THESE

Pour l'obtention du Grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITE DE POITIERS

(Faculté des Sciences Fondamentales et Appliquées)
(Diplôme National - Arrêté du 25 mai 2016)

Ecole Doctorale : Sciences et Ingénierie des Matériaux,
Mécanique, Energétique (SIMME)

Secteur de Recherche : Milieux denses, matériaux et composants

Présentée par :

Emilien CURTET

****

EVOLUTION MICROSTRUCTURALE ET COMPREHENSION DES MECANISMES DE DEFORMATION D'UN ACIER AUSTENITIQUE STABLISE AU TITANE POUR LES REACTEURS DE QUATRIEME GENERATION

****

Directeur de Thèse : Ludovic Thilly

****

Soutenue le 7 novembre 2019

devant la Commission d'Examen

****

JURY

Anne-Françoise Gourgues-Lorenzon, Professeur, Ecole des Mines de Paris…….Rapporteur
Sébastien Allain, Professeur, Ecole des Mines de Nancy…….....Rapporteur
Martine Blat-Yrieix, Ingénieur, EDF……....Examinateur
Joël Douin, Directeur de Recherche, CEMES-CNRS…….....Examinateur
Ludovic Thilly, Professeur, Université de Poitiers……..…..Directeur de thèse
Bouzid Kedjar, Maitre de Conférences, Université de Poitiers…….....Co-encadrant
Patrick Olier, Ingénieur, CEA……..Co-encadrant
Matthew Bono, Ingénieur, CEA…….……..Co-encadrant

« Il ne faut pas se contenter de faire des pas qui mèneront un jour au but,
mais chaque pas doit être un but et être considéré en lui-même comme un pas. »

Johann Wolfgang von Goethe

Remerciements

Cette thèse, effectuée au sein du Laboratoire de Technologie des Matériaux Extrêmes (LTMEx), est le fruit d'une intense collaboration entre les Services de Recherches Métallurgiques Appliquées (SRMA) et d'Etudes des Matériaux Irradiés (SEMI) du CEA Saclay et de l'Institut Pprime de Poitiers.

Je tiens tout d'abord à remercier l'ensemble des membres du jury pour avoir évalué ces travaux de thèse et pour les discussions très intéressantes que nous avons eues lors de la soutenance. Je remercie Anne-Françoise Gourgues Lorenzon et Sébastien Allain d'avoir accepté d'être rapporteurs et d'avoir lu avec une attention extrême le manuscrit. Je remercie également Martine Blat d'avoir assumé le rôle d'examinatrice et Joël Douin d'avoir présidé le jury.

Je remercie chaleureusement mes trois encadrants et mon directeur de thèse pour m'avoir suivi durant toute cette période. J'exprime ma sincère gratitude à Patrick Olier pour son accompagnement quotidien et son investissement sans limite dans mes travaux. C'est grâce à lui que cette thèse constitue ce si bel aboutissement. Je remercie Matthew Bono pour avoir supervisé toute la partie mécanique et pour les nombreux échanges très riches qui m'ont permis de comprendre les phénomènes en jeu dans notre acier. Cette thèse n'aurait jamais pu atteindre un tel niveau scientifique sans tout le travail de Bouzid Kedjar en Microscopie Electronique à Transmission. Je lui suis éminemment reconnaissant pour sa contribution majeure dans les essais de traction in-situ MET et dans la mesure de l'Energie de Défaut d'Empilement. Enfin, un très grand merci à Ludovic Thilly pour avoir assumé de manière brillante la direction de la thèse. Il a toujours répondu présent quand j'avais besoin de lui et a surtout été d'un appui inestimable dans les domaines de la plasticité, des techniques de caractérisation et de toute la métallurgie en général.

Ensuite, je souhaite remercier toutes les autres personnes qui ont participé aux travaux et sans qui cette thèse n'aurait jamais rassemblé autant de résultats. Du côté du CEA, je pense à Arnaud Courcelle pour le partage de son excellente connaissance du 15-15Ti AIM1 et qui a beaucoup contribué aux observations MET des états vieillis. Au sujet de l'étude des états vieillis, je pense également à Stéphane Urvoy pour l'accès à la technique de dissolution sélective, à Florence Porcher pour les examens en diffraction des Neutrons et à Raphaëlle Guillou pour la DRX et sa collaboration toujours sympathique. Je pense aussi à Elodie Rouesne avec qui j'ai testé la traction in-situ MEB et à Philippe Grange pour m'avoir toujours donné satisfaction dans l'attribution des créneaux sur la machine de traction. Je remercie spécialement Romain Borrossi, mon très sérieux stagiaire, que j'ai eu la chance d'encadrer pendant six mois, et dont l'aide et l'implication ont été plus que primordiales dans mon travail.
Du côté de l'Institut Pprime, je remercie Hadi Bahsoun pour sa grande patience dans la réalisation des lames FIB d'une extrême finesse et ses acquisitions de cartographies EBSD d'une longueur interminable. Je remercie d'autre part Frédéric Pailloux pour ses essais de chauffage in-situ MET.
Concernant les personnes extérieures au CEA et à l'Institut Pprime, je remercie surtout Frédéric Mompiou du CEMES-CNRS qui a réalisé les essais de traction in-situ MET.

Au cours de ces trois années, j'ai fréquenté quotidiennement des personnes qui m'ont permis de conserver toujours ma bonne humeur. Je remercie Cédric Sauder de m'avoir accueilli dans son laboratoire et d'avoir favorisé le plus possible mon intégration. Je remercie Laurent Chaffron pour son support moral et sa façon de dédramatiser les choses. Je remercie également PeF pour ses discussions du soir, James pour ses incroyables histoires et Eric pour ses burgers. Je pense aussi aux autres

permanents du LTMEX comme Stéphane mon nouveau voisin ou encore Denis, Christophe, Nicolas, Frédéric et Aurélien.
Tout aurait été différent sans mes compagnons de galère : mes semblables, les doctorants et post-doctorants. Je remercie sincèrement ceux qui étaient présents avant moi comme les deux Clémentine, Esther, Frédérique et ceux qui seront présents après moi comme Tanguy, Antony et Louis. Je remercie particulièrement Elodie et Léna que j'ai côtoyées pendant la totalité de ces trois années et avec qui j'ai partagé mes misères. Je remercie également Adrien pour sa très bonne compagnie en conférences et nos échanges hautement scientifiques sur la nuance 15-15Ti AIM1. Enfin, je remercie Aziz pour nos repas hebdomadaires à la cantine, qui vont me manquer.

Je clôturerai ces remerciements en m'adressant aux personnes les plus importantes à mes yeux, sans qui, je ne serais jamais arrivé jusque-là : ma famille. Je suis extrêmement reconnaissant à mes parents qui ont été d'un soutien indéfectible tout au long de ma scolarité et qui m'ont toujours aidé de tout leur possible quoi qu'il se passait. Je suis fier qu'ils aient su me transmettre le meilleur d'eux-mêmes : l'excentricité certaine de mon père et le raisonnement pragmatique non moins certain de ma mère. Je remercie mes sœurs pour le partage de leurs expériences d'ainées très instructif. En particulier, merci à toi, Elvire, de me montrer l'existence d'autres mondes à côté de celui des scientifiques, et merci à toi, Marie-Paule, de toujours m'avoir conforté dans mes choix et ôté tous les doutes. Pour finir, je remercie celle qui a dû me supporter pendant ces trois ans, qui m'a permis de ne jamais lâcher et qui j'espère me soutiendra de cette manière encore longtemps, Adriana.

Sommaire

Introduction générale 1

Chapitre I. Etude bibliographique 5

1. Aspects généraux sur la métallurgie des aciers austénitiques 6

1.1. Rappels sur les aciers austénitiques inoxydables 6

1.1.1. Composition chimique et rôle des éléments d'alliage 6

1.1.2. Stabilité thermodynamique des phases 7

1.2. Généralités sur les mécanismes de déformation 8

1.2.1. Notions de base pour la structure CFC 8

1.2.2. Energie de Défaut d'Empilement (EDE) 9

1.2.3. Maclage Mécanique 10

1.2.3.1. Aspects cristallographiques 10

1.2.3.2. Germination et croissance des macles 11

1.2.4. Transformation martensitique induite par déformation de l'austénite 12

1.3. Description de l'évolution du comportement en traction jusqu'à 400°C 12

1.3.1. Cas des aciers TWIP 12

1.3.2. Cas des aciers austénitiques inoxydables de la série 304 et 316 13

1.4. Eléments d'interprétation de l'évolution du comportement en traction jusqu'à 400°C 15

1.4.1. Observation des microstructures de déformation en fonction de la température 15

Utilisation de l'analyse EBSD 15

Utilisation de l'analyse MET 16

1.4.2. Paramètres influençant le maclage 17

1.4.2.1. Rôle de l'Energie de défaut d'empilement (EDE) 18

1.4.2.2. Rôle de la contrainte 19

1.4.2.3. Dépendance de la contrainte de maclage en fonction de l'EDE 20

1.4.3. Incidence de l'activation du maclage sur le comportement en traction 21

2. Précisions sur l'alliage 15-15Ti et la nuance AIM1 23

2.1. Contexte d'utilisation justifiant la composition chimique et la gamme de fabrication 23

2.1.1. Le phénomène de gonflement 23

2.1.2. Historique et origine de l'acier 15-15Ti AIM1 23

2.1.3. Composition chimique et spécification de fabrication 25

2.2. Influence du vieillissement thermique à partir de 400°C sur la microstcture du 15-15Ti 26

2.2.1. Précipitation 26

2.2.1.1. Typologie des précipités susceptibles de se former lors du vieillissement 27

2.2.1.2. Cinétique de précipitation et domaine d'existence en températures des précipités 29
2.2.2. Phénomène de restauration 31
2.3. Singularités du comportement en traction du 15-15Ti AIM1 33
2.3.1. Singularité de comportement 33
2.3.2. Vieillissement dynamique et Effet Portevin-Le Chatelier 34
3. Synthèse de l'étude bibliographique 36

Chapitre II. Etude des mécanismes de déformation élémentaires 37
1. Présentation du matériau modèle : la tôle en acier 15-15Ti 38
2. Mise en évidence des mécanismes de déformation actifs à température ambiante par essais de traction in-situ au MEB 39
2.1. Description de l'expérience 39
2.2. Séquence de traction 40
2.3. Bilan de l'expérience 42
3. Mise en évidence des mécanismes de déformation actifs de 20°C à 400°C par essais de traction dans un MET 43
3.1. Description de l'expérience 43
3.1.1. Essais de traction dans un MET 43
3.1.2. Méthode de détermination des systèmes de glissement des dislocations 43
3.1.3. Déroulement des essais 44
3.2. Séquences de déformation à 20°C 44
3.2.1. Séquence n°1 (éprouvette A, zone 1) 44
3.2.2. Séquences n°2 (éprouvette B, zone 1) 45
3.3. Séquence de déformation à 200°C (éprouvette A, zone 2) 47
3.4. Comparaison des microstructures de déformation en fonction de la température (éprouvette B, zone 2) 48
4. Approches théoriques pour la mesure de l'EDE 51
4.1. Méthode des nœuds dissociés 51
4.1.1. Formation des nœuds 51
4.1.2. Théories 52
4.2. Méthode des tétraèdres de défaut d'empilement 54
5. Mesure de l'EDE à température ambiante 56
5.1. Méthode des nœuds dissociés 56
5.1.1. Caractérisation des dislocations du nœud 56
5.1.2. Calcul de l'EDE à partir de $\boldsymbol{y}$ et $\boldsymbol{R}$ 59
5.2. Méthode des tétraèdres de défaut d'empilement 61

5.2.1. Tétraèdres de défaut d'empilement d'origine thermique 61
5.2.2. Tétraèdres de défaut d'empilement d'origine mécanique 61
6. Mesure de la variation de l'EDE entre 20°C et 500°C par la méthode des nœuds dissociés 64
7. Synthèse du chapitre 66

