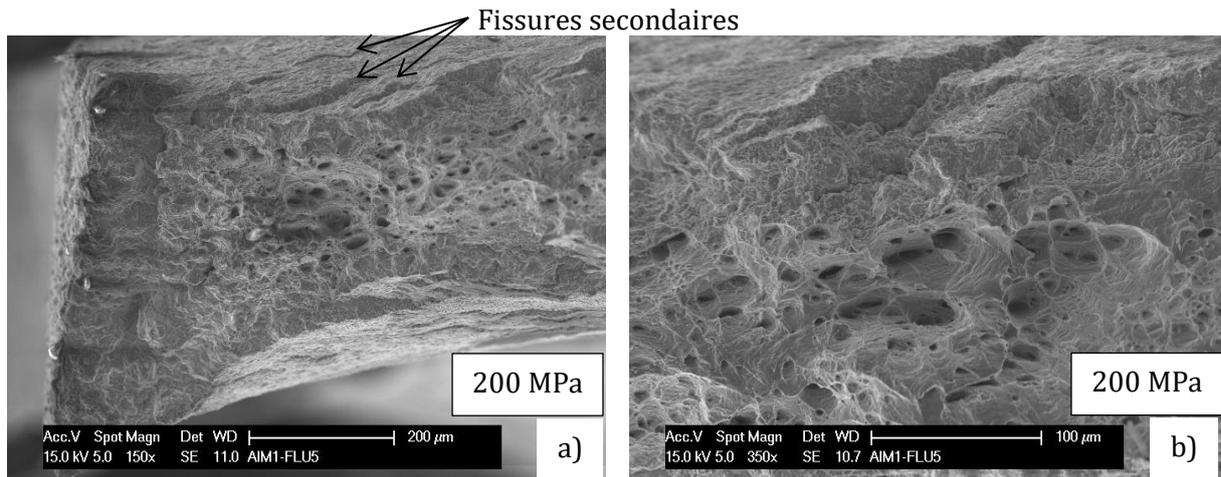


Figure 3.29 – Surface de rupture a) transgranulaire ductile à cupules et b) agrandissement de la Figure 3.26 a de l'éprouvette AIM1-GRE-750-200-FLU5, fractographies réalisées au CEA de Grenoble.

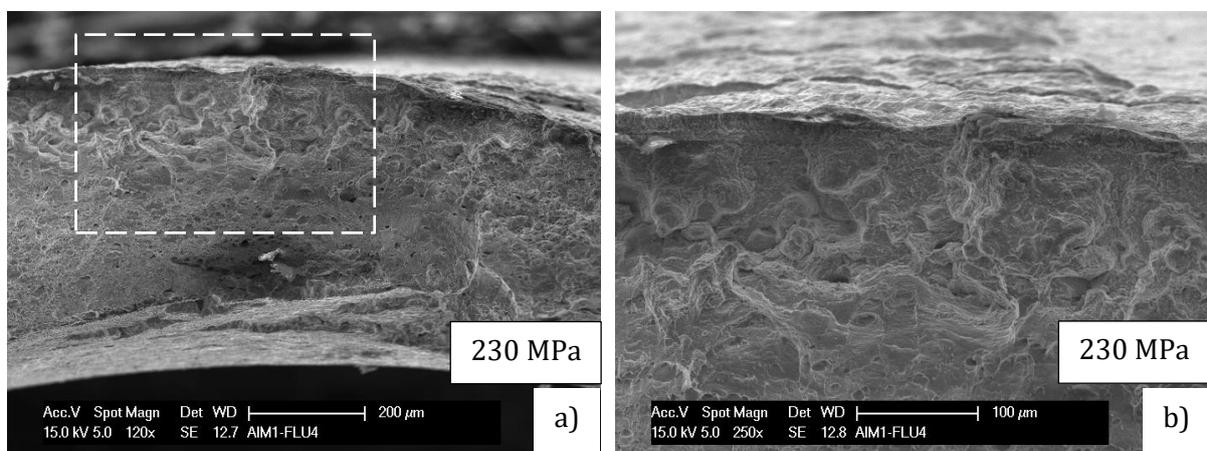


Figure 3.30 – Surface de rupture a) majoritairement transgranulaire ductile à cupules et b) zone intergranulaire de l'éprouvette AIM1-GRE-750-230-FLU4, fractographies réalisées au CEA de Grenoble.

Les fractographies des éprouvettes réalisées à 650°C et 750°C montrent une rupture ductile pour la majorité des surfaces de rupture. Néanmoins, certaines zones localisées au niveau des chants et le l'extrados (Figure 3.30) des éprouvettes bijambes et au niveau du bord interne des éprouvettes tubulaires semblent s'apparenter à un mode de rupture intergranulaire. Ces observations suggèrent une fissuration *a priori* intergranulaires depuis la surface des éprouvettes. Les auteurs (Abou Zahra et Schroeder 1982) avaient également observé ce type de surface de rupture qu'ils avaient lié à des défauts d'usinages des éprouvettes (essais réalisés sous vide sur un acier DIN 1.4970). D'autres auteurs (Latha et al. 2010) ont mis en évidence la présence d'endommagement intergranulaire lié à la présence de phases de Laves au niveau des joints de grains sur des éprouvettes ayant été testées sous 175 et 275 MPa (acier D9). La teneur en molybdène dans l'AIM1 étant plus faible (<1,70%) que celui du D9 (2,25%), l'apparition de phase de Laves est donc moins probable.

L'expertise des éprouvettes (coupes) est décrite dans la partie 2.5 de ce chapitre afin d'étudier leur endommagement *post mortem*.

2.5. Examen des éprouvettes sur coupes polies après essai

Pour l'observation longitudinale des éprouvettes, le plan de coupe est parallèle aux chants étant donné qu'il a été observé des zones intergranulaires au niveau de l'extrados. Les éprouvettes ont été découpées au fil afin d'obtenir une longueur d'environ 2 cm. Les échantillons ont ensuite été enrobés à chaud à l'aide d'une résine conductrice dans le but de pouvoir les observer par la suite au MEB. Les échantillons n'ont pas été tronçonnés de manière longitudinale afin d'éviter tout endommagement des éprouvettes dans ce sens. Le polissage classiquement utilisé pour les observations au MEB/EBSD a été réalisé ([Annexe 1](#)) et permet l'abrasion des éprouvettes sur une profondeur de quelques micromètres.

Le choix des éprouvettes caractérisées est présenté dans le [Tableau 3.6](#) (en rouge). Les observations au microscope optique ont été réalisées afin de qualifier l'occurrence et la profondeur des fissures intergranulaires. Les observations ont été réalisées sur les éprouvettes ayant été testées avec la contrainte la plus élevée (temps d'essai le plus faible), la contrainte la plus faible (temps d'essai le plus long) et avec une contrainte intermédiaire pour chaque température.

Par ailleurs, les observations des coupes des éprouvettes testées avec deux dispositifs différents ont été réalisées afin de tenter d'expliquer les différences de temps à rupture observés entre les essais réalisés au CEA de Saclay et au CEA de Grenoble (SAC-750-200-BS1 et GRE-750-200-FLU5 et SAC-750-230-T3 et GRE-750-230-FLU4). Des caractérisations au MEB/EBSD ont été réalisées afin de déterminer l'orientation de part et d'autre des fissures et de détecter une éventuelle restauration ou recristallisation dynamique accélérée par la contrainte en pointe de fissure (plus élevée que la contrainte macroscopique appliquée). Aucune observation au MET n'a pu être réalisée par manque de temps.

T (°C)	Nom éprouvette	σ (MPa)	Microscope optique	MEB/EBSD
650	AIM1-EDF-650-280	280	X	X
	AIM1-EDF-650-300	300		
	AIM1-GRE-650-350-FLU1	350		
	AIM1-SAC-650-380-T9	380		
	AIM1-SAC-650-400-T7	400		
	AIM1-GRE-650-400-FLU2	400		
	AIM1-GRE-650-400-FLU3	400	X	
	AIM1-SAC-650-410-T8	410		
	AIM1-SAC-650-420-T10	420		
	AIM1-SAC-650-440-T11	440	X	
750	AIM1-GRE-750-175-FLU6	175	X	X
	AIM1-SAC-750-200-BS1	200	X	X
	AIM1-EDF-750-200	200		
	AIM1-GRE-750-200-FLU5	200		X
	AIM1-SAC-750-230-T3	230	X	
	AIM1-GRE-750-230-FLU4	230	X	

Tableau 3.6 – Choix des caractérisations réalisées sur les éprouvettes testées à 650°C et 750°C.

Essais réalisés à 650°C :

Des observations en coupes longitudinales permettent de mettre en évidence la présence d'une ou plusieurs couches à la surface des éprouvettes testées à 650°C. L'interface oxyde/métal ne semble pas comporter de cavités observables à cette échelle. Des fissures dont la propagation est perpendiculaire à la sollicitation mécanique et qui partent de la surface sont également observées (Figure 3.31 a et b). La propagation semble se faire de manière stable car la couche d'oxydes est également présente à l'intérieur des fissures, signe d'une exposition significative de ces fissures à l'environnement oxydant. Ces fissures semblent plus ouvertes pour les basses contraintes. Pour la contrainte de 440 MPa (temps d'exposition faible) aucune couche ou fissure n'a été observée au microscope optique (Figure 3.31 c).

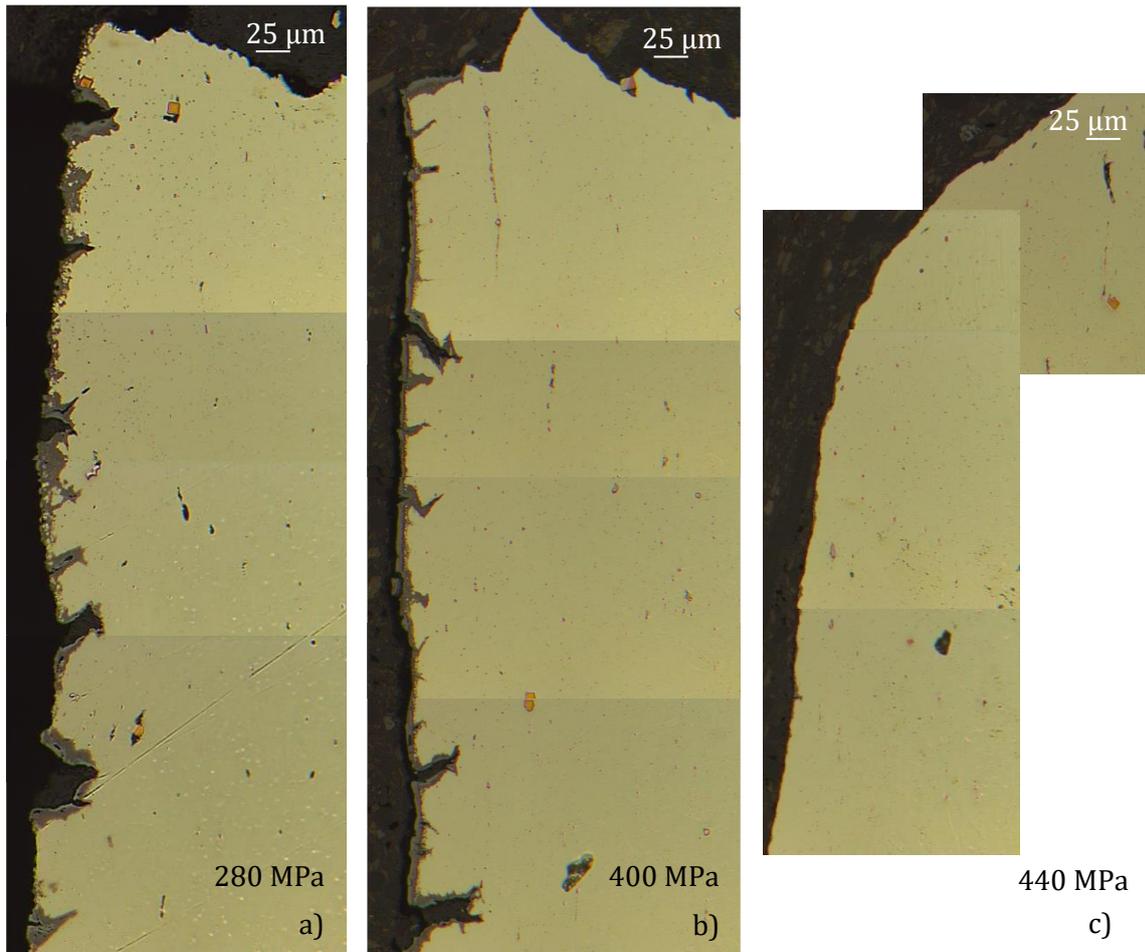


Figure 3.31 – Photographies prises au microscope optique des coupes des éprouvettes testées à 650°C a) sous 280 MPa (AIM1-EDF-650-280), b) sous 400 MPa (AIM1-GRE-650-400-FLU3) et c) sous 440 MPa (AIM1-GRE-650-440-T11).

Des cartographies d'analyse chimique à la microsonde de Castaing ont été réalisées afin de déterminer la nature de la ou des couches d'oxydes pour l'éprouvette AIM1-SAC-650-400-T7 (Figure 3.32).

La présence de deux couches a été identifiée. La couche externe, en contact avec l'air, est enrichie en fer et en oxygène. La couche interne est enrichie en chrome et en oxygène. Une ségrégation en nickel à l'interface oxyde de chrome/métal est observée. Cet enrichissement est probablement dû à la consommation du chrome pour alimenter la couche d'oxyde interne. Par ailleurs, d'autres éléments tels que le molybdène et le silicium ségrègent également, mais il est

difficile de savoir si ces éléments se trouvent dans la couche d'oxyde riche en chrome ou (avec le nickel) à l'interface couche d'oxyde/métal. Notons également la présence de nitrures et carbures de titane grossiers répartis dans le volume mais également proche des oxydes.

Ces résultats sont cohérents avec les couches observées par (Petersen, Schanz, et Leistikow 1988) sur des éprouvettes testées par pression interne (vapeur). Bien que l'environnement soit différent par rapport aux essais réalisés ici, les auteurs ont pu identifier deux couches. Selon (Petersen, Schanz, et Leistikow 1988), la couche externe, exposée à l'air est composée de wustite (FeO) et de magnétite (Fe_3O_4). La couche interne, en contact avec le métal est composée de wustite (FeO) et d'un complexe enrichi en chrome ($\text{Fe}[\text{Ni}]\text{Cr}_2\text{O}_4$).

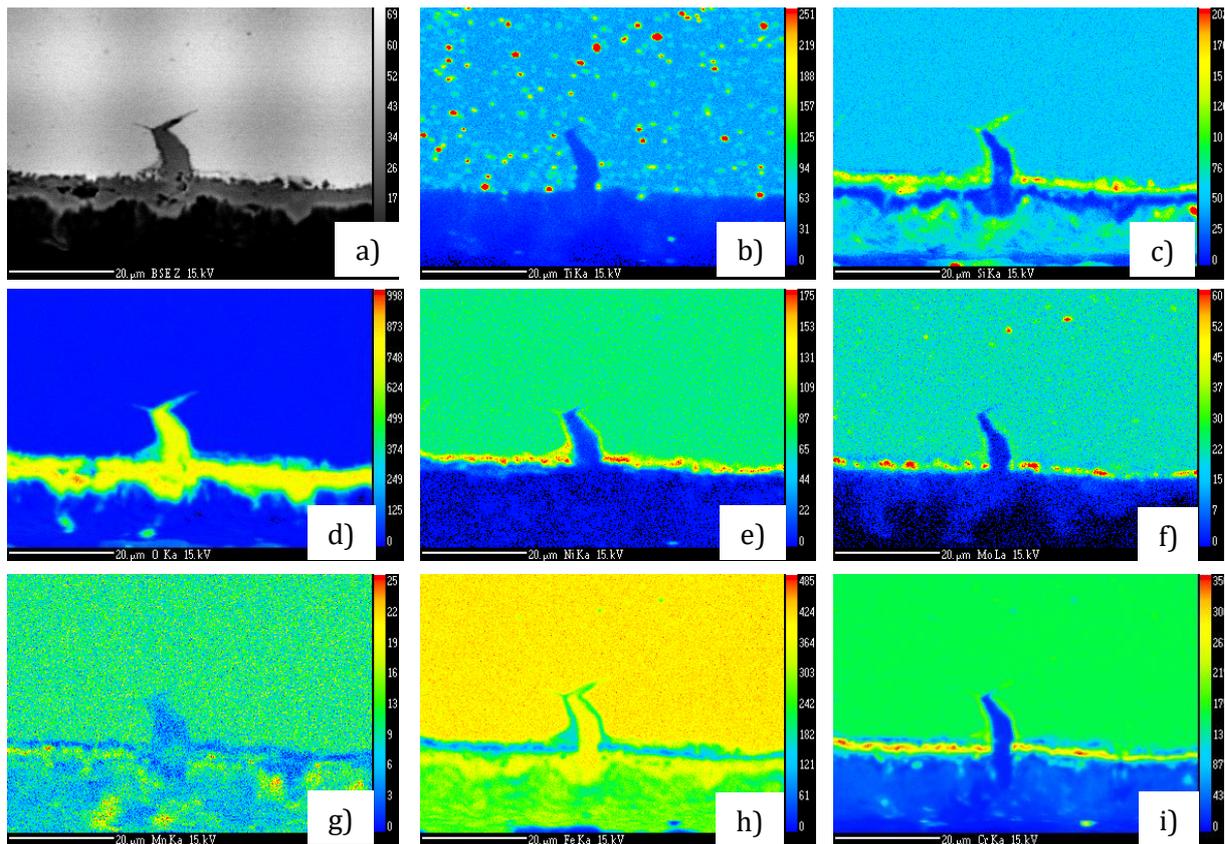


Figure 3.32 – a) Image BSE et cartographies associées réalisées à la microsonde de Castaing des éléments b) titane, c) silicium, d) l'oxygène, e) nickel, f) molybdène, g) manganèse, h) fer et i) chrome.

Essais réalisés à 750°C :

Les images prises au microscope optique des éprouvettes AIM1-GRE-750-175-FLU6 et AIM1-SAC-750-200-BS1 sont présentées respectivement sur la Figure 3.33 a et b.

L'éprouvette AIM1-GRE-750-175-FLU6 possède quelques fissures peu profondes et quelques cavités ayant donné lieu à de l'endommagement ductile. Les fissures semblent liées à la striction et sont apparues soit au cours de la striction, soit en fin de stade tertiaire. Ces fissures sont néanmoins très oxydées ce qui indique une exposition prolongée au contact de l'air. Ces observations sont cohérentes avec la courbe de fluage de l'éprouvette AIM1-GRE-750-175-FLU6, qui montre un stade tertiaire très long et progressif.

Concernant l'éprouvette avec bouchons soudés AIM1-SAC-750-200-BS1, la face externe de l'éprouvette ne possède quasiment pas de fissures. En revanche, la face interne du tube contient de multiples fissures ouvertes et très profondes (entre 67 μm et 147 μm), localisées au niveau de

la surface de rupture. La profondeur des fissures correspond à près de 20% de l'épaisseur initiale de la gaine. De plus, ces fissures sont plus nombreuses près de la zone de rupture, ce qui indique qu'elles sont probablement liées au processus de localisation de la déformation et de l'endommagement dans le stade tertiaire.

Des cartographies MEB/EBSD d'une fissure de l'éprouvette AIM1-SAC-750-200-BS1 sont présentées sur la **Figure 3.34**. Cette éprouvette a été choisie car elle contient le plus de zones fissurées avec des fissures très profondes.

La cartographie GOS (**Figure 3.34 b**) montre que la fissure traverse des grains très déformés dont certains contiennent des macles d'écroissage. Par ailleurs, ces macles semblent relativement inertes en fluage. Néanmoins, l'évolution des macles lors des essais de fluage mériterait d'être davantage étudiée de manière plus approfondie. Aucune recristallisation n'a été observée.

La cartographie IPF (**Figure 3.34 c**) permet de confirmer la propagation intergranulaire des fissurations de surface. Les multiples fissures présentes dans la cartographie IPF séparent systématiquement deux grains différents. Par ailleurs les grains adjacents aux fissures admettent des gradients de couleur sur une zone proche des fissures. Cela suggère une déformation élevée dans ces régions, sans pour autant provoquer une restauration de type réorganisation des dislocations en sous grains.

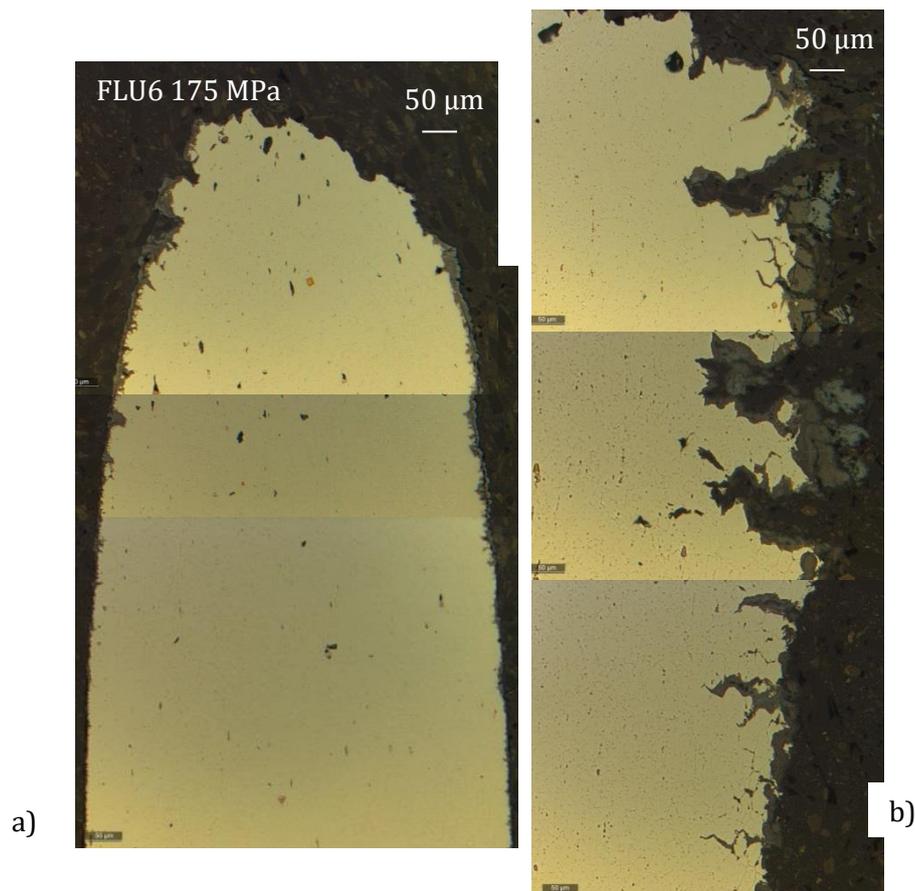


Figure 3.33 – Photographies prises au microscope optique des coupes des éprouvettes testées à 750°C a) sous 175 MPa (AIM1-GRE-750-175FLU6) et b) sous 200 MPa (AIM1-SAC-750-200-BS1).

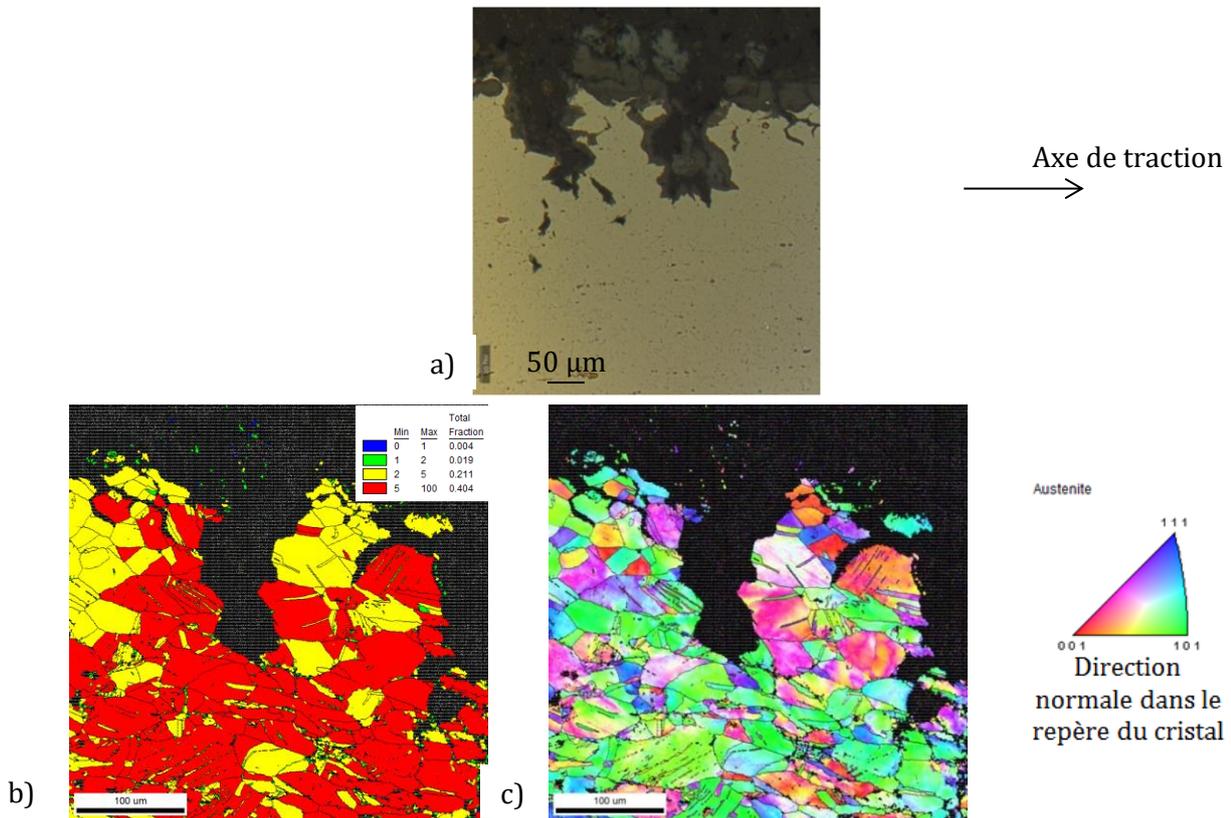


Figure 3.34 – a) Image prise au microscope optique d'une fissure de l'éprouvette AIM1-SAC-750-200-BS1 et cartographies associées b) GOS et c) IPF.

Les photographies prises au microscope optique des coupes longitudinales des éprouvettes AIM1-SAC-750-230-T3 et AIM1-GRE-750-230-FLU4 sont présentées sur les **Figure 3.35** et **Figure 3.36**. Ces deux figures permettent de comparer les microstructures de deux éprouvettes ayant été testées à la même température et sous une contrainte de 230 MPa mais dans deux dispositifs différents.

La comparaison des deux coupes longitudinales met en évidence un cisaillement fort des éprouvettes proche de la zone de rupture. Pour l'éprouvette FLU4, la bande de cisaillement a mené à une rupture ductile en biseau. Tout proche de cette bande, une fissure semble elle aussi cisailée (fissure à droite sur l'image centrale de la **Figure 3.36**). Concernant l'éprouvette T3, on peut noter 2 bandes de cisaillement légèrement décalées (bandes (1) et (2)), menant à une réduction de section de 40% avec une déformation très localisée dans ces bandes. Ces bandes semblent connectées à des fissures qui pourraient les avoir déclenchées. La bande (3) a probablement déclenché la rupture en biseau.

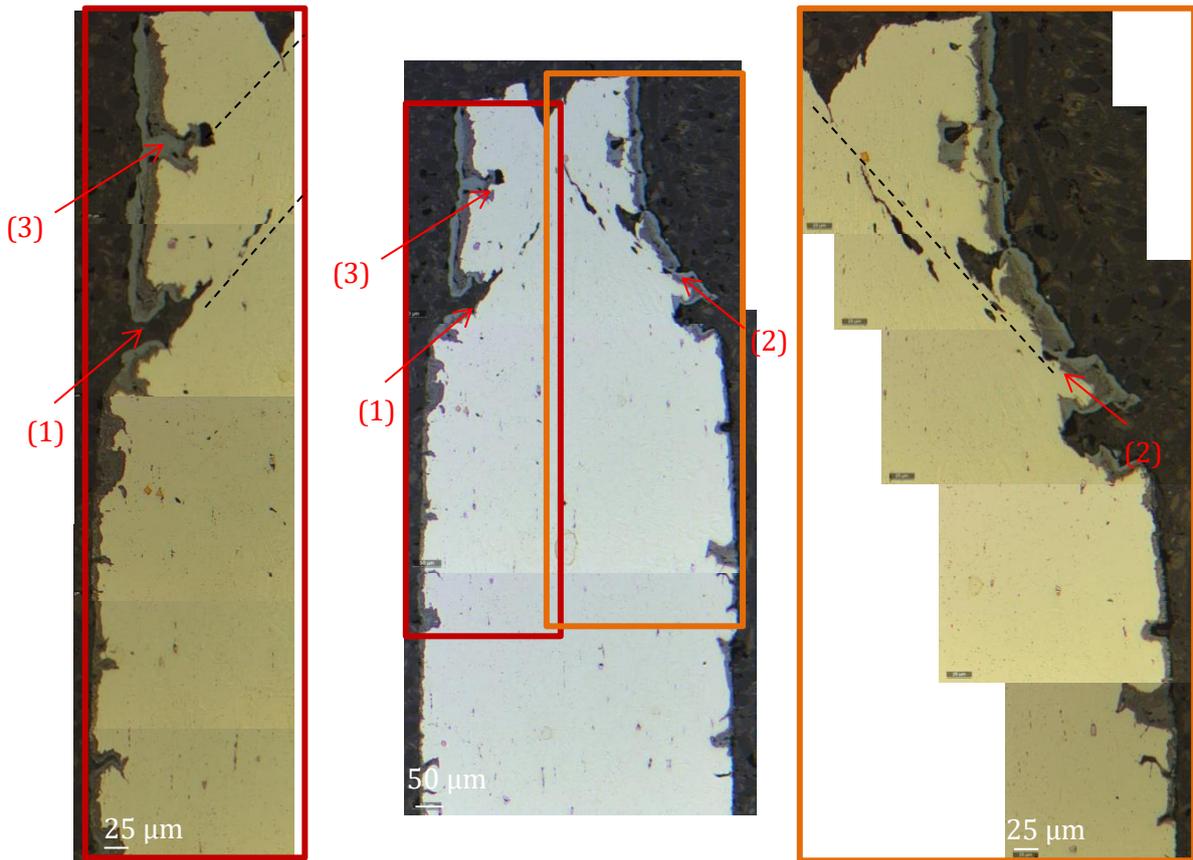


Figure 3.35 – Photographies prises au microscope optique de la coupe de l'éprouvette testée sous 230 MPa à 750°C (AIM1-SAC-750-230-T3). Les flèches rouges indiquent les bandes de cisaillement.

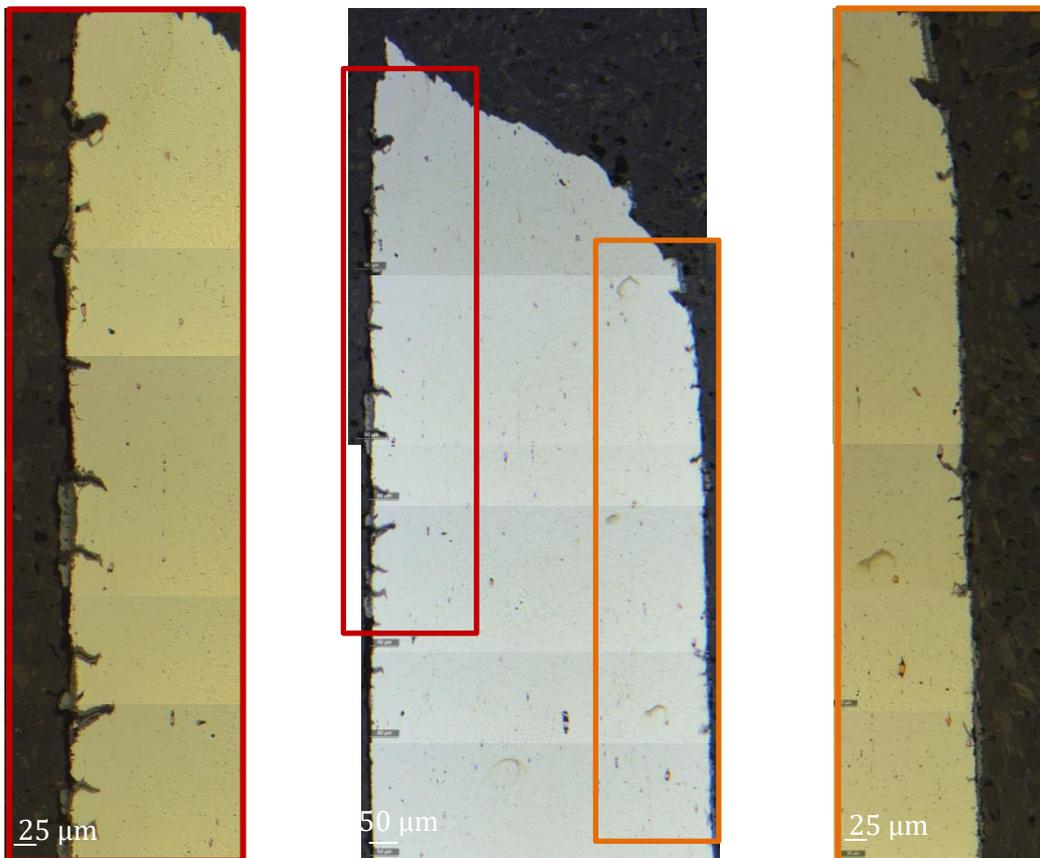


Figure 3.36 – Photographies prises au microscope optique de la coupe de l'éprouvette testée sous 230 MPa à 750°C (AIM1-GRE-750-230-FLU4).

L'éprouvette AIM1-SAC-750-230-T3 s'est davantage réduite en section que l'éprouvette AIM1-GRE-750-230-FLU4 (40% pour AIM1-SAC-750-230-T3 contre 20% pour AIM1-GRE-750-230-FLU4). Ces observations sont cohérentes avec l'allongement à rupture mesuré qui est plus élevé pour l'éprouvette AIM1-SAC-750-230-T3 (0,051 contre 0,033 pour l'éprouvette AIM1-GRE-750-230-FLU4). Les fissures sous la surface de rupture (en dehors de l'endommagement à 45°) sont néanmoins plus profondes pour l'éprouvette AIM1-SAC-750-230-T3 (profondeur moyenne de 30 μm) (Figure 3.37 a) que pour l'éprouvette AIM1-GRE-750-230-FLU4 (profondeur moyenne de 19 μm) (Figure 3.37 b). Ceci indique que la section est diminuée par la profondeur des fissures (qui ne supportent donc plus la charge). La section restante est ainsi plus élevée pour l'éprouvette AIM1-GRE-750-230-FLU4 que pour l'éprouvette AIM1-SAC-750-230-T3 (fissures plus petites pour AIM1-GRE-750-230-FLU4), la contrainte nette que subi l'éprouvette est, *a priori*, plus faible pour AIM1-GRE-750-230-FLU4 que pour AIM1-SAC-750-230-T3.

La profondeur des fissures en fonction de la distance de la surface de rupture est très dispersée. Toutefois, la profondeur des fissures a tendance à s'atténuer à partir de 1100 μm pour l'éprouvette AIM1-GRE-750-230-FLU4 et à partir de 2000 μm pour l'éprouvette AIM1-SAC-750-230-T3 (profondeur < 7 μm).

Néanmoins la densité de fissure est plus élevée pour l'éprouvette AIM1-GRE-750-230-FLU4, avec 0,016 fissures par μm , que pour l'éprouvette AIM1-SAC-750-230-T3 (0,009 fissures par μm). Pour l'éprouvette AIM1-SAC-750-230-T3, la répartition spatiale et la longueur des fissures sont plus irrégulières.

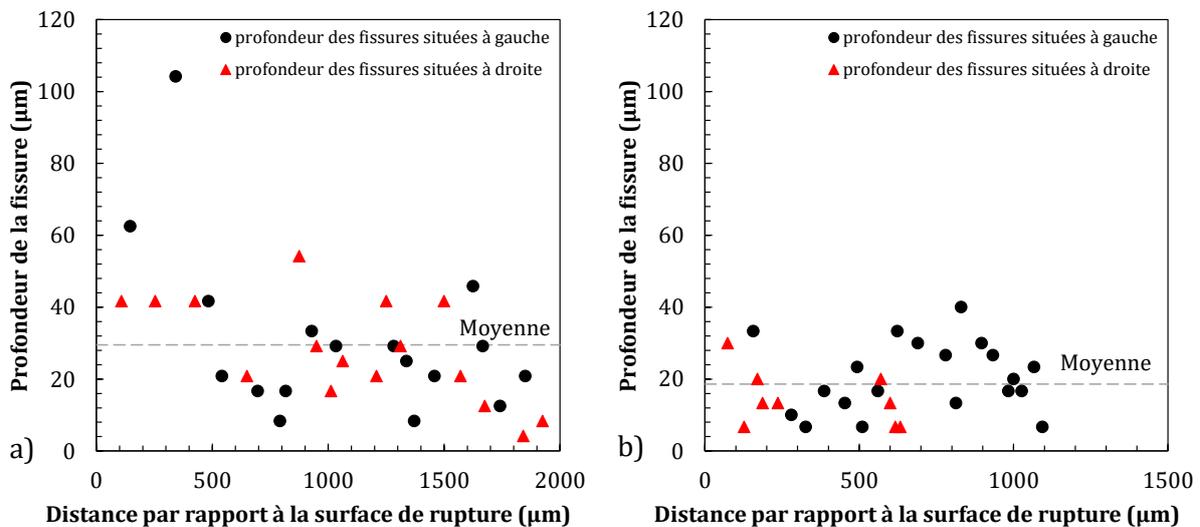


Figure 3.37 – Courbes représentant la profondeur des fissures en fonction de la distance par rapport à la surface de rupture pour l'éprouvette a) AIM1-SAC-750-230-T3 et b) AIM1-GRE-750-230-FLU4. Les symboles triangulaires correspondent aux fissures situées à droite des Figures 3.34 et 3.35, les symboles circulaires correspondent aux fissures situées à gauche des Figures 3.34 et 3.35.

L'accélération de la déformation (au moins pour les éprouvettes AIM1-SAC-750-230-T3 et AIM1-GRE-750-230-FLU4) peut intervenir par au moins 2 phénomènes qui sont :

- La diminution de la surface portante en augmentant la contrainte locale (due à la multi fissuration) ;
- Le déclenchement de bandes de localisation de la déformation participant au processus de rupture.

La modification de la microstructure au niveau des fissures intergranulaires pourrait également intervenir dans le processus de déformation via la diffusion d'éléments tels que l'oxygène et le chrome dans les joints de grains.

Une cartographie GOS a été réalisée entre les deux bandes de localisation de l'éprouvette AIM1-SAC-750-230-T3 (Figure 3.38). La localisation de la contrainte dans cette zone a permis d'initier une recristallisation dynamique sous la surface de rupture.

