

juin 20000 810

50376
1996
143

THESE

Présentée à

L'UNIVERSITE DES SCIENCES ET TECHNOLOGIES DE LILLE

Ecole Doctorale Sciences de la Matière et du Rayonnement

UFR de Physique

Pour Obtenir le Titre de

DOCTEUR

Spécialité : Sciences des Matériaux

Par

Abdelhamid MESSAI



**ANALYSE FRACTOGRAPHIQUE DE LA RUPTURE
FRAGILE D'UN ACIER INOXYDABLE AUSTENITIQUE
TRES CHARGE EN AZOTE**

Soutenue le 14 mai 1996 devant la Commission d'Examen :

MM J. FOCT	Professeur, Lille I	Président
T. MAGNIN	Professeur, E.N.S.M. St Etienne	Rapporteur
F. LOUCHET	Professeur, I.N.P. Grenoble	Rapporteur
J.I. DICKSON	Professeur, Ecole Polytechnique, Montréal	Examineur
A. IOST	Professeur, E.N.S.A.M. Lille	Examineur
J. -B. VOGT	Professeur, ENSC Lille	Directeur de Thèse

Le travail présenté dans ce mémoire a été réalisé au laboratoire de Métallurgie Physique de l'Université des Sciences et Technologies de Lille (URA CNRS 234) sous la direction de Monsieur le Professeur J.-B. VOGT.

Je tiens tout d'abord à remercier Monsieur le Professeur J. FOCT de m'avoir accueilli avec bienveillance au sein de son laboratoire. Je lui suis très reconnaissant d'avoir suivi avec intérêt le déroulement de cette étude et d'avoir accepté de présider le jury de Thèse.

J'exprime ma profonde gratitude à Monsieur le Professeur J.-B. VOGT mon Directeur de Thèse pour sa compétence, sa disponibilité et l'intérêt qu'il a porté à cette étude, ainsi que pour les nombreuses discussions qui ont contribué à l'avancement de ce travail.

Je remercie particulièrement et très vivement Monsieur J. L. DICKSON Professeur de L'Ecole Polytechnique de Montréal (CANADA) pour sa collaboration et l'intérêt qu'il a porté à ce travail. Il a participé de très près à la réalisation de ce travail. Ses directives expérimentales en fractographie et ses nombreux et fructueux conseils m'ont été de plus précieux. C'est avec un grand plaisir que je lui adresse toute ma reconnaissance.

Je remercie Messieurs J. MAGNIN, Professeur à l'ENSM de Saint-Etienne et F. LOUCHER, Professeur à l'I.N.P de Grenoble, d'avoir accepté d'examiner ce travail et d'en être les rapporteurs.

J'exprime ma profonde gratitude à Monsieur A. IOST, Professeur de l'ENSAM de Lille, pour l'attention qu'il a porté à ce travail, pour sa sympathie et d'avoir accepté de faire partie de ce jury

Je remercie également tous les membres du laboratoire, et tout particulièrement Monsieur L. ANDRIES et Mademoiselle A. OLIVIER, qui ont contribué de loin ou de près, techniquement, scientifiquement et moralement au bon déroulement de ce travail.

Je dédie enfin cette Thèse à ma famille qui est ma hauteur, ma largeur et ma profondeur.

Fractographic analysis of the brittle fracture of a high nitrogen austenitic stainless steel

As opposed to conventional FeCrNi austenitic stainless steels, high nitrogen austenitic stainless steel Fe18Cr18Mn0.9N exhibits a brittle fracture at low temperature or in the presence of aggressive hydrogen environment. The present work consists to analyse the microfractography of the brittle fracture obtained in order to determine the fracture mechanisms.

The different fracture surfaces obtained at low temperature in impact, fatigue, tensile tests show the varied nature of the brittle fracture: transgranular, intergranular and mixed. Microfractographic analysis of transgranular brittle fracture based on stereographic observations of slip-line traces or twins and each pits show clearly a predominant crystallographic cracking characterised by a true cleavage "without rivers" mainly on the {111} planes and occasionally on the {100} and {110} planes. Frequently, the {111} planes present rivers lines, departing from grain boundaries and propagating according to $\langle 110 \rangle$ local direction. An alternated cracking on {110} average plane resulted from two alternating {111} microfacets have also been observed. The cracks initiated on these planes propagate according to $\langle 100 \rangle$ local direction. The absence of the second phase and the presence of plasticity traces indicate that brittle fracture is associated to a restricted plastic deformation as shown by the highest values of the effective stresses.

The steel shows also a sensitivity to hydrogen embrittlement. This steel exhibits a brittle trans-intergranular fracture dependent of test conditions. Contrary to that observed at low temperature, transgranular brittle fracture by cleavage or discontinuous cracking was mainly identified on the {100} planes. The cracks initiate at grain boundaries and propagate according to $\langle 100 \rangle$ local direction. The brittle fracture obtained is thus explained by decohesion mechanism.

TABLE DES MATIERES

Introduction générale.....	6
Références bibliographiques de l'introduction générale	7

Chapitre I

L'azote interstitiel dans les alliages austénitiques

Introduction	8
I. 1- Conception et évolution des aciers inoxydables austénitiques à forte teneur en chrome-manganèse-azote	8
I. 2- Elaboration des aciers inoxydables austénitiques à forte teneur en azote	10
a- Solubilité de l'azote dans les aciers.....	11
b-Technologie d'élaboration des aciers à forte teneur en azote	13
I. 3- Propriétés des aciers austénitiques inoxydables à l'azote.....	14
I. 3. 1- Influence de l'azote sur la stabilité structurale.....	15
I. 3. 2- Effet de l'azote sur les caractéristiques mécaniques	16
I. 3. 2. 1- Traction monotone.....	16
I. 3. 2. 2- Effet de de l'azote sur le comportement en fatigue des aciers austénitiques.....	19
I. 3. 2. 3- Ténacité des aciers inoxydables austénitiques.....	21
I. 3. 3- Influence de l'azote sur les propriétés de résistance à la corrosion....	21
a- Résistance à la corrosion généralisée.....	22
b- Résistance à la corrosion intergranulaire.....	22
c- Résistance à la corrosion localisée	23
c. 1- Résistance à la corrosion sous contrainte	23
Conclusions.....	25
Références bibliographiques du chapitre I.....	26

Chapitre II
Caractérisation microstructurale et mécanique de l'acier
Fe18Cr18Mn0.9N (P900)

Introduction.....	29
II. 1- Matériau	29
II. 1. 1- Composition chimique et traitement thermique.....	29
II. 1. 2-Microstructure	30
II. 2. Comportement mécanique du P900.....	31
II. 2. 1- Echelle d'analyse du comportement mécanique du P900.....	31
II. 2. 2- Comportement au choc.....	32
II. 2. 3- Comportement du P900 sous sollicitation monotone	35
II. 2. 4.- Comportement du P900 en fatigue	39
a- Effet de la température sur le comportement en fatigue du P900.....	39
a. 1. - Comportement du P900 à la température de la salle d'essais.....	39
a. 2. - Comportement du P900 à la température de l'azote liquide....	42
b- Effet de la température sur l'amorçage surfacique des fissures et leur propagation en volume	43
b.1- Analyse microscopique de la plasticité en surface	43
b. 2- Propagation en volume	45
c- Stabilité du P900 via l'abaissement de température en cours de cyclage.....	47
Conclusions.....	48
Références bibliographiques du chapitre II.....	49

Chapitre III

Microfractographie de la rupture fragile produite à basse température

Introduction.....	51
III. 1- Analyse fractographique de la rupture fragile obtenue à basse température en fatigue, en traction monotone et en résilience dans le P900.....	51
III.1. 1- Morphologie de rupture fragile	51
III. 1. 2- Microfractographie de la rupture fragile transgranulaire obtenue dans la zone de rupture finale	54
III. 1. 2. 1- Terminologie	54
a- Identification des traces de glissement	56
b- Identification des lignes d'arrêt de la fissure.....	57
c- Identification des macles.....	57
III. 1. 2. 2- Méthodes permettant de déterminer l'orientation des détails cristallographiques.....	58
a- Figures d'attaque cristallographiques.....	58
b- Observation stéréographique et analyse de traces de glissement	59
III. 1. 2. 3- Description fractographique des principaux faciès.....	60
a- Fissuration cristallographique sur des plans {111}.....	60
a.1- Fissuration cristallographique sur les plans {111} sans rivière	60
a.2- Fissuration cristallographique sur les plans {111} avec rivières.....	62
a. 2. 1 - Problème de direction locale de propagation	66
b- Fissuration cristallographique sur des plans {100}.....	68
c- Fissuration cristallographique sur les plans {110}	71
d- Fissuration alternée sur un plan moyen {110}	71
III.2- Analyse fractographique de la rupture fragile obtenue à basse température dans la zone de fatigue.....	73
a- Similitude avec la fractographie obtenue pour des faibles valeurs "K"..	75
b- Faciès en éventail.....	75
III.3-- Autres caractéristiques fractographiques observées hors la zone de rupture finale en traction monotone	76
III. 4- Discussion.....	77
Conclusions.....	80
Références bibliographiques du chapitre III.....	81

Chapitre IV

Sensibilité du P900 à la fragilisation par l'hydrogène

Introduction.....	83
IV.1- Phénoménologie et mécanismes.....	83
IV.1. 1- Phénoménologie.....	83
IV.1. 2- Généralités sur la fragilisation par l'hydrogène des aciers inoxydables austénitiques	86
IV.1. 3- Mécanismes basés sur les effets de l'hydrogène.....	87
a- Mécanisme basé sur les pressions internes d'hydrogène.....	87
b- Mécanisme basé sur l'abaissement de l'énergie de surface.....	88
c- Mécanisme basé sur la réduction des forces de cohésion.....	89
d- Mécanisme basé sur la formation d'hydrures métalliques et transformation de phases.....	90
e- Mécanismes basés sur les interactions hydrogènes /déformation plastique	92
IV. 2- Procédures expérimentales.....	95
IV. 2. 1- Caractérisation physico-chimique du P900.....	95
a- Présentation de l'environnement et choix du potentiel.....	95
b- Mesure du potentiel libre	96
c- Caractérisation potentiocinétique	96
IV. 2. 2- Méthode expérimentale.....	97
IV. 3- Résultats	99
IV. 3. 1- Comportement mécanique en traction monotone.....	99
IV. 3. 2- Analyse de l'endommagement	101
IV. 3. 2. 1- Endommagement électrochimique sous polarisation cathodique (en absence d' effort).....	101
IV. 3. 2. 2- Analyse de l'endommagement lors des couplages traction-polarisation cathodique	101
a- Eprouvette tractionnée à l'air sans milieu corrosif.....	102
b- Eprouvette tractionnée sous polarisation cathodique	103
c- Eprouvette préchargée cathodiquement pendant 72 heures	108
d- Eprouvette préchargée cathodiquement puis tractionnée sous polarisation cathodique	111
d. 1- Fissuration fragile à caractère intergranulaire.....	114

d. 2- Mise en évidence d'une fissuration pseudo-intergranulaire.....	116
d. 3-Fissuration localement transgranulaire.....	117
d. 3. 1- Fissuration cristallographique suivant des facettes primaires {100} séparées par des rivières	117
d. 3. 2- Fissuration transgranulaire discontinue.....	118
d. 3. 3- Fissuration cristallographique sur les plans {100} sans rivière.....	119
IV. 4- Discussions	121
Conclusions.....	128
Références bibliographiques du chapitre IV.....	129
Conclusion générale	132
Annexe " Détermination des contraintes internes et effectives à partir des boucles d'hydtérésis.....	136
Références bibliographiques de l'Annexe	142

INTRODUCTION GENERALE

Les matériaux de structure CFC, comme les aciers austénitiques (type 316L, 316LN), sont considérés comme de bons matériaux pour les applications cryogéniques car ils ne présentent pas de rupture fragile dans un large domaine de température. Une rupture fragile peut néanmoins se produire lors d'une utilisation en milieu corrosif (corrosion sous contrainte, fragilisation par l'hydrogène). Ces aciers possèdent en revanche des caractéristiques mécaniques relativement faibles comparées à celles des aciers ferritiques, austéno-ferritiques et martensitiques. Depuis quelques années, l'introduction d'azote interstitiel dans ces aciers apparaît comme un remède efficace pour obtenir des aciers inoxydables à hautes caractéristiques mécaniques. En effet, sa présence dans les matrices FeCrNi (0.03%-0.3%) durcit la phase austénitique, augmente sa limite d'élasticité, sa charge à rupture et sa résistance à la fatigue, sans perte appréciable de ductilité. De plus, il améliore la résistance à la corrosion localisée et intergranulaire [1,2,3,4,5,6].

Compte tenu des effets bénéfiques de l'azote, le besoin de produire des nuances de plus en plus alliées en azote s'est manifesté. Pour y parvenir, il faut utiliser tous les facteurs favorisant la solubilité de l'azote dans l'austénite : teneur en manganèse et pression. Réunissant ces deux conditions, il est possible d'élaborer des aciers inoxydables austénitiques pouvant contenir 1% massique d'azote. Cependant, dans des nuances FeCrMnN, une fragilité a été évoquée limitant ainsi leur potentiel d'utilisation.

Le but de ce travail est d'étudier la sensibilité de l'acier austénitique Fe18Cr18Mn0.9N à la fragilisation par abaissement de température ou par l'hydrogène. Notre étude reposera sur l'analyse fractographique des faciès de rupture fragile afin de proposer une interprétation de la cause de la rupture fragile.

Le premier chapitre retrace l'évolution des aciers FeCrMnN à haute teneur en azote depuis leur origine et les différentes améliorations apportées à ces aciers. Cette entrée en matière est suivie d'une description de la technologie moderne (P.E.S.R) nécessaire à leur élaboration, puis par une revue de propriétés métallurgiques, mécaniques et de résistance à la corrosion.

Le chapitre II débutera par une caractérisation structurale. Une description détaillée du comportement mécanique sera faite en résilience, en traction monotone et en fatigue à l'ambiante et à 77 K. Les résultats mécaniques seront systématiquement corrélés à des analyses microscopiques sur l'endommagement en surface et en volume des éprouvettes testées.

Le chapitre III sera consacré à l'analyse microfractographique de la rupture fragile obtenue. Une description fine de la cristallographie de la fissuration sera donnée afin d'interpréter ce comportement fragile.

Le chapitre IV exposera quelques généralités sur le phénomène de fragilisation par l'hydrogène et quelques principaux mécanismes liés à ce type de fissuration. Cette partie sera suivie d'une caractérisation électrochimique et mécanique montrant les conditions favorisant la fragilisation par l'hydrogène des aciers FeCrMnN. Une fine analyse microfractographique traitée sous l'angle de la cristallographie de la fissuration sera présentée.

Enfin, une conclusion résumera les principaux résultats mis en évidence par la présente étude.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES DE L'INTRODUCTION

1- J. Foct

Les nouveaux aciers à l'azote, revue de traitement thermique N°231, 1989, p 21

2- F. B. Pickering

Some beneficial effects of nitrogen in steel," High Nitrogen Steels HNS 88", édité par J. Foct et A. Hendry, The Institute of Metals 1989, p 10

3- M. O. Speidel

Properties and application of high nitrogen steels, *ibid* 2, p 92

4- P. J. Uggowitzer and M. Harzenmoser

Strengthening of austenitic stainless steels by nitrogen, *ibid* 2, p 174

5- J. E Truman

Effects of nitrogen alloying on corrosion behaviour of high alloy steels, *ibid* 2, p 225

6- R. M. Magdowski and M. O. Speidel

Stress corrosion cracking of high nitrogen steels, *ibid* 2, p 251

CHAPITRE I

L'AZOTE INTERSTITIEL DANS LES ALLIAGES
AUSTENITIQUES

Introduction

Depuis quelques années, l'azote apparait comme un élément d'alliage intéressant pour l'obtention de nuances d'aciers inoxydables à haute caractéristique mécanique [1,2,3]. Dans ce chapitre, nous nous proposons par une revue bibliographique de rappeler les principales raisons du développement et de l'amélioration sans cesse croissante des aciers austénitiques alliés à l'azote. En effet, nous discuterons brièvement dans cette partie des mécanismes fondamentaux par lesquels l'azote est devenu l'élément à priori le plus privilégié. Nous montrerons son influence sur la nature et la stabilité de la microstructure, et par conséquent son influence sur les propriétés mécaniques et physico-chimiques.

I. 1- Conception et évolution des aciers inoxydables austénitiques à forte teneur en chrome-manganèse-azote

L'appellation "acier inoxydable" regroupe une famille d'alliages à base de fer dont la principale propriété est la résistance à la corrosion généralisée. Le chrome est l'élément essentiel qui, à des teneurs supérieures à 12% en poids, assure l'inoxidabilité de l'acier en favorisant la formation d'un film protecteur passif d'oxyde (quelques dizaines d'angströms) à la surface des aciers. D'autres éléments d'alliage sont ajoutés selon le milieu auquel l'acier doit résister : Ni, Mn, Mo, L'effet α -gène ou γ -gène de ces éléments d'alliage définira la structure cristallographique de l'acier. Le nickel et le manganèse sont deux éléments à fort pouvoir γ -gène. Les aciers inoxydables austénitiques peuvent être classés en deux grandes familles d'aciers FeCrNi (série 300) et FeCrMn (série 200).

Le développement des aciers austénitiques à forte teneur en manganèse remonte à 1882 quand Robert Hadfield a inventé les aciers 1.2%C-12% Mn qui portent son nom [4]. Ces derniers ont généré dans le monde une large famille d'aciers à forte teneur en manganèse avec des versions modifiées, caractérisés à la fois par de bonnes propriétés de ténacité et de faible perméabilité magnétique. Cependant, leur utilisation est limitée à cause de leurs faibles caractéristiques mécaniques (ex : limite d'élasticité, charge à la rupture, ..) associées à une mauvaise tenue à la corrosion.

Pour pallier ces inconvénients, cet acier a été remplacé dans les années 60 par une nouvelle nuance Fe-18Mn-4Cr-0.5C caractérisée par une limite d'élasticité de 500 MPa et une bonne aptitude au traitement thermomécanique, ce qui a permis d'obtenir une limite d'élasticité proche de 1200 MPa. La forte teneur en manganèse et en carbone permet d'avoir un domaine austénitique étendu et de stabiliser la structure austénitique en cours du refroidissement. Néanmoins, ils souffrent d'une grande sensibilité à la corrosion intergranulaire et sous contrainte car la teneur en chrome est trop faible. De plus, la teneur élevée en carbone conduit à une précipitation de carbures.

Le diagramme d'équilibre Fe-Cr-Mn (Fig.I.1), montre l'existence de la phase sigma (entre Fe-Mn et Fe-Cr) réputée pour induire des problèmes de fragilité. De plus, l'addition de chrome pour améliorer la résistance à la corrosion d'un acier Fe-Mn doit se faire en préservant la stabilité structurale. Or, le diagramme montre qu'une addition de chrome au delà 15% conduit à haute température à la présence de la ferrite. Cette dernière se révèle néfaste car elle fragilise l'acier et rend plus difficile sa mise en forme. Ceci souligne le besoin de compenser avec des éléments γ -gènes (nickel, l'azote) à chaque fois qu'on veut augmenter la teneur en chrome.

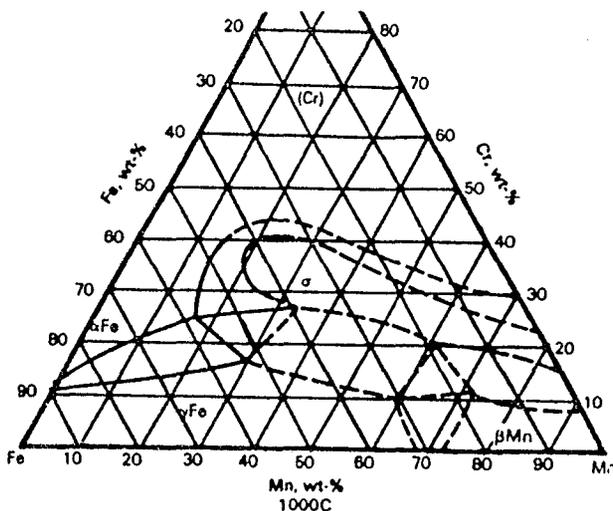


Fig.I.1. Diagramme FeMnCr à 1000°C. (FeMnCr Diagram at 1000° C) [4].

Le nickel a été introduit en premier à cause de son pouvoir gammagène et stabilisateur. A cet égard, plusieurs nuances d'aciers FeCrMnNi ont été élaborées contenant des teneurs en nickel allant de 0 à 10% (Fig.I.2). Les aciers FeCrMnNi possèdent une bonne stabilité structurale dans un large domaine de température [5]. Leur relative facilité d'élaboration et de mise en forme ainsi que leur bonne

résistance à la corrosion ont permis à ces aciers d'être utilisés dans un large domaine de température aussi bien à basse température (stockage de gaz liquifié,...) qu'à haute température (échangeurs de chaleur....). Ils possèdent également de bonnes propriétés supraconductrices à cause de leur faible perméabilité magnétique à basse température ainsi qu' une bonne soudabilité.

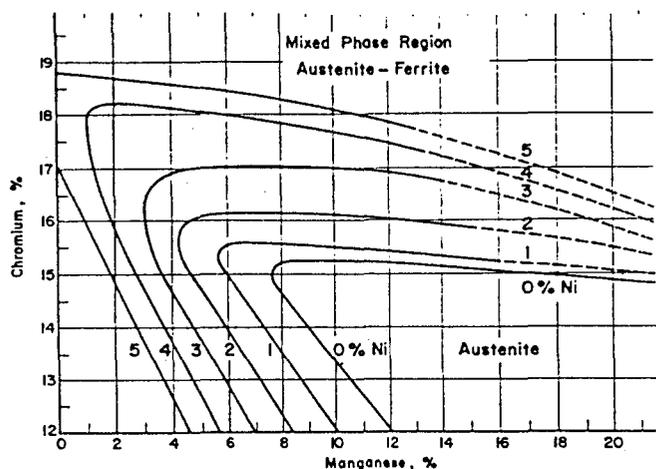


Fig.I.2 . Structure des aciers FeCrMn avec 0 à 10% de nickel. (Structure of FeCrMn steels with 0 to 10% Ni)[4].

Cependant, au regard des exigences recommandées pour la fabrication des anneaux de frette destinés aux générateurs électriques, les applications de ces aciers "FeCrMnNi" étaient limitées à cause de leurs faibles caractéristiques mécaniques : faible limite d'élasticité puisque elle devait atteindre au moins 1000 MPa, faible capacité de durcissement due principalement à la teneur élevée en nickel. Pour répondre à ces nouvelles exigences sans diminuer les avantages des nuances FeCrMnNi, l'azote est l'élément qui apparaît le plus prometteur.

I. 2- Elaboration des aciers inoxydables austénitiques à forte teneur en azote

Il est à priori surprenant d'ajouter l'azote, un élément introduit lors du soufflage à l'air dans l'acier et éliminé dans l'aciérie à oxygène car il était considéré depuis longtemps comme nuisible, fragilisant au même titre que certains éléments résiduels indésirables (soufre, phosphore, oxygène...). Mais la prise en compte de la figure I.3 laisse présager de propriétés intéressantes des aciers à l'azote. En effet, ce diagramme montre l'effet des éléments d'alliage sur la limite d'élasticité et indique que l'azote est un des éléments les plus prometteurs (effet durcissent environ 3 fois plus grand que celui du carbone [6,7]).

Comme le carbone, l'azote possède un faible rayon atomique ($r_C = 0.077\text{nm}$ et $r_N = 0.071\text{nm}$) et forme avec le fer des solutions solides interstitielles, de structure cubique centrée avec le fer α et de structure cubique à faces centrées avec le fer γ [4]. Bien qu'ils se suivent dans la classification périodique, leurs propriétés physico-chimiques sont différentes. Il existe cependant une différence importante entre ces deux éléments concernant principalement leur solubilité dans les alliages.

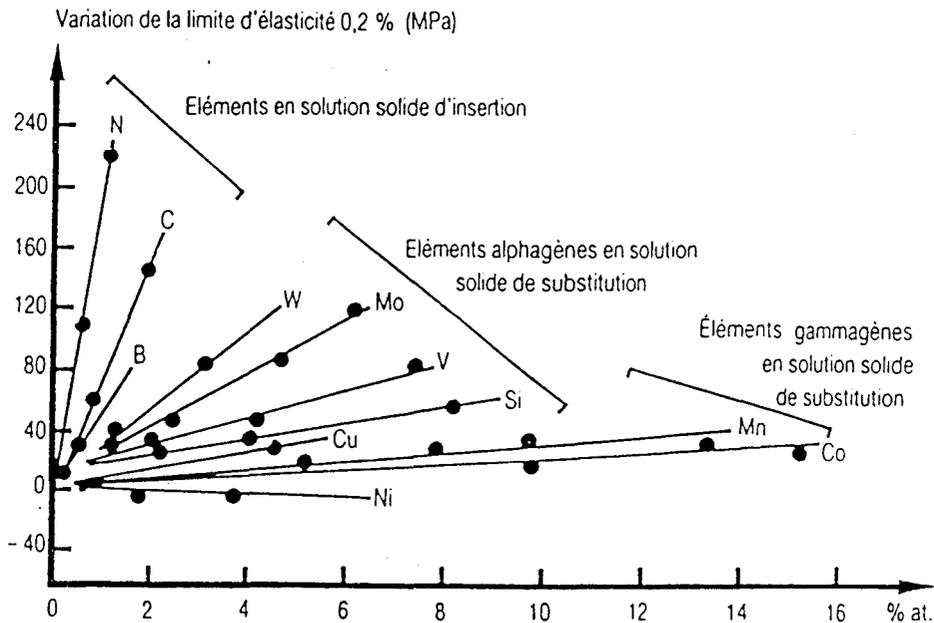


Fig.I.3. Effet des éléments d'alliage sur le durcissement en solution solide dans les aciers inoxydables austénitiques. (Effect of alloying elements on the solid solution hardening of austenitic stainless steels) [2].

a- Solubilité de l'azote dans les aciers

La solubilité de l'azote dans les aciers est plus importante que celle du carbone. D'après ce diagramme Fe-N (Fig.I.4), il s'avère que la limite de solubilité de l'azote dans la ferrite croît avec la température et atteint 0.1%N en poids à 590°C, soit environ 5 fois supérieure à celle du carbone dans la même phase. Quant à la phase γ , elle peut dissoudre jusqu'à 2,35% N en poids à cause des interstices plus larges de la maille CFC comparés à ceux de la maille CC [4]. Cependant, ce diagramme n'est pas un diagramme d'équilibre habituel; il suppose en effet une pression très élevée de la phase gazeuse en équilibre avec les phases condensées. A cet égard, il convient de signaler que la quantité d'azote dissoute dans le fer pur sous pression atmosphérique est très faible (environ 0.039%N à 1600°C et sous pression partielle de 0.8 bar) [8,9]. Ainsi, les possibilités

d'améliorer les propriétés mécaniques par l'addition d'azote peuvent sembler à priori minimes si d'autres paramètres n'agissent pas ou peu sur la solubilité. Trois paramètres sont donc à considérer : la pression, la température et la composition chimique [3,10].

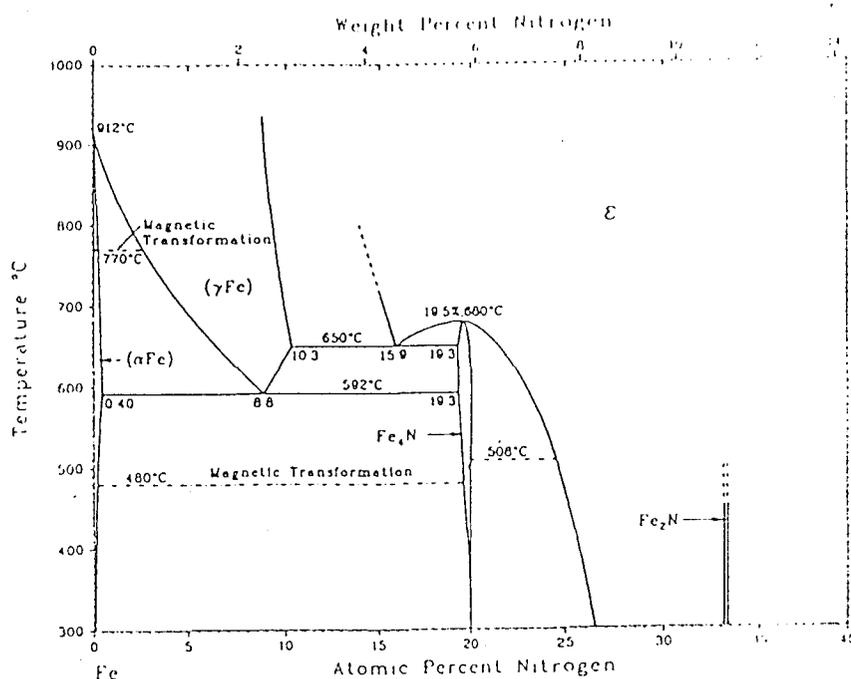


Fig.I.4. Diagramme fer azote. (Iron-Nitrogen Diagram [11]).

Pour augmenter la teneur en azote au delà de sa solubilité limite dans les aciers, deux solutions sont envisageables :

- soit ajouter des éléments d'alliage qui diminuent l'activité de l'azote, et donc augmentent sa solubilité tels que : Ti, V, Nb, Cr, Ta, Mn, Mo, W, ..., (Fig.I.5), et de contrôler les éléments comme le C, Si, Co, Ni, Cu, ..., qui la réduisent.

- soit élaborer l'acier à l'état liquide sous haute pression d'azote gazeux, ce qui nécessite une sidérurgie très sophistiquée.

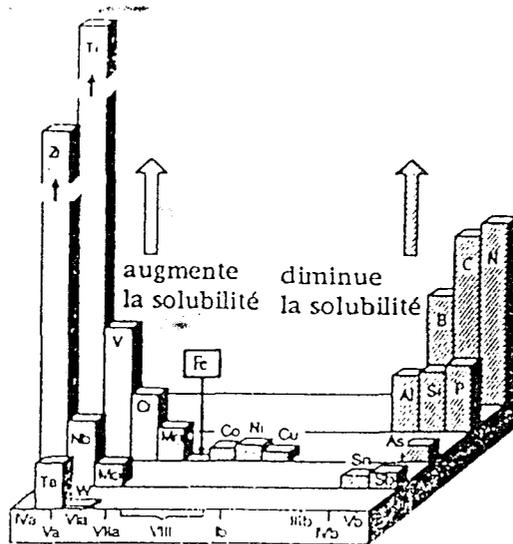


Fig.I.5. Influence des éléments d'alliage sur la solubilité de l'azote suivant leur position dans la classification périodique. (Influence of some alloying elements on the nitrogen solubility of iron base melts as to their position in the periodic table) [12].

b- Technologie d'élaboration des aciers à forte teneur en azote

Il est important de signaler qu'une forte teneur en azote dans l'acier implique une augmentation de la pression de l'atmosphère gazeuse « en équilibre » avec le métal liquide, et que toute perte d'azote après son introduction doit être évitée pendant la solidification. Face à cet intérêt, plusieurs filières se sont développées pour l'élaboration des aciers inoxydables austénitiques à haute teneur en azote dans des conditions réellement industrielles. Parmi ces procédés, on distingue ceux qui consistent à :

- ajouter l'azote dans des fours à plasma
- ajouter l'azote dans des fours à induction et sous pression
- ajouter de l'azote dans des fours à refusion électriques sous laitier nitrurant et sous de forte pressions d'azote (PESR : Pressurized Electro Slag Remelting) [13,14,15].

Rédiger un texte détaillé sur ces techniques d'élaboration n'est pas l'objectif de notre travail, il s'agit simplement de mettre au courant le lecteur du procédé technologique (PESR) qui a servi pour l'élaboration de la nuance "Fe18%Cr18%Mn0.9%N, sujet de la présente étude. Ce procédé a été développé par le groupe sidérurgique allemand "V.S.G" permettant d'élaborer des lingots de plus de 20 tonnes d'aciers inoxydables avec des teneurs en azote dépassant

actuellement 1%N en poids. L'énorme avantage de ces fours est que la nitruration des lingots ne se fait plus à partir de la voie gaz mais à partir de la voie liquide que constitue le laitier liquide. Pour des raisons de potentiel chimique, il est préférable de créer un flux d'azote de la source laitier liquide vers l'acier liquide que d'une source d'azote gazeux vers l'acier liquide. L'azote est donc ajouté de façon continue pendant la refusion, au moyen de granulés solides (FeCrN, CrN, MnN, Si₃N₄,...) et/ou au moyen d'électrode à partir de la voie liquide que constitue le laitier et sous des pressions pouvant aller jusqu'à 42 bars. Le lecteur pourra, s'il le désire, consulter l'article de G. Stein [13,14] pour plus de détails.

A ce titre, des nuances 18%Mn-18%Cr 0.1%C-0.6%N dont la limite d'élasticité et la charge à rupture dépassant aisément les 1000 MPa ont été élaborées avec des teneurs en azote dépassant sa solubilité limite obtenue dans les conditions conventionnelles d'élaboration à 1600°C et sous pression atmosphérique. Néanmoins, à cause de cette teneur élevée en carbone, ces aciers peuvent être corrodés dans certaines conditions d'utilisation : corrosion par piqûres, corrosion intergranulaire..., due en particulier à la sensibilisation de ces aciers à la précipitation des carbures de chrome type M₂₃C₆ et/ou Cr₂N aux joints de grains, ce qui cause un appauvrissement en chrome des zones adjacentes. Pour pallier cet inconvénient, cette nuance a été encore améliorée et remplacée par une nouvelle nuance plus riche en azote (teneur en azote au delà de 1%N) en diminuant la teneur en carbone à moins de 0.05% et en ajoutant des éléments tel que le molybdène connu pour son amélioration des propriétés de corrosion.

I. 3- Propriétés des aciers austénitiques inoxydables à l'azote

Les résultats extraits de la littérature montrent clairement que l'introduction d'une forte teneur en azote dans les aciers inoxydables austénitiques s'accompagne de nombreux avantages tels que :

- une stabilité accrue de la phase γ
- une amélioration de la résistance mécanique
- une amélioration de la résistance à la corrosion

I. 3. 1- Influence de l'azote sur la stabilité structurale

L'azote en solution solide est un élément gammagène plus puissant que le nickel et le carbone [7]. En effet, G. Stein et al [13] ont montré que le fait d'augmenter la teneur en azote de 0.1% à 0.87% conduit à transformer une structure austéno-ferritique contenant 30% d'austénite en une structure complètement austénitique. Notons toutefois, que pour des concentrations identiques en pourcentage massique en nickel et en azote, ce dernier a un pouvoir gammagène 25 fois plus important que le nickel. La solubilité de cet élément interstitiel augmente avec la teneur en manganèse mais diminue avec celle du nickel [6]. L'azote en combinaison avec le manganèse réduit le caractère ferromagnétique des aciers et stabilise la phase austénitique vis à vis de la transformation martensitique [16].

A la différence aux aciers austénitiques inoxydables FeCrNi, il existe peu de travaux sur la cinétique de précipitation des aciers FeCrMnN. Cependant, les quelques études réalisées dans le domaine de température [400°C-900°C] montrent qu'il existe une étroite similitude entre ces deux classes d'acier (FeCrNi et FeCrMnN) [4,17,18,19]. En effet, les aciers FeCrMnN ne sont pas stables lors de maintiens à des températures comprises entre 500°C et 900°C. De multiples phénomènes de précipitation complexes qui dépendent fortement de la composition chimique, déstabilisent l'austénite par précipitation de carbures, de nitrures et /ou carbonitrures et de phases intermétalliques. Pour des températures de vieillissement supérieures à 500°C, les aciers FeCrMnN à forte teneur en carbone (0.5%C) sont sensibles à la précipitation de carbures $M_{23}C_6$ et/ou des carbonitrures $M_{23}(CN)_6$ aux joints de grains [20,21] d'où des conséquences négatives sur la résistance à la corrosion intergranulaire. En effet, l'appauvrissement en carbone des nuances FeCrMnN semble réduire cette précipitation mais accélère celle des phases intermétalliques.

A cet égard, des études menées par F. Vanderschaeve [19] et P. J. Uggowitzer et al [17] sur des nuances Fe18%Cr18%Mn(0.6-0.9)%N0.04%C montrent pour des températures supérieures à 500°C, que ces aciers présentent une grande sensibilité à la précipitation discontinue, et intergranulaire de nitrures Cr_2N . De plus, ils sont sensibles à la précipitation rapide de la phase sigma et d'autres phases intermétalliques très fragilisantes (χ ,...), qui se forment au dépend de la précipitation des Cr_2N . Cette précipitation rapide des phases intermétalliques très

fragilisantes peut paraître rédhibitoire pour les caractéristiques mécaniques (en particulier la ténacité) et les applications envisagées (Fig.I.6).

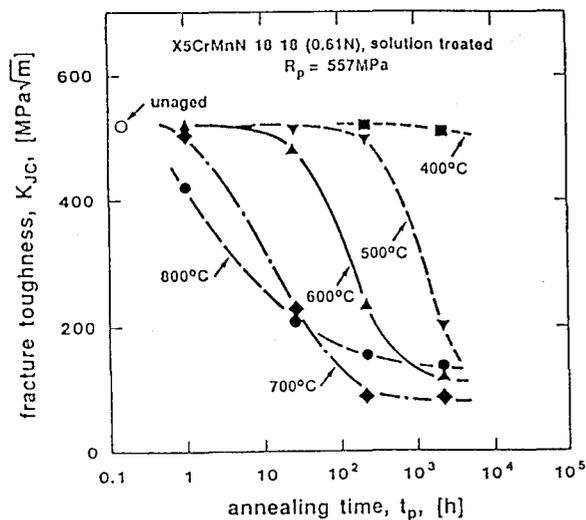


Fig.I. 6. Fragilité de l'acier X5CrMnN1818 due à la précipitation des Cr_2N à des températures supérieures à 400°C . (Embrittlement of X5CrMnN1818 steel due to Cr_2N precipitation at temperatures above 400°C) [18].

I. 3. 2- Effet de l'azote sur les caractéristiques mécaniques

I. 3. 2. 1- Traction monotone

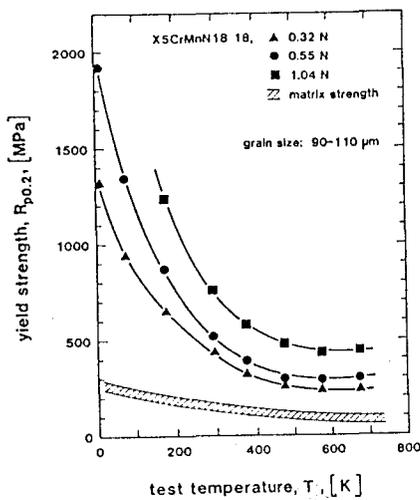
De nombreuses études sur l'effet de l'azote sur le comportement mécanique en traction monotone [6,22,23] des aciers austénitiques FeCrNi montrent que l'addition d'azote en solution solide interstitielle permet d'améliorer la limite d'élasticité " R_e " et la résistance à rupture " R_m ", et ce quelle que soit la température. L'azote, en solution solide, se place en position interstitielle et conduit à des distorsions locales du réseau engendrant des dipôles élastiques qui sont à l'origine des interactions fortes avec les dislocations [1]. D'autre part, certains auteurs [24,25] expliquent le fort effet durcissant de l'azote dans les aciers inoxydables par des phénomènes d'ordre à courte distance (liaisons fortes Cr-N et/ou Mo-N) qui résultent de la forte affinité entre l'azote et les éléments substitutionnels, ce qui entravent le mouvement des dislocations.

Parallèlement, le peu d'études menées sur les aciers FeCrMn montrent également que le comportement mécanique en traction monotone de ces aciers, et plus précisément leur limite d'élasticité peut être considérablement améliorée par l'apport d'azote [26,27,28]. Il est intéressant de noter que la limite d'élasticité des aciers FeCrMnN dépend fortement de la température. Cette dépendance est

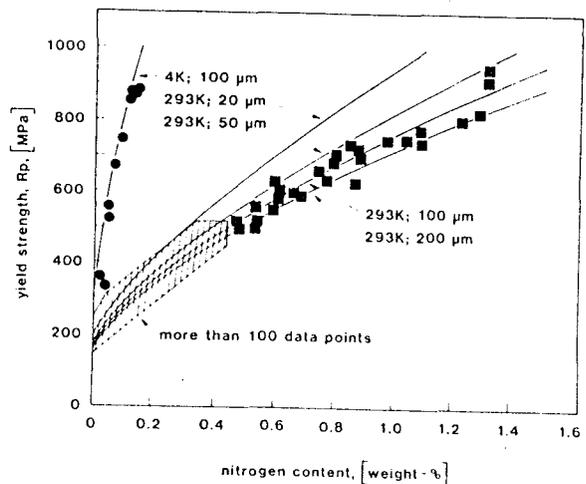
d'autant plus marquée que la température est basse et la teneur en azote est élevée (Fig.I.7a) [26]. Contrairement aux aciers FeCrNi, elle dépend peu de la taille de grain (Fig.I.7b) [26] mais on se rend compte de l'effet durcissant à partir de la variation du facteur " K_y " tiré de de relation de Hall-Petch [17,26] :

$$\sigma_{0.2} = \sigma_0 + K_y d^{-1/2}$$

où le coefficient " K_y " mesure l'efficacité d'un joint de grain à bloquer le mouvement des dislocations. En effet, les figures I.8a, I.8b montrent la forte influence de la teneur en azote et de la température sur le coefficient " K_y ". Il ressort qu'à une température donnée, " K_y " augmente linéairement avec la concentration en azote. Il est par ailleurs d'autant plus élevé que la température est basse.



a)



b)

Fig.I.7. a) Effet de la température sur la limite d'élasticité pour différentes teneurs en azote interstitiel dans une matrice FeCrMn; b) effet de la teneur en azote interstitiel sur la limite d'élasticité pour différentes tailles de grain à la température ambiante et à 4K. (a) The effect of test temperature on the yield stress for different nitrogen contents; b) The effect of the nitrogen of austenitic steels for different grain size at room temperature and 4K) [26].

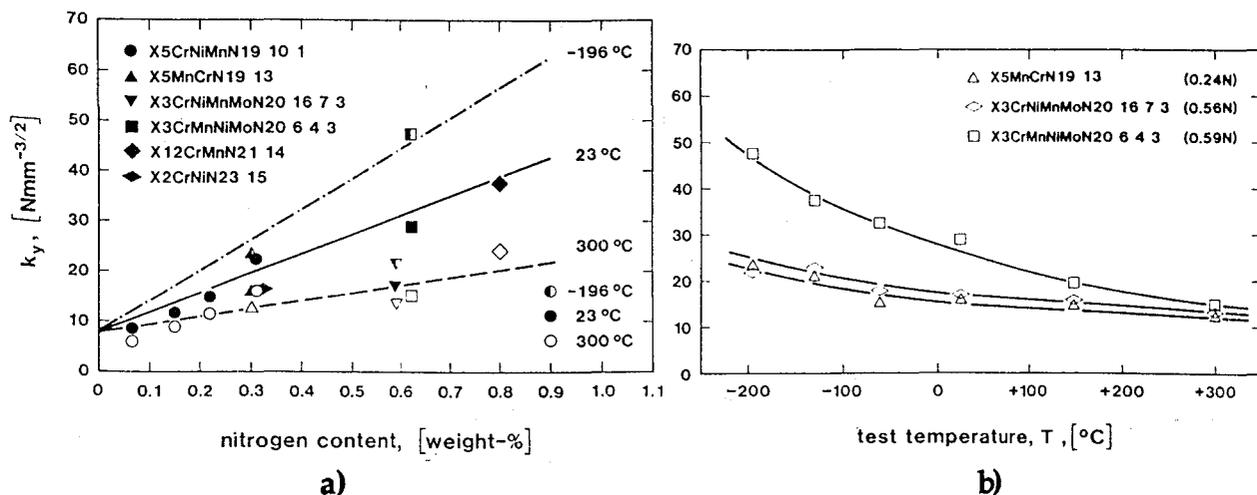


Fig.I.8. Variation du coefficient " K_y " pour différents aciers inoxydables austénitiques :
 a) avec la teneur en azote à différentes températures; b) avec la température.
 (Variation of Hall Petch-slope " K_y " for several austenitic stainless steels :
 a) with nitrogen content at different temperatures; b) with temperature) [26].