Chapitre III. Etude du comportement en traction des tubes de gaine et des mécanismes de déformation associés 67
1. Caractérisation des tubes de gaine en 15-15Ti AIM1 à l'état de réception 68
1.1. Présentation du matériau d'étude : les tubes de gaine en 15-15Ti AIM1 du lot STP 1 68
1.1.1. Gamme de fabrication 68
1.1.2. Contrôles après fabrication 69
1.1.3. Examens microstructuraux 70
1.2. Etude du comportement en traction des tubes de gaine en 15-15Ti AIM1 73
1.2.1. Description du dispositif de traction 73
1.2.2. Mise en évidence de la singularité de comportement en conditions quasi-statiques . 75
1.2.2.1. Courbes conventionnelles de 20°C à 600°C 75
1.2.2.2. Propriétés en traction de 20°C à 600°C 76
1.2.3. Influence de la vitesse de déformation 77
1.3. Caractérisations post-mortem des éprouvettes déformées à 20°C et 200°C 80
1.3.1. Observation des fractographies de rupture 80
1.3.2. Caractérisation des microstructures de déformation par EBSD 80
1.3.2.1. Description du protocole expérimental 80
1.3.2.2. Comparaison des cartographies EBSD après déformation à 20°C et 200°C 81
2. Compréhension des mécanismes de déformation des tubes de gaine 83
2.1. Etude du comportement en traction des tubes de gaine en 15-15Ti hypertrempé 83
2.1.1. Résultats des essais en conditions quasi-statiques 83
2.1.1.1. Courbes conventionnelles de 20°C à 600°C 83
2.1.1.2. Propriétés en traction de 20°C à 600°C 84
2.1.1.3. Analyse des courbes de traction à 20°C et 200°C 85
2.1.2. Influence de la vitesse de traction 86
2.1.3. Bilan des essais de traction 88
2.2. Caractérisations post-mortem des éprouvettes déformées à 20°C et 200°C 88
2.2.1. Caractérisations des microstructures de déformation par EBSD 89
2.2.1.1. Comparaison des cartographies EBSD après déformation à 20°C et 200°C 89
2.2.1.2. Analyses de texture 90
2.2.2. Caractérisation des microstructures de déformation par STEM et MET 92

2.2.2.1. Description du protocole expérimental 92
2.2.2.2. Corrélation des cartographies EBSD et des micrographies STEM 92
2.2.2.3. Micrographies MET des lames minces extraites 94
2.3. Etude de l'influence de la vitesse de traction sur les mécanismes de déformation 95
3. Synthèse du chapitre 97

Chapitre IV. Influence du vieillissement entre 400°C et 600°C sur la microstructure et le comportement en traction des tubes de gaine 99
1. Protocole expérimental de vieillissement 100
2. Etude de l'évolution de la microstructure 102
2.1. Evolution de la microdureté 102
2.2. Evolution du réseau de dislocations 103
2.2.1. Evolution de l'organisation du réseau de dislocations 103
2.2.2. Détermination de l'évolution des contraintes résiduelles 104
2.2.2.1. Macro-contraintes résiduelles surfaciques axiales (ordre 1) 105
2.2.2.2. Micro-contraintes résiduelles intra-granulaires par DN (ordre 3) 107
2.2.3. Conclusions sur les effets du vieillissement sur les dislocations 109
2.3. Effets du vieillissement sur la précipitation 109
2.3.1. Précipités nanométriques 109
2.3.1.1. Imagerie des précipités secondaires au MET 110
2.3.1.2. Estimation de la taille et de la densité moyenne des TIC secondaires par analyse d'images 112
2.3.2. Caractérisation des précipités secondaires autres que les TiC nanométriques 115
2.3.2.1. Evolution de la fraction massique de précipités 115
2.3.2.2. Analyse des précipités par diffraction des RX 116
2.3.3. Conclusion sur les effets du vieillissement sur la précipitation 118
3. Effets du vieillissement sur le comportement en traction 120
3.1. Courbes conventionnelles à 20°C et 200°C 120
3.2. Evolution des propriétés en traction entre 20°C et 400°C après vieillissement 122
3.3. Analyse du coefficient d'écrouissage 124
3.4. Conclusion concernant l'effet du vieillissement sur les propriétés en traction 125
4. Synthèse de l'effet du vieillissement sur la microstructure et les propriétés en traction 126

Chapitre V. Discussion, conclusion et perspectives 127

1. Bilan du comportement en traction des tubes en 15-15Ti pour différents états métallurgiques 128

1.1. Etat hypertrempé 128

1.2. Etat écroui 129

1.3. Etat écroui puis vieilli 130

2. Discussion 131

2.1. Compréhension des mécanismes de déformation de l'état hypertrempé 131

2.1.1. Dépendance des mécanismes de déformation en température 131

2.1.2. Dépendance des mécanismes de déformation vis-à-vis de l'orientation cristallographique à 20°C 135

2.2. Compréhension des mécanismes de déformation du 15-15Ti AIM1 136

2.2.1. Transposition des mécanismes de déformation à l'état écroui 20% 136

Aspects macroscopiques 136

Aspects microscopiques 137

2.2.2. Limite de la transposition des résultats 138

Aspects macroscopiques 138

Aspects microscopiques 141

2.2.3. Eléments de discussion du comportement en traction au-delà de 200°C et comparaison avec l'état hypertrempé 142

2.3. Compréhension de l'évolution du comportement en traction après vieillissement (400°C-600°C) 143

3. Conclusion 146

4. Perspectives 147

Références bibliographiques 149

Annexes 159

Introduction générale

Les réacteurs nucléaires de IVème Génération sont à l'heure actuelle en phase de développement dans de nombreux pays. Ils doivent notamment répondre à de nouvelles exigences en matière de sureté, de rendement énergétique, et d'intégration dans le cycle du combustible nucléaire. La France, par l'intermédiaire du CEA, développe de nouveaux concepts de réacteurs à neutrons rapides refroidis au sodium, dits RNR-Na.

Dans les réacteurs nucléaires, **une attention particulière est allouée aux barrières de confinement**, qui isolent les produits de fission radioactifs de l'environnement. La première barrière de confinement est assurée par les aiguilles combustibles contenant les pastilles de combustible nucléaire. Ces aiguilles sont composées de tubes de gaine autour desquels est enroulé un fil espaceur et aux extrémités desquels sont soudés des bouchons. Elles sont regroupées en faisceaux dans des tubes hexagonaux, constituant les assemblages combustibles. Un cœur de RNR-Na est composé de plusieurs centaines d'assemblages combustibles contenant chacun une centaine d'aiguilles.

Dans un RNR-Na, les tubes de gaines sont soumis à des températures de fonctionnement élevées (allant jusqu'à 650°C) susceptibles d'engendrer des effets de fluage thermique. Par ailleurs, les tubes sont exposés à des doses d'irradiation neutronique importantes provoquant leur gonflement. Le phénomène de gonflement est l'un des principaux obstacles limitant la durée de vie des assemblages combustibles : il a été mis en évidence pour la première fois en France dans le réacteur Rapsodie à la fin des années 60. Il consiste en une augmentation diamétrale du volume des gaines ($\Delta\theta/\theta$), qui est due à la présence de cavités provenant du rassemblement de défauts ponctuels (lacunes) formés sous irradiation. **Un critère important pour la sélection du matériau des tubes de gaine est donc sa stabilité dimensionnelle vis-à-vis du fluage thermique et du gonflement.**

Les recherches menées au CEA ont abouti à la mise au point de la nuance **15-15Ti AIM1** (Austenitic Improved Material #1) comme matériau de gainage du combustible. Il s'agit d'un acier inoxydable austénitique avancé contenant 15% de chrome et 15% de nickel en masse, stabilisé au titane. De plus, sa composition en éléments mineurs (Si, P) et le rapport (Ti/C) ont été optimisés. Cette nuance d'acier et ses précurseurs ont déjà été testés dans des réacteurs expérimentaux tels que Phénix et/ou SuperPhénix.
Il est important de souligner deux points clés concernant la métallurgie des tubes de gaine en 15-15Ti AIM1, dont les rôles sont couplés :

- Le taux d'écrouissage final préconisé se situe entre 20 et 25%. Il permet, via le réseau des dislocations, de créer des points d'élimination des défauts ponctuels à l'origine du gonflement ;
- L'addition d'un faible pourcentage de titane (en poids) favorise la stabilisation du réseau de dislocations à chaud, grâce à leur épinglage par de fins précipités de carbure de titane.

Récemment, le CEA a repris des recherches pour étudier le comportement de cet acier en fluage en conditions incidentelles (Mateus Freire, 2018) et en gonflement sous irradiation (Kountchou Tawokam, 2018). D'autres travaux portent également sur l'amélioration de ses performances grâce à l'optimisation de la composition chimique (Rouxel, 2016 ; Vaugoude, 2019) ainsi que de la gamme de fabrication (Courtin, 2015). Suite à ces travaux de thèse, il est apparu des pistes de recherche à explorer pour approfondir la connaissance de cet acier.

Le 15-15Ti AIM1 présente en particulier une singularité marquée de comportement, commune aux aciers austénitiques : sa ductilité diminue fortement entre 20°C et 400°C (Courtin, 2015). En outre, la spécification pour la gaine d'un état métallurgique écroui ($\varepsilon \sim 20\%$) accentue cette perte de ductilité, qui atteint un minimum vers 200°C se traduisant par une rupture en traction après moins de 5% de déformation à cette température au lieu de 15% à 20% à 20°C.

Si cela ne remet pas en cause une utilisation en réacteur, où la température de la gaine est comprise entre 400°C et 650°C, cela peut être pénalisant pendant les phases qui précèdent, notamment lors du stockage et du transport des assemblages combustibles. En effet, l'échauffement induit par la seule présence des pastilles combustibles à l'intérieur des tubes de gaines, peut conduire à une élévation notable de température avec des gradients selon la hauteur d'assemblage et la disposition des aiguilles dans le faisceau.

Par ailleurs, l'effet du vieillissement thermique sur la microstructure à haute température ($T \geqslant 650°C$) a été largement étudié dans la thèse de (Mateus Freire 2018). Cependant, cet effet reste peu connu aux températures les plus basses des conditions de service en réacteur, c'est-à-dire entre 400°C et 600°C. De plus, malgré les différentes optimisations, c'est dans cette gamme de température que persiste une forte sensibilité du 15-15Ti AIM1 au gonflement, appelé pic de gonflement de « première bosse » (Séran, 2014).

Dans ce contexte, le but de cette thèse est donc double :

- Améliorer notre compréhension des mécanismes de déformation responsables de la singularité de comportement à 200°C ;
- Etudier l'influence d'un vieillissement hors flux dans une gamme de température entre 400°C et 600°C sur les évolutions microstructurales et sur le comportement en traction incluant la singularité de comportement.

Pour atteindre ces objectifs, les travaux de thèse sont menés sur un nouveau lot de tubes en 15-15Ti AIM1, qui a été approvisionné par le CEA en 2016 dans le cadre du projet ASTRID.

Elucider l'origine de la singularité de comportement en lien avec les mécanismes de déformation mis en jeux requiert une **approche multi-échelle**, regroupant des techniques de caractérisation complémentaires telles que :

- Les essais de traction directement sur tubes de gaine afin d'évaluer les propriétés mécaniques de l'acier au niveau **macroscopique** ;
- La microscopie électronique à balayage dans son mode de diffraction des électrons rétrodiffusés (EBSD) permettant une étude des mécanismes de déformation à l'échelle d'un ou plusieurs grains, c'est-à-dire à l'échelle **mésoscopique** ;
- La microscopie électronique en transmission donnant accès à l'observation de ces mécanismes à l'échelle des défauts cristallins, c'est-à-dire à l'échelle **microscopique**.

Concernant l'étude de l'influence d'un vieillissement hors flux, des traitements thermiques sont tout d'abord réalisés sur les tubes des gaines en 15-15Ti AIM1 à des températures comprises entre 400°C et 600°C, pendant des durées allant d'une centaine d'heures à plusieurs milliers d'heures.
L'analyse des modifications microstructurales induites se concentre principalement sur les deux aspects clés de la métallurgie des tubes de gaine en 15-15Ti AIM1, c'est-à-dire l'évolution du réseau de dislocations et la précipitation. D'autre part, les évolutions des propriétés mécaniques de l'acier au niveau macroscopique sont examinées.

En cohérence avec cette démarche, le manuscrit est construit en cinq chapitres, qui se structurent de la manière suivante :

Le **Chapitre 1** mentionne quelques aspects sur la métallurgie générale des aciers austénitiques et rappelle leurs principaux mécanismes de déformation. La singularité de comportement, connue dans ce type d'aciers couramment utilisés en industrie, est décrite. De plus, les études apportant certains éléments de réponse pour l'expliquer sont exposées. Enfin, des précisions sont fournies sur le 15-15Ti AIM1 et sur l'effet d'un vieillissement thermique sur sa microstructure.

Le **Chapitre 2** se consacre à une **étude fondamentale** des mécanismes de déformation impliqués dans la singularité de comportement. Pour s'affranchir de la géométrie des tubes qui est contraignante à caractériser, un matériau modèle sous forme de tôle a été élaboré en laboratoire. Il permet la mise en œuvre d'essais de traction **in-situ** dans le MEB et dans le MET pour faire ressortir les mécanismes de déformation actifs à 20°C et 200°C. Par ailleurs, l'utilisation de ce matériau modèle est la clé de voute de la détermination de l'Energie de Défaut d'Empilement de 20°C jusqu'à 500°C.

Le **Chapitre 3** s'attache à caractériser puis étudier le comportement mécanique et les mécanismes de déformation associés aux tubes de gaine en 15-15Ti AIM1. Dans un premier temps, une analyse critique des propriétés en traction obtenues est développée en se référant à la littérature et à aux recommandations de la spécification technique. Dans un second temps, différentes campagnes d'essais de traction sont conduites directement sur les tubes afin de mieux appréhender la singularité de comportement. A la suite, les microstructures des éprouvettes testées à 20°C et 200°C sont analysées par des caractérisations **post-mortem** au MEB et au MET.