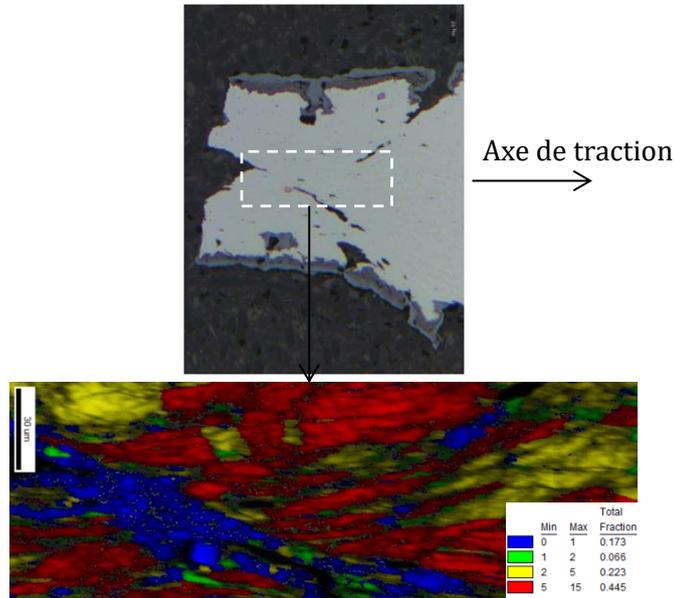


Figure 3.38 – Cartographie GOS de l'éprouvette AIM1-SAC-750-230-T3 située entre deux bandes de cisaillement sous la surface de rupture.

L'expertise des coupes longitudinales des éprouvettes testées à 650°C et 750°C montre un effet d'environnement significatif lié à la réalisation des essais sous air :

- Sur la rupture : malgré un mode de rupture à dominante fragile des bandes de localisation sont observées proche des fissures superficielles ;
- Sur le comportement global : des fissures sont visibles même loin de la zone de rupture, ce qui indique que la surface portante est diminuée au cours des essais de fluage. Pour une perte de surface de 5%, ce qui est le cas pour l'éprouvette AIM1-SAC-750-230-T3, la vitesse de déformation est multipliée par 1,5 (en prenant un coefficient de Norton égale à 7).

2.6. Conclusion concernant le comportement viscoplastique de l'AIM1

L'étude des propriétés mécaniques en fluage de l'AIM1 a permis de mettre en évidence une meilleure résistance à 650°C et 750°C par rapport aux tests réalisés auparavant sur des 15-15Ti précurseurs de ce matériau.

Par ailleurs, les résultats ont montré un très faible allongement en début de tertiaire ($<0,01$) et un très faible allongement à rupture qui ne dépasse que très rarement 0,10 (dernier point d'acquisition).

Le comportement à rupture est majoritairement transgranulaire ductile à cupules.

Néanmoins, des fissures partant de la surface des éprouvettes et se propageant intergranulairement ont été observées à l'aide de coupes longitudinales des éprouvettes après essais. Cette fissuration à l'air dans les joints de grains pourrait s'expliquer par :

- Une déformation de pré-écrouissage du matériau de référence près des joints de grains ;
- Le durcissement des grains dû à la précipitation des nano-carbures de titane, ce qui empêcherait la relaxation des contraintes internes près des joints de grains.

Les fissures observées sont accompagnées de deux couches d'oxydes créées par l'oxydation des éprouvettes au contact de l'air au cours des essais. La couche externe est enrichie en Fe et la couche interne en chrome. La migration du chrome pour former l'oxyde entraîne un enrichissement en nickel au niveau de l'interface métal/oxyde de chrome.

Il est important de pouvoir s'affranchir de cet environnement oxydant non représentatif des conditions de service.

Par ailleurs, un début de recristallisation dynamique sous la surface de rupture a été observé à 750°C (sous 230 MPa). Cette recristallisation est probablement due à une localisation des contraintes par la présence de bandes de cisaillement.

3. Conclusion du comportement viscoplastique d'un acier stabilisé à 650°C et 750°C

Les essais de fluage ont permis d'enrichir la base de données existante pour les aciers inoxydables stabilisés, et plus particulièrement pour l'AIM1. Les essais présentés dans cette thèse ont été réalisés sous air, ce qui est le cas pour la plupart des essais réalisés en fluage uniaxial dans la littérature.

L'AIM1 admet une meilleure résistance au fluage en termes de vitesse minimale de déformation par rapport à des aciers stabilisés 15-15Ti étudiés auparavant. Le coefficient de Norton n est très élevé et vaut 11 à 650°C et 7 à 750°C. Ce qui correspond à un mécanisme de fluage-dislocations. Ces résultats pourraient s'expliquer par une optimisation de la précipitation de carbures de titane ou par la présence de germes de phosphures dans l'AIM1, qui renforcerait la matrice grâce aux interactions précipités/dislocations.

En revanche, l'allongement à rupture de l'AIM1 est du même ordre de grandeur que celui des autres aciers stabilisés que l'on retrouve dans la littérature ($\sim 0,10$).

Le comportement à rupture de l'AIM1 est majoritairement transgranulaire ductile à cupules mais les surfaces de ruptures contiennent des zones à rupture intergranulaires en bord de faciès. Ces zones intergranulaires sont dues à la présence de fissures se propageant le long des joints de grains et créées par corrosion de l'acier lors des essais mécaniques réalisés à l'air. A ce jour, il est difficile de déterminer si la couche d'oxyde créée lors de telles conditions de sollicitation permet d'améliorer ou de détériorer les propriétés en fluage. D'autres essais sous vide seraient à réaliser afin de pouvoir répondre à cette interrogation.

Le chapitre suivant présente le comportement de l'AIM1 à plus haute température. Les essais ont été réalisés sous vide, ce qui permet de s'affranchir des effets d'environnements plus sensibles à haute température.

Chapitre IV

Etude du comportement en fluage uniaxial de l'AIM1 à 850°C et à 950°C

Sommaire

1. Etat de l'art : comportement mécanique des 15-15Ti au-dessus de 850°C.....	150
1.1. Comportement viscoplastique.....	150
1.2. Comportement à rupture.....	152
1.3. Conclusion sur le comportement en fluage à haute température.....	154
2. Présentation de l'essai de fluage sous vide à haute température	154
3. Résultats et discussion des essais à 850°C.....	159
3.1. Comportement macroscopique.....	159
3.2. Microstructure des éprouvettes après essai.....	165
3.3. Conclusion concernant le comportement en fluage à 850°C.....	168
4. Résultats et discussion des essais à 950°C.....	168
4.1. Comportement macroscopique et comparaison avec les essais à 850°C.....	168
4.2. Microstructure des éprouvettes après essai.....	176
4.2.1. Observations en zone déformée après les essais menés à rupture (hors striction).....	176
4.2.2. Observation des coupes en zone de rupture	182
4.3. Evolution de la microstructure de l'AIM1 de référence au cours d'un essai de fluage : essais interrompus à 950°C sous 40 MPa	186
4.4. Conclusion concernant le comportement en fluage à 950°C.....	192
5. Interactions entre évolution microstructurale et comportement viscoplastique à haute température.....	193
5.1. Relecture des courbes de fluage à la lumière de l'évolution microstructurale	193
5.2. Conclusion sur l'interaction entre l'évolution microstructurale et le comportement viscoplastique à haute température	194
6. Conclusion concernant le comportement en fluage de l'AIM1 à 850°C et à 950°C.....	195

Ce quatrième chapitre présente l'étude du comportement en fluage de l'AIM1 pour les températures de 850°C et de 950°C. Le comportement en fluage à haute température ($T \geq 850^\circ\text{C}$) est très différent de celui à 650°C et 750°C. C'est pourquoi ce chapitre s'intéresse particulièrement à la compréhension des mécanismes de déformation et de rupture pour ces températures. Les essais de fluage à ces températures ont été réalisés sous vide afin de limiter une oxydation sous air, qui est déjà présente à plus basse température ([Chapitre 3](#)). La première partie dresse l'état de l'art pour des aciers inoxydables austénitiques sollicités en fluage à très haute température ($> 800^\circ\text{C}$) sous traction uniaxiale ou par pression interne. La deuxième partie présente la machine de fluage sous vide et les essais réalisés. La troisième partie et la quatrième partie concernent l'étude du comportement en fluage respectivement à 850°C et 950°C respectivement. Dans la cinquième et dernière partie, les évolutions microstructurales ([Chapitre 2](#)) sont mises en relation avec le comportement viscoplastique à haute température.

1. Etat de l'art : comportement mécanique des 15-15Ti au-dessus de 850°C

1.1. Comportement viscoplastique

Les études du comportement en fluage de (Petersen, Schanz, et Leistikow 1988) sur un DIN 1.4970 ont été menées en sollicitation axiale et en pression interne entre 600°C et 1050°C sous différentes atmosphères. Il est intéressant de remarquer que les auteurs mentionnent la présence d'un stade tertiaire prononcé entre 950°C et 1000°C, sans pour autant déterminer les causes de ce phénomène.

La **Figure 4.4 a** présente des courbes de vitesse de déformation minimale en fonction de la contrainte tracées à partir des données obtenues par (Petersen, Schanz, et Leistikow 1988). Ces auteurs ont étudié ces matériaux dans le cadre des scénarii accidentels des Réacteurs à Eau Pressurisée (REP) avancés. Les essais de fluage uniaxiaux ont été réalisés sous vide secondaire. Le changement de pente entre 850°C et 950°C indique un changement de mécanisme en fluage, avec un coefficient de Norton égal à 9 à 850°C et un coefficient de 1,5 à 950°C. Cette baisse du coefficient reste significative, et pourrait être due à de la recristallisation statique ou dynamique à 950°C, qui permettrait aux dislocations d'être davantage mobiles. Cette présence de recristallisation n'a pas clairement été démontrée par les auteurs. Notons par ailleurs, qu'après 950°C, le coefficient n augmente de nouveau pour atteindre la valeur de 4 à 1050°C. Aucune caractérisation microstructurale n'est présentée dans l'article de (Petersen, Schanz, et Leistikow 1988) pour permettre d'expliquer cette diminution puis l'augmentation de la valeur de n .

(Van Witzenburg et Kwast 1973 ; Kwast 1979) indiquent un coefficient calculé de 4,6 pour des températures comprises entre 950°C et 1050°C. Les données ne sont pas disponibles pour pouvoir tracer les courbes de Norton correspondantes. Ces résultats suggèrent que le mécanisme de déformation principal pour ces températures est régi par le fluage-dislocations. L'énergie d'activation en fluage déterminée par les auteurs est de 418 kJ/mol entre 950°C et 1050°C. Cette énergie est supérieure à celle de la diffusion du fer dans l'austénite (270 kJ/mol (Frost et Ashby 1982)). D'après (Van Witzenburg et Kwast 1973) la valeur élevée de cette énergie d'activation pourrait être due à des effets rendant la mobilité des dislocations difficile comme :

- Les éléments en solution solide pouvant retarder la diffusion des lacunes ;
- Les atomes en solution solide limitant la montée des dislocations ;
- Les précipités épinglant les dislocations.

Une EDE basse pourrait également rendre le glissement dévié difficile et donc augmenter l'énergie d'activation.

(Van Witzenburg et Kwast 1973) ont également montré à l'aide d'expertises métallographiques que l'acier DIN 1.4970 résiste au glissement des joints de grains en fluage grâce à la présence de bore dans l'alliage³⁸ (par comparaison avec un alliage 1.4988³⁹ sans bore stabilisé au niobium). L'acier 1.4988 admet en effet des fissures (endommagement intergranulaire) dont l'orientation

³⁸ Acier de composition : 0.10C-1.66Mn-0.60Si-0.008S-0.009P-14.4Cr-15.1Ni-1.24Mo-0.006N-0.009B.

³⁹ Acier de composition : 0.065C-1.18Mn-0.50Si-0.005S-0.008P-15.92Cr-12.95Ni-1.36Mo-0.85Nb-0.016Co-0.0071N.

et la densité indiquent que le glissement des joints est important dans cet acier contrairement au DIN 1.4970. La teneur en bore est plus élevée dans l'acier DIN 1.4970 (0,009% massique) par rapport à l'AIM1 (0,0061% massique).

La **Figure 4.4 b** présente l'évolution de l'allongement total en fonction du temps à rupture entre 600°C et 1050°C. En dessous de 850°C, l'allongement à rupture est indépendant du temps à rupture et vaut entre 0,10 et 0,20. Au-delà de 900°C, l'allongement à rupture dépend fortement du temps à rupture. Il est soit inférieur à 0,30 soit supérieur à 0,60. Ce résultat pourrait s'expliquer par de la recristallisation pour ces températures. A titre d'exemple, à 950°C, l'allongement à rupture vaut environ 0,20 au bout d'une heure, et environ 0,70 au bout de 8 h d'essai. La ductilité augmente globalement avec le temps à rupture. Ce résultat pourrait indiquer un changement microstructural important pour ces températures. Ces fortes variations d'allongement n'ont pas été observées sur les éprouvettes testées aux basses températures (**Chapitre 3**).

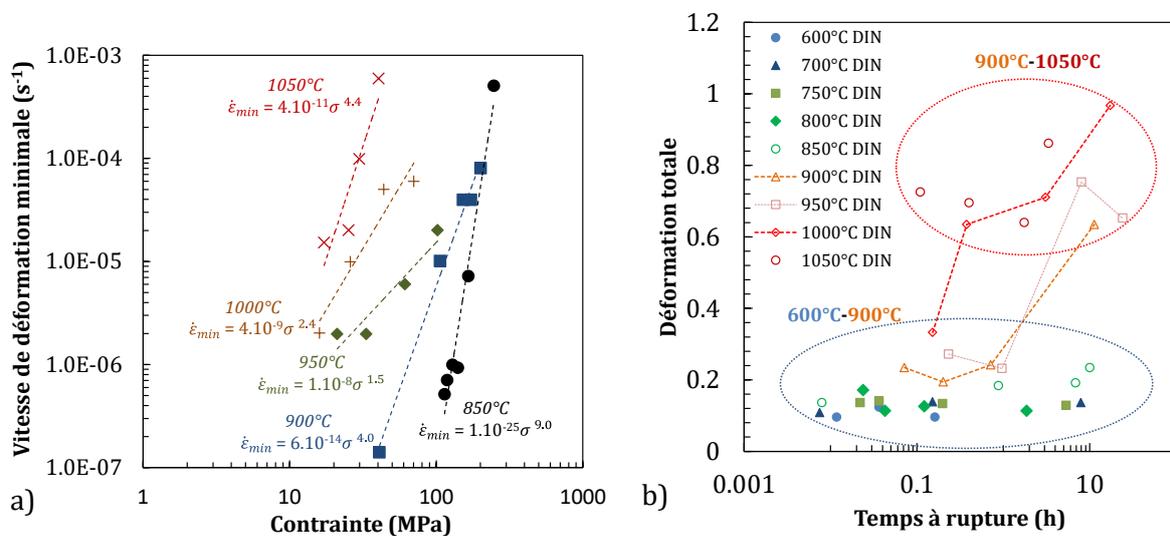


Figure 4.4 – a) Courbes représentant la vitesse minimale de déformation en fonction de la contrainte de fluage et b) déformation totale en fonction du temps à rupture entre 600°C et 1050°C (Petersen, Schanz, et Leistikow 1988).

(Mandal, Mishra, et al. 2008) ont mis en évidence la présence de recristallisation dynamique à 1000°C lors d'essais de compression sur un acier de type D9⁴⁰, pour une vitesse de déformation de 0,2 s⁻¹ et des déformations comprises entre 0,1 et 0,5. Cette recristallisation est caractérisée par la présence de petits grains équiaxes autour des grains encore écrouis et regroupés en structure de type « collier ». (Mandal, Bhaduri, et Sarma 2012) ont également mis en évidence la présence de cette structure sur un acier D9 déformé en compression à 900°C avec une déformation vraie de 0,8 et des vitesses de déformation de 0,1 s⁻¹ (**Figure 4.5 a**) et de 1 s⁻¹ (**Figure 4.5 b**). Notons que l'effet de la vitesse de déformation sur la taille de grains est important (plus la vitesse de déformation est élevée et plus la taille de grains est faible).

⁴⁰ Acier de composition : 0.052C-1.509Mn-0.505Si-0.002S-0.011P-15.051Cr-15.068Ni-2.248Mo-0.21Ti-0.001B-0.01Co-0.006N.

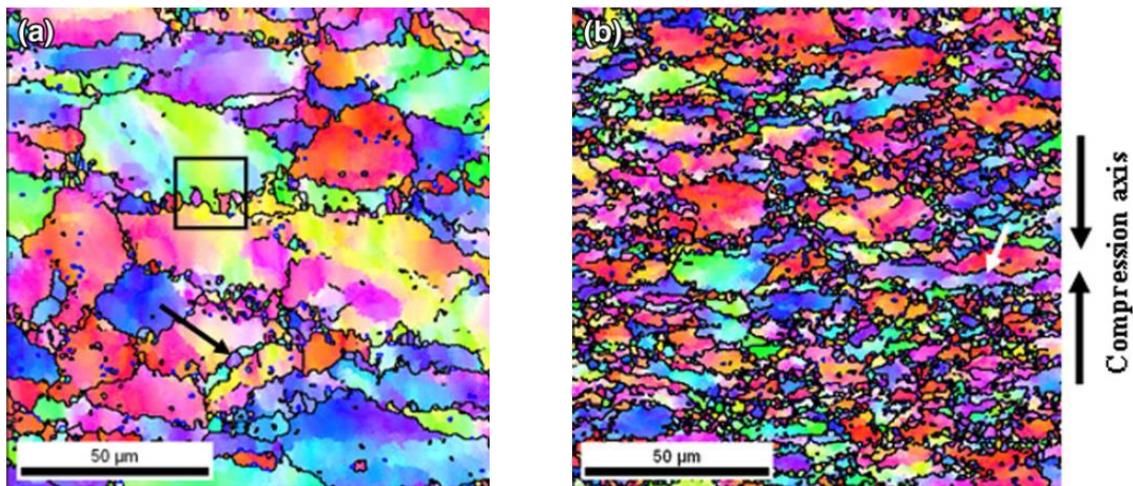


Figure 4.5 – Microstructure en collier d'un acier D9 testé en compression à 900°C avec une déformation de 0,8 et une vitesse de déformation de a) 0,1 et b) de 1 s⁻¹, d'après (Mandal, Bhaduri, et Sarma 2012)

(Sarkar et al. 2013) ont également réalisé des tests de compression sur un acier D9 entre 900°C et 1200°C. La présence d'une contrainte seuil indique la présence de recristallisation dynamique pour ces températures et des vitesses de déformation comprises entre 0,002 s⁻¹ et 0,2 s⁻¹.

Le comportement viscoplastique d'aciers de type 15-15Ti change brutalement autour de 900°C, comme peuvent le montrer les courbes de Norton et l'augmentation conséquente de la ductilité. Ces changements significatifs pourraient s'expliquer par la disparition ou l'affaiblissement d'obstacles forts (nano-précipités) et l'apparition de recristallisation statique ou dynamique.

1.2. Comportement à rupture

La Figure 4.6 a présente l'évolution de la déformation circonférentielle après essais par pression interne sous argon en fonction du temps à rupture et de la température (Petersen, Schanz, et Leistikow 1988)⁴¹. La déformation a été mesurée après éclatement donc après propagation de la fissure d'éclatement, non après le seul ballonnement. La fissuration se déroule donc sous une pression qui diminue, rendant l'analyse mécanique assez complexe. Les essais ont été réalisés avec une pression interne de 10 à 100 bar (soit 12,6 à 126 MPa) et leur durée est comprise entre 1 min et 1 h. Un seul essai semble avoir été réalisé par condition.

La déformation à rupture augmente de 0,25 à 0,60 avec l'augmentation du temps à rupture à 950°C. Cette tendance se démarque par rapport aux plus hautes températures. Pour les températures de 1000°C et 1050°C peu d'évolution de la déformation circonférentielle est constatée (elle reste autour de 0,60). Entre 1100°C et 1200°C, la déformation diminue continuellement en fonction du temps à rupture (de 0,70 à 0,40 à 1100°C et de 0,40 à 0,20 à 1200°C). Les essais réalisés sous vapeur montrent des évolutions similaires (Figure 4.6 b). Globalement, la déformation circonférentielle est comprise entre 0,20 et 0,60 en vapeur. La déformation circonférentielle élevée pourrait s'expliquer par le fort allongement de ce type de matériau dans cette gamme de température (Petersen, Schanz, et Leistikow 1988) (partie 1.2) mais elle fait intervenir à la fois le ballonnement proprement dit (instabilité viscoplastique) et

⁴¹ Essais par pression interne réalisés sur un acier DIN 1.4970 (tube) préalablement hypere trempé à 1085°C pendant 5 min, recuit à 800°C pendant 2 h, et écroui à froid à 18,3% (HV₃₀ compris entre 210 et 296).

l'éclatement (amorçage et propagation de fissure couplée à la dépressurisation), ce qui rend les données difficiles à interpréter en termes de ductilité proprement dite (déformation à l'amorçage d'une fissure).

Notons que la déformation circonférentielle à rupture est moins élevée sous vapeur que sous argon. Ce phénomène peut s'expliquer par une localisation de la déformation à la suite de craquelures de l'oxyde créé sous environnement vapeur. Toutefois la grande ductilité de ce matériau fait qu'il se déforme autant que le Zircaloy-4 en cas de perte de réfrigérant primaire (contexte REP). La réalisation d'essais par pression interne sur matériau irradié serait intéressante, puisque la ductilité diminue classiquement avec l'irradiation. Néanmoins, la recristallisation pourrait recuire complètement les défauts d'irradiation.

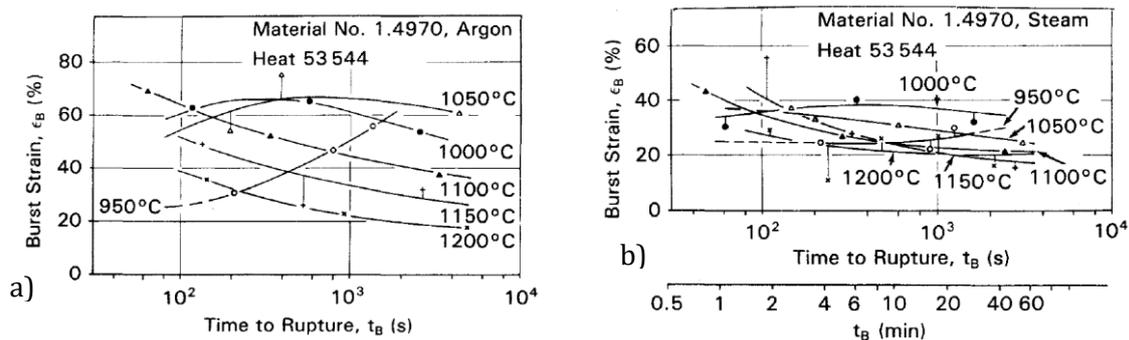


Figure 4.6 - a) Déformation circonférentielle à l'éclatement sous argon et b) déformation circonférentielle à l'éclatement sous vapeur en fonction du temps à rupture pour des températures entre 950°C et 1200°C, d'après (Petersen, Schanz, et Leistikow 1988).

Les essais par pression interne réalisés par (Van Witzenburg et Kwast 1973)⁴² à 1000°C montrent une rupture brutale au-delà de 45 bar ($\sigma_{\theta} = 71$ MPa). Ce type de rupture des gaines augmentent les probabilités de propagation de la rupture au sein d'un assemblage sur les gaines adjacentes. A 850°C, aucune rupture brutale n'a été constatée en dessous de 80 bar ($\sigma_{\theta} = 126$ MPa).

Des essais par pression interne avec différentes pressions et différentes rampes de chauffage⁴³ ont été réalisés par (Kwast 1977). Les fissures intergranulaires apparaissent lorsque la température atteinte est suffisante pour permettre la croissance des grains ($1240^{\circ}\text{C} \leq T$) et que les vitesses de déformation sont faibles. Néanmoins, les ruptures ductiles sont majoritaires pour les températures en dessous d'un domaine de recristallisation rapide ($T \leq 1160^{\circ}\text{C}$).

⁴² Essais réalisés sur un acier DIN 1.4970 de type 15-15Ti.

⁴³ Les rampes de chauffage sont comprises entre 27 et 110°C/s et les pressions entre 29 et 118 bar (σ_{θ} compris entre 46 et 186 MPa).

1.3. Conclusion sur le comportement en fluage à haute température

Le comportement en fluage à haute température montre des tendances différentes par rapport aux basses températures (**Chapitre 3**) :

- Un coefficient de Norton n de 9 à 850°C et de 1,5 à 4 à 950°C, fortement variable avec les conditions d'essai et notamment la température à partir de 850°C ;
- Un allongement à rupture plus élevé pour des temps à rupture élevés (entre 0,20 et 0,70) en particulier vers 950°C.

Le coefficient de Norton à 850°C reste encore élevé et peut être attribué à une contrainte interne liée à une population de nano-précipités encore bien présente à cette température (**Chapitre 2**), ceux-ci sont donc encore efficaces pour ralentir les dislocations dans leur mouvement. Le coefficient de Norton à 950°C admet une valeur assez classique en fluage. Ceci peut être expliqué par des précipités plus grossiers dont l'interaction avec les dislocations est moins significative. L'étude de Petersen relève cependant un coefficient proche de 1 et mentionne, sans autre précision, la recristallisation.

L'allongement à rupture élevé pourrait être attribué à une restauration voire une recristallisation importante pour ces températures.

Aucune information concernant simultanément l'allure des courbes de fluage, la réduction de diamètre, l'épaisseur à rupture et l'évolution microstructurale au cours d'essais de fluage réalisés à des températures entre 850 et 1000°C n'est disponible à ce jour sur des aciers de type 15-15Ti. Ce chapitre vise notamment à combler cette lacune de la littérature ouverte pour les températures de 850°C et 950°C, domaine où les changements de comportement sont les plus radicaux.

2. Présentation de l'essai de fluage sous vide à haute température

Les essais à haute température présentés dans ce chapitre ont été réalisés au Centre des Matériaux.

Les essais sont réalisés sous vide secondaire (1.10^{-4} mbar). Un schéma de la machine de fluage sous vide est présenté sur la **Figure 4.7**. Le dispositif est constitué d'une cellule de force de 2 kN (en série sur la ligne d'amarrage supérieure), refroidie à l'aide d'une boîte à eau afin d'éviter une dérive du signal liée à un éventuel échauffement de la cellule lors des essais à chaud. L'éprouvette est fixée sur les lignes d'amarrage supérieure et inférieure par des olives fendues et des écrous. La partie utile de l'éprouvette est située à l'intérieur d'un four une zone équipé de quatre lampes halogènes. Cette configuration du four ne permet de contrôler qu'une seule zone de chauffe entraînant un gradient axial de température non négligeable sur l'éprouvette (sur lequel nous reviendrons dans la suite de cette section).

Les essais sont pilotés sous charge constante à l'aide d'un moteur entraînant la ligne d'amarrage inférieure pour que l'éprouvette soit sollicitée en traction.

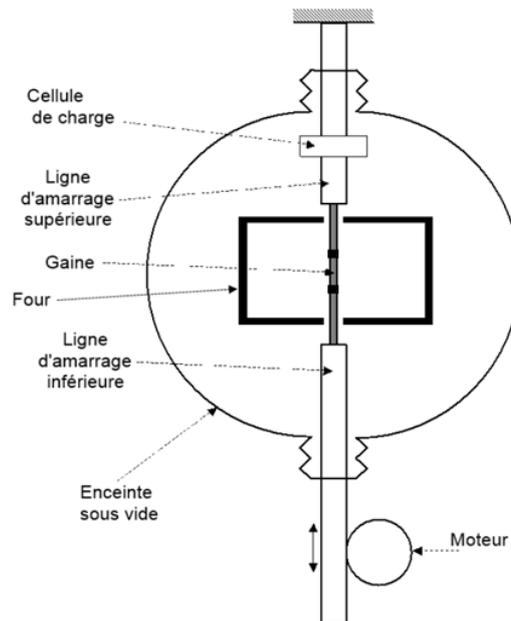


Figure 4.7 – Schéma de la machine de fluage sous vide, d'après (Chosson 2014).

Le cycle thermique imposé lors des essais de fluage à haute température est présenté sur la Figure 4.8. Le chauffage est décomposé en deux étapes, une rapide à 300°C/min, et l'autre plus lente (20°C/min) permettant d'éviter un dépassement trop important de la consigne. Il s'agit des mêmes conditions que celles utilisées pour les recuits thermiques présentés dans le Chapitre 2. Une fois que la température souhaitée est atteinte, un palier en température de 5 min pour les essais à 850°C et de 1 min pour les essais à 950°C est réalisé avant l'application de la charge. Ce maintien en température permet de stabiliser la température vue par l'éprouvette en faisant varier le moins possible la microstructure avant l'essai proprement dit. Ces temps ont été choisis suite aux résultats obtenus dans le Chapitre 2. En effet, la chute de dureté à 950°C intervient dès les premières minutes. A 850°C, la cinétique d'adoucissement est moins rapide avec une diminution visible de dureté à partir de 1 h de maintien.

La vitesse de mise en charge des essais est entre 1 à 3 MPa.s⁻¹ (pilotage manuel de la vitesse).

La plupart des essais présentés dans les parties 3 et 4 de ce chapitre ont été menés jusqu'à rupture des éprouvettes.

Des essais interrompus ont également été réalisés (partie 4.3) afin de déterminer les évolutions microstructurales au cours d'un essai de fluage sous 40 MPa. Pour interrompre ces essais, la charge a été diminuée à une valeur proche de 0 N, puis le four a été coupé. L'éprouvette a été refroidie sous contrôle de charge afin d'accompagner sa contraction thermique pour éviter toute déformation supplémentaire.

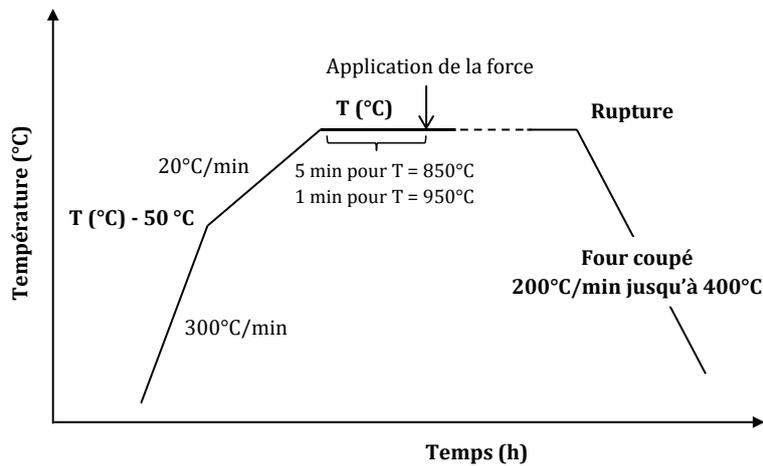


Figure 4.8 – Schéma du cycle thermique réalisé pour les essais de fluage à haute température.

Les 14 premiers essais ont été réalisés à 850°C et 950°C sur tubes entiers. Les ruptures des éprouvettes tubulaires intervenaient systématiquement au niveau du point chaud du four avec une température entre 20 et 30 °C au-dessus de la température de régulation (situé entre 3 et 4 cm en-dessous de la zone utile). Ce point chaud est situé hors du champ de mesure de déformation, ce qui ne permettait pas la mesure de déformation dans le stade tertiaire. Afin de pallier à ce problème, un usinage des gaines avec une géométrie de type bijambe a été choisi, permettant ainsi une déformation et une rupture localisées dans la même zone utile. Par conséquent, seuls les essais réalisés sur les éprouvettes bijambes seront présentés dans ce chapitre.

Les plans, le schéma et une photo de l'éprouvette sont présentés sur la Figure 4.9 a, b et c.

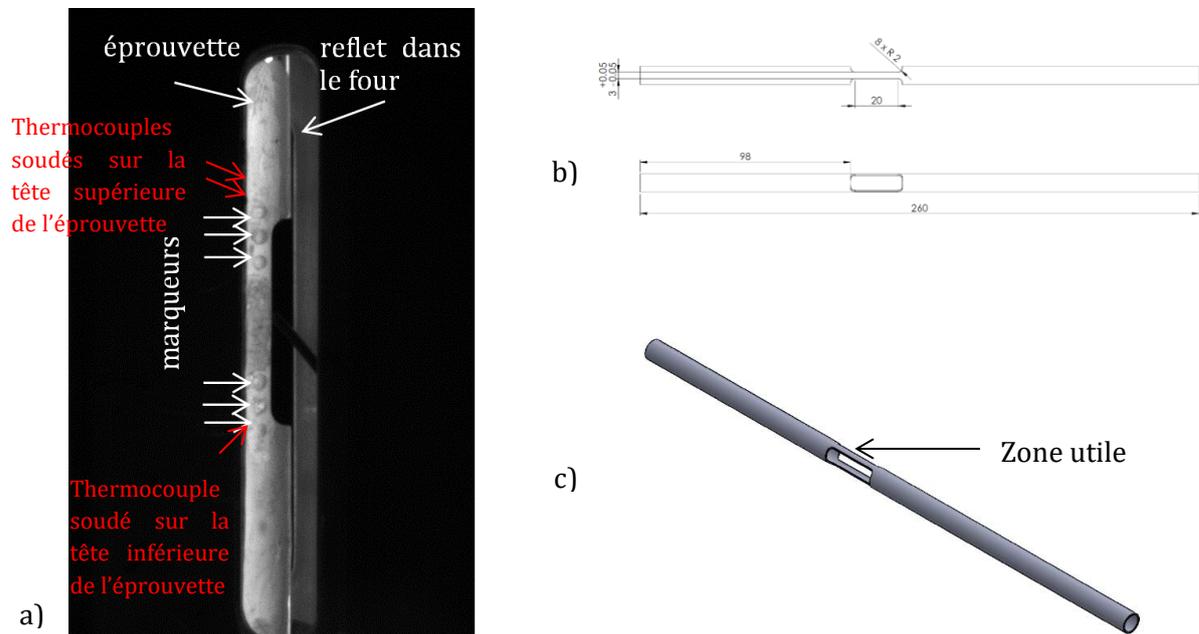


Figure 4.9 – a) Image d'une éprouvette bijambe avant essai de fluage (les flèches blanches indiquent les marqueurs utilisés pour la mesure de l'allongement, les flèches rouges indiquent la position des thermocouples cachés par la fente du four), b) plan de l'éprouvette de fluage et c) schéma de l'éprouvette.

Le suivi de la température est réalisé à l'aide de trois thermocouples de type S (Pt/Pt-10%Rh) :

- Le thermocouple de régulation, relié à la boucle d'asservissement thermique Eurotherm de la machine, permet de suivre le transitoire thermique programmé par l'utilisateur et de réguler la puissance du four en conséquence. Il est soudé au niveau de l'épaulement en haut de l'éprouvette de type bijambe (cf. [Figure 4.9](#)) ;
- Le thermocouple de contrôle positionné à quelques millimètres (selon le plan (r,θ) du tube) du thermocouple de régulation permet de vérifier la température dans cette zone tout au long de l'essai et de détecter un éventuel dessoudage dudit thermocouple de régulation ;
- Le thermocouple de contrôle soudé sur l'extrémité basse de la bijambe permet d'estimer le gradient le long de la zone utile. Les températures mesurées par ce thermocouple sont généralement d'une dizaine de degrés en dessous de la température de régulation. Cela pourrait s'expliquer du fait que le gradient n'est pas parfaitement linéaire le long de l'éprouvette (26 cm), d'où l'existence d'un point froid local. On suppose néanmoins que ce gradient est linéaire le long de la zone utile (3 cm). Par ailleurs, le thermocouple est soudé dans la zone basse (zone mobile au cours de la sollicitation de traction), ce qui implique un déplacement de quelques millimètres au cours de certains essais de fait de la ductilité de l'éprouvette (ce qui pourrait expliquer une diminution de la température lue par le thermocouple de contrôle au cours de certains essais).

L'Eurotherm est asservi à la cellule de force, ce qui permet une coupure du four immédiatement après rupture.

La mesure des déformations sur les éprouvettes bijambes a été réalisée par corrélation d'images numériques. Elle consiste à suivre le déplacement de deux marqueurs dans le but d'obtenir l'allongement de l'éprouvette en fonction du temps lors des essais de fluage⁴⁴. Pour la réalisation des marqueurs, une colle céramique a été utilisée, permettant une tenue à haute température. Ce marquage permet notamment l'obtention d'un aspect bombé permettant d'améliorer le contraste pour la mesure des déformations, [Figure 4.9 a](#). La résolution de la caméra est de 4 MégaPixels avec un objectif de x50 ou x75 (en fonction des disponibilités des objectifs). La photographie illustrant le dispositif de prise d'images est présentée sur la [Figure 4.10](#).

⁴⁴ Le logiciel Ariane permettant le suivi de deux ou plusieurs marqueurs et le dépouillement des essais de fluage a été développé au Centre des Matériaux par Jean-Christophe Teissède.



Figure 4.10 – Photo du dispositif permettant l'acquisition d'images pour la corrélation d'images.

Les essais sur bijambes ont été réalisés avec les conditions suivantes :

- Une température de 850°C et des contraintes comprises entre 120 MPa et 160 MPa (1) (essais nommés « *température(°C)_contrainte(MPa)_Enuméro de l'essai* », soit 850_120_E1 pour le premier essai réalisé à 850°C sous 120 MPa) ;
- Une température de 950°C et des contraintes comprises entre 40 MPa et 100 MPa (2) (essais nommés « *température(°C)_contrainte(MPa)_Enuméro de l'essai* », soit 950_40_E1 pour l'essai n°1 réalisé à 950°C sous 40 MPa);
- Deux essais à 950°C sous 40 MPa dont l'éprouvette a respectivement été pré-traitée thermiquement à 1140°C pendant 2 min (3) et pour le deuxième, pré-traitée thermiquement à 1000°C pendant 1 h (4) (essais nommés « *température(°C)_contrainte(MPa)_température de pré-traitement(°C)_temps de traitement* », soit 950_40_1140_2min pour une éprouvette pré-traitée à 1140°C pendant deux minutes avant essai réalisé à 950°C sous 40 MPa).

Notons que la contrainte maximale appliquée à 850°C et 950°C est inférieure au $R_{p0,2}$ obtenu sur un 15-15Ti (sans ajout de phosphore) pour ces températures (d'après (Petersen, Schanz, et Leistikow 1988)). La vitesse de mise en charge dans l'étude de (Petersen, Schanz, et Leistikow 1988) est cependant 10 fois supérieure (environ 36 MPa.s⁻¹) à la mise en charge des essais de fluage (entre 1 et 3 MPa.s⁻¹) à 850°C. La vitesse de chargement est plus lente que celle de (Petersen, Schanz, et Leistikow 1988) ce qui indique que la limite d'élasticité aurait pu être dépassée lors de la charge. Nous avons à notre disposition un essai de traction réalisé avec la même vitesse de mise en charge que celle des essais de fluage (entre 1 et 3 MPa.s⁻¹). L'essai de traction permet de conclure que la limite d'élasticité est du même ordre de grandeur (entre 220 MPa et 240 MPa à 0,2% de déformation) que celle déterminée par (Petersen, Schanz, et Leistikow 1988), ce qui indique que la limite d'élasticité n'a pas été dépassée pour les essais de fluage, et ce malgré cette différence de vitesse de chargement.

Les essais de type (1) et (2) ont été réalisés sur l'AIM1 de référence. Pour les deux essais (3) et (4) les éprouvettes ont été traitées thermiquement sur la machine de fluage puis refroidies à la température de l'essai de fluage dans le but :

- D'étudier le comportement viscoplastique d'un état hyperefflué pour déterminer l'influence d'un état 100% recristallisé et d'une dissolution complète des carbures secondaires sur les propriétés mécaniques en fluage (essai (3)). Le matériau est ainsi recristallisé et sans précipité secondaire (matrice sursaturée en éléments en solution solide) en début d'essai ;

- D'étudier le comportement du matériau recristallisé mais contenant encore des précipités secondaires d'environ 30 nm en début d'essai (essai (4)).