Par ailleurs, une des particularités intéressantes des aciers à forte teneur en azote et en manganèse est leur grande capacité à se prédéformer de façon homogène tout en restant amagnétique [1,26]. Par écrouissage très sévère à froid (expansion du diamètre d'environ 80%), ces aciers atteignent des limites d'élasticités au delà de 1200 MPa. Cette particularité découle de la grande stabilité de la phase austénitique vis à vis de la transformation martensitique due à la forte teneur en azote et en manganèse. En effet, P. J. Uggowitzer et al [26] évoquent que la prédéformation est le moyen le plus efficace permettant d'accroître considérablement la limite d'élasticité des aciers inoxydables à forte teneur en azote (FeCrMnN) hypereux. A ce propos, la figure I.9 présente l'influence de la prédéformation sur la limite d'élasticité des aciers inoxydables FeCrMn et d'aciers FeCrNi à différents teneurs en azote. La prédéformation permet d'accroître considérablement la limite d'élasticité de ces aciers, et ce, d'autant plus que la concentration en azote est élevée. De plus, l'effet de la prédéformation tend à s'atténuer beaucoup plus vite dans les FeCrNi que dans les FeCrMn.

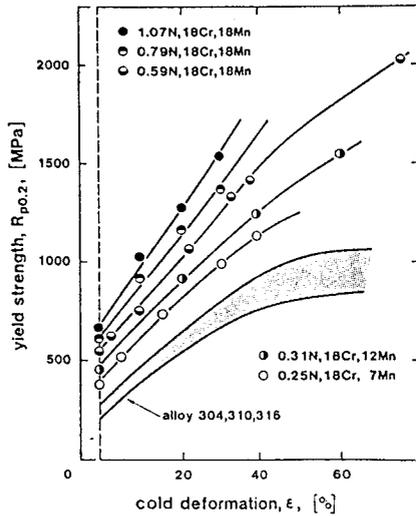


Fig.I.9. Effet d'un écouissage à froid sur la limite d'élasticité pour différents aciers austénitiques. (Effect of cold deformation on the yield strength for different austenitic stainless steels) [26].

I. 3. 2. 2- Effet de l'azote sur le comportement en fatigue des aciers austénitiques

Actuellement, il est bien connu qu'une bonne résistance à la fatigue implique une déformation plastique homogène et réversible permettant de retarder l'amorçage des fissures. Plusieurs auteurs ont montré que la présence d'azote en solution solide dans des matrices FeCrNi ($0.03 \leq \%N \leq 0.3$) augmente à la fois leurs caractéristiques de résistance : limite d'élasticité, charge à rupture et les durées de vie en fatigue [6,22], et par conséquent améliore la résistance à la fatigue. En revanche, très peu de données ont été publiées concernant l'influence de l'azote dans les aciers FeCrMn. La comparaison entre ces diverses nuances (Fig I.10a) montre que l'introduction massive d'azote (Fe18Cr18Mn0.9%N) ne conduit à aucune augmentation significative des durées de vie en fatigue oligocyclique. Néanmoins, au regard des courbes de résistance à la fatigue présentant l'évolution de la contrainte stabilisée en fonction du nombre de cycles à rupture (Fig.I.10b), l'addition d'une forte teneur en azote reste bénéfique si le matériau travaillait sous contraintes imposées.

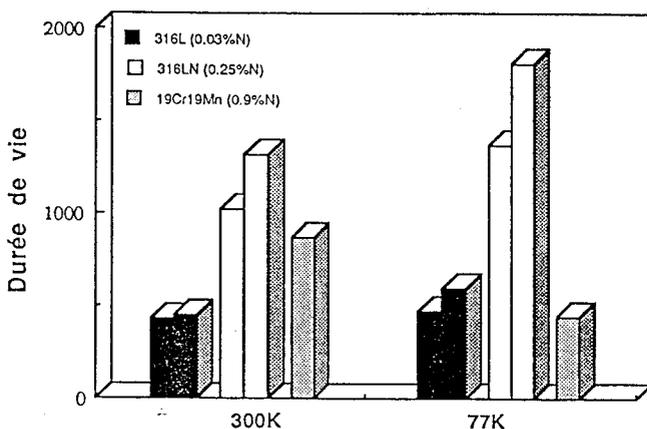


Fig.I.10a. Comparaison entre les durées de vie en fatigue des aciers 316L, 316LN et Fe18Cr18Mn0.9N. (Comparison between fatigue lives of 316L, 316LN and Fe18Cr18Mn0.9N austenitic stainless steels) [29].

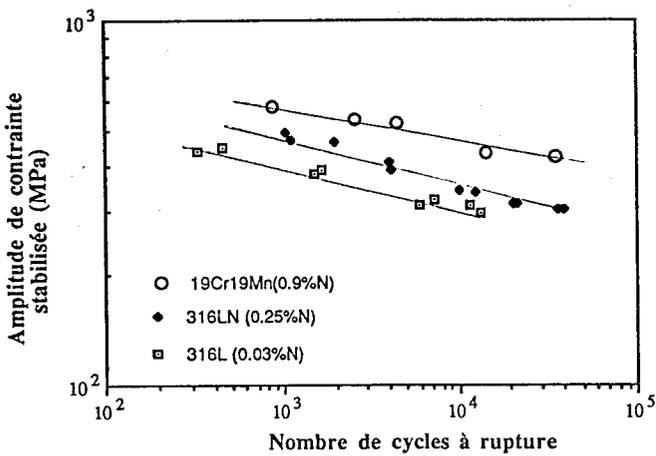


Fig.I.10b. Courbes σ_s - N_f pour les aciers 316L, 316LN et Fe19Cr19Mn0.9N cyclés dans les mêmes conditions à l'ambiante. (σ_s - N_f curves of 316L, 316LN and Fe19Cr19Mn0.9N stainless steels cycled in the same conditions at room temperature) [29].

L'amélioration de la résistance à la fatigue des aciers type 316L a été corrélée à une analyse microscopique de la structure des dislocations. La présence de BGP (à faible amplitude de déformation) et de structures dipolaires et régulières observées dans les aciers sans azote, disparaissent dans les aciers à haute teneur en azote. On observe alors des arrangements planaires de dislocations [22]. Parallèlement, la structure cellulaire observée à haut niveau de déformation pour les aciers à faible teneur en azote devient plus diffuse et moins désorientée avec l'augmentation de la teneur en azote. L'azote modifie le mode de glissement des dislocations. Il inhibe le glissement dévié c'est à dire favorise le glissement plan.

Si l'effet de l'azote sur le mode de glissement semble être connu, son effet sur le mécanisme par lequel il agit n'est pas trivial. Selon R.E Schramm et R.P Reed [24], le glissement planaire observé dans les aciers à l'azote est la conséquence d'une faible énergie de faute d'empilement. Cependant, R. Taillard et J. Foct [25] ont montré qu'un acier type 316L à 0.03%N et 316LN à 0.25%N en poids avait une EFE quasi-identique. L'EFE n'est donc pas le seul et unique critère à prendre dans ces alliages. Par ailleurs, J. -B. Vogt [22], Wahlberg [30], M. Grujicis et al [31] et W. S. Owen [32] attribuent le glissement planaire à la présence d'amas ordonnés à courte distance. Cependant, rien ne prouve si le rôle d'une forte teneur en azote est similaire dans les matrices FeCrNi et FeCrMn.

I. 3. 2. 3- Ténacité des aciers inoxydables austénitiques

Contrairement aux aciers ferritiques, la ténacité des aciers inoxydables austénitiques (ex: 316L, 310, ...) reste acceptable voire excellente aux températures cryogéniques [23,33]. En effet, comme tous les métaux de structure CFC, leurs courbes de résilience ne présentent aucune transition abrupte ductile-fragile. De plus, ils sont peu sensibles aux effets d'entaille et se rompent de façon ductile même à basse température. Néanmoins, les aciers FeCrMnN se distinguent des aciers FeCrNi par la possibilité de se rompre dans le domaine fragile à basse température (Fig.I.11) [34,35]. Ce point sera détaillé dans le chapitre suivant.

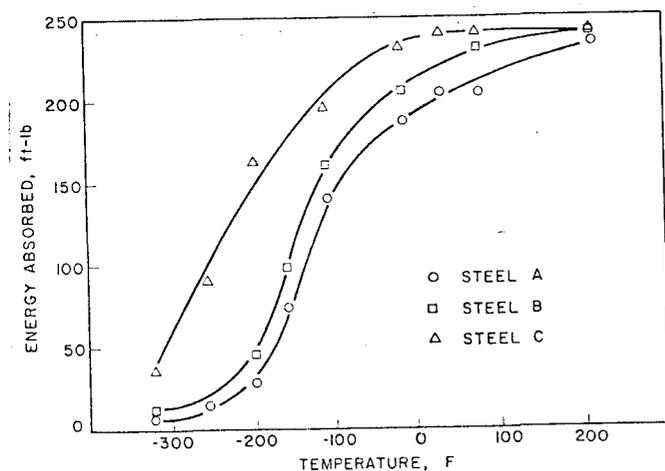


Fig.I.11. Evolution de l'énergie de résilience en fonction de la température d'essai. (Absorbed energy as function of test temperature)[35].

(Nb : sur la figure 11, la composition chimique des aciers A, B, C correspond respectivement à Fe18.4Cr14.7Mn0.2Ni0.54N0.09C, Fe17.8Cr14.9Mn0.14Ni0.38N0.12C, Fe18.4Cr14.9Mn4Ni0.38N0.12C).

I. 3. 3- Influence de l'azote sur les propriétés de résistance à la corrosion

Actuellement, il est bien connu que la présence d'azote améliore la résistance à la corrosion des aciers inoxydables austénitiques et particulièrement les aciers (FeCrNi). En effet, il est bien établi que l'addition d'azote dans ces aciers FeCrNi permet d'abaisser le pourcentage massique du carbone tout en préservant une bonne stabilité de la phase austénitique voire même l'augmenter. Ceci se répercute par un retard de précipitation des carbures $M_{23}C_6$ et/ou des

carbonitrures $M_{23}(CN)_6$ aux joints de grain, ce qui diminue fortement les risques de corrosion intergranulaire. Par ailleurs, le développement récent des aciers FeCrMn à très forte teneur en azote et leur large utilisation dans des environnements agressifs a nécessité la connaissance et la caractérisation de l'effet de l'azote sur la résistance à la corrosion de ces matériaux.

a- Résistance à la corrosion généralisée

La résistance à la corrosion des aciers inoxydables austénitiques est due à l'existence d'un film passif superficiel dont les propriétés sont déterminées par la composition chimique du métal sous-jacent. En effet, le chrome reste toujours l'élément le plus important suivi du molybdène tandis que le rôle du manganèse reste non éclairci. En revanche, l'azote semble présenter un réel avantage. Une étude menée par M. O. Speidel [3] a montré que l'azote a un effet 30 fois plus

efficace que le chrome sur la résistance à la corrosion généralisée. De plus, d'autres études électrochimiques menées par E. Lunarska et Y. N. Jagodzinsky sur des aciers (18Cr15Mn0.7N) [36] et par A. G. Hartline sur des aciers 18Cr18Mn(0.3+0.7)N [37] montrent qu'une amélioration de la résistance à la corrosion généralisée est observée avec l'accroissement de la teneur en azote en milieux chloruré (NaCl) et acide (H_2SO_4). En effet, l'augmentation de la teneur en azote semble améliorer la passivité et rendre plus difficile l'amorçage des piqûres.

b- Résistance à la corrosion intergranulaire

A l'état hypereutecté, les aciers FeCrMnN possèdent une grande stabilité structurale aux phénomènes de précipitations qui se produisent aux joints de grains d'où des conséquences positives sur la résistance à la corrosion intergranulaire. En effet, la faible teneur en carbone et la forte teneur en azote ne font que renforcer cette stabilité par leur action de retard à la précipitation des carbures $M_{23}C_6$, des nitrures Cr_2N , des carbonitrures $M_{23}(CN)_6$ et des phases intermétalliques.

c- Résistance à la corrosion localisée

Grâce à des tests classiques réalisés par mesures potentiodynamiques du potentiel de piqûre, plusieurs auteurs [26,32,37] ont montré que l'azote en solution solide augmente la résistance à la corrosion localisée et en particulier par piqûres d'aciers FeCrMnN. En effet, W. T. Tsai et al [38] ont récemment montré sur des aciers Fe18Cr18Mn (0.58 - 0.9)N que l'addition d'azote influe de manière importante sur la résistance à la corrosion par piqûre en décalant le potentiel de piqûration vers des valeurs supérieures ($E_p = 500$ mV/ESH pour le P900 à 0.58%N et $E_p = 650$ mV/ESH pour le P900 à 0.9%N). L'amélioration de la résistance à la piqûration est attribuée à la formation d'un composé azoté "NH₄" suite à la ségrégation d'azote anodique à la surface au cours de la dissolution du métal.

c. 1- Résistance à la corrosion sous contrainte

Des études menées par R. M. Magdowski et al [39] ont montré que les aciers inoxydables austénitiques FeCrMnN présentent en général une excellente résistance à la corrosion sous contrainte dans des environnements où des aciers avec des teneurs en carbone élevées possédant des limites d'élasticité équivalentes sont extrêmement sensibles à ce phénomène (Fig.I.12). Cette meilleure résistance est attribuée à un effet combiné d'une forte teneur en azote et en chrome.

Par ailleurs, R. M. Pedrazzoli et al [40] montrent aussi que les aciers Fe18Cr18MnN présentent une grande résistance à la CSC à la température ambiante dans l'eau, mais deviennent sensibles à ce phénomène pour les températures supérieures à 100°C. W. T. Tsai et al [38] ont également montré que les aciers Fe18Cr18Mn(0.58-0.9)N sont très résistants à la corrosion sous contrainte dans des milieux chlorurés (1% NaCl) mais seulement pour les potentiels inférieurs aux potentiels de piqûration. Ils ajoutent que l'acier Fe18%Cr18%Mn0.9%N est plus résistant à la corrosion sous contrainte que l'acier Fe18%Cr18%Mn0.58%N et attribuent cette amélioration à la CSC à l'effet bénéfique de l'azote sur la résistance à la corrosion par piqûres. En effet, plus les piqûres sont difficiles à amorcer, plus les fissures s'amorcent et se propagent difficilement et tardivement.

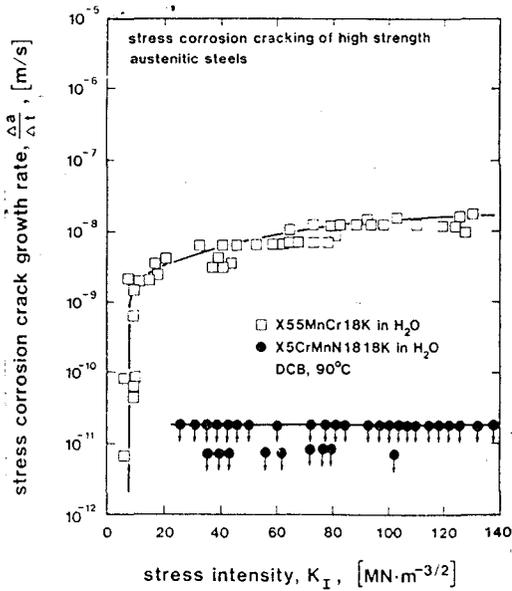


Fig.I.12. Comparaison des vitesses de propagation en CSC de deux aciers au manganèse à limite d'élasticité élevée et déformés à froid. (Comparison of stress crack growth curves of two high strength, cold-worked austenitic manganese steels) [39].

Néanmoins, bien que le phénomène de corrosion sous contrainte soit connecté à des mécanismes de fragilisation par l'hydrogène, et bien que les aciers FeCrMnN soient destinés à être utilisés dans des milieux hydrogénés (ex : le stockage d'hydrogène), aucune étude à notre connaissance n'a cependant été entreprise dans cette optique. A ce titre, une étude sur la fragilisation par l'hydrogène sera présentée au chapitre IV.

Conclusions

Cette revue bibliographique sur les propriétés métallurgiques, mécaniques et de résistance à la corrosion nous a permis de dégager le rôle que peut jouer l'addition d'azote dans les aciers inoxydables austénitiques. En effet, dans les matrices FeCrNi, l'apport d'azote (0.03%N- 0.25%) améliore la stabilité de l'austénite par sa nature fortement gammagène, durcit la phase austénitique, augmente sa limite d'élasticité, sa charge à rupture et sa résistance à la fatigue quelle que soit la température sans pour autant nuire à sa ténacité. De plus, il ralentit la précipitation des carbures et améliore la résistance à la corrosion localisée et intergranulaire.

En revanche, peu de données sont disponibles sur le comportement mécanique et en particulier en fatigue des aciers FeCrMnN. Ceci démontre l'intérêt d'approfondir les connaissances sur l'ensemble des facteurs (forte teneur en azote, déformation plastique, température, environnement, ...) gouvernant le comportement mécanique des aciers FeCrMnN et en particulier en fatigue. Ainsi, une meilleure compréhension du rôle d'une forte teneur en azote dans ces matrices FeCrMn pourrait d'une part compléter et confirmer les connaissances déjà acquises, et d'autres part, montrer d'autres potentialités offertes par ces matériaux ce qui pourrait ouvrir des possibilités futures d'applications.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES DU CHAPITRE I

1- J. Foct

Les nouveaux aciers à l'azote, revue de traitement thermique N° 231, 1989, p 21

2- F. B. Pickering

Some beneficial effects of nitrogen in steel," High Nitrogen Steels HNS 88", édité par J. Foct et A. Hendry, The Institute of Metals 1989, p 10

3- M. O. Speidel

Properties and application of high nitrogen steels, ibid 2, p 92

4- R. A. Lula

High manganese austenitic steels: Past, present and future, "High Manganese, High Nitrogen austenitic steels", édité par R. A. Lula, ASM International, Materials park, 1993, p 1

5- J. C. Bavay

Les aciers inoxydables "Aciers inoxydables austénitiques", Les Editions de Physique, 1990, p 567

6- S. Degallaix

Rôle de l'azote interstitiel et combiné sur le comportement en plasticité cyclique et monotone d'aciers inoxydables austénitiques Z2 CND 17-12 (AISI 316L-316LN), Thèse de Doctorat ès Sciences Physique, Université des Sciences et Techniques de Lille, 1986

7- R. P. Reed, P. T. Purtscher and L. A. Dalgado

Low temperature properties of high manganese austenitic stainless steels, ibid 4, p 13

8- J. Menzel, G. Stein et P. Dahlmann

Manufactured of N alloyed steels in a 20 t PESR furnace," High Nitrogen Steels HNS 90", édité par G. Stein and H. Witulski, 1990, p 365

9- H.K. Feichtinger, A. Satir-Kolors and Z. Xia-Hong

Solubility of nitrogen in solid and liquid iron alloys with special regard to the melting range, ibid 2, p 75

10- A. Poulalion et R. Bott

Nitrogen addition in steelmaking using nitriding, ibid 2, p 49

11- H. A. Wriedt, N. A. Gokcen et R. H. Nafziger

Bulletin of alloy Phase Diagram, Vol.8, N° 4, 1987, p 355

12- H. K. Feichtinger

Alternative methods for the production of high nitrogen steels, "International Conference on stainless steels" édité par K.Yokota, The Iron and steel institute of Japan, 1991, p 1125

13- G. Stein , J. Menzel, M. Wagner

N. Alloyed steels for retaining rings and other applications, ibid 8, p 399

14- G. Stein , J. Menzel, and H. Dorr

Industrial manufacture of massively nitrogen-alloyed steels, ibid 2, p 32

15- W. Holzgruber

Process technology for high nitrogen steels, ibid 2, p 39

- 16- K. Ishikawa, O. Umezawa, K. Nagai, T. Yuri, T. Ogata
Cryogenic properties of high manganese austenitic steels for super conducting fusion system, *ibid* 4, p 215
- 17- P. J. Uggowitzer and M. O. Speidel
Ultra-high-Strength austenitic steels, *ibid* 8, p 156
- 18- M. O. Speidel, P.J Uggowitzer
High manganese, high nitrogen austenitic stainless steels : their strength and toughness, *ibid* 4, p 135
- 19- F. Vanderschaeve
Influence de l'azote en forte concentration sur les phénomènes de précipitations dans les aciers, Thèse de Doctorat, Université des Sciences et Technologies de Lille, 1993
- 20- B. Weiss et R. Stickler
Phase instabilities during high temperature exposure of 316 austenitic stainless steel, *Metallurgical Transaction*, Vol. 3A, 1972, p 851
- 21- M. Hetmanczyk, A. Maciejny and G. Niewielski
Grain boundary reaction in nitrogen containing Cr-Mn austenitic steels, *ibid* 2, p 112
- 22- J. -B Vogt
Influence de l'azote interstitiel et de la température sur les structures de dislocations obtenues par fatigue d'aciers inoxydables austénitiques, Thèse de Doctorat ès Sciences Physiques, Univ. des Sciences et Techniques de Lille, 1991
- 23- S. Degallaix, J. Foct
L'azote dans les aciers inoxydables austénitiques (2 ème partie) : influence sur les caractéristiques mécaniques, Mémoires et Etudes Scientifiques, *Revue de Métallurgie*, 1988, p 111
- 24- R. E Schramm and R. P. Reed
Stacking fault energies of seven commercial austenitic stainless steel
Metallurgical Transaction, Vol. 6A, 1975, p 1345
- 25- R. Taillard, and J. Foct
Mechanisms of the action of nitrogen interstitials upon low cycle fatigue behaviour of 316 stainless steels, *ibid* 2, p 387
- 26- P. J. Uggowitzer and M. Harzenmoser
Strengthening of austenitic stainless steels by nitrogen, *ibid* 2, p 174
- 27- J. Menzel, G. Stein and P. Dahlmann
Massively nitrogen-alloyed austénitiques bolt materials for high temperature applications, *ibid* 2, p 147
- 28- M. O. Speidel
Properties of high nitrogen steels, *ibid* 8, p 128
- 29-J.-B. Vogt
Bulletin du cercle d'etudes des métaux, 34 ème journées, 4-5 mai 1995 Saint-Etienne, p 10

- 30- G. Wahlberg, U. Rolander and H. O. Andrein**
Interaction between nitrogen and substitutional elements in austenitic phase of duplex austenitic-ferritic stainless steels, *ibid* 2, p 163
- 31- M. Grujicic, J. O. Nilsson, W. S. Owen et T. Thorvaldsson**
Basic deformation, "Applications of stainless steels '92", édité par H. Nordberg, J. Björklund, The Institute of metals ASM International, 9-11 juin 1992, p 62
- 32- W. S. Owen**
Nitrogen strengthening of austenitic stainless steels of temperature above 500 K, *ibid* 8, p 42
- 33- J. Masounave, J. I. Dickson et J. -P Baïlon**
Chapitre 9: La fractographie; Rupture, Contrôle, Sûreté, édité par J. Masounave, C. Bathias et J. I. Dickson, 1985, p327
- 34- P. J. Uggowitzer, N. Paulus, and M. O. Speidel**
Ductile- to brittle transition in nitrogen alloyed austenitic stainless steels, *ibid* 31, p 62
- 35- J. D. Difilippi, K. G. Brickner, and E. M. Gilber**
Ductile- to Brittle Transition in austenitic chromium-manganese-nitrogen stainless steels, Transaction of the Metallurgical Society of Aime, Vol. 245, 1969, p 2141
- 36- E. Lunarska and Y. N. Jagodzinsky**
Resistance of high Nitrogen Cr-Ni and Cr-Mn austenitic steels to general and pitting corrosion, *ibid* 31, Vol. 2, p 73
- 37- A. G. Hartline**
The effect of nitrogen addition upon the pitting resistance of 18%Cr18Mn stainless steel, Metallurgical Transaction, Vol.5A, 1974, p 2271
- 38- W. T. Tsai, B. Reynders, M. Stratmann, and H. J. Grabke**
The effect of applied potentiel on the stress corrosion cracking behaviour of high nitrogen steels, Corrosion Science, Vol. 34, N°10, 1993, p 1647
- 39- R. M. Magdowski and M. O. Speidel**
Stress corrosion cracking of high nitrogen steels, *ibid* 2, p 251
- 40- R. M. Pedrazzoli, M. O. Speidel**
Stress Corrosion Cracking of nitrogen containing steels, *ibid* 8, p 208

CHAPITRE II

**CARACTERISATION MICROSTRUCTURALE ET
MECANIQUE DE L'ACIER Fe18Cr18Mn0.9N**

Introduction

Nous présenterons dans ce chapitre le matériau étudié et les différentes techniques expérimentales utilisées pour sa caractérisation microstructurale et mécanique. Une description détaillée du comportement mécanique sera faite et corrélée à l'endommagement surfacique et volumique obtenus en résilience, en traction monotone et en fatigue à la température de la salle d'essais et à celle de l'azote liquide.

II. 1- Matériau

II. 1. 1- Composition chimique et traitement thermique de l'acier

Le matériau étudié est un acier inoxydable austénitique très chargé en azote, provenant de coulées industrielles fournies par l'industrie métallurgique allemande VSG. Ce matériau a été livré sous forme de barres forgées, cylindriques de diamètre 30 mm. La composition chimique de l'acier repéré par "P900" est consignée dans le tableau II.1.

Cette teneur élevée en azote résulte du mode d'élaboration par refusion électrique sous forte pression d'azote (42 bars), et des teneurs élevées en chrome et en manganèse qui augmentent la solubilité de l'azote à l'état liquide [1,2,3].

Tableau II.1. Composition chimique (%pds) de l'acier P900.

(Chemical composition in weight % of P900 steel)

N	C	Mn	Cr	Mo	Ni	S
0.9	0.04	19.1	18.68	0.06	0.45	<0.01
Ti	Si	B	Al	Cu	P	Fe
<0.01	0.45	<0.0004	0.011	0.06	0.016	balance

Avant d'en extraire des échantillons, les barres du P900 ont été homogénéisées pendant 30 minutes à 1125°C dans un four sous air, puis trempées à l'eau pour obtenir à température ambiante une austénite monphasée. Cette hypertrempe est réalisée pour permettre une bonne mise en solution des solutés interstitiels et des substitutionnels.

II. 1. 2- Microstructure

Signalons que l'étude de la structure et du comportement mécanique a été effectuée à partir d'échantillons suffisamment polis pour enlever l'épaisseur oxydée et dénitrurée en surface.

La microstructure des échantillons est révélée après un polissage mécanique jusqu'au papier grade 2400 avec finition au diamant $1\mu\text{m}$. Les échantillons polis sont ensuite attaqués par l'eau régale (10 cm^3 d'acide nitrique, 30 cm^3 d'acide chlorhydrique et 20 cm^3 de glycérine). Une fois révélée, la microstructure examinée au microscope optique est austénitique, totalement recristallisée avec une taille moyenne de grains de $80\mu\text{m}$, déterminée par la méthode des interceptions linéaires (Fig.I.1).

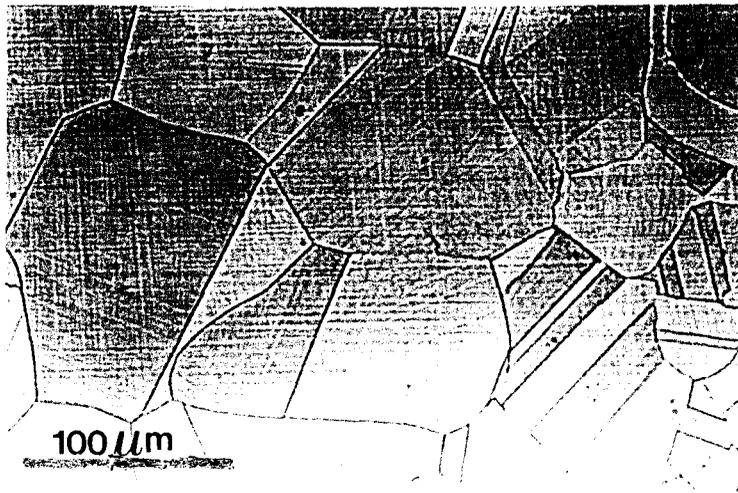


Fig.II.1. Micrographie optique du P900 homogénéisé pendant 30 minutes à 1125°C . (Optical micrograph of the P900 steel after a solution treatment at 1125°C during 30 minutes).

La caractérisation de la microstructure par diffraction des rayons X est réalisée à l'aide d'un diffractomètre Siemens avec une anticathode au Cobalt ($\lambda = 1.790206\text{ \AA}$) sur des échantillons préalablement polis jusqu'au micron. La valeur du paramètre cristallin est de 0.3622 nm . Elle est relativement élevée par rapport à celle du 316L (0.3585 nm), ce qui montre que l'azote en solution solide dilate le réseau CFC de l'austénite [4].

Ces analyses sont complétées par des analyses en spectrométrie Mössbauer et de perte d'énergie des électrons. L'acier P900 se montre entièrement austénitique, exempt de précipités Cr_2N , de martensite ou de ferrite. Les analyses

des spectres de perte d'énergie acquis sur plusieurs grains et dans divers endroits dans un même grain suggèrent que l'azote est réparti de manière homogène en solution solide. Ceci a été également confirmé en microscopie électronique en transmission par F.Vanderscheve [5].

Le tableau II.2 regroupe les principales caractéristiques structurales de l'acier P900 à l'état hypereffé. Les valeurs obtenues se situent autour d'un paramètre moyen évalué à 0.362 nm, d'une taille de grain moyenne de 80 μm et d'une microdureté moyenne de 380. Les essais de microdureté ont été réalisés sur des surfaces d'échantillons polis à l'aide d'un microduremètre "Leitz". La valeur obtenue est une moyenne d'au moins dix valeurs mesurées.

Tableau II.2. Caractéristiques microstructurales de l'acier P900.
(Microstructural characteristics of P900 steel)

caractéristiques	hypereffé
paramètre cristallin (nm)	0.362± 0.001
taille de grain (μm)	81±10
microdureté sous 50g (Hv50)	380±10

II. 2- Comportement mécanique du P900

Les essais mécaniques ont été réalisés depuis 77 K, température de l'azote liquide, jusqu'à la température ambiante, température et atmosphère de la salle d'essais.

II. 2. 1- Echelle d'analyse du comportement mécanique du P900

Tout d'abord, nous présenterons l'effet d'un abaissement de température sur le comportement mécanique du P900 en résilience, en traction monotone et en fatigue. Nous essayerons ensuite de décrire l'évolution de l'endommagement en surface et/ou en volume dans le but de dégager l'effet d'une forte teneur en azote sur les caractéristiques mécaniques.

Deux types d'approche seront donc utilisés pour caractériser le comportement mécanique de l'acier étudié :

- La première sera macroscopique et/ou mécanique montrant la susceptibilité du P900 à la fragilité par abaissement de température. Cette étape sera associée à une étude macro-fractographique permettant d'avoir une identification "grossière" des causes de fissuration. Cette approche oriente les observations micro-fractographiques subséquentes. Elle permet d'avoir une vue d'ensemble de la rupture et de faire une évaluation macroscopique de l'endommagement après essai.

- La seconde sera microscopique fondée sur l'observation fine de l'endommagement aussi bien en volume (faciès de rupture des éprouvettes de résilience, de traction et de fatigue) qu'en surface (observation des lignes de glissement et amorçage des fissures sur les fûts des éprouvettes de traction et de fatigue). Ces analyses ont été effectuées sur un microscope électronique à balayage du type "Philips 525 M", fonctionnant sous une tension d'accélération d'environ 20KV et équipé d'un système de microanalyse par dispersion d'énergie des rayons X (EDX). Cette approche permet d'indiquer les détails micro-fractographiques utiles à la compréhension et l'identification du mécanisme actif en cours de la rupture.

II. 2 .2 - Comportement au choc : mise en évidence d'une température de transition ductile-fragile

La résistance à la rupture fragile des aciers FeCrMnN (P900) a été évaluée à l'aide d'essais de flexion par choc, réalisés à l'aide d'un mouton pendule de Charpy de 300 joules. Les éprouvettes sont normalisées de dimension 10 X 10 X 55 mm³ et d'entaille en V (profondeur : 2 mm, angle : 45°, rayon du fond : 0.25 mm). Ce type d'essai est souvent utilisé pour décrire la fragilité des matériaux à cause des vitesses de chargement très élevées et de la forte triaxialité de contrainte [6,7]. La figure II.2 donne l'évolution de l'énergie de résilience du P900 (0.9%N) dans un intervalle de température compris entre celle de l'azote liquide et celle de la salle d'essais. Ce graphe contient également quelques points relatifs d'une nuance type P900 testée dans les mêmes conditions mais avec une teneur en azote de 0,513%N [8]. Elle comporte aussi quelques points relatifs à des nuances Fe17%Cr12%Ni2.5% Mo contenant 0.03%N (316L) et 0.25%N (316LN) [9].

Les aciers types 316L possèdent une énergie de résilience élevée et constante dans l'intervalle de température étudié. En revanche, l'acier P900(0.9%N) montre une chute très nette de l'énergie de résilience quand la température diminue présentant ainsi une température de transition ductile-fragile vers -65°C . Cette chute consiste en une transition relativement brutale des valeurs de résilience élevées vers des valeurs très faibles dans un intervalle de température restreint. Ce comportement est similaire à celui du P900 (0.5%N) mais la température de transition ductile-fragile se décale vers -130°C . Ceci montre que la température de transition ductile-fragile dans les aciers FeCrMnN augmente avec la teneur en azote.

L'existence de la température de transition ductile-fragile a été également publiée par Uggowitzer et al [10] sur des aciers Fe18Cr18Mn(0.58-1)N et par Difilippi et al [11] sur des aciers Fe18Cr15Mn(0.38-0.54)N. De même R. L. Tobler et D. Meyn [12] montrent que l'acier Fe18Cr13Mn3Ni0.37N possède une température de transition ductile-fragile au cours d'essais de mécanique de la rupture (K_{IC}) à 4.2K

L'analyse fractographique des différents faciès de rupture est en bon accord avec les résultats macroscopiques mécaniques. Ceci confirme l'existence de cette température de transition ductile-fragile (Fig.II.2). En effet, les micrographies montrent clairement l'évolution de la topographie des faciès en fonction de la température d'essai. Une nette transition d'un endommagement progressif vers un endommagement brutal est observée. Ceci est illustré par des zones d'aspect ductile à cupules à des températures supérieures à -50°C . En dessous de -65°C , des zones d'aspect fragile apparaissent.

En revanche, l'analyse fractographique des faciès de rupture des aciers 316L et 316LN montre une fissuration ductile par germination-croissance et coalescence des microcupules même à basse température, ce qui confirme l'absence de température de transition ductile-fragile.

Au vu de ces résultats, il apparaît que les aciers FeCrMnN sont sensibles à la fragilisation par abaissement de température. Ils présentent ainsi une température de transition ductile-fragile qui augmente avec la teneur en azote, en accord avec les observations macrofractographiques

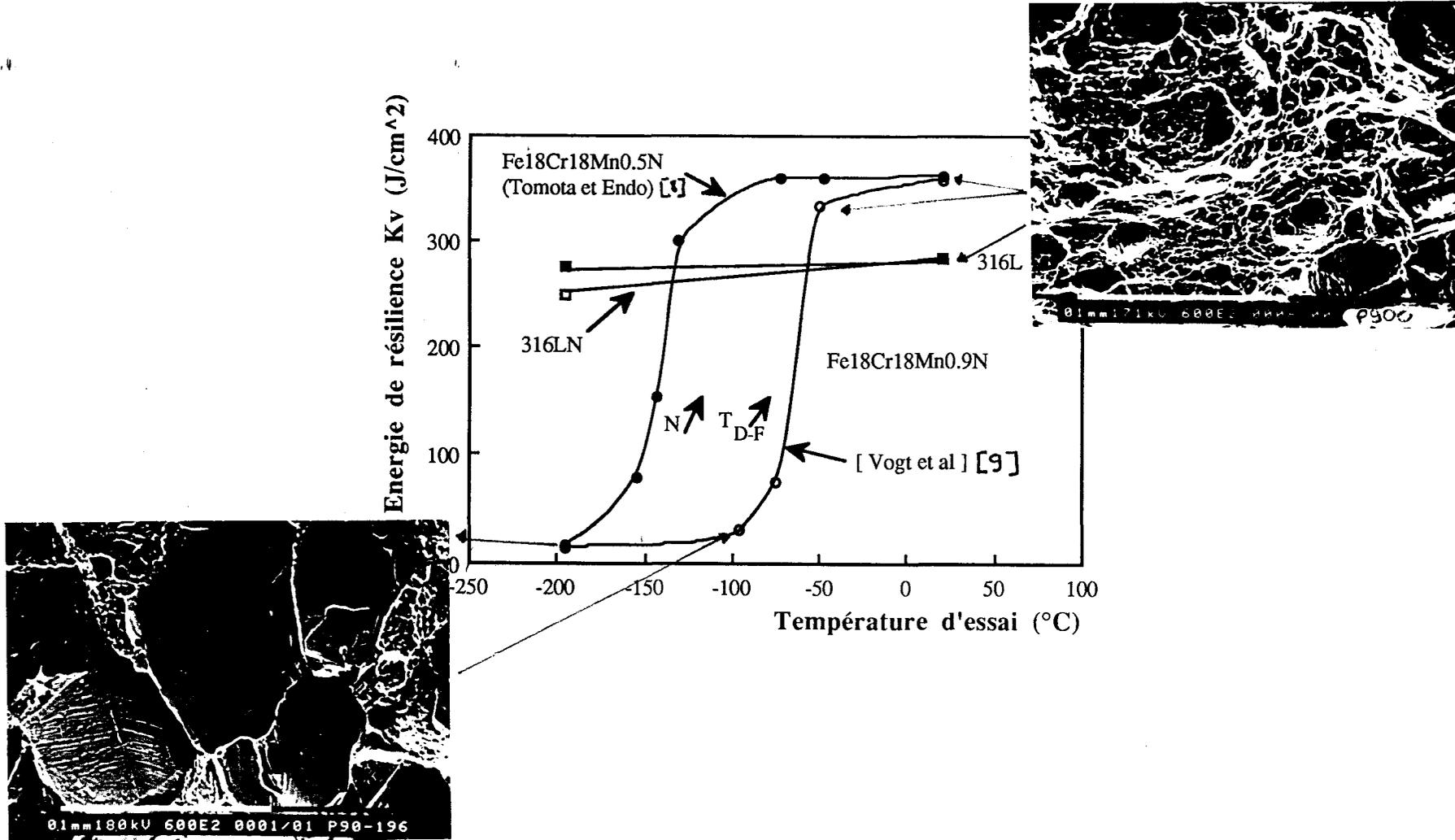


Fig.II. Evolution de l'énergie de résilience et de l'aspect fractographique de la rupture en fonction de la température d'essai. (Absorbed energy (charpy impact value) and typical fractography aspect of the fracture as a function of test temperature).

II. 2. 3- Comportement du P900 sous sollicitation monotone

L'essai de résilience mettant en jeu des vitesses de chargement très élevées et une forte triaxialité de contrainte est sévère et favorise la rupture fragile [6,7,13,14,15].

L'objet de cette partie est de vérifier l'existence d'une température de transition ductile-fragile quand on supprime l'effet d'entaille en présence d'une faible vitesse de déformation. A cet égard, des essais de traction ont été réalisés à la température ambiante et à celle de l'azote liquide sur des éprouvettes cylindriques de longueur utile 20 mm électrolytiquement polies, de diamètre 6 mm, et prélevées dans le sens long des barres hypereffées. Les essais ont été asservis en déplacement du vérin de manière à obtenir une vitesse de déformation de $\epsilon_t = 4.10^{-3} \text{ s}^{-1}$.

La figure II.3 illustre l'effet de la température d'essai sur les propriétés mécaniques de traction monotone du P900. A la température de la salle d'essais, nous observons clairement un domaine de plasticité étendu. A la température de l'azote liquide, les caractéristiques de résistance sont fortement augmentées mais avec une réduction sévère de l'allongement à rupture. Le domaine de plasticité est peu étendu. Le tableau II.3 regroupe les caractéristiques mécaniques du P900 à la température de l'azote liquide et celle de la salle d'essais.

Tableau II.3. Influence de la température d'essai sur les caractéristiques mécaniques de traction.
(Influence of test temperature on tensile properties).

Température	Rm (MPa)	Re (MPa)	A%	$\Sigma\%$
de la salle d'essais	905	700	52	73
de l'azote liquide	1790	1490	6	4

Par ailleurs, les micrographies (Fig.II.3) illustrent très bien la perte de ductilité causée par l'abaissement de température, en particulier l'absence de striction à 77K. A température de la salle d'essais, la rupture semble être produite par déchirement perpendiculairement à l'axe de sollicitation en s'achevant par des lèvres de cisaillement oblique à 45° très développées.

A température de l'azote liquide, bien que certaines microfissures apparaissent en surface, la fissure principale à l'origine de la rupture fragile semble cependant s'amorcer au coeur de l'éprouvette. Ceci est bien distingué par les surfaces de la fissure qui se déplacent perpendiculairement l'une à l'autre au niveau de la partie centrale de l'éprouvette. La rupture s'achève au bord de cette dernière par des lèvres de cisaillement inclinées de 45° par rapport à l'axe de chargement. Ces lèvres apparaissent peu développées mais mettant en jeu une plasticité très confinée sur quelques dizaines de microns près du bord de l'éprouvette. Ce changement local du mode de fissuration entre le coeur et le bord est probablement lié au fait qu'on est passé d'un état de déformation plane présent au centre de l'éprouvette (entraînant une triaxialité de contrainte très élevée) à un état de contrainte plane régnant aux bords de celle-ci.

Hormis ces observations macrofractographiques, l'analyse microscopique de la plasticité en surface conforte la présence d'une transition ductile fragile dans les aciers FeCrMn à forte teneur en azote. Ceci est illustré par les micrographies des figures II.4a, II.4b qui montrent un changement intense de la plasticité en surface.

L'examen microscopique du fût de l'éprouvette testé à température de la salle d'essais montre que tous les grains à la surface sont plastifiés. Ils sont caractérisés par un glissement homogène et bien réparti, et comportent de nombreuses bandes de glissement à caractère plus ou moins onduleux. Ces bandes sont souvent perturbées par un deuxième système de glissement formé par de traces plus fines et moins visibles. Une réorientation des grains les uns par rapport aux autres a été aussi constatée sans pour autant observer d'éventuelles microfissures. Ces observations indiquent que le mécanisme de fissuration a mis en jeux beaucoup de déformation plastique.

En revanche, l'observation du fût de l'éprouvette testée à la température de l'azote liquide montre que la déformation plastique est très hétérogène, facilement observable au voisinage de la fissure fatale. En effet, plus on s'éloigne de cette dernière, moins le glissement est observable, voire absent même à très fort grandissement. Des fissures transgranulaires orientées à 45° par rapport à l'axe de sollicitation sont également observées accompagnées de très peu de glissement induit probablement par un cisaillement des lèvres de la fissure. La fissure semble se propager sans être arrêtée ni par relaxation plastique, ni par les joints de grains. Ces observations soulignent que la zone plastique en fond de fissure est très petite et que le matériau est susceptible à la fragilité par abaissement de température.