Le **Chapitre 4** se focalise sur l'effet d'un vieillissement hors flux entre 400°C et 600°C sur la microstructure des tubes de gaine en 15-15Ti AIM1. L'évolution du réseau de dislocations est étudiée à la fois grâce à des observations au MET et par une analyse de la variation des contraintes résiduelles. La précipitation secondaire, intervenant durant le traitement de vieillissement, est examinée finement à des échelles nanométrique et micrométrique, respectivement par des observations au MET et en utilisant la dissolution sélective de la matrice. Enfin, le comportement en traction des tubes de gaine après vieillissement est étudié, avec une attention particulière portée à l'évolution de la singularité de comportement présente à l'état de réception.

Le **Chapitre 5** récapitule en premier lieu le comportement en traction de l'acier de 15-15Ti en fonction de la température suivant les trois états métallurgiques étudiés (état hypertrempé, état écroui et état écroui suivi d'un vieillissement). En second lieu, une discussion est menée pour déterminer l'origine de ces évolutions. Cette discussion aborde notemment les paramètres régissant les mécanismes de déformation et leur impact sur le comportement en traction, répondant ainsi à l'objectif fixé. En dernier lieu, une conclusion de l'étude est présentée et les prolongements à y donner sont proposés.

Chapitre I. Etude bibliographique

1. Aspects généraux sur la métallurgie des aciers austénitiques

Cette première partie a pour objectif de présenter quelques rappels de métallurgie générale sur les aciers austénitiques qui seront utiles pour la compréhension et la mise en perspective des résultats présentés dans la suite du manuscrit. Ces rappels concernent notamment les aspects chimiques, les mécanismes de déformation et les propriétés mécaniques recensées avec une attention particulière vis-à-vis de leur évolution en fonction de la température, en particulier entre l'ambiante et 400°C. Le propos se focalisera plus particulièrement sur les aciers austénitiques inoxydables.

1.1. Rappels sur les aciers austénitiques inoxydables

1.1.1. Composition chimique et rôle des éléments d'alliage

Les aciers austénitiques inoxydables sont composés principalement de fer, de chrome et de nickel. Ils sont utilisés dans différents secteurs industriels grâce à leur résistance à la corrosion associée à d'excellentes propriétés mécaniques sur une large gamme de température.

Dans le domaine nucléaire, pour les réacteurs à neutrons rapides (RNR), les aciers 304L, 316L et 316LN sont des nuances largement utilisées. Pour les applications « gainage combustible » des RNR à caloporteur sodium (RNR-Na), les nuances stabilisées au titane sont préférées comme par exemple l'acier 316Ti ou les aciers 15-15Ti (Olier et al., 2019). La composition chimique de certains de ces aciers est fournie dans le Tableau I. 1.

Composition (% massique)		**Cr**	**Ni**	**C**	**Ti**	**Mo**	**Mn**	**Si**	**Fe**
304	**min.**	17	8	0,05	-	-	2	-	Bal.
	max.	19	10						
316	**min.**	16	10	0,05	-	2,0	2	-	Bal.
	max.	18	12,5			2,5			
316Ti	**min.**	16	10	0,1	5 x C	2,0	1,5	-	Bal.
	max.	18	12,5			2,5			
15-15Ti	**min.**	14	14	0,08	0,3	1,0	1,5	0,3	Bal.
	max.	16	16	0,12	0,6	1,4	2,0	0,7	

Tableau I. 1 : Composition chimique des aciers austénitiques inoxydables 304, 316 et 316Ti selon la norme NF A35573 et de l'acier 15-15Ti selon la norme UNS S31272.

Le rôle de chaque élément est détaillé comme suit (Lacombe et al., 1993) :

- Le chrome est utilisé pour ses propriétés passivantes. Un acier est considéré comme inoxydable s'il contient au minimum 10,5% massique de chrome et au maximum 1,2% massique de carbone selon la norme NF EN 10020. Cependant, le chrome rend l'acier sensible à la corrosion inter-granulaire à cause de la formation de carbures.
- L'ajout de nickel permet d'assurer le caractère austénitique de l'acier.
- Le titane est un élément très carburigène. En précipitant, il forme des carbures de titane, qui diminuent la quantité de carbone disponible pour former des carbures de chrome.
- Le molybdène est incorporé pour sa capacité à améliorer la résistance à la corrosion. Cependant, il déstabilise l'austénite. Cet effet est contrecarré par l'ajout de manganèse.
- Le silicium permet d'accroitre la résistance à l'oxydation à haute température.

1.1.2. Stabilité thermodynamique des phases

La phase austénitique, appelée γ, a une structure cristalline de type Cubique à Faces Centrées (CFC). Elle est obtenue par un traitement thermique à très haute température (> 1000°C). A plus basse température, elle est métastable et susceptible de se transformer en ferrite (α) ou martensite (α'). Ces deux phases ont respectivement une structure Cubique Centrée et tétragonale centrée (quasiment CC). La transformation γ → α' est dite displacive, c'est-à-dire qu'elle se produit sans l'intervention de la diffusion.

Des diagrammes de phases existent dans la littérature pour déterminer la stabilité des différentes phases. Ils utilisent les notions de chrome équivalent et de nickel équivalent regroupant respectivement les éléments « alphagènes » stabilisant la ferrite et les éléments « gammagènes » stabilisant l'austénite. D'après la thèse de (Chabaud-Reytier, 1999), le diagramme de Pryce et Andrews (Pryce, 1960) est le plus pertinent pour les aciers inoxydables austénitiques stabilisés au titane. En effet, le titane a un fort pouvoir alphagène. Cependant, seul le titane libre, c'est-à-dire présent en solution solide, doit être pris en compte. Il faut exclure celui qui a déjà précipité sous forme de carbure et/ou de carbonitrure. Il en est de même pour le carbone, qui a au contraire un fort pouvoir gammagène. D'après (Pickering, 1984), la teneur en titane et en carbone libre s'écrit selon les équations (I. 1) et (I. 2). Par ailleurs, la solubilité maximale du carbone dans l'austénite est estimée à 0,03%.

$$Ti_{libre} = Ti_{solution} = Ti_{total} - [(C_{total} - 0{,}03) + N] \quad (I.\ 1)$$

$$C_{libre} = C_{solution} = 0{,}03 \quad (I.\ 2)$$

Ainsi, les relations de chrome et nickel équivalent s'écrivent selon les équations (I. 3) et (I. 4) (Pryce, 1960).

$$Cr_{équivalent}(\%) = (\%Cr) + 3(\%Si) + (\%Mo) + 10(\%Ti_{solution}) \quad (I.\ 3)$$

$$Ni_{équivalent}(\%) = (\%Ni) + 0{,}5(\%Mn) + 21(\%C_{solution}) \quad (I.\ 4)$$

Le positionnement sur le diagramme de Pryce et Andrews en Figure I. 1 des aciers 15-15Ti (selon la norme UNS S31272) confirme leur structure entièrement austénitique. Par comparaison, l'acier 316Ti est beaucoup plus proche du domaine ferrito-martensitique.

Ce diagramme ne prend pas en compte la vitesse de refroidissement après l'obtention de l'austénite à haute température. Lors d'un refroidissement rapide, une transformation de l'austénite en martensite α' peut se produire. Elle est appelée transformation thermique. La température M_s à laquelle démarre cette transformation peut être estimée selon la relation de (Pickering, 1984), décrite par l'équation (I. 5). Par exemple, la valeur de M_s pour les aciers de type 15-15Ti est de -188°C[1].

$$M_s(°C) = 502 - 810(\%C_{libre}) - 1230(\%N) - 13(\%Mn) - 30(\%Ni) - 12(\%Cr) - 54(\%Cu) - 6(\%Mo) \quad (I.\ 5)$$

Par ailleurs, la martensite α' est également susceptible d'apparaitre précocément lorsque l'acier est déformé. Il est possible de définir une température seuil M_{d30}, à partir de laquelle 50% de martensite est formée lorsque 30% de déformation est appliquée (Pickering, 1984). Elle est définie selon

[1] Pour ce calcul, les valeurs de composition minimale et maximale sont moyennées.

l'équation (I. 6). Cette transformation est dite athermique. M_{d30} est égale à -63°C pour les aciers 15-15Ti.

$$M_{d30}(°C) = 497 - 462(\%C_{libre} + \%N) - 9{,}2(\%Si) \\ -8{,}1(\%Mn) - 13{,}7(\%Cr) - 20(\%Ni) - 18{,}5(\%Mo) \quad (I.\ 6)$$

Au final, la structure des aciers austénitiques inoxydables 15-15Ti (selon la norme UNS S31272) est 100% austénitique à température ambiante et au-delà.

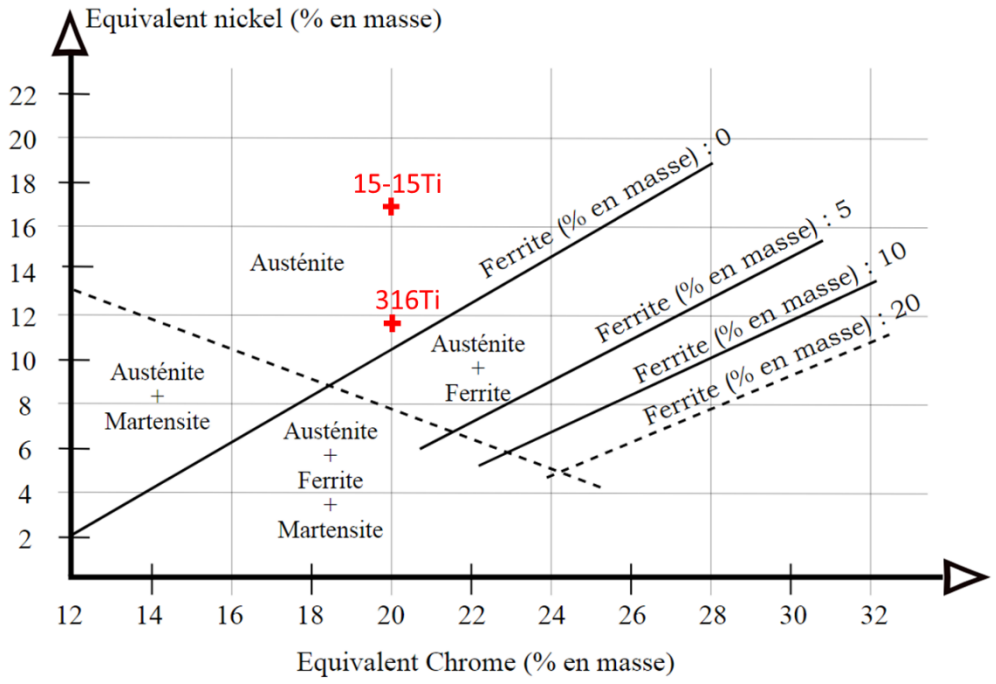


Figure I. 1 : Diagramme de Pryce et Andrews avec la position des aciers 15-15Ti et du 316Ti.

1.2. Généralités sur les mécanismes de déformation

1.2.1. Notions de base pour la structure CFC

Pour les métaux CFC, tels que les aciers austénitiques considérés ici, le principal mécanisme de déformation est le glissement des dislocations parfaites, plus ou moins dissociées selon la température, dans les plans denses ou compacts du cristal, i.e. les plans {111}. En ayant la plus grande densité atomique, ils présentent la plus grande distance inter-réticulaire. Cette configuration diminue le frottement entre les plans et facilite ainsi le glissement.

La direction du glissement se fait selon une direction dense du type $< 110 >$ pour avoir la norme du vecteur de Burgers la plus petite possible. Dans le cas du glissement de dislocations parfaites, le vecteur de Burgers s'écrit $a/2 \ < 110 >$ avec a le paramètre de maille.

On dénombre douze systèmes de glissement au total (4 plans $\{111\}$ indépendants, et trois directions $< 110 >$ indépendantes).

Dans les aciers austénitiques, les dislocations parfaites sont susceptibles de se dissocier en deux dislocations partielles suivant la relation (I. 7) proposée par (Heidenreich, Shockley, 1948).

$$\boldsymbol{b1 \rightarrow b2 + b3}$$
$$\frac{a}{2}[10\overline{1}] \rightarrow \frac{a}{6}[2\overline{1}\,\overline{1}] + \frac{a}{6}[11\overline{2}] \qquad (I.\ 7)$$

Le critère de dissociation est appelé critère de Frank. Si $b1^2 > b2^2 + b3^2$, alors la dissociation est favorable. Ces dislocations partielles sont appelées dislocations de Shockley.

Le passage d'une dislocation parfaite, décalant les plans denses d'une distance interatomique, permet à chaque atome déplacé de retrouver une position similaire à celle où il était à l'origine. Cependant, ce n'est pas le cas après le passage d'une dislocation partielle qui a une norme de vecteur de Burgers plus petite. Cette situation provoque un défaut d'empilement dans la séquence d'empilement des plans denses.