3. Résultats et discussion des essais à 850°C

3.1. Comportement macroscopique

Comportement viscoplastique :

Pour la température de 850°C, une grande dispersion des résultats à la contrainte particulière de 120 MPa a été constatée pour les six essais réalisés sur la géométrie de type bijambe (Figure 4.11 a). Les trois premiers essais ont été volontairement écartés car ces derniers présentent des comportements viscoplastiques similaires entre eux, mais leurs temps à rupture étaient bien plus courts ($2 \text{ h} \leq t_r \leq 3,5 \text{ h}$) par rapport aux essais 850_120_E4, 850_120_E5 ($t_r = 7,7 \text{ h}$) et 850_120_E6 ($t_r = 9,5 \text{ h}$). De plus, pour au moins un des trois essais écartés (essai 1), l'éprouvette a subi une température bien supérieure à 850°C ($T = 850 + 25^\circ\text{C}$), comme le témoigne le suivi de température (Figure 4.11 b). Pour les essais 4 à 6, le suivi de température ne montre pas d'anomalie. Seuls les essais 850_120_E(4 à 6) ont donc été conservés.

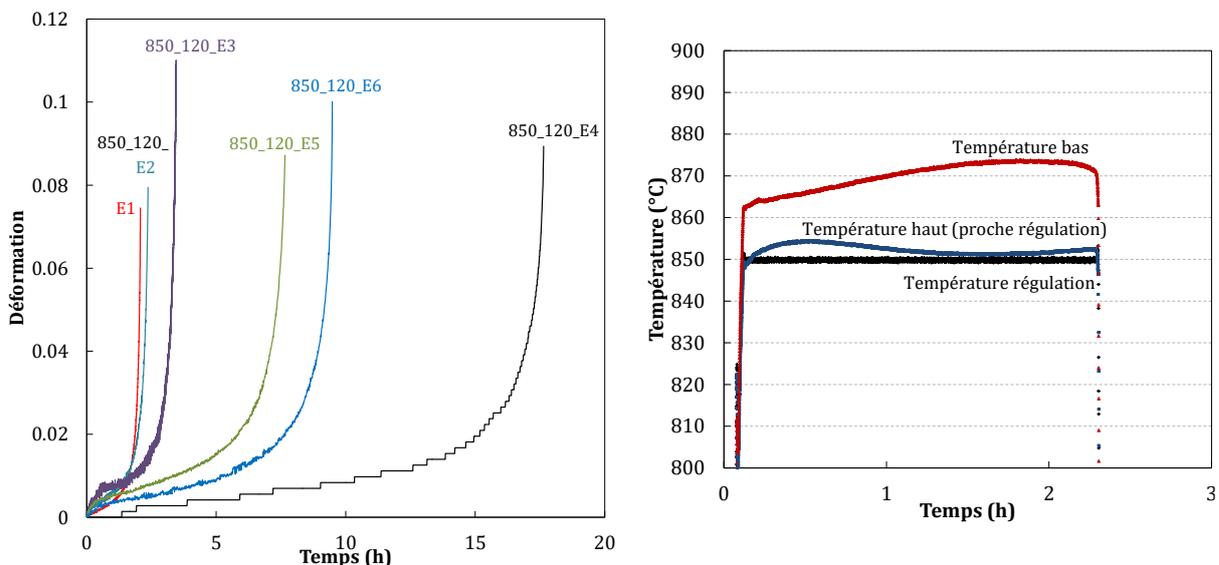


Figure 4.11 - a) Courbes de fluage uniaxial pour les essais réalisés à 850°C sous 120 MPa et b) suivi de température lors de l'essai 850_120_E1.

Une synthèse des valeurs caractéristiques en fluage à 850°C sur les essais conservés est présentée dans le Tableau 4.2. L'origine de la dispersion à 120 MPa en temps à rupture et en vitesse de déformation ne peut pas être expliquée par un gradient de température sur les éprouvettes (les valeurs de température mesurées par les thermocouples sont conformes, pour les essais 4 à 6). L'hétérogénéité du matériau de référence (Chapitre 1) pourrait avoir un effet sur les propriétés mécaniques. Au regard de ces résultats, les essais aux autres contraintes de 140 MPa et 160 MPa ont été doublés et sont reproductibles en termes de vitesses de déformation minimales et de temps à rupture.

Essais	Contrainte (MPa)	$\dot{\epsilon}_{\min}$ (h ⁻¹)	t _r (h)	Allongement total ⁴⁵	Intervalle de température (°C) T _{min} -T _{max} ⁴⁶
850_120_E4	120	6,6.10 ⁻⁴	17	0,090	844 – 850
850_120_E5	120	2,1.10 ⁻³	7,7	0,079	840 – 851
850_120_E6	120	1,3.10 ⁻³	9,5	0,100	831 – 851
850_140_E1	140	1,9.10 ⁻³	6,3	0,070	839 – 851
850_140_E2	140	2,0.10 ⁻³	5,1	0,092	841 – 851
850_160_E1	160	4,6.10 ⁻³	3,8	0,100	841 – 851
850_160_E2	160	5,3.10 ⁻³	2,2	0,070	829 – 850

Tableau 4.2 – Caractéristiques en fluage à 850°C.

Un récapitulatif des courbes de fluage à 850°C est présenté sur la **Figure 4.12**. Globalement, les courbes à 850°C admettent une forme caractéristique en fluage avec un stade primaire, un stade secondaire bien délimité et enfin un stade tertiaire. La mise en évidence du stade primaire peut parfois être difficile compte tenu de la faible déformation en début d'essai (inférieure au bruit de mesure par extensométrie optique).

La valeur de la déformation en début de tertiaire n'excède pas 0,01 pour tous les essais réalisés à 850°C. L'évolution de l'allongement total à 850°C ne montre pas de tendance particulière avec la contrainte appliquée ; les valeurs sont proches de 0,10 (même en recalculant l'allongement à rupture des éprouvettes à partir des images de corrélation). Cette valeur d'allongement total est deux fois inférieure à celle de la littérature (la valeur de l'allongement vaut 0,10 dans cette étude contre 0,20 dans les études antérieures de (Petersen, Schanz, et Leistikow 1988)) (**Figure 4.12 b**). Ce résultat pourrait s'expliquer par le fait que les vitesses de chargement, les géométries des éprouvettes et l'environnement des essais ne soient pas identiques. Par ailleurs, la composition chimique n'est pas exactement la même pour l'AIM1 et le DIN 1.4970, ce qui pourrait influencer la ductilité du matériau.

⁴⁵ L'allongement maximal mesuré correspond au dernier point de la courbe de fluage (avant le début de la striction macroscopique d'une des deux « jambes ») afin d'éviter l'effet d'échantillonnage car la rupture finale est très rapide par rapport à la fréquence d'acquisition des images en extensométrie optique.

⁴⁶ T_{min} et T_{max} correspondent respectivement aux températures minimale et maximale atteintes lors de l'essai de fluage.

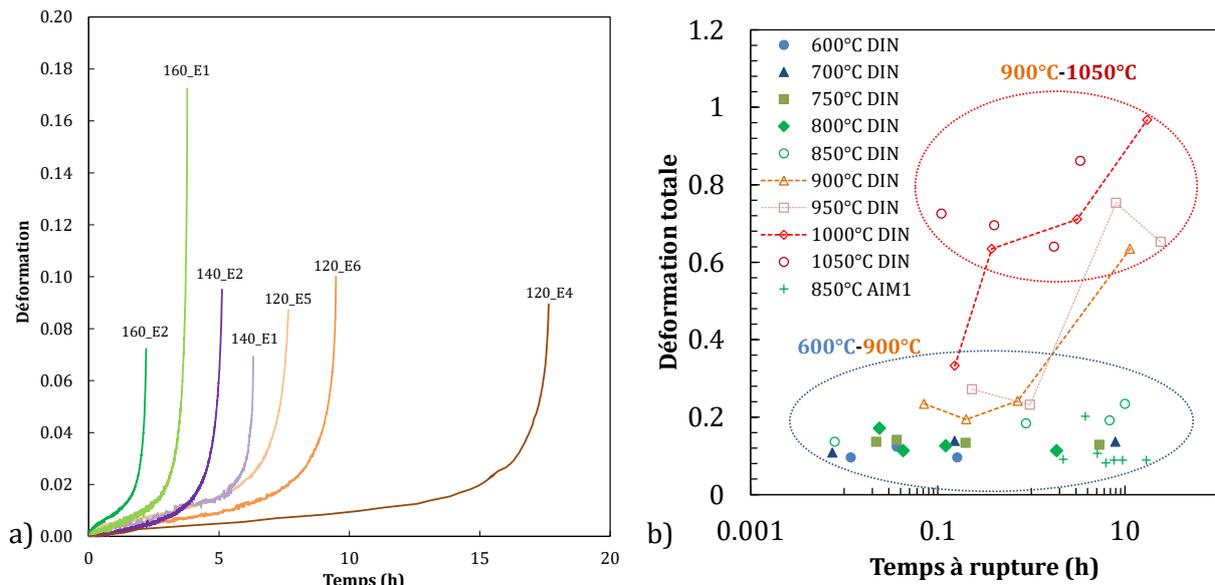


Figure 4.12 – a) Courbes de fluage uniaxial retenues à 850°C et b) allongement total en fonction du temps à rupture pour les essais à 850°C (référence « 850°C AIM1 ») comparé avec les données de (Petersen, Schanz, et Leistikow 1988).

Une représentation de la loi de Norton pour les essais à 850°C est présentée sur la Figure 4.13 a. Le coefficient de Norton n est compris entre 4 et 4,7, ce qui est bien plus faible que ce qui était attendu d'après la partie 1 (entre 8 et 9). Néanmoins, les données de la littérature présentées sur la Figure 4.11 a montrent que la pente moyenne de courbe à basse contrainte (en dessous de 140 MPa) se distingue de la pente moyenne de la courbe à forte contrainte. Ce comportement est typique d'un *Power Low Breakdown*. Pour les faibles contraintes, le coefficient de Norton de l'acier DIN 1.4970 est de 3 entre 114 et 140 MPa, ce qui se rapproche du coefficient déterminé pour l'AIM1 entre 120 et 160 MPa. Par ailleurs, la vitesse de déformation minimale est plus faible pour l'AIM1 que pour le DIN 1.4970, ce qui suggère une meilleure résistance de l'AIM1 au fluage. Ce résultat pourrait s'expliquer par un taux d'écroissage différent et/ou par une composition chimique différente pour les deux nuances.

Le coefficient n à 850°C est également plus faible qu'à 650°C et 750°C (Chapitre 3), ce qui indiquerait une mobilité des dislocations plus importante à 850°C par rapport aux basses températures. En effet, les mécanismes de restauration sont actifs à 850°C (Chapitre 2), rendant ainsi la mobilité des dislocations plus facile par rapport à 650°C et 750°C. Cette activation thermique peut permettre notamment de faciliter la montée des dislocations face aux obstacles qu'elles peuvent rencontrer, comme les nano-précipités notamment.

Le diagramme d'Ashby de l'acier inoxydable austénitique 316 (taille de grain de 50 μm) de la Figure 4.13 b permet d'estimer les mécanismes de déformation attendus. Le carré rouge sur la Figure 4.13 b tracé à partir des conditions explorées indiquerait un mécanisme de déformation par fluage des dislocations à cette température. Il faut néanmoins être prudent quant à la comparaison des résultats de l'AIM1 par rapport à ce diagramme du 316, qui ne prend pas en compte une éventuelle nano-précipitation et la présence de l'écroissage initial, plus ou moins restauré.

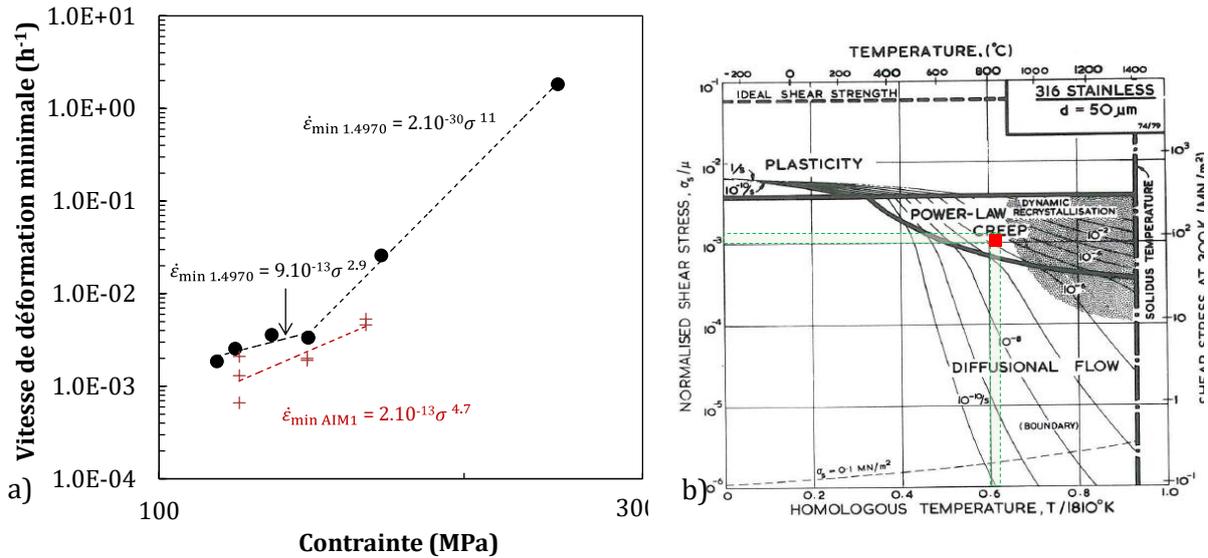


Figure 4.13 – a) Loi de Norton à 850°C de l'AIM1 et de l'acier DIN 1.4970 (testé par pression interne) (Petersen, Schanz, et Leistikow 1988) (échelle logarithmique) et b) détermination du mode de déformation pour les essais réalisés à 850°C (d'après (Frost et Ashby 1982) pour un 316 hypereffort et non stabilisé).

La représentation de Monkman-Grant pour les essais à 850°C est présentée sur la Figure 4.14. Les points ne sont pas parfaitement alignés (Figure 4.14 a), mais une tendance quasi-linéaire, conforme à l'état de l'art en fluage est tout de même observée. Cette quasi-linéarité se retrouve en incluant les essais dont la température pourrait être au-dessus de 850°C (essais 1 à 3 sous 120 MPa) (Figure 4.14 b). Ceci montre que malgré la dispersion des résultats expérimentaux, les modes de déformation et de rupture des éprouvettes sont cohérents d'un essai à l'autre.

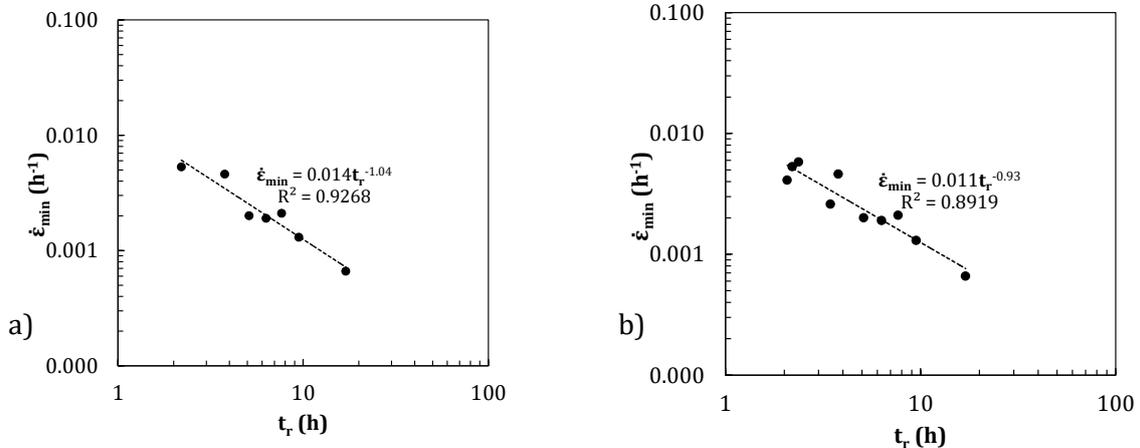


Figure 4.14 – Loi de Monkman-Grant a) avec les essais présentés dans la Figure 4.9 et b) avec l'ensemble des essais sur éprouvettes de type bijambe à 850°C.

Comportement à rupture :

Les surfaces de rupture typiques des éprouvettes rompues à 850°C sont présentées sur la Figure 4.15. On constate un fort amincissement avec une réduction d'épaisseur à rupture entre 80% et 85% par rapport à l'épaisseur initiale. (Petersen, Schanz, et Leistikow 1988) avaient constaté une réduction de 90%, mais pour des températures plus élevées.

L'ensemble des fractographies montrent des faciès de rupture transgranulaires à cupules, ce qui est caractéristique des ruptures ductiles. Aucune zone avec des amorces intergranulaires n'a été observée à 850°C contrairement aux plus basses températures (Chapitre 3).

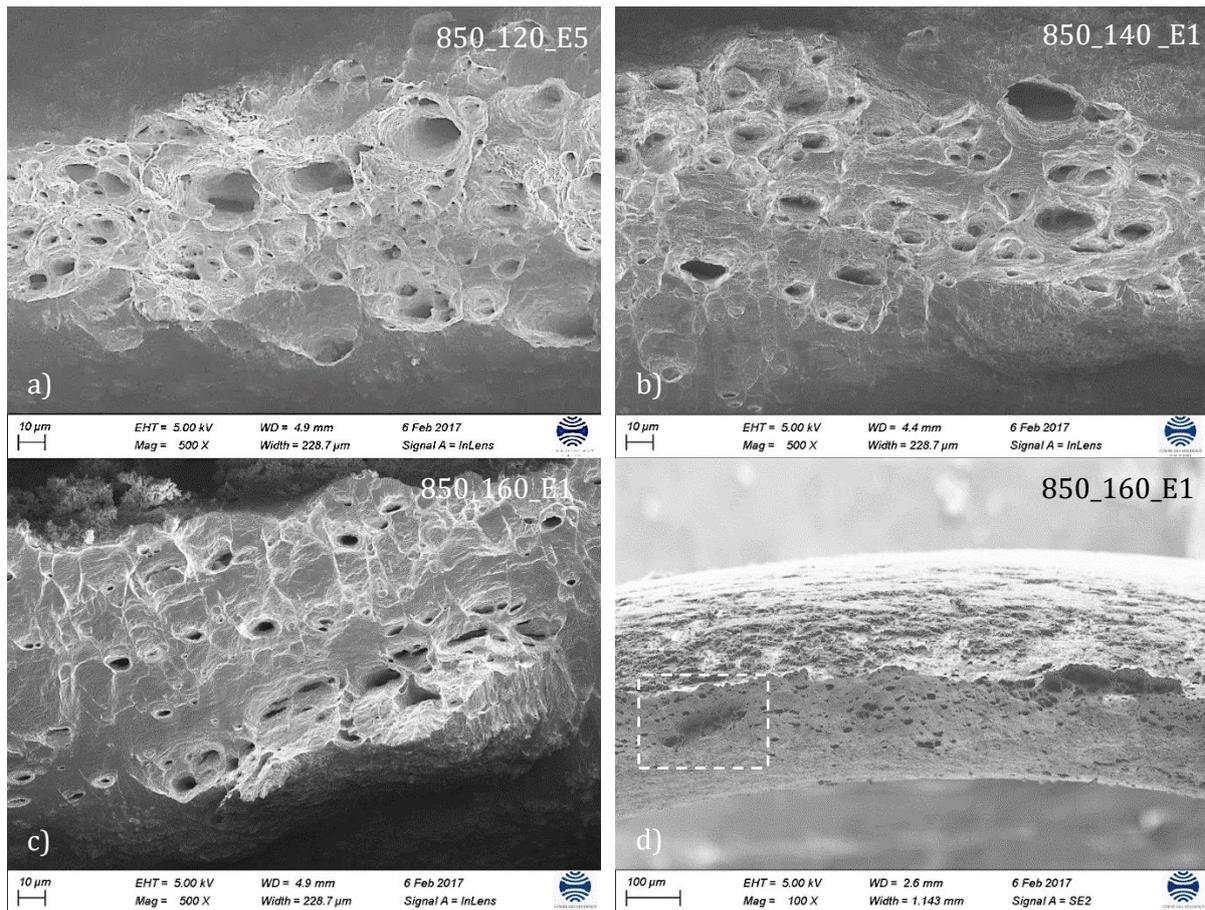


Figure 4.15 – *Faciès de rupture des éprouvettes de fluage soumis à des contraintes de a) 120 MPa, b) 140 MPa et c) 160 MPa. d) Vue d'ensemble de la fractographie de l'éprouvette soumis à la contrainte de 160 MPa.*

Au fond de certaines cupules, des particules ou des fragments de particules ont été observés. L'analyse EDX des particules situées en fond de cupule montre qu'il s'agit des carbonitrides de titane primaires (Figure 4.16).

La microstructure d'une coupe métallographique d'une éprouvette testée sous 120 MPa est présentée sur la Figure 4.17. Notons l'absence d'oxydes et de fissures sur les surfaces latérales de l'éprouvette, par comparaison avec ce qui a pu être observé sur les éprouvettes testées à plus basse température (Chapitre 3).

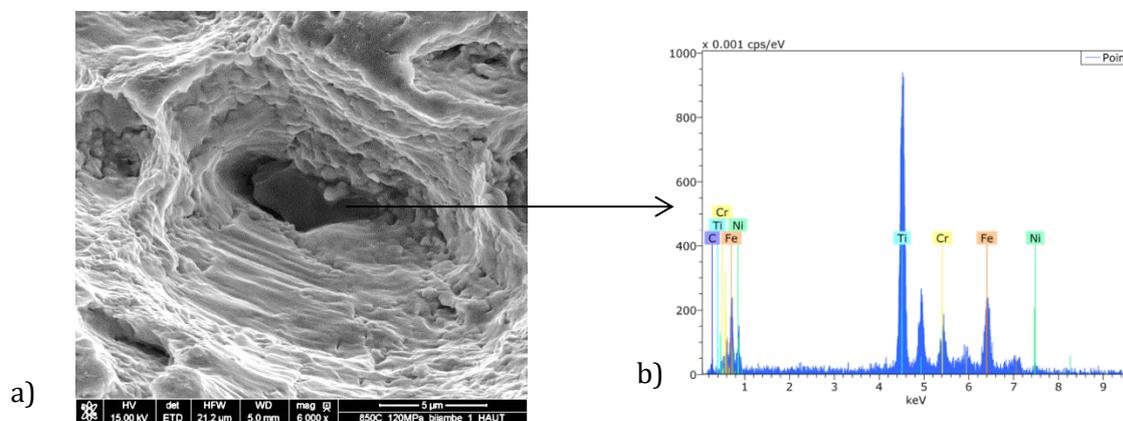


Figure 4.16 – *a) Photographie d'une cupule contenant une particule et b) le spectre EDX associé réalisé sur l'éprouvette 850_120_E4.*

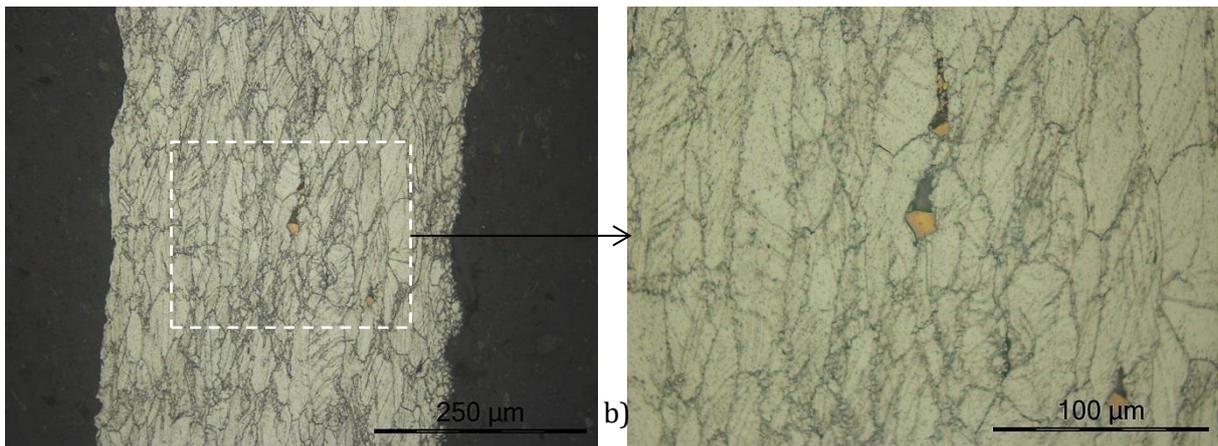


Figure 4.17 - a) Coupe métallographique d'une éprouvette rompue sous une contrainte nominale de 120 MPa (à 850°C) et b) agrandissement de la Figure 4.17 a.

3.2. Microstructure des éprouvettes après essai

Observation de la tête des éprouvettes et de la zone déformée (hors striction) :

Dans le but d'étudier l'influence de la contrainte sur les évolutions microstructurales après les essais de fluage, des cartographies EBSD ont été réalisées au niveau de la tête⁴⁷ au-dessus des congés de la bijambe, mais aussi en zone déformée de manière uniforme (hors striction). Au niveau de la tête, la section est multipliée par 4 par rapport à la section de la partie utile. La contrainte appliquée y est ainsi divisée par 4, ce qui permet d'avoir une zone exposée à une contrainte beaucoup plus faible. La comparaison des cartographies au niveau de la tête et en zone déformée est présentée respectivement sur les **Figure 4.18 a** et **Figure 4.18 b**.

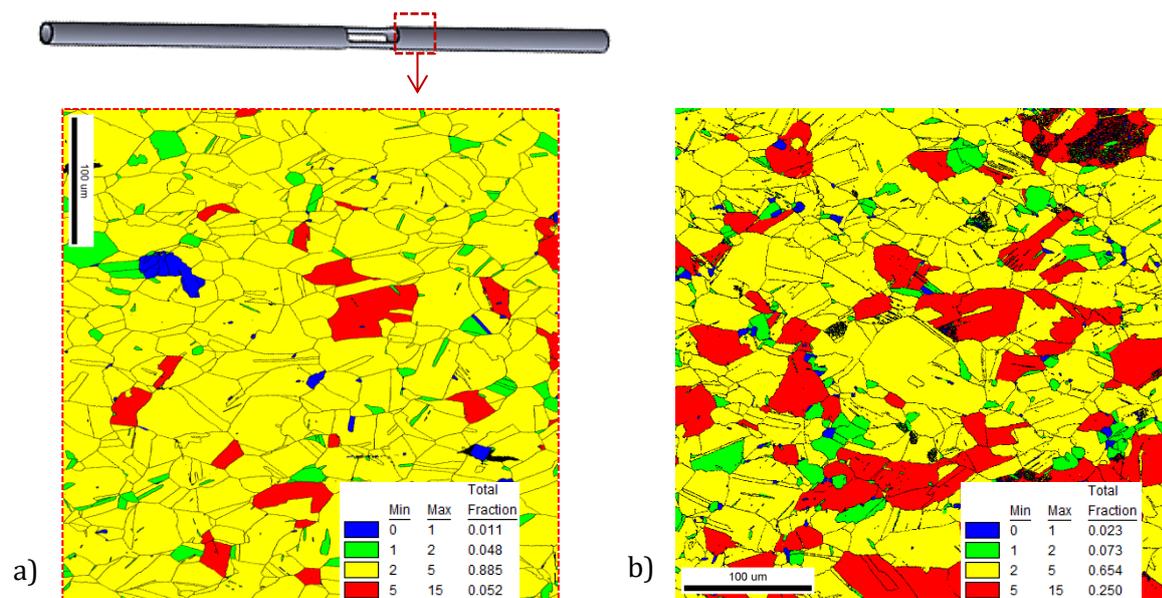


Figure 4.18 – Cartographies GOS a) de la tête et schéma de la zone de prélèvement associée et b) en zone déformée (hors striction) de l'éprouvette 850_120_E5 testée à 850°C sous 120 MPa (allongement total = 0,079).

La présence de macles de déformation et de grains encore bien écrouis sur les cartographies sur la **Figure 4.18 b** indiquent que l'acier a conservé des traces de l'écroissage à froid (macles de déformation). Pour information, les macles de déformation pour la tête sont visibles en IQ.

Notons la présence de petits grains à faible GOS (grains bleus et verts) dont la fraction surfacique reste néanmoins faible dans la zone déformée (**Figure 4.18 b**). La contrainte n'a ainsi pas d'effet notable sur la fraction de grains recristallisés, dans le domaine exploré ici (par comparaison avec les recuits de même durée que les essais (**Chapitre 2**)). D'autres cartographies sur une éprouvette testée sous 160 MPa ne montrent pas non plus de recristallisation, ce qui indique que, même si la contrainte est plus élevée, elle n'influence pas la cinétique de recristallisation dans le temps imparti par les essais. Les macles de déformation sont conservées et aucune structure de restauration (sous-grains, cellules etc.) n'est observée à l'échelle du MEB.

⁴⁷ La tête est prélevée dans l'éprouvette bijambe au-dessus de la zone utile (au niveau du congé). Les zones de cette tête observées en EBSD sont situées au niveau du thermocouple de régulation.

Observations des coupes en zone de rupture :

Seules quelques cavités ont été trouvées autour de carbures primaires (Figure 4.19 a et b), ce qui fait que l'étude a été concentrée sur l'évolution de l'état d'écrouissage suite à la déformation ultime précédant immédiatement la rupture.

L'évolution microstructurale près de la rupture a été évaluée sur coupes polies afin d'expertiser l'éprouvette en zone de fortes déformations (environ 0,8 de réduction dans l'épaisseur) et en régime rapide (allongement de 0,04 dans les 10 dernières minutes de l'essai). D'après le diagramme de déformation d'Ashby, ce domaine est très proche des conditions de recristallisation dynamique, d'où les observations détaillées dans cette partie pour explorer l'occurrence ou pas de ce phénomène dans le cas de l'AIM1.

A 850°C, la zone proche de la rupture est très écrouie (Figure 4.19 a et c). Le niveau de désorientation interne des grains et leur allongement géométrique sont bien supérieurs à celui de l'état initial. On constate cependant la présence de cellules de restauration révélées par le contraste de qualité des clichés de diffraction (IQ), ce qui suggère qu'une restauration dynamique importante a accompagné cette déformation rapide (taille des cellules de l'ordre du micromètre, comme ce qui a été observé pour l'éprouvette AIM1-SAC-750-230-T3 à 750°C dans le Chapitre 3). Ces zones proches de la rupture sont trop petites pour réaliser des observations au MET.

L'état d'écrouissage comme la taille de grains sont loin d'être homogènes sur ces microstructures. Etant donné l'allongement des grains, leur état de déformation, et la présence de macles de déformation, la recristallisation semble n'être qu'à son début pour les essais sous 120 MPa. En effet, la présence de petits grains bleus, qui sont distincts des TiC primaires (de structure CFC, tout comme celle de la matrice), sur la Figure 4.19 c et sur la Figure 4.18 indique un début de recristallisation que cela soit en zone déformée de manière homogène ou en zone de striction. Par ailleurs, les petits grains jaunes et verts pourraient probablement être des grains recristallisés redéformés par réécrouissage de l'éprouvette suite à la sollicitation mécanique.

La Figure 4.19 d montre le détail d'une zone de l'éprouvette 850_120_E5 rompue sous 120 MPa de contrainte nominale. On remarque la forme dentelée des joints de grains, déjà connue en déformation rapide (de type mise en forme à chaud, (Hermant et al. 2016)) des aciers inoxydables austénitiques, ce qui suggérerait un tout début de recristallisation dynamique à 850°C pour la vitesse de déformation considérée.

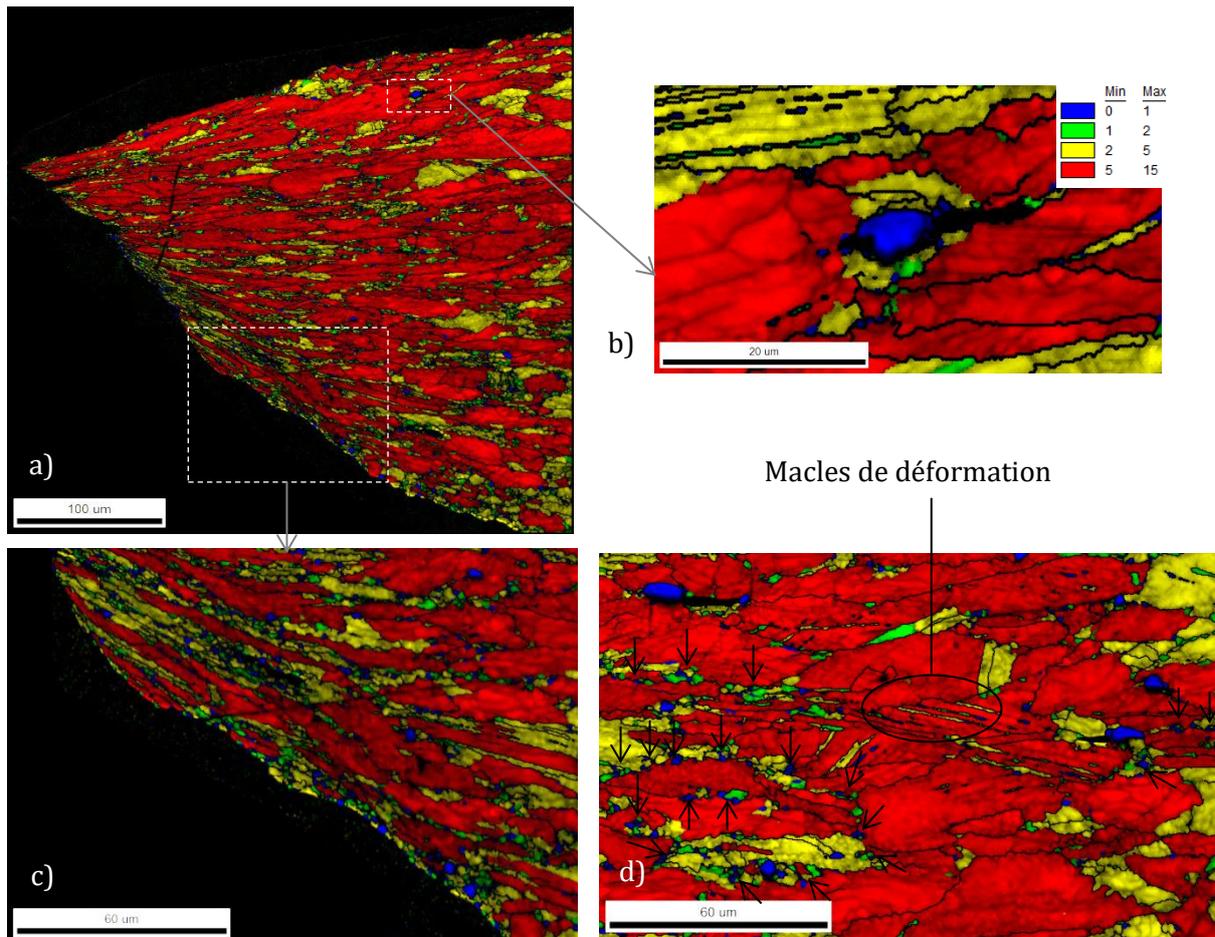


Figure 4.19 – Cartographies EBSD (GOS + IQ) de l'éprouvette 850_120_E5 en zone de striction a) sous la surface de rupture, b) agrandissement de la Figure 4. 19 a sur un précipité primaire (en bleu), c) agrandissement de la Figure 4.19 a et d) une zone montrant la forme dentelée des joints de grains, les flèches indiquent des grains recristallisés dans les joints de grains initiaux. Les autres grains bleus sont des TiC primaires.

Aucune caractérisation de la précipitation n'a été réalisée après essai. L'effort de caractérisation des précipités a été porté sur le fluage à 950°C du fait des évolutions microstructurales plus marquées à cette température.

3.3. Conclusion concernant le comportement en fluage à 850°C

Les essais de fluage à 850°C montrent des comportements en termes de déformation minimale et de temps à rupture assez dispersés, notamment pour la contrainte particulière de 120 MPa. Cette dispersion pourrait s'expliquer par une sensibilité particulière du matériau aux conditions d'essai à cette température et à cette contrainte, comme le suggère l'état de l'art. Les données extraites de la littérature sont peu nombreuses et les essais n'y ont pas été répétés à la même contrainte. Aucune étude publiée n'a donc caractérisé la dispersion des résultats pour des essais réalisés dans les mêmes conditions.

L'acier admet une bonne résistance au fluage, ce qui se traduit par un coefficient de Norton plus élevé (entre 4 et 5) que les valeurs classiques (environ 3) pour cette température et les contraintes étudiées. Ce coefficient reste néanmoins bien plus faible que celui relevé lors des essais à 650°C et 750°C. D'après les résultats du [Chapitre 2](#), la présence de recristallisation n'est pas prévue à 850°C pour des temps inférieurs à 10 h, mais des cartographies sur des éprouvettes testées sous 120 MPa pendant environ 7 h indiqueraient un début de recristallisation dans la zone de striction, ce qui suggérerait que l'application d'une contrainte élevée, associée à une déformation élevée à vitesse élevée, accélérerait la cinétique de recristallisation.

La restauration dynamique n'est marquée que pour les déformations et vitesses de déformation élevées atteintes lors de la rupture. Le reste du matériau conserve une microstructure de la matrice proche de celle de départ.

Le mode de rupture est de type transgranulaire ductile à cupules pour toutes les contraintes. L'épaisseur des surfaces de rupture est réduite de 80% par rapport à l'épaisseur initiale des éprouvettes.

4. Résultats et discussion des essais à 950°C

4.1. Comportement macroscopique et comparaison avec les essais à 850°C

Comportement viscoplastique :

17 essais ont été réalisés à 950°C, tous sur éprouvette de type bijambe. Parmi ces essais, 5 ont été écartés à cause d'une température mesurée trop élevée ou d'une incertitude quant à la température réellement subie par les éprouvettes (dessoudage de thermocouples). La différence entre la température mesurée par le thermocouple à l'extrémité haute de la bijambe et entre le thermocouple soudé à l'extrémité basse de la bijambe est d'environ 20°C. Les caractéristiques en fluage tirées de ces essais sont présentées dans le [Tableau 4.3](#). Ces résultats montrent une assez bonne reproductibilité des essais à faible contrainte (40 MPa et 50 MPa) en termes de vitesse de déformation minimale et de temps à rupture pour une même contrainte. Pour les contraintes au-delà de 60 MPa les variations de vitesse de déformation minimale et de temps à rupture pour deux conditions d'essai identiques sont inférieures à un facteur deux. Pour les contraintes entre 40 MPa et 100 MPa, la vitesse de déformation minimale augmente et le temps à rupture diminue avec l'augmentation de la contrainte, ce qui constitue un comportement classique en fluage.

Essais	Contrainte (MPa)	$\dot{\epsilon}_{\min}$ (h ⁻¹)	t _r (h)	Allongement total	Intervalle de température (°C) T _{min} -T _{max}
950_40_E2	40	3,9.10 ⁻³	3,6	0,50	Température de régulation ⁴⁸
950_40_E3	40	4,5.10 ⁻³	3,4	0,53	935-955
950_40_1140_2min	40	9,5.10 ⁻²	2,5	0,50	927-956
950_40_1000_1h_E1	40	2,2.10 ⁻²	5,5	0,29	938-950
950_40_1000_1h_E2	40	3,5.10 ⁻²	5,5	0,40	928-950
950_50_E1	50	6,2.10 ⁻³	2,8	0,37	941-958
950_50_E2	50	5,6.10 ⁻³	2,8	0,35	Température de régulation
950_60_E2	60	1,2.10 ⁻²	1,1	0,21	937-951
950_60_E3	60	8,7.10 ⁻³	1,5	0,34	938-951
950_80_E2	80	1,3.10 ⁻³	0,5	0,14	949-969(ponctuel)
950_80_E3	80	9,2.10 ⁻³	0,9	0,21	930-950
950_100_E1	100	6,2.10 ⁻²	0,4	0,08	935-950

Tableau 4.3 – Caractéristiques en fluage relevées à 950°C.