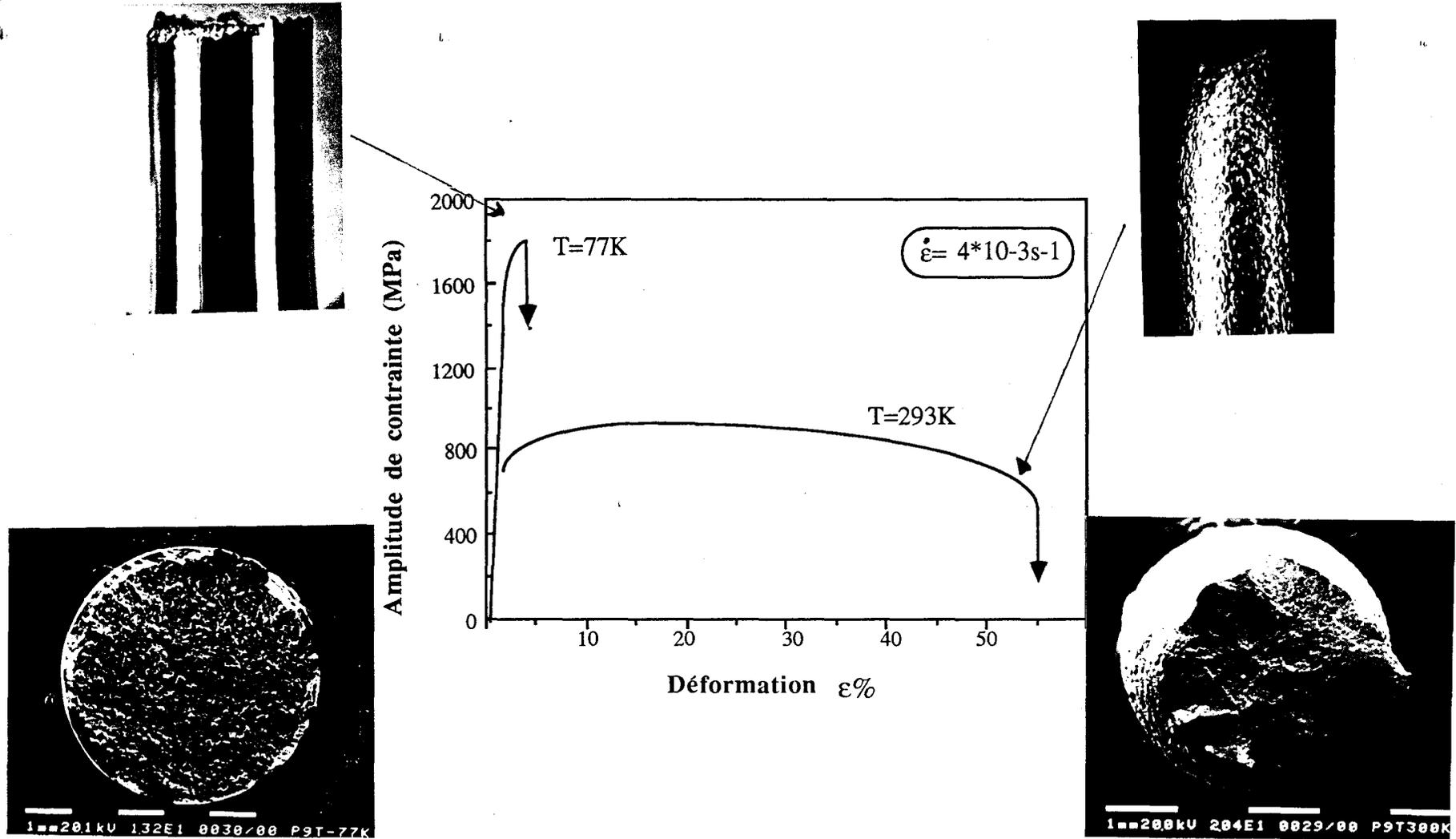


Fig.II.3. Evolution de l'amplitude de contrainte en fonction de la température d'essai.
(Evolution of stress amplitude as a function of test temperature)

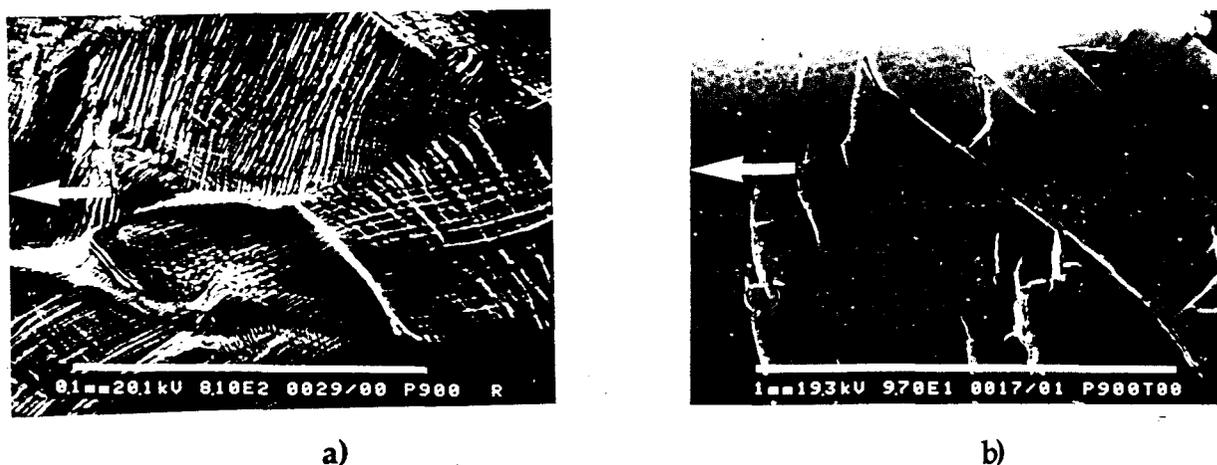


Fig.II.4. Aspect microscopique de l'endommagement en surface du P900 tractionné à l'air à la température : a) de la salle d'essais; b) de l'azote liquide. (Microscopic aspect of surface damage of P900 tested in air at: a) room temperature; b) liquid nitrogen temperature).

A une échelle plus fine, la fractographie des faciès de rupture obtenus après traction monotone à la température de la salle d'essais et à celle de l'azote liquide est similaire à celle obtenue en résilience (Fig.II.5a, 5b).

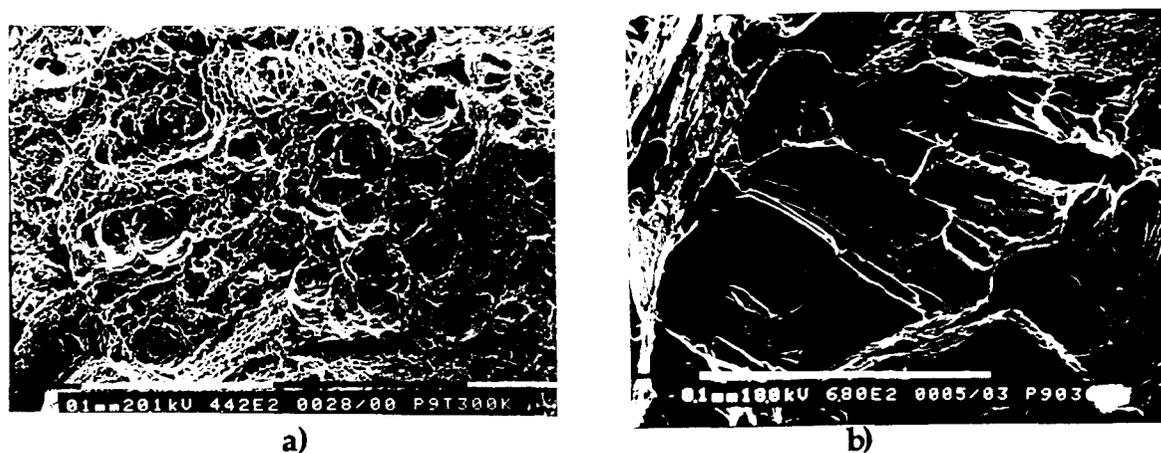


Fig.II.5. Aspect microscopique de l'endommagement en volume du P900 tractionné à la température : a) de la salle d'essais; b) de l'azote liquide. (Microscopic aspect of bulk damage of P900 tested in air at: a) room temperature; b) liquid nitrogen temperature).

Ces analyses macro-microfractographiques montrent clairement que l'acier Fe18Cr18Mn0.9N (P900) est fragile à basse température bien que les effets d'entaille et de la vitesse de chargement aient été supprimés.

II. 2. 4- Comportement du P900 en fatigue

L'objet de cette partie est de vérifier l'existence d'une température de transition ductile-fragile en présence d'une sollicitation cyclique et à faible vitesse de déformation. Des essais de fatigue oligocyclique ont été réalisés sur une machine servohydraulique MTS de capacité 100 kN. Une cellule de charge est montée en série avec l'éprouvette. La déformation de l'éprouvette est mesurée par un extensomètre à jauges de base de mesure 10 mm collé sur la longueur utile préalablement polie. Les éprouvettes utilisées sont du type cylindrique à têtes lisses de longueur utile 10 mm et diamètre 8 mm pour les essais réalisés à la température de la salle d'essais. Celles testées à la température de l'azote liquide sont cylindriques de longueur 10 mm, et diamètre de 6 mm avec des têtes filetées et à extrémités coniques.

Tous les essais sont menés à variation de déformation totale imposée ($\Delta\varepsilon_t$) sous une vitesse de déformation totale constante $\dot{\varepsilon}_t = 4.10^{-3} \text{ s}^{-1}$. Le signal de déformation est triangulaire symétrique ($R_\varepsilon = -1$).

a - Effet de la température sur le comportement mécanique en fatigue du P900

Les figures II.6a, 6b présentent l'évolution de l'amplitude de contrainte en fonction du nombre de cycles en échelle semi-logarithmique pour chaque température (température de la salle d'essais et celle de l'azote liquide) à ε_t imposé. Parallèlement, les figures II.7a, 7b illustrent en échelle linéaire l'évolution de la contrainte en fonction du pourcentage de la durée de vie $(N/N_f) \cdot 100$, pour mettre en évidence la phase de saturation occupée durant le cyclage du P900 pour chaque température d'essai.

a. 1- Comportement du P900 à la température de la salle d'essais

A la température de la salle d'essais, dès les premiers cycles, la phase d'accommodation du P900 est caractérisée par un adoucissement continu et intense quel que soit le niveau de déformation imposé, suivie d'une phase de stabilisation cyclique caractérisée à la fois par une amplitude de contrainte et une déformation plastique quasi-constante couvrant la majeure partie de la durée de vie (Fig.II.6a, 7a).

Notons que pour tous les niveaux de déformation étudiés la contrainte stabilisée est inférieure à la contrainte initiale. La chute brutale de contrainte durant les derniers 15% de la durée de vie correspond à la propagation d'une fissure macroscopique en volume du type IV provoquant ainsi la rupture finale.

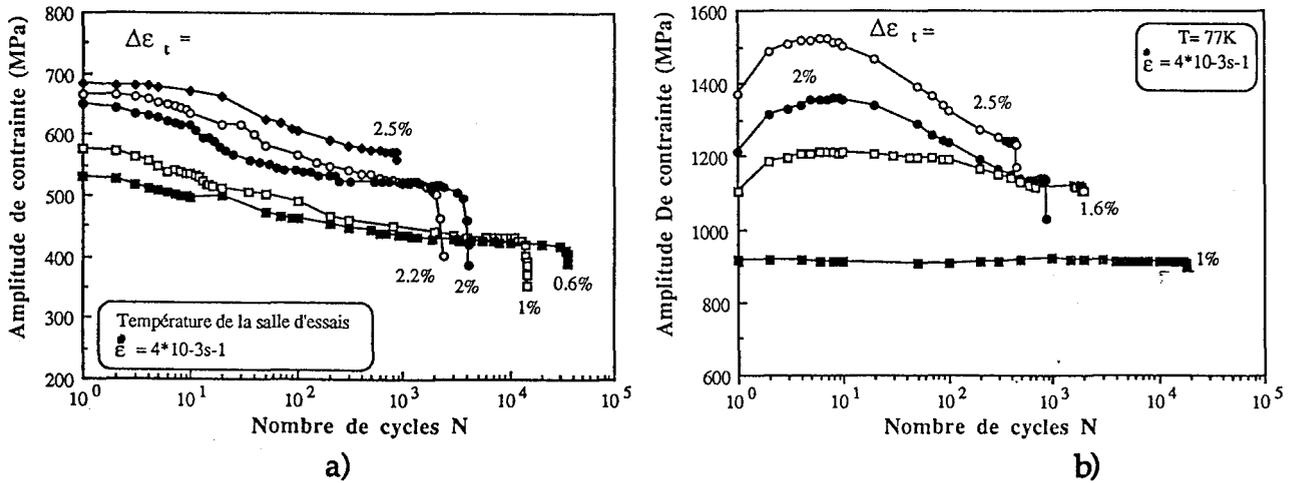


Fig.II.6. Evolution de l'amplitude de contrainte en fonction du nombre de cycles pour l'acier P900 : a) à la température ambiante; b) à la température de l'azote liquide (Variation of stress amplitude versus the number of cycles for P900 alloy: a) for room temperature; b) for liquid nitrogen temperature).

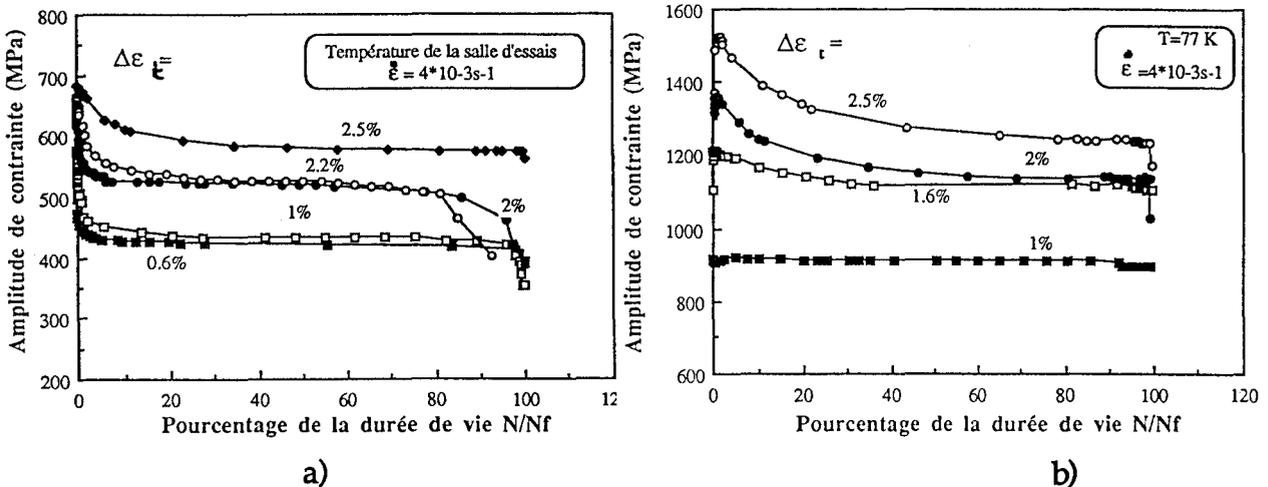


Fig.II.7. Evolution de l'amplitude de contrainte en fonction du pourcentage de la durée de vie N/N_f pour le P900 : a) Température ambiante; b) Température de l'azote liquide. (Variation of stress amplitude versus the fatigue life percentage N/N_f of P900 alloy : a) Room temperature b) Liquid nitrogen temperature).

Cet adoucissement cyclique peut être relié à l'évolution des contraintes internes et effectives en cours du cyclage. La figure II.8 illustre l'évolution de l'amplitude de contrainte interne et effective en cours du cyclage pour l'acier P900. Celles-ci sont mesurées à partir des boucles d'hystérésis enregistrées lors des essais de fatigue oligocyclique à l'aide de la méthode de Handfield-Dickson [Annexe]

Il ressort que les valeurs des contraintes effectives sont plus élevées que les contraintes internes surtout durant les 15 premiers cycles [16]. Elles diminuent progressivement en cours du cyclage puis tendent à se stabiliser sur le reste de la durée de vie.

Ce comportement montre que contrairement aux aciers 316L et 316LN [17,18], l'évolution de la contrainte maximale (adoucissement du P900) n'est plus déterminée par l'évolution de la contrainte interne mais plutôt par l'évolution des contraintes effectives. Il laisse également penser que les contraintes effectives élevées sont dues à la forte teneur en azote répartie dans la matrice favorisant des phénomènes d'ordre à courte distance, et que l'adoucissement observé peut être une conséquence de la destruction de cet ordre à courte distance.

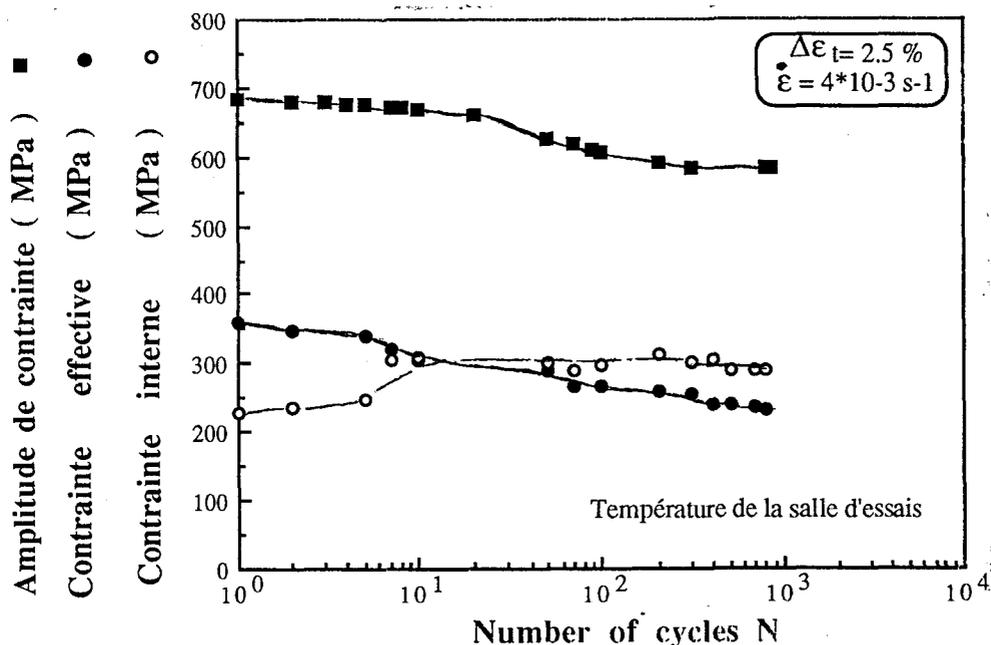


Fig.II.8. Evolution de l'amplitude de contrainte maximale, effective et interne en fonction du nombre de cycles pour l'acier P900 à la température de la salle d'essais. (Evolution of maximal, effective and internal stress amplitude versus the number of cycles at room temperature).

a. 2- Comportement du P900 à la température de l'azote liquide

A la température de l'azote liquide, l'analyse des courbes (Fig.II.6b,7b) montre que la phase d'accommodation est caractérisée initialement par un durcissement pendant 10 cycles suivi immédiatement par un fort adoucissement cyclique avant d'atteindre une phase de stabilisation. La saturation cyclique est atteinte au bout de 25% de la durée de vie. Il ressort également que le taux de durcissement augmente avec l'augmentation de l'amplitude de déformation. De plus, les durées de vie sont diminuées par l'abaissement de température indiquant une mauvaise tenue à la fatigue oligocyclique à la température de l'azote liquide par rapport à la température ambiante.

Par ailleurs, la figure II.9 montre qu'à la température de l'azote liquide, les contraintes effectives deviennent très élevées (de l'ordre de 2.5 fois par rapport à celles mesurées à la température de la salle d'essais) et restent également supérieures aux valeurs des contraintes internes surtout durant les 50 premiers cycles. En effet, l'apparition d'un durcissement peut être associée à la faible densité et mobilité des dislocations, et des interstitiels fortement réduite par l'abaissement de température et aux contraintes de frictions élevées (σ_{eff} de l'ordre de 800 MPa). L'adoucissement observé peut être également une conséquence de la destruction de l'ordre à courte distance.

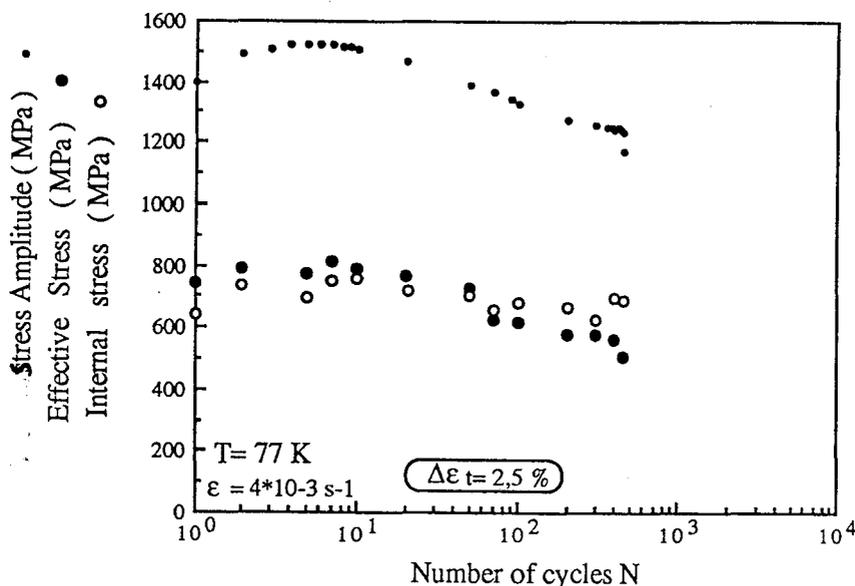


Fig.II.9. Evolution de l'amplitude de contrainte maximale, effective et interne en fonction du nombre de cycles pour l'acier P900 à la température de l'azote liquide. (Evolution of maximal, effective and internal stress amplitude versus the number of cycles at liquid nitrogen temperature).

b - Effet de la température sur l'amorçage surfacique des fissures et leur propagation en volume

Afin de vérifier si l'endommagement surfacique et volumique confirment l'existence d'une température de transition ductile-fragile, une analyse microscopique a été effectuée sur les différents fût d'éprouvettes et sur les faciès de rupture obtenus à la température de la salle d'essais et à celle de l'azote liquide. Dans ce qui suit, nous avons choisi de décrire seulement l'endommagement observé à $\Delta\varepsilon_t = 2.5\%$.

b. 1- Analyse microscopique de la plasticité en surface

A la température de la salle d'essais, la répartition des bandes de glissement est homogène, les extrusions-intrusions sont rectilignes, très marquées et souvent perturbées par un second système de glissement moins visible. L'amorçage est de nature variée (transgranulaire, intergranulaire) mais reste majoritairement transgranulaire (Fig.II.10a,b,c). En effet, les fissures s'amorcent en premier dans les bandes de glissement d'une manière transgranulaire (Type I $< 100 \mu\text{m}$), puis se propagent en surface suivant cette bande jusqu'au joint de grain. Ensuite, par croissance et coalescence, ces fissures donnent naissance à des fissures du type II ($100 \mu\text{m} < \text{II} < 400 \mu\text{m}$) avec franchissement des joints de grain. L'interaction et la propagation de l'ensemble des fissures en surface engendrent des fissures du type III ($400 \mu\text{m} < \text{III} < 1000 \mu\text{m}$) qui s'orientent perpendiculairement à la force appliquée. Cette propagation surfacique se termine par la formation de fissures du type IV ($> 1000 \mu\text{m}$) qui se propagent en volume et conduisent à la rupture finale .



Fig.II.10a. Répartition homogène de la plasticité en surface et amorçage transgranulaire des fissures de fatigue observée à $\Delta\varepsilon_t = 2.5\%$ à la température de la salle d'essais. (homogeneously distributed plasticity on the surface and transgranular crack initiation observed at $\Delta\varepsilon_t = 2.5\%$ at room temperature).



Fig.II.10b. Répartition homogène de la plasticité en surface et amorçage transgranulaire des fissures de fatigue dans les bandes de glissement (homogeneously reparted plasticity on the surface and transgranular crack initiation observed in slip bands).



Fig.II.10c. Répartition homogène de la plasticité en surface et amorçage intergranulaire des fissures de fatigue (homogeneously reparted plasticity on the surface and intergranular crack initiation observed at the grain boundary).

A la température de l'azote liquide, les bandes de glissement sont réparties d'une manière assez homogène dans le grain, mais très hétérogène d'un grain à l'autre. Dans les grains déformés, les extrusions-intrusions sont fines, rectilignes et très espacées comparées à celles observées à la température de la salle d'essai (Fig.II.11a). De plus, aucune activation d'un second système de glissement n'a été observée même dans les grains les plus déformés, et ce particulièrement à fort grandissement. Ce changement de topographie peut être raisonnablement attribué à une grande difficulté du glissement conséquence de la présence de fortes contraintes effectives et internes liées à la teneur élevée en azote.

Par ailleurs, à la température de l'azote liquide, dès les 10 premiers % de la durée de vie, un amorçage de microfissure (taille $< 80\mu\text{m}$) intergranulaire (Fig.II.11b) est observé aux points triples en surface. Il semble être favorisé par une forte incompatibilité de déformation au niveau des joints de grains. Ces microfissures intergranulaires ne peuvent cependant évoluer en surface (absence de propagation surfacique des fissures du type II et III) et constituent ainsi des entailles favorisant la rupture fragile à basse température. En effet, elles se

propagent en volume et servent souvent à amorcer une rupture fragile en volume. Cette transition d'un amorçage transgranulaire suivi d'une propagation surfacique de fissures type II et III puis d'une propagation en volume de fissures de type IV à température de la salle d'essais, à un amorçage intergranulaire en surface suivi directement par une propagation volumique à la température de l'azote liquide peut expliquer les faibles durées de vie en fatigue obtenues à basse température par rapport à celles obtenues à la température de la salle d'essais..

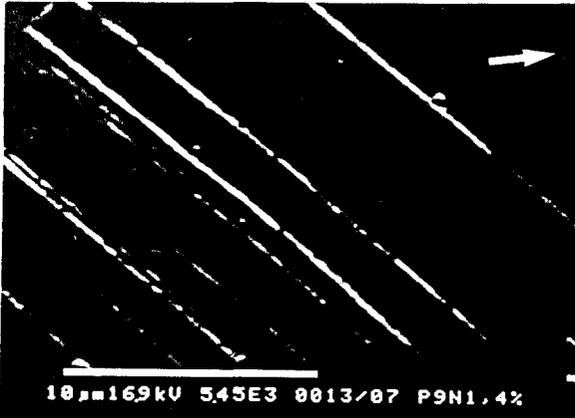


Fig.II.11a. Aspect général des extrusions-intrusions du P900 cyclé à la température de l'azote liquide.(General aspect of intrusions-extrusions of P900 cycled at liquid nitrogen temperature).

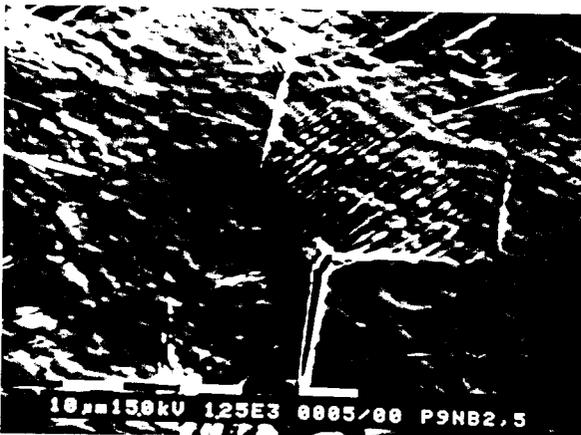


Fig.II.11b. Répartition hétérogène de la plasticité en surface et amorçage intergranulaire des fissures observée à $\Delta\varepsilon_t = 2.5\%$ à la température de l'azote liquide. (Inhomogeneously reparted plasticity on the surface and intergranular crack initiation observed at $\Delta\varepsilon_t = 2.5\%$ at liquid nitrogen temperature).

b. 2 - Propagation en volume

A température de la salle d'essais, l'observation microscopique réalisée sur les faciès de rupture obtenus à $\Delta\varepsilon_t = 2.5\%$ montre clairement deux types de zones:

- une première zone, dite de propagation couvrant (95%) de la surface totale du faciès. Elle est caractérisée par une fissuration transgranulaire par

striation caractéristique d'un endommagement progressif en fatigue. Ces stries sont bien marquées et perpendiculaires à la direction locale de propagation (Fig.II.12).

- une seconde zone de rupture finale caractérisée par un aspect ductile à cupules couvrant le reste de la surface de rupture

Par ailleurs, l'analyse fractographique des différents faciès de rupture obtenus à la température de l'azote liquide indique clairement l'existence d'une température de transition ductile-fragile. Par ailleurs, la zone de fatigue devient limitée à trois grains où on observe des stries de fatigue, alors que le reste de la surface de rupture devient fragile et couvre presque la totalité de la surface du faciès de rupture. Cette transition ductile-fragile est bien illustrée par le passage d'une fissuration à caractère ductile avec une zone plastique assez grande à la température de la salle d'essais, vers une fissuration fragile caractérisée par une zone plastique très petite à la température de l'azote liquide (Fig.II.13). Cette fissuration fragile est de nature variée (transgranulaire, intergranulaire et mixte) mais reste majoritairement transgranulaire [19,20].



Fig.II.12. Aspect microscopique général de la zone de propagation : stries de fatigue observées à la température de la salle d'essais. (General microscopic aspect of propagation zone : striation-like features observed at room temperature).

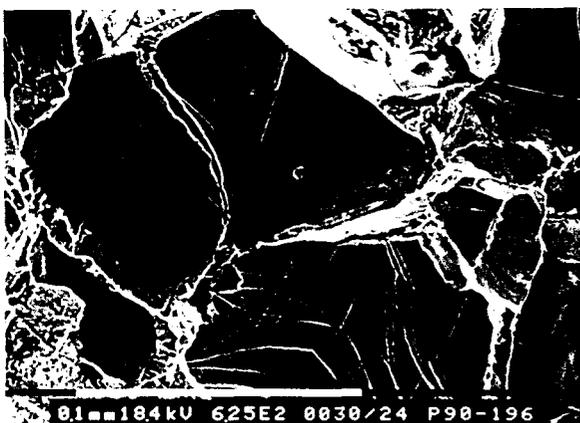


Fig.II.13. Aspect général de la rupture fragile obtenue à la température de l'azote liquide sur l'acier P900. (General aspect of brittle fracture obtained at liquid nitrogen temperature on P900 alloy).

Ainsi, il ressort que le P900 présente une rupture fragile à la température de l'azote liquide même sous sollicitation cyclique. La microfractographie de cette rupture fragile sera discutée dans le chapitre III.

c- Stabilité du P900 via l'abaissement de température en cours du cyclage

Après rupture, les échantillons ont été coupés parallèlement à la surface de rupture à 1 mm près du faciès de rupture fragile et polis au micron, puis analysés par diffraction des rayons X. Les spectres obtenus ne montrent à première vue, aucune présence ni de martensite α' et ϵ ni de secondes phases (ferrite, nitrures), ce qui suggère que la phase est restée entièrement austénitique à la température de l'azote liquide. En revanche, l'analyse par diffraction X sous incidence rasante du faciès de rupture fragile pour des angles (5° , 10°) indique la présence de la martensite (α' et ϵ) en faible quantité décelée uniquement sur quelques couches atomiques (Fig.II.14). Ceci suggère que la zone plastique est très petite et que la formation de la martensite (α' et ϵ) a pu contribuer au processus de fissuration (Rupture fragile).

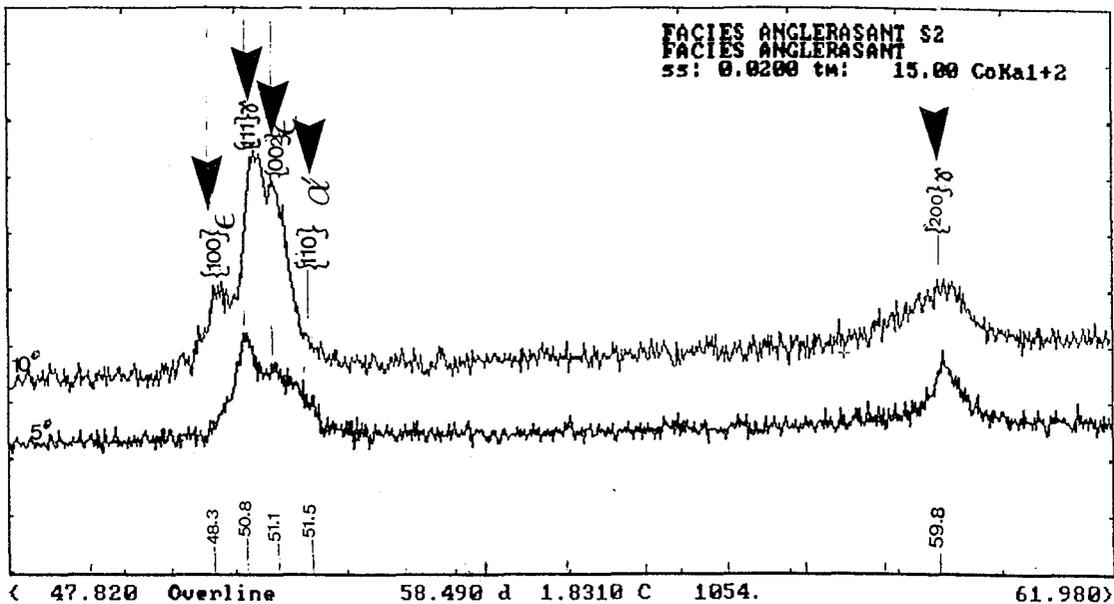


Fig.II.14. Spectre de diffraction des rayons X sous incidence rasante montrant la présence de la martensite α' .
(Spectrum of Grazing Incidence X-ray diffraction showing martensite transformation during fatigue test at 77 K).

Conclusions

La structure de l'alliage Fe18Cr18Mn0.9N est monophasée, austénitique, dépourvue de toute présence de phases magnétiques (ferrite, martensite, nitrures de fer et/ou de chrome,..) et avec une taille moyenne de grains d'environ 80 μm .

Contrairement aux aciers austénitiques conventionnels, les aciers FeCrMnN sont sensibles à la fragilisation par abaissement de température, et ce quel que soit le type de chargement effectué. Ils présentent une température de transition ductile-fragile qui augmente avec la teneur en azote.

En effet, en dessous de la température de transition ductile-fragile, l'acier P900 présente une rupture fragile du type intergranulaire et transgranulaire cristallographique sous choc, sous sollicitation monotone et en fatigue. Bien que cette fragilité soit connue, aucune étude cristallographique détaillée de la fissuration n'a été effectuée, le chapitre suivant en sera l'objet.

En fatigue, le P900 présente selon la température d'essais des évolutions et des niveaux de contrainte très différents.

A la température de la salle d'essais, le P900 présente une phase d'accommodation caractérisée par un adoucissement continu et des niveaux de contraintes élevés quel que soit le niveau de déformation imposé. La forte teneur en azote semble favoriser l'adoucissement cyclique à température de la salle d'essais. L'amorçage des fissures en surface est majoritairement transgranulaire. Les faciès de rupture sont caractérisés par une zone de propagation contenant des stries de fatigue et couvrant la plus grande partie de la surface totale de rupture .

A la température de l'azote liquide, la phase d'accommodation du P900 est caractérisée par un durcissement-adoucissement qui s'accroît avec l'augmentation de l'amplitude de déformation imposée. L'amorçage en surface est globalement intergranulaire avec une propagation volumique aboutissant à une rupture fragile. Bien que la zone de propagation volumique soit limitée, la zone de rupture finale est caractérisée par une rupture fragile couvrant une grande partie de la surface de rupture totale.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES DU CHAPITRE II

1- C. Couvreur-Bigeon

Mécanismes de plasticité cycliques d'aciers inoxydables martensitiques 12% Cr alliés à l'azote, Thèse de Doctorat, Université de Lille, 1995

2- W. Holzgruber

Process technology for high nitrogen steels, " High Nitrogen Steels HNS 88", édité par J. Foct et A. Hendry, The Institute of Metals 1989, p 39

3- F. B. Pickering

Some beneficial effects of nitrogen in steel, *ibid* 2, p 10

4- P. J. Uggowitzer and M. Harzenmoser

Strengthening of austenitic stainless steels by nitrogen, *ibid* 2, p 174

5-F. Vanderschaeve

Influence de l'azote en forte concentration sur les phénomènes de précipitations dans les aciers, Thèse de Doctorat, Université des Sciences et Technologies de Lille, 1993

6- F. Mudry, L. Roesch, G. Sanz

Chapitre 10 "La résistance à la rupture", le livre de l'acier, édité par G. Beranger, G. Henry G. Sanz, Lavoisier, 1994, p 250

7- I. Finnie and R. A. Mayville

Historical aspects in our understanding of the ductile -brittle transition in steels, Transactions of the ASME, 56/, Vol. 112, 1990

8- Y. Tomota and S. Endo

Cleavage-Like fracture at low temperature in an 18Mn-18Cr-0.5% austenitic steel, ISIJ International, Vol. 30 , N° 8, 1990, p 656

9- J.-B Vogt, A. Messai and J. Foct

Cleavage fracture of austenite induced by nitrogen supersaturation, Scripta Metallurgica et Materialia, Vol. 31, N°5, 1994, p 549

10- P. J. Uggowitzer, N. Paulus, and M. O. Speidel

Ductile to brittle transition in nitrogen alloyed austenitic stainless steels, "Applications of stainless steels '92" , édité par H. Nordberg, J. Björklund, The Institute of metals ASM International, 1992, p 62

11- J. D. Difilippi, K. G. Brickner, and E. M. Gilber

Ductile to Brittle Transition in austenitic chromium- manganese-nitrogen stainless steels, Transaction of the Metallurgical Society of Aime, Vol. 245, 1969, p 2141

12- R. L Tobler and D. Meyn

Cleavage-like fracture plane along slip planes in Fe-18Cr-3Ni-13Mn-0.37N austenitic stainless steels, Metallurgical Transaction , Vol.19A, 1988, p 1626

13- J. Masounave, J. I. Dickson et J. -P Bailon

Chapitre 9 "La fractographie"; Rupture, Contrôle, Sécurité, édité par J. Masounave, C. Bathias et J. I. Dickson, 1985, p327

14- R. P Reed, R. L Tobler, and J. W. Elmer

Temperature dependence of flow strength of selected austenitic stainless steels, *Austenitic Steels at Low Temperatures*, édité par R. P. Reed and T. Hariuchi, *Cryogenic Materials Series*, 1982, p 105

15- R. L Tobler, D. H Beekman, and R. P Reed

Factors influencing the low- temperature dependence of yielding in AISI 316 stainless steels, *ibid* 14, p135

16- J.-B Vogt, A. Messai

Relation entre contraintes effectives cycliques et microstructure dans un acier inoxydable très chargé en azote, *Colloque Plasticité 93*, Villeneuve D'Ascq, 17-19 mai, 1993

17- J.-B Vogt, T. Magnin and J. Foct

Effective stresses and microstructures in cyclically deformed 316L austenitic stainless steel: effect of temperature and nitrogen content, *Fatigue Fract. Engng Mater. Struct.* Vol. 16, N°5, 1993, p 555

18- J.-B Vogt

Influence de l'azote interstitiel et de la température sur les structures de dislocations obtenues par fatigue d'aciers inoxydables austénitiques, *Thèse de Doctorat ès Sciences Physiques*, Université des Sciences et Techniques de Lille, 1991

19- J.-B Vogt, A. Messai, J. I. Dickson and J. Foct

Determination of the brittle fracture planes in an austenitic stainless steel using stereo electron microscopy; *Conférence internationale ASM*, Colmar (France), 1996, p 353

20- A. Messai, J.-B Vogt, J. I. Dickson and J. Foct

Crystallographic analysis of the brittle fractures in high nitrogen austenitic and duplex stainless steels, " *High Nitrogen Steels HNS 95*", The Iron and Steel institute of Japan, 1995, p 74

CHAPITRE III

MICROFRACTOGRAPHIE DE LA RUPTURE FRAGILE
PRODUITE A BASSE TEMPERATURE

Introduction

Nous avons montré au cours du chapitre précédent, que l'acier Fe18%Cr18%Mn0.9%N présente un comportement singulier et inhabituel aux structures CFC, caractérisé par une rupture fragile à la température de l'azote liquide, et ce quel que soit le mode de chargement effectué. Dans cette partie, notre but est de donner une description microfractographique détaillée, à travers laquelle nous essayerons de remonter au(x) mécanisme(s) responsable(s) de cette fissuration.

III. 1- Analyse fractographique de la rupture fragile obtenue à basse température en fatigue, en traction monotone et en résilience dans le P900

Dans ce qui suit, nous allons particulièrement décrire la fractographie de la rupture fragile observée dans la zone de rupture finale qui couvre la plus grande partie de la surface totale du faciès de rupture.

III. 1. 1- Morphologie de rupture fragile

L'examen fractographique des différents faciès de rupture obtenus à basse température en fatigue, en résilience ou en traction montre que la nature de la rupture fragile observée sur les faciès de rupture est indifférente aux modes de chargement appliqués. En effet, les différents faciès fragiles associés à une fissuration transgranulaire, intergranulaire et mixte sont observés tant en sollicitation monotone que cyclique, et ce particulièrement dans la zone de rupture finale (Fig.III.1a, b, c). De plus, ces trois modes de propagation de fissures peuvent être obtenus simultanément lors d'un même type de chargement.

Néanmoins, il semble que l'amplitude de déformation plastique imposée (essais de fatigue à $T = 77 \text{ K}$) ou la température d'essai (essais de résilience) influent sur la proportion de grains rompus transgranulairement.

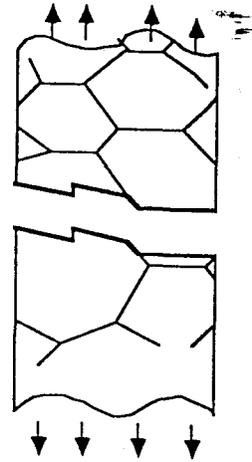


Fig.III.1a. Rupture fragile transgranulaire par clivage obtenue en traction monotone sur l'acier P900 à 77K accompagnée d'une illustration schématique de cette rupture. (Transgranular brittle cleavage fracture of P900 tested at 77 K associated with a schematic illustration of this type of fracture).

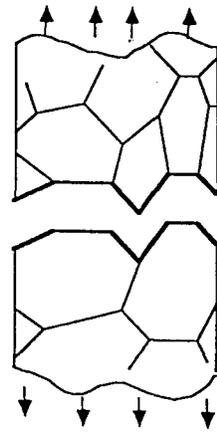


Fig.III.1b. Rupture fragile intergranulaire obtenue suite à un essai Charpy sur l'acier P900 à 77K accompagnée d'une illustration schématique de cette rupture. (Intergranular brittle fracture of P900 obtained at 77 K by Charpy impact test associated with a schematic illustration of this type of fracture).

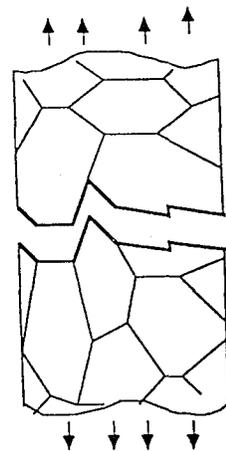


Fig.III.1b. Rupture fragile mixte obtenue en fatigue sur l'acier P900 à 77K accompagnée d'une illustration schématique de cette rupture. (Mixed "trans-intergranular" aspect of the brittle fracture of P900 tested in fatigue at 77 K associated with a schematic illustration of this type of fracture).