Pour plus de détails, le lecteur pourra se reporter à des ouvrages généraux, tels que « Mechanical Metallurgy » (Dieter, 1988) et « Introduction to Dislocations » (Hull, Bacon, 2011).

1.2.2. Energie de Défaut d'Empilement (EDE)

La capacité des dislocations parfaites à se dissocier est soumise au coût énergétique de formation des défaut d'empilement. Il est estimé grâce à l'Energie de Défaut d'Empilement (EDE) du métal. Plus l'EDE est faible, plus les dislocations vont se dissocier. Elle est notée γ et son unité dans le système international est le $J.m^{-2}$. Pour plus de simplicité, elle est souvent exprimée en $mJ.m^{-2}$

L'EDE dépend fortement de la composition de l'acier. Pour les aciers inoxydables austénitiques, des relations empiriques ont été établies reliant, à la température ambiante, la valeur d'EDE à la teneur massique de chacun des éléments d'alliage. L'une des premières relations a été établie par (Schramm, Reed, 1975). Elle s'écrit sous la forme de l'équation (I. 8). A l'heure actuelle, la relation la plus évoluée est proposée par (Meric de Bellefon et al., 2017). Elle est basée sur une régression multilinéaire de 144 mesures d'EDE effectuées soit par microscopie électronique en transmission (MET) soit par diffraction des rayons X (DRX). Elle s'écrit sous la forme de l'équation (I. 9). Ces équations mettent en évidence une plus grande propension de certains éléments à faire varier l'EDE que d'autres. C'est le cas du carbone par exemple.

$$EDE\ (mJ.m^{-2}) = -53 + 6{,}2(\%Ni) + 0{,}7(\%Cr) + 3{,}2(\%Mn) + 9{,}3(\%\mathrm{Mo}) \qquad (I.\ 8)$$

$$EDE\ (mJ.m^{-2}) = 2{,}2 + 1{,}9(\%Ni) - 2{,}9(\%Si) + 0{,}77(\%Mo) + 0{,}5(\%Mn) + 40(\%C) - 0{,}016(\%Cr) - 3{,}6(\%N) \qquad (I.\ 9)$$

Selon l'équation (I. 9), l'EDE des aciers 304 et 316 est estimée respectivement entre 15-26 mJ/m² et 20-35 mJ/m² (Meric de Bellefon et al., 2017). Selon la même équation, en prenant les valeurs moyennes de composition indiquées dans le Tableau I.1, l'EDE des aciers de type 15-15Ti est prédite à 31 mJ/m². Il faut souligner que ces relations permettent des estimations mais qu'elles sont insuffisantes pour déterminer l'EDE d'un acier de formulation chimique complexe. Par exemple, elles ne prennent pas en compte l'influence de certains éléments, pouvant être présents dans l'acier, comme le titane par exemple.

1.2.3. Maclage Mécanique

Le maclage mécanique est autre un mécanisme de déformation des métaux CFC. Il nécessite le glissement des dislocations partielles et la formation de défaut d'empilement. Par rapport au mécanisme de glissement des dislocations parfaites, nous verrons par la suite qu'il peut intervenir dans les aciers austénitiques selon la valeur d'énergie de défaut d'empilement.

1.2.3.1. Aspects cristallographiques

Une macle est un basculement d'une partie du cristal formant un miroir de la matrice. A l'interface entre la macle et la matrice se trouvent le joint de macle, qui correspond à un plan {111} du cristal. La désorientation locale au niveau de ce joint de macle est de 60°. Pour cette raison, il porte l'appellation Σ3. Les macles sont cohérentes car il y a une continuité parfaite du réseau cristallographique entre elles et la matrice, sans la présence de dislocations résiduelles.

La Figure I. 2 montre la formation d'une macle mécanique par le passage successif de trois dislocations partielles dans les plans $\{111\}$ d'un cristal. La séquence d'empilement du début est une séquence sans défaut de type $ABC\ ABC\ ABC\ ABC$. Le passage de la première dislocation partielle crée le premier défaut d'empilement. Le passage de la deuxième vient rajouter un deuxième défaut sur le précèdent. Cette configuration est appelée défaut d'empilement extrinsèque. Après le glissement de la troisième dislocation partielle, trois défauts d'empilement sont donc présents. La séquence finale d'empilement est devenue $ABC\ ABA\ CBC\ ABC$.

La formation de la macle a généré un déplacement égal à la norme de 3 vecteurs de Burgers des dislocations partielles, soit $3b_p$.

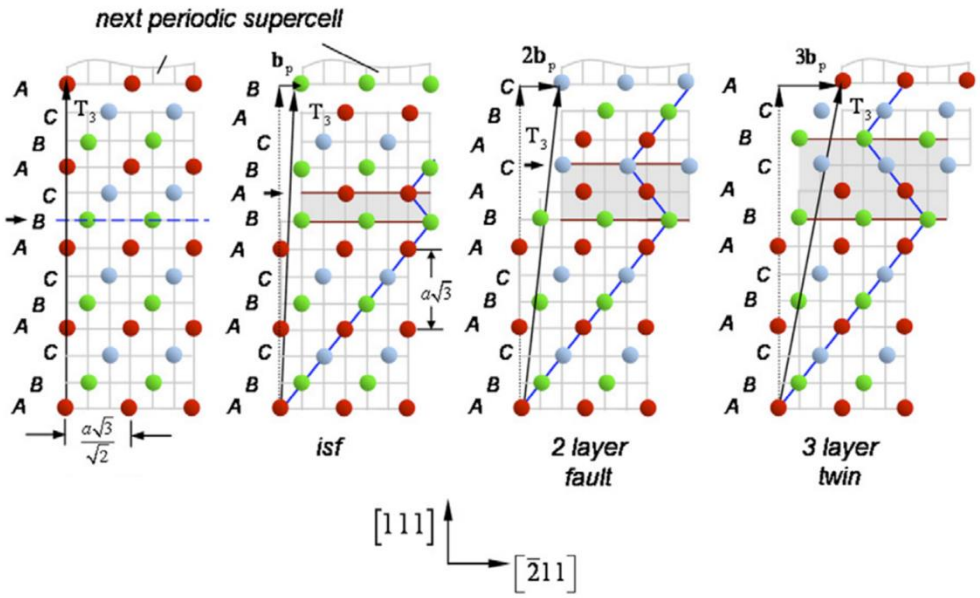


Figure I. 2 : Formation d'une macle mécanique par le glissement successif de dislocations partielles (Kibey et al., 2007).

1.2.3.2. Germination et croissance des macles

Selon la description effectuée au 1.2.3.1, la formation des macles nécessite le glissement d'un grand nombre de dislocations partielles de tête dans des plans précis. Par ailleurs, l'émission des dislocations partielles de queue doit être bloquée pour éviter de refermer les défauts d'empilement. Plusieurs mécanismes ont été avancés dans la littérature pour expliquer ce phénomène, sans qu'aucun ne fasse l'unanimité (Christian, Mahajan, 1995). Les deux plus connus sont les suivants :

- Le modèle polaire est un des premiers (Venables, 1964 ; 1974 ; Niewczas, Saada, 2002) à avoir été développé. Il nécessite la dissociation particulière d'une dislocation parfaite en une dislocation de Shockley et en une dislocation de Frank. La dislocation de Frank immobile joue le rôle de pôle. La formation de la macle est alors expliquée par une rotation de la dislocation de Shockley autour du pôle. Cela permet d'émettre une dislocation partielle dans le plan compact, selon le fonctionnement du moulin de Frank-Read (Frank, Read, 1950) . A chaque nouveau tour, la dislocation de Shockley change de plan compact.

- Le modèle d'empilement des dislocations utilisant les verrous de Lomer-Cottrell (Cohen, Weertman, 1963). Ces verrous apparaissent lorsque deux dislocations parfaites glissent dans deux plans conjugués, et s'intersectent. Un obstacle fort au glissement est ainsi créé (Cottrell, 1953). Lorsqu'une autre dislocation parfaite arrive et se bloque contre un verrou de Lomer-Cottrell, elle peut se dissocier en émettant une dislocation de Frank et une dislocation de Shockley, qui va glisser dans le plan compact adjacent. L'arrivée de nouvelles dislocations génère un empilement où le mode de dissociation se répète pour chaque dislocation. De cette manière, un front de macle se forme.

Ensuite, la croissance de la macle se déroule par propagation des dislocations de Schockley et expansion de la taille des défauts d'empilement. Ceci conduit à une augmentation de la longueur de la macle, qui peut atteindre jusqu'à plusieurs dizaines de microns. L'épaississement de la macle se produit grâce au glissement de dislocations partielles supplémentaires sur les plans au-dessus ou au-dessous de la macle. Généralement, les macles mécaniques n'excèdent pas quelques dizaines de nanomètres d'épaisseur. Elles sont souvent regroupées en faisceaux dont l'épaisseur varie entre 100 et 500 nm comme illustré sur la Figure I. 3 (Gutierrez-Urrutia, Raabe, 2012 ; Yan et al., 2012).

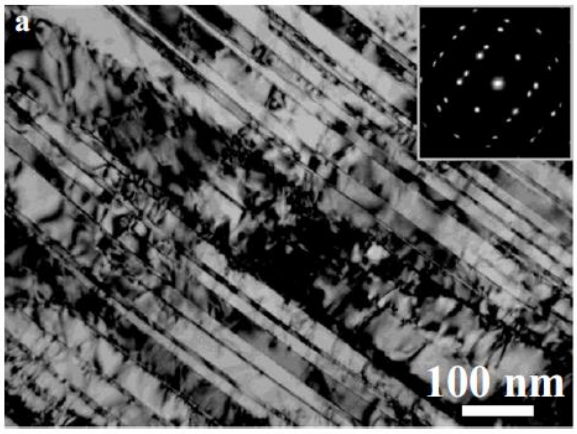


Figure I. 3 : Micrographie MET d'une structure de macles dans un acier 316L (Yan et al., 2012).

1.2.4. Transformation martensitique induite par déformation de l'austénite

Il existe un mécanisme de déformation supplémentaire dans les aciers austénitiques en lien avec les défauts d'empilement : la formation de martensite ε. Elle est à distinguer de la martensite α'.

Sa structure est hexagonale compacte et elle est ferromagnétique. Elle se forme par le passage d'une dislocation partielle tous les deux plans denses, au contraire d'une macle mécanique où tous les plans sont concernés (Allain, 2004). Ce mécanisme est détaillé en Figure I. 4. Comme les macles mécaniques, elle s'organise en lamelles constituées d'une interface cohérente avec la matrice austénitique.

Cet effet est appelé l'effet TRIP (Transformation Induced Plasticity). Il est couramment observé sur l'acier 304 (Iwamoto et al., 1998). Cependant, il ne va pas être considéré dans cette étude.

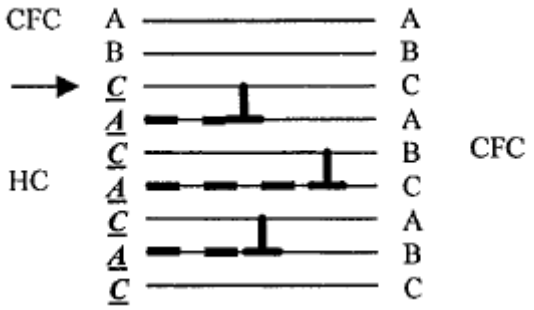


Figure I. 4 : Description schématique de la formation d'une lamelle de martensite. La flèche indique la position de l'interface entre la martensite et la matrice austénitique (Allain, 2004).

1.3. Description de l'évolution du comportement en traction jusqu'à 400°C

On observe sur les aciers austénitiques une évolution singulière du comportement en traction lors d'une élévation de la température. Elle se manifeste par une baisse de la ductilité en termes d'allongements total et homogène, qui est très marquée entre 20°C et 200°C. Nous verrons dans cette partie que cette évolution de comportement peut être reliée aux mécanismes de déformation tels que présentés précédemment.

1.3.1. Cas des aciers TWIP

Les aciers austénitiques à haute teneur en manganèse, également appelés aciers TWIP (TWinning Induced Plasticity), ont fait l'objet d'une intense recherche et d'un fort développement dans le début des années 2000. En effet, ils offrent d'excellentes propriétés mécaniques combinant à la fois grande résistance et grande ductilité. La Figure I. 5 reporte l'évolution des propriétés mécaniques d'un acier TWIP de composition Fe-25Mn-3Si-3Al en fonction de la température (Grässel et al., 2000).

Lorsque la température croît depuis des valeurs négatives jusqu'à 20°C, on observe une augmentation des allongements homogène (A_g) et total (A_t) concomitante à une baisse de la limite d'élasticité ($R_{p0,2}$) et de la résistance maximale (R_m).

Entre 20°C et 400°C, $R_{p0,2}$ et R_m continuent à décroître lentement, tandis que A_g et A_t diminuent très sensiblement. Respectivement, ils baissent de ~ 70% à ~ 40% et de ~ 80% à ~ 50%. La chute la plus importante se situe dans la gamme de température entre 20°C et 200°C.