Une représentation de la déformation en fonction du temps pour chaque contrainte est présentée sur la **Figure 4.20**. Pour des raisons de visibilité, une seule courbe par contrainte a été reportée sur le graphique. Ces courbes ont une allure peu classique en fluage. Le stade primaire et le stade secondaire sont très courts proportionnellement à la durée de l’essai. La déformation de la fin du secondaire n’excède pas 0,01, comme pour les essais à 850°C. A contrario, la durée du tertiaire est très longue et sa forme (déformation très progressive) diffère des résultats à 650°C, 750°C et 850°C. L’allongement à l’apparition de la striction augmente quand la contrainte diminue et peut atteindre 0,5 pour les essais réalisés à 40 MPa. Ces résultats vont dans le sens de ceux présentés sur la **Figure 4.3** dans laquelle l’allongement à l’apparition de la striction est proche de 0,20 pour les fortes contraintes et supérieur à 0,70 pour les faibles contraintes. De plus, compte tenu de la durée des essais et de la température élevée, le matériau est susceptible de fortes évolutions métallurgiques.

Pour les essais sous 40 MPa des excursions en température ont été réalisées avant essai de fluage afin de déterminer le comportement viscoplastique d’une éprouvette hypereutectique et d’une éprouvette totalement recristallisée mais contenant des précipités secondaires. Les principaux résultats sont les suivants :

- Après prétraitement à 1140°C pendant 2 min, l’éprouvette flue plus rapidement et rompt plus tôt que l’éprouvette testée sous 40 MPa sans traitement thermique. L’état visé doit être recristallisé avec une remise en solution des carbures de titane secondaires avant l’essai de fluage. La vitesse minimale en fluage d’un état écroui est de 24 fois inférieure à celle d’un état « hypereutectique ». Ces résultats montrent l’importance de l’écrouissage à froid, et par conséquent du durcissement par précipitation sur les bonnes propriétés de l’AIM1 en fluage ;
- Après prétraitement à 1000°C pendant 1 h, la microstructure de l’éprouvette est totalement recristallisée mais contient des précipités secondaires d’environ 30 nm ou

⁴⁸ Absence de mesure autre que le thermocouple de régulation.

plus au début de l'essai de fluage (état métallurgique de l'acier recristallisé à 1000°C, cf. [Chapitre 2](#)). L'éprouvette flue plus rapidement mais rompt plus tardivement que l'éprouvette testée directement sous 40 MPa sans traitement thermique. Par ailleurs, le stade secondaire est plus développé, synonyme que la création de dislocations sous charge s'équilibre plus longtemps avec la restauration due au maintien à haute température. Le temps à rupture est cependant supérieur par rapport aux autres essais, ce qui reste inexpliqué. Le stade tertiaire est plus stable que pour l'essai sur éprouvette prétraitée à 1140°C.

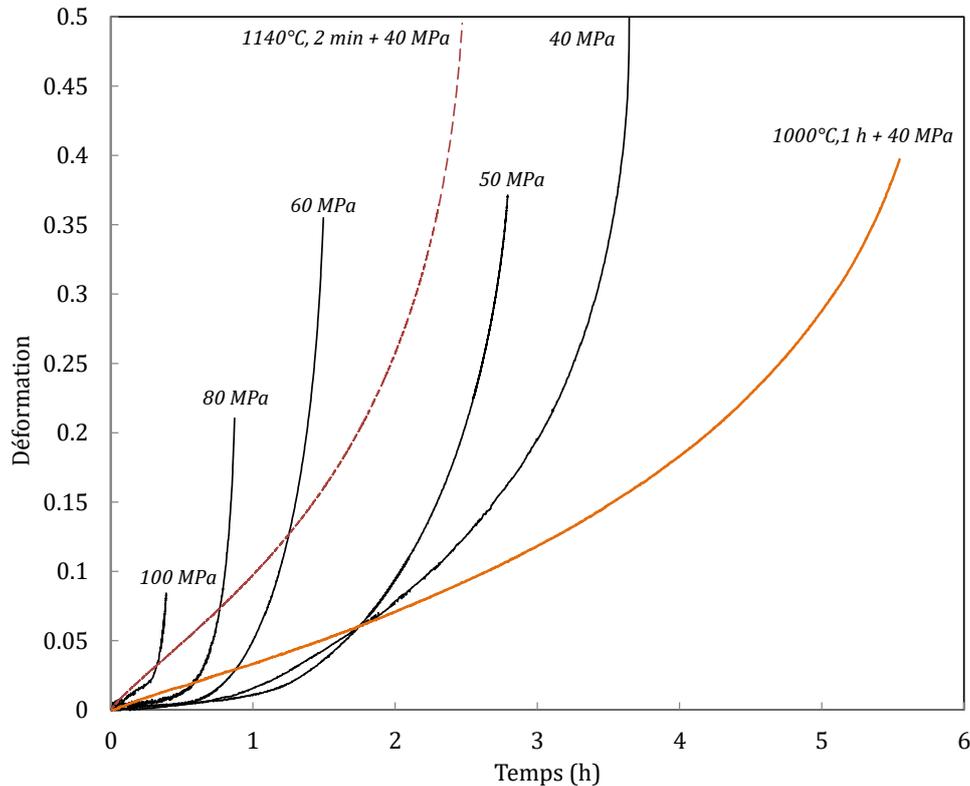


Figure 4.20 – Courbes de fluage représentant la déformation en fonction du temps. En noir, essais directement après chauffage. En rouge et orange, essais sur éprouvettes pré-traitées thermiquement.

La [Figure 4.21](#) présente la comparaison des courbes représentant la vitesse de déformation en fonction du temps pour des essais réalisés à 750°C sous 175 MPa et à 950°C sous 40 MPa. La courbe de la [Figure 4.21 a](#), qui correspond à l'essai réalisé à 750°C, a une évolution plutôt classique en fluage avec une diminution de la vitesse de déformation lors du stade primaire suivie d'une vitesse de déformation constante lors du stade secondaire qui permet de déterminer la vitesse minimale de déformation. Ensuite, la vitesse de déformation augmente jusqu'à la rupture de l'éprouvette. La [Figure 4.21 b](#) représente une courbe moins classique pour l'essai réalisé à 950°C sous 40 MPa. En effet, cette figure met en évidence l'absence du stade primaire. Par ailleurs, le stade secondaire est très difficile à déterminer à partir de la [Figure 4.21 b](#). En effet, la résolution de la mesure pour la détermination de la vitesse de déformation est probablement très limitée pour déterminer le stade secondaire. Par ailleurs, une accélération de la vitesse entre 30 min et 1 h d'essai est notable pour la courbe de la [Figure 4.21 b](#), ce qui est assez atypique par comparaison avec la courbe [Figure 4.21 a](#). Les mécanismes sous-jacents à cette accélération ne sont pas encore élucidés. Entre 1 h et 2 h d'essai la vitesse ralenti pour ensuite accélérer jusqu'à la fin de l'essai, cette tendance est plus classique pour un stade tertiaire.

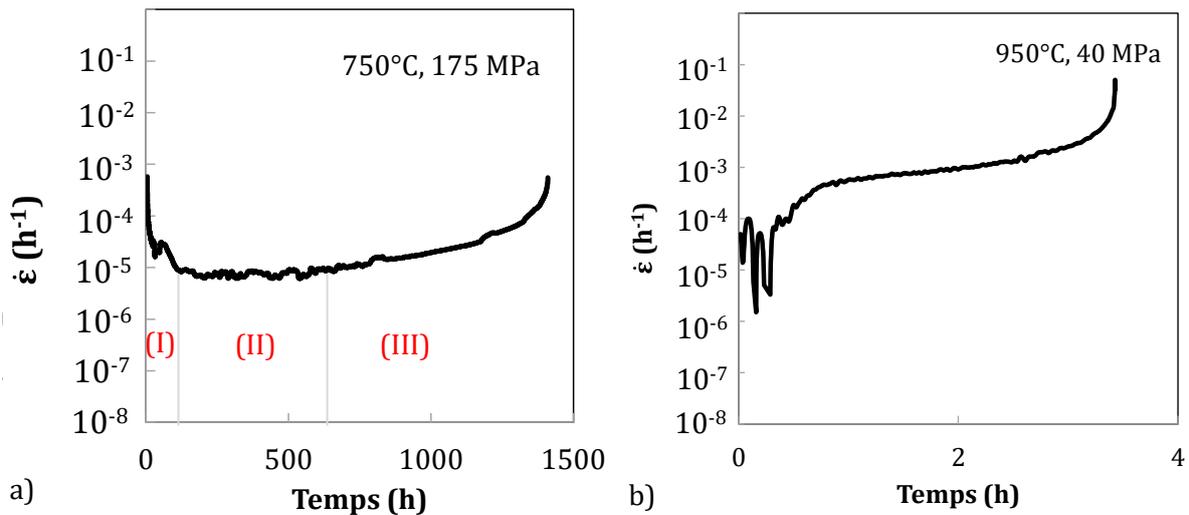


Figure 4.21 – Courbes représentant la vitesse de déformation en fonction du temps pour des essais réalisés à a) 750°C sous 175 MPa et b) 950°C sous 40 MPa.

Analyse du stade tertiaire :

Le stade tertiaire observé pour les basses contraintes est beaucoup plus stable à 950°C qu'à 850°C et la contrainte vraie a augmenté de 50% en fin d'essai pour la contrainte de 40 MPa (allongement de 0,5 avant striction). Afin de prendre en compte la réduction progressive de la section pour pouvoir interpréter le stade tertiaire, une représentation de la déformation vraie en fonction de la contrainte vraie dans ce stade a ainsi été réalisée, en faisant l'hypothèse (vérifiée sur les images prises par la caméra) qu'aucune striction n'intervenait et que l'état de contraintes restait donc proche de la traction uniaxiale. Ces courbes sont présentées sur la Figure 4.22.

Les points pour chaque contrainte s'alignent selon une loi puissance de type loi de Norton qui est reproductible pour les essais réalisés à la même contrainte. Par ailleurs, plus la contrainte nominale est élevée, plus l'essai est court et plus l'exposant de la loi puissance est élevé (ce qui se traduit par une pente plus élevée sur la Figure 4.20). Ce phénomène n'a pas trouvé à ce jour d'explication convaincante. Pour une même contrainte vraie, la vitesse de déformation est, de fait, plus élevée à plus basse contrainte nominale. En prenant uniquement en compte les essais réalisés directement après chauffage à 950°C pour des contraintes entre 40 MPa et 100 MPa, on constate que pour une même contrainte vraie (par exemple 70 MPa de contrainte vraie : soit en début d'essai sous 70 MPa de contrainte nominale, soit en fin d'essai sous 60 MPa de contrainte nominale), la vitesse de déformation vraie est significativement plus faible lorsqu'elle est évaluée en début d'essai. L'accélération de la déformation dans le stade tertiaire ne peut donc être attribuée à la seule augmentation de la contrainte vraie (tertiaire dit « de structure »). Ce phénomène montre un effet d'histoire qui pourrait s'expliquer par une évolution microstructurale impliquant un adoucissement (ou un endommagement) conséquent lors des essais à 950°C. Le temps passé, au cours de l'essai, à atteindre une contrainte vraie donnée pourrait permettre une restauration plus importante pour un essai à plus basse contrainte nominale (respectivement, 50 et 60 MPa) par rapport à un essai à plus haute contrainte nominale (respectivement, 60 et 70 MPa).

En résumé, lors des essais à 950°C, il existe probablement un phénomène adoucissant dominant, et ce, malgré une déformation plastique pouvant atteindre 0,50 qui pourrait avoir écroui le

matériau. Ce constat indiquerait qu'une évolution microstructurale fortement adoucissante comme la recristallisation a lieu. Cet adoucissement pourrait dépendre du temps et/ou de la contrainte imposée. Par conséquent, il a été réalisé des caractérisations microstructurales (MEB/EBSD et MET) sur les éprouvettes de fluage testées à 950°C et qui sont présentées dans les parties 4.2 et 4.3.

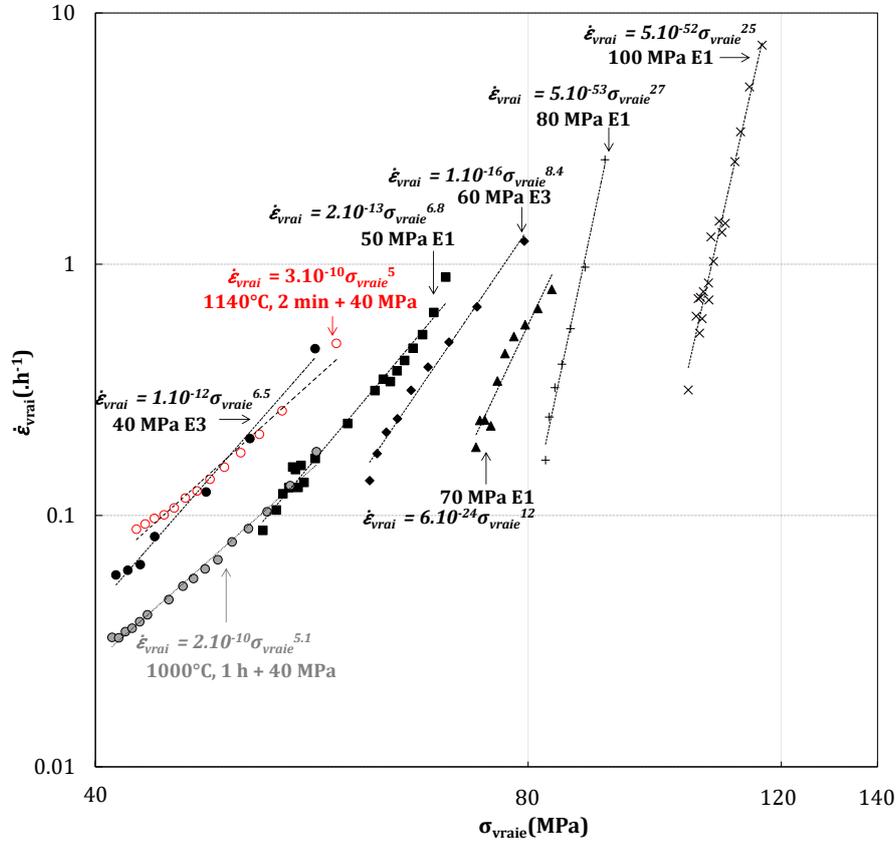


Figure 4.22 – Représentation de la vitesse de déformation vraie en fonction de la contrainte vraie dans le stade tertiaire pour les essais réalisés à 950°C.

Comparaison entre les résultats obtenus à 850°C et 950°C :

Les courbes de Norton et de Monkman-Grant des essais à 850°C et 950°C sont comparées respectivement sur la **Figure 4.23 a** et sur la **Figure 4.23 b**. La courbe de Norton à 950°C ne concerne que le tout début de l'essai de fluage, compte tenu du stade tertiaire très long à cette température. Elle n'est donc pas nécessairement représentative d'un état stationnaire, tant sur le plan microstructural que vis-à-vis de la compétition entre écrouissage et restauration.

La représentation de Norton (**Figure 4.23 a**) des essais à 950°C pour les basses contraintes (inférieures à 80 MPa) montre un coefficient n faible, se rapprochant ainsi du comportement d'un acier non durci par précipitation. Un changement de pente entre la contrainte de 80 MPa et 100 MPa est observé, suggérant un changement de mécanisme en début d'essai de fluage entre les contraintes nominales faibles et les contraintes nominales élevées. Néanmoins, il faudrait un plus grand nombre de données entre 80 MPa et 100 MPa pour confirmer ce changement de pente.

La représentation de Monkman-Grant (**Figure 4.23 b**) montre que la relation entre temps à rupture et vitesse minimale de déformation suit la même tendance à 850°C et 950°C (même équation en loi puissance). Celle-ci ne varie donc pas de manière significative avec la température bien que l'on soupçonne des réalités physiques très différentes à 950°C et 850°C.

Une comparaison des courbes de Norton à 850°C et 950°C entre l'AIM1 et le DIN 1.4970 est présentée sur la **Figure 4.23 c**. Les coefficients n sont très semblables à ceux de la littérature, ce qui suggère que l'AIM1 est piloté par les mêmes mécanismes de déformation dans le stade secondaire. Rappelons que la littérature ne donne pas la forme des courbes de fluage (prédominance du stade tertiaire ou non).

Néanmoins, la valeur de la vitesse minimale pour l'AIM1 à 950°C est plus faible que celle du DIN 1.4970, ce qui suggère que l'AIM1 résiste mieux au fluage que le DIN 1.4970 à 950°C. La différence à 850°C est beaucoup plus ténue. Or, il a été montré dans le **Chapitre 2** que les phosphures précipitent préférentiellement à 850°C pour l'AIM1. La comparaison entre le comportement de l'AIM1 et de l'acier DIN 1.4970 (sans phosphore) suggère que le phosphore serait durcissant principalement en solution solide plutôt que sous forme d'aiguilles de phosphures.

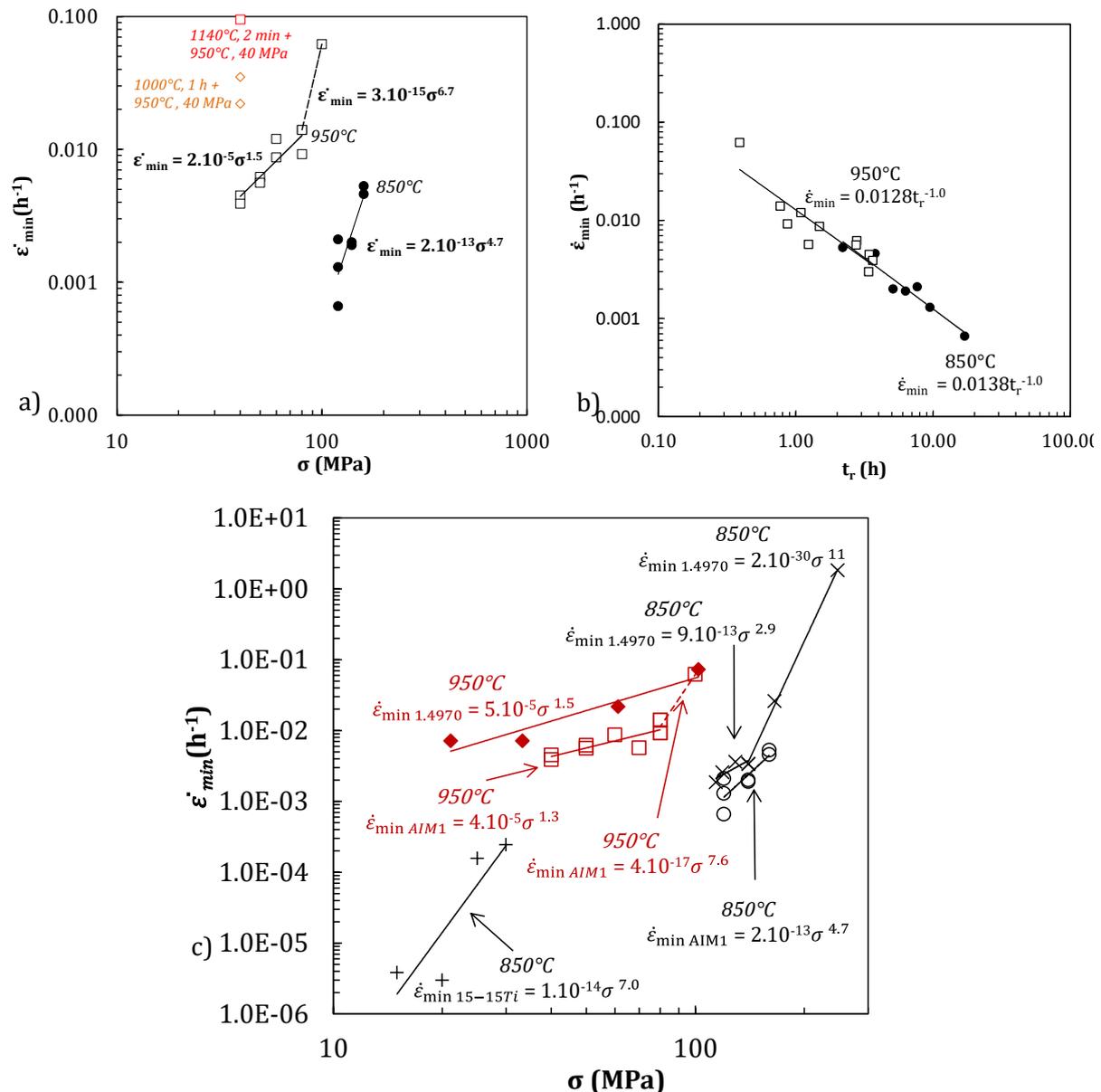


Figure 4.23 – Représentation a) de Norton et b) de Monkman-Grant en prenant $\dot{\epsilon}_{\min}$ pour les essais à 850°C et à 950°C ; c) courbes de Norton pour l'AIM1 (ces travaux) et le DIN 1.4970 (données tirées de (Petersen, Schanz, et Leistikow 1988) à 850°C et 950°C et CEA à 850°C).

Comportement à rupture :

Tout comme pour les essais à 850°C, la rupture des éprouvettes se fait de manière ductile à 950°C pour toutes les contraintes étudiées. Les surfaces de rupture après fluage à 950°C montrent une réduction d'épaisseur encore plus élevée (Figure 4.24 a). Seule une ligne sombre montre la matière qui a donné lieu à l'ultime séparation de l'éprouvette en deux parties. On trouve encore quelques cupules apparues sur des carbures primaires (Figure 4.24 b) mais l'épaisseur finale est quasiment réduite à zéro, contre une centaine de micromètres après fluage à 850°C. Ceci est cohérent avec la valeur élevée de la déformation à rupture. L'éprouvette résiste remarquablement bien à l'apparition de l'endommagement ductile lors de la localisation de la déformation. Les Figures 4.24 c et d permettent de comparer les surfaces de rupture des éprouvettes pré-traitées avant essai à 950°C sous 40 MPa et celles des éprouvettes directement testées en fluage sous ces mêmes conditions. Les surfaces de rupture sont similaires avec une rupture 100% ductile.

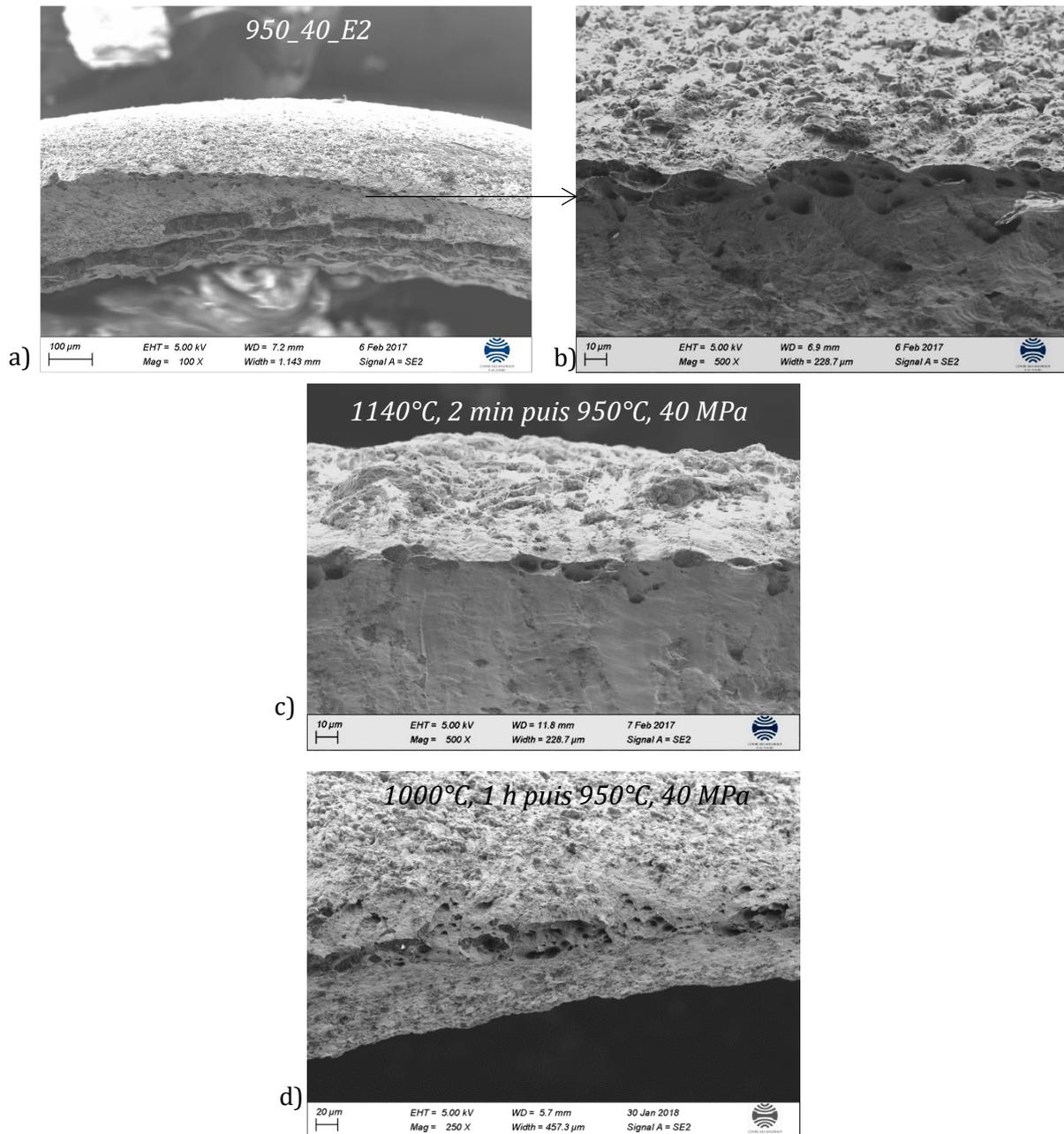


Figure 4.24 – a) Surface de rupture au MEB de l'éprouvette testée à 950°C sous 40 MPa et b) agrandissement de la photographie a) permettant l'observation de cupules et d'un précipité primaire. C) Surface de rupture de l'éprouvette pré-traitée à 1140°C, 2 min avant essai à 950°C sous 40 MPa et d) Surface de rupture de l'éprouvette pré-traitée à 1000°C, 1 h avant essai à 950°C sous 40 MPa.

Les résultats de fluage à 950°C montrent des courbes dont le stade tertiaire est prépondérant. L'analyse plus approfondie de ce stade tertiaire et les courbes de Norton suggèrent que la vitesse de déformation instantanée n'est pas fonction uniquement de la contrainte vraie instantanée mais aussi de la contrainte nominale (ou du niveau de déformation ou du temps passé sous contrainte à haute température). Cela suggère un fort effet d'histoire à 950°C, probablement lié à un phénomène adoucissant intervenant pendant l'essai de fluage. Les faciès de rupture réduits à presque 100% peuvent suggérer une évolution non négligeable de la microstructure pour cette température. L'allongement à rupture des éprouvettes se rapproche des forts allongements déterminés par (Petersen, Schanz, et Leistikow 1988) à haute température. Les auteurs ont

clairement mentionné la présence de recristallisation dynamique sans pour autant présenter la microstructure des éprouvettes. Par ailleurs, le coefficient de Norton à 950°C vaut autour de 1 pour l'AIM1, comme pour le DIN 1.4970, ce qui paraît faible pour s'apparenter à une déformation par fluage des dislocations. Toutefois, ce coefficient de 1 a déjà été obtenu dans la thèse de (Zhang 2014) pour un acier en cours de recristallisation, ce qui pourrait effectivement lié à de la recristallisation pour l'AIM1 à 950°C. Ce point sera vérifié dans les parties 4.2 et 4.3.

L'expertise des éprouvettes pour cette température est détaillée dans les paragraphes suivants (parties 4.2 et 4.3) afin d'avoir une meilleure compréhension des phénomènes microstructuraux (et en particulier d'éventuels phénomènes adoucissants) intervenant lors des essais de fluage.

4.2. Microstructure des éprouvettes après essai

4.2.1. Observations en zone déformée après les essais menés à rupture (hors striction)

Comparaison entre éprouvettes testées sur le matériau de référence :

Les cartographies GOS des éprouvettes testées à 950°C sous 40 MPa (E3), 50 MPa (E1) et 100 MPa (E1) sont présentées sur la Figure 4.25 (échantillons prélevés hors de la zone de striction).

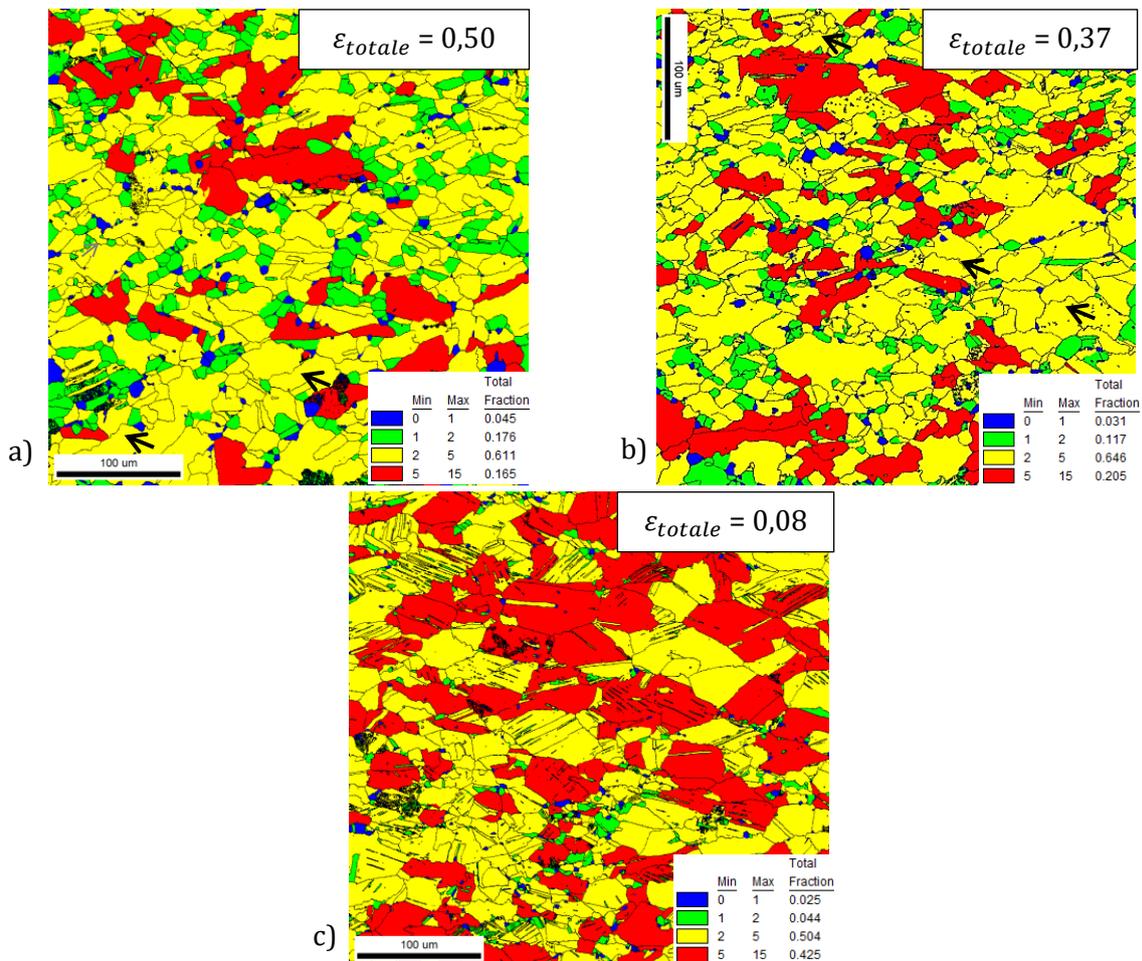


Figure 4.25 – Cartographies GOS des éprouvettes testées à 950°C sous a) 40 MPa, b) 50 MPa et c) 100 MPa (essais complets). Les flèches (en bas à gauche sur a) et droite sur b)) montrent certains joints dentelés.

Les microstructures des éprouvettes rompues sont similaires lorsqu'elles sont testées sous 40 MPa (Figure 4.25 a) et 50 MPa (Figure 4.25 b). Pour ces deux contraintes, la présence de

nombreux grains équiaxes, de petite taille et de GOS compris entre 1 et 2 montre qu'il y a un début de recristallisation qui semble se dérouler principalement au niveau des joints de grains ou des joints triples. La taille de grains semble également plus élevée pour l'éprouvette sollicitée mécaniquement sous 100 MPa par rapport aux éprouvettes testées sous 40 et 50 MPa. La présence de joints de grains dentelés est également observée (certains indiqués par des flèches sur les cartographies). Les macles de déformation, présentes pour l'état de référence et pour les éprouvettes testées à 850°C, sont beaucoup moins présentes à 950°C après essai sous 40 MPa et 50 MPa. Ces microstructures sont très contrastées avec la microstructure de l'éprouvette testée sous 100 MPa, qui contient encore beaucoup de macles de déformation (Figure 4.25 c).

La présence de joints dentelés et la disparition partielle des macles de déformation indiqueraient une recristallisation dynamique au cours de l'essai. Cette hypothèse sera vérifiée grâce à l'expertise des éprouvettes issues d'essais interrompus, présentés dans la partie 4.3.

Les similitudes des microstructures des éprouvettes testées sous 40 MPa et 50 MPa sont en accord avec les similitudes de propriétés mécaniques en fluage pour ces deux contraintes, avec notamment la présence d'un stade tertiaire long, d'un stade primaire et d'un stade secondaire peu développés et d'un allongement total élevé (partie 4.1). Toutefois, le coefficient de Norton de 1,5 n'est pas directement interprétable par de l'écoulement diffusionnel, malgré sa faible valeur (partie 1.2, Chapitre 3). En effet, l'absence d'endommagement permet d'écarter l'hypothèse du fluage diffusionnel puisqu'il fait appel à des mécanismes conduisant souvent à de la cavitation dans les joints de grains.

Pour l'éprouvette testée sous 100 MPa (Figure 4.25 c), la microstructure est similaire à celle de l'état de réception présenté dans le Chapitre 1 avec des grains très déformés (GOS élevé) et la présence massive de macles de déformation. Le temps à rupture court et l'état de déformation de la microstructure suggèrent qu'il n'y pas eu de recristallisation lors de l'essai à 100 MPa (hors zone de striction). Les changements de mécanismes de déformation en fluage entre les essais à basse contrainte et cet essai à haute contrainte pourraient ainsi être associés à des évolutions métallurgiques différentes au cours de l'essai.

Pour les faibles contraintes, les temps d'essais sont plus élevés, impliquant une restauration voire une recristallisation possible au cours des essais de fluage (cf. partie 4.2). En plus d'adoucir la matrice, comme il l'a été montré dans le Chapitre 2, la recristallisation conduit à des carbures de titane secondaires plus grossiers, relativement peu efficaces pour la résistance mécanique en fluage. Pendant un essai de fluage sous 100 MPa, la microstructure n'est pas encore recristallisée dans le stade secondaire (cf. partie 4.2). L'état du matériau se rapprocherait donc de l'état métallurgique pendant les essais de fluage à 850°C, d'où une pente de Norton identique entre les essais à haute contrainte à 950°C⁴⁹ et les essais à 850°C. L'état de précipitation de l'éprouvette testée sous 100 MPa à 950°C n'a pas pu être vérifiée directement, mais on peut imaginer que les nano-précipités aient conservé une taille de quelques nanomètres puisque la recristallisation n'a pas eu lieu (Figure 4.23 c et Chapitre 2).

Comparaison avec les éprouvettes testées sur matériau pré-traité thermiquement :

⁴⁹ Il faut néanmoins interpréter ces résultats avec précaution, car il n'a été réalisé que deux essais. Pour confirmer ces résultats d'autres essais devraient être réalisés entre 80 MPa et 100 MPa.

Les cartographies KAM (calculées au 3^{ème} voisin) ont été réalisées dans le but de qualifier l'état de restauration et notamment d'utiliser les désorientations de part et d'autre des sous-joints pour les éprouvettes pré-traitées puis testées en fluage. Le détail du dépouillement KAM est présenté dans l'Annexe 1 (partie 2. Conditions d'acquisition EBSD et dépouillement).

La Figure 4.26 présente les cartographies GOS et KAM des éprouvettes⁵⁰ :

- Testée à 950°C sous 40 MPa (E3) (Figure 4.26 a et Figure 4.26 d);
- Recuite à 1000°C pendant 1 h puis testée à 950°C sous 40 MPa (E2) (Figure 4.26 b et Figure 4.26 e);
- Recuite à 1140°C pendant 2 min puis testée à 950°C sous 40 MPa (Figure 4.26 c et Figure 4.26 f).

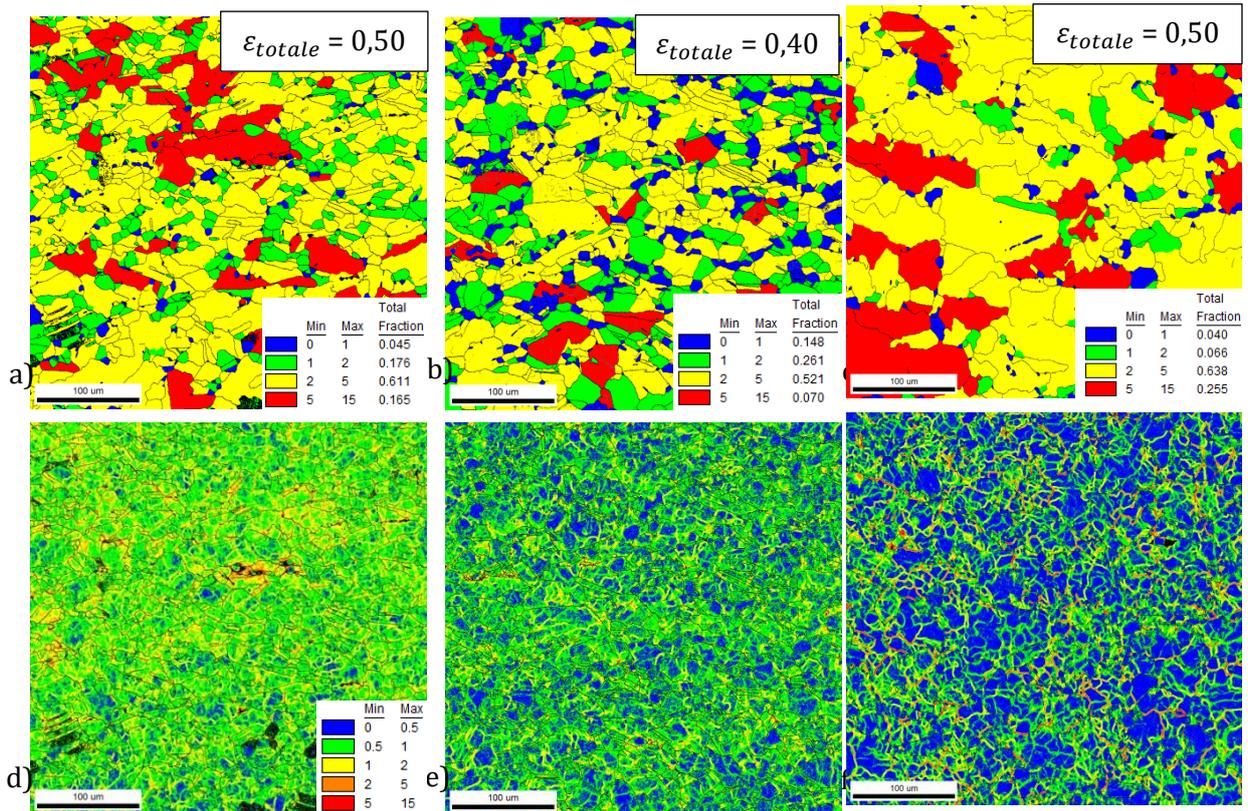


Figure 4.26 – Cartographies GOS (a, b, c) et KAM (d, e, f) des éprouvettes testées à 950°C sous 40 MPa a,d) directement après chauffage, b,e) après pré-traitement à 1000°C pendant 1 h , c,f) après pré-traitement à 1140°C pendant 2 min.