Fig.III.1. Mode de fissuration dans l'alliage P900 testé à 77K. (Cracking morphology of P900 alloy tested at 77K.)

En effet, même si l'étude visant à corréler la fractographie et les mécanismes de propagation au facteur d'intensité de contrainte K ou ΔK n'a pu être effectuée ici à cause du type d'éprouvette utilisé. Les multiples observations faites en fatigue sur les différents faciès de rupture obtenus pour chaque amplitude de déformation montrent qu'indépendamment de ΔK la propagation se fait tantôt transgranulairement tantôt intergranulairement. Notons cependant, que la proportion du mode de propagation semble dépendre de l'amplitude de déformation plastique imposée (tableau III.1).

Tableau III.1. Influence de l'amplitude de déformation totale imposée sur le caractère de la fissuration en fatigue à 77K. (Influence of the total strain amplitude on the character of the fracture obtained after cycling at 77K).

$\Delta \epsilon_t$ (%)	1	1.6	2	2.5
ϵ_p cumulée (%)	15,5	7,3	6,5	5,2
% relatif, intergranulaire	41	37	34	30

L'absence d'éventuelles traces de précipitation et la présence de traces de plasticité (Fig.III.2) suggèrent que la plasticité a contribué à ce mode de propagation.



Fig.III.2. Présence de nombreuses traces de ligne de glissement sur une rupture fragile intergranulaire. (Presence of numerous slip-line traces on intergranular brittle surface fracture).

En fatigue, l'analyse des différents faciès de rupture obtenus montre que les fissures s'amorcent toujours en surface aux joints de grain, et se propagent en volume suivant un mode transgranulaire avec une cristallographie de fissuration qui varie quand on s'éloigne du site d'amorçage (Fig.III.3). Juste après son amorçage au joint de grain, la fissure commence à se propager transgranulairement par clivage sur plusieurs sites suivi d'une striation pseudo-

fragile très locale sur environ 50 μm semblable à celle obtenue en fatigue propagation pour des faibles valeurs ΔK . Elle continue ensuite à se propager en alternance tantôt par clivage, tantôt par striation très locale et s'arrête enfin aux joints de grains qui semblent la relaxer en mettant fin à la zone de fatigue. Cette zone de propagation de fatigue est estimée à environ 250 μm , soit environ 3 grains.



Fig.III.3. Exemple de surface de rupture obtenue en fatigue à 77K indiquant qu'après un amorçage intergranulaire en surface, de grandes facettes cristallographiques sont observées suivies par une striation fragile. (An example of fatigue fracture surface obtained at 77 k indicating that after intergranular cracking initiation at the surface, very flat and smooth crystallographic facets can be seen followed by brittle striation-like features).

III. 1. 2- Microfractographie de la rupture fragile transgranulaire obtenue dans la zone de rupture finale

Le fait d'avoir observé une fissuration fragile intergranulaire jamais révélée dans la littérature [1,2,3,4,5] nous a poussé à analyser en détails les caractéristiques cristallographiques de cette rupture fragile. En effet, nous nous sommes particulièrement intéressés à l'analyse microfractographique du mode transgranulaire, qui est généralement prédominant à basse température, et ce pour les différents types de chargement étudiés. Une telle analyse permet de déterminer les plans de rupture et la façon dont la fissure s'est propagée.

III. 1. 2. 1- Terminologie

Tout le long de notre analyse fractographique de la rupture fragile, nous définissons le clivage comme étant une rupture fragile transgranulaire qui a lieu par décohésion du matériau le long des plans cristallographiques, sous l'effet d'une contrainte normale à ces plans.

Néanmoins, pour décrire la cristallographie et la microfractographie de la fissuration transgranulaire produite à basse température, nous avons employé une terminologie souvent utilisée par les fractographes [6].

Les principaux détails microfractographiques de la fissuration cristallographique sont schématisés à la figure III.4. Selon la terminologie suggérée, un plan moyen de fissuration (PMF) est constitué de microfacettes (MF) ayant deux ou plusieurs orientations en alternance. Il peut être également constitué par un seul plan de fissuration dénommé facette primaire (FP) et/ou de plusieurs facettes primaires (FP) parallèles entre elles et séparées par des marches dénommées rivières. Notons que ces rivières apparaissent toujours parallèles à la direction locale de propagation (DLP) et leur observation permet donc d'identifier celle-ci. Les marches observées entre les facettes primaires (FP) peuvent être composées de microfacettes secondaires (FS) qui, suivant leur disposition confèrent aux ligaments un aspect soit dentelé, soit en feuillets (MFF), soit par déchirement.

Adopter une telle terminologie pour connaître les orientations des facettes, des microfacettes, des stries et des rivières peut être très profitable pour accéder et comparer les mécanismes de fissuration qui sont mis en jeu.

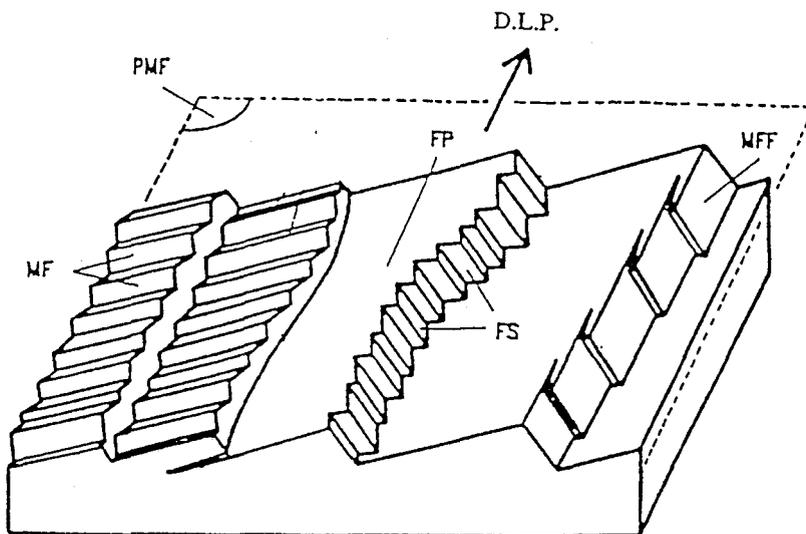


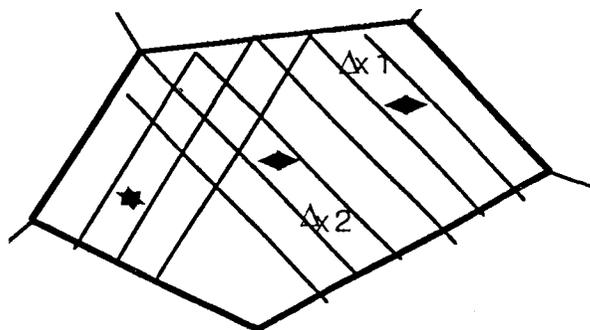
Fig.III.4. Schématisation des principaux détails microfractographiques. Direction locale de propagation (DLP), plan moyen de fissuration (PMF), facettes primaires (FP), facettes secondaires (FS), microfacettes en feuillet (MFF), microfacettes (MF). (Schematic diagram defining the fractographic features. Local crack propagation direction (DLP), local average fracture plane (PMF), primary facet (FP), serration facets (FS), sheet-like microfacets (MFF), microfacets (MF)).

Nous avons également utilisé dans notre analyse fractographique d'autres indices fractographiques très utiles pour la caractérisation de la fissuration cristallographique et qui ne sont d'ailleurs pas représentés sur la schématisation fractographique précédente. Parmi ces points, nous citerons le cas de l'identification des traces de glissement, des traces de macles et des lignes d'arrêt de la fissure. La détermination de ces paramètres est une étape importante qui permet d'une part, de déterminer le site d'amorçage et les directions locales de propagation et d'autre part, de remonter aux causes d'amorçage de la fissure. D'habitude, lors d'une analyse fractographique, les directions locales de propagation sont déterminées à la fois par le sens de convergence des lignes de rivières et/ou par la direction perpendiculaire aux lignes d'arrêt de la fissure. Cependant, il existe certains cas où ces critères ne deviennent pas faciles à utiliser et/ou à identifier, ce qui rend la détermination du site d'amorçage et de la direction de propagation compliquée.

C'est le cas du P900 où les traces de glissement, les lignes d'arrêt de la fissure et les macles s'observent sur le même plan et où la convergence des lignes de rivières est compliquée à suivre.

a- Identification des traces de glissement

La complexité des aspects fractographiques ne permet pas à première vue d'identifier facilement les traces (lignes) de glissement des traces de macles et/ou des lignes d'arrêt de la fissure. Seules les observations fractographiques conjuguées à des analyses stéréographiques permettent cette distinction. Expérimentalement, on observe des traces de plans de glissement qui apparaissent en général parallèles les unes aux autres sur le même plan sans aucune dénivellation. De plus, elles sont souvent séparées par des distances quasiment équivalentes (Fig.III.5).

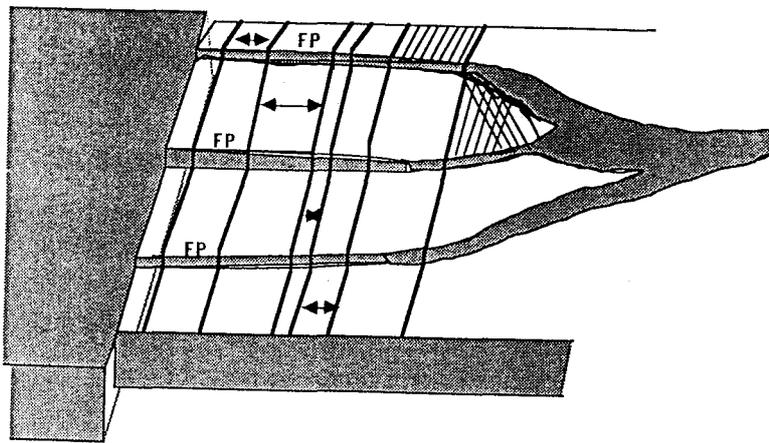


$$\Delta x_1 \approx \Delta x_{2, 3, 4, \dots, n} \quad , \Delta \theta \approx 0 \quad , \Delta h \approx 0$$

Fig.III.5. Représentation schématique des traces de glissement.
(Schematic illustration of slip-line traces).

b- Identification des lignes d'arrêt de la fissure

Le plan de rupture peut contenir des lignes d'arrêt lorsque la fissure s'arrête ou quand les conditions de propagation changent (changement de vitesse de propagation, de mode de propagation ..). Ces lignes d'arrêt apparaissent très marquées par rapport aux lignes de glissement et parallèles à ces dernières. La distance qui les sépare est variable puisqu'elle est liée à un changement de vitesse de propagation ou à un émoussement de la fissure (Fig.III.6). De plus, elles sont perpendiculaires aux lignes de rivières et restent bien rectilignes en se prolongeant d'une facette primaire à une autre.



$$\Delta x_1 \neq \Delta x_2, 3, 4, \dots, n \quad , \Delta \theta \approx 0 \quad , \Delta h \approx h_1 \text{ (hauteur de la marche)}$$

Fig.III.6. Représentation schématique des marques d'arrêt de la fissure.
(Schematic illustration of arrest growth cracking mark).

c- Identification des macles

La présence de fines languettes parallèles aux traces de glissement sur un plan de rupture indique la présence de fines macles sur les plans {111}. Ces languettes semblent résulter d'une interaction de la fissure de clivage avec le plan de macle {111} causant une légère inclinaison du plan de fissuration près de la direction $\langle 110 \rangle$ (Fig.III.7).

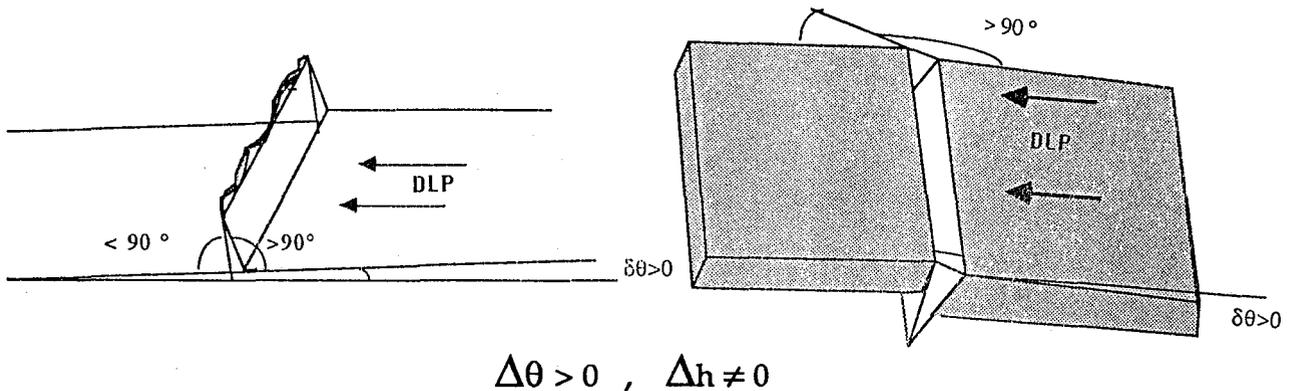


Fig.III.7. Représentation schématique montrant comment identifier les macles sur une facette cristallographique. (Schematic illustration showing how to identify twins on crystallographic brittle fracture surface).

III. 1. 2. 2- Méthodes permettant de déterminer l'orientation des détails cristallographiques

Les différentes techniques utilisées en fractographie sont décrites en détail par Dickson et al [6] et Meletis et Hochman [7]. Parmi celles-ci, nous utiliserons la méthode des figures d'attaque et l'analyse des traces de glissement. Ces deux techniques seront conjuguées à des prises stéréographiques.

a- Figures d'attaque cristallographiques

L'identification de l'orientation et la cristallographie de la fissuration sont souvent compliquées surtout lorsque les détails fractographiques sont très fins et complexes, ce qui rend l'indexation difficile et ambiguë. Souvent, dans de telles situations, on a recours à d'autres moyens d'identification tel que la technique des figures d'attaque. Ces dernières sont en fait des piqûres formées par dissolution préférentielle suivant certaines directions et plans cristallographiques. Leur morphologie permet de déterminer la cristallographie des différentes facettes cristallographiques de la surface de rupture. Cependant, elle dépend de la nature système métal-réactif et des conditions d'attaque [6,8]. En utilisant cette méthode, on doit produire un certain nombre de figures d'attaque cristallographiques sur les régions ayant une forme de triangle, de carré, d'une étoile, et/ou d'un hexagone. Elles sont respectivement composées de faces $\{111\}$, $\{100\}$, $\{112\}$, et/ou $\{110\}$. La figure III.8 illustre un exemple schématique d'une piqûre d'attaque produite sur un plan $\{100\}$ [9].

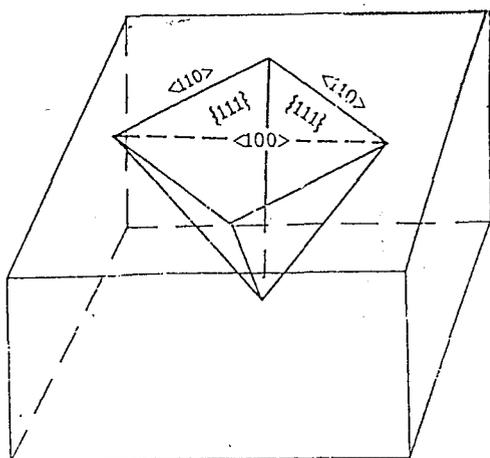


Fig.III.8. Cristallographie d'une figure d'attaque produite sur un plan $\{100\}$ à base carré limité par 4 faces $\{111\}$.

(Crystallography associated with etch pits, bounded by $\{111\}$ faces, when these pits have been produced on $\{100\}$ plane) [9].

La détermination de l'orientation des différentes facettes a été effectuée en comparant sur des paires de micrographies stéréographiques les orientations des différentes facettes avec celles des faces des figures d'attaque. Le réactif donnant des figures d'attaque les plus exploitables est une solution contenant : 300 ml d'eau, 30 ml d'acide nitrique et 300 ml d'acide acétique. La durée d'exposition est de 2 minutes

b- Observation stéréographique et analyse de traces de glissement

Excepté l'oeil, les instruments d'observation utilisés en fractographie ne fournissent qu'une image bidimensionnelle de la surface de rupture. Il est souvent nécessaire de mener les observations sur des paires stéréographiques de micrographies prises avec une différence d'inclinaison par rapport à l'axe du faisceau d'électrons. L'écart angulaire effectué par rotation entre les normales de ces deux images est généralement d'environ 6 degrés, avec l'angle moyen parallèle à l'axe de l'éprouvette. Un stéréoscope permet de voir une image virtuelle « en relief » de la zone observée et de se rendre compte ainsi de l'inclinaison des facettes et donc des angles mesurés.

L'indexation des facettes cristallographiques est réalisée sur la mesure des angles formés par les réseaux de traces de plans de glissement $\{111\}$ et/ou de macles. En effet, deux réseaux de traces $\{111\}$ formant un angle de 60° et/ou 120° ne peuvent s'observer que sur un plan $\{111\}$. De même, deux réseaux de traces $\{111\}$ formant un angle de 90° apparaissent uniquement sur un plan $\{100\}$. Seules les facettes perpendiculaires au faisceau d'électrons seront prises en considération afin que les angles mesurés entre les traces de plans de glissement soient corrects.

III. 1. 2. 3- Description fractographique des principaux faciès`

Selon l'orientation du grain, plusieurs configurations de facettes et de microfacettes distinctes peuvent être identifiées. Des différentes analyses effectuées, indépendamment du mode de chargement effectué, la rupture fragile se produit transgranulairement sur trois types de grandes facettes primaires le long de plans cristallographiques {111}, {100} et {110} ou probablement proche de {110}. Une fissuration alternée sur un plan moyen {110} formé par alternance de deux microfacettes cristallographiques {111} a été également identifiée.

a- Fissuration cristallographique sur des plans {111}

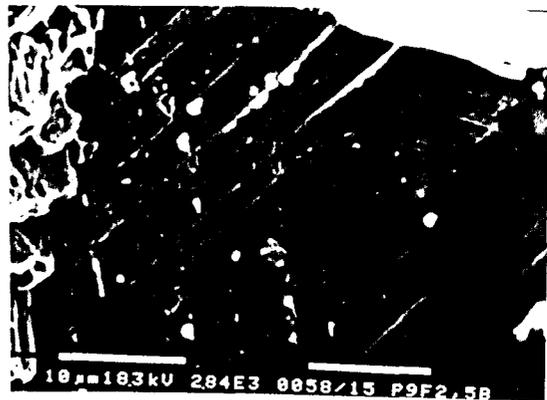
La rupture sur des plans cristallographiques {111} est la plus fréquemment observée, et ce quel que soit le mode de sollicitation effectué. Ces plans peuvent être exempts de rivières ou en contenir.

a. 1- Fissuration cristallographique sur des plans {111} sans rivière

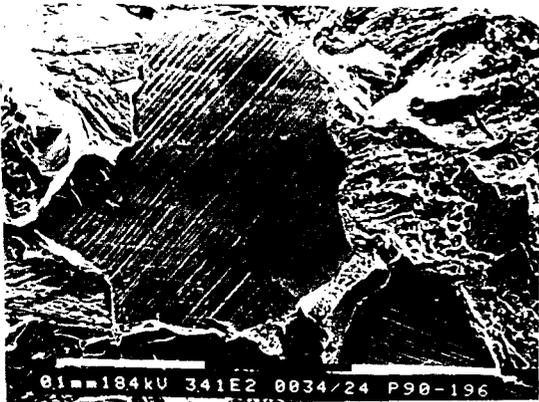
La fissuration sur des plans {111} est facilement reconnaissable par ses grandes facettes cristallographiques de taille d'environ celle du grain (Fig.III.9a, b, c, d). Ces facettes sont lisses, plates, brillantes et complètement dépourvues de rivières. De plus, elles sont relativement perpendiculaires à l'axe de sollicitation montrant que la fissuration par clivage s'est produite suivant le mode I de rupture normale. L'observation microfractographique montre la présence de trois jeux de traces de plans de glissement ou de macles réalisant une parfaite symétrie donnant un aspect de superposition de triangles (Fig.III.10a, b). Les angles mesurés entre les différentes traces sont de 60 °et/ou de 120° indiquant sans ambiguïté que le plan de rupture est un plan {111}. La présence de nombreuses fines languettes associées à une légère inclinaison suivant une direction du type $\langle 110 \rangle$ indique la présence de fines macles sur les plans {111}.



a)



b)



c)



d)

Fig.III.9. Facettes primaires cristallographiques sans rivière orientées selon des plans $\{111\}$ présentant de nombreuses traces de glissement et/ou de macles obtenues; a et b) en fatigue à 77K; c) par choc à 77K d) en traction monotone à 77K. (Wide primary crystallographic facet on $\{111\}$ plane without river line showing numerous slip-line traces and/or fine twins obtained by: a and b) fatigue at 77K c) Charpy impact test at 77 K d) by tensile at 77K).



Fig.III.10a. Paire stéréographique d'une facette primaire cristallographique suivant $\{111\}$ indiquant la présence de deux jeux de lignes de glissement coupés par un troisième jeu constitué de fines macles. (Stereographic pair of primary crystallographic facet on $\{111\}$ indicating the presence of two sets of slip-line traces intersected by one third set constituted by fine tongues (twin)).

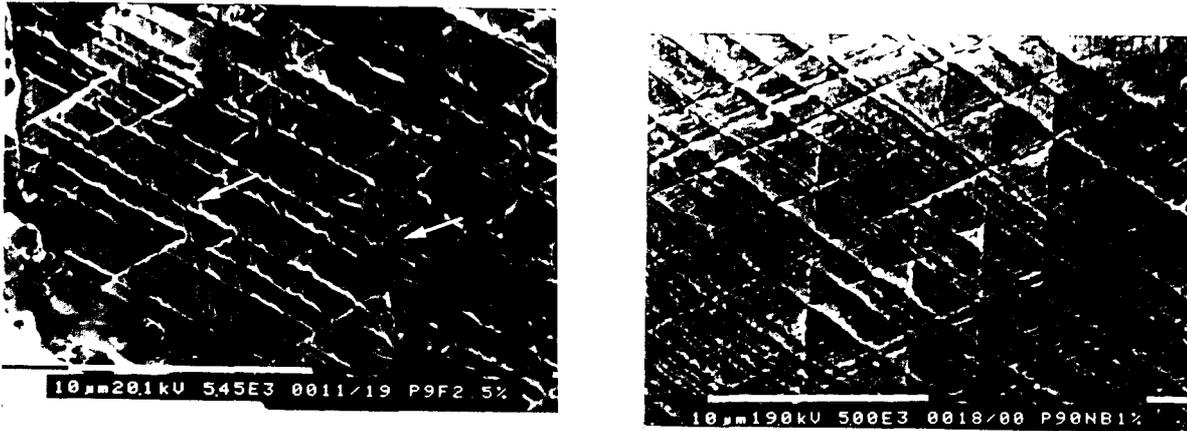


Fig.III.10b. Micrographies de facettes primaires $\{111\}$ montrant une différence d'aspect entre les traces de glissement et les fines macles.
 (SEM-micrographs of primary crystallographic facet on $\{111\}$ plane showing the difference between the aspect of slip-line traces and fine twin).

a. 2- Fissuration cristallographique sur des plans $\{111\}$ avec rivières

Excepté la présence de rivières, cette fissuration peut être décrite de la même façon que la précédente. La principale différence entre ces deux fissurations réside essentiellement dans la présence des marches causées par les rivières. De plus, cette fissuration est plus abondante et représente en moyenne 50% des cas de rupture transgranulaire contre 20% pour la précédente. Cette fissuration est cristallographique, composée de facettes primaires $\{111\}$ parallèles et séparées par des rivières. En se propageant, ces rivières font apparaître des marches sur toute la largeur du grain qui servent à rattraper et à corriger la désorientation. Signalons que la hauteur des marches caractérise la dénivellation (Fig.III. 11). Par ailleurs, l'amorçage des fissures de clivage est localisé aux joints de grain et la propagation se fait selon une direction locale de propagation proche de $\langle 110 \rangle$.

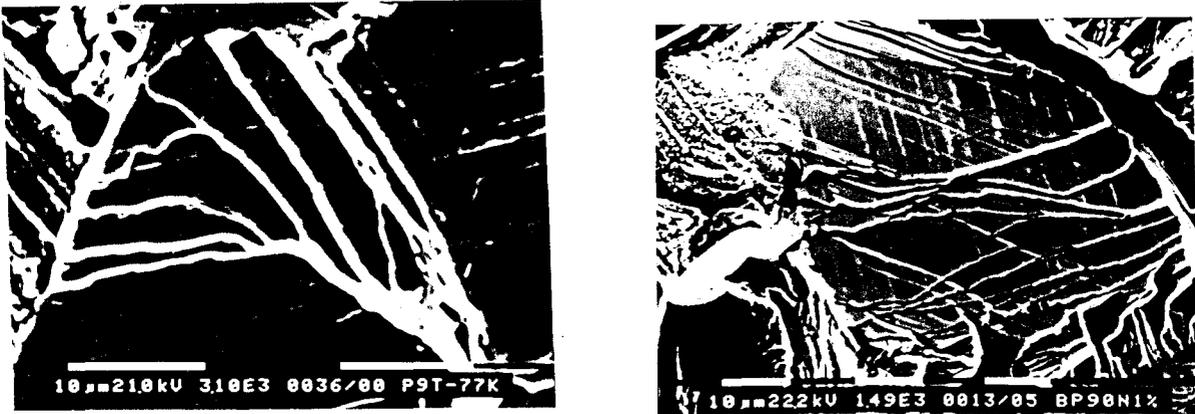


Fig.III.11. Exemple de faciès montrant des facettes primaires cristallographiques $\{111\}$ séparées par des rivières. (Example of fracture surface showing a wide primary crystallographic facets on $\{111\}$ plane separated by river pattern).

Notons que parfois certains grains apparaissent lisses et sans rivière. Cependant, l'observation fine à fort grossissement de ces derniers montre qu'ils présentent en plus des jeux de lignes (glissement et/ou macles), de très fines rivières secondaires dont la hauteur est très inférieure à celle séparant les facettes primaires et même inférieure à la hauteur des bandes de glissement. De plus, ces fines rivières ont une forte tendance à dévier de leur direction de propagation initiale pour disparaître au bord de la facette (Fig.III.12). Rappelons seulement que ce cas de figure est occasionnellement observé.

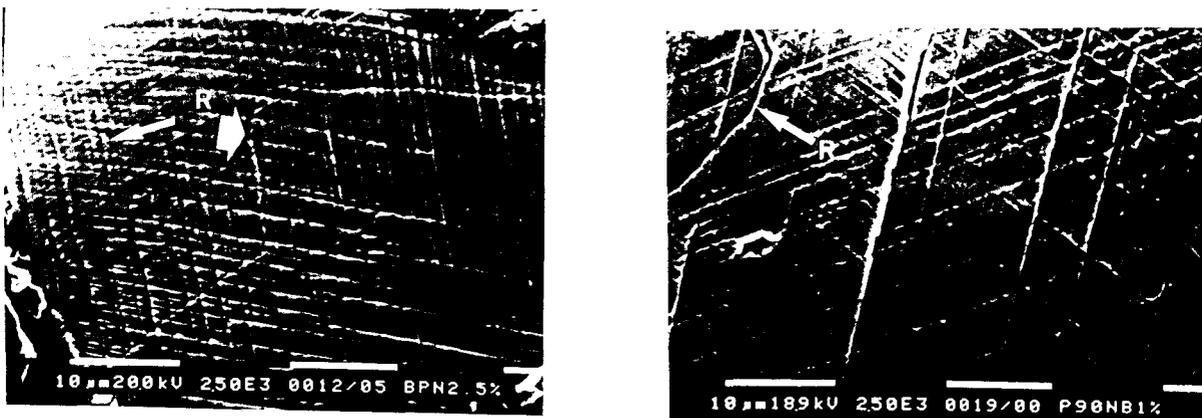


Fig.III.12. Micrographies montrant des facettes primaires cristallographiques $\{111\}$. La flèche au centre et/ou près du joint de grain indique la présence de très fines rivières discontinues. (SEM-micrographs showing primary crystallographic facets on $\{111\}$ plane. The arrow in the center and near the grain boundary indicate the presence of fine discontinuous rivers lines).

Dans certains cas, les lignes de rivières peuvent apparaître accidentées et/ou interrompues probablement suite à des interactions avec des macles ou à la formation de la martensite α' (Fig.III.13). Par ailleurs, notons que le nombre de ces rivières et la hauteur des marches qui leur correspondent caractérisent généralement la désorientation existante entre le plan moyen de fissuration et les facettes primaires cristallographiques.



Fig.III.13. Aspect des lignes de rivière interrompues et accidentées.
(Aspect of interrupted and broken river-lines).

En fatigue, certaines facettes primaires selon les plans $\{111\}$ présentent des lignes d'arrêt de la fissure montrant ainsi un caractère discontinu de la propagation. La figure III.14 illustre clairement cet aspect en montrant qu'outre les rivières, différents réseaux de marques apparaissent sur ces facettes de rupture liées aux traces de plans de glissement et/ou de fines macles, ou aux lignes d'arrêt. Les traces approximativement perpendiculaires aux rivières se prolongent d'une facette primaire à une autre sur toute la largeur de la zone et forment des marches qui peuvent probablement être associées à un émoussement intervenant lors de l'arrêt de la fissure. Ces lignes d'arrêt sont cristallographiques à cause du glissement planaire des dislocations. On peut considérer alors, que la fissure ne peut s'arrêter que si des plans de glissement peuvent permettre l'émoussement. Cette topographie caractérisant la discontinuité de la propagation est particulièrement observée en fatigue dans la zone de propagation et non dans la zone de rupture finale.

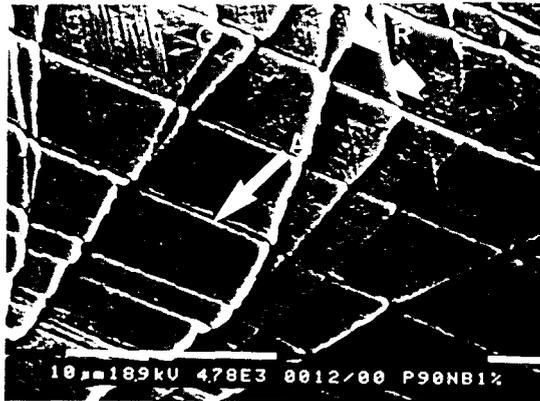


Fig.III.14. Discontinuité de la fissuration indiquée par des lignes d'arrêt de la fissure observées en fatigue sur des facettes primaires cristallographiques $\{111\}$ séparées par rivières. (Discontinuous cracking indicated by arrest growth cracking mark observed on fatigue on the $\{111\}$ primary crystallographic facet and separated by river-line).

Par ailleurs, les figures d'attaque sont des triangles équilatéraux visiblement parallèles aux facettes clivées confirment que le plan de fissuration est du type $\{111\}$ (Fig.III.15) [10]. Les bords de ces figures sont parallèles à une direction $\langle 110 \rangle$. Les lignes de rivières parallèles à un côté du triangle indiquent que la direction locale de propagation est $\langle 110 \rangle$.

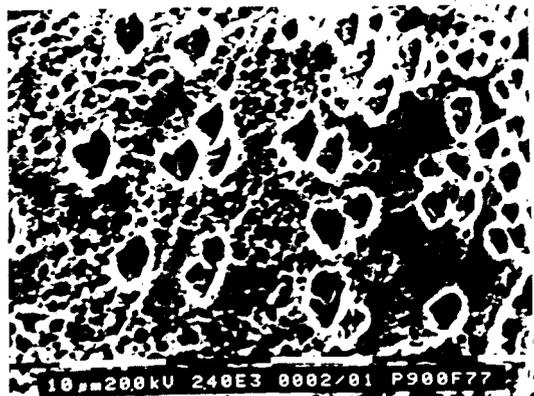
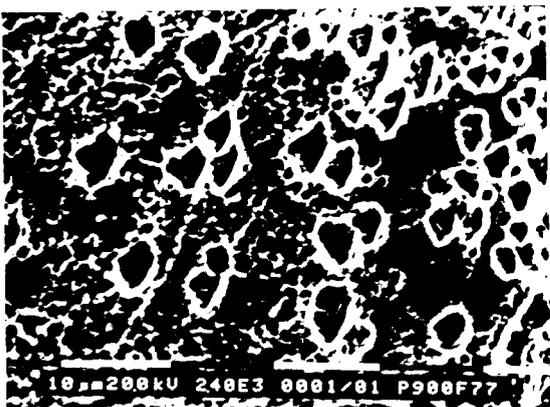


Fig.III.15. Paire stéréographique montrant à partir de figures d'attaque triangulaires que le plan de clivage est $\{111\}$. (Stereographic pair of micrographs showing from triangular each pits that cleavage plane orientation is $\{111\}$).

a. 2. 1- Problème de direction locale de propagation

Il est souvent montré [6,11,12] que la présence des lignes de rivière et la manière dont elles coalescent sont un bon signe d'indication montrant à la fois le site d'amorçage de la fissure de clivage et sa direction de propagation. Cependant, dans le cas du P900, certaines difficultés ont été rencontrées en essayant de déterminer la direction locale de propagation (DLP) des fissures de clivage à partir des lignes de rivières.

Sur certaines facettes {111}, le sens de convergence des lignes de rivière laisse à penser que la fissure de clivage s'est amorcée au centre du grain pendant la fissuration. Pourtant, l'observation des rivières indiquent que les fissures s'amorcent à un joint de grain et qu'elles se propagent vers le centre vue leur coalescence (Fig.III.16). Cependant, au fur et à mesure de l'avancée vers le centre de grain, ces lignes de rivières se chevauchent et s'interposent. Ensuite, elles se séparent et montrent une forte tendance à dévier de leur direction initiale de propagation. Cet aspect semble indiquer une mauvaise direction de propagation due à une décoalescence locale où la fissure principale (large rivière associée à la grande hauteur de marche) s'est divisée en deux petites fissures (petites rivières). Cet aspect trompeur de propagation laisse penser que la fissure s'est amorcée au centre du grain, ce qui n'est pas le cas.

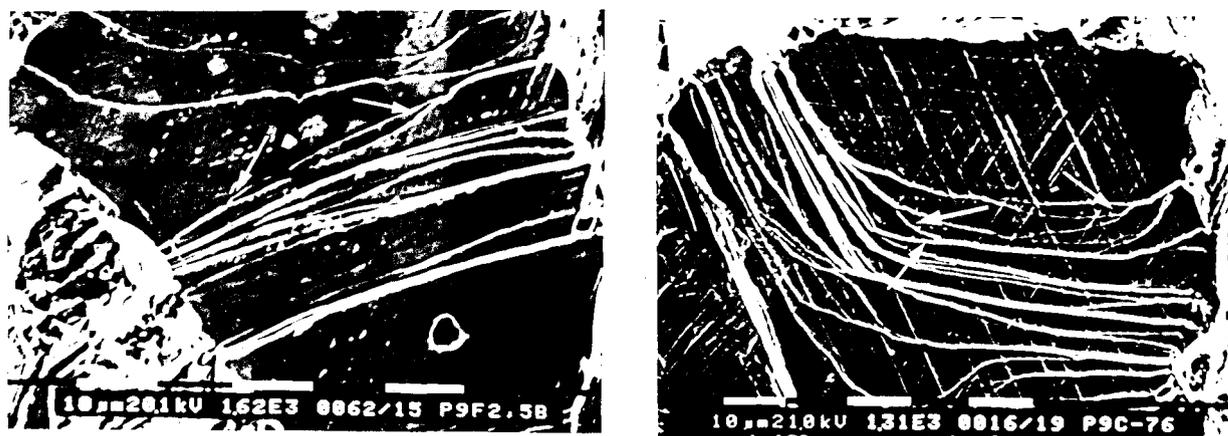


Fig.III.16. Difficulté rencontrée dans la détermination de la direction locale de propagation à partir des lignes de rivière sur des facettes primaires cristallographiques {111}. (Difficulty encountered in trying to determine the local crack propagation direction from the river lines on {111} crystallographic facets).

Ce problème est surtout associé à un ensemble de rivières très rapprochées. Afin de résoudre ces rivières, un fort grandissement est nécessaire. Cependant, la luminosité et l'éclat des lignes de rivières empêchent d'obtenir une image

correcte. Dans certains cas, le côté externe de la ligne de rivière devient incliné par rapport à la facette {111}. Ainsi les autres lignes de rivières seront cachées de notre vue surtout quand elles se superposent entre-elles, (Fig.III.17).

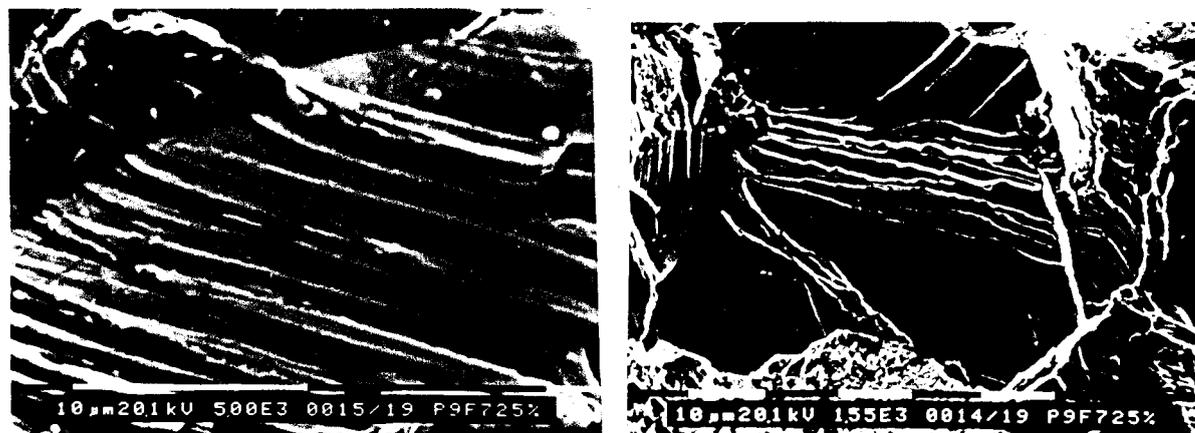


Fig.III.17. La divergence des lignes de rivières au centre des facettes après une bonne coalescence à partir du joint de grain est due à une forte luminosité de l'image obtenue au voisinage des lignes de rivières et/ou au fait que l'extérieur des lignes de rivières devient incliné à moins de 90° , ainsi elles deviennent cachées surtout lorsqu'elles coalescent très près l'une de l'autre. (The resplit of river lines in the center after coalescing together from the grain boundary is due to the brightness of the image obtained at the river line and/or that the side of river line became inclined less than 90° and then became hidden from view when river-lines became very close from one another.

En revanche, la coalescence des rivières près des joints de grain indique dans la majorité des cas la bonne direction de propagation.

La direction de propagation pourrait être également déterminée par la forme des languettes en particulier celles qui approximativement perpendiculaires aux lignes de rivières. En effet, une languette perpendiculaire au front local de fissure peut seulement se produire dans la direction de propagation de la fissure. La bonne direction locale de propagation est alors indiquée par l'angle supérieur à 90° , formé entre la surface de rupture et la languette et mesuré à partir de la ligne de languette approximativement perpendiculaire à la ligne de rivière. La direction donnée par ces languettes est généralement celle indiquée par les rivières au voisinage des joints de grain. A cet égard, la figure III.18 illustre comment peut - on déterminer la direction locale de propagation à partir des languettes. Il est cependant important de signaler que les languettes qui ne sont pas approximativement perpendiculaires aux lignes de rivières dans le plan de clivage n'apportent aucune indication sur la direction locale de propagation.

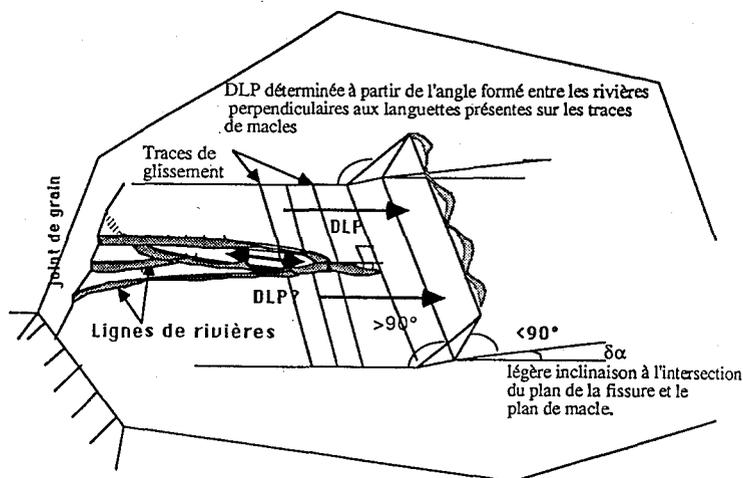


Fig.III.18. Représentation schématique montrant que la direction locale de propagation (DLP) peut être déterminée à partir des languettes (macles). (Schematic illustration showing that the the local crack propagation direction may be determined by tongues (Twins)).

b- Fissuration cristallographique sur des plans {100}

L'analyse microfractographique montre également la présence d'une fissuration cristallographique (sans rivière) sur des plans {100} comme celle observée en traction monotone dans la phase austénitique d'un acier duplex α/γ "X2CrNiMo225 à 0.62%N" par Foct et al [13] et en fatigue par Vogt et al [14]. Cette fissuration est identifiable par la présence de deux réseaux de traces de plans de glissement ou de macles sur des plans qui apparaissent un peu bombés à fort grossissement. Les angles mesurés entre ces jeux de lignes sont très proches de 90° indiquant sans ambiguïté que le plan de rupture est un plan {100}. Par ailleurs, les piqûres de dissolution, à base carrée, parallèles au plan de fissuration et formées de quatre faces {111} confirme clairement que le plan de rupture est {100}. Les bords de ces figures d'attaque correspondent à deux directions $\langle 110 \rangle$ mutuellement perpendiculaires (Fig.III.19).

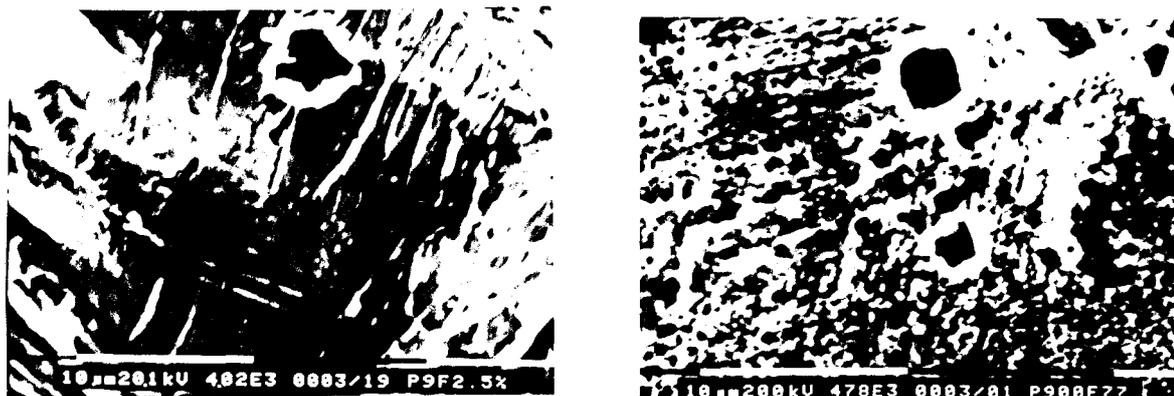


Fig.III.19. La présence des figures d'attaque à base carré parallèles au plan de clivage permet d'identifier l'orientation de cette facette cristallographique comme étant $\{100\}$. (The presence of square etch pits parallel to cleavage plane on this pair of micrographs allows an identification of the $\{100\}$ orientation of this crystallographic facet).