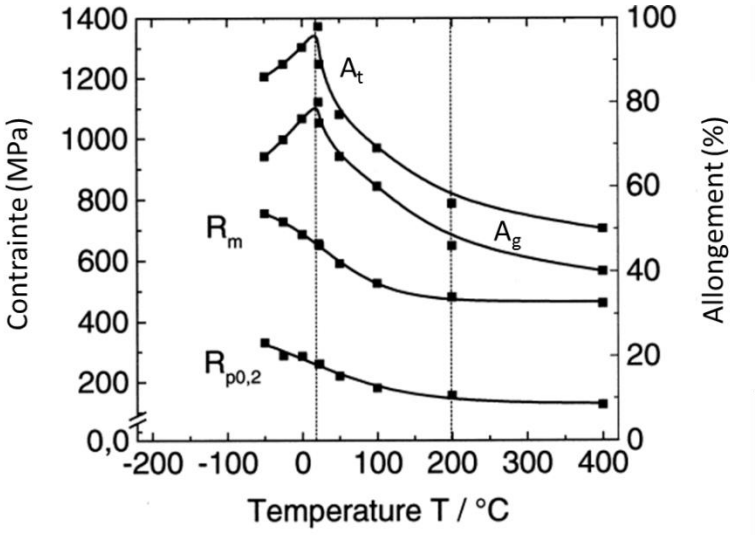


Figure I. 5 : Evolution des propriétés mécaniques d'un acier TWIP de composition Fe-25Mn-3Si-3Al en fonction de la température (Grässel et al., 2000).

1.3.2. Cas des aciers austénitiques inoxydables de la série 304 et 316

Les courbes conventionnelles contrainte-déformation en traction des aciers 304 et 316, à l'état recristallisé, sont décrites par (Byun et al., 2004) et sont reportées en Figure I. 6.

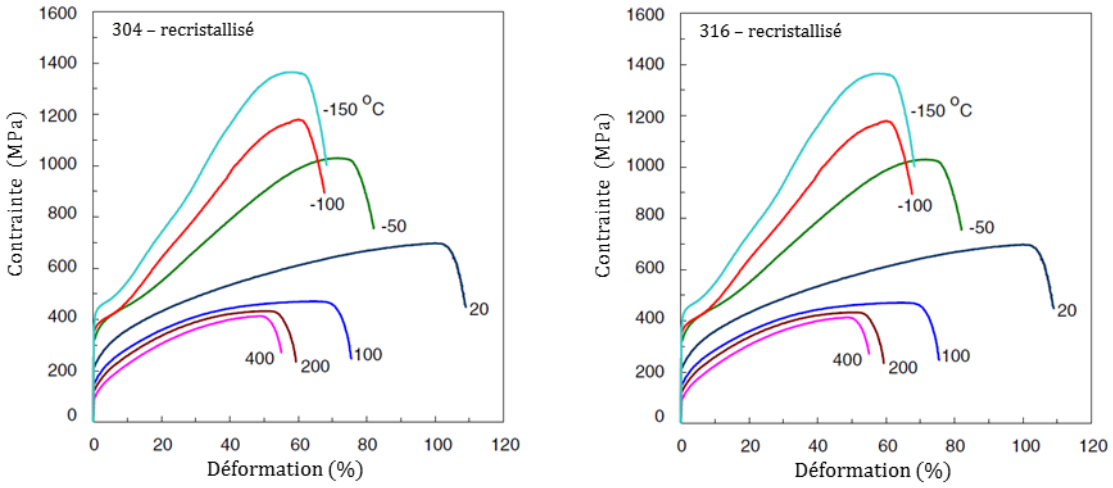


Figure I. 6 : Coubes conventionnelles de traction en fonction de la température à l'état recristallisé pour à gauche l'acier 304 et à droite l'acier 316 (Byun et al., 2004).

Pour l'acier 304, l'allongement à rupture augmente de ~70% à ~110% avec la température entre -150°C et 20°C. Puis, au-dessus de 20°C, l'allongement total diminue de ~110% à 20°C jusqu'à ~60% à 200°C. Il

en est de même pour l'acier 316 avec la différence que le maximum d'allongement se situe à -50°C au lieu de 20°C.

Ces aciers présentent donc tous les deux, à l'état recristallisé, une baisse sensible d'allongement entre 20°C et 200°C. Par ailleurs, on note que cette baisse est déjà très sensible entre 20°C et 100°C, alors que son niveau est quasi-stable entre 200°C et 400°C. De façon plus attendue, on observe une baisse progressive de la limite d'élasticité et de la résistance maximale lors d'une hausse de la température.

Un examen plus poussé de la littérature sur ce sujet nous conduit à attirer l'attention du lecteur sur le rôle de l'écrouissage de l'acier sur cette singularité de comportement.

La Figure I. 7 compare les courbes contrainte-déformation obtenues pour un acier 316LN à l'état recristallisé et à l'état écroui 20%. On peut faire les remarques suivantes :

- Concernant la limite d'élasticité et la résistance maximale à rupture, elles sont beaucoup plus élevées à l'état écroui qu'à l'état recristallisé sur toute la plage de température testée.
- Concernant les allongements, ils sont plus faibles à l'état écroui qu'à l'état recristallisé. Par exemple, à 20°C, l'allongement à rupture maximal pour l'état recristallisé est proche de 80%, alors qu'il est réduit de moitié (compris entre 30 et 40%) après écrouissage. Pour des températures d'essai comprises entre 200°C et 400°C, l'amplitude de la chute d'allongement est encore plus importante entre l'état recristallisé et l'état écroui. Au final, pour l'acier 316LN écroui, l'allongement à rupture minimal est obtenu à 400°C (At ~ 8%).
- Dans le domaine de plasticité, les courbes de l'état écroui présentent un plateau quasi-horizontal, signe d'un matériau en limite d'écrouissage et présentant une forte propension à la localisation.

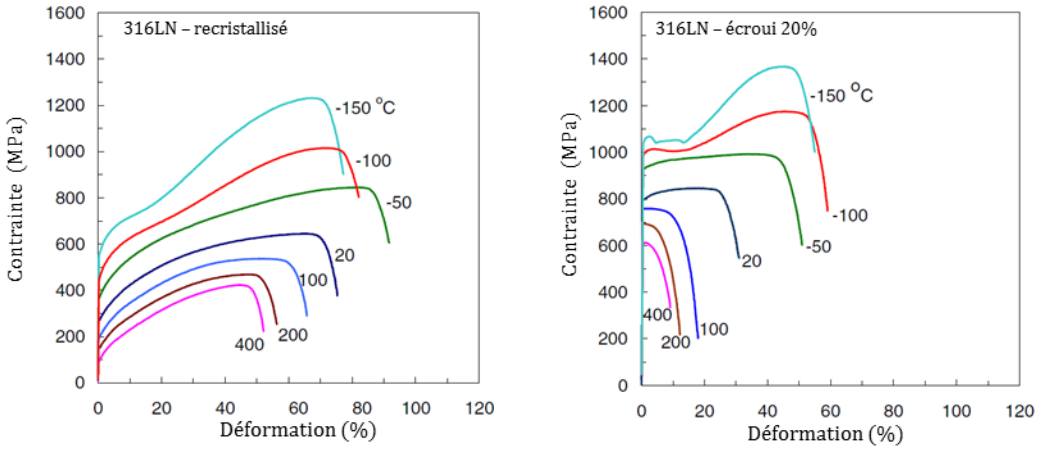


Figure I. 7 : Comparaison des courbes conventionnelles de traction pour un acier 316 LN à l'état recristallisé à gauche et écroui (ε ≈ 20%) à droite (Byun et al., 2004).

D'autres auteurs (Brnic et al., 2011) ont étudié le comportement d'une nuance stabilisée au titane. La Figure I. 8 présente les courbes de traction conventionnelles obtenues pour un acier 316Ti écroui.

Pour cet acier testé entre -70°C et 400°C, l'allongement total maximal est obtenu à -70°C (A_t ~ 50%). A des températures d'essai supérieures, il va diminuer jusqu'à une valeur minimale de 15% à la température de 200°C. Ensuite, A_t remonte à 22,5% à 300°C, pour diminuer à nouveau jusqu'à 17,5%

à 400°C. Cette nuance se distingue donc des aciers non stabilisés au titane (304, 316, 316LN) par la présence de deux baisse d'allongement, l'une entre -70 °C et 200°C et la seconde entre 300°C et 400°C.

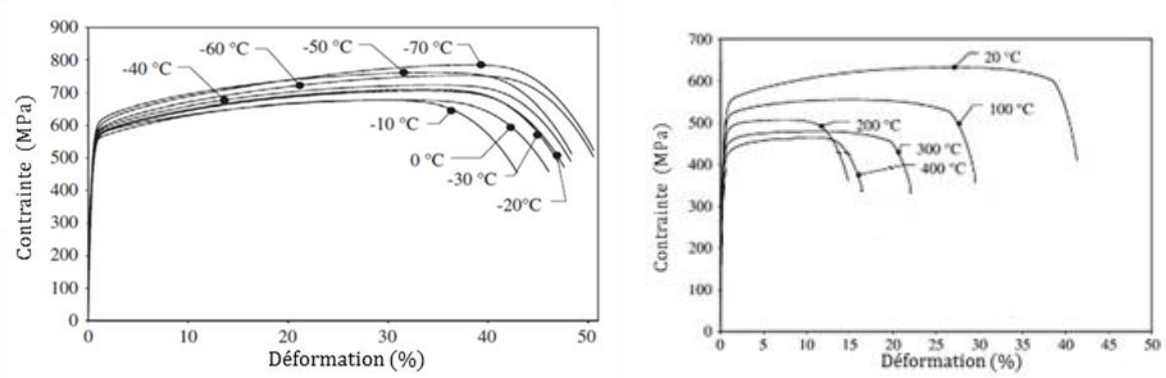


Figure I. 8 : Courbes conventionnelles de traction pour un acier 316Ti écroui, d'après (Brnic et al., 2011).

1.4. Eléments d'interprétation de l'évolution du comportement en traction jusqu'à 400°C

L'origine de la singularité de comportement observée en traction, détaillée au paragraphe précédent, est liée aux mécanismes mis en jeux lors de la déformation selon la température d'essai. Pour les aciers des séries 304 et 316, il est possible de trouver dans la littérature certains éléments d'explication reposant par exemple sur des analyses EBSD ou sur des examens au MET.

1.4.1. Observation des microstructures de déformation en fonction de la température

Utilisation de l'analyse EBSD

Des études en diffraction des électrons rétrodiffusés (EBSD) effectuées sur l'acier 316L ont permis de mettre en évidence un changement dans les mécanismes de déformation en fonction de la température (Wu et al., 2006). La Figure I. 9 présente des cartographies EBSD obtenues sur un acier 316L testé en traction à trois températures : 20°C, 100°C et 200°C.

Les points suivants sont à souligner :

- A l'état non déformé (a), les grains sont de couleurs homogènes avec la présence de macles épaisses qui sont d'origine thermique (formées lors du traitement d'hypertrempe).
- A l'état déformé à 20°C (b), les grains apparaissent « hachurés » ou « striés » par des bandes d'autres couleurs : il s'agit de macles mécaniques. Le maclage est donc un mécanisme de déformation actif à la température ambiante. Par ailleurs, des gradients de couleur apparaissent au sein des grains : Ils correspondant à des distorsions du réseau cristallin. C'est le signe de l'activité d'un second mécanisme de déformation, qui est le glissement et le stockage des dislocations.
- A l'état déformé à 200°C (d), les macles fines sont quasi-absentes et on observe uniquement des gradients de couleurs au sein des grains. Dans ce cas, le mécanisme de déformation prédominant est le glissement et le stockage de dislocations.

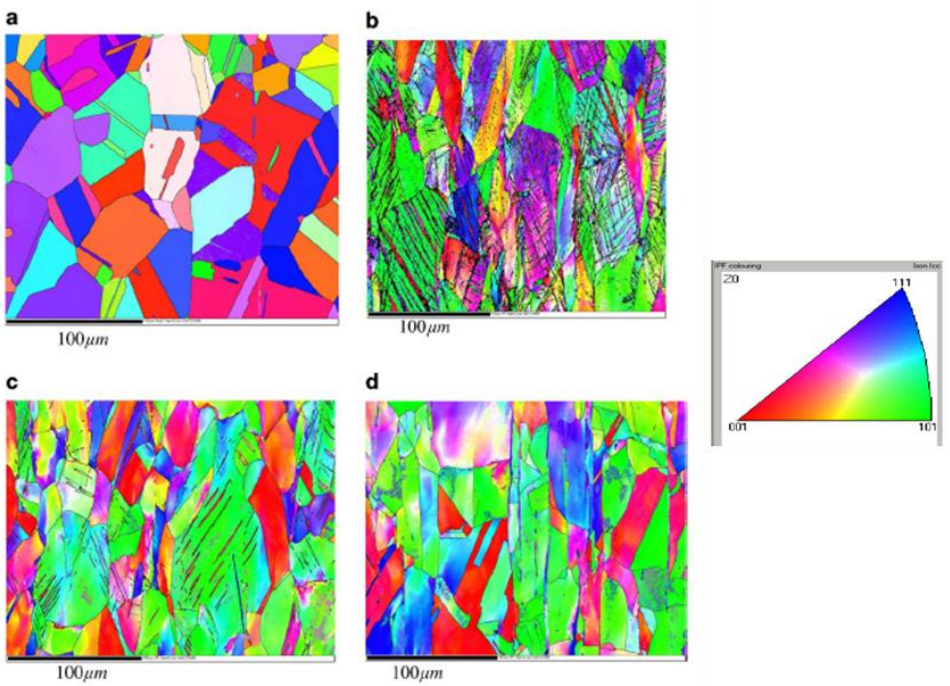


Figure I. 9 : Cartographies EBSD d'un acier 316L; (a) à l'état non déformé; (b) déformé en traction à l'allongement homogène à la température ambiante; (c) à 100°C et (d) 200°C (Wu et al., 2006).