L'essai 950_40_1000_1h a été réalisé sur l'AIM1 totalement recristallisé au début d'essai mais contenant des nano-précipités grossiers (cf. Chapitre 2). La microstructure de l'éprouvette en fin d'essai présentée sur la Figure 4.26 b et e suggère que l'éprouvette a été assez écrouie pour initier (au moins) une nouvelle recristallisation avant la striction. La présence de sous grains se devine sur la Figure 4.26 e, mais n'est pas bien nette.

L'essai 950_40_1140_2min a été réalisé à partir d'une matrice totalement recristallisée et *a priori* initialement sursaturée en éléments en solution solide. La Figure 4.26 c montre la présence de joints fortement dentelés et une initiation de la recristallisation, ce qui indiquerait une

⁵⁰ Cartographies réalisées hors de la zone de striction, à 7,5 mm de la rupture.

recristallisation dynamique pendant l'essai de fluage. Notons également un grossissement de grain (45 μm) pour cette cartographie par rapport aux microstructures présentées sur les **Figures 4.26 a et b**.

La **Figure 4.26 f** illustre une restauration importante avec la présence de sous grains bien délimités.

Des recuits ont été réalisés dans la machine de fluage avec le même cycle thermique que pour les essais mécaniques. Ces traitements permettent de confirmer la recristallisation quasi-totale des éprouvettes après chauffage à 1000°C pendant 1 h suivi d'un palier de 1 min à 950°C et d'un refroidissement (**Figure 4.27 a**) et à 1140°C pendant 2 min suivi du même palier et du même refroidissement (**Figure 4.27 b**).

La taille de grains moyenne (sans prendre en compte les joints de macles $\Sigma 3$ et $\Sigma 9$) obtenue après chauffage à 1140°C pendant 2 min est de 30 μm (déterminée à partir d'une cartographie EBSD comprenant 1994 grains). Cette taille moyenne est plus faible que celle obtenue sur l'éprouvette prétraitée à 1140°C pendant 2 min (**Figure 4.27 c et d**), ce qui peut être dû à un effet d'échantillonnage ou à une continuation de la croissance des grains pendant l'essai. La distribution de la taille de grains est monomodale (**Figure 4.28**), ce qui écarte toute croissance anormale des grains après recuit à 1140°C pendant 2 min.

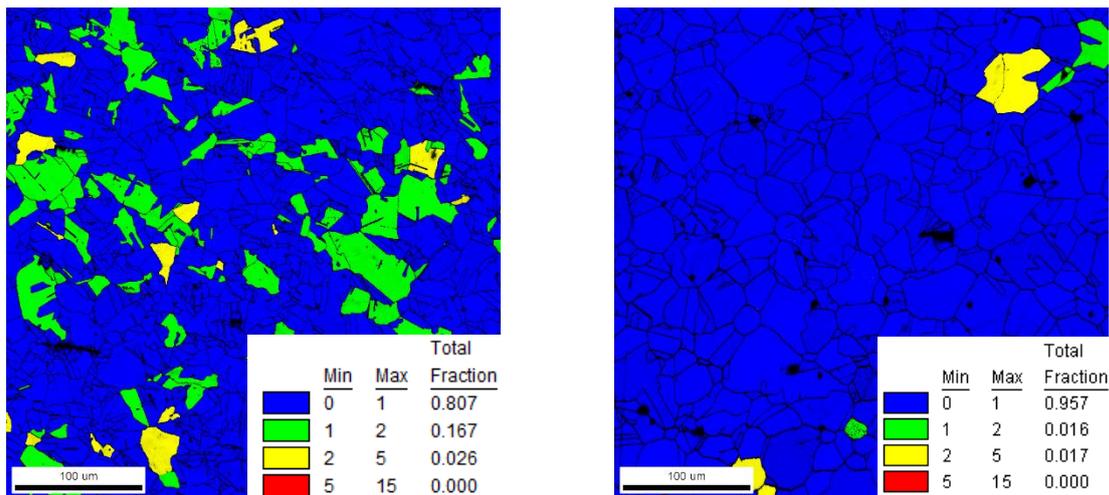


Figure 4.27 – Cartographies GOS des échantillons recuits à a) 1000°C pendant 1 h et b) 1140°C pendant 2 min dans la machine de fluage. Les deux pentes de chauffage sont les mêmes que pour les essais réalisés dans ce chapitre.

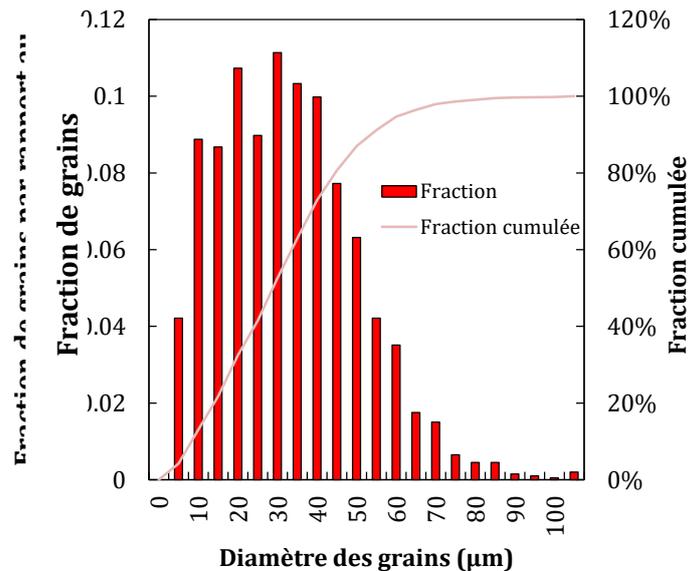


Figure 4.28 – Distribution de la taille des grains calculée à partir de 2000 grains (cartographie de 2363 $\mu\text{m} \times 808 \mu\text{m}$) pour l'échantillon recuit à 1140°C pendant 2 min dans la machine de fluage.

Afin d'observer les structures de dislocations et l'évolution de la précipitation des carbures de titane, des observations au MET ont été réalisées.

Les images MET d'une éprouvette rompue en fluage à 950°C sous 40 MPa sont présentées sur la **Figure 4.29**. Pour rappel, le temps à rupture de cette éprouvette est de 3,6 h. La microstructure montre la présence de sous-grains de l'ordre du micromètre (**Figure 4.29 a**) causée par un réarrangement de dislocations (**Figure 4.29 a** et **Figure 4.29 b**). La **Figure 4.29 b** illustre également la présence de petits grains dépourvus de dislocations, ce qui confirme les résultats obtenus grâce à l'EBS, détectant un début de recristallisation (**Figure 4.26 a**). Compte tenu de la durée de vie de l'éprouvette, la microstructure devrait être totalement recristallisée si on ne tient pas compte du chargement mécanique. Néanmoins, les structures de dislocations sont présentes, ce qui témoigne de la déformation obtenue à la fin de l'essai de fluage (allongement total de 0,50). Compte tenu des résultats, il n'est pour le moment impossible de déterminer le nombre de vagues de recristallisation survenues lors des essais de fluage.

Les carbures de titane secondaires observés sont répartis de manière hétérogène et ont une taille supérieure à 30 nm, ce qui est caractéristique de la population observée pour un état recuit de 2 h totalement recristallisé (**Figure 4.28 c** et **Chapitre 2**). Malgré leur taille grossière par rapport aux nano-précipités observés à plus basse température, ces précipités retardent probablement encore le mouvement des dislocations par épinglage au cours des essais de fluage (interactions indiquées par les flèches rouges sur la **Figure 4.29 c**). Par ailleurs, la présence de précipités fautés a été mise en évidence, ce qui indique la présence de borures.

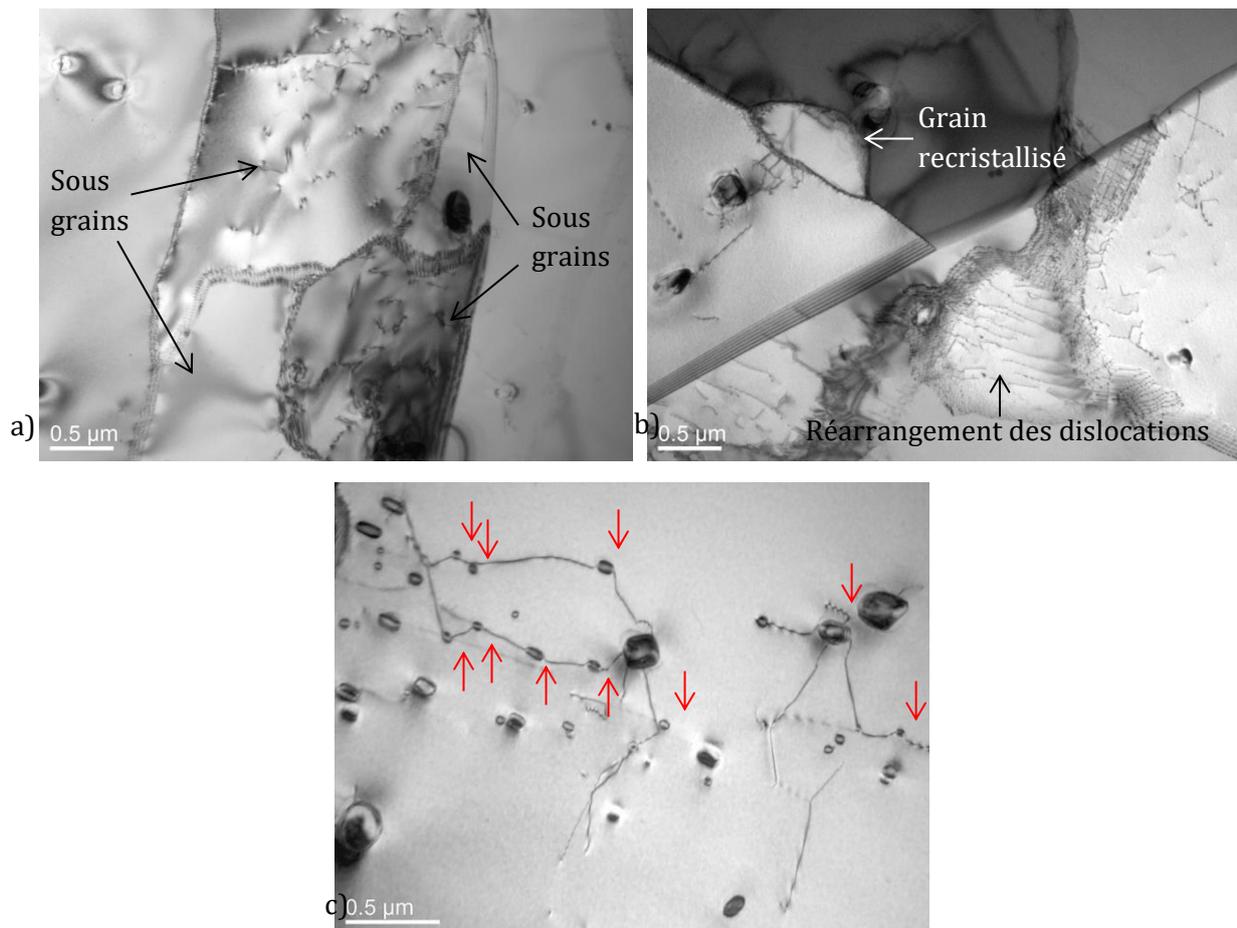


Figure 4.29 – Micrographies MET (champ clair) de l'éprouvette testée à 950°C sous 40 MPa (950_40_E2) montrant a) un réarrangement de dislocations en sous grains, b) un réarrangement de dislocations et un grain recristallisé, c) des précipités secondaires épinglant les dislocations.

L'état métallurgique de l'éprouvette pré-traitée à 1140°C puis testée sous 40 MPa a été observé au MET afin de déterminer la taille des structures de dislocations et d'observer une éventuelle précipitation des carbures de titane lors de l'essai de fluage à 950°C.

La zone observée au MET contient de nombreux sous-grains, comme le témoigne la cartographie combinant IQ et GOS, réalisée sur la lame mince (Figure 4.30 a). Cette cartographie a été réalisée afin de savoir si on pouvait détecter au MET des sous grains éventuellement non détectables en EBSD et de comparer, sur une même zone, les résultats obtenus pour les deux types d'observations. Les grains très déformés (grains rouges) sont des grains contenant des dislocations réarrangées et créées lors de l'essai de fluage (Figure 4.30 b et c). Les sous grains dans cette microstructure sont plus nombreux que pour la microstructure présentée sur la Figure 4.29.

L'état métallurgique de l'éprouvette pré-traitée à 1140°C puis testée sous 40 MPa est dépourvu de précipités secondaires, confirmant ainsi la dissolution complète des nano-TiC, éventuellement formés au chauffage mais pas des borures, puisque certains précipités fautés ont été observés. L'absence de précipités secondaires et l'absence de dislocations en début d'essai expliquerait une vitesse de déformation minimale plus élevée et un temps à rupture plus court.

Ce résultat permet également de confirmer qu'il n'y a pas de précipitation dynamique à 950°C sur les dislocations créées exclusivement lors de l'essai de fluage. Le mouvement et le réarrangement

des dislocations seraient probablement trop rapides du fait du manque d'obstacles par rapport à la cinétique de germination des précipités. Par ailleurs, la présence de carbone et de molybdène en solution solide pourrait augmenter la valeur de l'EDE (Lacombe, Baroux, et Béranger 1990; Schramm et Reed 1975) (**Partie 1.3** dans le **Chapitre 1**). Cette augmentation de l'EDE aurait pour conséquence de favoriser la mobilité des dislocations donc la restauration dynamique notamment en facilitant le glissement dévié.

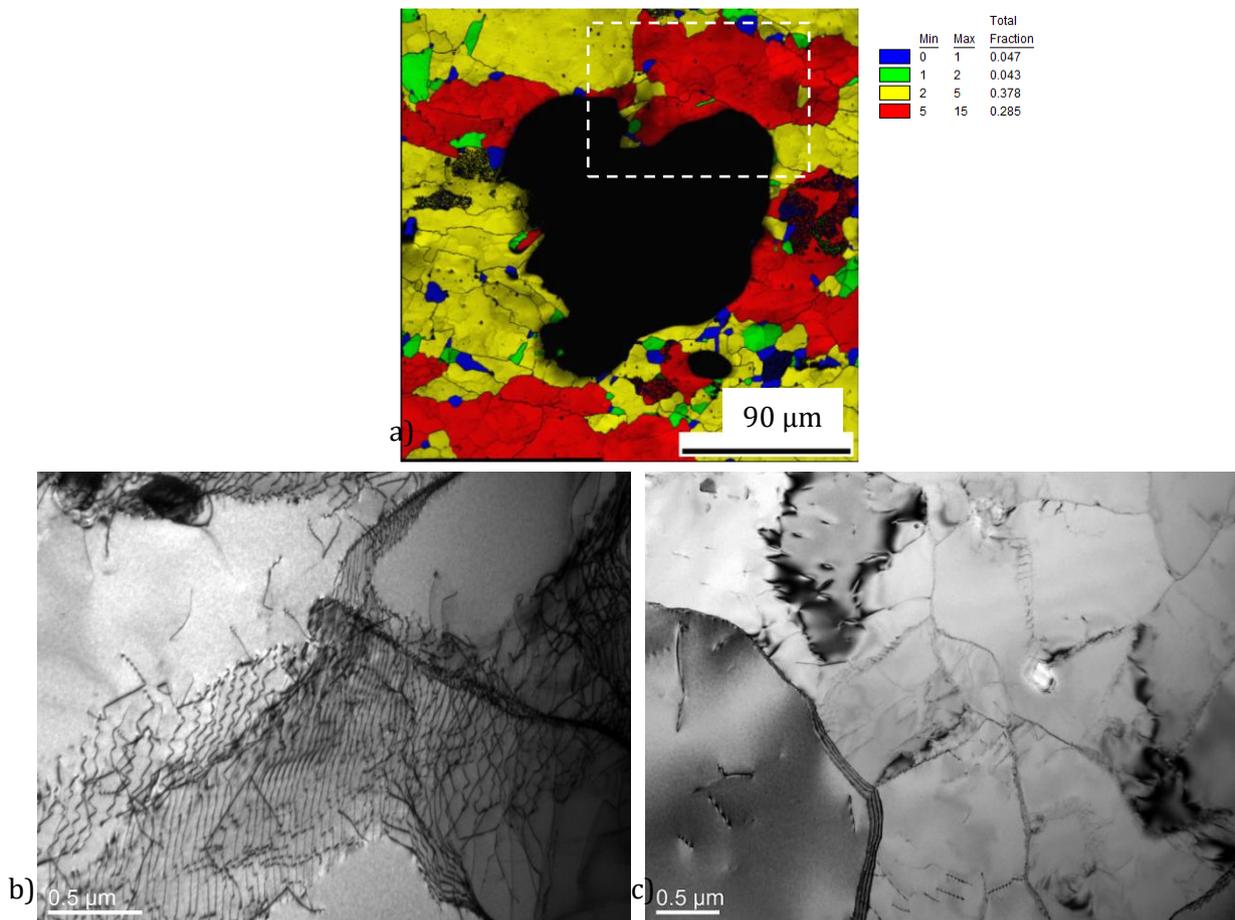


Figure 4.30 – a) Cartographie GOS et IQ (le rectangle blanc correspond à la zone où ont été prises les images des Figures 4.29 b et c), b) micrographie MET (champ clair) de réarrangement de dislocations pour former un sous-joint et c) micrographie MET (champ clair) de sous grains d'une lame mince prélevée sur l'éprouvette pré-traitée à 1140°C puis testée à 950°C 40 MPa.

4.2.2. Observation des coupes en zone de rupture

Les coupes longitudinales des éprouvettes en zone de rupture permettent de rendre compte de l'état microstructural final du matériau qui a donné lieu à la séparation de l'éprouvette en deux parties et dans des conditions de déformation et de vitesse de déformation bien différentes. L'état microstructural en zone de rupture est typique des éprouvettes testées à 40 MPa (**Figure 4.31**) et à 80 MPa (**Figure 4.32**), il est très différent de ce qui a été observé dans les zones éloignées de la rupture. Les grains sont très déformés et très allongés ce qui est dû à la forte déformation en zone de rupture.

L'absence de macles de déformation pourrait indiquer, comme pour la zone éloignée de la striction, qu'une phase de recristallisation s'est déjà déroulée pendant l'essai de fluage. Le mécanisme de recristallisation de l'éprouvette paraît plus complexe que celui observé avec traitements

thermiques simples sur l'état de réception (**Chapitre 2**), compte tenu de la présence de restauration dynamique pour l'éprouvette de fluage.

L'hypothèse d'une recristallisation continue paraît néanmoins être le mécanisme prépondérant du fait de la désorientation progressive de sous grains dont certains deviennent fortement désorientés par rapport à leur entourage. Cela peut être mis en évidence par l'apparition de petits grains bleus et verts (donc comportant peu de désorientations internes) et équiaxes, indiquant qu'il s'agit éventuellement de grains recristallisés (**Figure 4.31 b, c et d**).

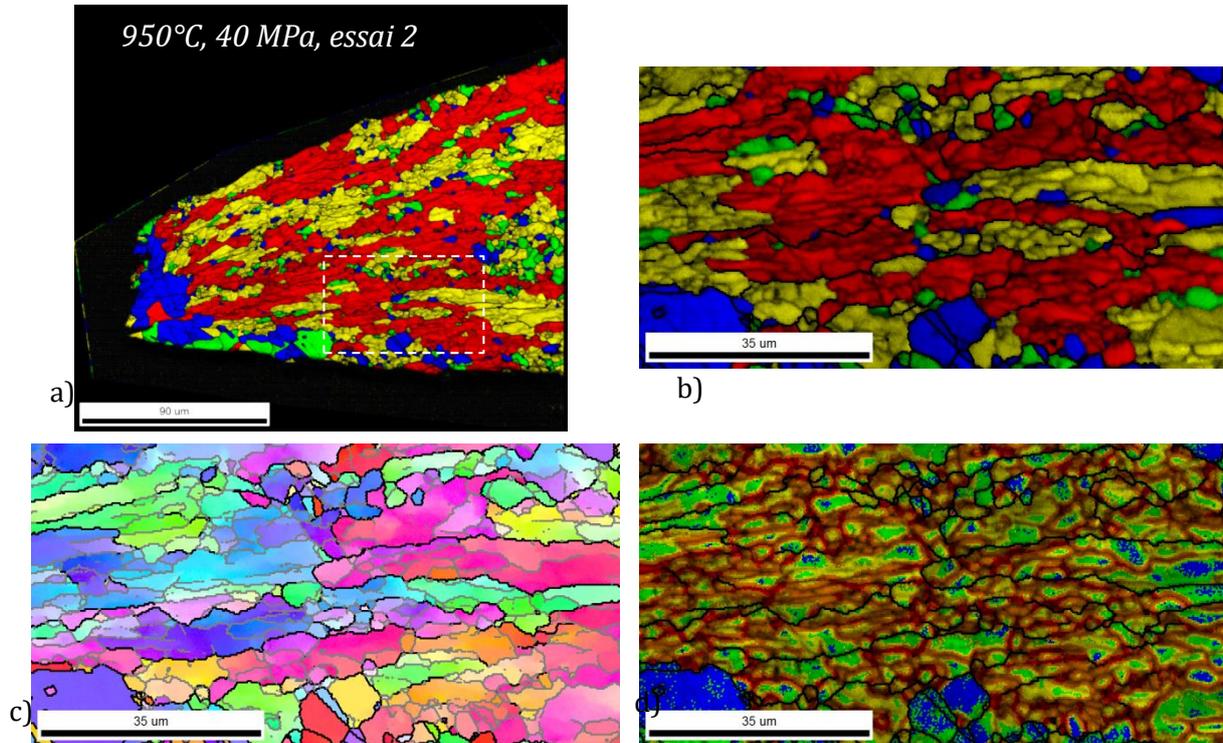


Figure 4.31 – a) Cartographie GOS, b) agrandissement de la cartographie a en représentation GOS et IQ, c) IPF, et d) KAM en zone de rupture de l'éprouvette testée à 950°C sous 40 MPa à partir de l'AIM1 de référence. Les joints représentés en gris sur l'IPF sont faiblement désorientés (entre 3° et 15°) et sont assimilés aux parois des sous grains. Les joints représentés en noir sont considérés comme des joints de grains, car ils séparent des grains fortement désorientés (>15°).

Par ailleurs, notons la présence de grains recristallisés situés immédiatement sous la surface de rupture. Leur diamètre est plus élevé que le diamètre des grains recristallisés un peu plus loin dans la zone de striction. Ces grains sont également équiaxes, contrairement aux grains voisins déformés. Cela indique qu'ils ont pu croître de manière relativement rapide en toute fin d'essai, évitant ainsi un nouvel écrouissage suite à la déformation rapide survenant en fin d'essai. La présence de ces grains recristallisés sous la zone de rupture est probablement une conséquence de la forte énergie dissipée due à la forte localisation des contraintes et des déformations à cet endroit.

La coupe de l'éprouvette testée à 80 MPa montre une microstructure très semblable à celle présentée sur la **Figure 4.31**. La présence de grains recristallisés sous la surface de rupture (**Figure 4.32 a**), tout comme l'apparition de sous grains dont certains fortement désorientés (**Figure 4.32 b**), sont constatées.

On peut considérer que la microstructure pour des sollicitations mécaniques intermédiaires (notamment pour les éprouvettes testées sous 50 MPa et 60 MPa) est similaire aux éprouvettes testées sous 40 MPa et 80 MPa.

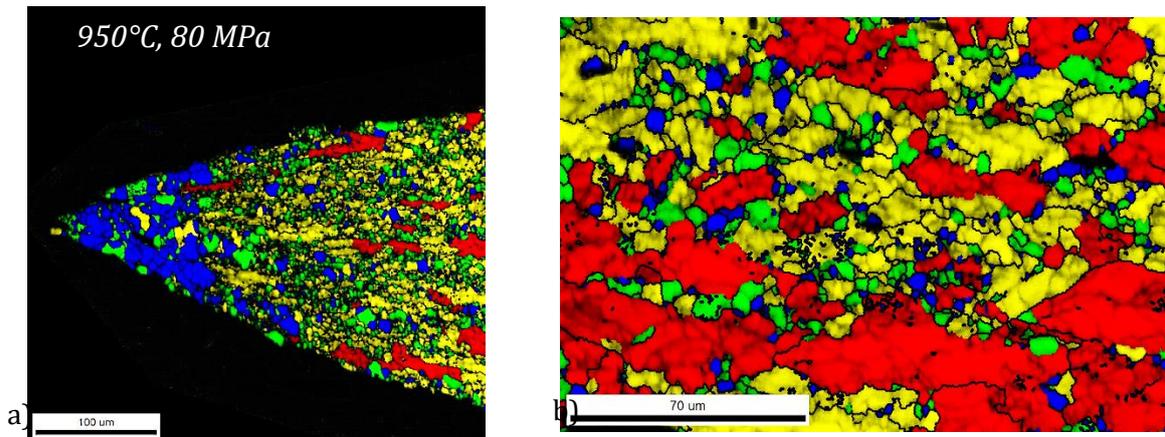


Figure 4.32 – Cartographies GOS et IQ a) sous la surface de rupture et b) dans la zone de striction, à environ 500 µm de la rupture.

Le **Tableau 4.4** permet de comparer les déformations et les vitesses de déformation en fin d’essai à 950°C sous une contrainte de 40 MPa avec celles déterminées par (Mandal et al. 2008) et (Sarkar et al. 2013). Pour rappel, ces auteurs avaient mis en évidence la présence de recristallisation dynamique pour ces conditions à chaud. Notons néanmoins que la déformation a été imposée dès le début des essais réalisés par les auteurs (Sarkar et al. 2013; Sumantra Mandal, Mishra, et al. 2008), alors qu’il s’agit de la déformation à striction dans le cas de cette thèse.

Auteurs/Essais	Déformation	Vitesse de déformation (h ⁻¹)
Mandal et al. 2008	0.10-0.50	720
Sarkar et al. 2013	0.50-0.70	7.2-720
950_40_E2	0.50	3.9
950_40_E3	0.53	6.2
950_40_1140_2min	0.50	1.5
950_40_1000_1h_E1	0.29	1.8
950_40_1000_1h_E2	0.40	0.3

Tableau 4.4 – Déformations totales et vitesses de déformation à l’apparition de la striction pour les essais en fluage réalisés dans le cadre de cette étude ; comparaison avec les essais de déformation à chaud réalisés par (Mandal et al. 2008) à 1000°C et (Sarkar et al. 2013) entre 900°C et 1200°C.

Les essais réalisés dans le cadre de cette thèse montrent une déformation totale similaire, mais une vitesse de déformation inférieure. Néanmoins, cette vitesse de déformation est du même ordre de grandeur que la plus faible vitesse de déformation testée par (Sarkar et al. 2013), la présence de recristallisation dynamique pour l’AIM1 est donc tout à fait possible lors de la phase finale d’un essai de fluage à 950°C sous 40 MPa.

Compte tenu de nos résultats sur l’AIM1, il est présenté sur la **Figure 4.33** les courbes de torsion (déformation rapide à chaud) obtenues par (Sarkar et al. 2013). Ces courbes permettent de caractériser la recristallisation dynamique pour un acier D9. Les résultats à 900°C et 1000°C montrent notamment un seul maximum de contrainte sur les courbes indiquant qu’il n’existe qu’une seule vague de recristallisation dynamique pour ces températures et pour la vitesse de déformation de 0,002 s⁻¹ (soit 7,2 h⁻¹).

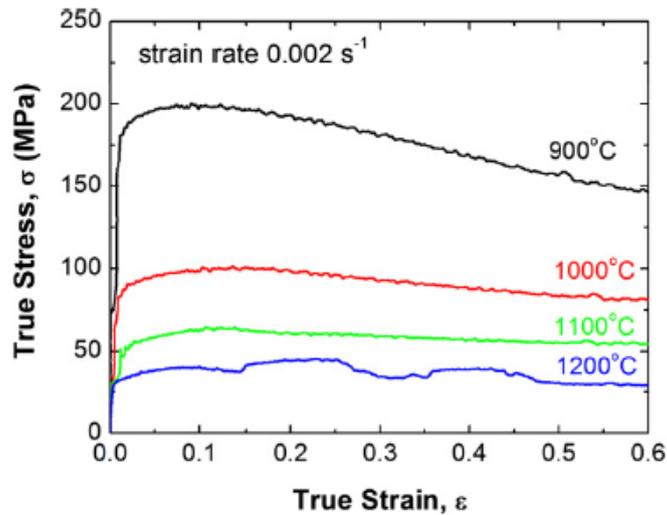


Figure 4.33 – Courbes de torsion de 900°C à 1200°C obtenues pour une vitesse de déformation de 0,002 s⁻¹ et une déformation de 0,6 (Sarkar et al. 2013).

La microstructure de l'éprouvette pré-traitée à 1000°C pendant 1 h puis testée à 950°C sous 40 MPa est présentée en coupe longitudinale sur la Figure 4.34. Cette microstructure en zone de rupture est similaire à celle observée sur l'AIM1 de réception après essai de fluage dans les mêmes conditions sans prétraitement. Notons que la surface de rupture n'est pas majoritairement constituée de gros grains recristallisés contrairement aux microstructures présentées sur les Figures 4.31 et 4.32.

Certaines cavités sont repérées par des flèches blanches sur la Figure 4.34. Ces cavités sont allongées, ce qui indique que le matériau se serait déformé en présence de cavitation. L'AIM1 a donc toléré la présence de ces cavités. Ces dernières auraient essentiellement participé à la rupture finale, ce qui expliquerait la présence de grosses cupules sur les TiC primaires.

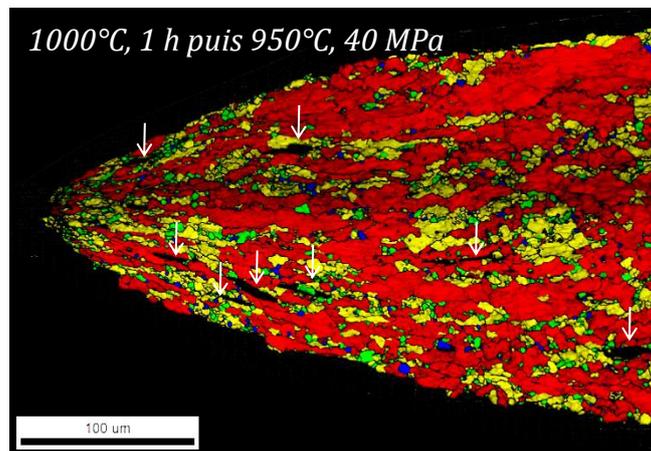


Figure 4.34 – Cartographie GOS et IQ en zone de rupture de l'éprouvette pré-traitée à 1000°C pendant 1 h puis testée à 950°C sous 40 MPa. Les flèches blanches mettent en évidence certaines cavités.

4.3. Evolution de la microstructure de l'AIM1 de référence au cours d'un essai de fluage : essais interrompus à 950°C sous 40 MPa

Afin d'étudier les évolutions microstructurales au cours d'un essai de fluage, des essais interrompus ont été réalisés et suivis par l'expertise destructive des éprouvettes. Le choix des temps des essais interrompus a été fait au vu des résultats montrant la cinétique de recristallisation à 950°C présentés dans le [Chapitre 2](#) et au vu des résultats de fluage présentés dans ce chapitre. La recristallisation après recuit à 950°C sans contrainte appliquée commence à partir de 30 min et est quasiment totale au bout de 2 h. Le but est donc de déterminer l'influence de la contrainte sur l'évolution microstructurale après des essais de 30 min, 1 h, 2 h et après un essai complet sous 40 MPa (3,6 h). La contrainte de 40 MPa a été choisie car elle mène à des essais assez longs avec une déformation à rupture élevée ce qui permet de les interrompre à des temps éloignés sans risquer la rupture inopinée des éprouvettes (stade tertiaire très stable). La vitesse de refroidissement est suffisamment rapide (200°C/min jusqu'à 400°C) pour figer la microstructure. La microstructure expertisée peut être considérée comme étant celle obtenue lors de l'essai de fluage.

Les courbes de fluage des 3 essais interrompus ainsi que la courbe de fluage de l'essai complet E3 sont superposées sur la [Figure 4.35](#). Ces essais sont reproductibles avec un écart maximum de 0,30 h pour une même déformation.

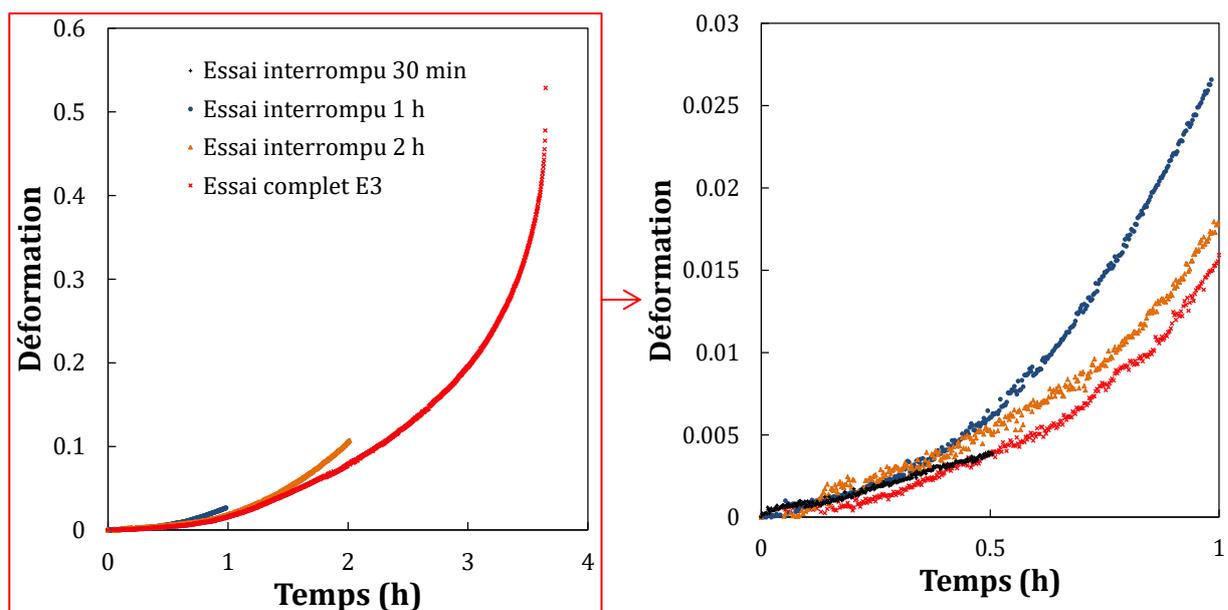


Figure 4.35 – Courbes de fluage superposées des essais interrompus pendant 30 min, 1 h, 2 h et l'essai complet testé sous 40 MPa.

La [Figure 4.36](#) présente l'évolution microstructurale lors de ces essais interrompus, les courbes de déformation en fonction du temps pour chaque essai sont présentées à droite de la figure.

La recristallisation totale arrive très rapidement sous contrainte : dès les 30 premières minutes ($\epsilon = 0,004$), la microstructure est déjà quasiment recristallisée. Ces 30 premières minutes correspondent au début du stade tertiaire en fluage. En observant l'évolution de la courbe de fluage, à droite de la [Figure 4.36](#), on peut noter que la vitesse de déformation ne fait qu'augmenter à partir de 30 min avec un allongement qui augmente de manière significative après ce temps. On note également un léger décrochement de la courbe en tout début d'essai, qui semble se dérouler entre le stade primaire et secondaire. Ce décrochement est difficilement visible sur les autres

courbes des essais interrompus. Ce décrochement visible pour l'essai interrompu au bout de 30 min serait *a priori* lié au bruit de la mesure.

Après une heure d'essai, la microstructure recrystallise davantage sans qu'un nouvel écrouissage soit significatif sous 40 MPa (cartographie totalement bleue, GOS < 1°) ($\epsilon = 0,027$). Au bout de 2 h d'essai, les grains se ré-écrouissent lors de l'essai (l'allongement total est augmenté de 0,08 par rapport à 1 h d'essai interrompu).

Compte tenu de l'état microstructural à rupture, une seule phase de recrystallisation s'est probablement déroulée lors de l'essai à 40 MPa avec éventuellement un nouveau début de recrystallisation en toute fin d'essai. L'énergie stockée par la création des dislocations pendant l'essai n'a donc pas été suffisante pour voir différentes phases de recrystallisation apparaître.

Par rapport à son état initial et malgré une éventuelle précipitation de TiC secondaires (confirmée d'après la [Figure 4.29](#)), l'acier a ainsi été adouci (du fait de la recrystallisation) dès le début du tertiaire ce qui pourrait expliquer le fort allongement tout au long de ce stade. Par ailleurs, bien que le matériau évolue principalement dans le stade tertiaire, très peu d'endommagement a été constaté. Ce constat rejoint les principales conclusions présentées dans la [partie 4.1](#) de ce chapitre concernant l'effet d'histoire du matériau à cette température. Le stade tertiaire serait ainsi apparenté à un tertiaire d'adoucissement avec la présence de phénomènes de restauration dynamique lors des essais de fluage.