L'examen de certaines facettes cristallographiques $\{100\}$ indique la présence de quatre réseaux de lignes qui sont deux à deux perpendiculaires (Fig.III.20). En effet, la figure III.21 donne une illustration schématique de cet aspect de fissuration en montrant que parmi quatre jeux de lignes numérotés de **1** à **4**, deux d'entre eux **1** et **3** sont perpendiculaires et correspondent à deux directions $\langle 100 \rangle$. On note également que les deux jeux de traces restant **2** et **4** sont à leur tour perpendiculaires et correspondent à des directions du type $\langle 110 \rangle$. Cette indication est clairement mentionnée par la présence de fines languettes indiquant la présence de fines et étroites macles sur les plans $\{111\}$, résultant à l'intersection des plans de macles $\{111\}$ avec le plan de fissure. L'observation stéréographique de telles zones indique que le plan de fissure $\{100\}$ devient légèrement incliné à l'intersection du plan de macle $\{111\}$ près de la direction $\langle 110 \rangle$ (Fig.III.20). Les lignes correspondantes aux directions $\langle 100 \rangle$ présentent des marques très prononcées sur la surface de rupture. Elles peuvent d'ailleurs être facilement prises pour des traces de macles à cause de la grande ressemblance de leur aspect avec les languettes. A fort grossissement, l'analyse de ces paires stéréographiques montre que certaines traces parallèles à la direction $\langle 100 \rangle$ indiquent la présence de marches perpendiculaires à la surface locale de rupture et allant d'un premier plan $\{100\}$ à un plan parallèle. Le fait que ces marches soient perpendiculaires au plan $\{100\}$ de la surface de rupture indiquent donc une

surface de plan $\{100\}$. A travers ce passage nous réalisons bien l'intérêt de l'analyse stéréographique dans de tels cas pour éliminer la confusion.

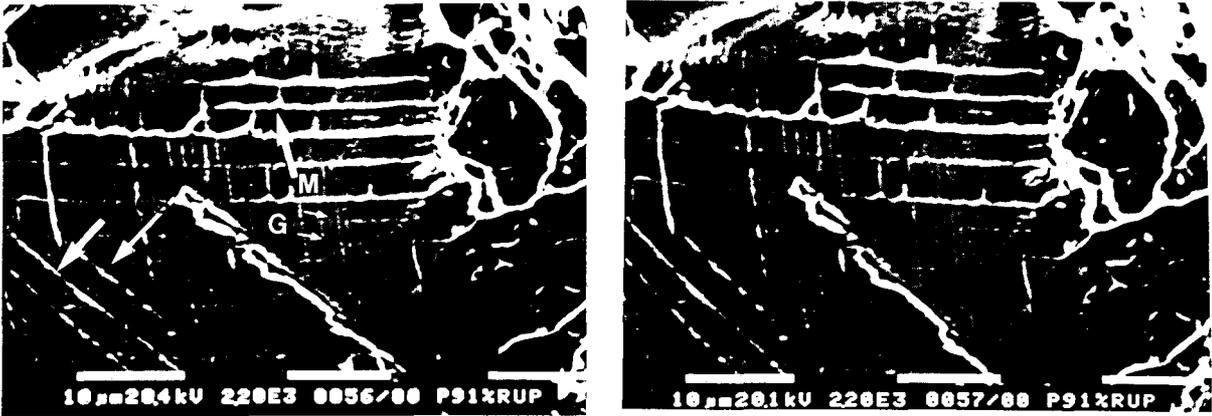


Fig.III.20. Paire stéréographique montrant la présence de quatre jeux de lignes perpendiculaires deux à deux indiquant que le plan de clivage est un plan $\{100\}$: les lignes présentant des languettes sont identifiées comme de fines macles suivant une direction $\langle 110 \rangle$, les lignes très prononcées sont identifiées comme des marches suivant une direction $\langle 100 \rangle$ et non des languettes. (Stereographic pair showing the presence of four sets of slip-line traces intersected perpendicularly to each other indicating that the cleavage plane is $\{100\}$: the sets which present some tongues corresponded to intersected $\{111\}$ fine twins on a $\langle 110 \rangle$ perpendicular direction, the other sets indicated by arrows corresponding to a $\langle 100 \rangle$ pronounced steps on fracture surface which could easily be mistaken for tongues)

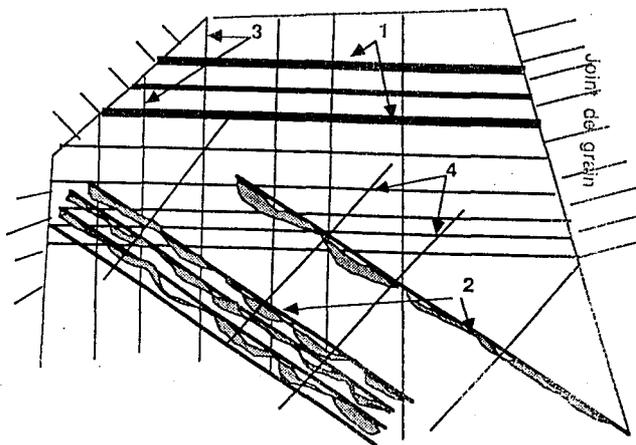


Fig.III.21. Représentation schématique de la fissuration cristallographique $\{100\}$ observée dans le P900 à 77K. (Schematic representation of $\{100\}$ crystallographic cracking observed in P900 alloy at 77K).

c- Fissuration cristallographique sur les plans {110}

Lors de cette analyse fractographique, une fissuration cristallographique par clivage selon des plans {110} a été également identifiée. Notons qu'elle a été rarement observée, mais semble néanmoins exister. En effet, les figures d'attaques présentes sur certaines facettes primaires sont à base hexagonale parallèle au plan de fissuration, ce qui indique que le plan de clivage est du type {110} (Fig.III.22). Une fréquence d'observation plus élevée serait nécessaire pour tenir compte de cette orientation au même titre que les orientations cristallographiques {111} et {100}. Notons au passage que cette fissuration dans le P900 n'a jamais été évoquée dans la littérature.

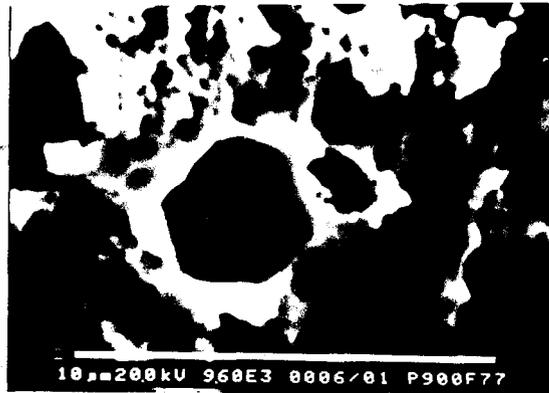


Fig.III.22. figure d'attaque à base hexagonale indiquant probablement la présence d'une fissuration cristallographique d'orientation {110}. (Hexagonal etch pit probably indicating the presence of crystallographic cracking with {110} orientation).

d- Fissuration alternée sur un plan moyen {110}

Hormis les trois fissurations cristallographiques {111} et {100} et {110} décrites précédemment, une autre fissuration alternée présentant un relief plus accidenté a été clairement observé. La surface du grain rompu est composée de microfacettes (MF) cristallographiques {111} qui se rencontrent suivant une direction commune $\langle 110 \rangle$, conduisant à un plan moyen de rupture {110} d'aspect strié (Fig.III.23) [10,15]. La convergence des lignes de rivières perpendiculaires aux stries indique que la direction locale de propagation est $\langle 100 \rangle$. La figure III.24 schématise cette rupture.

Notons que certaines stries parallèles à la direction $\langle 110 \rangle$ sont localement couvertes par de cupules allongées suivant cette direction $\langle 110 \rangle$ contenue dans le plan moyen local de fissuration (PMLF) $\{110\}$. Il est probable que ces cupules sont issues de l'intersection de deux plans $\{111\}$ sur la direction $\langle 110 \rangle$ sur laquelle elles sont allongées. Elles indiquent une certaine difficulté de propagation des fissures de clivage le long des plans $\{111\}$ pour ces orientations. Signalons par ailleurs, que ce type de fissuration n'a jamais été reporté dans la littérature bien qu'il soit facilement observable et abondant ($\approx 20\%$). De plus, il est également surprenant de rencontrer cette fissuration alternée bien que le chargement soit monotone.

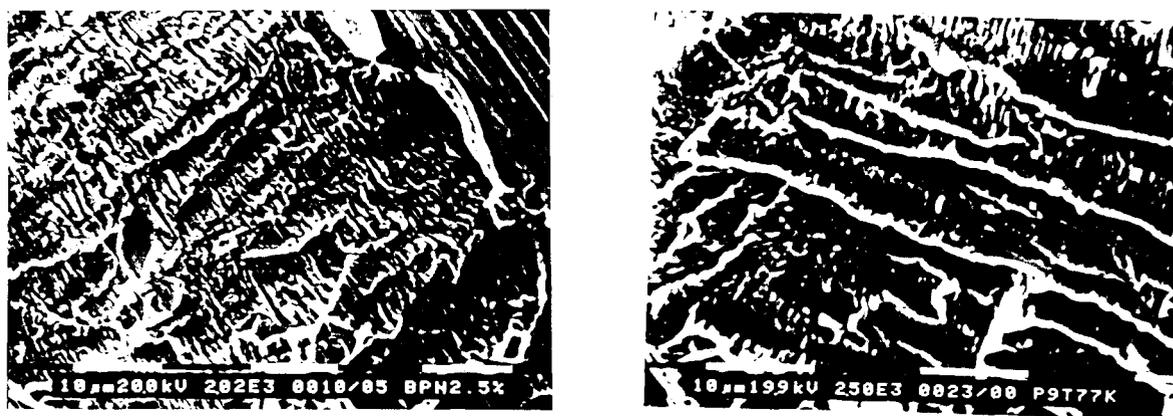


Fig.III.23. Exemple de fissuration $\langle 100 \rangle \{110\}$ formée par une alternance de deux microfacettes $\{111\}$ observée dans l'alliage P900 à 77K. (An example of cracking along $\langle 100 \rangle \{110\}$ orientation formed by alternance of two $\{111\}$ microfacets observed in P900 alloy at 77K.)

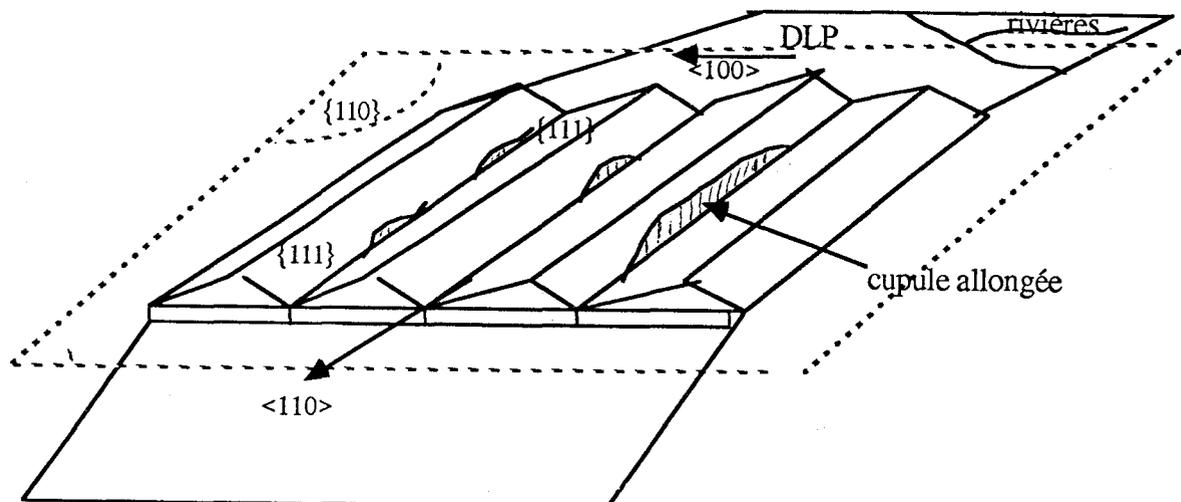


Fig.III. 24. Représentation schématique de la fissuration $\langle 100 \rangle \{110\}$ observée dans le P900 à 77K. (Schematic illustration of $\langle 100 \rangle \{110\}$ alternating cracking observed in P900 at 77K.)

Parfois, cette fissuration {110} formée par alternance de deux jeux de plans {111} montre un aspect non strié lorsque l'une des facettes {111} (la plus grande) est presque parallèle au plan moyen de rupture près de {110} et l'autre facette (plus petite) presque perpendiculaire à ce dernier ({110}) (Fig.III.25). Ce type de fissuration est généralement formé par de petites fissures de clivage sur deux jeux de plans {111} avec une importante fissuration par clivage sur un jeu de ces plans conduisant à un changement de l'orientation moyenne du plan macroscopique de fissuration.

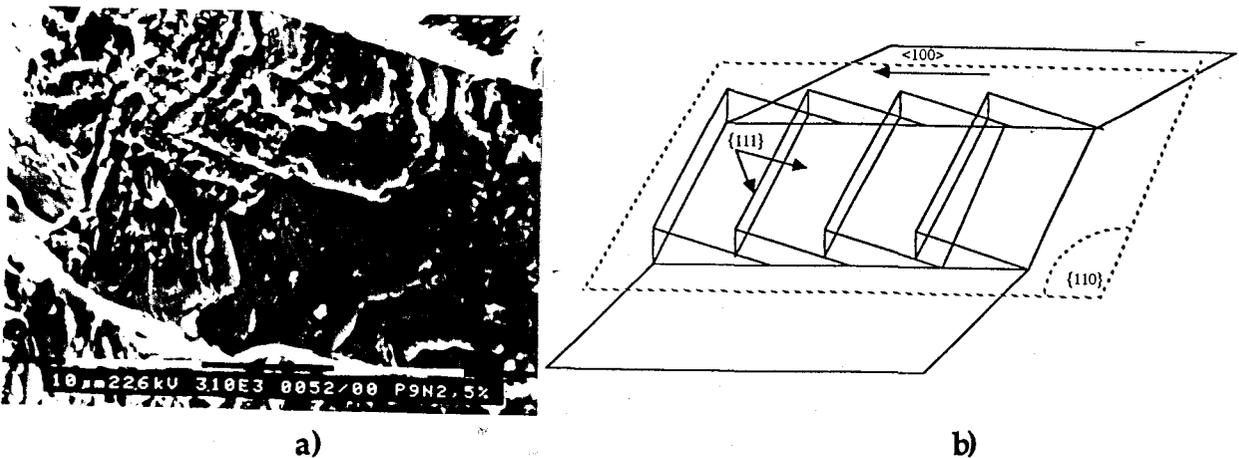


Fig.III.25. a) Fissuration alternée {110} formée par des microfacettes {111} en forme de feuillet (MFF), conduisant à un changement d'orientation moyenne du plan macroscopique; b) illustration schématique de cet aspect de fissuration. [a] SEM-micrograph showing others features of {110} cracking formed by a parallel cleaved {111} sheet-like facets conducting in a change in the average orientation of macroscopic fracture plane; b) Schematic illustration of this aspect of cracking).

III. 2 -Analyse fractographique de la rupture fragile obtenue à basse température dans la zone de fatigue

L'ensemble des résultats cités dans les différents paragraphes précédents décrivait uniquement la cristallographie de la fissuration dans la zone de rupture finale. Pour éviter toute négligence, d'autres analyses microfractographiques ont été effectuées particulièrement dans la zone de propagation en fatigue. Celle-ci a été peu étudiée car la surface correspondante est limitée à environ 3 grains.

L'observation des différentes surfaces de rupture indique qu'à tous les niveaux de déformation étudiés, les fissures de fatigue à basse température s'amorcent à un joint de grain à la surface de l'éprouvette puis se propagent transgranulairement. Dès l'entrée du grain, des facettes cristallographiques {111}

apparaissent suivie par une fissuration alternée $\{110\}$, semblables à celles observées dans la zone rapide de rupture finale (Fig.III.26). On note également la présence des languettes sur ces facettes indiquant de fines macles. Les observations stéréographiques indiquent que la surface moyenne de rupture est proche d'un plan d'orientation $\{100\}$ et que les stries sont parallèles à la direction $\langle 110 \rangle$.



Fig.III.26. Micrographies montrant un exemple de la zone d'amorçage et de propagation en fatigue : a) aspect général; b) fissuration cristallographique $\{111\}$ suivie par une fissuration discontinue $\{110\}$ formée par alternance de microfacettes $\{111\}$. (SEM-micrographs showing an example of initiation and propagation zone in fatigue : a) general aspect b) crystallographic $\{111\}$ cracking followed by discontinuous $\{110\}$ cracking formed by the alternance of $\{111\}$ microfacets).

Au fur et à mesure que la fissure se propage, la tendance à obtenir des stries régulières et bien définies augmente. A cet égard la figure III.27 illustre un exemple de telle facette sur laquelle on observe clairement des stries régulières, caractéristiques générales des zones de propagation en fatigue. Ces stries correspondent à une alternance de microfacettes $\{111\}$ le long de deux directions perpendiculaires dans le grain conduisant à un nouveau plan moyen $\{100\}$. Parfois, la fissuration $\{100\}$ bien définie au centre de la facette, tourne vers d'autres orientations dans les régions voisines des joints de grains, où une décohésion marquée se produit le long d'un jeu de microfacettes $\{111\}$ que le long de deux alternances de jeux (Fig.III.28).

A travers les différentes observations stéréographiques microscopiques, il se révèle que, dès l'amorçage en surface, la propagation des fissures en volume a tendance à changer d'aspect cristallographique : tantôt elle se fait par clivage cristallographique suivant de grandes facettes $\{111\}$ lisses marquées par de fines languettes, tantôt apparaît caractérisée par une striation proche des plans $\{110\}$, engendrée par l'alternance d'une paire de microfacettes $\{111\}$ et/ou une striation

selon des plans $\{100\}$ correspondant à une alternance de microfacettes $\{111\}$ le long de deux directions perpendiculaires dans le grain.

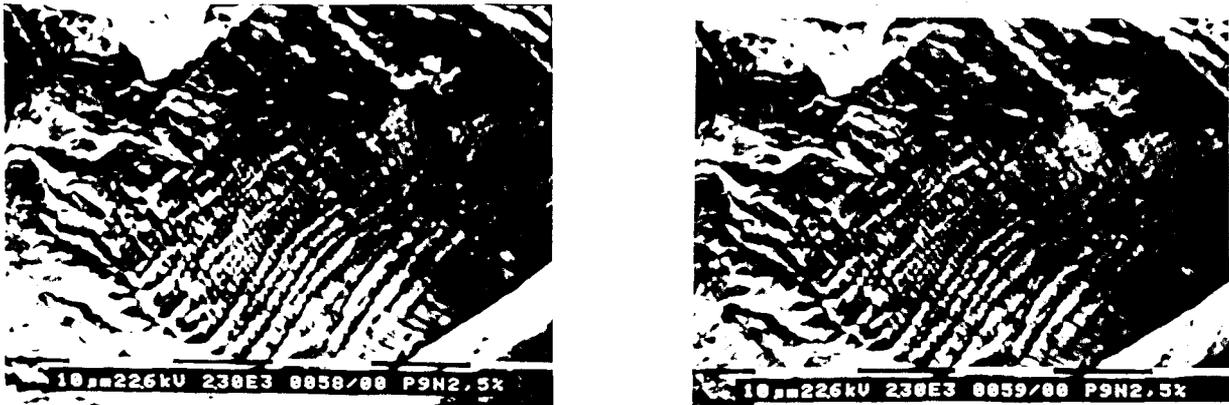


Fig.III.27. Paire stéréographique indiquant une fissuration en alternance sur deux plans $\{111\}$ conduisant à une surface de rupture présentant des stries parallèles à une direction $\langle 110 \rangle$ contenue dans le plan cristallographique $\{100\}$. (Stereographic pair indicating the alternating $\{111\}$ cracking conducting to rougher fracture surface with striation-like features present parallel to one $\langle 110 \rangle$ contained on the original crystallographic $\{100\}$ plane)



Fig.III.28. Micrographies montrant une fissuration en alternance dans la zone de fatigue conduisant à une décohesion le long d'un jeu de microfacettes $\{111\}$. (SEM- micrographs showing Alternating cracking in fatigue zone conducting to decohesion along one set of $\{111\}$ microfacets).

a- Similitude avec la fractographie obtenue pour des faibles valeurs "K"

L'examen micro-fractographique de la zone de fatigue révèle aussi un autre aspect de faciès rare. En effet, la figure III.29 montre un exemple de cet aspect de propagation, représenté par un jeu de deux microfacettes du type $\{111\}$ ce qui permettrait d'accommoder la propagation de la fissure suivant un plan moyen un peu désorienté mais proche du plan $\{110\}$. Notons que ce type de faciès présente une grande similitude avec ceux obtenues près du seuil en fatigue propagation. En effet, J.-B Vogt a observé le même type de faciès sur le 316LN à 77 K en fatigue propagation, et ce pour des faibles valeurs de K [16].



Fig.III. 29. Aspect d'une fissuration alternée constituée par deux jeux de microfacettes {111}. (Aspect of alternating cracking constitute by two sets of {111} microfacets).

b- Faciès en éventail

Ce type de faciès a été observé près du site d'amorçage. Il montre deux séries perpendiculaires de rivières de direction $\langle 110 \rangle$ qui se situent de part et d'autre d'un axe central $\langle 100 \rangle$ conduisant à un plan moyen de propagation probablement proche de {100}. Notons que Ce type de faciès n'est pas spécifique de la fatigue oligocyclique, cependant il est souvent observé en fatigue propagation à 77K et en corrosion sous contrainte pour des faibles valeurs de K (Fig.III.30).



Fig.III.30. Faciès en éventail montrant deux séries de ligaments suivant les directions $\langle 100 \rangle$ et $\langle 110 \rangle$ observé près d'un site d'amorçage. (Herring-bone pattern of river lines observed along $\langle 100 \rangle$ and $\langle 110 \rangle$ direction observed near crack initiation site)

III. 3. Autres caractéristiques fractographiques observées hors la zone de rupture finale en traction monotone

l'observation micro-fractographique du faciès de rupture obtenu en traction monotone à 77K montre qu'au voisinage de l'interface entre les lèvres de cisaillement et la région centrale, des facettes cristallographiques couvertes de cupules sont clairement observées (Fig.III. 31a, b). Ce type de faciès est formé par une fissuration cristallographique sur deux jeux de microfacettes {111} conduisant à un plan moyen {110}. Les cupules observées sur ces facettes ont une

forme circulaire indiquant que la fissuration s'est effectuée par un mode de rupture normale plutôt que par un mode de cisaillement.

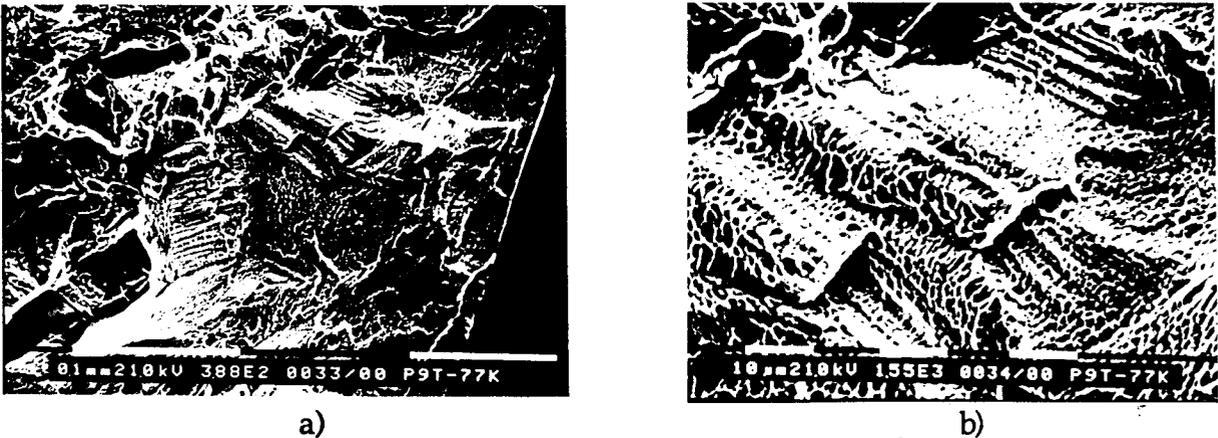


Fig.III.31. Facettes cristallographiques couvertes de cupules observées à l'interface entre lèvres de cisaillement et la région centrale en déformation plane : a) faible grandissement; b) grandissement supérieur. (Crystallographic facets covered with dimples observed near the interface between shear lip and plane strain fracture region: a) low magnification; b) high magnification).

III. 4- Discussion

Nous allons tenter d'expliquer la rupture fragile observée à basse température en nous basant essentiellement sur l'ensemble des résultats fractographiques, et en particulier ceux qui décrivent la fissuration cristallographique $\{111\}$ puisque elle est majoritaire, et ce quel que soit le type d'essai effectué. La rupture fragile obtenue ne peut être attribuée à d'une précipitation puisque notre acier est entièrement austénitique avant essai. De plus, la précipitation induite sous contrainte ne peut s'effectuer qu'à haute température. Bien que de la martensite ait été décelée sur le faciès de rupture, elle ne peut être la cause de la rupture fragile. Ceci est dû d'une part, à la faible quantité mise en évidence uniquement sur le faciès de rupture et d'autre part, au fait que des aciers FeCrMnN stables présentent également une rupture fragile [1]. Ainsi, si ce mécanisme était à l'origine de la rupture fragile, le faciès de rupture devrait être fortement magnétique or ce n'est pas le cas.

En revanche, l'observation d'une rupture fragile sur des plans denses accompagnée de nombreuses traces de glissement montre le rôle important de la déformation plastique. Ceci indique qu'une déformation plastique est nécessaire pour expliquer l'amorçage des fissures de clivage (Fig.III.32)

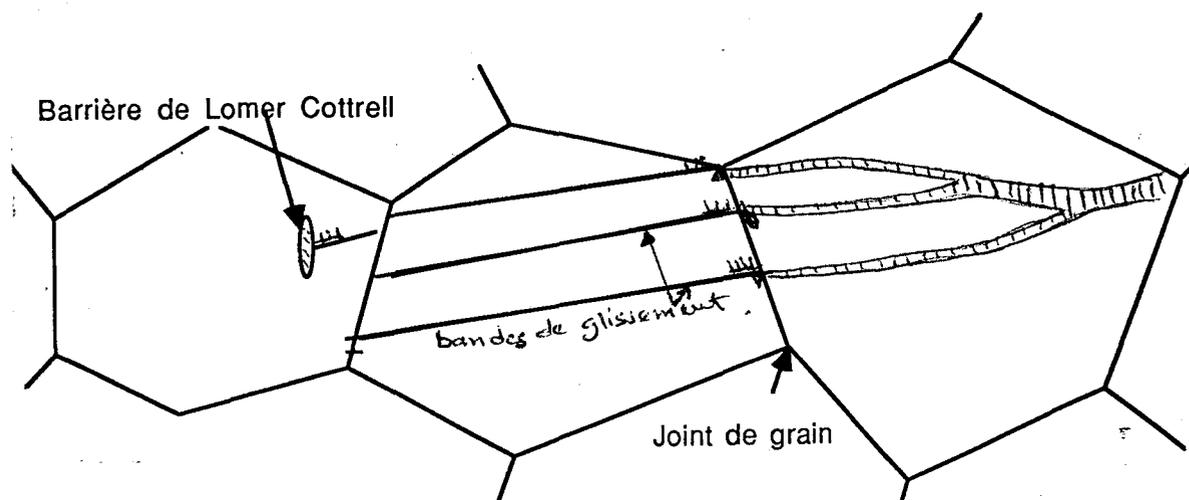


Fig.III.32. Représentation schématique expliquant l'amorçage d'une microfissure au voisinage de l'empilement de dislocations; a) contre un obstacle fort au centre du grain; b) contre un joint de grain.
Schematic illustration explaining crack initiation near the stacking of dislocations;
a) against strong obstacle in the center of grain, b) against a grain boundary

- Dès le début, la contrainte appliquée agit pour déplacer les dislocations afin d'accommoder la déformation. Ainsi un cisaillement se produit sur les plans denses {111} avec les facteurs de Schmid le plus élevé.

- En s'appuyant sur l'idée que le glissement dévié est rendu difficile par la concentration très élevée en azote et par la basse température, un glissement planaire des dislocations est activé. Ceci conduit à une localisation de la déformation plastique dans des bandes de glissement entraînant la formation d'empilements de dislocations contre des obstacles.

Deux types d'obstacles peuvent apparaître dans le matériau :

- joints de grain
- barrière de Lomer-Cottrell

Compte tenu des caractéristiques du glissement des dislocations, des empilements de dislocations sont en train de se former devant cet obstacle.

- Au cours de la sollicitation mécanique, la contrainte locale en tête d'empilement ne peut que croître car aucune possibilité de relaxation par glissement dévié n'est possible à basse température.

- A un instant donné, la contrainte locale près de l'obstacle dépasse alors la contrainte de clivage et conduit à l'amorçage d'une fissure.

- Si la contrainte locale critique dépassant la contrainte de clivage est atteinte en premier en tête d'empilement au niveau d'une barrière de Lomer-Cottrell dans le grain, une rupture par clivage pur sur des plans {111} sans rivière se produit dans ce grain (Fig.III.32a).

- Si la contrainte locale critique dépassant la contrainte de clivage est atteinte en premier en tête d'empilement au niveau du joint de grain, une ou plusieurs fissures peut s'amorcer et se propager transgranulairement dans le grain adjacent. Par ailleurs, si uniquement une seule fissure est amorcée, ceci pourrait expliquer le clivage {111} sans rivière dans le grain adjacent.

- Si c'est plusieurs fissures qui sont amorcées alors un clivage sur des plans {111} avec rivières est observée dans le grain adjacent.

Conclusions

L'analyse microfractographique de la rupture fragile obtenue dans le P900 à 77 K, nous a permis de retenir les points suivants :

- En dessous de la température de transition ductile fragile, le P900 présente trois mode de fissuration (transgranulaire, intergranulaire et mixte)

- En fatigue, la transition du mode de fissuration semble être influencée par l'amplitude de déformation plastique. De plus, contrairement à la température ambiante, les fissures s'amorcent en surface aux joints de grains (amorçage intergranulaire) puis se propagent en volume selon un mode tantôt transgranulaire par clivage ou par striation fragile tantôt intergranulaire fragile.

- Trois types de fissuration cristallographiques ont été observées :

- une fissuration cristallographique {111}, qui apparait prédominante sur des facettes primaires cristallographiques {111} avec et sans rivière. La direction préférentielle locale de propagation indiquée par les rivières est proche de la direction $\langle 110 \rangle$.

- une fissuration cristallographique sans rivière marquée par de larges facettes cristallographiques {100}.

- une fissuration cristallographique très rare suivant des facettes {110} qui mérite cependant d'être confortée par d'autres analyses microfractographiques.

- une fissuration discontinue sur un plan moyen proche de {110} formée par une alternance de deux microfacettes cristallographiques {111} a été mise évidence. La fissure se propage selon une direction locale de propagation $\langle 100 \rangle$.

REFERENCE BIBLIOGRAPHIQUE DU CHAPITRE III

1- P. J. Uggowitzer, N. Paulus, and M. O. Speidel

Ductile to brittle transition in nitrogen alloyed austenitic stainless steels, "Applications of stainless steels '92", édité par H. Nordberg, J. Björklund, The Institute of metals ASM International, 1992, p 62

2- J. D. Difilippi, K. G. Brickner, and E. M. Gilber

Ductile to Brittle Transition in austenitic chromium - manganese - nitrogen stainless steels, Transaction of the Metallurgical Society of Aime, Vol. 245, 1969, p 2141

3- R. L Tobler and D. Meyn

Cleavage-like fracture plane along slip planes in Fe-18Cr-3Ni-13Mn-0.37N austenitic stainless steels, Metallurgical Transaction , Vol.19A, 1988, p 1626

4- Y. Tomota and S. Endo

Cleavage-Like fracture at low temperature in an 18Mn-18Cr-0.5% austenitic steel, ISIJ International, Vol. 30, N° 8, 1990, p 656

5- R. P. Reed, P. T. Purtscher and L. A. Delgado

Low temperature properties of high-manganese austenitic steels, " High Manganese , High Nitrogen austenitic steels", édité par R.A. Lula, ASM International, 1993, p 13.

6- J. I. Dickson, S. Q Li et J. P. Bailon

Aspects fractographiques de la corrosion sous contraintes, Corrosion sous contrainte Phénoménologie et mécanismes, Ecole d'automne, Bombannes, édité par D. Desjardins et R. Oltra, Edition De physique, 1990, p 423

7- E. I. Meletis and R. F. Hochman

A review of the crystallography of stress corrosion cracking, Corrosion Science Vol.26, N° 1, 1986, p 63

8- Y. Chumljakov

Communication interne au laboratoire de Métallurgie physique de Lille.

9- S. Q. Li, J. I. Dickson and J. P. Bailon

The influence of stress intensity factors on the fractography of stress corrosion cracking of 316 stainless steel, Materials Science and Engineering, A119, 1989, p 59

10- J. -B Vogt, A. Messai, J. I. Dickson and J. Foct

Determination of the brittle fracture planes planes in an austenitic stainless steel using stereo electron microscopy; Conférence internationale ASM, colmar (France), 1996, p 353

11- J. Masounave, J. I. Dickson et J. -P Baïlon

Chapitre 9 : La fractographie; Rupture, Contrôle, Sûreté, édité par J. Masounave, C. Bathias et J. I. Dickson, 1985, p 327

12- R. L Tobler, D. H Beekman, and R. P Reed

Factors influencing the low- temperature dependence of yielding in AISI 316 stainless steels, Austenitic Steels at Low Temperatures, édité par R. P. Reed and T. Hariuchi, Cryogenic Materials Series, 1982, p 135

13- J. Foct and N. Akdut

Cleavage-like fracture of austenite in a duplex stainless steel, Scripta Metallurgica et Materialia, Vol. 29, 1993, p 153

14- J. -B Vogt, A. Messai and J. Foct

Factors influencing the low cycle fatigue behaviour of a duplex stainless steel : effect of strain amplitude and nitrogen content, "Duplex Stainless Steels '94", Glasgow, Scotland, N°33, 1994

15- A. Messai, J.-B Vogt, J. I. Dickson and J. Foct

Crystallographic analysis of the brittle fractures in high nitrogen austenitic and duplex stainless steels, "High Nitrogen Steels'95", The Iron and Steel Institute of Kyoto, Japan, 1995, p 74

16- J. -B Vogt

Influence de l'azote interstitiel et de la température sur les structures de dislocations obtenues par fatigue d'aciers inoxydables austénitiques, Thèse de Doctorat ès Sciences Physiques, Univ. Des Sciences et Techniques de Lille, 1991.

CHAPITRE IV

**SENSIBILITE DU P900 A LA FRAGILISATION PAR
L'HYDROGENE**

Introduction

Si la fragilité des aciers FeCrNiN type 304, 310s, 316L est bien connue en présence d'une atmosphère d'hydrogène ou sous polarisation cathodique [1,2,3], celle des aciers Fe18Cr18Mn0.9N n'a jamais été révélée. L'un des objectifs de cette étude est de percevoir si la phase austénitique fortement chargée en azote et en manganèse est sujette à la fragilisation par l'hydrogène (FPH).

Nous exposerons dans un premier temps quelques généralités sur la phénoménologie et les mécanismes de fissuration liés à l'hydrogène. Ceci nous permet de mieux comprendre ce phénomène et peut être de distinguer les effets d'ordre purement mécanique de ceux mettant en jeu en plus des effets électrochimiques. Nous présenterons ensuite, l'état actuel des connaissances sur la sensibilité aux effets d'hydrogène des aciers FeCrMnN, en montrant les conditions favorisant la fragilisation par l'hydrogène du P900. La rupture fragile obtenue sera également analysée en terme de fractographie. En effet, une fine analyse de l'endommagement surfacique et volumique sera réalisée afin de remonter aux mécanismes responsables de la fragilité induite par l'hydrogène.

IV. 1- Phénoménologie et mécanismes

IV. 1. 1- Phénoménologie

La fragilisation par l'hydrogène d'un matériau peut se décrire comme un phénomène de dégradation conduisant à une restriction des propriétés de ductilité et parfois même à un abaissement du niveau de résistance mécanique. Dans la plupart des cas, ce phénomène se manifeste par une fissuration d'apparence fragile souvent caractérisée comme cristallographique [1,2,4,5,6,7]. Cette forme de dégradation est associée à la présence d'hydrogène dans le matériau et/ou à sa surface, provenant d'un environnement susceptible de provoquer des réactions de corrosion localisée en surface. Généralement, la FPH se trouve gouvernée par un ensemble de facteurs qui jouent un rôle important dans les mécanismes régissant ce phénomène, parmi lesquels on distingue :

- les paramètres chimiques et structuraux liés au matériau : la présence d'impuretés dans le matériau et les défauts de structures (inclusions, carbures, joints de grains,...) peuvent en effet favoriser localement un dégagement d'hydrogène et/ou le piéger [6,8]

- les paramètres chimiques, électrochimiques : pour des raisons qui tiennent soit à la composition chimique de l'environnement, soit à des effets de pollution, la probabilité d'existence d'une réaction cathodique conduisant à un dégagement d'hydrogène à la surface du métal est très forte [1,9,10].

- état de contrainte : la présence de zones où il y a concentration de contrainte semble favoriser les phénomènes de fragilisation par l'hydrogène [11,12].

- Déformation plastique : les interactions hydrogène/déformation plastique semblent jouer un rôle important dans les phénomènes de fragilisation par l'hydrogène

Dans l'état actuel des connaissances, aucun matériau ne peut être considéré comme insensible à la FPH. En effet, beaucoup de matériaux se trouvent confrontés à ce problème, parmi lesquels on cite ceux utilisés pour extraire le gaz, des pièces forgées, trempées et revenues, soudées avec des électrodes humides et décapées à l'acide. Ce phénomène a été également détecté sur des pièces faisant partie des chaudières, des réacteurs à eau pressurisée, des unités contenant de l'hydrogène gazeux à haute pression (réservoirs des fusées à longue portée et des navettes spatiales). Tous ces exemples illustrent clairement la gravité du phénomène et son impact économique. Le risque de la fragilisation par l'hydrogène semble dépendre de :

- de la production des protons H^+ en forte quantité
- de la pénétration de l'hydrogène adsorbé dans le matériau.
- du transport de l'hydrogène absorbé à l'intérieur du matériau

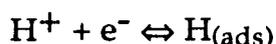
En effet, en milieu corrosif, il peut se produire une réaction cathodique avec la surface exposée ou une dissociation du gaz sur cette surface. Il s'avère que la FPH est gouvernée par un processus lié à une réaction cathodique (décharge d'hydrogène) et/ou à la présence d'une sursaturation d'hydrogène en pointe de fissure. Ainsi, il est préférable de regarder ce problème sous un angle impliquant

l'existence à l'interface électrolyte-électrode des réactions cathodiques et/ou de réduction des protons capables de dégager localement des quantités importantes d'hydrogène :

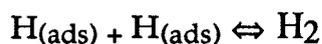


Il est établi que cette décharge cathodique fait intervenir trois étapes principales :

- un transfert électronique au travers de la double couche et l'adsorption chimique :



- la recombinaison des atomes adsorbés qui conduit au dégagement d'hydrogène gazeux :



- la pénétration dans le métal : $\text{H}_{(\text{ads})} \leftrightarrow \text{H}_{(\text{abs})}$

Les vitesses relatives de chacune de ces étapes conditionnent l'absorption d'hydrogène [11]. La fragilisation par l'hydrogène introduit par chargement cathodique donne souvent une cristallographie de rupture qui ressemble à celle produite par la corrosion sous contrainte. C'est une des raisons pour laquelle certains auteurs croient que la CSC est en fait une fragilisation par l'hydrogène qui a lieu dans le voisinage du fond de fissure. Cependant, la question reste de savoir quelle est la part jouée par l'hydrogène dans ce mécanisme de CSC, et notamment dans les structures CFC, qui sont par ailleurs toutes sensibles à des degrés divers à la fragilisation par l'hydrogène.

Signalons que l'aspect fractographique microscopique obtenu suite à une fragilisation par l'hydrogène peut se produire suivant plusieurs modes de fissuration tels que : une fissuration intergranulaire, un quasi-clivage identique à celui décrit en corrosion sous contrainte, un clivage semblable à celui observé dans les aciers ferritiques à basse température, parfois même une rupture ductile avec réduction de l'allongement en traction [1,13,14,15,16].

IV. 1. 2- Généralités sur la fragilisation par l'hydrogène des aciers inoxydables austénitiques

Les aciers inoxydables austénitiques ont la réputation de présenter une bonne résistance aux phénomènes de fragilisation par l'hydrogène. Ce bon comportement observé tient à deux facteurs essentiels :

- la solubilité plus élevée en hydrogène dans l'austénite que dans la ferrite, de sorte que des teneurs élevées sont nécessaires pour fragiliser le matériau

- la faible diffusivité de l'hydrogène dans la phase austénitique conduit à limiter les effets d'hydrogène en volume dans ces matériaux (le coefficient de diffusion à la température ambiante de l'hydrogène dans la ferrite est de 10^{-8} cm²/s et dans l'austénite est de 10^{-12} cm²/s).

L'une des observations les plus communément rencontrées montre que la sensibilité des aciers FeCrNi (ex: 304, 310, 316,..) à la FPH dépend de deux paramètres essentiels dont il faut en tenir compte :

- la stabilité de la phase austénitique
- le caractère de la déformation plastique qui conditionne le comportement du matériau et dépend fortement de l'énergie de défaut d'empilement.

Dans le premier cas, la sensibilité des aciers inoxydables est d'autant plus marquée que la structure de l'acier est instable [1,3,8,9,10,17,18]. En effet, la transformation de l'austénite instable en martensite α' ou ϵ , qui résulte d'une déformation plastique et/ou du préchargement cathodique peut affecter le comportement de l'acier (ex 304) puisque la fragilisation a lieu plus rapidement dans la martensite que dans l'austénite et la vitesse de fissuration s'en trouve augmentée. En revanche, les aciers stables types 310, 316 présentent des faciès de rupture fragilisés par l'hydrogène bien qu'aucune présence de martensite ne soit détectée.

Dans le second cas, le caractère de la déformation est étroitement lié à l'énergie de défaut d'empilement, et par conséquent à la planéité du glissement. Il est connu qu'une diminution de l'énergie de défaut d'empilement favorise le glissement plan, ce qui conduit à une susceptibilité plus importante du matériau [19].

Au regard de la littérature, les effets de l'azote sur la résistance à la fragilisation par l'hydrogène dans les aciers inoxydables semblent être antagonistes. Une fois additionné, l'azote semble favoriser la planéité du glissement par des effets d'ordre à courte distance [20,21], et par conséquent va accentuer la sensibilité de ces aciers aux effets d'hydrogène. Inversement son addition va augmenter fortement la stabilité de la phase austénitique, en diminuant son point de transformation martensitique. Cette augmentation de stabilité pourrait laisser penser que l'addition d'azote améliore non seulement la résistance à la corrosion localisée comme déjà évoqué par plusieurs auteurs [22,23] mais aussi sa résistance à la fragilisation par l'hydrogène. Sous cet angle, les aciers à l'azote peuvent présenter une meilleure résistance à la fragilisation par l'hydrogène par rapport à leurs homologues sans azote.