Utilisation de l'analyse MET

La microscopie électronique en transmission est la technique la plus utilisée pour réaliser des images à l'échelle des défauts cristallins. A contrario de l'EBSD, elle est très locale mais offre l'avantage d'observer les défauts, dont les dislocations et les défauts d'empilement. Certaines données sont disponibles pour l'acier 316LN (Byun et al., 2003). La Figure I. 10 rassemble des images MET d'un acier 316LN déformé à environ 15% à quatre températures différentes : -100°C ; 20°C; 200°C et 400°C.

Les commentaires suivants peuvent être faits :

- A 200°C et 400°C, on observe des enchevêtrements de dislocations parfaites. Ceci est le signe du glissement et du stockage de dislocations parfaites combiné à du glissement dévié.
- A 20°C, on identifie des dislocations parfaites mais en nombre plus faible. Par ailleurs, des zones présentant des contrastes de franges sont visibles : il s'agit des défauts d'empilement encadrés par des dislocations partielles provenant de la dissociation des dislocations parfaites.
- A -100°C, des macles sont très bien identifiées. On remarque qu'il existe deux réseaux de macles : TW1 et TW2. TW1 s'est formé en premier : il s'agit du réseau primaire. TW2 s'est formé entre les macles TW1, il s'agit d'un réseau secondaire.

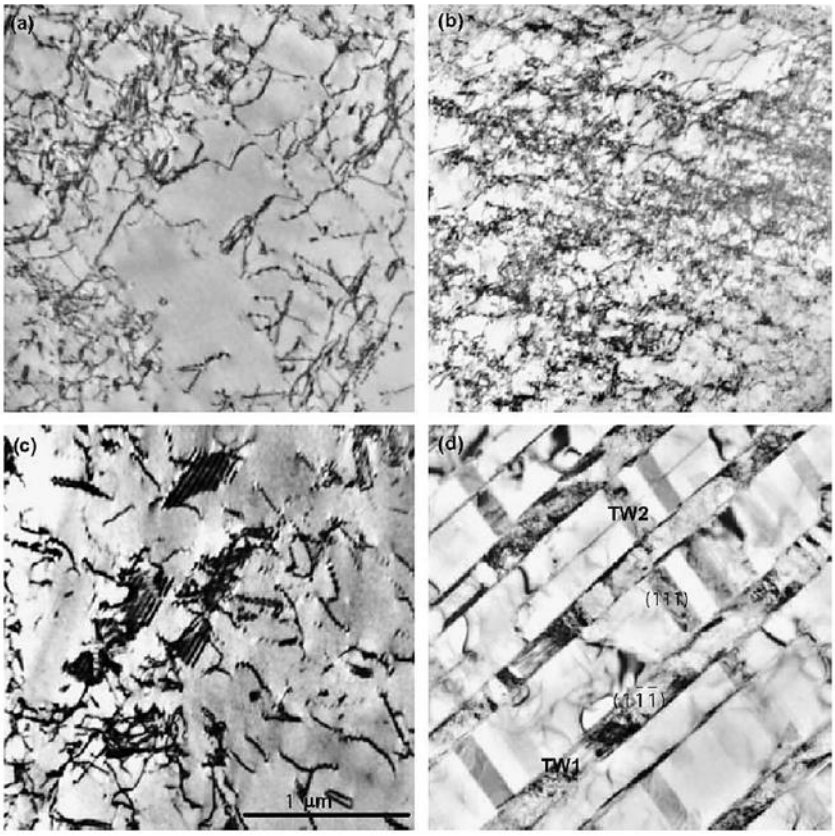


Figure I. 10 : Micrographies MET d'un acier 316LN déformé ($\varepsilon \approx 15\%$) à a) 400°C; b) 200°C; c) 20°C et d) -100°C (Byun et al., 2003).

En conclusion partielle, pour des aciers 316L et 316LN, les analyses EBSD et MET montrent que le glissement et le stockage de dislocations parfaites est opérant peu importe la température. A 20°C et aux températures inférieures, un mécanisme de déformation supplémentaire devient actif : le maclage mécanique.

Pour ces aciers, les conditions dans lesquelles le maclage s'active ne sont pas encore déterminées avec exactitude. Il existe différentes approches qui vont être passées brièvement en revue.

1.4.2. Paramètres influençant le maclage

Dans la littérature, deux paramètres clés sont discutés pour expliquer la dépendance en température du maclage :

- L'énergie de Défaut d'Empilement (EDE),
- La contrainte appliquée.

Nous proposons de nous intéresser à l'influence respective de ces deux paramètres sur le maclage puis de discuter de leur couplage.

1.4.2.1. Rôle de l'Energie de défaut d'empilement (EDE)

L'énergie de défaut d'empilement est susceptible d'évoluer avec la température. Très peu de données sont disponibles pour les aciers austénitiques inoxydables. Toutefois, un article d'intérêt (Rémy et al., 1978) présente des évolutions de l'EDE en fonction de la température pour différents systèmes ternaires Fe-Cr-Ni, comme illustré par la Figure I. 11.

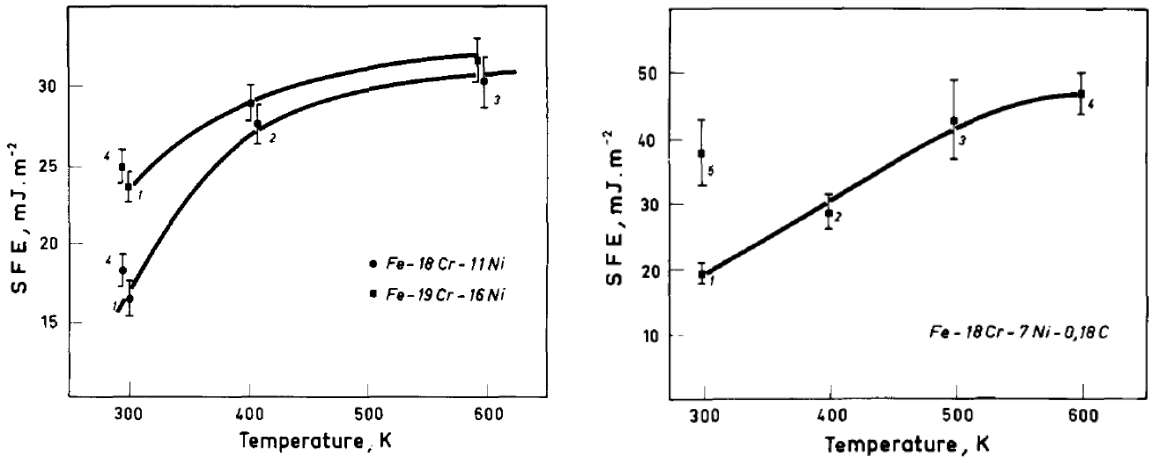


Figure I. 11 : Variation de l'EDE en fonction de la température pour des aciers de type Fe-Cr-Ni à gauche d'après (Latanision, Ruff, 1971) et à droite d'après (Abrassart, 1973), (Rémy et al., 1978).

On note principalement une élévation générale de l'EDE lorsque la température augmente. Deux domaines se distinguent : une forte croissance est observée jusqu'à 400 ou 500K, suivie d'une phase de stabilisation pour des températures allant jusqu'à 600K. Durant la première phase, une approximation linéaire permet d'estimer une valeur de coefficient directeur comprise entre 0,05 et 0,10 mJ/m²/°C (Rémy et al., 1978).

Il existe une corrélation directe entre les valeurs d'EDE et les mécanismes de déformation actifs (S Allain et al., 2004 ; Lee et al., 2010 ; Dumay et al., 2008 ; Sato et al., 1989 ; Frommeyer et al., 2003 ; Kim et al., 2011) :

- Lorsque l'EDE est élevée (supérieure à 35-40 mJ/m²), la dissociation des dislocations parfaites n'est pas favorable. Seul le glissement de dislocations parfaites peut se produire. Du glissement dévié peut également survenir.
- Lorsque l'EDE se situe à des valeurs intermédiaires (entre 20 mJ/m² et 35-40 mJ/m²), la dissociation des dislocations parfaites est courante et des macles peuvent se former.
- Lorsque l'EDE est faible (inférieure à 20 mJ/m²), la forte multiplication des défauts d'empilement peut aboutir à la formation de martensite ε.

L'EDE de l'acier 316 estimée entre 20 mJ/m² et 35 mJ/m² à 20°C selon l'équation (I. 9) permet de justifier l'activité du maclage observée à cette température sur la Figure I. 9(b). Avec un taux de croissance de 0,10 mJ/m²/°C, l'EDE de l'acier 316 est contenue dans l'intervalle entre 38 mJ/m² et 53 mJ/m² à 200°C. Ceci permet d'expliquer la disparition du maclage à cette température comme vu sur la Figure I. 9(d).

1.4.2.2. Rôle de la contrainte

Selon (Cottrell, 1964 ; 1975), la distance de dissociation des dislocations parfaites d est inversement proportionnelle à l'EDE et peut être calculée grâce à l'équation suivante :

$$d \approx \frac{G(b_p)^2}{4\,\pi\,\gamma} \qquad (I.\ 10)$$

Où G est le module de cisaillement et b_p la norme du vecteur de Burgers des dislocations partielles.

Pour un acier austénitique, d est de l'ordre d'une dizaine de nanomètres. Or la taille de certains défauts d'empilement peut atteindre la dizaine de micromètres. Si l'équation (I. 10) est appliquée pour une telle distance de dissociation, cela conduirait à une EDE invraisemblablement basse. Par conséquent, ce n'est pas l'EDE seule qui peut contrôler l'activité de maclage (Byun et al., 2003).

D'autres auteurs soulignent qu'une faible EDE est une condition nécessaire, mais non suffisante pour activer le maclage (Allain, 2004).

(Byun et al., 2003) suggèrent que c'est la contrainte macroscopique lors de l'essai, qui gouverne le maclage. Ainsi, il est possible de définir trois domaines de contraintes comme illustré, pour des aciers 316 et 316LN, sur la Figure I. 12 :

- Lorsque la contrainte appliquée est inférieure à 400 MPa, le glissement et l'enchevêtrement des dislocations parfaites est le mécanisme majoritaire.
- Entre 400 et 600 MPa, les premiers défauts d'empilement apparaissent parallèlement au glissement des dislocations parfaites.
- Au-dessus de 600 MPa, le maclage mécanique devient le mécanisme dominant. Cette valeur est considérée comme critique pour l'activation du maclage.

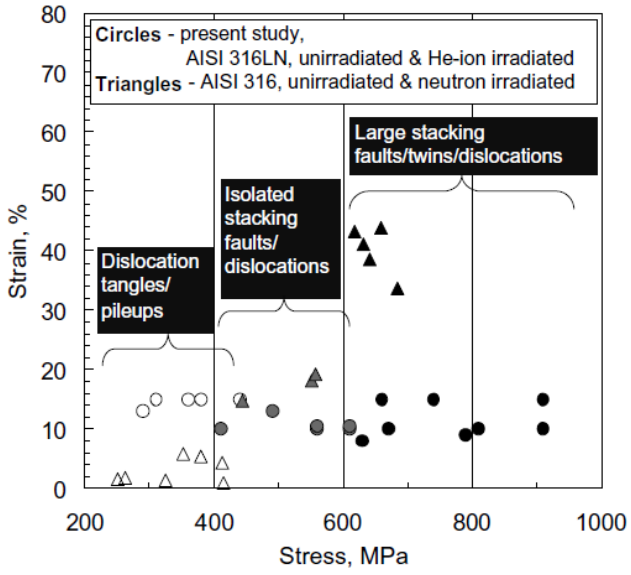


Figure I. 12 : Evolution des mécanismes de déformation en fonction de la contrainte pour un acier 316LN (Byun et al., 2003).