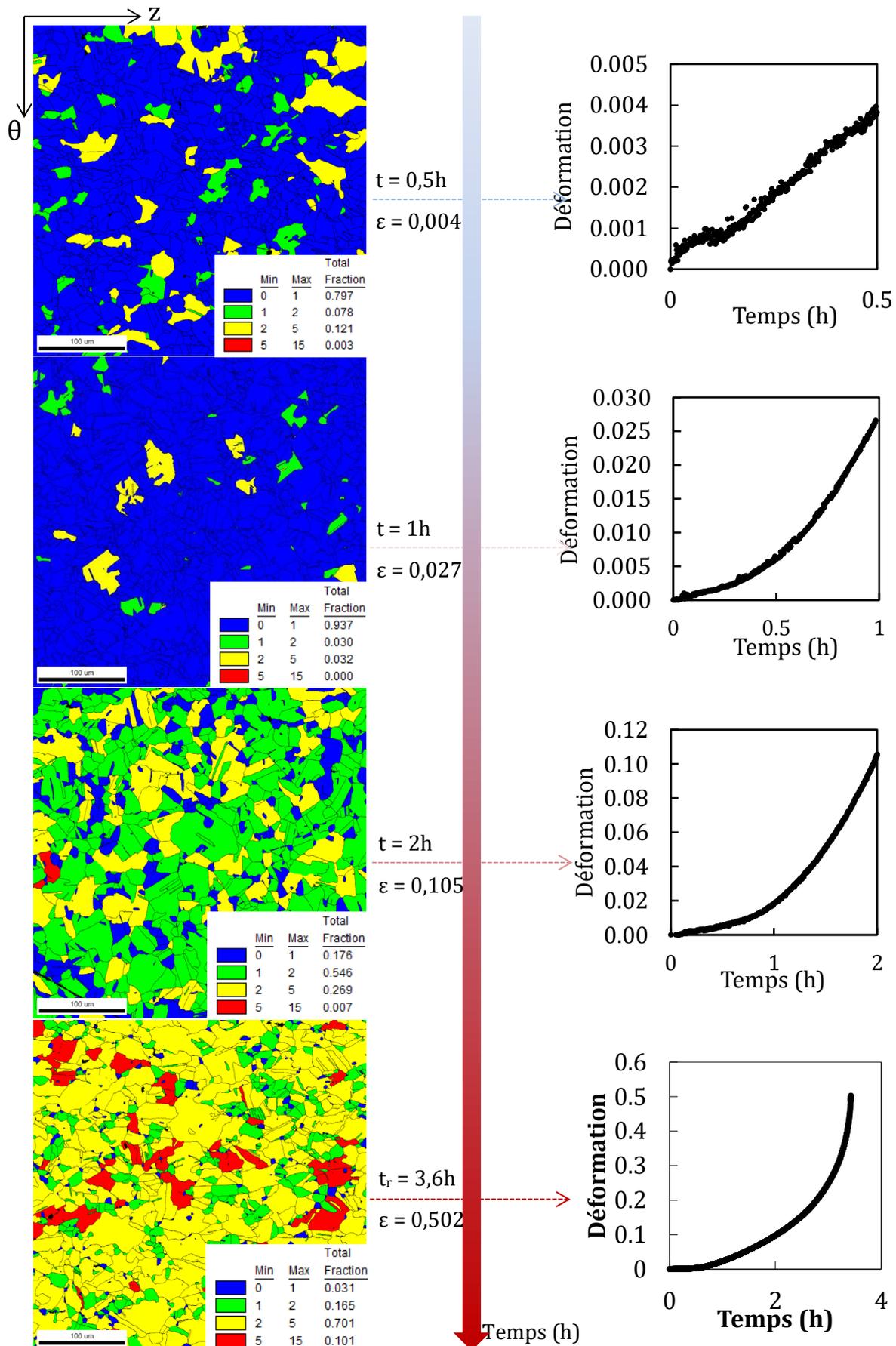


Figure 4.36 – Evolution de la microstructure par comparaison des cartographies GOS des essais interrompus au bout de 30 min, 1 h, 2 h et de l'essai complet à 950°C sous 40 MPa. Les courbes de déformation au cours du temps correspondantes sont présentées à droite de la figure.

Les courbes de fluage représentant la déformation en fonction du temps ne permettent pas de détecter directement la recristallisation lors des essais de fluage, comme il avait été observé auparavant dans la thèse de (Zhang 2014) sur un alliage Fe-41%Ni. Par ailleurs, (Zhang 2014) a pu mettre en évidence la présence d'un stade secondaire plus stable que celui obtenu pour l'AIM1. L'auteur a pu déterminer un coefficient de Norton de n valant 1 pour un matériau en cours de recristallisation lors de l'essai de fluage et un coefficient de 4 pour un matériau déjà recristallisé. Ce résultat est présenté sur la **Figure 4.37** où « RIP » désigne un matériau en cours de recristallisation et « stationnaire » désigne un matériau déjà recristallisé. La pente des deux courbes indique la valeur du coefficient de Norton associée. Bien que l'alliage étudié par (Zhang 2014) ne soit pas de même composition que l'AIM1, le coefficient de Norton de 1 est identique à celui déterminé par (Petersen, Schanz, et Leistikow 1988) sur le DIN 1.4970. Cette analogie pourrait faire penser que la valeur de n égale à 1 serait un bon indicateur de recristallisation dynamique en cours d'essai, ce qui est le cas pour l'AIM1 à 950°C.

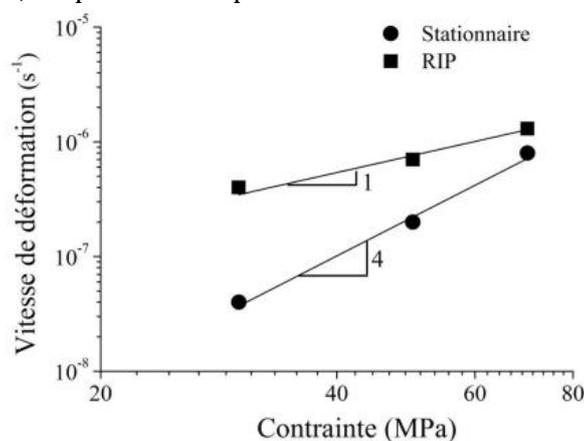


Figure 4.37 – Courbes de vitesse de déformation en fonction de la contrainte déterminées pour l'alliage Fe41%Ni⁵¹ écroui de 30% par laminage à froid, d'après (Zhang 2014). La température des essais est de 630°C et les éprouvettes ont été testées dans le sens de laminage sous 30, 50 et 70 MPa.

L'observation de la précipitation et de l'état métallurgique des éprouvettes après essais interrompus au bout de 30 min et de 2h a été réalisée au MET.

La **Figure 4.38** présente la microstructure de l'éprouvette testée à 950°C sous 40 MPa pendant 30 min. La comparaison des **Figures 4.38 a** et **b** (même grandissement) montre la présence de nano-précipités. Ces images montrent également l'épinglage des dislocations par ces précipités. L'hétérogénéité en taille est également mise en évidence sur la **Figure 4.38 c**, où l'on retrouve l'alignement de précipités sur d'anciens joints de macles, de la même manière que pour les états traités thermiquement et totalement recristallisés. Des zones avec des précipités plus petits entre deux ex-joints de macles sont observées, il semble y avoir une déplétion entre les deux alignements de précipités et la population de petits précipités. En plus de retrouver des hétérogénéités en termes de taille, les précipités sont répartis de manière hétérogène dans l'espace, comme le montre la **Figure 4.38 d** avec l'absence de précipités autour des précipités alignés. Par ailleurs, la matrice est totalement recristallisée, et peu de réarrangement de dislocations a été observé.

⁵¹ Alliage de composition : 0,003C-0,42Mn-0,09Si-0,003S-41,3Ni-0,03Cr-0,02Cu-0,01Mo-0,10Co-0,003N₂.

La **Figure 4.39** présente la microstructure de l'éprouvette ayant été testée à 950°C sous 40 MPa pendant 2 h. La taille et la répartition spatiale des nano-précipités sont restées tout aussi hétérogènes que dans la microstructure de l'éprouvette présentée sur la **Figure 4.38** (cf. **Figure 4.39 a**). L'image de la **Figure 4.39 a** illustre le réarrangement des dislocations et l'image de la **Figure 4.39 b** illustre une paroi de sous grains. Ces observations confirment les résultats obtenus en EBSD, en mettant en évidence un ré-écrouissage de la matrice et un réarrangement dynamique des dislocations pour former des sous joints.

Les essais interrompus ont pu mettre en évidence un état métallurgique complètement recristallisé en zone utile dès les 30 premières minutes de l'essai (ce qui correspond à la fin du stade secondaire en fluage). Ce résultat indique une accélération de la cinétique de recristallisation sous contrainte, par comparaison avec les résultats sur échantillons recuits (**Chapitre 2**). A partir de 2 h d'essai sous 40 MPa à 950°C, l'éprouvette déformée de 0,105 génère de nouvelles dislocations qui se restaurent dynamiquement pour créer des sous-joints. L'éprouvette ayant subi un essai complet semble s'être recristallisée une fois puis s'est ensuite redéformée au cours du fluage.

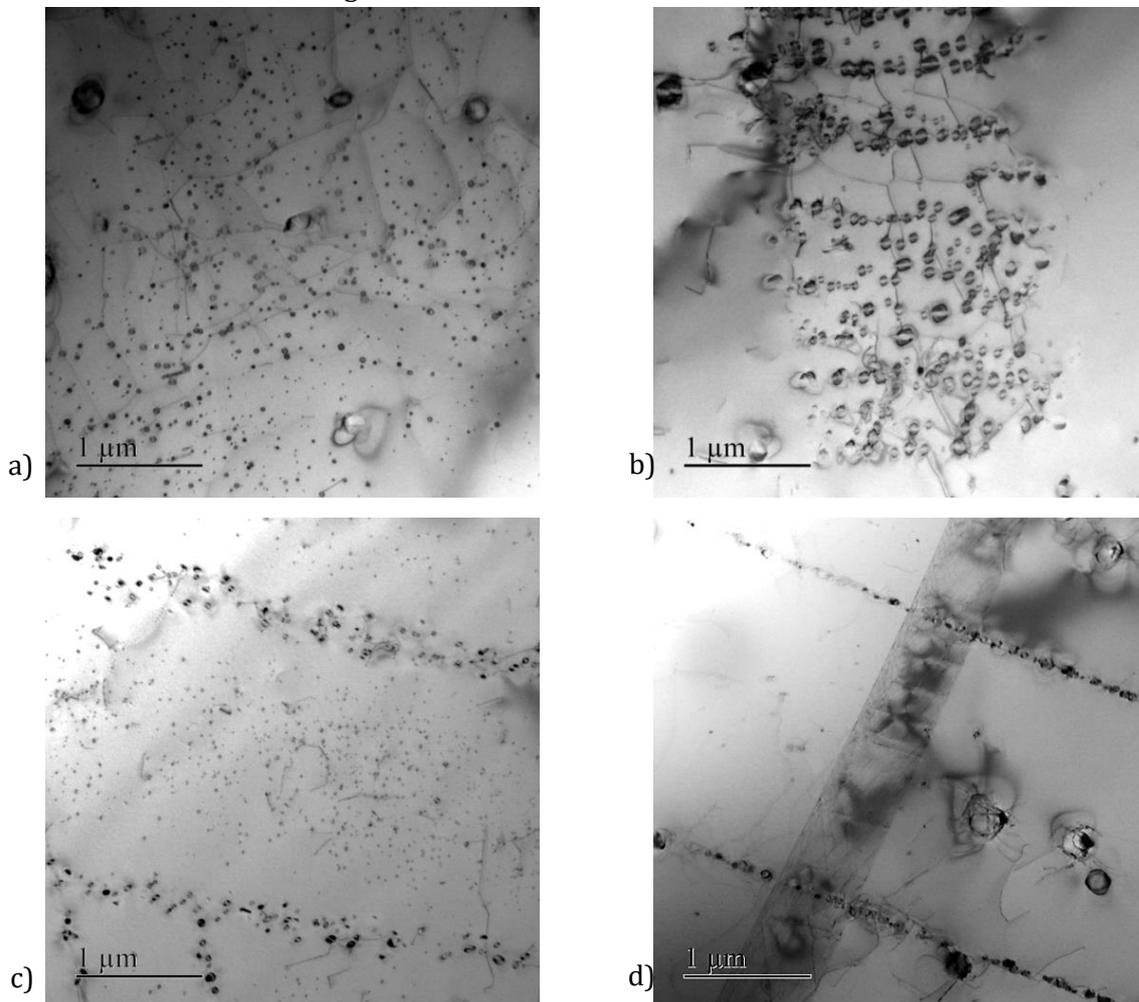


Figure 4.38 – Micrographies MET (champ clair) a) d'une zone dense en précipités, b) d'une zone montrant un sous-joint avec des précipités localisés et retenant les dislocations, c) d'une zone montrant l'hétérogénéité de taille des nano-précipités et l'alignement de précipités plus grossiers selon des anciens joints de macles et d) d'une zone montrant l'alignement de précipités sur d'anciens joints de macles et l'absence de nano précipités autour, pour l'essai interrompu au bout de 30 min (950°C, 40 MPa), ($\epsilon=0,004$).

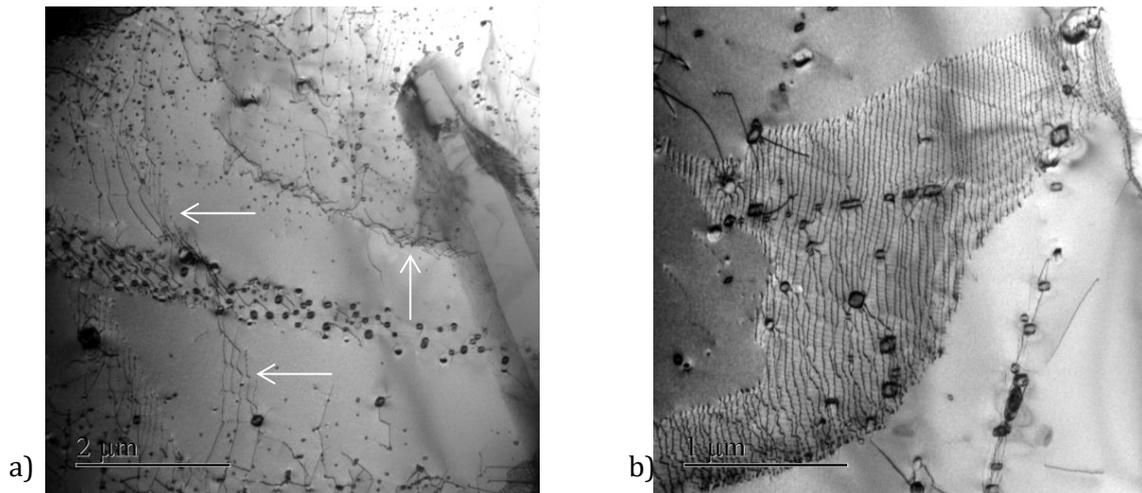


Figure 4.39 – Micrographies MET (champ clair) a) d'une zone contenant des précipités de répartition spatiale et de tailles hétérogènes (les flèches blanches indiquent le réarrangement de dislocations) et b) d'une paroi de sous grain formée pendant l'essai interrompu au bout de 2 h (950°C, 40 MPa), ($\epsilon=0,105$).

Pour compléter ces informations, des expertises ont aussi été faites au niveau des congés des éprouvettes afin d'apprécier les seuils de contrainte donnant lieu à une recristallisation accélérée (Figure 4.40).

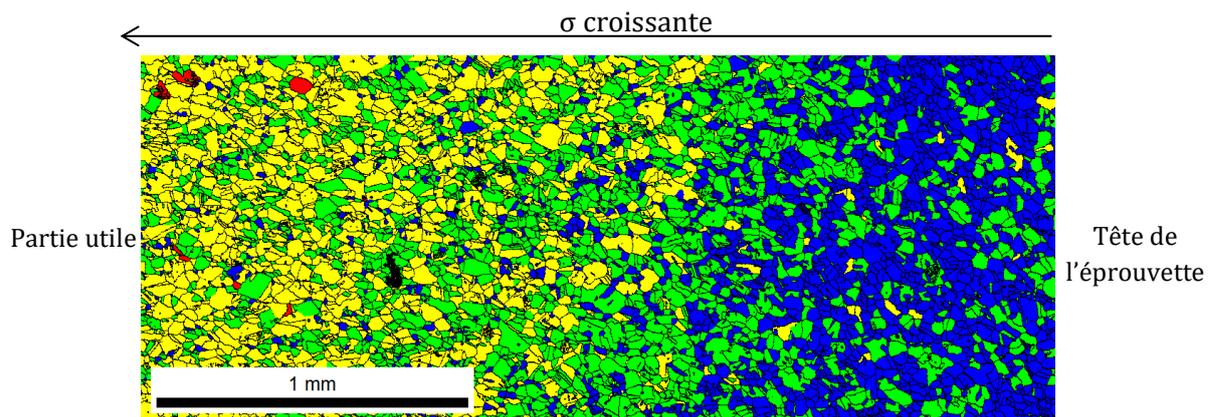


Figure 4.40 –Cartographie GOS réalisée au niveau d'un congé de l'éprouvette 950_40_1140_2min.

La microstructure des têtes des éprouvettes (contrainte de 10 MPa sur les têtes pour un essai à 40 MPa sur la partie utile) expertisées après les différents essais interrompus ne montre pas d'accélération de la recristallisation (par rapport à un recuit seul) et ne donne pas lieu à une évolution significative du GOS après recristallisation (l'éprouvette ne se déforme pas suffisamment à cet endroit-là au cours de l'essai).

L'expertise du fût de l'éprouvette testée pendant 30 min sous une sollicitation de 80 MPa montre une microstructure totalement recristallisée en début de stade tertiaire, tout comme la microstructure de l'éprouvette interrompue au bout de 30 min sous 40 MPa. Il est cependant difficile d'affirmer si la recristallisation a eu lieu plus tôt sous 80 MPa que sous 40 MPa.

Pour ce qui est de la précipitation à 950°C sous une charge de 40 MPa, les nano précipités ne subsistent principalement que près des défauts tels que :

- Les joints de macles (diamètre des précipités d'environ 50 nm sur la Figure 4.38 d) ;

- Les sous-joints (diamètre des précipités d'environ 80 nm) : la **Figure 4.38 b** semblerait indiquer que tous les précipités situés sur un même sous-joint ont la même orientation cristalline.

Certains précipités sont observés hors de ces défauts mais sont observés essentiellement sur les dislocations (soit par précipitation sur les dislocations, soit par épinglage des dislocations par les précipités).

Ces résultats indiqueraient une dissolution-reprécipitation et donc une diffusion significative du titane et du carbone dans la solution solide. Comme pour l'éprouvette pré-traitée à 1140°C (remise en solution des TiC secondaires), cela aurait pour conséquence d'augmenter l'EDE et donc de favoriser davantage la restauration dynamique. Il faut néanmoins nuancer cette hypothèse, dans la mesure où les éprouvettes pré-traitées à 1000°C possèdent des nano-TiC grossiers et présentent une restauration dynamique.

4.4. Conclusion concernant le comportement en fluage à 950°C

Le comportement mécanique en fluage à 950°C de l'AIM1 écroui montre des vitesses de déformation minimales comprises entre $4 \cdot 10^{-3}$ et $6 \cdot 10^{-2} \text{ h}^{-1}$ et un allongement pouvant atteindre 0,5 avant striction, ce qui est cohérent par rapport à l'état de l'art. La rupture est 100% ductile, ce qui est confirmé par les coupes métallographiques des éprouvettes qui montrent une rupture en forme de pointe (épuisement de la déformation) et très peu de cavités initiées sur les précipités primaires.

Afin de déterminer l'effet de la précipitation et de la recristallisation préalables sur le comportement viscoplastique à 950°C de l'acier, des essais sur éprouvettes pré-traitées thermiquement ont été réalisés. Les résultats permettent de quantifier l'effet bénéfique de l'écrouissage à froid et de la précipitation en service sur la stabilité de la structure de dislocations. En effet, la vitesse minimale en fluage d'un état écroui est de 24 fois inférieure à celle d'un état « hypertrempé ». La présence des nano-précipités dans une matrice recristallisée, même d'une taille supérieure à 30 nm, permet de résister davantage au fluage par rapport à un état « hypertrempé » sans nano-précipités. La vitesse minimale en fluage est néanmoins multipliée par 5,5 pour le matériau précipité et recristallisé par rapport à un essai sur matériau écroui mais le temps à rupture reste plus élevé du fait d'un stade tertiaire particulièrement stable.

Des essais interrompus ont permis de mettre en évidence une recristallisation sous 40 MPa, dès 30 min de maintien. Le matériau est déjà très adouci mais il contient des précipités encore durcissants permettant d'épingler les dislocations créées lors de l'essai de fluage. Cette recristallisation au cours des essais de fluage n'est pas directement visible sur les courbes et serait probablement un élément favorisant le fort allongement obtenu à cette température. Des mécanismes de restauration dynamique ont été mis en évidence par la présence de sous-joints, la recristallisation dynamique quant à elle est caractérisée par une morphologie en collier et la présence de joints ondulés.

5. Interactions entre évolution microstructurale et comportement viscoplastique à haute température

5.1. Relecture des courbes de fluage à la lumière de l'évolution microstructurale

Une comparaison des microstructures des éprouvettes des essais interrompus à 950°C (Figure 4.36) avec les microstructures des échantillons recuits à 950°C (Chapitre 2) a été réalisée. Les essais de fluage ont mis en évidence une accélération de la recristallisation due à la sollicitation mécanique. Les cartographies EBSD montrent une recristallisation quasi-totale pour l'essai interrompu au bout de 30 min, alors que lors d'un recuit simple à 950°C, seul un début de recristallisation a été observé. La Figure 4.41 permet de comparer les cinétiques de recristallisation des états recuits et la cinétique de recristallisation sous une contrainte de 40 MPa (essais interrompus au bout de 10 min, de 30 min et de 1 h). Les points décrivant la cinétique de recristallisation sous 40 MPa à 950°C décrivent la même cinétique que lors des recuits à 1000°C sans contrainte appliquée.

Concernant les mécanismes de restauration, nous avons fait part d'une restauration statique rapide à 850°C et à 950°C et des difficultés cependant rencontrées pour l'observation de sous grains après recuits (Chapitre 2). Par conséquent, la restauration statique a été évaluée par diffraction des neutrons en l'absence de sous-grains observables. Lors des essais de fluage, le réarrangement des dislocations lors de la restauration dynamique est bien visible au MET, voire au MEB/EBSD (diamètre des sous grains de l'ordre du micromètre). Ces différences pourraient s'expliquer car l'état écroui contient beaucoup de dislocations, ce qui implique une énergie stockée élevée et donc une cinétique de recristallisation rapide. Pour les essais de recuit, aucune cellule de restauration n'est observée, ce qui était probablement dû à l'enchevêtrement des dislocations et leur stabilité liée à leur épinglage par les nano-précipités. Pendant les essais de fluage, après la recristallisation totale, les précipités sont répartis de manière hétérogène et sont plus gros et les dislocations sont moins nombreuses. Lors des essais de fluage à 950°C, le matériau recristallise très rapidement, les sous joints observés sont donc obtenus à partir de dislocations créées au fur et à mesure de la déformation lors de l'essai de fluage et non celles, initialement enchevêtrées et plus nombreuses, laissées par l'écrouissage à froid.

Concernant la recristallisation, elle se manifeste par une germination aux joints triples lors de recuits (recristallisation discontinue) et semble se dérouler par une désorientation progressive des sous grains (recristallisation continue) lors des essais de fluage. En zone de rupture, la vitesse de déformation passe d'environ $4.10^{-3}h^{-1}$ (stade secondaire) à environ $4 h^{-1}$ (fin d'essai). La déformation augmente également de 0,01 (fin du stade secondaire) à 0,50 (fin d'essai), ce qui permet d'observer les phénomènes de recristallisation dynamique du fait que pour ces vitesses, la restauration dynamique n'est pas assez rapide pour dissiper l'énergie accumulée dans les dislocations. Cette recristallisation dynamique est caractérisée par la présence de joints de grains dentelés et par l'apparition de nouveaux grains répartis en collier.

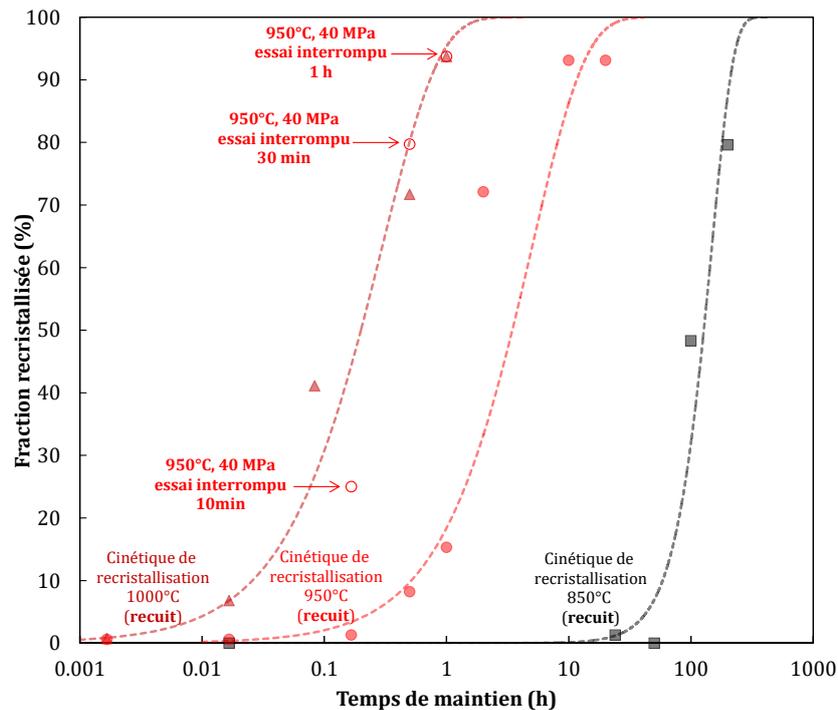


Figure 4.41 – Cinétiques de recristallisation après recuits à 850°C, 950°C et 1000°C comparées avec la cinétique de recristallisation à 950°C sous contrainte de 40 MPa (cercles évidés).

5.2. Conclusion sur l'interaction entre l'évolution microstructurale et le comportement viscoplastique à haute température

En comparant les microstructures d'échantillons recuits et d'éprouvettes testées à chaud lors d'essais de fluage, une accélération de la recristallisation due à la contrainte appliquée a été montrée. La cinétique de recristallisation lors d'un essai de fluage à 950°C sous 40 MPa peut être recalée sur la cinétique de recristallisation des recuits réalisés à 1000°C.

Par ailleurs, les mécanismes d'adoucissement sans et avec contrainte appliquée à haute température sont différents. Il a été mis en évidence une restauration dynamique, caractérisée par un réarrangement des dislocations en sous grains, après recristallisation lors des essais de fluage. La recristallisation dynamique a tendance à être continue en fluage alors qu'avec un recuit simple une germination aux joints triples a été mise en évidence (recristallisation statique discontinue).

Par ailleurs, la restauration dynamique, fortement adoucissante, pourrait expliquer le stade tertiaire si prononcé et en particulier l'effet d'histoire observé à 950°C (relation non unique entre la contrainte vraie et la vitesse de déformation viscoplastique vraie).

6. Conclusion concernant le comportement en fluage de l'AIM1 à 850°C et à 950°C

Les résultats des essais de fluage et des expertises des éprouvettes associées permettent d'affirmer que :

1. La **déformation** produit un allongement important des grains et une désorientation interne élevée. A 850°C l'état d'**écrouissage** est plus élevé par rapport à l'état initial tandis qu'à 950°C, la tête de l'éprouvette est essentiellement recristallisée et le fût est écroui. Ceci suggère que les essais à 950°C sollicitent un matériau en cours de recristallisation, voire un matériau totalement recristallisé en début de stade tertiaire, comme le montrent les essais interrompus.
2. Le **mécanisme de déformation principal** à 850°C est régi par le mécanisme de fluage des dislocations, compte tenu de l'allongement élevé des grains et la valeur du coefficient de Norton déterminés pour cette température (coefficient égal à 5), ce qui est cohérent avec les données présentes dans la littérature.
A 950°C, la valeur de n vaut 1 et s'interprète par de la recristallisation lors des essais de fluage. La déformation est également contrôlée par le fluage des dislocations à 950°C.
3. La **rupture** est ductile dans tous les cas, avec une réduction d'épaisseur à rupture élevée à 850°C et quasiment totale à 950°C. Les rares cupules trouvées sont de grande taille. Elles ont été formées à partir de carbonitrides primaires. L'absence d'endommagement significatif suggère que les cupules se sont formées tardivement dans le processus de rupture.
4. L'observation sur coupe polie révèle qu'un important adoucissement intervient en fin de vie des éprouvettes avec de la **restauration dynamique** et, tout près de la rupture, de la **recristallisation dynamique** mise en évidence par la présence de grains dentelés. L'occurrence de ces phénomènes est certainement sensible aux conditions de déformation à partir du moment où l'éprouvette atteint un état d'instabilité plastique. Elle dépend donc du mode de sollicitation et les résultats obtenus ici en traction uniaxiale ne sont pas directement transposables à un cas de chargement en pression interne. Cette recristallisation dynamique a également été observée dans l'état de l'art lors des essais de déformation à chaud dans des conditions expérimentales analogues, en accord avec les résultats obtenus dans cette thèse.
5. L'**effet d'histoire** est très marqué avec un matériau de plus en plus adouci pendant l'essai de fluage. L'augmentation de la contrainte vraie n'explique pas à elle seule l'évolution de la déformation dans le long stade tertiaire. L'état recristallisé n'évolue que dans le stade tertiaire à 950°C sous 40 MPa. Ce résultat indique un comportement de l'AIM1 assez instable pour ces conditions. Un pré-traitement à 1140°C pendant 2 min avant essai de fluage accélère significativement la vitesse minimale de déformation en fluage par rapport aux essais réalisés sur les éprouvettes non pré-traitées. Un pré-traitement à 1000°C pendant 1 h avant essai augmente la vitesse minimale de déformation en fluage mais augmente le temps à rupture par rapport aux essais réalisés sans pré-traitement (tertiaire plus stable). Ces résultats montrent l'effet bénéfique des carbures de titane secondaires sur le comportement en fluage, même si leur taille excède 30 nm en début d'essai pour l'état pré-traité thermiquement à 1000°C pendant 1 h. Les caractérisations microstructurales de l'éprouvette pré-traitée à 1140°C ont permis de mettre en évidence la présence d'une forte restauration dynamique et

l'apparition de joints dentelés lors des essais de fluage à 950°C. Ce phénomène pourrait s'expliquer par une modification de l'EDE due à l'augmentation de la teneur de certains éléments en solution solide (notamment le carbone) par rapport aux autres éprouvettes contenant encore des carbures de titane.

Aucun changement de mode de rupture ou d'endommagement significatif n'a été observé entre les éprouvettes pré-traitées et les éprouvettes non pré-traitées.

6. Dans le régime de température et de contrainte étudié, **aucune précipitation sur les dislocations** créées lors de la déformation viscoplastique n'a été observée sur l'éprouvette dont les nano-précipités ont été remis en solution avant essai de fluage.

Conclusion générale et perspectives

1. Conclusion générale

Les objectifs des travaux de cette thèse ont été d'approfondir les connaissances en termes d'évolutions microstructurales et de comportement viscoplastique de l'AIM1 à des températures supérieures ou égale à 650°C.

- Etude du matériau hypertrempé et du matériau de référence (hypertrempé puis écroui à froid) :

Le traitement thermique d'hypertrempe permet une recristallisation complète et une sursaturation de la solution solide en éléments comme le titane, le carbone et le chrome. La précipitation typique de l'état hypertrempé est constituée de carbures de titane et de carbonitrides de titane dits primaires n'ayant pas pu être dissous lors de ce traitement thermique. Aucun carbure de chrome n'a été observé pour cet état, ce qui permet de confirmer l'efficacité de ce traitement. La valeur de microdureté pour l'état hypertrempé vaut 156 HV_{0,1} en moyenne.

L'écroissage à froid des gaines est réalisé dans le but de favoriser la précipitation de carbures de titane sur les dislocations lors de recuits thermiques ou lors de l'irradiation. Cela permet notamment de mieux stabiliser le réseau de dislocations pour limiter le gonflement d'irradiation mais aussi pour retarder les phénomènes de restauration et de recristallisation. Notre caractérisation microstructurale de l'état écroui a montré la présence d'une forte densité de dislocations et de macles fines appelées macles de déformation. Les macles de recuit héritées du traitement thermique d'hypertrempe sont également présentes, mais possèdent des joints plus courbés que ceux observés pour l'état hypertrempé. Le maillage mécanique de l'AIM1 pendant l'écroissage à froid indique une faible EDE à température ambiante (probablement < 50mJ/m²) pour ce matériau. Nous avons mesuré une valeur moyenne de la microdureté de l'AIM1 écroui de 20% à froid égale à 282 HV_{0,1}. La dispersion sur la mesure de microdureté est très élevée (environ 30 HV_{0,1} entre la valeur minimale et la valeur maximale), ce qui suggère que la microstructure de ce matériau dit de référence est très hétérogène.

- Evolutions métallurgiques lors de recuits entre 650°C et 1000°C :

Les recuits de l'AIM1 ont permis de compléter et formaliser les données disponibles sur l'évolution microstructurale du matériau, dans une plage de température et de temps de maintien conséquente.

Lors d'un recuit à 650°C et 750°C, aucune recristallisation du matériau n'est observée pour les temps de maintien considérés, inférieurs à 3000 h.

La valeur de microdureté moyenne à 650°C est égale à celle de l'état de réception pour des temps de maintien jusqu'à 100 h. Or, les mesures par diffraction des neutrons indiquent une diminution de la densité de dislocations de 30% par rapport à l'état de référence. La valeur de dureté obtenue à 650°C peut s'expliquer par la précipitation des carbures de titane nanométriques dès les premières minutes de maintien, qui aurait un effet durcissant non négligeable.

A 750°C la dureté diminue de manière progressive pour atteindre une valeur de 224 HV_{0,1} au bout de 3000 h de maintien. Le suivi de la densité de dislocations à cette température indique que

l'évolution de la dureté est principalement contrôlée par la restauration. Au bout de 100 h de maintien à 750°C, plus de la moitié des dislocations ont été perdues par rapport à l'état de référence. La faible diminution de dureté moyenne, de 20 HV_{0,1} par rapport au matériau de référence à l'état écroui, indique que le durcissement par précipitation ne compense plus l'adoucissement lié à la restauration à partir de 100 h de maintien à 750°C (par comparaison avec les recuits à 650°C).

Lors de recuits à 850°C, 950°C et 1000°C les cinétiques de restauration sont plus rapides par rapport à 750°C. Un recuit de 0,5 h 850°C fait diminuer la dureté de 30 HV_{0,1} et la densité de dislocation de 64% par rapport à l'état de référence. Un temps de maintien de 50 h à 850°C permet d'obtenir une restauration quasi-complète du matériau (dureté moyenne égale à 230 HV_{0,1}). A 850°C, la moitié des grains sont recristallisés au bout de 100 h. A 950°C, la recristallisation débute dès les 30 premières minutes et devient totale dès 10 h. A 1000°C, la présence de petits grains recristallisés a été observée dès les premières minutes de recuit. Un modèle de type JMAK a été établi afin de prédire l'évolution de la fraction recristallisée en fonction du temps de recuit à 850°C, 950°C et 1000C.

Concernant la précipitation, des aiguilles enrichies en phosphore ont été observées après 2 h de maintien à 850°C. Néanmoins, aucun précipité de ce type n'a été observé à 950°C et 1000°C.

Des précipités enrichis en chrome ont été identifiés entre 850°C et 1000°C avec une coexistence des carbures et des borures de chrome à 850°C. A 950°C et 1000°C seuls les borures de chrome (précipités fautés) ont été observés.

Par ailleurs, deux populations de carbures de titane ont été observées pour les états partiellement recristallisés. Le diamètre de ces précipités dans les grains écrouis n'excède pas 7 nm. Dans les grains recristallisés il est supérieur à 30 nm. Contrairement à ce qui a été observé dans les grains écrouis, les carbures de titane dans les grains recristallisés sont répartis de manière très hétérogène, avec des alignements récurrents de ces précipités sur d'anciens joints de macles.

Des observations au MET sur des états partiellement recristallisés ont permis de mettre en évidence l'épinglage de joints de grains par ce type de précipité lors de la croissance de grains recristallisés. La présence de ces carbures pourrait avoir un effet retardateur sur la cinétique de recristallisation.

La valeur de microdureté moyenne est égale à 180 HV_{0,1} pour une microstructure totalement recristallisée, ce qui confirme l'effet bénéfique des carbures de titane sur le durcissement par rapport à l'état hypereffé.

Notons également que, même pour les temps longs et les températures élevées, la dispersion des mesures de microdureté reste élevée. L'hétérogénéité du matériau de référence pourrait ainsi influencer sur les évolutions microstructurales lors de recuits (restauration, recristallisation, précipitation), qui resteraient également hétérogènes. L'influence de cette hétérogénéité aurait néanmoins peu de conséquences sur le comportement en fluage, puisqu'elle n'induit pas *a priori* de chemins de zones « faibles » qui pourraient accélérer la déformation et la rupture.

Un modèle d'adoucissement a enfin été proposé afin de formaliser l'évolution de la microdureté en fonction du temps et de la température de recuit.

- Comportement en fluage à 650°C et 750°C :

Pour les essais réalisés à 650°C et 750°C l'AIM1 résiste mieux en fluage par rapport aux anciens 15-15Ti étudiés par le CEA mais aussi par rapport aux autres 15-15Ti étudiés dans la littérature. Le coefficient de Norton n vaut 11 à 650°C et 7 à 750°C, ce qui correspond à un mécanisme de déformation par fluage-dislocations. L'allongement à rupture des éprouvettes est compris entre 0,03 et 0,10.

Le mode de rupture pour ces températures est majoritairement ductile mais certaines zones intergranulaires sont observées sur les fractographies. L'observation des coupes longitudinales des éprouvettes a permis de mettre en évidence la présence de fissures intergranulaires en surface des éprouvettes. Deux couches d'oxydes ont été formées, modifiant localement la composition chimique en surface. La présence de ces fissures pourrait donc être liée à la réalisation des essais sous air. La recristallisation n'a été observée que dans une bande de localisation de la déformation lors de la rupture ductile à 750°C.

- Comportement en fluage à 850°C et 950°C :

D'une manière générale, les essais de fluage à 850°C donnent des résultats très dispersés, notamment en termes de temps à rupture pour la contrainte particulière de 120 MPa. Cette dispersion pourrait s'expliquer par une sensibilité particulière du matériau aux conditions d'essai à cette température et à cette contrainte, comme le suggère l'état de l'art. Les données extraites de la littérature sont cependant peu nombreuses et les essais n'y ont pas été répétés à la même contrainte.

A 850°C, le coefficient de Norton obtenu pour des contraintes entre 120 et 160 MPa est cohérent avec les résultats de la littérature ($n = 5$). Ce résultat traduit un régime de déformation principal contrôlé par le fluage-dislocations pour le domaine de contraintes étudié. L'allongement total n'excède pas 0,10. Le mode de rupture à 850°C est ductile et aucune fissuration intergranulaire n'a été observée lors de ces essais sous vide secondaire. De plus, aucune recristallisation n'a été observée en dehors de la striction pour des temps inférieurs à 10 h (zone prise hors striction). La présence de sous-grains et de joints de grains ondulés a été observée en zone de rupture, ce qui traduit de la restauration dynamique voire des prémices de recristallisation dans cette zone.

A 950°C, le stade secondaire est extrêmement court. Le coefficient de Norton est proche de 1 mais l'expertise d'éprouvettes après essais interrompus montre une recristallisation dès le début des essais (avant 10 min). Cette recristallisation n'est pas directement visible sur les courbes de déformation en fonction du temps mais pourrait avoir affecté la valeur de l'exposant de fluage. Après recristallisation, l'éprouvette est déjà entrée en stade tertiaire. Un régime de fluage dislocations est alors probable du fait du fort allongement des grains sans présence notable d'endommagement intergranulaire et de leurs désorientations internes croissantes au fur et à mesure de la déformation. L'allongement total des éprouvettes est très élevé comparé aux éprouvettes testées à 850°C et peut atteindre 0,5. La rupture est ductile avec une réduction de section de près de 100%, ce qui est cohérent avec l'allongement élevé des éprouvettes.

Compte tenu des résultats obtenus dans cette thèse, il serait probable qu'en conditions incidentelles à 950°C, les défauts d'irradiation soient totalement recuits par la présence de recristallisation.

Une accélération de la cinétique de recristallisation lors des essais à 950°C a été constatée par comparaison avec les cinétiques déterminées sur les échantillons recuits à cette température. L'effet de la contrainte sur les évolutions microstructurales n'est donc pas négligeable à 950°C.