IV. 1. 3- Mécanismes basés sur les effets de l'hydrogène

La réduction des protons est une réaction électrochimique qui existe dans presque tout les milieux. Ainsi, le phénomène de fragilisation par l'hydrogène pourrait être présent à chaque fois que des matériaux se trouvent sous des conditions spécifiques métal/environnement capables d'accentuer et de promouvoir des réactions de réduction. Dans ce qui suit, nous allons présenter succinctement les principaux mécanismes développés pour expliquer les phénomènes de la fragilisation par l'hydrogène.

a- Mécanisme basé sur les pressions internes d'hydrogène

Cette théorie relativement ancienne proposée par Zapffe [24], repose sur la recombinaison de l'hydrogène moléculaire sous forme gazeuse dans les défauts de la microstructure (cavités, interfaces,...) et surtout dans les bandes de déformation. La fissuration serait alors la conséquence des pressions locales élevées d'hydrogène recombinaison. Ce mécanisme est fondé sur l'observation au microscope de bulles d'hydrogène au voisinage des bandes de déformation sur des échantillons chargés cathodiquement et mis sous contrainte. L'application du modèle recommande des pressions élevées d'hydrogène ($>10^5$ atmosphères) dans le matériau, qui peuvent d'ailleurs être obtenues soit dans le cas où l'activité d'hydrogène externe est importante (fugacité $\geq 10^4$), soit dans le cas d'une forte sursaturation en hydrogène provoquée par un refroidissement rapide.

Bien que ce modèle semble expliquer les cas de fissuration interne (cloquages ou fissures de ségrégations, etc.); il ne permet pas d'expliquer ni les ruptures intervenant pour des faibles activités en hydrogène (protection cathodique), ni les faciès fragiles observés dans le cas des fissurations internes. De plus, aucun calcul n'a été effectué pour montrer que de telles pressions existant dans les bulles peuvent induire des contraintes suffisantes pour provoquer la fissuration du matériau.

b- Mécanisme basé sur l'abaissement de l'énergie de surface

Ce mécanisme a été proposé en premier par Petch [25]. Il suggère que la fragilisation par l'hydrogène peut être expliquée par une réduction de l'énergie de surface du matériau due à l'hydrogène adsorbé. En regard du modèle de Griffith concernant la rupture fragile d'un matériau parfaitement élastique, il apparaît clairement qu'une diminution de l'énergie de surface doit conduire à une diminution de la contrainte de rupture et par conséquent à l'augmentation de la fragilité. Uhlig [26] précise également que l'hydrogène adsorbé affaiblit en surface les liaisons inter-atomiques et que l'avancée de fissure se produit par rupture successive des liaisons (Fig.IV.1). Certaines objections s'imposent à l'encontre de ce type de mécanisme du fait qu'il ne permet aucunement de décrire la cristallographie de la micro-fissuration telle qu'elle a été observée pour les aciers inoxydables austénitiques. De plus, ce mécanisme ne tient pas compte de l'influence de la formation d'hydrure ou d'oxyde sur l'énergie de surface.

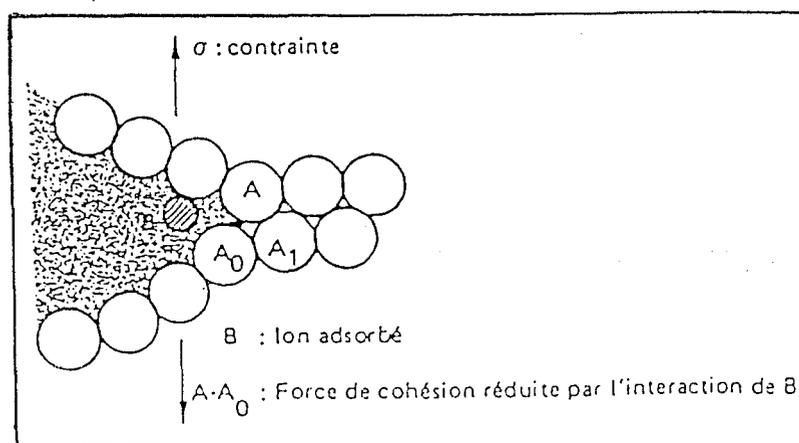


Fig.IV.1. Effet de l'adsorption de l'hydrogène sur les forces de cohésion du réseau.
(Effect of hydrogen adsorption on cohesive lattice strength).

c- Mécanisme basé sur la réduction des forces de cohésion

Selon Troiano [27], l'hydrogène atomique absorbé (en volume) peut affaiblir les liaisons interatomiques proches du fond de fissure et agit donc sur les forces de cohésion interatomique. Une rupture fragile intervient en avant du front de fissure quand les contraintes locales dépassent les contraintes de cohésion diminuées en présence d'accumulation d'hydrogène dissous dans les régions de fortes contraintes triaxiales. De telles concentrations peuvent être atteinte par diffusion de l'hydrogène vers les régions où le potentiel chimique est le plus faible. Ces régions, situées au voisinages du fond de fissure, sont celles où la pression hydrostatique gouvernée par le champ de contrainte est maximale. Le chemin de fissuration (transgranulaire ou intergranulaire) est ensuite défini par les lieux où l'hydrogène se trouve en concentration suffisante de part le champ de contrainte. Cependant, la contrainte hydrostatique étant limitée dans son concept à la limite d'élasticité du matériau, il en résulte qu'une augmentation de la concentration en hydrogène n'excédant pas un facteur 3, ce qui est trop faible pour rendre plausible un mécanisme d'affaiblissement des liaisons atomiques par absorption d'hydrogène. Oriani [28] a repris à son compte ce mécanisme de décohésion mais avec l'hypothèse que la contrainte en pointe d'une fissure se propageant par clivage est de l'ordre de grandeur de la contrainte nécessaire pour rompre les liaisons interatomiques ($\approx E/10$). Une très forte augmentation de la concentration en hydrogène à la pointe de fissure devient dès lors possible, ce qui abaisse les forces de cohésion du réseau.

Gerberich [29] a repris l'essentiel de ces idées, la présence d'hydrogène absorbé en tête de fissure permet d'abaisser localement la valeur du facteur d'intensité de contrainte critique. Cette baisse locale du facteur d'intensité de contrainte critique favorise une fissuration fragile dans cette région, fissuration qui se produit après émission de dislocation. La fissure se propage lorsque la concentration en hydrogène dissous en pointe de fissure est suffisante et s'arrête dans le cas contraire où elle ne serait plus suffisante pour affaiblir les liaisons interatomiques.

Le point critique à ce mécanisme qui fait intervenir de l'hydrogène absorbé reste la validation de l'idée de base, autrement dit, la réduction des forces de cohésions par l'hydrogène. En effet, il n'existe pas de preuves expérimentales suffisantes qui puissent justifier de manière fiable la réduction de l'énergie de cohésion par de l'hydrogène.

d- Mécanisme basé sur la formation d'hydrures métalliques et transformation de phases

Dans de nombreux systèmes métalliques, il a été montré que la fragilisation par l'hydrogène résultait de la formation d'hydrures métalliques ou de phases fragiles et de la rupture fragile de ces phases. La formation de ces hydrures, phases fragiles, est favorisée par la présence d'hydrogène d'une part, et d'un champ de contrainte en pointe de fissure d'autre part. En effet, parmi les matériaux qui subissent ce type de fragilisation par formation d'hydrures, nous distinguons les métaux du groupe Vb (Nb, V, Ta), le zirconium, le titane, etc., ainsi que les alliages de ces métaux [8,13,15,30]. Cependant, une des conditions nécessaires pour observer la fragilisation par formation d'hydrures métalliques est que la vitesse de formation des hydrures soit suffisante pour empêcher la déformation de se produire. Une autre condition pour qu'il y ait fragilisation est que l'hydrure soit une phase fragile, ce qui est généralement le cas.

Il existe également d'autres systèmes métalliques qui peuvent former des pseudo-hydrures sous des conditions où la solubilité de l'hydrogène est très élevée. Ces pseudo-hydrures sont en fait une solution solide à forte concentration en hydrogène et diffèrent des vrais hydrures par le fait que les solutés d'hydrogène sont aléatoirement distribués sur des sites interstitiels et non pas ordonnés. Notons que ce phénomène concerne particulièrement les systèmes qui présentent des gaps de miscibilité tels que : le Pa-H et le Ni-H ainsi que leur alliages.

Afin de mieux clarifier ce mécanisme de fragilisation par formation d'hydrure, la figure IV.2 illustre une description qualitative du mécanisme. Sous l'effet d'une contrainte, l'hydrogène diffuse vers les zones de concentration de contrainte, régions où les potentiels chimiques de l'hydrogène dissous et de l'hydrure se trouvent diminués. Lorsque la limite de solubilité de l'hydrogène dans le métal est atteinte, l'hydrure précipite et l'avancée de la fissure se produit par clivage, du fait que l'hydrure formé est généralement une phase fragile accompagnée par une diminution du facteur d'intensité de contrainte et d'un champ de contrainte locale de compression très élevé dû à une grande variation de volume $\Delta V_{\text{formation}}$.

Ainsi, la fissure peut donc s'amorcer pour une valeur du facteur d'intensité de contrainte inférieure à la valeur critique obtenue sur le matériau

de base. Elle peut se propager dans l'hydruire jusqu'à sa frontière avec le matériau de base, ensuite s'arrêter car la valeur du facteur d'intensité de contrainte dans le métal de base est plus élevée. L'hydruire peut se former de nouveau en pointe de fissure. Ainsi, la séquence décrite se reproduit dans le temps et conduit à une propagation discontinue.

D'un point de vue qualitatif, ce phénomène de fragilisation induit par formation d'hydrures ou d'autres phases fragiles (oxydes, nitrures,..) stabilisées en pointe de fissure par un champ de contrainte semble dépendre de certains facteurs importants comme l'effet de contrainte sur la stabilité des phases précipitées, la cinétique de la transformation de phase et les propriétés mécaniques de la phase précipitée. Ce mécanisme est très restrictif puisqu'il ne considère qu'une catégorie limitée de métaux. De plus, la stabilité de ces hydrures reste à démontrer.

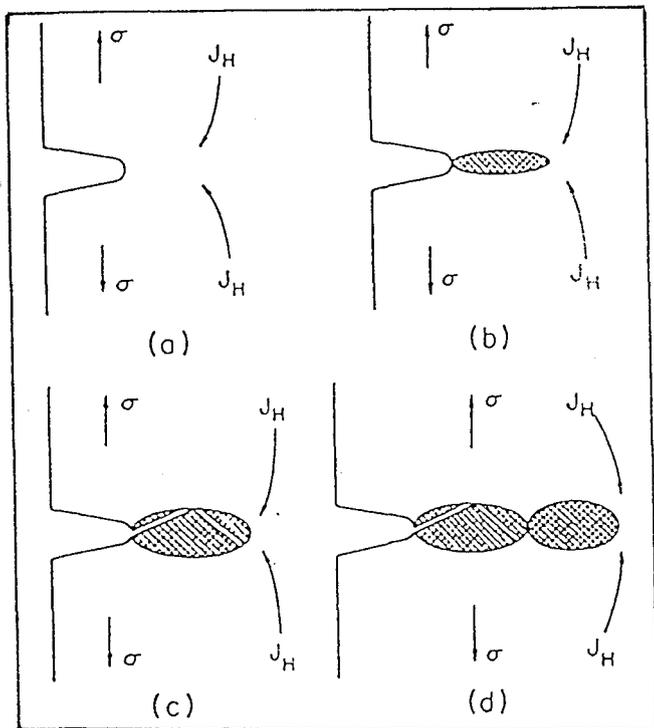


Fig.IV.2. Mécanisme de formation et de clivage d'un hydruire. (Hydride formation and cleavage mechanism) [8].

Hormis les hydrures, la fragilisation par l'hydrogène associée à la formation de phases fragiles concerne aussi les aciers inoxydables austénitiques et particulièrement les aciers métastables [2,9,13,18]. La fragilisation par l'hydrogène a été associée à la formation des phases martensitiques α' (CC) et ϵ (HC) induite par hydrogène et/ou par la contrainte. Cependant, ce sujet reste controversé, du fait qu'il n'est pas encore clairement établi si ces phases seraient une condition

nécessaire pour causer la rupture fragile, ou si elles seraient une conséquence d'une localisation de déformation causée par l'hydrogène. Certains aciers inoxydables austénitiques stables montrent néanmoins une rupture fragile sans formation de martensite en présence d'une grande fugacité d'hydrogène. Ceci peut être lié à la formation des pseudo-hydrures (phase γ') qui peuvent se former durant le chargement en hydrogène.

Le clivage associé en absence de martensite suggère que la martensite n'est pas une condition nécessaire pour fragiliser la phase austénitique. Néanmoins, sa formation en pointe de fissure nécessite moins d'hydrogène pour la fragiliser et pourrait simplement apporter une rapide diffusion d'hydrogène, autrement dit faciliter le chemin de diffusion. Cette martensite pourrait à son tour se fragiliser et créer à travers ces lattes ou à l'interfaces α'/γ des chemins faciles pour la mobilité et le transport d'hydrogène. Il semble ainsi que ce mécanisme dépende plus de la quantité en hydrogène transportée que de la stabilité de la phase.

e- Mécanisme basé sur les interactions hydrogène/déformation plastique

Les interactions hydrogène/déformation plastique sont complexes et restent encore un sujet de discussion. D'ailleurs, jusqu'à présent, il n'existe pas de description théorique satisfaisante de ce phénomène. C'est pour cette raison que nous essayerons de découpler ces interactions afin de voir l'influence de chaque élément à part : à savoir l'effet de la déformation plastique sur l'hydrogène et inversement.

En premier, nous tenterons de comprendre comment la déformation plastique pourrait agir sur la diffusion (transport de l'hydrogène par les dislocations) et le piégeage de l'hydrogène sur les dislocations. le transport de l'hydrogène par les dislocations a reçu de nombreuses preuve expérimentales [31]. De même, il a pu être démontré que les dislocations pouvaient constituer des pièges pour l'hydrogène [32]. L'idée de base est que l'hydrogène (proton) peut être transporté par les dislocations et contribue au processus de fissuration. L'importance et l'originalité du phénomène de piégeage de l'hydrogène par les dislocations résident dans le fait que ces dernières sont des pièges mobiles dans certaines conditions.

L'augmentation de la densité des dislocations associée à la déformation plastique d'un matériau mis en contact de l'hydrogène se traduit, à l'équilibre,

par une augmentation importante de la concentration en hydrogène dans la zone plastifiée. Cet effet est la conséquence du piégeage de l'hydrogène sur les dislocations. La forte mobilité de l'hydrogène (proton) dans le réseau permet aux dislocations mises en mouvement lors de la déformation plastique de se déplacer dans le réseau métallique, accompagnées de leur "atmosphère d'hydrogène". Compte tenu du mouvement collectif des dislocations, une accumulation locale peut contribuer à la création d'une micro-fissure au niveau de l'empilement des dislocations et être à l'origine de la fragilisation par l'hydrogène. Cette théorie exige ainsi que les protons de l'hydrogène qui puissent accompagner les dislocations en mouvement possèdent une vitesse de diffusion supérieure ou égale à la vitesse de déplacement des dislocations. Ceci est en accord avec les observations expérimentales qui montrent au moins que dans les cas des aciers que la fragilisation par l'hydrogène disparaît aux basses températures et aux grandes vitesses de déformation.

Examinons maintenant l'influence de l'hydrogène sur la déformation plastique. Cette interaction reste encore un sujet à discussion, du fait que deux effets opposés ont été décrits dans la littérature : une diminution de la plasticité ou une augmentation locale de la plasticité [8,13,16,17,30,33]

Stroh [34] a été le premier à suggérer que la fragilisation par l'hydrogène pouvait s'expliquer par un durcissement en pointe de fissure dû à la présence d'hydrogène dissous. Dans ce modèle, l'hydrogène semble bloquer le mouvement des dislocations et augmenter la contrainte d'écoulement. La forte mobilité de l'hydrogène lui permet de suivre la propagation de la fissure.

Cependant, Beachem [16] propose un modèle complètement différent en suggérant que l'enrichissement en hydrogène en pointe de fissure facilite les mécanismes de déformation plastique conduisant à la rupture du matériau. Ainsi on peut parler de plasticité induite par l'hydrogène. Ce mécanisme a été repris et développé par Lynch [35,36,37] pour qui l'adsorption de l'hydrogène peut conduire à une diminution de contraintes nécessaires pour créer localement l'émission des dislocations. En conséquence, une localisation de la déformation plastique se produit. Pour des matériaux CFC, les dislocations émises sont sur des plans de glissement {111} situés de façon symétrique par rapport au plan de rupture macroscopique du type {100}, (Fig IV.3). L'activité de ces dislocations de type A en fond de fissure, favorise une avancée par coalescence avec des micro-cavités qui germent en avant de la fissure en cours de sollicitation.

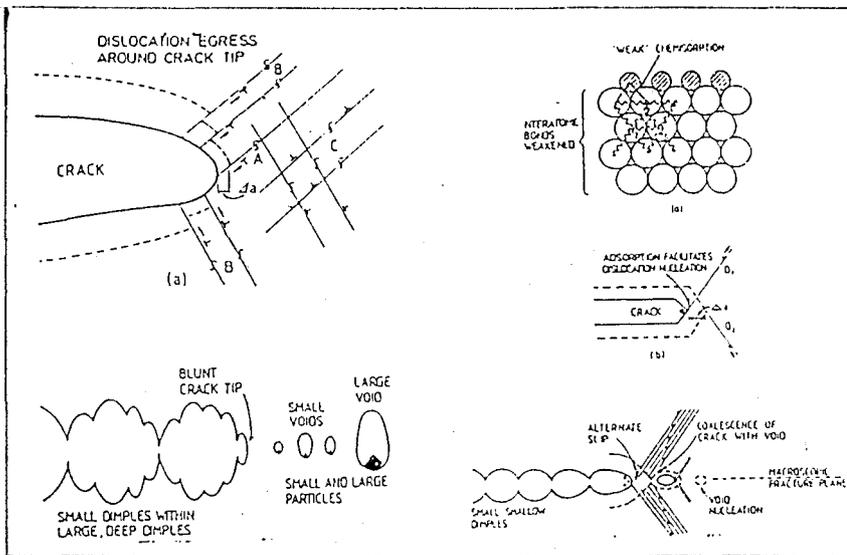


Fig.IV.3. Mécanismes de la plasticité induite par adsorption d'hydrogène. (Adsorption-induced localized slip) [36].

Ce mécanisme semble être en accord avec la cristallographie observée sur un nombre de système où la possibilité de diffusion de l'hydrogène à l'intérieur du matériau est très faible. En revanche, la critique qui s'impose à l'encontre de ce modèle vient de l'intervention non négligeable des micro-cavités dans le processus de fissuration. Or l'existence de celles-ci n'a pas été démontrée pour des matériaux purs exempts de précipités, et qui montrent une fissuration par effet d'hydrogène.

Birnbaum [13,19,30,38] a développé ce mécanisme sur les mêmes bases que Lynch en intégrant l'idée de Troiano suggérant une possible diffusion en volume (hydrogène absorbé). La contrainte plastique d'écoulement se trouve diminuée en présence d'une concentration critique en hydrogène. Il en résulte alors une émission importante de dislocations en pointe de fissure et une avancée microductile de la fissure selon les plans de glissement. Suite à ces observations, l'auteur affirme que ce mécanisme peut être étendu à la fissuration intergranulaire. Ce type de rupture serait localisé le long des plans de glissement situés de part et d'autre du joint de grain.

A travers cette revue de mécanismes, il ne semble pas qu'il existe un mécanisme général qui puisse expliquer l'ensemble des phénomènes de fragilisation par l'hydrogène. Il est probable que ces différents mécanismes

interviennent séparément ou participent conjointement d'une façon combinée selon les phénomènes observés. En revanche, on peut ressortir que ce phénomène est la conséquence d'un effet de synergie entre un endommagement électrochimique extrêmement localisé en fond de fissure..

IV. 2- Procédures expérimentales

La présente étude porte sur les conditions favorisant la fragilisation par l'hydrogène de l'acier P900. A ce titre, nous avons réalisé différents couplages traction-polarisation cathodique. Ces essais ont été couplés à des observations en microscopie électronique à balayage.

IV. 2. 1- Caractérisation physico-chimique du P900

a- Présentation de l'environnement corrosif et choix du potentiel

Pour un matériau donné, on ne peut parler de sa sensibilité à la fragilisation par l'hydrogène sans définir le milieu et les conditions dans lesquels ce phénomène est susceptible de se produire. Dans le cas des aciers inoxydables austénitiques, les milieux d'acide sulfurique (H_2SO_4) sous polarisation cathodique sont souvent pris comme milieux de référence. Ces milieux semblent être représentatifs des conditions dans lesquelles ces aciers ont servi ou vont servir, et sont même réputés être très sévères. Outre le milieu, il est également important de choisir les potentiels cathodiques qui seront capables d'amplifier les effets d'hydrogène, et par conséquent de favoriser la fragilisation par l'hydrogène d'où la nécessité d'établir une courbe intensité-potentiel dans la même solution.

Dans le cadre de ce travail, la solution corrosive choisie pour caractériser la sensibilité du P900 aux effets d'hydrogène est composée de 0.5 M H_2SO_4 à base d'eau déminéralisée additionnée de 0.5 g/l d'oxyde d'arsenic (As_2O_3) pris comme un agent catalyseur et promoteur de l'entrée d'hydrogène dans le matériau. Cet électrolyte possède un pH= 0.7, mesuré à l'aide d'un PH-mètre Tacussel étalonné avec des solutions Tampons. Une électrode de référence au sulfate mercurieux saturé (ESS) dont le potentiel est de 618 mV/ENH est utilisée.

b- Mesure du potentiel libre

La mesure du potentiel libre (Noté E_0) a été réalisée dans le même milieu à l'aide d'une cellule standardisée et un potentiostat Tacussel sur une période de temps de 3 heures. Après une courte période de variation due probablement à l'instabilité du film passif en cours de formation, le potentiel se stabilise progressivement, pour atteindre une valeur asymptotique ($E_0 \approx -380$ mV/ ESS).

c- Caractérisation potention-cinétique

Les essais de polarisation potention-cinétiques ont été réalisés à l'aide d'un dispositif expérimental comprenant un potentiostat Tacussel, relié à une cellule aérée par trois électrodes (Tacussel). Ces essais ont été effectués dans le milieu corrosif décrit auparavant avec une vitesse de balayage de 7 mV/mn.

Avant de débiter le balayage, l'échantillon est en premier lieu polarisé cathodiquement à -1200 mV/ESS pendant 5 minutes, afin d'éliminer toute trace de film d'oxyde qui aurait pu se former. L'évolution du courant total (I anodique + I cathodique) en fonction du potentiel est présenté en échelle semi-logarithmique à l'aide d'une table traçante reliée au dispositif expérimental.

Notre but se limite essentiellement à déterminer les potentiels vers lesquels une réduction des protons H^+ est favorisée, ce qui faciliterait probablement un dégagement intense d'hydrogène. La figure IV.4 présente la courbe intensité potentiel, sans effets mécaniques, en un milieu acide par rapport à l'électrode (ESS). Elle indique différents domaines :

$E < E_0$, un domaine dans lequel prédomine des réactions cathodiques soit de réduction de l'oxygène soit de l'hydrogène, soit les deux

$E_0 < E < E_f$, un domaine de corrosion généralisée (dissolution)

$E_0 < E < E_p$, un domaine de passivité stable (E_p potentiel de piqûration)

A l'issue de ces essais, une valeur $E_c = -1100$ mV/ESS très cathodique a été retenue pour servir de base dans l'étude de la fragilisation par l'hydrogène du P900 dans l'environnement corrosif choisi. Cette valeur est bien inférieure au potentiel d'abandon pour que la réduction des protons soit importante, ce qui va privilégier les effets d'hydrogène et minimiser voire même supprimer les réactions de dissolution.

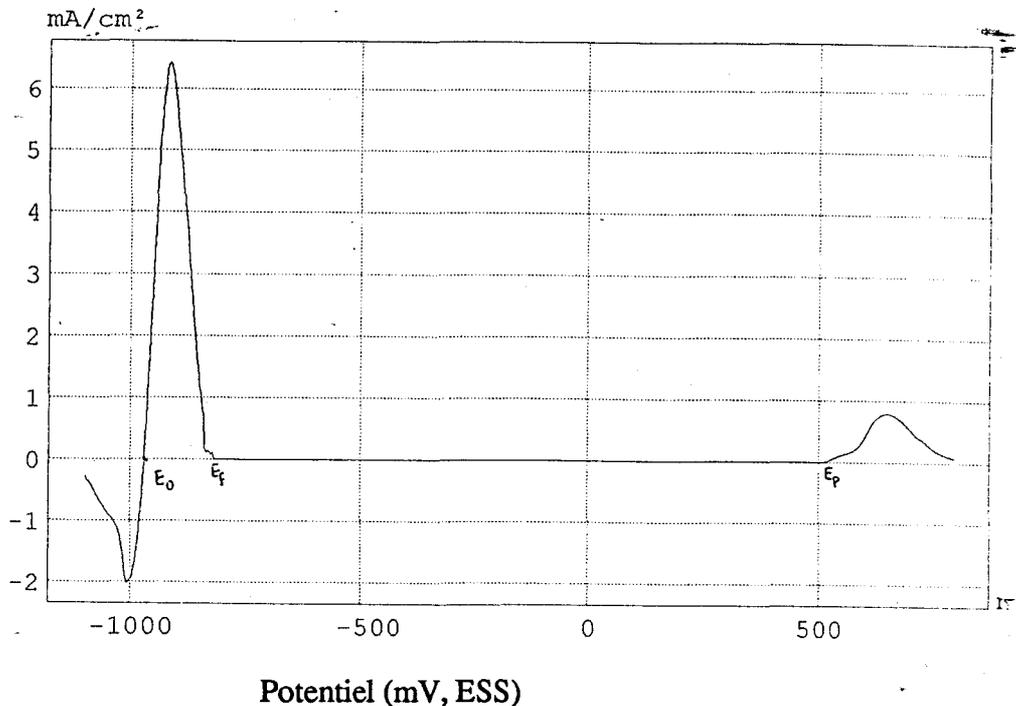


Fig.IV.4. Courbe potention-cinétique du P900 dans un milieu 0.5 M H_2SO_4 + 0.5 g/l d' As_2O_3 à la température de la salle d'essais. (Polarization curve of P900 in 0.5 M H_2SO_4 + 0.5 g/l As_2O_3 solution at room temperature).

IV. 2. 2- Méthode expérimentale

Les essais de traction ont été effectués sur une machine électromécanique (UTS) de capacité 20KN. La charge est mesurée à l'aide d'une cellule de charge montée en série avec l'éprouvette. La déformation de l'éprouvette est supposée homogène et contrôlée par le déplacement de la traverse. Ces essais ont été menés en traction lente à la température de la salle d'essai (TS), dans le même milieu corrosif contenant 0.5 M H_2SO_4 + 0.5 g/l As_2O_3 à $pH = 0.7$ et à une vitesse de déformation $\dot{\epsilon} = 10^{-5} s^{-1}$.

Les éprouvettes utilisées sont du type lisse cylindrique à têtes filetées. Elles sont caractérisées par un diamètre et une longueur utile qui valent respectivement 2.5 mm et 10 mm. Elles sont dimensionnées de manière à ce que seulement cette partie utile soit au contact du milieu corrosif, les congés étant protégés par une pâte siliconée (Fig.IV.5). Ces éprouvettes sont polies mécaniquement au papier abrasif 1200 puis électrolytiquement dans une solution contenant : 100 ml d'acide acétique glacial, 25 ml d'acide perchlorique et 10 ml d'eau déminéralisée. Ensuite, elles subissent un décapage chimique dans un bain nitrofluorhydrique (20% d'acide nitrique, 10% d'acide fluorhydrique et 70% d'eau).

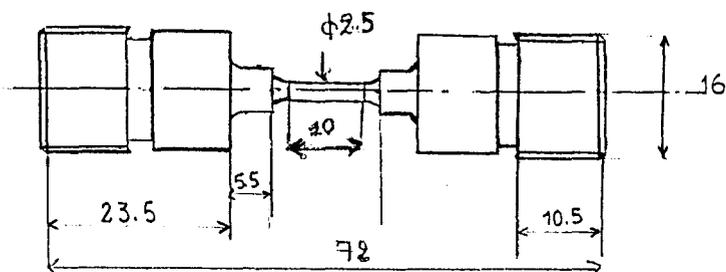


Fig.IV.5. Configuration des éprouvettes de traction. (Configuration of tensile specimens).

Pour la partie électrochimique, le dispositif expérimental comprend un potentiostat et trois électrodes Tacussel (contre électrode en platine, électrode de référence au sulfate mercurique saturée et l'électrode de travail), ainsi qu'une cellule de corrosion en PVC munie d'un système d'agitation magnétique de la solution corrosive. L'agitation est très légère afin d'homogénéiser la solution corrosive sans perturber les phénomènes chimiques et électrochimiques qui se produisent à la surface de l'éprouvette en cours d'essai. Le mors supérieur de la machine de traction est protégé par du plastique et la partie du mors inférieur exposée à la solution corrosif par une pâte siliconée (Fig.IV.6)

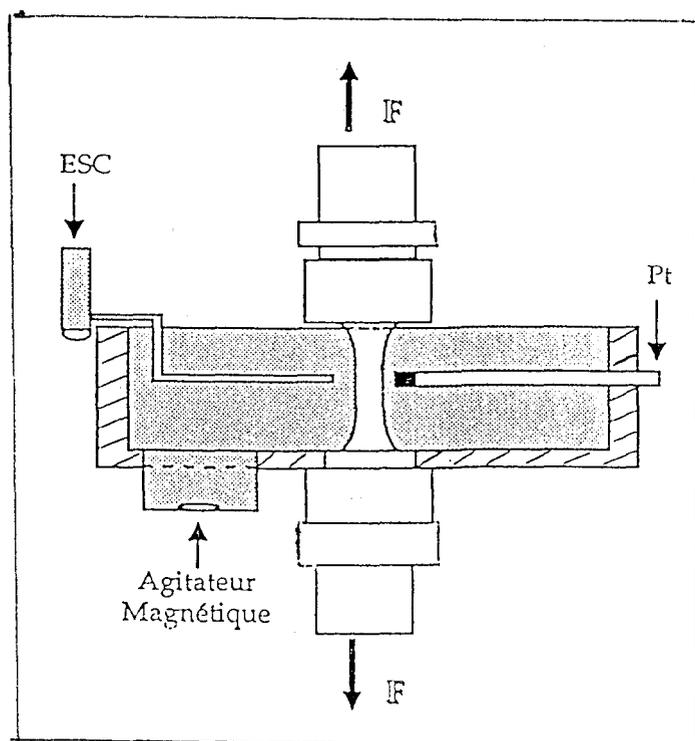


Fig.IV.6. Dispositif expérimental : schéma du dispositif électrochimique. (Description of the experimental set-up: schematic illustration of the electrochemical set-up).



IV. 3- Résultats

IV. 3. 1- Comportement mécanique en traction monotone

Afin de caractériser la sensibilité de l'acier P900 aux effets d'hydrogène, quatre types d'essai ont été conduits à la température de la salle et à la même vitesse de déformation $\epsilon = 10^{-5} \text{ s}^{-1}$ (le milieu corrosif utilisé est composé de 0.5 M H_2SO_4 + 0.5 g/l As_2O_3 à pH = 0.7). Compte tenu de notre dispositif expérimental, les caractéristiques macroscopiques retenues comme critères de sensibilité sont l'allongement à rupture, le coefficient de striction et la charge à rupture.

Les effets des différents couplages traction-polarisation cathodique sont illustrés à la figure IV.7 et commentés ci après :

- la courbe (a) présente l'essai de référence correspondant au comportement du P900 tractionné à l'air sans milieu corrosif.
- la courbe (b) montre le comportement d'une éprouvette tractionnée sous potentiel cathodique ($E_c = 1100 \text{ mV/ESS}$) .
- la courbe (c) illustre le comportement d'une éprouvette préchargée cathodiquement ($E_c = -1100 \text{ mV/ESS}$) pendant 72 heures puis tractionnée à l'air en absence du milieu corrosif.
- la courbe (d) illustre le comportement d'une éprouvette préchargée cathodiquement pendant 72 heures puis tractionnée sous polarisation cathodique ($E_c = -1100 \text{ mV/ESS}$) dans le milieu corrosif.

Les courbes " a, b, c " montrent globalement un comportement similaire. Elles sont presque confondues au niveau des valeurs de contrainte (charge à rupture, limite d'élasticité) mais diffèrent légèrement par l'allongement à rupture. En revanche, la courbe (d) montre une réduction importante de l'allongement à rupture (d'un facteur 4 par rapport à l'essai de référence), ainsi qu'une charge à rupture d'environ 10% plus faible.

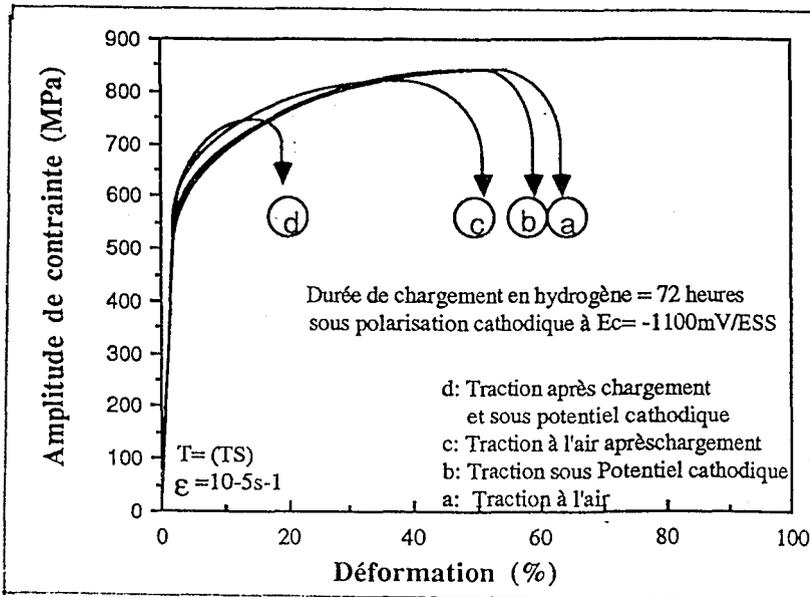


Fig.IV.7. Evolution de la contrainte en fonction de la déformation en traction monotone sous différentes conditions du P900. (Variation of stress amplitude with strain during tensile test under several conditions of P900).

Le tableau IV.1 reporte les valeurs macroscopiques accessibles et les rapports de sensibilité marquant l'effet des conditions d'essai sur les caractéristiques mécaniques du P900.

Tableau IV.1. Ensemble des résultats de traction de l'acier P900 chargé à l'hydrogène dans différentes conditions. (Tensile test results of hydrogen-charged P900 steel specimens in various conditions).

Critères de comparaison	Re 0.2% (MPa)	Rr (MPa)	ϵ %	Z %	$\epsilon(a)/\epsilon_{a,b,..}$	$Z(a)/Z_{a,b,..}$
(a)	550	887	62	73	1	1
(b)	555	890	58	66	1.07	1.1
(c)	561	886	54	61	1.15	1.2
(d)	606	803	18	27	3.45	3

Au vu de ces résultats, il ressort que seule la traction sous polarisation cathodique d'une éprouvette préchargée cathodiquement conduit à une réduction importante de ductilité. En revanche, cette approche macroscopique par simple analyse des résultats mécaniques s'avère insuffisante pour montrer l'effet d'un préchargement seule ou d'une polarisation cathodique à cause de la légère perte de ductilité. Il apparaît indispensable de la relier à une échelle microscopique plus fine .

IV. 3. 2- Analyse de l'endommagement (électrochimique et /ou lors des essais de traction)

L'analyse des paramètres macroscopiques pour caractériser la sensibilité des aciers aux effets d'hydrogène est cependant grossière, du fait que ces phénomènes résultent d'interactions extrêmement localisées en fond de fissure (il est difficile de connaître l'évolution du milieu corrosif en fond de fissure). Plusieurs observations microscopiques fines ont été effectuées sur les fûts d'éprouvettes (surface) et sur les faciès de rupture, pour ensuite être couplées et corrélées aux résultats macroscopiques.

IV. 3. 2. 1- Endommagement électrochimique sous polarisation cathodique (absence de l'effort extérieur)

Afin de dissocier l'endommagement électrochimique causé par les effets du préchargement cathodique de l'endommagement mécanique, l'échantillon préalablement poli a été immergé dans la même solution corrosive et chargé sous polarisation cathodique ($E_c = -1100$ mV/ESS) pendant 72 et 80 heures. Ces durées ne sont pas arbitraires et sont approximativement égales à la durée de l'essai de traction sur des éprouvettes portées au même potentiel cathodique.

L'observation microscopique de la surface préchargée cathodiquement pendant 72 et 80 heures montre un film continu sans présenter de différence avec l'état de départ, signifiant qu'aucune présence de traces de corrosion généralisée ou/et localisée n'a été observée. A priori, l'acier P900 montre une grande résistance à l'endommagement électrochimique causé par des effets d'hydrogène dans de telles conditions. Signalons également qu'aucune présence de martensite α' et ϵ n'a été décelée par diffraction des rayons-X.

IV. 3. 2. 2- Analyse de l'endommagement lors des couplages traction-polarisation cathodique

La connaissance de l'amorçage des fissures et la cinétique de propagation est une approche importante pour comprendre le mécanisme mis en jeu lors de la rupture. La littérature nous a révélé que la présence d'un défaut de surface, ou la dissolution au niveau d'une inclusion par un couplage galvanique ou une rupture prématurée d'une inclusion de comportement fragile via le substrat, etc., peuvent être regroupés en terme de défaut critique capable de favoriser l'apparition de la fragilité. A ce titre, nous avons tenté d'identifier les sites d'amorçage des fissures et de suivre leur propagation. Une telle démarche peut

ramener des éléments nouveaux pour la compréhension du phénomène, et de se rendre compte à la fois de la contribution mécanique et de l'environnement.

a- Eprouvette tractionnée à l'air sans milieu corrosif " cas a "

L'endommagement en volume est vraisemblablement la cause principale de la rupture purement mécanique de l'éprouvette. Le faciès de rupture montre une striction importante produite par déchirement perpendiculaire à l'axe de sollicitation et s'achevant par des lèvres de cisaillement obliques à 45° (FigIV.7).

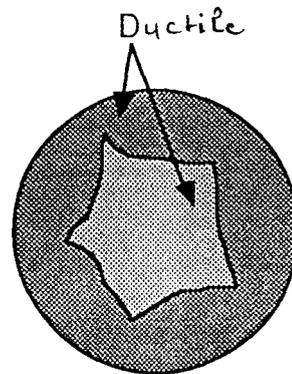


Fig.IV.7. Aspect de l'endommagement en volume du P900 tractionné à l'air (TS)
(Aspect of bulk damage of P900 tested in air at room temperature).

L'examen microscopique de la surface du fût de l'éprouvette montre que tous les grains sont plastifiés, réorientés les uns par rapport aux autres. Ils sont caractérisés par un glissement homogène, bien réparti, marqué par la présence de nombreuses bandes de glissement à caractère plus au moins onduleux s'étalant sur toute la partie utile de l'éprouvette avec une absence totale de fissures (Fig.IV.8). Ces caractéristiques indiquent qu'une déformation plastique importante a précédé la fissuration.



Fig.IV.8. Aspect microscopique de l'endommagement en surface du P900 tractionné à l'air à la température de la salle d'essais. (Microscopic aspects of surface damage of P900 tested in air at room temperature of P900).

A une échelle plus fine, l'analyse microscopique du faciès de rupture montre clairement une rupture totalement ductile à cupules (Fig.IV.9).

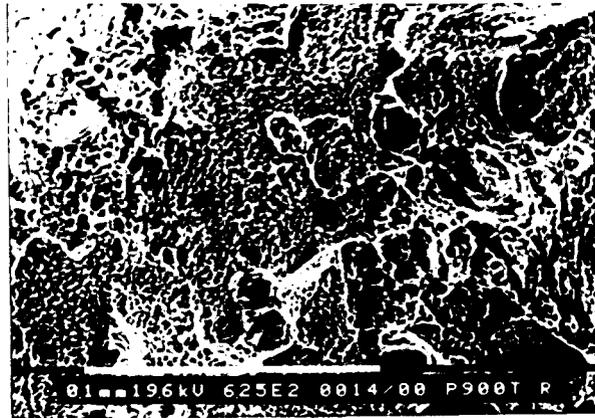


Fig.IV.9. Aspect microscopiques de l'endommagement en volume du P900 tractionné à l'air à la température de la salle d'essais. (Microscopic aspects of bulk damage of P900 tested in air at room temperature).

Il ressort clairement que la rupture est une conséquence d'un endommagement purement mécanique en volume dont le mécanisme est régi par germination-croissance et coalescence des cupules.

b- Epreuve tractionnée sous polarisation cathodique "cas : b"

L'endommagement en volume semble être la cause majeure de la rupture. En effet, le faciès de rupture montre une striction importante bordée par de zones fragiles très localisées près du bord de l'éprouvette en faible proportion (inférieure à 300 μm) par rapport à la surface totale (Fig.IV.10). Ceci peut expliquer la légère perte de ductilité enregistrée lors de l'essai mécanique.

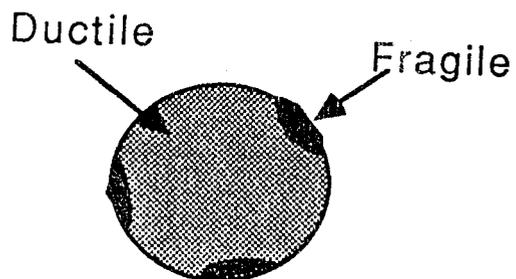


Fig.IV.10. Endommagement en volume du P900 tractionné sous polarisation cathodique $E_c = -1100\text{mV/ESS}$. (Bulk damage of P900 tested under cathodic polarization $E_c = -1100\text{mV/ESS}$).

L'examen microscopique de l'endommagement surfacique montre que la répartition de la plasticité est comparable à celle observée pour l'état de référence. Néanmoins, on note l'existence de microfissures aux joints de grain orientés perpendiculairement à l'axe de sollicitation et dans les bandes de glissement les plus développées orientées à 45° de l'axe de traction (Fig.IV.11a). Les fissures transgranulaires sont cristallographiques, peu nombreuses, réparties d'une façon aléatoire et non homogène à travers la surface examinée (fût de l'éprouvette). Ceci est probablement dû à une entrée de l'hydrogène qui varie de grain en grain. L'ouverture de ces fissures apparaît relativement faible ($\leq 15 \mu\text{m}$) et bordée par de nombreuses traces de piqûres de corrosion localisée (corrosion cathodique) dues probablement à un changement local du potentiel. Cette forme de corrosion localisée, par dissolution anodique à potentiel cathodique peut être probablement une conséquence de l'alcanisation locale du milieu corrosif au voisinage des fissures sur lesquelles se localisent les réactions cathodique. Cette alcanisation locale est liée probablement à la consommation d'ions H^+ ($2 \text{H}^+ + 2\text{e}^- \rightarrow \text{H}_2$) ou à la génération d'ions OH^- ($\text{O}_2 + 2\text{H}_2\text{O} \rightarrow 4\text{OH}^-$) au niveau des fissures. Nous suspectons d'ailleurs, que ces piqûres de corrosion localisée agissent comme des catalyseurs favorisant un dégagement local de l'hydrogène ce qui pourrait favoriser la propagation des fissures. De plus, elles attestent que d'éventuelles réactions de dissolution localisées opèrent même à ce potentiel cathodique (Fig.IV.11: b, c)



Fig.IV.11a. Endommagement surfacique du P900 tractionné sous polarisation cathodique ($E_c = -1100 \text{ mV/ESS}$) montrant des fissures trans-intergranulaires étroites. (Surface damage of P900 tested at cathodic potential ($E_c = -1100 \text{ mV/ESS}$) showing narrow transgranular and intergranular cracks).