Cette représentation permet d'expliquer correctement les évolutions des microstructures de déformation de la Figure I. 10 entre -100°C et 400°C. Lorsque la température augmente, la résistance

maximale en traction (R_m) du 316 LN recristallisé diminue, comme vu sur les courbes de la Figure I. 7. Par exemple, à 400°C, R_m vaut environ 400 MPa. Le matériau n'a donc pas suffisamment durci pour atteindre la valeur critique de contrainte pour l'activation du maclage. De ce fait, seulement des enchevêtrements de dislocations parfaites sont observés en Figure I. 10(a). A -100°C, R_m vaut environ 1000 MPa, la valeur critique de contrainte pour l'activation du maclage est dépassée, l'acier macle (Figure I. 10(d)).
Selon (Byun et al., 2003), la contrainte critique d'activation du maclage pour les aciers 316 et 316LN se situe donc à ~600 MPa.

1.4.2.3. Dépendance de la contrainte de maclage en fonction de l'EDE

Il est possible de définir une cission résolue critique de maclage τ_T, qui est directement proportionnelle à l'Energie de Défaut d'Empilement. Elle s'écrit le plus couramment selon l'équation (I. 11) (De Cooman et al., 2018).

$$\tau_T = \propto \frac{\gamma}{b_p} + Cte \qquad (I.\ 11)$$

Les paramètres $\propto$ et Cte sont souvent ajustés pour chaque matériau. Le terme Cte prend en compte des effets comme, entre autre, la taille de grain, des longueurs de dislocations ou des tailles de boucles de dislocations.
Pour les aciers inoxydables austénitiques, cette relation peut s'écrire sous la forme (I. 12) proposée par (Byun, 2003).

$$\tau_T = 2\frac{\gamma}{b_p} \qquad (I.\ 12)$$

τ_T peut être reliée à la contrainte macroscopique d'activation du maclage σ_T, via le facteur de Schmid moyen (SF), comme précisé sur l'équation (I. 13).

$$\sigma_T = \frac{1}{SF}\ \frac{2\gamma}{b_p} \qquad (I.\ 13)$$

En ce qui concerne SF, (Byun, 2003) sélectionne la valeur de 0,326, proposée par (Taylor, Floyd, 1938) pour les aciers inoxydables polycristallins. La relation devient donc :

$$\sigma_T = 6{,}14\ \frac{\gamma}{b_p} \qquad (I.\ 14)$$

Dans le cas d'un acier 316 avec une EDE estimée à 14,2 mJ/m² à 20°C, σ_T se situe aux alentours de 600 MPa, comme suggéré au paragraphe précédent (b_p est égal à 0,145 nm).

Certains auteurs, comme (Wu et al., 2006), révisent cette relation en déterminant $SF = 0{,}465$ pour un acier 316L. Par ailleurs, avec les valeurs d'EDE fournies par (Rémy et al., 1978), les auteurs évaluent l'évolution de σ_T en fonction de la température. Sur la Figure I. 13, elle est comparée à l'évolution de la résistance maximale en traction (appelée contrainte de striction) de l'acier 316L. On remarque que σ_T augmente continûment en fonction de la température, alors que la résistance maximale quant à elle ne cesse de diminuer. A partir de 120°C, la contrainte critique de striction est plus faible que σ_T. Cela signifie qu'au-delà de cette température, σ_T ne peut jamais être atteinte. C'est la raison pour laquelle le maclage ne s'active plus.

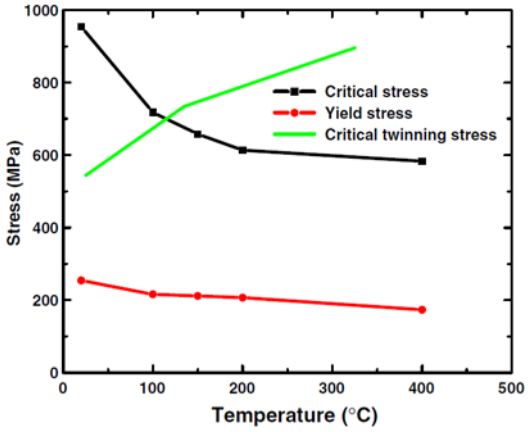


Figure I. 13 : Dépendance en température de la résistance maximale en traction, de σ_T et de la limite d'élasticité pour un acier 316L (Wu et al., 2006).

1.4.3. Incidence de l'activation du maclage sur le comportement en traction

L'écrouissage d'un métal désigne sa capacité à durcir lors de la déformation plastique. Il est le résultat de l'interaction des dislocations en mouvement et des obstacles qu'elles rencontrent. Plus le métal peut s'écrouir, moins il sera sensible à la localisation de la déformation, et donc à l'apparition d'une striction conduisant à la rupture.

Le maclage mécanique influe fortement sur l'écrouissage selon deux composantes : une isotrope et une cinématique.

- La composante isotrope repose sur un effet appelé « Hall-Petch Dynamique » (S. Allain et al., 2004 ; Bouaziz, Guelton, 2001). Dans un grain, les joints de macle sont des interfaces cohérentes, mais de forte désorientation. Elles ne sont pas franchissables par les dislocations et sont donc des obstacles au glissement. L'apparition de macles mécaniques réduit progressivement le libre parcours moyen des dislocations comme illustré sur Figure I. 14(a). Ceci est analogue à une réduction dynamique de la taille de grain. Les dislocations s'accumulent graduellement contre les parois de macles, qui apparaissent progressivement. Ceci entraine un fort durcissement de la microstructure et une augmentation de la capacité du matériau à stocker les dislocations.

- La composante cinématique repose sur la génération de contraintes internes par les macles (Bouaziz et al., 2008). Les empilements de dislocations sur les macles génèrent des contraintes internes locales qui s'opposent à la contrainte appliquée sur les plans de glissement. Cela se traduit notamment par une augmentation progressive de la distance inter-dislocations dans l'empilement en s'éloignant du joint de macle, comme exposée sur la Figure I. 14(b). Pour contrecarrer l'effet des contraintes internes τ_{BS}, il est nécessaire d'augmenter la contrainte de cisaillement sur le plan de glissement τ_A. De ce fait, le coefficient d'écrouissage s'accroit.

La combinaison de ces deux effets permet à la fois d'atteindre de fortes contraintes et une grande ductilité, qui est le principe de l'effet TWIP vu précédemment.

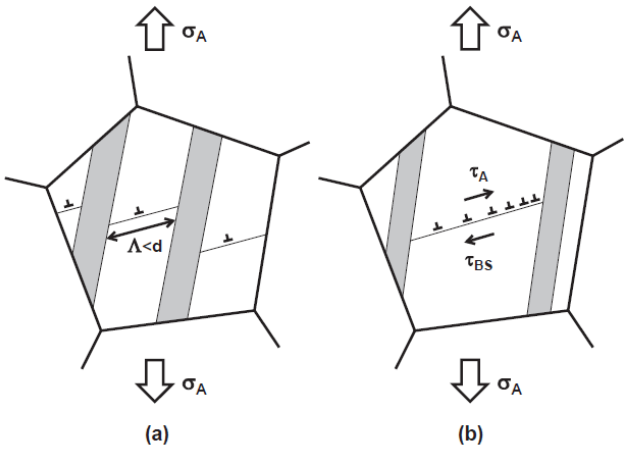


Figure I. 14 : Schématisation pour (a) de l'effet Hall-Petch Dynamique; (b) de l'effet des contraintes internes. σ_A correspond à la contrainte appliquée sur le grain ; d et Λ sont respectivement la taille de grain et la distance inter-macles ; Enfin τ_A et τ_{BS} représentent la contrainte de cisaillement respectivement résultante de σ_A et des contraintes internes (De Cooman et al., 2018).

Par ailleurs, le maclage mécanique est très efficace pour accroitre la ductilité car il contribue également à la déformation plastique (Meyers et al., 2001). En effet, la formation d'une macle mécanique induit un déplacement égal au moins à la norme de 3 vecteurs de Burgers de dislocations partielles ($3b_p$), comme vu sur la Figure I. 2. De plus, ce déplacement est irréversible : contrairement aux dislocations parfaites, les macles mécaniques ne sont pas soumises à recombinaisons ou réarrangements (sous réserve que des mécanismes de démaclage n'interviennent pas).

En résumé, le maclage mécanique procure une excellente ductilité à de nombreux aciers austénitiques à température ambiante. Lorsque la température augmente, il disparait et son effet bénéfique sur l'écrouissage est perdu. C'est la raison pour laquelle les allongements en traction diminuent (cf. § 1.3.2).

2. Précisions sur l'alliage 15-15Ti et la nuance AIM1

La nuance 15-15Ti AIM1 (Austenitic Improved Material #1) est le résultat d'une intense recherche effectuée par le CEA. Elle a été mise au point spécifiquement pour l'application « gainage du combustible » des réacteurs à neutrons rapides refroidis au sodium (RNR-Na) et utilisée pour les dernières recharges du réacteur Phénix dans les années 2000.
Pour mieux situer l'intérêt des travaux entrepris dans cette thèse, il est opportun de rappeler le contexte de l'utilisation de l'acier 1515Ti AIM1, et d'évoquer l'état des connaissances en lien avec la problématique de notre étude (évolution microstructurale lors d'un vieillissement hors flux et singularité de comportement en traction).

2.1. Contexte d'utilisation justifiant la composition chimique et la gamme de fabrication

2.1.1. Le phénomène de gonflement

Dans le cœur d'un RNR-Na, les conditions d'irradiation sont extrêmes (ANON., 2008). L'impact des neutrons de haute énergie (neutrons rapides) sur le matériau provoque une expulsion des noyaux atomiques de leur position initiale et produit ainsi une cascade d'évènements tels que :

- La permutation entre atomes de la structure cristalline,
- La création de défauts ponctuels de type paires de Frenkel.

Les défauts ponctuels de type paires de Frenkel sont constitués en nombre équivalent de lacunes et d'atomes interstitiels. La température nominale de service permet une grande mobilité de ces défauts nouvellement créés. S'ils ne peuvent pas se recombiner mutuellement, ils vont se regrouper sous forme d'amas. Les amas lacunaires conduisent à la germination de cavités. Ces cavités vont être stabilisées par l'accumulation des gaz de transmutation à l'intérieur (notamment l'hélium ou l'hydrogène) et vont pouvoir ainsi croître. Ce processus de germination et de croissance de cavités, aboutit à une augmentation volumique du matériau, appelé gonflement.

Le gonflement est quantifié par la déformation diamétrale du tube ou plus directement par des mesures de densités, en corrélation avec le dommage créé par les cavités au sein de la structure. Le dommage créé est mesuré par l'unité appelée déplacement par atome (dpa). Par exemple, une dose de 100 dpa signifie que chaque atome du matériau irradié s'est en moyenne déplacé 100 fois.

Le gonflement est l'un des phénomènes le plus limitant pour la durée de vie des gaines en réacteur. Il doit être maintenu en deçà de valeurs compatibles avec le respect de critères fonctionnels (minimisation de l'instabilité dimensionnelle des structures) et/ou structurels (atteinte d'une valeur seuil de fragilisation induite par les cavités de gonflement).

2.1.2. Historique et origine de l'acier 15-15Ti AIM1

En France, plusieurs nuances ont été développées et utilisées avant d'aboutir au 15-15Ti AIM1. La Figure I. 15 présente l'amélioration de la résistance au gonflement des différents aciers employés comme tubes de gaine dans les réacteurs expérimentaux français (Rapsodie, Phénix ou SuperPhénix).

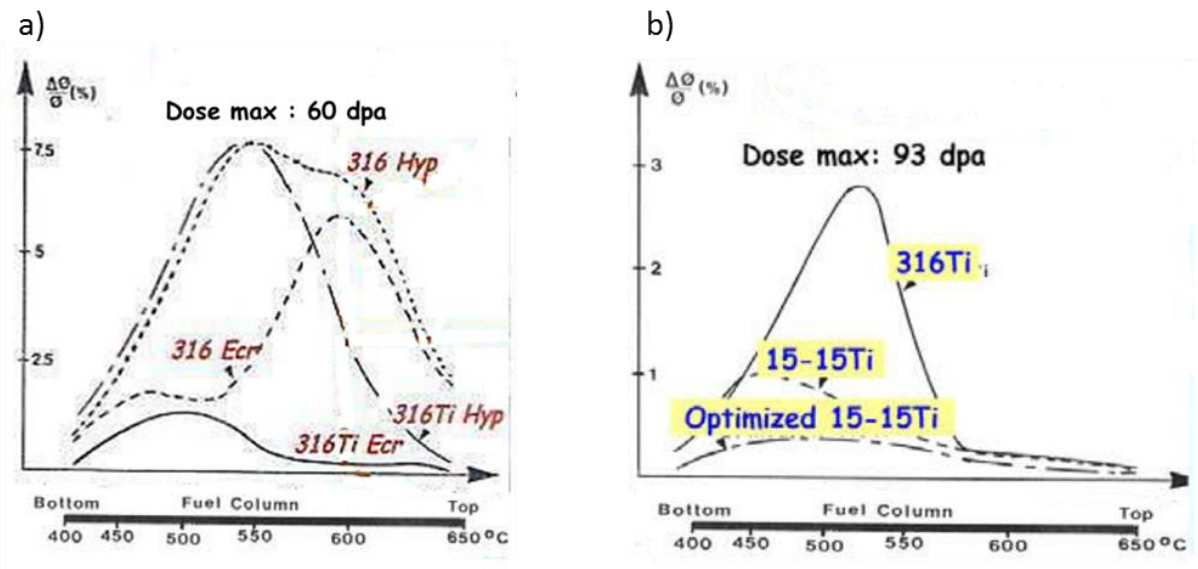


Figure I. 15 : Evolution de la déformation diamétrale (quantifiant le gonflement) des gaines du réacteur Phénix en fonction de la température (selon la position dans l'assemblage), a) pour une dose de 60 dpa, b) pour une dose de 93 dpa (Séran, 2014).