Des essais réalisés après remise en solution des nano-précipités (et recristallisation) ont permis de montrer l'effet bénéfique de la précipitation de carbures de titane sur les propriétés en fluage. En effet, la vitesse minimale en fluage de l'éprouvette « remise en solution » est 24 fois plus rapide par rapport au matériau de référence, avec une forte restauration dynamique et une absence de précipitation en cours d'essai. Par ailleurs, un essai a été réalisé sur une éprouvette recristallisée mais contenant encore des précipités secondaires répartis de manière hétérogène et de taille supérieure à 30 nm. La meilleure résistance en fluage de cette éprouvette par rapport à l'éprouvette « remise en solution » confirme l'effet bénéfique des carbures de titane secondaires, même grossiers, dans une microstructure recristallisée. Cet effet pourrait être soit direct (épinglage de dislocations ou de joints) soit indirect (modification de la composition chimique de la solution solide et de l'énergie de défaut d'empilement).

2. Perspectives

- *Evolutions microstructurales après recuits entre 650°C et 1000°C :*

La réalisation de recuits plus longs à 650°C permettrait d'étudier les cinétiques de restauration et de précipitation (notamment de phosphures) à cette température. Les temps de maintien choisis devraient être cohérents avec les durées des essais de fluage déjà réalisés à cette température (quelques milliers d'heures) afin de pouvoir déterminer l'influence de la contrainte appliquée sur la microstructure.

Une étude similaire à celle réalisée dans la thèse pour des températures intermédiaires (tous les 50°C) serait à envisager afin d'obtenir des cinétiques de recristallisation et de précipitation plus complètes. Des recuits proches de la température de 850°C seraient intéressants (T = 800°C, 900°C) car la cinétique de recristallisation semble évoluer rapidement avec la température, voire avec la contrainte, dans ce domaine.

La détermination d'un modèle à base physique plus rigoureuse pour reproduire l'évolution de la résistance en fonction de la température et du temps serait à envisager. Des modèles plus sophistiqués avec un couplage explicite de la restauration, de la recristallisation et de la précipitation sont disponibles dans la littérature (Zurob et al. 2002). Par ailleurs, le lien entre la limite d'élasticité et la microdureté n'est pas directement possible, d'autant plus que les microstructures recouvrent sans doute progressivement leur capacité d'érouissage avec le développement de la restauration. Pour cela des essais de traction complémentaires seraient à intégrer dans la conception des échantillons destinés au recuit. Par ailleurs, l'étude de microstructures peu restaurées mais contenant des nano-précipités fait actuellement l'objet d'une autre thèse au CEA (T entre 400 et 600°C). Le modèle que nous avons proposé pourrait être amélioré en déterminant la contribution du durcissement liée au mécanisme de contournement d'Orowan. La taille et la fraction de précipités ont pu être déterminées dans cette thèse, permettant d'obtenir une contribution de type Orowan à la limite d'élasticité.

De plus, il serait intéressant de réaliser des recuits in-situ à 850°C et 950°C afin d'étudier, par exemple, l'évolution des macles d'érouissage à des températures où les cinétiques de restauration et recristallisations sont rapides.

- *Comportement en fluage entre 650°C et 950°C :*

Compléter et fiabiliser la base de données acquise lors de ces travaux

La réalisation d'essais à 650°C et 750°C sous vide (ou environnement neutre) est indispensable afin de déterminer si les amorces de fissures intergranulaires, observées après les essais sous air, auraient un impact sur la vitesse minimale de déformation et le temps à rupture des éprouvettes.

L'étude plus détaillée de la dispersion des essais à 850°C serait à envisager, car la cause n'en a toujours pas été identifiée. La réalisation d'essais à 800°C et 900°C permettrait de savoir si la dispersion est toujours présente pour ces températures. Par ailleurs, si la cause de cette dispersion est intrinsèque au matériau, la réalisation d'essais à 850°C sous 120 MPa sur une éprouvette « hypertrempe » permettrait de solliciter le matériau à partir d'une microstructure totalement recristallisée et ainsi plus « homogène » par rapport à l'état de référence.

L'étude de la précipitation des éprouvettes testées en fluage à 650°C, 750°C et 850°C, n'a pu être réalisée faute de temps. Elle pourrait compléter les données sur d'éventuelles interactions entre fluage et évolution microstructurale et éventuellement expliquer la meilleure tenue au fluage de l'AIM1 lot G0 par rapport aux précédentes nuances de 15-15Ti.

Par ailleurs, l'effet du maillage sur les propriétés mécaniques n'a pas pu être étudié. La thèse de (Curtet 2017) actuellement en cours porte sur les évolutions mécaniques et microstructurales entre 400°C et 600°C et permettra d'avoir des éléments de réponse sur les effets du maillage sur les propriétés en traction.

Améliorer la connaissance du comportement du matériau en transitoires incidentels

La réalisation d'essais de fluage interrompus sur éprouvettes recristallisées et/ou remises en solution (par exemple à 950°C sous 40 MPa) permettrait de consolider les premiers résultats obtenus lors de ces travaux et d'avoir une meilleure connaissance des évolutions microstructurales dans ces conditions.

Des essais de fluage réalisés avec des vitesses de chauffage représentatives des transitoires incidentels (entre 1 et 10°C/s) pourront être réalisés afin de se rapprocher de l'historique thermique potentiellement vécu par le matériau dans ces conditions et d'évaluer la pertinence des essais isothermes par rapport à ces cycles thermiques rapides.

Etudier le comportement de l'AIM1 en pression interne permettrait aussi de se rapprocher du comportement en conditions réelles (ballonnement-éclatement). Dans le but de se rapprocher des conditions réelles en réacteur, des essais sur matériau irradié sont également à envisager dans les mêmes conditions de température et de contrainte. A 650°C, les essais de fluage (pression interne) réalisés au CEA ont montré que les défauts d'irradiation provoquent une forte diminution de la ductilité en fluage et des temps à rupture ainsi qu'une modification de la vitesse minimale de déformation. Aucun essai réalisé à plus haute température n'a cependant permis d'étudier la cinétique de restauration des défauts d'irradiation pendant un essai de fluage. *A priori*, la restauration et la recristallisation auraient pour effet d'annihiler en partie les défauts d'irradiation, le comportement du matériau irradié devrait alors se rapprocher de celui caractérisé dans cette thèse (notamment à 850°C et 950°C) moyennant le passage de la traction axiale vers la pression interne mais la question reste ouverte. Des essais réalisés dans le sodium liquide permettraient enfin d'étudier le comportement en fluage de l'AIM1 dans des conditions plus proches des conditions en réacteur (effet d'environnement).

Références bibliographiques

- Abou Zahra, A. A., et H. Schroeder. 1982. « The dependence of the creep properties of DIN 1.4970 austenitic stainless steel at 973K on different thermomechanical pre-treatments ». Journal of Nuclear Materials 107:97-103.
- Andersson, L. H., et R. Kiessling. 1950. « Investigations on the Binary Systems of Boron with Chromium, Columbium, Nickel, and Thorium, Including a Discussion of the Phase "TiB" in the Titanium-Boron System ». Acta Chemica Scandinavica 4:160-164.
- Aronsson, B., et J. Aselius. 1958. « The Effect of Boron on the Formation of sigma-FeCr at 700 degrees C ». Acta Chemica Scandinavica 12 :1476-1480.
- Auzoux, Q. 2004. « Fissuration en relaxation des aciers inoxydables austénitiques-Influence de l'écrouissage sur l'endommagement intergranulaire », Thèse, École nationale supérieure des mines de Paris. <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00273520/document>.
- Barraclough, D. R., et C. M. Sellars. 1979. « Static recrystallization and restoration after hot deformation of type 304 stainless steel ». Metal Science 13 (3-4): 257-268.
- Bouet, M. 2000. « The effect of molybdenum in silicon-manganese-niobium TRIP steels ». Dissertation, McGill University, Montreal.
- Brandis, H., et E. Horn. 1969. « Untersuchungen Zum Ausscheidungverhal Ten Kleiner Mengen Bor In Einem Stahl Mit 16% Cr und 13% Ni ». DEW Technologies Berichte, 9 (2):213-217.
- Brandon, D.G. 1966. « The structure of high-angle grain boundaries ». Acta Metallurgica 14 (11): 1479-1484.
- Brown, B. E., et D. J. Beerntsen. 1964. « Refinement of an iron chromium boride with the Mn4B structure ». Acta Crystallographica 17:448-50.
- Campbell, F.C. 2008. Elements of Metallurgy and Engineering Alloys. ASM International. Chapter 15.
- Cautaerts, N., R. Delville, W. Dietz, et Marc Verwerft. 2017. « Thermal creep properties of Ti-stabilized DIN 1.4970 (15-15Ti) austenitic stainless steel pressurized cladding tubes ». Journal of Nuclear Materials 493:154-167.
- Chosson, R. 2014. « Etude expérimentale et modélisation du comportement en fluage sous pression interne d'une gaine en alliage de zirconium oxydée en atmosphère vapeur ». Thèse, Ecole nationale supérieure des mines de Paris. <https://hal-mines-paristech.archives-ouvertes.fr/tel-01314559>.
- Chowdhury, P.S., N. Gayathri, P. Mukherjee, M. Bhattacharya, A. Chatterjee, A. Dutta, et P. Barat. 2011. « In situ studies of evolution of microstructure with temperature in heavily deformed Ti-modified austenitic stainless steel by X-ray diffraction technique ». Materials Science and Engineering: A 528 (3):967-972.
- Courtin, L. 2016. « Optimisation de la transformation à froid des tubes de gaine en acier austénitique 15-15Ti AIM1 ». Thèse, Université de Poitiers.
- Courtney, T. H. 2000. Mechanical behavior of materials. 2nd edition. McGraw-Hill Book Company.

- Curtet, E. 2017. « Rapport d'avancement de 1^{ère} année de thèse : Etude du vieillissement à 400-600°C et compréhension des mécanismes de déformation des tubes de gaine en acier 15-15Ti-AIM1 ». Note Technique CEA.
- Delalande, C. 1992. « Influence du phosphore sur le comportement hors et sous irradiation des aciers austénitiques multistabilisés ». Thèse, Université Paris-Sud-Orsay.
- Dubuisson, P., A. Maillard, C. Delalande, D. Gilbon, et J. L. Seran. 1990. « The effect of phosphorus on the radiation-induced microstructure of stabilized austenitic stainless steels », 15th International Symposium on the Effects of Radiation on Materials, Nashville, 995-1014.
- El-Danaf, E., S.R. Kalidindi, et R.D. Doherty. 1999. « Influence of grain size and stacking-fault energy on deformation twinning in fcc metals ». Metallurgical and Materials Transactions A 30 (5): 1223-1233.
- « Fascicule de spécification FS211I tubes de gaines et gaines ». 1998. Note interne CEA.
- Frost, H. J., et M. F. Ashby. 1982. Deformation-mechanism maps. Pergamon Press.
- Fujiwara, M., H. Uchida, et S. Ohta. 1994. « Effect of titanium content on creep strength of cold-worked 15Cr-15Ni-2.5 Mo austenitic steel ». Journal of materials science letters 13 (12):908-911.
- Garcia-Borquez, A., et W. Kesternich. 1985. « TEM-studies on the borides formed in an austenitic steel with 38 ppm boron ». Scripta Metallurgica 19 (1): 57-62.
- Gavoille, P., et A. Courcelle. 2017. « Mise à jour du dossier matériaux des premiers coeurs intégrant les résultats des examens destructifs sur les assemblages combustibles irradiés dans PHENIX et d'intérêt pour ASTRID ». Note Technique CEA.
- Gentzittel, J. M., et J. Calapez. 2016. « Bilan des caractérisations mécaniques de l'AIM1 ». Rapport Technique DTBH/RT/2016/156.
- Ghuezaiel, M.J. 1985. « Influence du titane sur la structure de revenu d'aciers austénitiques ». Thèse. Université Paris-Sud-Orsay.
- Gifkins, R. C. 1958. « Recrystallization of lead during creep ». Journal of the Institute of Metals 87:255-261.
- Goldschmidt, H. J. 1971. « Effect of Boron additions to Austenitic Stainless Steels Part II, Solubility of Boron in 18% Cr, 15% Ni Austenitic Steel ». Journal of the Iron and Steel Institute 209:900-911.
- Gopalan, P., R Rajaraman, B Viswanathan, K.P Gopinathan, et S Venkadesan. 1998. « The kinetics of formation and growth of TiC precipitates in Ti-modified stainless steel studied by positron annihilation spectroscopy ». Journal of Nuclear Materials 256 (2-3):229-234.
- Grot, A.S., et J.E. Spruiell. 1975. « Microstructural stability of titanium-modified type 316 and type 321 stainless steel ». Metallurgical Transactions A 6 (11): 2023-2030.
- Grujicic, M., et H. Zhao. 1998. « Optimization of 316 stainless steel/alumina functionally graded material for reduction of damage induced by thermal residual stresses ». Materials Science and Engineering: A 252 (1):117-132.
- Gustafson, Å. 2000. « Coarsening of TiC in austenitic stainless steel — experiments and simulations in comparison ». Materials Science and Engineering: A 287 (1): 52-58.

- Hamilton, M. L., G. D. Johnson, R. J. Puigh, F. A. Garner, P. J. Maziasz, W.J.S. Yang, et N. Abraham. 1989. « The effects of phosphorus and boron on the behavior of a titanium stabilized austenitic stainless steel developed for fast reactor service », in : Residual and Unspecified Elements in Steel, ASTM STP 1042, A. S. Melilli and E. G. Nisbett, Eds., American Society for Testing and Materials, pp. 124-149.
- Hermant, A., E. Suzon, J. Bellus, P. Petit, F. Cortial, et A. F. Gourgues. 2016. « Hot deformation behaviour and recrystallization mechanisms in a niobium stabilized austenitic stainless steel », in : 6th Int. Conf. On Recrystallization and Grain Growth, Pittsburgh, ed. E. Holm, S. Farjami, P. Manohar, G. Rohrer, A. Rollett, D. Slorovitz, H. Weiland, TMS/Springer : 209-214.
- Humphreys, F.J., et M. Hatherly. 2004. Recrystallization and Related Annealing Phenomena (Second Edition). Elsevier.
- INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY. 2012. Structural Materials for Liquid Metal Cooled Fast Reactor Fuel Assemblies-Operational Behaviour. Rapport, IAEA Nuclear Energy Series NF-T-4.3. Vienna.
- Johnston, W. G., J. H. Rosolowski, A. M. Turkalo, et T. Lauritzen. 1974. « An experimental survey of swelling in commercial Fe-Cr-Ni alloys bombarded with 5 MeV Ni Ions ». Journal of Nuclear Materials 54 (1):24-40.
- Kesternich, W. 1985a. « Dislocation-controlled precipitation of TiC particles and their resistance to coarsening ». Philosophical Magazine A 52 (4):533-548.
- Kesternich, W. 1985b. « A possible solution of the problem of helium embrittlement ». Journal of Nuclear Materials 127 (2-3):153-160.
- Kesternich, W. 1988. « Microstructural evolution and mechanical properties of an advanced high-temperature steel ». Journal of Nuclear Materials 155-157:1025-1031.
- Kesternich, W., et D. Meertens. 1986. « Microstructural evolution of a Titanium-stabilized 15Cr-15Ni steel ». Acta Metallurgica 34 (6):1071-1082.
- Kesternich, W., et R. V. Nandedkar. 1991. « Coprecipitation of M₂₃C₆ and MC type carbide under the influence of irradiation ». Journal of Nuclear Materials 179-181:1015-1018.
- Kesternich, W., et J. Rothaut. 1981. « Reduction of helium embrittlement in stainless steel by finely dispersed TiC precipitates ». Journal of Nuclear Materials 104:845-852.
- Kim, Woo Gon, Sung Ho Kim, et Woo Seog Ryu. 2002. « Evaluation of Monkman-Grant Parameters for Type 316LN and Modified 9Cr-Mo Stainless Steels ». KSME International Journal 16 (11):1420-1427.
- Kountchou Tawokam, Mikael. 2018. « Gonflement sous irradiation d'un acier de structure pour un réacteur de quatrième génération ». Thèse, Université de Rouen Normandie.
- Kwast, H. 1977. « Transient tube burst tests on fast reactor fuel cladding » Rapport ECN-21. http://www.iaea.org/inis/collection/NCLCollectionStore/_Public/09/352/9352257.pdf
- Kwast, H. 1979. « Modes of failure of fast reactor fuel pins irradiated under loss of coolant flow conditions », Journal of nuclear technology 46:234-240 (Proc. ENS/ANS International Topical Meeting on Nuclear Power Reactor Safety, Brussels, Belgium).

Lacombe, P., B. Baroux, et G. Béranger. 1990. Les aciers inoxydables. Les Editions de Physique. EDP Sciences.

Latha, S., M.D. Mathew, P. Parameswaran, K. Bhanu Sankara Rao, et S.L. Mannan. 2008. « Thermal creep properties of alloy D9 stainless steel and 316 stainless steel fuel clad tubes ». International Journal of Pressure Vessels and Piping 85 (12):866-870.

Latha, S., M.D. Mathew, P. Parameswaran, K. Bhanu Sankara Rao, et S.L. Mannan. 2010. « Creep Behaviour of 14Cr-15Ni-Ti Stainless Steel at 923K ». Materials Science and Engineering: A 527 (20):5167-5174.

Lazaro, A., M. Schikorr, K. Mikityuk, L. Ammirabile, G. Bandini, G. Darmet, D. Schmitt, et al. 2014. « Code Assessment and Modelling for Design Basis Accident Analysis of the European Sodium Fast Reactor Design. Part II: Optimised Core and Representative Transients Analysis ». Nuclear Engineering and Design 277: 265-276.

Lee, E.H, et L.K Mansur. 2000. « Fe-15Ni-13Cr austenitic stainless steels for fission and fusion reactor applications. II. Effects of minor elements on precipitate phase stability during thermal aging ». Journal of Nuclear Materials 278 (1):11-19.

Lee, E.H, L.K Mansur, et A.F. Rowcliffe. 1984. « The effect of phosphorus on the swelling and precipitation behavior of austenitic stainless steels during irradiation ». Journal of Nuclear Materials 122 (1):299-304.

Leitnaker, J.M., et J. Bentley. 1977. « Precipitate phases in type 321 stainless steel after aging 17 years at ~600°C ». Metallurgical Transactions A 8 (10):1605-1613.

Lippold, J.C., et D.J. Kotecki. 2005. Welding metallurgy and weldability of stainless steels. Wiley.

Maillard, A. 1994. « Fluage thermique des gaines en 15-15Ti non irradié : bilan au 15 octobre 1994 des essais effectués sur les lots standards, le D4 et l'AIM1 ». Note Technique CEA.

Mandal, S., P.V. Sivaprasad, et R.K. Dube. 2007. « Kinetics, Mechanism and Modelling of Microstructural Evolution during Thermomechanical Processing of a 15Cr-15Ni-2.2Mo-Ti Modified Austenitic Stainless Steel ». Journal of Materials Science 42 (8):2724-2734.

Mandal, S., S.K. Mishra, A. Kumar, I. Samajdar, P.V. Sivaprasad, T. Jayakumar, et R. Baldev 2008. « Evolution and characterization of dynamically recrystallized microstructure in a titanium-modified austenitic stainless steel using ultrasonic and EBSD techniques ». Philosophical Magazine 88 (6):883-897.

Mandal, S., A. K. Bhaduri, et V.S. Sarma. 2009. « Studies on Twinning and Grain Boundary Character Distribution during Anomalous Grain Growth in a Ti-Modified Austenitic Stainless Steel ». Materials Science and Engineering 515 (1-2): 134-140.

Mandiang, Y., D. Azilinson, M. Adj, et G. Cizeron. 2000. « Effect of phosphorus on stability of cold worked structure in 316Ti austenitic stainless steel ». Materials Science and Technology 16 (4):399-407.

Marshall, P. 1984. Austenitic Stainless Steels, Microstructure and Mechanical Properties. Elsevier.

Martins, L.F.M, L.R Plaut, et A.F Padilha. 1998. « Effect of Carbon on the Cold-worked State and Annealing Behavior of Two 18wt%Cr-8wt%Ni Austenitic Stainless Steels ». ISIJ international 38:572579.

- Mathew, M.D., S. Ravi, V.D. Vijayanand, S. Latha, A. Dasgupta, et K. Laha. 2014a. « Biaxial creep deformation behavior of Fe-14Cr-15Ni-Ti modified austenitic stainless steel fuel cladding tube for sodium cooled fast reactor ». Nuclear Engineering and Design 275:17-22.
- Mauriès, S. 2008. « Caractérisation et modélisation de la séquence de précipitation de carbures au cours du traitement thermique d'aciers martensitiques alliés ». Thèse. Université de Toulouse.
- Maziasz, P.J. 1978. « Precipitation Response of Austenitic Stainless Steels to Simulated Fusion Irradiation », Rapport TRN: 78-008494 , Conf-780213—2, AIME, Denver, 26 février 1978, 34 p..
- Maziasz, P J., et C.J. McHargue. 1987. « Microstructural evolution in annealed austenitic steels during neutron irradiation ». International Materials Reviews 32 (1): 190-219.
- Monkman, F.C., et N.J. Grant. 1956. « An Empirical Relationship between Rupture Life and Minimum Creep Rate in Creep-Rupture Tests », Proceedings of the American Society for Testing and Materials, 56:593-620.
- Murugesan, S., P. Kuppusami, E. Mohandas, et M. Vijayalakshmi. 2012. « X-ray diffraction Rietveld analysis of cold worked austenitic stainless steel ». Materials Letters 67 (1):173-176.
- Norme ASTM. 2013. « Standard test methods for determining average grain size » Norme, E112-12.
- Padilha, A.F., J.C. Dutra, et V. Randle. 1999. « Interaction between precipitation, normal grain growth, and secondary recrystallisation in austenitic stainless steel containing particles ». Materials Science and Technology 15 (9):1009-1014.
- Padilha, A.F, R.L Plaut, et P.R Rios. 2003. « Annealing of cold-worked austenitic stainless steels ». ISIJ international 43 (2): 135-143.
- Padilha, A.F, et P. Rios. 2002. « Decomposition of austenite in austenitic stainless steels ». ISIJ international 42 (4): 325-337.
- Padilha, A.F, G Schanz, et K Anderko. 1982. « Ausscheidungsverhalten des titanstabilisierten austenitischen Stahls 15% Cr-15% Ni-1% Mo-Ti-B (DIN-Werkstoff-Nr. 1.4970) ». Journal of Nuclear Materials 105 (1):77-92.
- Pardo, A., M.C. Merino, A.E. Coy, F. Viejo, M. Carboneras, et R. Arrabal. 2007. « Influence of Ti, C and N Concentration on the Intergranular Corrosion Behaviour of AISI 316Ti and 321 Stainless Steels ». Acta Materialia 55 (7): 2239-2251.
- Pelletier, Michel. 2013. « Tenue en fluage des aiguilles combustibles type CFV-v1 soumises à des transitoires thermiques accidentels ». Note Technique CEA.
- Petersen, C., G. Schanz, et S. Leistikow. 1988. « High-temperature behavior of CrNi-steel DIN material no. 1.4970 cladding material with respect to advanced pressurized water reactor safety considerations », Journal of Nuclear technology, 80 (1):161-172.
- Petesh. 2015. « Règles d'analyses mécaniques des structures irradiées RAMSES. Annexes A3 lois matériaux AIM1 ». Note Technique CEA.
- Phaniraj, C., B.K. Choudhary, K. Bhanu Sankara Rao, et Baldev Raj. 2003. « Relationship between time to reach Monkman-Grant ductility and rupture life ». Scripta Materialia 48 (9):1313-1318.

- Phillips, V.A. 1966. « Electron microscope observations on Moiré fringes and interfacial dislocations at cobalt precipitates in copper ». Acta Metallurgica 14 (3):271-278.
- Pickering, F. 1984. « Physical metallurgy of stainless steel developments ». Proceedings of the Conference on Stainless Steel, The Institute of Metals, London.
- Rémy, L., A. Pineau, et B. Thomas. 1978. « Temperature dependence of stacking fault energy in close-packed metals and alloys ». Materials Science and Engineering 36 (1): 47-63.
- Rios, P.R, F Siciliano Jr, H.R Sandim, R.L Plaut, et A.F Padilha. 2005. « Nucleation and growth during recrystallization ». Materials Research 8 (3):225-238.
- Rouxel, B. 2016. « Développement d'aciers austénitiques avancés résistant au gonflement sous irradiation ». Thèse. Université de Lille 1.
- Sarkar, A., A. Marchattiwari, J.K. Chakravartty, et B.P. Kashyap. 2013. « Kinetics of Dynamic Recrystallization in Ti-Modified 15Cr-15Ni-2Mo Austenitic Stainless Steel ». Journal of Nuclear Materials 432 (1-3):9-15.
- Schäfer L., et H. Kempe. 1983. « Das Zeitstandverhalten von Rohren aus austenitischen Stählen und Nickelbasis-Legierung bei Belastung mit Innendruck ». PSB-1659. KFK, Report.
- Schanz, G., et A.F Padilha. 1980. « Precipitation of a boride phase in 15%Cr-15%Ni-Mo-Ti-B austenitic stainless steel (DIN 1.4970) ». Journal of Nuclear Materials 95: 229-238.
- Schramm, R.E., et R.P. Reed. 1975. « Stacking Fault Energies of Seven Commercial Austenitic Stainless Steels ». Metallurgical Transactions A 6 (7): 1345-1351.
- Sidhom, H. 1983. « Influence of mechanical and thermal treatments on microstructure and mechanical properties of titanium stabilized austenitic stainless steels ». Thèse, Université Paris-Sud-Orsay.
- Sourmail, T. 2001. « Precipitation in creep resistant austenitic stainless steels ». Materials Science and Technology 17 (1): 1-14.
- Spruiell, J. E., J.A. Scott, C.S. Ary, et R.L. Hardin. 1973. « Microstructural stability of thermal-mechanically pretreated type 316 austenitic stainless steel ». Metallurgical Transactions 4 (6):1533-1544.
- Stanley, J.K., et A.J. Perrotta. 1969. « Grain growth in austenitic stainless steels ». Metallography 2 (4):349-362.
- Stüwe, H.P., A.F. Padilha, et F. Siciliano. 2002. « Competition between recovery and recrystallization ». Materials Science and Engineering: A 333 (1): 361-367.
- Suutala, N. 1983. « Effect of solidification conditions on the solidification mode in austenitic stainless steels ». Metallurgical Transactions A 14 (1): 191-197.
- Thomas, J-P. 2005. « Etude expérimentale et modélisation de l'évolution microstructurale du superalliage 718 en déformation à chaud ». Thèse, Ecole Nationale Supérieure des Mines de St Etienne.
- Todd, J.A., et Jyh-Ching Ren. 1989. « The effect of cold work on the precipitation kinetics of an advanced austenitic steel ». Materials Science and Engineering: A 117:235-245.

- Tripathy, H., S. Raju, A.K. Rai, et T. Jayakumar. 2013. « A Calorimetric Study of Recovery and Recrystallization in Fe-14.4 Cr-15.4 Ni-2.4 Mo-2.36 Mn-0.25 Ti-0.04 C-0.05 P (mass %) Austenitic Stainless Steel ». Steel Research International 84 (10):1046-1059
- Van Witzenburg, W., et H. Kwast. 1973. « Stress-rupture tests on fast-breeder fuel cladding tubes at temperatures near 1000°C » Technical report, RCN-193, Reactor Centrum Netherlands.
- Vasudevan, M., S. Venkadesan, et P.V. Sivaprasad. 1996a. « Influence of thermomechanical treatments on microstructural stability of titanium modified austenitic stainless steel ». Materials Science and Technology 12: 338-344.
- Vasudevan, M., S. Venkadesan, et P.V. Sivaprasad. 1996b. « Influence of Ti/(C+6/7N) ratio on the recrystallization behaviour of a cold worked 15Cr-15Ni-2.2Mo-Ti modified austenitic stainless steel ». Journal of Nuclear Materials 231 (3): 231-241.
- Vasudevan, M., S. Venkadesan, P.V. Sivaprasad, et S.L. Mannan. 1994. « Use of the Larson-Miller parameter to study the influence of ageing on the hardness of cold-worked austenitic stainless steel ». Journal of Nuclear Materials 211 (3): 251-255.
- Weiss, B., et R. Stickler. 1972. « Phase Instabilities During high Temperature Exposure of 316 Austenitic Stainless Steel », Metallurgical Transactions, 3 (4): 851-866.
- Williamson, G.K., et R.E. Smallman. 1956. « Dislocation densities in some annealed and cold-worked metals from measurements on the X-ray Debye-Scherrer spectrum », Philosophical Magazine, 1 (1):34-46.
- Wright, S.I., M.M. Nowell, et D.P. Field. 2011. « A Review of Strain Analysis Using Electron Backscatter Diffraction ». Microscopy and Microanalysis 17 (3): 316-329.
- Zhang, M. 2014. « Comportement viscoplastique des alliages austénitiques pendant la recristallisation sous faibles contraintes ». Thèse. Ecole nationale supérieure des mines de Paris. <https://hal-mines-paristech.archives-ouvertes.fr/tel-01144443/document>.
- Zurob, H.S., R. Hutchinson, Y. Brechet et G. Purdy. 2002. « Modeling recrystallization of microalloyed austenite: effect of coupling recovery, precipitation and recrystallization ». Acta Materialia 50 (12): 3077-3094.

Annexes

Sommaire

Annexe 1 – Méthode pour observations métallographiques	211
1. Préparation d'échantillons pour observations par microscopie optique et électronique 211	
2. Conditions d'acquisition EBSD et dépouillement.....	212
3. Protocole expérimental pour la réalisation de répliques extractives au carbone sur l'AIM1	215
Annexe 2 – Précipités susceptibles de se former dans les aciers inoxydables austénitiques stabilisés après traitements thermiques isothermes.....	217
Annexe 3 – Détermination de la taille et de la fraction volumique des précipités secondaires par Diffraction des Neutrons aux Petits Angles (DNPA)	219
1. Principe de la DNPA	219
2. Traitement des données.....	222
Annexe 4 – Mesure de densité de dislocations par diffraction des neutrons	225
1. Présentation du dispositif expérimental.....	225
2. Méthode de dépouillement.....	226

Annexe 1 – Méthode pour observations métallographiques

1. Préparation d'échantillons pour observations par microscopie optique et électronique

Les échantillons sont découpés à la micro tronçonneuse ou à la scie à fil (en fonction de la précision requise pour la découpe) puis enrobés à chaud dans une résine conductrice pour permettre l'observation au MEB.

- Observations au microscope optique

Le polissage est fait à l'aide de papiers SiC avec une granulométrie allant de 400 à 1200. La finition a été faite avec de la pâte diamantée de 7, 3, puis 1 μm sur des draps afin d'éliminer les dernières rayures et l'érouissage résiduel de polissage. Une attaque électrolytique est réalisée afin de révéler les joints de grains et les joints de macle. Un schéma représentant le principe de l'attaque électrolytique est présenté sur la **Figure A1.1**. L'électrolyte utilisé est une solution diluée dans de l'eau à 50% d'acide nitrique HNO_3 . Le générateur applique une tension de 1 V pendant quelques secondes à 1 minute (suivant l'état métallurgique) afin d'obtenir les micrographies présentées dans ce rapport⁵². Ces attaques sont réalisées à température ambiante.

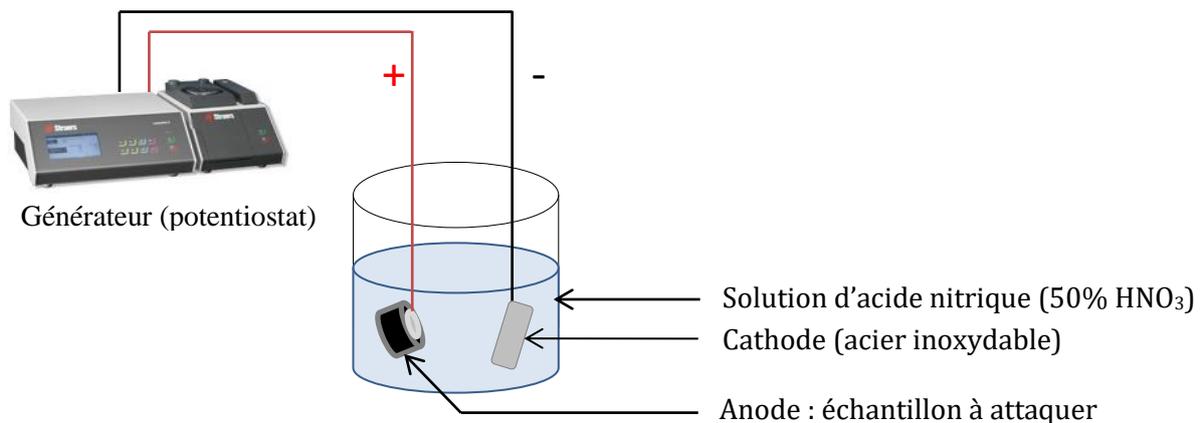


Figure A1.1 – Principe de l'attaque électrolytique pour révélation des joints de grains.

⁵² Remarque : la visibilité des joints de macle varie avec la durée de l'attaque. Les joints de grains ne s'attaquent pas tous à la même vitesse et peuvent apparaître au même moment que les joints de macles. Par conséquent, les micrographies présentées dans le manuscrit mettent en évidence les joints de grains et les joints de macle afin de révéler le plus de joints de grains possibles, notamment pour les calculs de taille de grains. Par ailleurs, la présence de joints de macle de déformation permet d'avoir une information supplémentaire sur l'état de déformation des grains de manière qualitative (cf. **Chapitre 2**).

- Observations au MEB/EBSD

Pour les observations au MEB/EBSD, un polissage avec une suspension d'OPS est appliqué après le polissage à la pâte diamantée afin de retirer la dernière couche d'écrouissage.

- Observations au MET

Compte tenu de la faible épaisseur des gaines en AIM1, les observations sont réalisées dans le plan (θ, z). Des disques de 3 mm de diamètre prélevés directement sur la gaine par électro-érosion au fil. Le polissage est réalisé avec un plot spécialement conçu pour le polissage des préformes de 3 mm de diamètre. Le maintien de l'échantillon sur le plot se fait par capillarité avec l'eau lors du polissage. Le polissage au papier de granulométrie 1200 est réalisé sur la partie concave jusqu'à l'obtention d'une surface plane. Ensuite, le polissage sur la partie convexe est réalisé jusqu'à l'obtention d'une tuile plate de 100 μm d'épaisseur.

Afin d'avoir une zone suffisamment fine (proche de 100 nm) pour permettre la transmission des électrons, un perçage de la lame est nécessaire (de polissage électrolytique). L'appareil d'électropolissage permet d'attaquer progressivement la lame à l'aide de deux jets projetés de part et d'autre de l'échantillon. Une fois la détection du trou la lame doit être retirée du dispositif et nettoyée à trois reprises à l'éthanol absolu puis séchée à l'air libre pendant quelques minutes. L'électrolyte est composé de 90% de méthanol et de 10% d'acide perchlorique et doit être refroidi à une température comprise entre -5°C et -10°C . La tension appliquée est de 30 V avec une intensité d'environ 100 mA.

2. Conditions d'acquisition EBSD et dépouillement

Le MEB utilisé pour les cartographies EBSD est un Nova NanoSEM 450 S-FEG équipé d'un système d'acquisition EDAX OIM Hikari. La suite OIM permet l'acquisition et le traitement des données.

Les cartographies ont été principalement réalisées avec un pas de 0,3 μm et avec un grandissement de 250, dans le plan (θ, z). Ce pas d'acquisition et ce grandissement permettent d'obtenir un échantillonnage statistique satisfaisant (environ 170 grains) pour permettre de prendre en compte les éventuelles hétérogénéités du matériau. La durée moyenne par cartographie est de 2 h 30. Le pas de 0,3 μm permet également de mettre en évidence les macles d'écrouissage mais certaines apparaissent comme des régions plus difficiles à indexer.

Dans le **Chapitre 4**, les dimensions ou le pas d'acquisition peuvent être différents pour permettre l'obtention d'une image plus grande dans les zones de rupture des éprouvettes (tout en conservant un nombre de points convenable ($< 4\,000\,000$ de points) pour le dépouillement des cartographies).

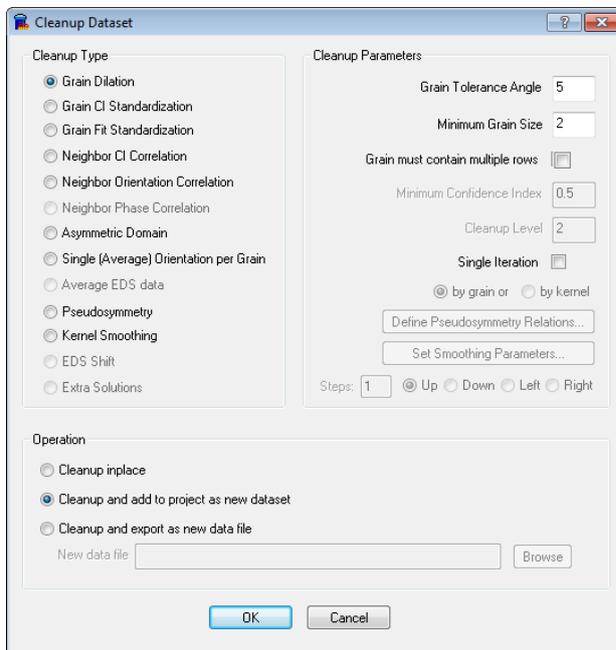
Les cartographies sont réalisées avec une haute tension de 15 kV, une taille de spot de 5,5, et une distance de travail de 16 mm. L'angle d'inclinaison de l'échantillon est de 70° .

Conditions de nettoyage de la cartographie

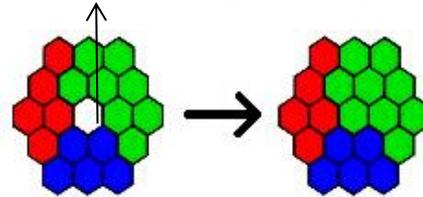
Un grain est défini avec au minimum 2 pixels et une tolérance angulaire de 5° avec son voisin (**Figure A1.2 a**).

Un maximum de 2% de points non indexés est admis pour exploiter les cartographies en commençant par le nettoyage des données. Le type Grain Dilution a été utilisé pour le nettoyage des cartographies (**Figure A1.2 a**). Cette méthode est itérative. Si un point n'appartient à aucun

grain il prendra l'orientation de la majorité des points voisins pour correspondre au grain majoritaire (Figure A1.2 b). Sinon, l'orientation du point est aléatoirement changée pour correspondre à n'importe quel point voisin qui appartient à un grain. Ce nettoyage est répété jusqu'à ce que chaque point soit attribué à un grain.



Pixel(s) non indexé(s) ou avec une taille minimale de grain de 1 pixel



Grain dilation

Figure A1.2 – a) Choix de la méthode de nettoyage des cartographies sur le logiciel OIM Analysis et b) schéma montrant le mode de nettoyage Grain Dilation (schéma tiré du logiciel OIM Analysis).

Image Quality (IQ)

L'IQ est un paramètre qui quantifie la qualité du cliché de diffraction des électrons rétrodiffusés obtenu pour chaque point d'acquisition. Une IQ élevée indique que le cliché de diffraction est de qualité (netteté des bandes de pseudo-Kikuchi). Une IQ faible indique un cliché de mauvaise qualité (Figure A1.3).



Figure A1.3 – Clichés de diffraction EBSD avec a) un IQ élevé et b) un IQ faible (Wright, Nowell, et Field 2011).