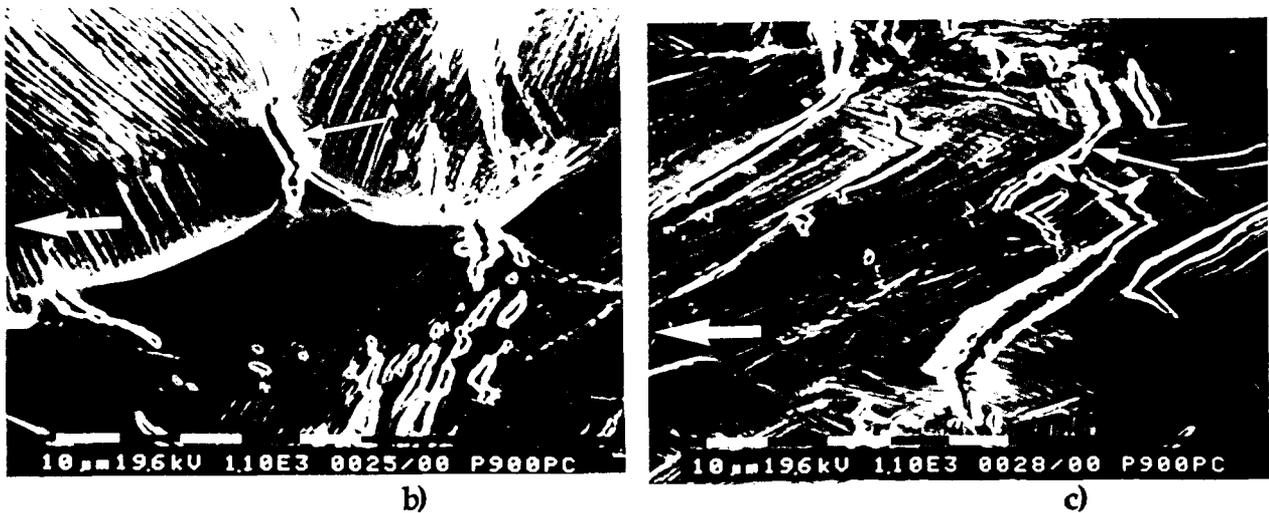


Fig.IV.11b. Endommagement en surface du P900 tractionné sous polarisation cathodique ($E_c = -1100$ mV/ESS) : b) piqûres de corrosion au niveau des joints de grains; c) piqûres de corrosion au niveau des bandes de glissement. (Surface damage of P900 tested at cathodic potential ($E_c = -1100$ mV/ESS) : b) Corrosion pits near grain boundaries; c) Corrosion pits near slip bands).

Par ailleurs, l'analyse microscopique des zones fragiles localisées près du bord de l'éprouvette montre l'existence de deux modes de fissuration fragile tantôt transgranulaire, tantôt intergranulaire s'étalant sur des zones ne dépassant pas les $250 \mu\text{m}$. Cet aspect de fragilité est souvent limité par une zone ductile à cupules marquant la frontière de la zone de transition ductile-fragile (Fig.IV.12). L'aspect localisé de la fissuration fragile indique que les effets d'hydrogène en volume sont limités aux endroits les plus contraints, où l'on observe beaucoup de traces de dissolution. Ces zones peuvent probablement contenir des teneurs très élevées en hydrogène qui sont à l'origine de cette fragilité.

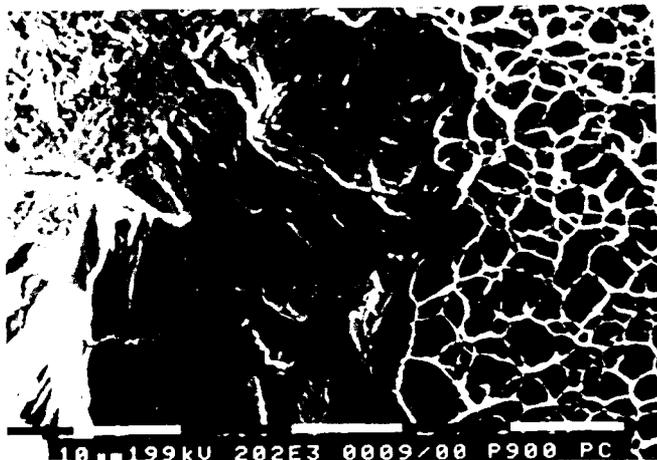


Fig.IV.12. Aspect de la transition ductile- fragile. (Aspect of ductile-brittle transition).

Les observations microscopiques sont en bon accord avec la faible chute d'allongement macroscopique, puisque l'action d'hydrogène semble surtout localisée sur des zones ne dépassant pas 5% de la totalité de la surface de rupture.

L'examen micro-fractographique (échelle inférieure à celle de la taille du grain) montre que la fissuration transgranulaire fragile est caractérisée par une micro-fissuration discontinue à l'échelle du μm , présentée par des marques d'arrêts approximativement perpendiculaires à des ligaments fins. Ceci suggère que la déformation plastique est intervenue dans le processus de fissuration probablement par relaxation. On note également la présence de fissures secondaires profondes généralement perpendiculaires au front de fissure marquée par l'aspect strié bien que la contrainte soit monotone (Fig.IV.13).



Fig.IV.13. Fissuration discontinue du P900 tractionné sous polarisation cathodique dans un milieu H_2SO_4 . (Discontinuous cracking of P900 steel tested under cathodic polarization in H_2SO_4 aerated solution).

La fissuration intergranulaire est caractérisée par une décohésion le long des joints de grains (Fig.IV.14). Signalons également la présence de nombreuses fissures secondaires profondes à travers ces zones fragiles. Cette fissuration est probablement due au fait que l'hydrogène diffusé dans ces lieux (joints de grains) se trouve en concentration suffisante pour diminuer leur énergie de cohésion.



Fig.IV.14. Fissuration intergranulaire du P900 en tractionné sous polarisation cathodique dans un milieu H_2SO_4 . (Intergranular cracking of P900 steel tested under cathodic polarization in H_2SO_4 aerated solution).

De par cette zone de fissuration à caractère fragile, le faciès de rupture comprend une grande partie correspondant à un arrachement ductile et représente environ 95 % de la surface de rupture totale. Les détails microfractographiques de cette zone de rupture finale sont semblables à ceux observés sur la totalité de la surface du faciès de rupture obtenu à l'air (sans effet d'hydrogène) et sont donc caractéristiques d'une rupture purement mécanique.

L'ensemble de ces résultats montre que dans de telles conditions, deux modes de fissuration fragile à caractère transgranulaire discontinu et intergranulaire associés à des fissures secondaires sont observés d'une façon localisée dans des lieux contenant probablement de fortes concentrations en hydrogène. Puisque, l'apparition de fragilité est strictement localisée dans ces zones en faible proportion alors que le reste de la surface de rupture totale est ductile. Ce qui montre que l'hydrogène n'a pas eu le temps de diffuser et de pénétrer dans le matériau, et ainsi d'agir sur l'ensemble du volume.

De nombreuses traces de corrosion localisée sont observées bien qu'un potentiel cathodique ait été imposé (corrosion cathodique). Un tel phénomène de corrosion localisée au niveau des bandes de glissement et des joints de grain, bien qu'il ne soit pas la force motrice du processus, contribue d'une part à déstabiliser le film passif et d'autre part à amplifier les dégagement locaux d'hydrogène.

c- Eprouvette préchargée cathodiquement pendant 72 heures "cas : c"

L'endommagement en volume semble être en grande partie la cause majeure de la rupture. L'examen fractographique du faciès de rupture met clairement en évidence une striction importante bordée par un endommagement peu profond et superficiel en forme d'une couronne fragile qui s'étale sur une largeur d'environ $100\ \mu\text{m}$ (1 grain). Cette localisation de la fragilité à proximité des bords en faible proportion par rapport à la surface totale peut en effet expliquer la légère perte de ductilité enregistrée lors de l'essai mécanique (Fig.IV.15). Un tel endommagement peu profond et superficiel suggère que l'hydrogène n'a pas eu le temps de diffuser et de pénétrer suffisamment en volume probablement à cause de sa faible diffusivité dans la phase austénitique. Néanmoins, cela n'exclut pas que localement ces zones (fragiles) peuvent contenir des teneurs très élevées en hydrogène, qui sont à l'origine de cette fragilité.

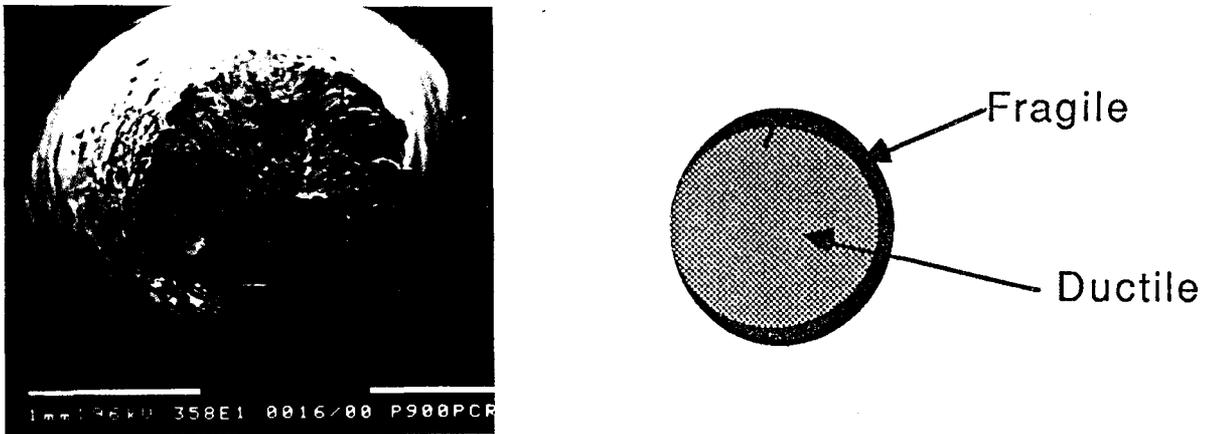


Fig.IV.15. Endommagement en volume du P900 tractionné à l'air (TS), après un préchargement cathodique pendant 72 heures. (Bulk damage of P900 tested in air (at RT), after cathodic charging with hydrogen during 72 hours).

Contrairement à l'état de référence, l'endommagement surfacique est caractérisé par un glissement très restreint et à peine visible. De nombreuses fissures cristallographiques transgranulaires et intergranulaires apparaissent réparties de manière homogène sur toute la partie utile (Fig.IV.16a). Cette forme de dégradation est probablement associée à l'hydrogène en forte quantité bien réparti à la surface du matériau. Notons que les fissures sont très ouvertes ($\leq 40\ \mu\text{m}$) surtout lorsqu'elles sont orientées perpendiculairement à l'axe de sollicitation. Il s'avère que dans de telles conditions, l'orientation de la bande de glissement ou/et du joint de grain a une influence directe sur l'ouverture et la

profondeur de la fissure. L'observation de ces fissures à fort grandissement montre que leurs bords sont fragiles (Fig.IV.16b). En effet, au delà d'une certaine profondeur, ces fissures semblent être arrêtées et relaxées probablement par une zone plastique plus étendue. Cette profondeur de la zone fragile marque et définit les lieux où l'hydrogène se trouve suffisamment concentré.

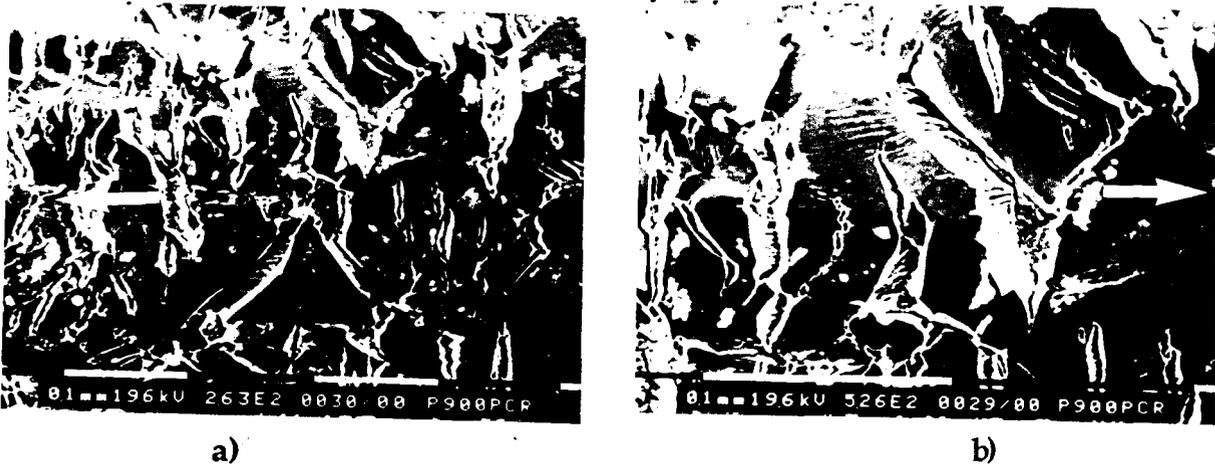


Fig.IV.16. Endommagement en surface du P900 tractionné à l'air (TS) après un préchargement cathodique pendant 72 heures. (Surface damage of P900 tested in air (at RT) after cathodic charging with hydrogen during 72 hours).

L'examen micro-fractographique de cette couronne fragile indique que la fissuration fragile est de nature transgranulaire identifiée comme étant du pseudo-clivage sur des plans $\{100\}$. Elle est constituée généralement par des facettes primaires parallèles, séparées par des rivières constituant ainsi des marches. Des marques d'arrêts perpendiculaires aux rivières sont apparentes sur ces facettes primaires attestant que la fissuration est discontinue bien que la contrainte soit monotone, (Fig. IV.17).



Fig.IV.17. Fissuration fragile discontinue associée à de fines traces de glissement. (Discontinuous brittle cracking associated to fine slip bands).

Outre la fissuration transgranulaire fragile à caractère discontinu, l'examen microscopique couplé à des observations stéréographiques indique également une micro-fissuration fragile occasionnellement observée, formée par une alternance de paires de microfacettes {111}, conduisant à un plan médian d'orientation moyenne proche de {110}, (Fig.IV18). Ces caractéristiques fractographiques ressemblent en partie à celles observées sur la cristallographie de la fissuration transgranulaire du P900 fragilisé à 77 K en traction monotone.

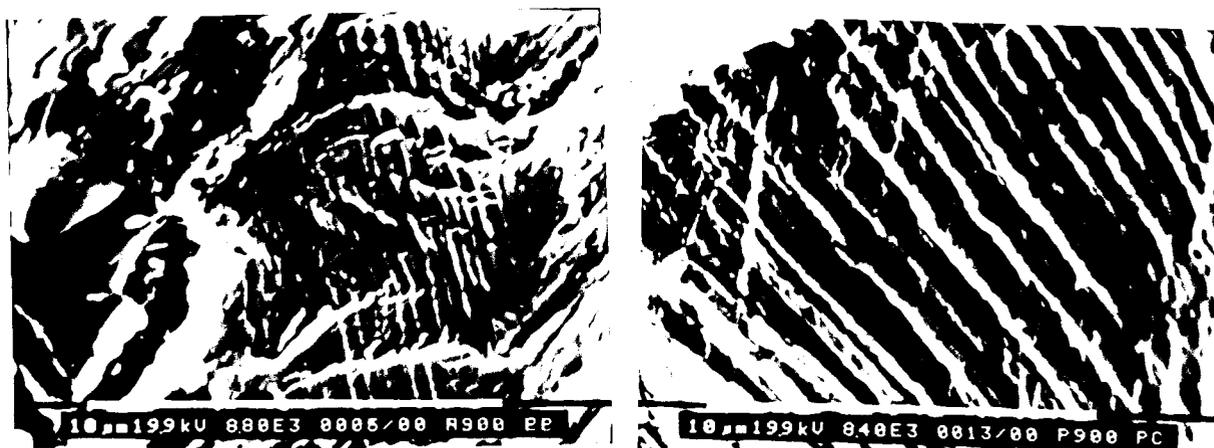


Fig.IV.18. Fissuration fragile par alternance de micro-facettes {111} déterminée par observations stéréographiques. (Alternating cracking on {111} microfacets determined by using Stereo Electron Microscopy).

Hormis ce type de fissuration à caractère fragile, le faciès de rupture est caractérisé par une seconde zone de rupture, qui correspond à l'arrachement final et représente plus de 90 % de la surface de rupture totale. Les détails microfractographiques de cette zone de rupture finale sont semblables à ceux observés sur la totalité de la surface du faciès de rupture obtenu à l'air (sans chargement en hydrogène), et sont donc caractéristiques d'un endommagement purement mécanique.

Au vu de ces observations, la légère réduction des caractéristiques mécaniques de ductilité est liée à la fragilisation partielle de l'éprouvette induite par le chargement cathodique à la température ambiante. L'hydrogène, distribué de manière homogène sur la surface de l'éprouvette, ne peut atteindre l'intérieur du matériau et ne peut déclencher une fissuration fragile en volume. Ceci est probablement dû à la faible diffusivité de l'hydrogène dans le réseau CFC.

**d- Eprouvette préchargée cathodiquement puis tractionnée
sous polarisation cathodique "cas : d"**

Contrairement aux états précédents "cas : a, b, c", la fissure principale à l'origine de la rupture semble s'amorcer à la surface de l'éprouvette. En effet, le faciès de rupture montre une légère striction et une rupture fragile qui s'étale sur environ 85% de la surface de rupture totale (Fig.IV.19). De nombreuses fissures secondaires longues et profondes sont également observées à travers toute cette zone fragile. Néanmoins, la rupture s'achève par un arrachement final ductile représentant environ 15 % de la surface de rupture totale. Il ressort ainsi, que la restriction des propriétés de ductilité est due à la sensibilité de la phase austénitique à la fragilisation par l'hydrogène.

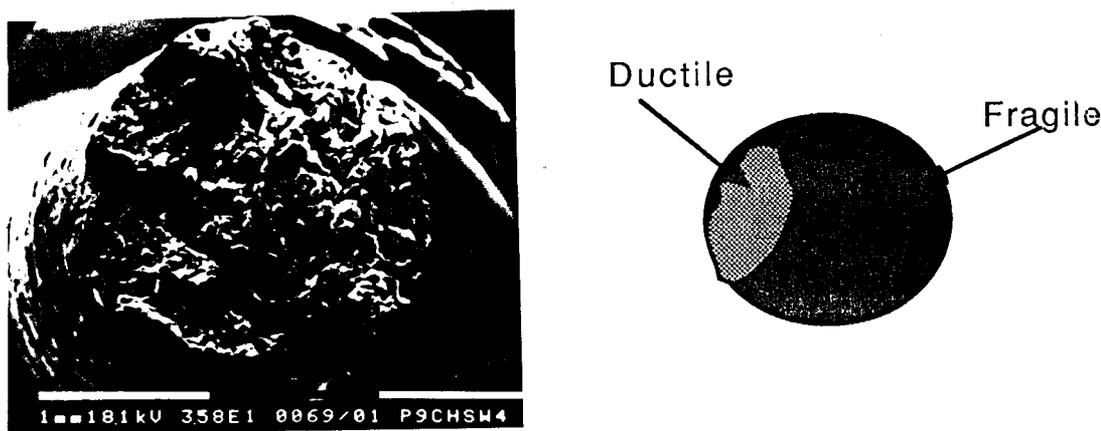


Fig.IV.19. Endommagement en volume du P900 préchargée cathodiquement pendant 72 heures puis tractionnée sous polarisation cathodique. (Bulk damage of P900 charged cathodically during 72 hours and tested under cathodic polarization).

L'analyse de l'endommagement surfacique montre de nombreuses fissures cristallographiques à caractère transgranulaire et intergranulaire. Ces dernières sont profondes et ouvertes (50 μm) surtout lorsqu'elles sont orientées perpendiculairement à l'axe de traction (Fig.IV.20a). Les fissures transgranulaires dans les bandes de glissement sont soit inclinées ou perpendiculaires à l'axe de sollicitation. Elles sont bien réparties dans le grain, peu ouvertes (largeur $\leq 15\mu\text{m}$) et souvent perturbées par un deuxième système de glissement. Néanmoins, elles sont réparties d'une façon aléatoire et non homogène de grain en grain à travers toute la surface examinée (Fig.IV.20b). On note également la présence d'un nombre important de traces de piqûres de corrosion localisée (corrosion cathodique), affectant surtout les bandes de glissement inclinées à 45° par rapport à l'axe de sollicitation et les joints de grains (Fig.IV.20 c, d). Bien que cette

dissolution chimique cathodique apparaisse parfois importante sous forme de grandes piqûres, elle ne semble pas être la force motrice du mécanisme à l'origine d'une telle fissuration. Les joints de grains et/ou les bandes affectés par cette dissolution cathodique ne sont pas très ouvertes. De plus, les fissures les plus endommageantes (ouvertes et profondes) montrent des bords fragiles dépourvus de toutes traces de dissolution, indiquant le rôle mineur de la dissolution sur l'amorçage. Ceci laisse penser qu'elles jouent un rôle de catalyseur favorisant localement une amplification des effets d'hydrogène.



Fig.IV.20a. Endommagement en surface du P900 préchargé cathodiquement pendant 72 heures puis tractionné sous polarisation cathodique. (Surface damage of P900 cathodically charged during 72 hours and tested under cathodic polarization).



Fig.IV.20b. Fissures intergranulaires et transgranulaires s'amorçant dans les bandes de glissement et les joints de grain orientés approximativement perpendiculaires à l'axe de chargement. (Both intergranular and transgranular cracking initiate in slip bands and grain boundaries orientated roughly perpendicular to loading axis).



FigIV.20c. Fissures intergranulaires larges, profondes orientées approximativement perpendiculaires à l'axe de chargement, et apparence de nombreuses piqûres de corrosion intragranulaires. (Wide and deep intergranular cracking at grain boundaries oriented roughly perpendicular to the loading axis, and aspect of numerous intragranular corrosion pits).



Fig.IV.20d. Fissures transgranulaires dans les bandes de glissement orientées approximativement perpendiculaires à l'axe de chargement, et apparence de nombreuses piqûres de corrosion (Transgranular cracking in slip bands oriented roughly perpendicular to the loading axis, and aspect of numerous corrosion pits).

L'endommagement surfacique est caractérisé par un glissement hétérogène. Certains grains ne montrent aucun signe de plasticité, alors que d'autres sont marqués par la présence de nombreuses bandes de glissement à caractère rectiligne, très fines et à peine visibles. Ce glissement est souvent perturbé par de microfissures juxtaposées les unes aux autres, très visibles, ouvertes et presque perpendiculaires à l'axe de traction. L'interaction glissement/fissure montre qu'un cisaillement des bandes de glissement s'est produit sans qu'elles soient interrompues.

L'analyse fractographique de la partie correspondante à l'arrachement final montre des cupules semblables à celles observées sur la totalité de la surface du faciès de rupture obtenu à l'air (sans effet d'hydrogène), et sont donc caractéristiques d'une rupture purement mécanique. En revanche, l'examen microfractographique du reste du faciès (environ 85%), met clairement en évidence une fissuration fragile prédominante dont les caractéristiques microfractographiques sont variées. Nous nous attacherons dans ce qui suit à décrire les caractéristiques micro-fractographiques associées à de telles conditions d'essai et de ressortir les similitudes qui peuvent apparaître avec la rupture fragile obtenue à 77 K.

Tout d'abord, nous allons présenter la morphologie de la fissuration en précisant les différents détails cristallographiques accompagnant chaque mode observé.

d. 1- Fissuration fragile à caractère intergranulaire

L'examen micro-fractographique de l'ensemble du faciès de rupture montre une rupture fragile majoritairement intergranulaire, (Fig.IV.21). Les grains sont très évidents, bien découpés avec des surfaces lisses contenant le plus souvent des traces de plasticité qui indiquent qu'un certain écoulement plastique a pris place en cours du processus de fissuration (Fig.IV.22). De nombreuses fissures secondaires intergranulaires sont également observées. Cette décohésion le long des joints de grains semble indiquer un affaiblissement de la résistance de ces derniers (réduction de leur énergie de cohésion) par la diffusion d'hydrogène résultant de telles conditions.

Au regard des observations faites sur le P900 fragilisé à 77 K, nous remarquons que la rupture change nettement d'un mode globalement transgranulaire par clivage associée occasionnellement à des fissures secondaires (cas du P900 fragilisée à 77 K), à un mode globalement intergranulaire fragile avec la présence de nombreuses fissures secondaires. Ceci montre que le mécanisme qui agit dans les deux cas est différent.

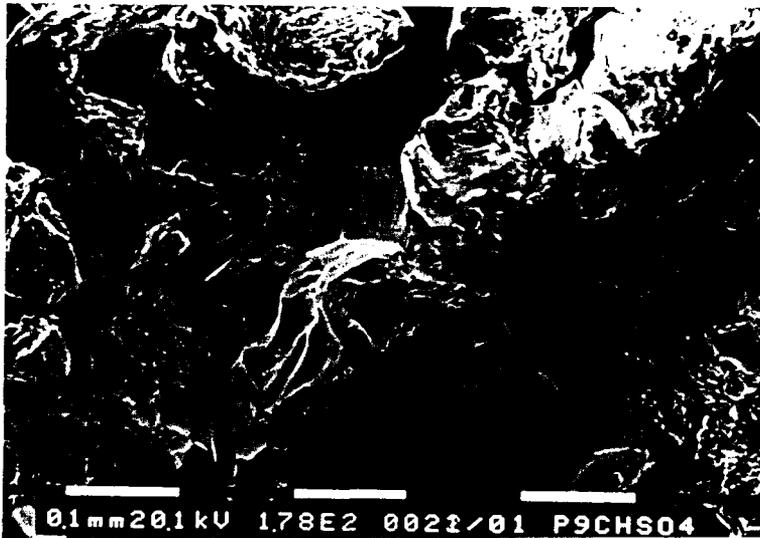


Fig.IV.21. Microfractographie montrant une fissuration fragile intergranulaire.
(Microfractograph showing brittle intergranular fracture).



Fig.IV.22. Présence de traces de glissement associées à la rupture fragile intergranulaire. (Presence of slip trace associated to the intergranular brittle fracture).

d. 2- Mise en évidence d'une fissuration pseudo-intergranulaire

Hormis la fissuration intergranulaire, l'analyse micro-fractographique à une échelle très fine de l'ordre du micron nous a permis de s'apercevoir que certains joints de grains ne sont pas lisses et présentent des traces de plasticité de deux natures :

- soit des lignes de glissement consécutives à la rupture émergeant sur ces joints de grains ou/et un écoulement plastique ressemblant à des vagues (Fig.IV.23 : a,b). Ces observations suggèrent que la déformation plastique a joué un rôle dans le processus de fissuration

- soit des micro-facettes de clivage montrant que la rupture a procédé par un mécanisme discontinu bien que la contrainte soit monotone (ce type de rupture a été défini par Magnin comme étant du pseudo intergranulaire). Ces microfacettes sont régulièrement espacées d'environ $(1 + 2) \mu\text{m}$, couvrant toute la largeur du joint de grain ($15 \mu\text{m}$) (Fig.IV.24).

Cette fissuration à caractère pseudo-intergranulaire n'est observée que d'une manière occasionnelle. En effet, ce genre de faciès ne constitue qu'une très faible partie de la surface fragile examinée, et représente environ 5% du nombre total des joints observés, alors que la plus grande partie de la surface fragile est purement intergranulaire. Il semble que ces micro-facettes soient surtout observées sur des joints de grains inclinés dans le prolongement des fissures secondaires les plus profondes qui émergent dans la fissure principale. Dans ces cas, la jonction entre ces fissures secondaires et la fissure principale se fait par un processus de micro-clivage au voisinage du joint. Notons que ce type de fissuration a été déjà observé par Magnin et al [39,40] sur l'alliage 600 (NC15Fe) en traction lente dans un milieu primaire à 360°C respectivement sous 1 et 20 bar d'hydrogène.



a)

b)

Fig.IV.23. Observations en microscopie électronique à balayage : a) émergence de lignes de glissement sur un joint de grain, b) écoulement plastique sur un joint de grain. (S.E.M observations: a) emergence of slip bands on grain boundary; b) plastic collapse on grain boundary).



Fig.IV.24. Observations en microscopie électronique à balayage de microfacettes de clivage au voisinage du joint de grains.
(S.E.M observations showing cleavage microfacets near grain boundaries).

d. 3- Fissuration localement transgranulaire

Bien que la fissuration demeure essentiellement intergranulaire, l'analyse micro-fractographique à une échelle fine a mis également en évidence la présence d'une fissuration transgranulaire fragile. Cette fissuration est localisée sur plusieurs endroits de la surface fragile et s'étale au plus sur deux grains, et de ce fait ne remet pas en cause le caractère intergranulaire prédominant de la fissuration. Par contre, elle constitue une preuve supplémentaire attestant que le mécanisme met en jeu plusieurs modes de fissuration.

d. 3. 1- Fissuration cristallographique suivant des facettes primaires {100} séparées par des rivières

Ce type de fissuration révèle un aspect cristallographique montrant des facettes primaires clivées et assez étendues approximativement perpendiculaires à l'axe de sollicitation. Ces dernières sont plates, parallèles et séparées par des rivières fines et dépourvues de toute présence de micro-facettes secondaires (Fig.IV.25). La cristallographie de cette rupture a été confirmée par les figures d'attaque produites sur ces facettes. En effet, bien qu'on ne distingue malheureusement pas les quatre facettes {111}, la forme carrée des figures d'attaque, parallèle à ces facettes primaires permet d'indiquer que ces plans de rupture sont du type {100} et que la direction locale de propagation indiquée par la coalescence des rivières est $\langle 100 \rangle$.

Nous attirons l'attention sur la nette transition d'une fissuration cristallographique {111} avec une direction locale de propagation $\langle 110 \rangle$ pour l'acier P900 fragilisé à 77 K à une fissuration {100} avec une direction locale de propagation $\langle 100 \rangle$ pour l'acier fragilisé par l'hydrogène.



Fig.IV25. Aspect des facettes primaires clivées et séparées par des rivières.
(Aspect of cleaved primary facets separated by rivers).

d. 3 . 2- Fissuration transgranulaire discontinue

Hormis la fissuration transgranulaire composée de (FP) séparées par des rivières, on s'aperçoit également que certaines facettes d'apparence fragile sont caractérisées par une micro-fissuration discontinue à l'échelle du micron, représentée par des stries caractéristiques d'une localisation de la plasticité lors de la propagation (Fig.IV.26). Ces stries sont perpendiculaires à la direction de propagation et peuvent être attribuées à des marques d'arrêt de la fissure ou/et à l'émergence de bande de glissement qui l'émoussent. Notons également la présence de fissures secondaires profondes généralement perpendiculaires au front de fissure. Ces détails micro-fractographiques sont semblables et caractéristiques d'une fissuration transgranulaire par CSC de matériau de structure CFC.



Fig.IV.26. Fissuration fragile transgranulaire discontinue.
(Discontinuous brittle transgranular fracture).

d. 3. 3 - Fissuration cristallographique sur les plans {100} sans rivière

Les grains identifiés donnant ce type de fissuration cristallographique peuvent être décrits de la même façon que ceux formés par des facettes primaires séparées par des rivières. La seule différence qui ressort est l'absence des marches causées par l'absence des rivières. Ces facettes apparaissent occasionnellement près du bord de l'éprouvette, plates et approximativement perpendiculaires à l'axe de l'effort, indiquant que la fissuration s'est produite globalement suivant un mode de rupture normale. Ces facettes correspondent à la taille de grain et présentent de fine traces de plasticité .

La cristallographie de la rupture à été également identifiée grâce à la méthode des figures d'attaque. A ce propos, les figures IV.27a, 27b présentent des exemples de figures d'attaque produites sur l'acier P900. Elles montrent d'une part des figures d'attaque formées par quatre plans {111} indiquant que le plan de fissuration est du type {100}, et d'autre part des figures d'attaques en forme d'étoile formées par huit faces {211} dont quatre paires de ces faces s'intersectent le long de direction $\langle 210 \rangle$. Les deux axes long de telles étoile correspondent alors aux deux directions $\langle 100 \rangle$ contenues dans le plan {100} de fissuration.



a)



b)

Fig.IV.27. Fissuration transgranulaire par clivage le long des plans $\{100\}$ identifiée à l'aide des figures d'attaque : a) figures d'attaque à base carré b) figures d'attaque en forme d'étoile. (Transgranular cleavage fracture on $\{100\}$ planes identified by attack pitting method: a) square shape pits b) star shape pits).

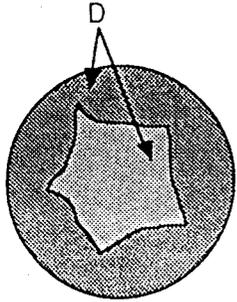
Au vu de l'ensemble des résultats, il ressort clairement que la diminution des propriétés de ductilité (Allongement à rupture, striction) est due à la susceptibilité de la phase austénitique chargée en azote aux effets d'hydrogène. En effet, plusieurs modes de fissuration liés à la pénétration de l'hydrogène ont été identifiés (clivage, pseudo-clivage, fissuration discontinue, intergranulaire, pseudo-intergranulaire).

La rupture fragile observée dans de telles conditions (traction sous polarisation cathodique sur une éprouvette préchargée cathodiquement pendant 72 heures) laisse à penser que des quantités importantes d'hydrogène ont pu pénétrer dans le matériau, causant ainsi, une accélération de la propagation des fissures. Cependant, au vu des résultats cités auparavant (essai sous polarisation cathodique et essai à l'air sur une éprouvette préchargée), il semble que l'hydrogène ne peut entrer suffisamment dans le matériau et donc éventuellement le fragiliser sans qu'il y ait auparavant un défaut le lui permettant. Dans le cas présent, l'orientation des joints de grain et des bandes de glissement perpendiculairement à l'axe de sollicitation (assisté par un chargement en hydrogène préalable) semble réduire le temps d'amorçage en présence d'hydrogène et favorise ainsi une plus grande pénétration de ce dernier. Il est donc possible de conclure que la fissuration dans de telles conditions est le résultats d'un effet de synergie entre contrainte/déformation et les effets d'hydrogène.

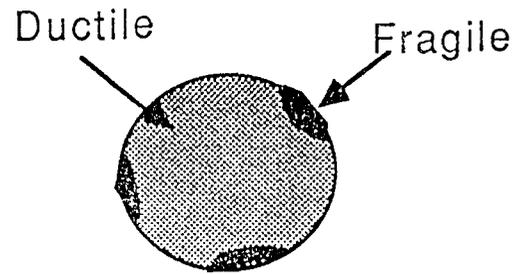
IV. 4- Discussions

Avant d'entamer la discussion, nous avons juger utile de résumer les principaux résultats selon une illustration schématique montrant l'effet des différentes conditions d'essai sur l'endommagement surfacique et volumique afin de faire le lien avec le(s) mécanisme(s) mis en jeu (Fig.IV.28).

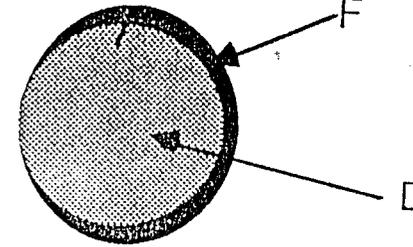
Cas "a"



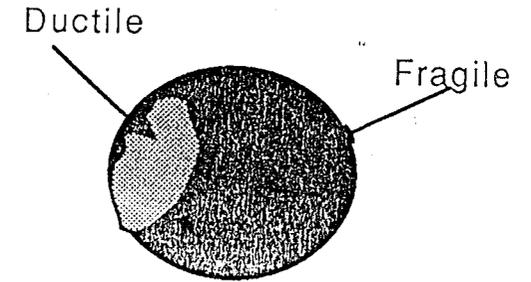
Cas "b"



Cas "c"



Cas "d"



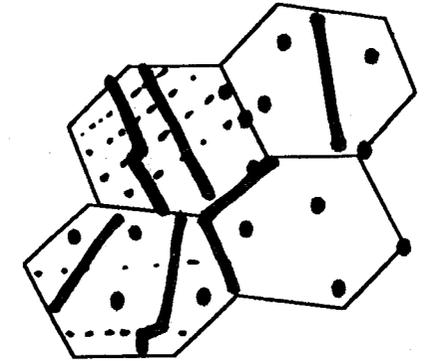
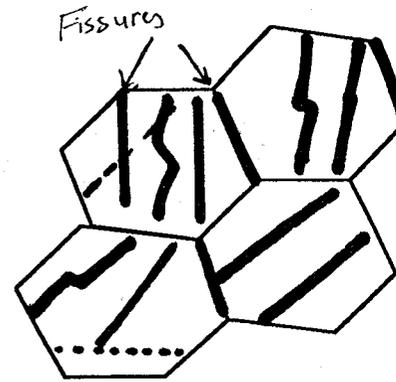
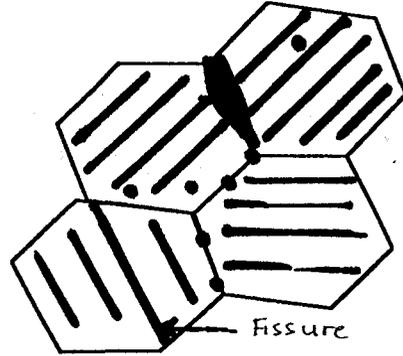
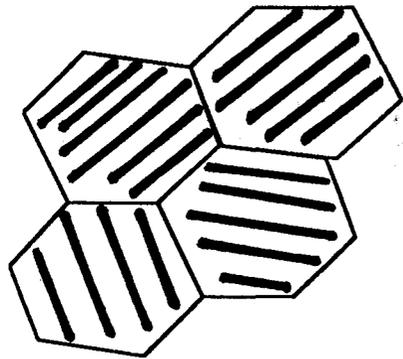
Cas " a, b, et c" striction importante

Légère striction
Fragilité en volume

Lèvres de cisaillement

Fragilite localisée près du bord
(< à 3 grains)

Couronne fragile (< 100 µm)



Grains plastifiés,
Glissement bien réparti

Plasticité bien répartie
Fissures étroites, piqûres de corrosion

Plasticité à peine visible
Nombreuses fissures

plasticité mal répartie
Nombreuses fissures

FIG.IV.28. Illustration schématique résumant l'effet des conditions d'essai sur l'endommagement volumique et surfacique

122

***- Cas c : rôle du préchargement cathodique précédant la déformation**

Compte tenu des durées de préchargement cathodique et de la valeur des coefficients de diffusion de l'hydrogène dans une matrice austénitique ($D \approx 10^{-12}$ cm/s) extraite de la littérature, la distance de diffusion parcourue l'hydrogène monoatomique dans une direction "x" au bout d'un temps "t" :

$$x^2 = 4 D t$$

Une simple application numérique montre que la distance parcourue par le l'hydrogène monoatomique est de 10 μm . Compte tenu du fait que nous avons observé certains grains complètement clivés (sans discontinuité), ce ci montre que l'hydrogène peut parcourir une distance de la taille de grain (80 μm). Ceci laisse a penser que dans de telles conditions, en absence de contrainte, la répartition de l'hydrogène semble être homogène dans les grains de la surface mais la profondeur de pénétration est limitée à cause de la faible diffusivité de l'hydrogène dans les matériaux CFC. Le matériau obtenu peut être vu comme un substrat de P900 revêtu de grains riches en hydrogène.

- En effet, l'hydrogène adsorbé et/ou absorbé affaiblit les liaisons interatomiques en surface (Fig.IV.29a) et diminue l'énergie de cohésion des premiers grains en surface.

- Sous contrainte, une fissure par clivage intervient immédiatement lorsque la contrainte locale " σ " dépasse la contrainte de cohésion maximale " σ_m " (des grains riches en hydrogène) diminuée par l'accumulation d'hydrogène (Fig.IV.29b) et s'arrête dans le cas contraire. A ce niveau, en tête de fissure une petite zone plastique se forme.

- la couche externe riche en hydrogène va servir de source pour alimenter la zone plastique en hydrogène. L'effet de triaxialité de contrainte en fond de fissure va contribuer à réactiver la propagation de la fissure.

- Dès que la contrainte locale dans la petite zone plastique dépasse la contrainte de cohésion du substrat, celle-ci se propage et s'arrête dans le cas contraire. La répétition de cette séquence dans le temps permet d'expliquer la discontinuité de la propagation.

- En revanche, dès que la fissure atteint le grain voisin pauvre en hydrogène, la contrainte locale ne peut pas atteindre la contrainte de cohésion et le substrat se déforme plastiquement. La rupture est régie par un mécanisme de germination-croissance et coalescence des cupules

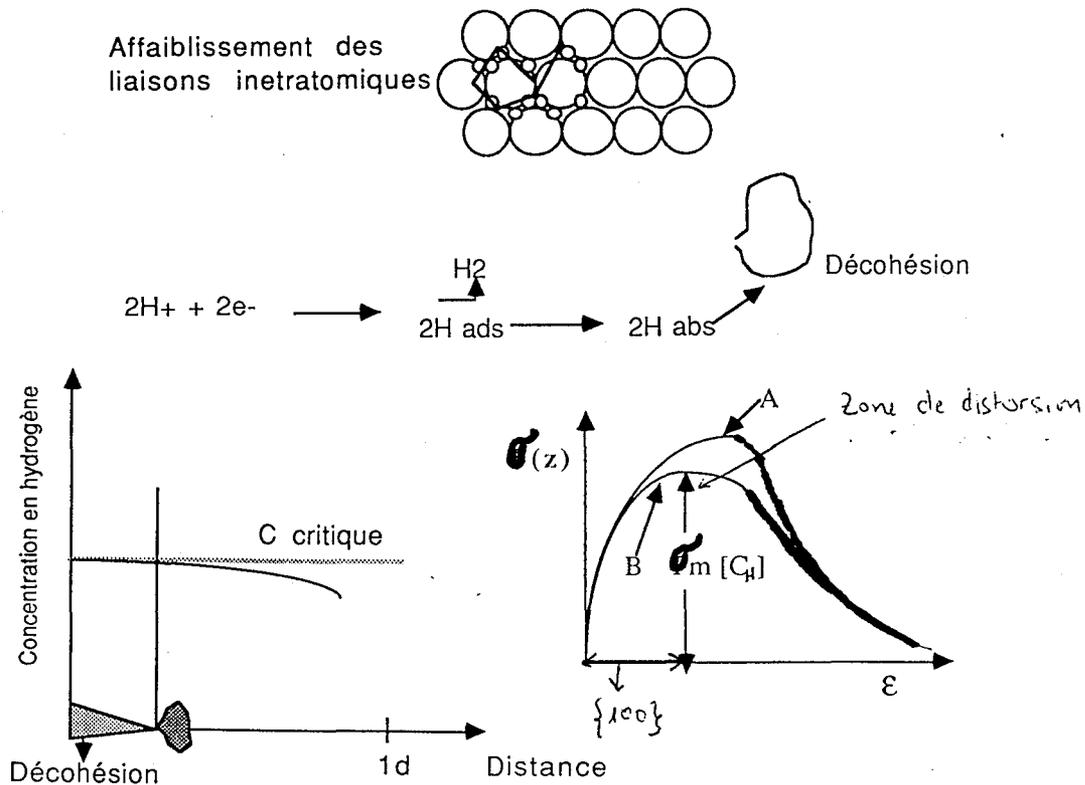


Fig.IV.29. Illustration schématique de l'abaissement de la force de cohésion du réseau en présence d'hydrogène.