Une cartographie peut être générée à partir de l'IQ en niveau de gris. La cartographie IQ du matériau de référence est présentée sur la Figure A1.4 a. L'intérieur de certains grains est clair, mais les joints de grains et de macles sont des zones perturbées par des contraintes locales, ce qui implique une moins bonne indexation et donc des zones plus sombres.

La cartographie IQ de l'état hypertrempé est présentée sur la **Figure A1.4 b**. Des zones d'ombres dues aux précipités en saillie sont observées. Les différences de contraste d'un grain à l'autre est lié au rendement des électrons rétrodiffusés (qui dépend de l'orientation cristalline).

L'image peut être fortement affectée par les contraintes résiduelles présentes dans le matériau, la qualité de préparation de l'échantillon et la topologie de surface (Wright, Nowell, et Field 2011). L'avantage de cette représentation est qu'elle permet de mettre en évidence les précipités (surface rugueuse impliquant un contraste sur l'IQ). Elle permet également de mettre en évidence les fines macles de déformation.

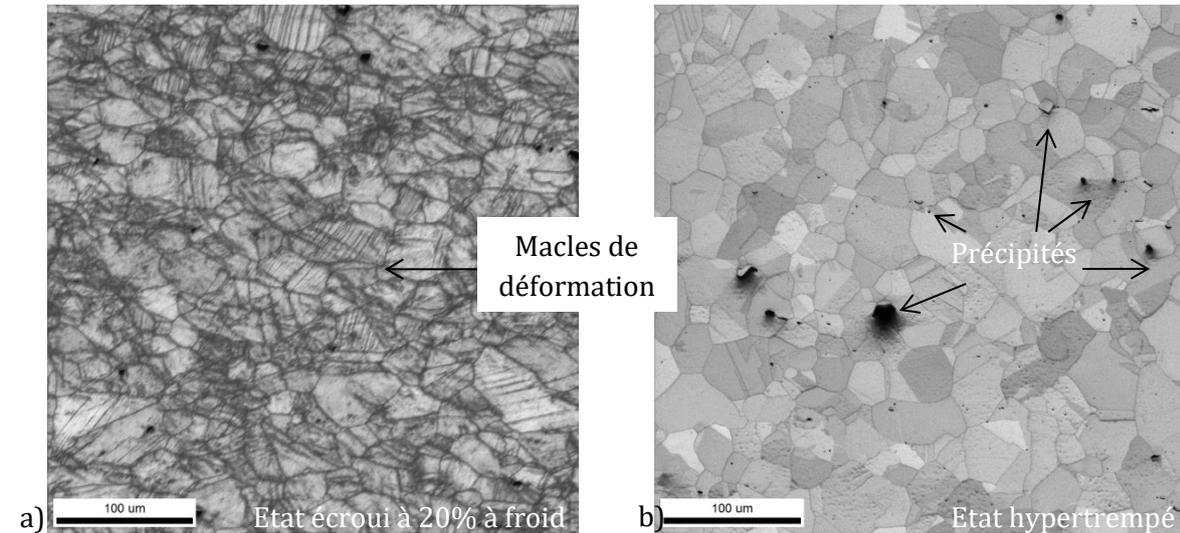


Figure A1.4 – Cartographie IQ a) d'une faible qualité et b) d'une bonne qualité.

Inverse Pole Figure (IPF)

La cartographie en couleurs notée IPF (pour Inverse Pole Figure) est une représentation des orientations cristallographiques. Le repère utilisé pour déterminer la direction de l'échantillon est schématisé sur la **Figure A1.5**. Pour tous les dépouillements réalisés dans cette thèse, on considère l'axe r (normal à la surface analysée) comme étant la direction de référence. Par conséquent, l'IPF détermine la direction du cristal alignée avec cette direction macroscopique de la gaine.

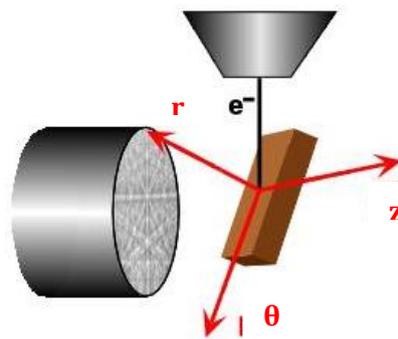


Figure A1.5 – Schéma du repère utilisé pour les cartographies EBSD.

Grain Orientation Spread (GOS)

La tolérance angulaire est de 15° pour le GOS (plus élevée que celle de 5° utilisée pour le nettoyage des cartographies). Cette tolérance permet d'y inclure les zones contenant les sous-joints de 5 à 15°.

L'orientation étendue ou *orientation spread* est déterminée tout d'abord en calculant l'orientation moyenne de chaque grain. Ensuite, la désorientation de chacun des pixels du grain par rapport à l'orientation moyenne est calculée. La moyenne de ces désorientations est ensuite obtenue.

Les cartographies GOS obtenues permettent de distinguer les grains peu déformés (recristallisés) des grains très déformés (écrouis) après :

- Déformation à froid (état de référence, [Chapitre 1](#)) ;
- Traitements thermiques ([Chapitre 2](#)) ;
- Déformation viscoplastique ([Chapitre 4](#)).

Elles permettent ainsi d'obtenir des fractions surfaciques de ces grains.

Kernel Average Misorientation (KAM)

Le dépouillement KAM met en évidence l'état des déformations locales du matériau (déformations non moyennées sur le grain). La désorientation moyenne d'un pixel avec ses pixels voisins (3^{ème} voisin) est alors calculée (les pixels voisins ayant une désorientation supérieure à 15° par rapport au pixel considéré ne sont pas pris en compte).

Les cartographies KAM permettent de repérer les zones localement déformées et peu déformées et ont été comparées avec les cartographies GOS des états après traitements thermiques discutés dans le [Chapitre 2](#). Le KAM a également été utilisé pour repérer les cellules de restauration après essais de fluage ([Chapitre 4](#)).

3. Protocole expérimental pour la réalisation de répliques extractives au carbone sur l'AIM1

La méthode des répliques extractives permet d'extraire les précipités de la matrice afin de faciliter leur observation et d'obtenir une analyse EDS sans perturber le signal venant de la matrice. Les observations des phosphures sont notamment facilitées sur réplique, car ces derniers contrastent peu sur lame.

Les précipités obtenus sur réplique conservent globalement la même répartition spatiale (intra ou intergranulaire).

Pour réaliser des répliques extractives au carbone sur les états métallurgiques étudiés, nous avons suivi les différentes étapes du [Tableau A1.2](#).

Etape	Action	Durée	But
1	Immersion l'échantillon dans la solution d'attaque Villela (solution acide picrique + éthanol + HCl)	5 - 6 min	Déchaussement des précipités
2	Dépôts par évaporation sous vide des couches successives de carbone	Environ 10 min (dépôts de 3 à 4 couches)	Créer le nouveau support pour les précipités
3	Quadrillage du revêtement de carbone à l'aide d'un cutter	Moins de 1 min	Définir la taille des répliques
4	Immersion l'échantillon revêtu dans la solution d'attaque Villela	3 h	Décollement de la couche de carbone avec les précipités de l'échantillon massif
5	Récupération les morceaux de la couche carbone à l'aide de grilles Cu-Pd (3 mm de diamètre)	Quelques minutes	Recueillir les répliques pour des observations au MEB et/ou au MET

Tableau A1.1 - Etapes pour l'obtention des répliques extractives au carbone.

Les répliques extractives au carbone sont observées au MEB afin d'observer la morphologie et la composition chimique des précipités par EDS. Certaines de ces répliques sont également observées au MET afin de déterminer la structure cristalline de précipité par diffraction et de déterminer leur composition chimique en EDS et en EELS.

La quantification en taille des nanoprecipités présentée dans le Chapitre 2 n'est pas adaptée sur répliques extractives car elles ne permettent pas de récupérer les précipités de quelques nanomètres. Cela est probablement dû à la cohérence de ces précipités avec la matrice rendant difficile leur extraction.

La réactivité de la matrice à l'attaque chimique peut être modifiée en fonction du traitement thermique et du dépôt de carbone réalisés, les densités de précipités obtenues sur répliques sont donc susceptibles de varier. Par conséquent, la quantification sur les fractions de précipités n'a pas été réalisée.

Annexe 2 – Précipités susceptibles de se former dans les aciers inoxydables austénitiques stabilisés après traitements thermiques isothermes

Phase	Morphologie	Structure	Paramètres de maille (nm)	Composition en éléments métalliques % massique	Références
(Ti, Mo)C	Sphérique ou facettée	CFC	$a = 0,432 \pm 0,005$	65Ti-26Mo-7Cr-2Fe (316Ti)	(Todd et Ren 1989; Lee et Mansur 2000; Ghuezaïel 1985; Leitnaker et Bentley 1977; Kesternich 1985a; Delalande 1992)
M ₃ P	Aiguille	Tétragonale	$a = 0,919$ $c = 0,459$	Aucune composition fournie	(Delalande 1992)
M ₂ P	Aiguille	Hexagonale ou Orthorhombique	$a_{\text{hex.}} = 0,587$ $c_{\text{hex.}} = 0,346$ $a_{\text{ort.}} = 0,588$ $b_{\text{ort.}} = 0,359$ $c_{\text{ort.}} = 0,672$	28P-25Ti-21Fe-9Ni-8Mo-5Cr-3Si (316Ti)	(Delalande 1992)
Ti (C,N)	Sphérique	CFC	$a = 0,424 \pm 0,005$	Proche de 100% de Ti	(Courtin 2016; Sourmail 2001)
M ₂₃ C ₆	Allongée ou en lamelles	CFC	$a = 1,063 \pm 0,002$	63Cr-18Fe-14Mo-5Ni (316)	(Weiss et Stickler 1972)
M ₆ C	Non renseignée	CFC	$a = 1,095 \pm 0,01$	30Cr-30Ni-25Mo-10Fe-5Si	(Weiss et Stickler 1972; Delalande 1992)
Cr ₂ B	Allongée	Orthorhombique	$a = 1,470$ $b = 0,734$ $c = 0,429$	-	(Andersson et Kiessling 1950)
(Cr,Fe) ₂ B	Allongée	Type Mn ₄ B	$a = 1,461$ $b = 0,736$ $c = 0,422$	-	(Aronsson et Aselius 1958)
Cr _{0,9} Fe _{1,1} B _{0,9}	Allongée	Orthorhombique	$a = 1,457$ $b = 0,732$ $c = 0,422$	-	(Brown et Beerntsen 1964)
(Cr,Fe) ₂ B	Allongée	Orthorhombique	$a = 1,457$ $b = 0,732$ $c = 0,422$	-	(Brandis et Horn 1969)
Cr _{1,0} Fe _{1,0} Ni _{0,09} B _{1,0}	Allongée	Orthorhombique	$a = 1,471$ $b = 0,741$ $c = 0,425$	-	(Goldschmidt 1971)
Cr _{1,65} Fe _{0,35} B _{0,96}	Allongée	Orthorhombique	$a = 1,458$	-	(Schanz et Padilha 1980)

Annexe 2 – Précipités susceptibles de se former dans les aciers inoxydables austénitiques stabilisés après traitements thermiques isothermes

			b = 0,737 c = 0,424		
$\text{Cr}_{3,2}\text{Fe}_{0,8}\text{B}_{1,0}$	Allongée	Orthorhombique	a = 1,467 b = 0,741 c = 0,425	-	Garcia-Borquez 1984
$\text{Ti}_4\text{C}_2\text{S}_2$	Allongée (bâtonnets)	Hexagonale	a = 0,321 c = 1,112	Proche de 100% en Ti	(Courtin 2016; Sourmail 2001)
Phases de Laves	Particule équiaxe	Hexagonale	a = 0,473 ± 0,01 c = 0,772 ± 0,01	45Mo-11Cr-38Fe-6Ni	(Weiss et Stickler 1972; Grot et Spruiell 1975)
σ	Allongée	Tétraogonale	a = 0,883 ± 0,001 c = 0,459 ± 0,001	11Mo-29Cr-55Fe-5Ni	(Weiss et Stickler 1972; Grot et Spruiell 1975)
χ	Allongée	CC	a = 0,888 ± 0,05	22Mo-21Cr-52Fe-5Ni	(Weiss et Stickler 1972; Grot et Spruiell 1975)

Tableau A2.1 – Tableau récapitulatif des phases susceptibles d’être présentes dans les aciers inoxydables austénitiques stabilisés.

Annexe 3 – Détermination de la taille et de la fraction volumique des précipités secondaires par Diffraction des Neutrons aux Petits Angles (DNPA)

Les mesures ont été réalisées au LLB (Laboratoire Léon Brillouin) situé dans l'enceinte du CEA de Saclay avec l'aide de Marie-Hélène MATHON et Pascale JEGOU.

La DNPA est très utile pour caractériser la ou les population(s) de particules (d'une taille inférieure à 20 nm) pouvant se trouver dans le volume. Le diamètre moyen et la fraction volumique des nano-carbures de titane ont pu être déterminés à l'aide des échantillons utilisés pour la DNPA sont de 1 min, 2 h, 5 h et 10 h (850°C) pour cette thèse. Les temps choisis sont compatibles avec les autres caractérisations réalisées sur ces échantillons recuits et avec les durées des essais prévues en fluage. Les résultats de (Rouxel 2016) pour des échantillons recuits à 650°C (AIM1 industriel) sont présentés également dans la [partie 2.2](#) du [Chapitre 2](#).

1. Principe de la DNPA

Le principe de la DNPA ([Figure A3.1](#)) consiste à placer un échantillon dans la trajectoire d'un faisceau de neutrons collimaté (rayons parallèles) de longueur d'onde λ . L'interaction entre les neutrons et la matière va permettre la diffusion du faisceau dans un cône centré sur l'axe du faisceau incident.

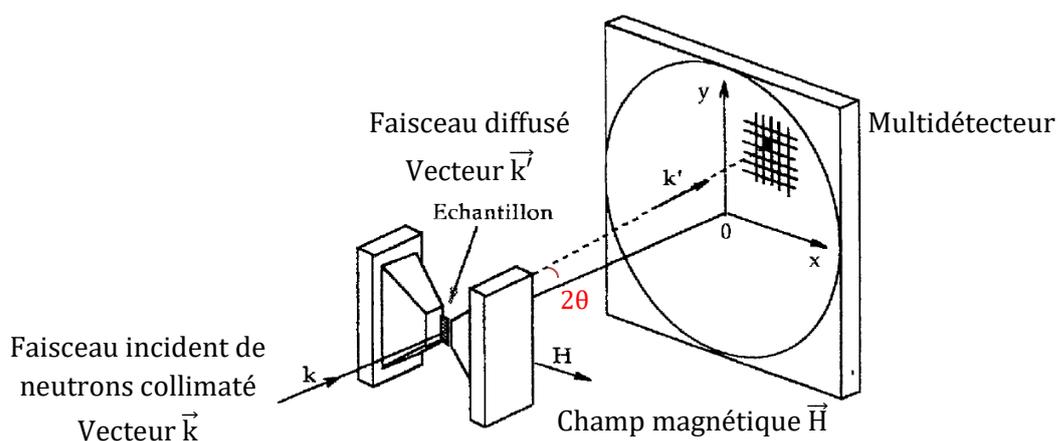


Figure A3.1 – Schéma du principe de la DNPA, d'après (Mauriès 2008).

La direction de diffusion est caractérisée par q , la norme de vecteur de diffusion est définie par la relation (A3.1) :

$$q = \frac{4\pi \sin\theta}{\lambda} \quad (\text{A3.1})$$

Le champ magnétique \vec{H} permet de séparer les interactions magnétique et nucléaire. Les précipités secondaires n'étant pas ferromagnétiques, seule la contribution de l'interaction nucléaire (neutron-noyau atomique) est détectée. Elle est caractérisée par la longueur de diffusion notée b .

L'instrument PAXY a été utilisé. Il est constitué d'un multidétecteur de dimensions 128x128 cm² subdivisé en cellules de 1x1 cm². L'acquisition pour des distances de 2 m et 5 m entre l'échantillon et le détecteur permet de couvrir une large gamme d'amplitudes de vecteurs d'onde (entre 0,1 nm⁻¹ et 1,6 nm⁻¹). Le temps de comptage varie entre 1 min et 1 h pour chaque échantillon pour les deux distances de mesure (car il dépend de la population des précipités « à compter », donc du recuit réalisé). Les échantillons analysés proviennent de demi-tubes aplatis à froid dans le but d'obtenir des parallélépipèdes de dimensions 10x10x0,565 mm³.

Dans un premier temps, les cellules du multidétecteur sont repérées par un couple (x,y) correspondant au vecteur \vec{q} . Chacune de ces cellules reçoit un nombre d'impulsions données et sont rapportées au nombre de neutrons incidents. Les cellules sont alors regroupées en fonction de l'angle de diffusion θ . Un exemple de spectre brut obtenu en DNPA est présenté sur la [Figure A3.2](#).

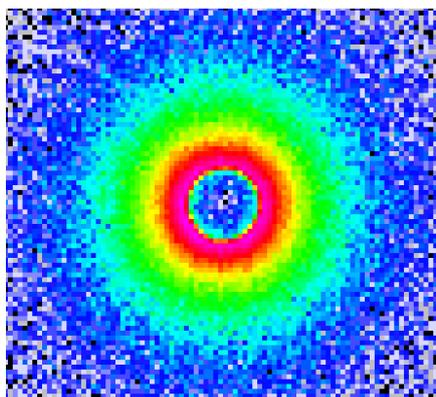


Figure A3.2 – Exemple d'un spectre brut obtenu en DNPA.

L'intensité mesurée doit subir des corrections afin d'extraire la contribution des précipités, pour cela il faut déterminer :

- L'intensité diffusée par le porte-objet à vide ;
- La contribution du vide (pour s'affranchir de la matrice, à défaut de posséder un état sans précipités) ;
- Les facteurs de transmission de l'échantillon ;
- Les caractéristiques de l'appareillage et transposer les intensités en nombre de coups (acquisition avec un échantillon de plexiglas).

L'intensité corrigée qui nous intéresse est obtenue en prenant en compte ces éléments. Cette intensité peut ensuite être tracée en fonction du vecteur q (en superposant les intensités aux distances de 2 m (q élevé) et 5 m (q faible)). On obtient ainsi les courbes présentées sur la [Figure A3.3](#). Cette figure permet de déterminer qualitativement l'évolution de la population de nano-précipités en fonction du temps de maintien à 850°C. La taille et le nombre de ces précipités augmente rapidement entre 1 min et 2 h (décalage vers les q faibles et I élevées). La précipitation semble se stabiliser à partir de 2 h de maintien à 850°C.

Le bruit de fond est déterminé pour les vecteurs de diffusion élevés, l'intensité est décrite avec une équation asymptotique en q^{-4} telle que :

$$I(q) = Cq^{-4} + bdf \tag{A3.2}$$

Avec C la constante de Porod et bdf le bruit de fond (dû à de la diffusion incohérente et/ou au bruit de fond de l'appareil).

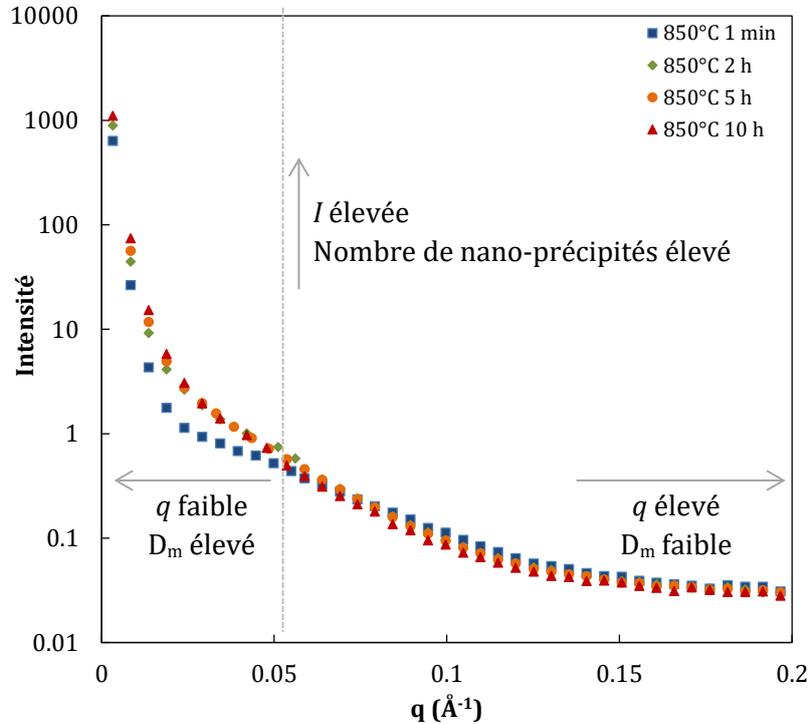


Figure A3.3 – Courbes expérimentales représentant l'intensité en fonction du vecteur de diffusion q . D_m correspond au diamètre moyen des précipités.

Le bruit de fond est déterminé à partir d'une régression linéaire de Iq^4 en fonction de q^4 , dont un exemple est donné sur la [Figure A3.4](#).

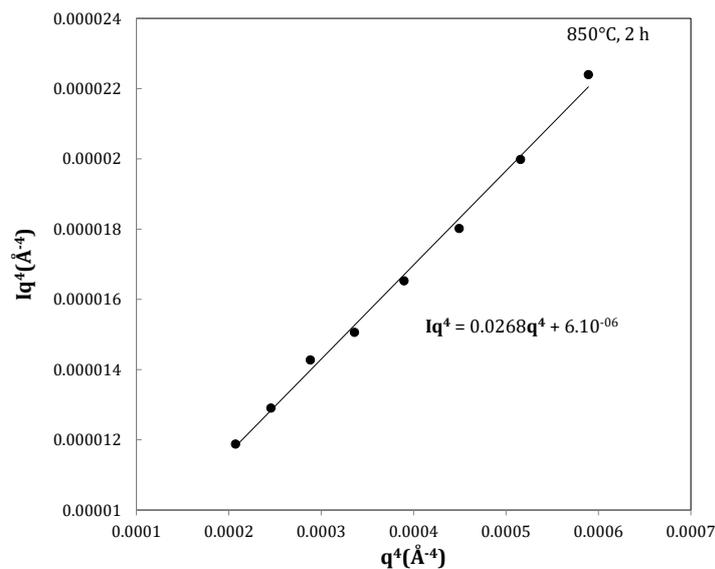


Figure A3.4 – Détermination du bruit de fond pour l'échantillon 850°C, 2 h.

2. Traitement des données

Les données $\ln I$ et q sont ensuite copiées dans un fichier .txt, ce qui va permettre l'ajustement de la courbe $\ln I$ en fonction de q à l'aide d'une macro dans le logiciel ImageJ.

La distribution est supposée gaussienne avec une population de précipités secondaire dans les grains (dans la mesure où les précipités dans les grains recristallisés ne sont pas détectés en DNPA puisque leur taille est supérieure à 30 nm). Ces hypothèses semblent correctes au regard des résultats des distributions expérimentales obtenues au MET (Figure A3.5).

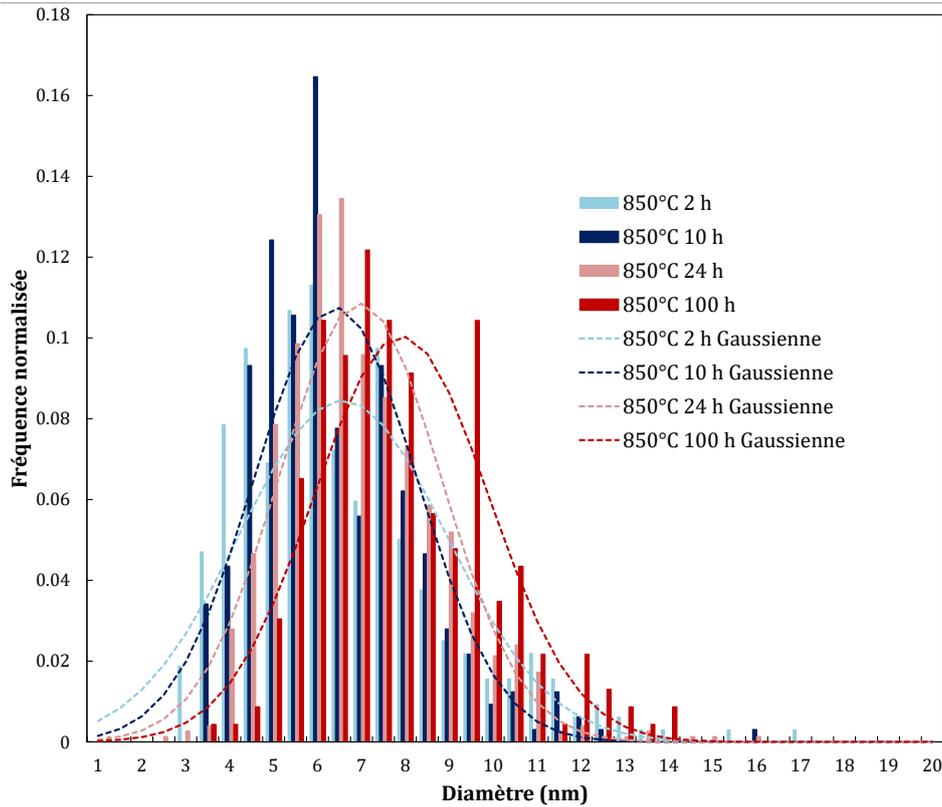


Figure A3.5 – Distributions des diamètres moyens des précipités secondaires déterminées à l'aide du MET (après traitements thermiques : 850°C, 2 h, 10 h, 24 h, 100 h).

La section efficace de diffusion nucléaire $I(q)$ peut être exprimée à partir de la relation (A3.3) :

$$I(q) = A * F(q, r, \sigma) \tag{A3.3}$$

$$\text{Où } A = f_v * (\rho_p - \rho_m)^2 = f_v * \Delta\rho_{\text{nucléaire}}^2$$

Avec :

- f_v la fraction volumique des précipités;
- ρ_p la densité de longueur de diffusion des précipités ;
- ρ_m la densité de longueur de diffusion de la matrice ;
- $F(q, r, \sigma)$ le facteur de forme dépendant du vecteur de diffusion q , du rayon moyen des particules r et de la largeur de la gaussienne σ .

Les paramètres à ajuster sont A , r et σ dans le but d'obtenir une courbe se rapprochant le plus de la courbe expérimentale. L'incertitude sur la fraction volumique est de 10% et est basée sur l'incertitude de la détermination du paramètre A .

Notons que l'ajustement de A ne dépend pas de l'obtention du rayon moyen, mais intervient sur la détermination de la fraction volumique des précipités.

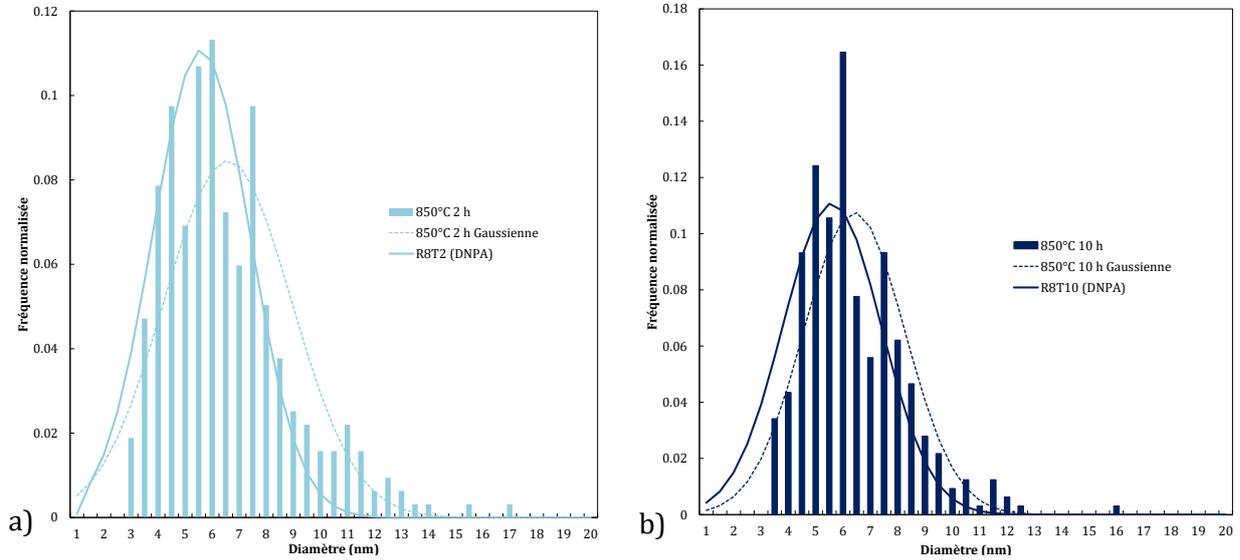


Figure A3.6 – Comparaison des gaussiennes obtenues par analyse MET et DNPA après traitements thermiques à a) 850°C pendant 2 h et b) 850°C pendant 10 h.

Afin d'obtenir la fraction volumique, le contraste nucléaire doit être calculé. Pour ce faire, la **relation (A3.4)** a été utilisée :

$$\Delta\rho_{nucl} = \frac{b_{nucl}^p}{V_{at}^p} - \frac{b_{nucl}^m}{V_{at}^m} \quad (A3.4)$$

Avec :

- b_{nucl}^p et b_{nucl}^m les longueurs respectives de diffusion du précipité et de la matrice ;
- V_{at}^p et V_{at}^m les volumes atomiques respectifs du précipité et de la matrice.

La longueur de diffusion est déterminée à l'aide de la **relation (A3.4)** :

$$b_{nucl} = \sum_{\acute{e}l} X_{\acute{e}l} b_{\acute{e}l} \quad (A3.4)$$

Avec :

- $X_{\acute{e}l}$ la teneur atomique de l'élément présent dans le précipité et/ou dans la matrice ;
- $b_{\acute{e}l}$ la longueur de diffusion de l'élément.

Annexe 4 – Mesure de densité de dislocations par diffraction des neutrons

Les expériences de diffraction des neutrons ont été réalisées sur le dispositif 3T2 au Laboratoire Léon Brillouin (LLB) situé au sein du CEA Saclay. Les expériences ont été réalisées à l'aide de Florence PORCHER.

La diffraction des neutrons a été utilisée dans le but de déterminer l'évolution de la largeur des pics d'austénite après différents recuits (variation de la température et du temps de maintien). L'objectif est de remonter à une densité de dislocations relative, permettant d'estimer la cinétique de restauration à 650°C, 750°C, 850°C, 950°C et 1000°C. Le temps de comptage pour chaque échantillon est de 12 h afin d'obtenir un spectre dont la position et l'élargissement des pics sont représentatifs. Les échantillons utilisés sont des tubes d'environ 7 cm de longueur. Un plot « mâle » a été spécialement conçu pour fixer l'échantillon au sein du dispositif expérimental.

1. Présentation du dispositif expérimental

Le principe du dispositif est de placer un échantillon fixe sur la trajectoire du faisceau neutronique qui va être diffracté simultanément sur 50 collimateurs espacés de 2,4° (Figure A4.1). Ce multi-détecteur est balayé tous les 2,4° jusqu'à un angle total de 117,6° pour l'obtention du spectre de diffraction. La longueur d'onde du faisceau est de 1,2 Å.

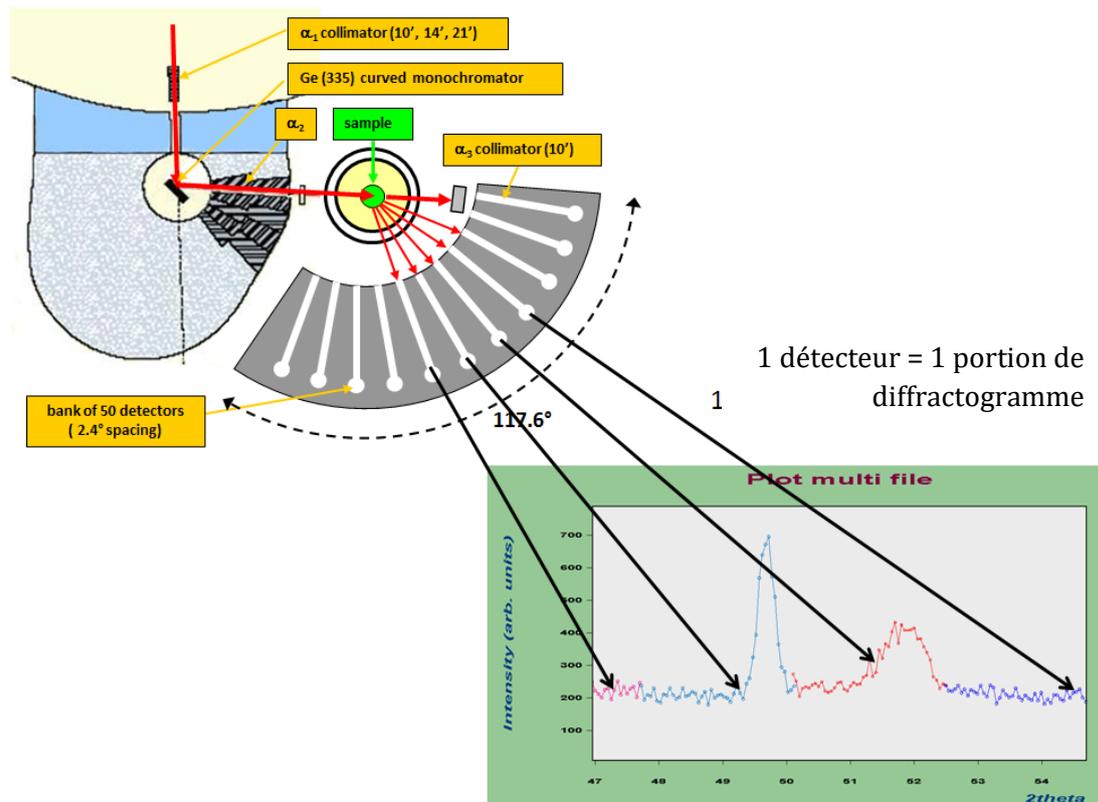


Figure A4.1 – Schéma du dispositif expérimental de diffraction des neutrons, d'après la procédure du LLB.

Les pics de l'austénite accessibles grâce à cette méthode sont : (111), (200), (220), (311), (222), (400), (331), (420) et (422).

2. Méthode de dépouillement

Le logiciel Fullprof a été utilisé afin d'ajuster les paramètres d'un spectre théorique avec les spectres de diffraction expérimentaux. Faute d'informations quantitatives concernant la texture de l'AIM1 et malgré son écrouissage initial, le matériau a été supposé comme isotrope (sans textures). L'affinement « profile matching with constant scale factor » a été utilisé, ce qui permet d'avoir un meilleur ajustement par rapport à un affinement de type Rietveld qui est très affecté par les effets de texture. En effet, le « profile matching with constant scale factor » permet d'avoir une intensité pour chaque pic libre, rendant les intensités indépendantes d'un pic à l'autre, ce qui n'est pas le cas pour la méthode Rietveld.

Pour la détermination de la forme des pics, une fonction de type Pseudo-Voigt a été utilisée :

$$\Omega(x) = pV(x) = \eta L(x) + (1 - \eta)G(x) \quad (A4.1)$$

Avec :

- $pV(x)$, une combinaison linéaire d'une fonction Lorentzienne (L) et Gaussienne (G) d'une même largeur à mi-hauteur (ou *FWHM* pour *Full Width et Half Maximum*) ;
- η compris entre 0 et 1.

Résumé

La thèse est inscrite au sein du projet ASTRID, qui est un démonstrateur technologique pour les réacteurs de quatrième génération (Gen-IV). Le premier matériau choisi pour constituer les gaines de cœur est un acier inoxydable austénitique stabilisé au titane (type 15Cr-15Ni Ti). L'écroissage à froid des gaines permet la précipitation de nano-carbures de titane en service sur les dislocations, retardant ainsi les phénomènes de restauration par effet d'épinglage. En conditions accidentelles ($T > 650^{\circ}\text{C}$), et plus particulièrement dans le cas d'une perte de réfrigérant primaire, le comportement en fluage de ces gaines est très mal connu. L'objectif des travaux de thèse est donc de déterminer les mécanismes de déformation et de rupture en fluage, entre 650°C et 950°C , de cet acier à l'état non irradié.

Dans un premier temps, les microstructures d'échantillons après différents recuits ont été comparées afin d'étudier l'influence de la température sur les évolutions métallurgiques. L'étude de la précipitation et des cinétiques de restauration et de recristallisation, ont permis de dresser les évolutions microstructurales sans charge appliquée.

En plus d'étudier le comportement en fluage uniaxial de l'acier à haute température, les caractérisations des éprouvettes après essais ont permis de déterminer les évolutions microstructurales au cours et après essais de fluage (contributions simultanées de la température et de la contrainte). La comparaison avec les microstructures obtenues après recuits a mis en évidence une accélération de la cinétique de recristallisation sous charge, rendant l'effet de la contrainte sur ces évolutions non négligeable.

Après fluage sous air aux plus basses températures (650°C et 750°C), les fractographies présentent une rupture globalement transgranulaire avec certaines zones intergranulaires. Après fluage sous vide secondaire à plus hautes températures (850°C et 950°C), un fort amincissement des éprouvettes et une striction quasiment complète dans l'épaisseur ont été observés. Ce fort amincissement se traduit par un alignement de cupules, caractéristique de ruptures 100% ductiles à très haute température.

Mots Clés

ASTRID, conditions incidentelles, acier inoxydable austénitique, évolutions microstructurales à haute température, recuit, fluage uniaxial

Abstract

The ASTRID project aims at designing a fast-reactor prototype for the 4th generation of nuclear power plants. The material to be used for fuel cladding is a cold-worked austenitic stainless steel stabilized with titanium (15Cr-15Ni Ti type) and optimized in minor elements. This material was developed to limit recovery and irradiation-induced swelling and to improve microstructural stability and mechanical properties in normal operating conditions. In case of incidental situations (irradiation temperature $> 650^{\circ}\text{C}$), the cladding might rapidly reach higher temperatures up to 950°C where its stability could be affected. The present work aims at improving knowledge and understanding of the microstructural evolution and creep behaviour of this steel at these temperatures (650°C - 950°C).

Microstructural characterizations of thermally-aged samples have been performed in order to study the effect of temperature on metallurgical evolutions (precipitation, recovery and recrystallization). A phenomenological model including recovery and recrystallization processes was set up to reproduce hardness measurements versus ageing time and temperatures.

Isothermal creep tests up to 950°C under a wide range of stress levels allowed investigation of viscoplastic flow, microstructural evolution under stress and damage/failure processes. In order to evaluate the effect of high-temperature loading, microstructural characteristics of stress-free thermally-aged samples were compared with post-mortem examinations of creep specimens.

At 650°C and 750°C the value of stress exponent is higher than 7. The main deformation mechanism during creep test is power-law creep, which is consistent with the results found in the literature.

Beyond 850°C , the increase in dislocation mobility promotes recovery and recrystallization processes. As a consequence, a competition between work hardening due to viscoplastic deformation and softening due to dynamic recovery takes place. At 950°C , viscoplastic flow is strongly affected by recrystallization during creep test, especially in the tertiary stage. The comparison between microstructures of creep specimens and stress-free, thermally-aged samples leads to the conclusion that the recrystallization kinetics is accelerated by application of a mechanical loading.

As for the fracture behaviour, creep tests under air environment at lower temperatures (650°C - 750°C), led to predominating ductile fracture but some intergranular zones were observed on fracture surfaces. Creep tests under high vacuum at higher temperatures (850°C - 950°C) lead to a high fracture elongation with a reduction of area up to 100%.

Keywords

ASTRID, incidental conditions, stabilized austenitic stainless steel, microstructural evolutions at high temperature, annealing treatment, uniaxial creep tests