(Schematic illustration explaining the effect of hydrogen on cohesive strength lattice).

*- Cas d : traction sous polarisation cathodique d'une éprouvette préchargée

De nouveau, le matériau peut être considéré comme un substrat de P900 revêtu d'une couche très riche en hydrogène.

1- En absence de contrainte, et en raison du temps du préchargement cathodique et de la faible diffusivité de l'hydrogène dans le réseau CFC, l'hydrogène diffuse en faible quantité à l'intérieur du matériau. En effet, de quantités importantes en hydrogène adsorbé et/ou absorbé peuvent être concentrées localement en surface, et par conséquent diminuent les forces de liaisons inter-atomiques des premières couches surfaciques (Fig.IV.30a).

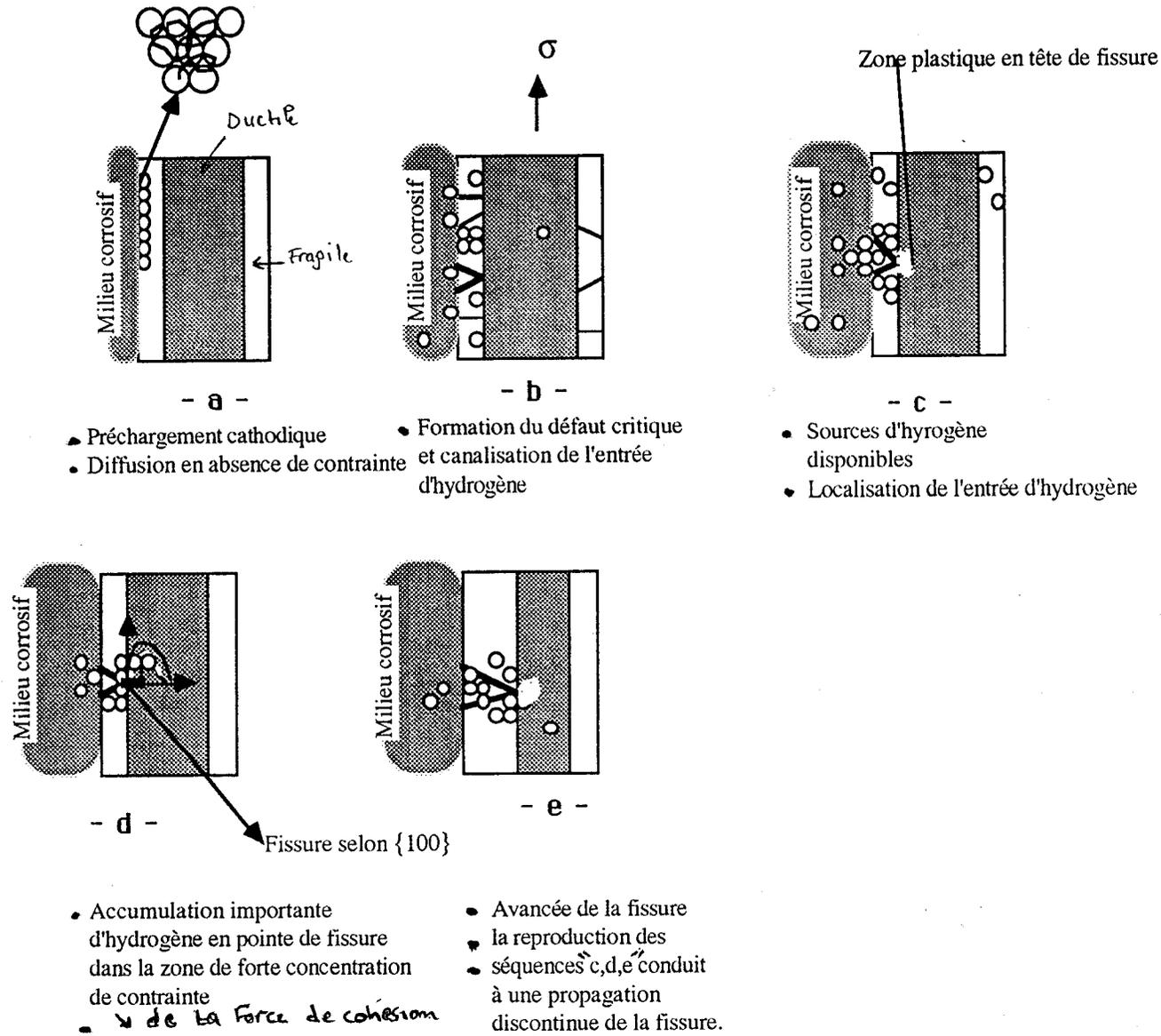


Fig.IV.30. Illustration schématique expliquant la discontinuité de la fissuration sur les plans $\{100\}$.

2- Sous contrainte, une très forte augmentation et accumulation de la concentration en hydrogène devienne possible dans les endroits de forte distorsions du réseau et au niveau des joints de grain (court circuit de diffusion), ce qui conduira à un rupture fragile par décohésion sur des distances très courtes. Le préchargement cathodique permet ainsi une réduction du temps d'amorçage et une accélération de la formation d'un défaut critique. Ce dernier va canaliser l'entrée de l'hydrogène et faciliter ultérieurement sa pénétration et sa diffusion en volume (Fig.IV.30b).

3- A cet instant, le substrat se trouve en contact du milieu hydrogéné (réaction de réduction des protons) et de la couche riche en hydrogène. En tête de fissure, une petite zone plastique (on retrouve ici l'influence de l'azote sur la taille de la zone plastique) se forme dans laquelle se trouvent localisées de nombreuses bandes de glissement et devient lieu privilégié de concentration d'hydrogène. Cette localisation de la plasticité permet une localisation de la réaction de réduction des protons et donc une localisation de l'entrée d'hydrogène (Fig.IV.30c).

4- Une accumulation importante d'hydrogène en pointe de fissure dans les zones de forte concentration de contrainte (régions de fortes distorsion dues à la déformation du réseau par les fortes teneurs d'azote et à la contrainte mécanique) ou aux joints de grain devient possible d'autant plus que l'on dispose d'un riche stock d'hydrogène (hydrogène provenant de la réaction cathodique, des piqûres de dissolution cathodique et de la couche riche en hydrogène), ce qui abaisse localement les forces de cohésion du réseau (Fig.IV.30d).

5- Une rupture fragile intervient en avant du fond de fissure et se propage dans le prolongement de la fissure initiale lorsque la contrainte locale " σ " dépasse la contrainte de cohésion maximale " σ_m " diminuée par accumulation d'hydrogène dissous dans les zones de fortes distorsions par diffusion sous contrainte. Notons que cette " σ_m " décroît lorsque la concentration locale en hydrogène augmente selon la relation :

$$\sigma_m = \sigma_{m^0} - \alpha [c]$$

où $[c]$ est la concentration en hydrogène, α désigne la décroissance linéaire de σ_m avec $[c]$; et σ_{m^0} la contrainte de cohésion maximale du réseau en absence d'hydrogène [28].

- La reproduction des séquences (3,4,5) dans le temps conduit ainsi à une propagation discontinue selon les plans {100} (Fig.IV.30e).

- On comprend d'autre part aisément que si le joint de grain se situe dans le plan de rupture macroscopique, perpendiculaire à l'axe de traction, la rupture fragile a de forte chance de tourner à l'avantage de la rupture sur le joint, d'autant plus que ce dernier constitue un court circuit de diffusion et favorise donc une décohésion.

***- Cas b : rôle d'une polarisation cathodique pendant l'essai de traction**

Dans ce cas la force est appliquée sur un matériau homogène. Dès les premiers pourcents de déformation, la plasticité se traduit par la formation de nombreuses bandes de glissement. Compte tenu du faible temps d'exposition, la quantité d'hydrogène déchargée par la réaction cathodique est relativement faible pour se localiser sur toutes les bandes formées. Seules les bandes les plus déformées seront les lieux privilégiés de concentration d'hydrogène. Ainsi, la réaction de réduction des protons sera uniquement localisée aux niveaux des bandes les plus déformées, ce qui permet une forte localisation de l'entrée d'hydrogène. A cet instant, l'hydrogène diffuse vers les zones dilatées du réseau considérées de forte concentration de contrainte. Ceci permet une localisation et une augmentation importante d'hydrogène dans ces zones, ce qui abaisse les forces de cohésion du réseau. Une fissure fragile peut ainsi s'amorcer et se propager lorsque la contrainte locale " σ " dépasse la contrainte de cohésion maximale " σ_m " de la zone riche en hydrogène et s'arrête dans le cas contraire où elle ne le serait plus.

Conclusions

A la lumière de l'ensemble des résultats macro-microscopiques de l'endommagement, nous avons pu nous rendre compte que :

1- la phase austénitique très chargée en azote est sensible à la fragilisation par l'hydrogène à divers degrés, dépendant fortement des conditions d'essais.

2- même si les résultats macroscopiques semblent insensibles aux effets d'hydrogène, ils se montrent cependant microscopiquement sensibles. En effet, la légère restriction des propriétés de ductilité peut être corrélée à la formation des fissures fragiles peu profondes liées à la faible diffusivité de l'hydrogène dans la structure CFC.

3- les conditions de préchargement en hydrogène semblent être insuffisantes pour introduire suffisamment d'hydrogène en volume. Leur rôle se manifestent cependant dans la réduction du temps d'amorçage et la création du défaut critique.

4- la phase austénitique peut être sévèrement fragilisée, si l'hydrogène pénètre sur une longueur suffisante par rapport au diamètre de l'éprouvette. La forte pénétration d'hydrogène en volume semble être subordonnée par la formation d'un défaut critique (formation rapide de fissures en surface).

5- la fragilisation par l'hydrogène dans les aciers FeCrMnN se manifeste suivant plusieurs modes de fissuration. Bien que certaines caractéristiques fractographiques apparaissent similaires à celles observées à basse température, l'analyse microfractographique montre que la cristallographie de la fissuration est complètement différente (Fissuration $\{100\} \langle 100 \rangle$ assistée par l'hydrogène/ $\{111\} \langle 110 \rangle$ assistée par abaissement de température : 77K). Bien que les mesures de quantités d'hydrogène dissous ne soient pas faites, ceci pourrait laisser penser que des quantités importantes d'hydrogène ont pu diffuser sous contrainte dans des régions de fortes concentration de contrainte. Un mécanisme de décohésion peut ainsi être responsable de cette fissuration selon les plans $\{100\}$.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES DU CHAPITRE IV

1- G.R Caskey, Jr

Fractography of hydrogen-embrittlement Iron-Chromium-Nickel alloys
Petzow, Paris, Albrecht, Mc Call, eds: Microstructural Science, Vol.9, 1981, p 413

2- H. E. Hänninen and T. J. Hakkarainen

Fractographic characteristic of a hydrogen-charged AISI 316 type austenitic stainless steel, Metallurgical Transactions, Vol. 10A, 1979, p 1196

3- C. L. Briant

Hydrogen assisted cracking of type 304 stainless steel, Metallurgical Transactions, Vol 10A, 1979, p 181

4- N.Takano, K. Kidani, Y. Hattori and F.Terasaki

Fracture surface of hydrogen embrittlement in iron single crystals, Scripta Metallurgica, vol.29, 1993, p 75

5-T.S Sudarshan, D.P Harvey, T.A Place

Mechanistic similarities between hydrogen and temperature effects on the ductile- to brittle transition of stainless steel, Metallurgical Transactions, Vol.19A, 1988, p 1547

6- J. Masounave, J. I. Dickson et J. -P Baïlon

Chapitre 9 : La fractographie; Rupture, Contrôle, Sûreté, édité par J. Masounave, C. Bathias et J. I. Dickson, 1985, p327

7- J.I Dickson, J. -P Baïlon, J. Masounave,

Rupture fragile, partie II: Rupture intergranulaire, *ibid* 6, p 93

8- L Coudreuse

Fragilisation par l'hydrogène et corrosion sous contrainte, Corrosion Sous Contrainte : Phénoménologie et Mécanismes, Les Editions de Physique, eds. D. Desjardins et R. Oltra, (1992), p 203

9- H. E. Hänninen, T. J. Hakkarainen, and P. Nenonen

Effect of ageing on embrittlement and microstructure in hydrogen charged thin specimens of austenitic stainless steel, Hydrogen Effect On Material Behavior, Edited by Neville R. Moody and Anthony W. Thompson, The minerals, Metals & Material Society, 1990, p 575

10- S. Tikkamäki and H. E. Hänninen

On the synergistic effects of hydrogen embrittlement and temper embrittlement in a 9% Ni steel, *ibid* 9, p 811

11- J. Chêne et A.M Brass

Intéraction Hydrogène- Métal en relation avec le processus de corrosion sous contrainte, *ibid* 8, (1992), p 159

12- M. Habashi

Méthodes d'essais liées à la fragilisation par l'hydrogène, *ibid* 8, (1992), p 489

13- H.K. Birnbaum

Mechanisms of hydrogen related fracture of Metals, *ibid* 9, 1990, p 639

14- A. W. Thompson

The behaviour of sensitized 309S stainless steels in hydrogen, Materials Science and Engineering, Vol. 14, 1974, p 253

- 15- M. R. Louthan, G. R Caskey, J. A Donovan, and D. E. Rawl**
Hydrogen embrittlement of metals, *Materials Science and Engineering*, Vol. 10, 1972, p 357
- 16- C. D. Beachem**
A new model for hydrogen -assisted cracking (Hydrogen "Embrittlement"), *Metallurgical Transactions*, Vol. 3A, 1972, p 437
- 17- D. G Ulmer and C. J. Altstetter**
Mecanism for hydrogen of austenitic stainless steels, *ibid* 9, 1990, p 421
- 18- D. Eliezer, D. G. Chakrapani, C.J Altstetter, and E. N. Pugh**
The influence of austenite stability on the hydrogen Embrittlement and stress-corrosion cracking of stainless steel, *Metallurgical Transactions*, Vol. 10A, 1979, p 935
- 19- A. J. West and M. R. Louthan**
Dislocation transport and hydrogen embrittlement, *Metallurgical Transactions*, Vol. 10A, 1979, p 1675
- 20- J. -B Vogt**
Influence de l'azote interstitiel et de la température sur les structures de dislocations obtenues par fatigue d'aciers inoxydables austénitiques, Thèse de Doctorat ès Sciences Physiques, Université de Lille (1991)
- 21- S. Degallaix**
Rôle de l'azote interstitiel et combiné sur le comportement en plasticité cyclique et monotone d'aciers inoxydables austénitiques Z2 CND 17-12, Thèse de Doctorat ès Sciences Physiques, Université de Lille (1986)
- 22- A. G. Hartline, III**
The effect of nitrogen addition upon the pitting resistance of 18%Cr,18%Mn stainless steel, *Metallurgical Transactions*, Vol. 5, 1974, p 2271
- 23- R. M Magdowski and M. O. Speidel**
Stress corrosion cracking of hight nitrogen steels, " High Nitrogen Steels HNS 88" édité par J. Foct and A. Hendry, *The Institut of Metals*, 1989, p 251
- 24- C. A. Zapffe**
Newmann bands and planar-pressure theory of hydrogene embrittlement, *J.I.S.I*, Vol. 154, N°2, 1946, p 129
- 24- N. J. Petch**
The lowering of fracture stress due to surface adsorption, *Phil. Mag.* Vol. 1, 1956, p 331
- 26- H. H Uhlig**
Proc of " Fundamentale Aspect of Stress Corrosion Cracking", R. W Staehle, A. J. Forty, D. V Rooyen, Eds, NACE, Houston, 1969, p 86
- 27- A. R. Troiano**
The role of hydrogen and other interstitials in the mechanical behavior of metals, *Trans. ASM*, N°52, 1960, P 54
- 28-R. A. Oriani**
Hydrogen-The Versatil Embrittler, *Corrosion-NACE*, Vol. 43, N°7, 1987, p 390

- 29- **W. W. Gerberich, P. G. March, J. Hoehn, S. Venkataraman, H. Huang**
Hydrogen/plasticity interaction in stress corrosion cracking, Proc of "Corrosion-Deformation Interactions", Les Editions de physique, T. Magnin, J. M. Gras Eds, Fontainebleau, 1992, p 325
- 30- **H.K Birnbaum and P. Sofronis**
Hydrogen-enhanced localized plasticity- a mechanism for hydrogen related fracture, Materials Science and Engineering, A176, 1994, p 194
- 31- **M. Hasmimoto et R. J. Latanision**
Met. Trans. ,19A, 1988, p 2789
- 32- **P. Bastien et P. Azou**
CR Acad, Sciences, 232, 1951, 1545
- 33- **H.K. Birnbaum**
Hydrogen effects deformation-relation between dislocation behavior and the macroscopic stress-strain behavior, Scripta Metallurgica, Vol. 31, N°2, 1994, p 149
- 34- **A. N. Stroh**
Adv Phys. 6, 1957, p 418
- 35- **S. P Lynch**
Environmentally cleavage-like cracking in aluminium alloys, ibid 26, p 401
- 36- **S. P Lynch**
Environmentally assisted cracking overview of evidence for adsorption-induced localised-slip process, Acta Metallurgica, Vol. 36, 1986, p 2639
- 37- **S. P Lynch**
Solid-Metal-induced embrittlement of aluminium alloys and other materials, Materials Science and Engineering, A108, 1989, p 203
- 38- **T. Tabata, H. K. Birnbaum**
Direct observations of hydrogen enhanced crack propagation in Iron, Scripta Metallurgica, Vol. 18, 1984, p 231
- 39- **R. Rios**
Etude des mécanismes de corrosion sous contrainte de l'alliage 600 (NC15Fe) dans l'eau à haute température, Thèse de Doctorat, Université de Lille (1993)
- 40- **T. Magnin**
Proposition d'un modèle de fissuration en corrosion sous contrainte applicable à l'alliage 600 en milieu PWR, Revue de métallurgie, Février 1993, p 291

CONCLUSION
GENERALE

CONCLUSION GENERALE

Le développement croissant d'aciers inoxydables austénitiques à très forte teneur en azote (dépassant largement la solubilité limite) est lié au caractère très prometteur de leurs comportements mécaniques et physico-chimiques. L'introduction de telles teneurs en azote dans ces aciers permet d'augmenter considérablement la résistance mécanique (en traction, en fatigue..), la ténacité et les propriétés de résistance à la corrosion (généralisée, localisée, par piqûre,..). Cependant, des teneurs en azote trop élevées peuvent affecter la ténacité et changer radicalement le comportement mécanique de ces aciers.

Le présent travail a été entrepris dans le but d'étudier la fractographie de la rupture fragile obtenue par abaissement de température ou par fragilisation par l'hydrogène d'une nuance austénitique Fe18%Cr18%Mn0.9%N dénommée P900. L'effet d'un abaissement de température ou d'un environnement agressif hydrogéné a été analysé à travers :

- la microstructure
- l'évolution du comportement mécanique
- l'endommagement surfacique (allure et répartition du glissement) et les caractéristiques d'amorçage (amorçage des microfissures)
- l'endommagement volumique (analyse fractographique de la rupture)

L'étude de ces différents facteurs nous a permis de dégager les modifications que peut apporter l'introduction d'une forte teneur en azote sur la microstructure, le comportement mécanique et le(s) processus d'endommagement.

Le durcissement par addition d'une forte concentration d'azote en solution solide dans la phase austénitique se traduit par une augmentation de la dureté. Le matériau reste entièrement austénitique et monophasé, ce qui montre le caractère stabilisateur d'une forte teneur en azote.

En cours de cyclage, le P900 présente des évolutions et des niveaux de contrainte très différents selon la température d'essai. A température de la salle d'essais, comparé aux aciers 316L(0.03%N) et 316LN (0.25%N), le P900 montre des niveaux de contrainte supérieurs et présente un adoucissement continu quelle que soit l'amplitude de déformation imposée. Le glissement apparait homogène et bien réparti à tous niveaux de déformation. L'amorçage des fissures est en général transgranulaire suivi d'une propagation surfacique qui s'effectue par croissance et coalescence des fissures. L'interaction et la propagation de l'ensemble de fissures engendrent une ou deux fissures qui se propage (nt) en volume et mène(nt) à la rupture finale. le fait que les durées de vie soient du même ordre de grandeur que celle des aciers 316LN mais avec des niveaux de contrainte supérieurs, il est raisonnable de conclure que l'acier P900 présente une meilleure résistance à la fatigue.

En revanche, à la température de l'azote liquide, le comportement cyclique du P900 dépend de l'amplitude de déformation plastique. La répartition du glissement est hétérogène avec un amorçage en surface globalement intergranulaire quelle que soit l'amplitude de déformation. De plus, le P900 ne montre aucun effet bénéfique sur la résistance à la fatigue à 77 K qui se traduit par des durées de vie courtes. L'approche macro-microscopique met clairement en évidence que ce comportement est lié à l'existence d'une transition ductile fragile. Contrairement à la température de la salle d'essais, les microfissures (taille < 80 μm) qui se forment dès les 10 premiers % de la durée de vie ne peuvent évoluer en surface car elles servent souvent à amorcer une rupture fragile qui caractérise cet acier.

La rupture fragile obtenue à basse température est de nature variée (transgranulaire et intergranulaire) mais reste majoritairement transgranulaire, et ce quel que soit le type de chargement effectué. L'examen microfractographique de la rupture transgranulaire nous a permis de mettre en évidence une fissuration cristallographique prédominante sur des plans {111} avec et sans rivière. Les facettes clivées sans rivière ont été identifiées comme étant du vrai clivage sur des plans {111}. Les facettes clivées qui présentent des rivières montrent un amorçage aux joints de grain et une propagation selon une direction locale $\langle 110 \rangle$. Trois types de fissurations cristallographiques ont été également identifiés :

- une fissuration cristallographique sur des plans {100} mais occasionnelle
- une fissuration cristallographique sur des plans {110} très rare
- une fissuration alternée sur un plan moyen {110}, formée par alternance de deux jeux de microfacettes cristallographiques {111}. Les fissures amorcées sur ces plans se propagent selon une direction locale de propagation $\langle 100 \rangle$.

Ce comportement fragile ne peut être attribué à une seconde phase puisque l'acier reste entièrement austénitique dépourvu de toutes traces de précipitation. Il ressort par ailleurs, que le clivage est associé à une déformation plastique restreinte comme le montre les valeurs des contraintes effectives. Une forte localisation de la déformation plastique entraînant la formation d'empilements conduit à une contrainte très élevée en tête d'empilement.

Nous avons également montré que l'acier P900 présente une sensibilité à la fragilisation par l'hydrogène, et ce pour des conditions favorisant sa pénétration en volume. Les conditions de préchargement semblent favoriser et accélérer la formation du défaut critique dans les bandes de glissement. La rupture fragile transgranulaire est observée avec et sans rivières, ou discontinue (lignes d'arrêt) sur des plans {100} avec une direction locale de propagation $\langle 100 \rangle$. Une fissuration alternée sur un plan moyen {110} a été occasionnellement observée

La traction du P900 dans le milieu corrosif sous polarisation cathodique conduit à une rupture fragile localisée en faible proportion. Deux modes de fissuration fragile ont été identifiés : transgranulaire discontinue (avec lignes d'arrêt) sur des plans {100} et intergranulaire. De même, il ressort que la faible restriction de l'allongement à rupture peut être corrélée à cette rupture fragile superficielle et localisée.

Seule la traction d'une éprouvette préchargée préalablement puis tractionnée sous polarisation cathodique conduit à une rupture fragile prédominante. Ceci montre d'une part, la sensibilité de l'acier P900 aux effets d'hydrogène et explique d'autre part, la restriction des propriétés de ductilité (allongement à rupture, striction). La rupture fragile obtenue est de nature variée (transgranulaire et intergranulaire) mais reste majoritairement intergranulaire. L'analyse microfractographique de la rupture a montré la présence d'une rupture pseudo-intergranulaire caractérisée par un processus de microclivage au

voisinage du joint de grain. De plus, elle a mis en évidence une rupture fragile cristallographique avec ou sans rivières sur des plans {100}, ou discontinue sur des plans {100} observée sur les parties transgranulaires. L'observation des lignes de glissement et d'arrêt de la fissure sur les facettes cristallographiques {100} conduit à proposer un mécanisme de décohésion pour interpréter la rupture fragile. Un cycle d'adsorption/absorption d'hydrogène sur quelques couches suivi de diffusion sous contrainte dans la petite zone plastique peut expliquer la propagation discontinue de la rupture fragile en prenant en considération le rôle d'un défaut critique.

Ainsi, la fragilisation par l'hydrogène du P900 est possible puisque la concentration critique d'hydrogène en volume est facilement atteinte en zone plastique de faible dimension due à la forte teneur en azote.

ANNEXE

DETERMINATION DES CONTRAINTES INTERNES
ET EFFECTIVES A PARTIR DES BOUCLES
D'HYSTERESIS OBTENUES EN FATIGUE
OLIGOCYCLIQUE

ANNEXE I

I- Contraintes internes et effectives cycliques

Au cours de ce travail et pour expliquer nos observations microscopiques, nous nous sommes permis d'émettre certaines hypothèses d'ordre mécanistique basées sur la mesure des contraintes internes et effectives à partir des boucles d'hystérésis enregistrées au cours du cyclage. Signalons tout d'abord, que notre objectif n'est pas de valider cette méthode mais de l'utiliser comme un moyen simple et rapide permettant une meilleure compréhension du comportement du matériau, étant donné que ces dernières renseignent sur les obstacles rencontrés par les dislocations et donc donnent des renseignements d'ordre microscopique, ce qui facilitera l'analyse des résultats mécaniques.

En effet, au cours du chapitre II et III, nous avons vu que la déformation macroscopique résulte du mouvement et de la multiplication des dislocations sous l'action d'une contrainte qui permet de vaincre les interactions s'opposant au déplacement des dislocations. Cette contrainte peut être divisée en deux composantes: la contrainte interne σ_i qui permet de franchir les obstacles à longue distance et la contrainte effective σ_{eff} qui permet de franchir les obstacles à courte distance [1]. Dans ce qui suit, nous étudierons brièvement les différentes méthodes de mesure des contraintes internes et effectives en abordant particulièrement le modèle de la boucle de Cottrell sur le quel est basé notre technique de mesure.

I. 1- Méthodes de mesure des contraintes internes et effectives

Sous sollicitation monotone, ces contraintes internes et effectives sont accessibles par des essais de relaxation de contrainte, entre autres de décharge incrémentale qui consiste à effectuer plusieurs décharges successives après l'entrée dans le domaine plastique. En effet, lorsque $(d\sigma/dt)$ est nulle la contrainte interne est atteinte et par différence avec la contrainte totale on obtient la composante effective (Fig. 1), [2]. Il existe aussi, celle de décharge continue visant à étudier la dépendance de la limite d'élasticité en fonction de la température ou de la vitesse de déformation [3]. Cependant, il apparaît que la détermination de ces contraintes est difficilement transposable dans le cas des sollicitations cycliques.

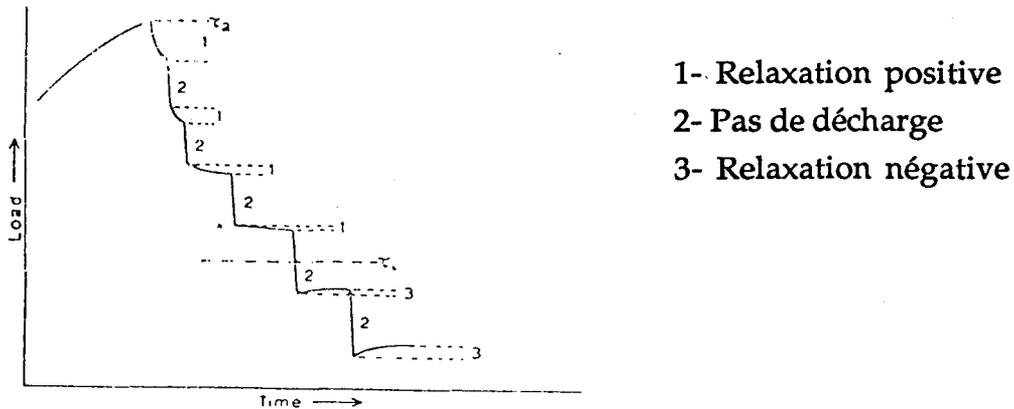


Fig.1. Diagramme Schématique montrant la détermination du niveau de contrainte interne par décharge incrémentale. (Schematic diagram showing incremental unloading and subsequent relaxation of specimen to located the internal stress level [2].

Dans notre travail, nous avons utilisé la méthode de Handfield-Dickson basée sur le traitement des boucles d'hystérésis enregistrées au cours du cyclage[4,5] puisque cette dernière ne nécessite pas l'interruption de l'essai.

I. 2-Détermination des contraintes internes et effectives à partir des boucles d'hystérésis.

En vue d'en extraire ces grandeurs au cours du cyclage, la boucle de Cottrell a servi de base aux mesures de Kuhlmann Wilsdorf et Laird [4,5,6]. La simplicité et la rapidité de cette méthode a poussé Handfield et Dickson à affiner cette technique en se basant toujours sur le principe de dépouillement des boucles d'hystérésis mais en tenant compte des "bouts"arrondis" (Fig.2).

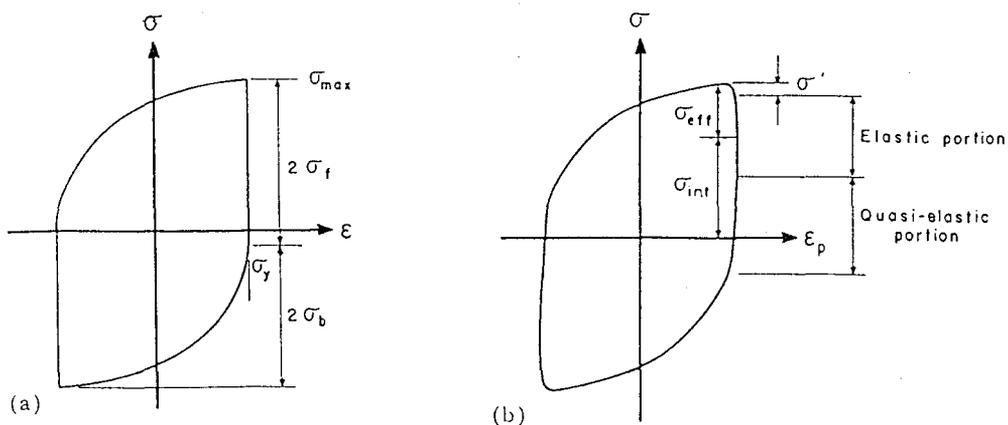


Fig.2. Comparaison schématique entre les techniques de K.Wilsdorf-C. Laird et Handfield-Dickson sur les deux possibilités d'interprétation de la forme des boucles d'hystérésis. Schematic comparison of KWLC and HD techniques and of the two possibilities of interpreting of the hysteresis loop shape [4]

Au cours du premier quart du cycle, la partie la plus élastique du matériau est déterminée puis reportée systématiquement sur les branches en traction et en compression des boucles d'hystérésis ultérieures, enregistrées en cours du cyclage. Deux points de décollement sont alors déterminés graphiquement pour chaque chargement. Ils correspondent aux points où la partie de la boucle d'hystérésis est distante de 0.5 mm de la pente élastique, ce qui correspond à un écart de déformation de 0.01%. Le milieu de la distance entre les points de décollement est réperé et l'écart de contrainte entre les deux points de décollement correspond à $2\sigma_{\text{eff}}$.

La valeur de contrainte repérée par σ' aux extrémités des boucles tient compte de la dynamique des dislocations lors de l'inversement du chargement (traction-compression et compression-traction) et des problème de digitalisation des boucles. Dans notre cas l'acier P900 présente des valeurs de σ' très inférieures aux valeurs des contraintes effectives et internes (σ_{eff} , σ_i). Ainsi la contrainte effective est mesurée comme étant égale à la différence entre le point de décollement supérieur et le milieu de cette portion élastique (Fig. 3). Ainsi la contrainte interne peut être obtenue par:

$$\sigma_i = \sigma - \sigma_{\text{eff}} - \sigma'$$

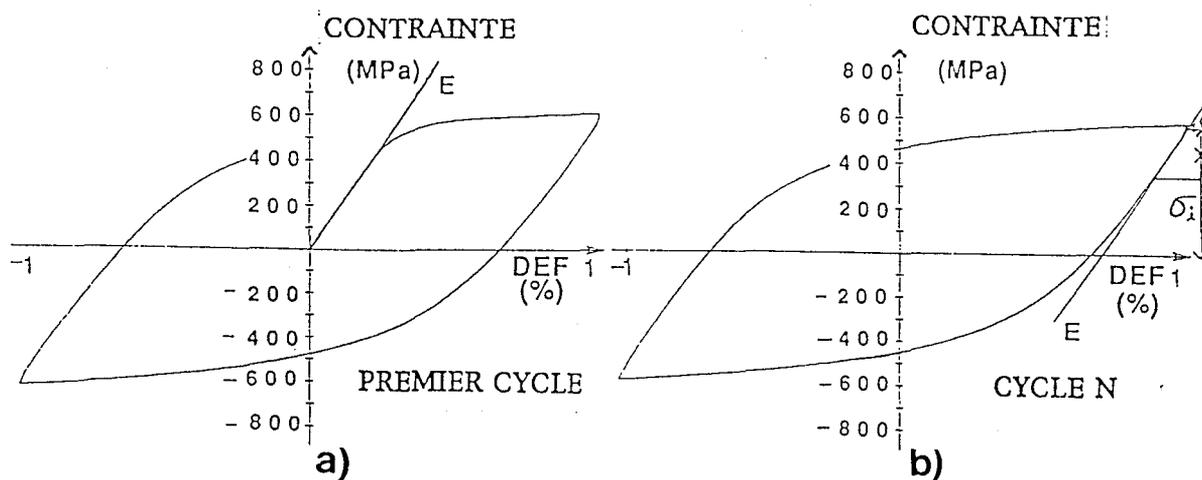


Fig.3. Détermination des contraintes internes et effectives par la méthode de Handfield- Dickson: a) détermination de la pente élastique sur le premier quart de cycle, b) détermination des points de décollement sur les boucles d'hystérésis. Determination of internal and effective stresses by the Handfield- Dickson method: a) determination of the elastic slope at the first quarter of cycle; b) determination of the offset points on the hysteresis loop.

Les différentes mesures effectuées sur les boucles obtenues à la fois à la température ambiante et à la température de l'azote liquide montrent clairement que l'acier P900 présente des valeurs de contrainte effectives très élevées et même nettement supérieures à celles des contraintes internes. A ce titre, le

tableau I donne quelques valeurs moyenne des contraintes effective déterminée par la même technique Handfield Dickson sur différents matériaux.

Tableau I. Valeurs de contraintes effectives obtenues par la méthode de Handfield Dickson à la température de la salle d'essais. (Values of effective stresses obtained by the Handfield-Dickson at room temperature).

Matériaux	σ effective moyenne (MPa)	$\Delta\varepsilon \sqrt{2}$ (%)
Fe18%Cr18%Mn0.9%N	360	1,25
Fe17%Cr13%Ni0.03%N [7]	115	1,25
Fe17%Cr13%Ni0.25%N [7]	156	1,25
X10CrMoVNbN12.1 [8]	159	0.8
Cuivre polycristallin [4]	82	0.40
Ni ₃ Ge (Monocristal)[5]	293	0.75

I. 3- Modèle basé sur la boucle de cottrell

Dans ce qui suit, nous allons examiner le modèle basé sur la boucle de Cottrell qui a servi de base de mesure des contraintes internes et effectives. Notons tout d'abord, que ce modèle ne tient pas compte de la consolidation. En effet, le montage rhéologique schématisé par la figure 4a reproduit exactement la boucle de Cottrell (Fig 4b).

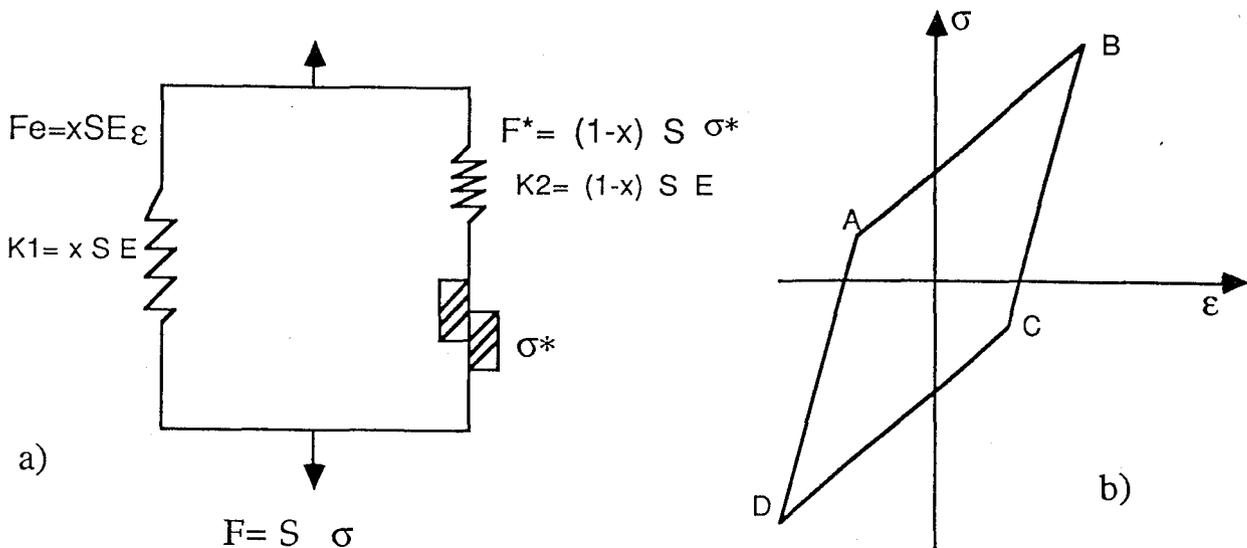


Fig.4. a) Modèle rhéologique de la boucle de cottrell, b) boucle de cottrell. 'Rheologic Model of cottrell loop; b) Cottrell loop.

Dans ce montage "F" est la force appliquée sur l'éprouvette de fatigue de section totale "S" et de module d' Young "E". Lors du chargement, toute l'éprouvette de Cottrell subit une déformation "ε". En effet, une fraction "x" de l'éprouvette se déforme élastiquement et subit d'après la loi de Hook une contrainte "Eε". Ainsi la force engendrée par cette partie de l'éprouvette est:

$$F_e = x S E \varepsilon \quad (1)$$

le reste de l'éprouvette se déforme plastiquement à une contrainte σ^* appelée contrainte de friction ou efficace. Cette partie subit également une déformation élastique représentée par le ressort de constante de raideur "K₂". Ainsi la force qui s'applique sur cette fraction (1-x) de l'éprouvette qui se déforme plastiquement est:

$$F^* = (1-x) S \sigma^* \quad (2)$$

La force totale qui s'exerce sur l'éprouvette est:

$$F = F_e + F^* \quad (3)$$

$$F = \sigma S = x S E \varepsilon + (1-x) S \sigma^*$$

on en déduit que la contrainte, lorsque la fraction (1-x) se déforme plastiquement à la contrainte de friction σ^* , est:

$$\sigma = x E \varepsilon + (1-x) \sigma^* \quad (4)$$

basé sur la physique des dislocations, une des propriétés de la boucle de Cottrell est la longueur de la projection de ses parties élastiques que nous appelons $2 \sigma_{eff}$:

$$2\sigma_{eff} = \sigma_B - \sigma_C \quad (5)$$

Selon l'équation (4), on peut écrire:

$$\sigma_B = x E \varepsilon_B + (1-x) \sigma^* \quad (6)$$

$$\sigma_C = x E \varepsilon_C + (1-x) (-\sigma^*) \quad (7)$$

le signe (-) est associé à l'inversement de la contrainte puisque au point C, la déformation se fait en compression, ainsi selon les équations (5,6,7):

$$2\sigma_{\text{eff}} = \sigma_B - \sigma_C = [x E \epsilon_B + (1-x) \sigma^*] - [x E \epsilon_C + (1-x) (-\sigma^*)]$$

$$2\sigma_{\text{eff}} = x E (\epsilon_B - \epsilon_C) + 2 (1-x) \sigma^* \quad (8)$$

comme la déformation entre le point "B" et "C" est purement élastique, nous pouvons donc écrire :

$$\sigma_B - \sigma_C = E(\epsilon_B - \epsilon_C) \quad (9)$$

d'après (5), on aura donc : $2\sigma_{\text{eff}} = x E (\epsilon_B - \epsilon_C)$ (10)

En substituant (10) dans (8) nous trouvons finalement:

$$2\sigma_{\text{eff}} = x 2\sigma_{\text{eff}} + 2 (1-x) \sigma^* \text{ ce qui mène donc à}$$

$$\sigma_{\text{eff}} = \sigma^* \quad (11)$$

Ceci montre qu'à partir du modèle de Cottrell on peut mesurer la contrainte effective d'un matériau déformé sous chargement cyclique.

Nous pouvons maintenant calculer la contrainte interne étant la différence de la contrainte d'écoulement plastique du matériau et la contrainte effective, ainsi on peut écrire:

$$\sigma_i = \sigma - \sigma^* \quad (12)$$

En substituant (4) dans (12) nous trouvons:

$$\sigma_i = \sigma - \sigma^*$$

$$\sigma_i = x E \epsilon + (1-x) \sigma^* - \sigma^*$$

$$\sigma_i = x [E \epsilon - \sigma^*] = x [\sigma_e - \sigma^*]$$

En résumé, il apparaît que la contrainte interne est égale à la différence entre la contrainte du matériau qui se déforme purement élastiquement et la contrainte du matériau qui se déforme plastiquement sans consolidation, multiplié par la fraction du matériau qui se déforme élastiquement.

En effet, elle peut être nulle si le matériau ne se déforme pas plastiquement, σ_e devient égale à σ^ car les deux fractions se déforme de la même façon.*

Références bibliographiques de l'Annexe I

1- V. Novak, S. Steidten and c. Holste

Determination of internal stresses in cyclically deformed metals, Czech. J. Phys. B 38 (1988),p 417

2- S. R. Mac Ewen, O. A Kupcis, B. Ramaswami

An investigation of an increamental unloading technique for estimating internal stresses, Scripta metallurgica Vol.3, 1969, p441

3- V. I Dotsenko

Stress relaxation in crystals, Review articleVIII1, Phys.Stat. Sol. (b) 93, 11 (1979), p11

4- J. I Dickson, J. Boutin and L. Handfield

A comparison of two simple methods for measuring cyclic internal and effective stress, Materials Science and Engineering, vol 64,1984,p L7-L11

5- H.-R. Pack and J. Chu, M. Kato, D. P Pope

Friction stress and back stress in cyclically deformed Ni₃Ge single crystals, Materials Science and Engineering, 100 (1988), p31

6- D. Kuhlmann Wilsdorf and C. laird

Dislocation behaviour in fatigue: friction stress and back stress as inferred from an analysis of hysteresis loops, Materials Science and Engineering, vol 3, 1979, p111

7- J.-B. Vogt

Influence de l'azote interstitiel et de la température sur les structures de dislocations obtenues par fatigue d'aciers inoxydables austénitiques, Thèse de Doctorat ès Sciences physiques, Univ. Lille I, 1991

8- C. Couvreur-Bigeon

Mécanismes de plasticité cyclique d'aciers inoxydables martensitiques 12%Cr aliés à l'azote, Thèse de Doctorat, Univ. LiLle I, 1995