Historiquement, les premiers tubes de gaine étaient en acier 316 hypertrempé. Leur gonflement était important et s'étalait sous forme d'un large pic entre 400°C et 650°C comme le montre la Figure I. 15 à gauche. Par la suite, différentes améliorations ont été apportées pour diminuer le gonflement :

- La première a consisté à ajouter du titane dans l'acier. Cet élément, présent en solution solide, permet d'augmenter la dose d'incubation avant que le gonflement débute. On observe alors un affinement du pic autour de 400°C - 600°C pour du 316Ti hypertrempé.

- Une autre amélioration a été obtenue en écrouissant l'acier 316. En effet, les dislocations, présentes dans le métal, permettent d'éliminer les défauts d'irradiation par piégeage (Séran, 2014). Dans ce cas, le gonflement se manifeste par :
  - Une première « bosse » entre 400°C et 550°C,
  - Un pic persistant entre 550°C et 650°C.

- L'amélioration suivante a combiné les deux précédentes pour obtenir le 316Ti écroui, où seul le gonflement de première bosse persiste. Cette optimisation conserve l'effet bénéfique du titane en solution solide, et utilise aussi sa capacité à précipiter sous forme de nanocarbures (TiC) pour stabiliser le réseau de dislocation. Les interfaces TiC-matrice peuvent être également des pièges à défauts d'irradiation.

La Figure I. 15(b) compare les comportements du 316Ti écroui et du 15-15Ti écroui. Un gain substantiel sur la résistance au gonflement a pu être obtenu grâce à l'augmentation de la teneur en nickel, en utilisant un rapport de composition chrome/nickel proche de 1. Enfin, pour arriver au 15-15Ti AIM1 (inclus dans la dénomination « Optimized 15-15Ti » sur la Figure I. 15), la dernière optimisation a concerné l'ajustement de la composition en éléments mineurs notamment le silicium et le phosphore.

A l'heure actuelle, le gonflement de première bosse, bien que diminué de manière significative, demeure toujours perceptible.

2.1.3. Composition chimique et spécification de fabrication

La composition chimique du 15-15Ti AIM1 est définie de manière précise pour garantir une résistance maximale du matériau au gonflement. Les spécifications en teneur minimale et maximale pour chaque élément sont données dans le Tableau I. 2. Il est précisé également la composition de deux aciers 15-15Ti selon la norme DIN 1.4970 et la désignation D9I, qui sont très proches de la nuance AIM1 et développés pour la même application de gaine de combustible pour des réacteurs rapides étrangers.

Composition (% massique)		**Cr**	**Ni**	**C**	**Ti**	**Mo**	**Mn**	**Si**	**P**	**B**	**Fe**
15-15Ti AIM1	**Spécif. max.**	14	14	0.080	0,30	1,30	1,00	0,70	0,030	0,003	Bal.
	Spécif. min.	16	16	0,100	0,50	1,70	2,00	0,90	0,050	0,008	Bal.
DIN 1.4970 (*Allemagne-Belgique)*		15	15	0.1	0.5	1.2	1.5	0.4	-	0,005	Bal.
D9I (*Inde)*	**min.**	13,5	14,5	0,035	5 x C	2,0	1,65	0,5	0,02 max.	0,001	Bal.
	max.	14,5	15,5	0,050	7 x C	2,5	2,35	0,75		0,002	

Tableau I. 2 : Comparaison de la composition chimique du 15-15Ti AIM1 avec d'autres aciers similaires (International Atomic Energy Agency (IAEA), 2012).

Par rapport aux normes DIN 1.4970 et UNS S31272 (Tableau I. 1) et à l'alliage D9I, la nuance 15-15Ti AIM1 est enrichie en silicium et en phosphore. Ces deux éléments permettent d'accroitre la résistance au gonflement de l'acier. Le rapport Ti/C est optimisé dans ce même objectif.

Le retour d'expérience acquis par le CEA sur les RNR-Na a mis en avant l'importance des étapes de fabrication des tubes de gaines. Il existe une spécification de fabrication, dont la plupart des éléments ne sont pas détaillés dans ce manuscrit par soucis de confidentialité. Des travaux de recherche récents ont toutefois été menés sur ce sujet (Courtin, 2015). On soulignera ici l'importance des étapes ultimes de fabrication, qui confèrent à l'acier de gainage son état métallurgique particulier :

- L'avant dernière étape de fabrication est un traitement d'hypertrempe, suivi d'un refroidissement rapide. La température d'hypertrempe doit être suffisamment élevée pour assurer une bonne remise en solution des éléments d'alliages qui, pour certains, sont sous forme de précipités (le titane notamment). Cependant, cette température ne doit être trop élevée pour éviter d'obtenir une taille de grain excessive et hétérogène. Il est notamment spécifié un indice de grosseur de grain G entre 5 et 9 (convention ASTM).

- La dernière étape de fabrication est un écrouissage du tube entre 20% et 25% pour introduire les dislocations nécessaires au piégeage des défauts d'irradiation. La Figure I. 16 schématise ces deux dernières étapes de fabrication.

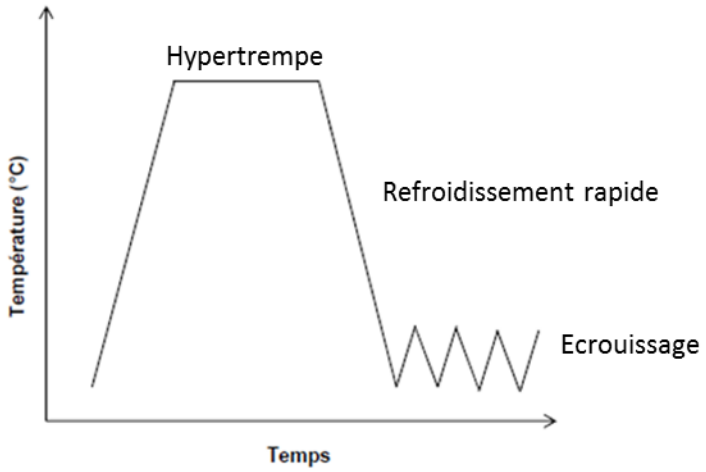


Figure I. 16 : Dernières étapes de la fabrication des gaines en 15-15Ti AIM1.

2.2. Influence du vieillissement thermique à partir de 400°C sur la microstructure du 15-15Ti

Un vieillissement thermique statique à partir de 400°C peut potentiellement provoquer deux évolutions majeures de la microstructure :

- Une précipitation,
- Une restauration du réseau de dislocations.

Ces deux aspects vont être examinés dans cette partie.

2.2.1. Précipitation

La présence de nombreux éléments d'addition dans la composition chimique de l'acier 15-15Ti engendre une précipitation abondante et variée lors d'un maintien en température supérieur à 400°C. Il peut se former soit des précipités inhibiteurs de gonflement, soit d'autres précipités (voire phases) fragilisant(e)s.

Il convient aussi de noter que la nature des précipités formés est susceptible d'être modifiée en cas d'une exposition à un flux neutronique ou ionique. Il ne sera évoqué ici que les précipités se formant hors irradiation.

Il existe deux familles de précipités dans le 15-15Ti AIM1, à l'état de réception, en fin de gamme de fabrication (Courtin, 2015) :

- Les précipités primaires, qui se forment lors de la coulée en lingot et qui ne sont pas dissous lors de l'hypertrempe. Ils ont une taille comprise entre quelques centaines de nanomètres et une dizaine de microns (voir Figure I. 17). Il s'agit souvent de carbures de titane ou de carbonitrures de titane contenant également du molybdène (Ti,Mo)C ou (Ti,Mo)(C,N). Ils ont souvent une forme cuboïdale et une structure CFC. Il existe également des carbosulfures de titane (Ti_2CS), dont la forme est allongée présentant une structure HC (Courtin, 2015).
  Dans le cas des (Ti,Mo)(C,N), les précipités ont une structure cœur-coquille :
  - Le cœur contient uniquement du titane et de l'azote,
  - La coquille est enrichie en molybdène et carbone.

- Les précipités secondaires, qui sont remis en solution lors du traitement d'hypertrempe. Ils sont susceptibles de réapparaitre lors d'un vieillissement thermique.

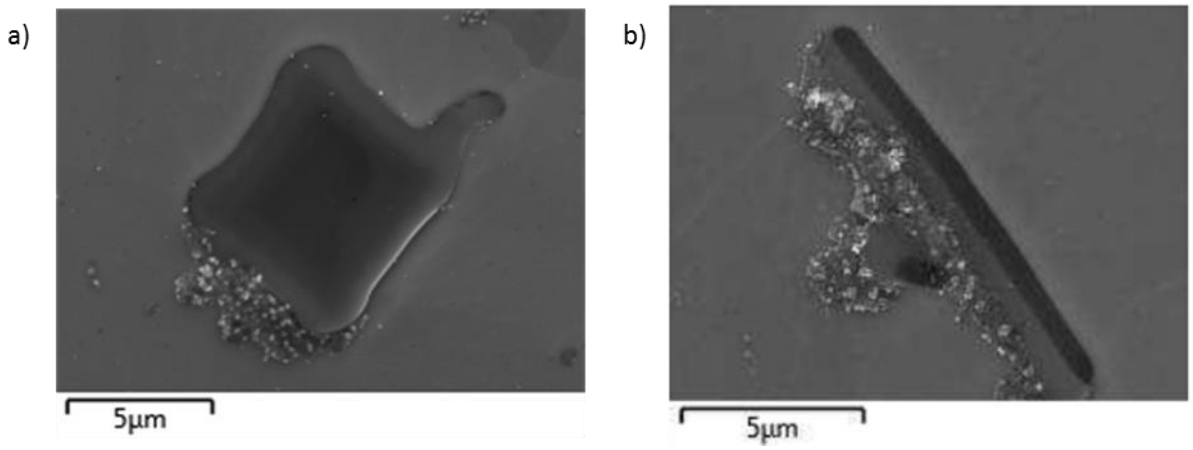


Figure I. 17 : Micrographies MEB obtenue sur une coupe polie présentant en a) un carbonitrure de titane et en b) un carbosulfure de titane (Courtin, 2015).

2.2.1.1. Typologie des précipités susceptibles de se former lors du vieillissement

La précipitation secondaire peut se décomposer en trois classes distinctes (les lettres M et N désignent les métaux de transition) :

- Les carbures à base de titane ou de chrome, de type MC, M_6C ou $M_{23}C_6$.
- Les phases intermétalliques de type M_xN_y.
- Les phosphures et borures de type respectivement M_xP et M_xB_y.

Quelques précisions sont données sur ces précipités dans la suite de ce paragraphe.

2.2.1.1.1. Les Carbures

Les carbures de titane :

Les carbures de titane secondaires (TiC) appartiennent à la famille des carbures de type MC. Ils ont une structure cristallographique CFC et ils sont en totale épitaxie avec la matrice. Leur paramètre de maille est $= 4{,}33\ \text{Å}$. De ce fait, les TiC ont un désaccord de maille de l'ordre de 20% avec la matrice austénitique (Padilha et al., 1982). Ce désaccord rend la formation des TiC dans l'austénite difficile : ils germent donc préférentiellement sur des défauts comme les dislocations (Kesternich, 1985a). L'écrouissage du métal est donc favorable à l'apparition des TiC lors du vieillissement. Par ailleurs, la densité de précipités est directement corrélée au taux d'écrouissage : Plus le taux d'écrouissage est important, plus les TiC sont nombreux, fins et bien dispersés (Kesternich, Meertens, 1986 ; Gopalan et al., 1998).

Ces carbures ont une forte affinité pour les atomes de molybdène, qui se substituent souvent à ceux de titane (Lee, Mansur, 2000). Le Tableau I. 3, obtenu grâce à des analyses en Sonde Atomique Tomographique (SAT), indique la composition des TiC du 15-15Ti AIM1 après 18h de recuit à 650°C : on remarque que les TiC secondaires contiennent en moyenne 13,25% at. de molybdène (Kountchou Tawokam, 2018), d'où leur désignation souvent comme (Ti,Mo)C.

Eléments	C	Mo	Ti	Cr	Mn	Ni	Si	P	O	Fe	N
Comp. Moy. (%at.)	27,5	13,25	21,7	10,97	0,63	4,5	0,11	1,45	4,57	12,97	1,43

Tableau I. 3 : Composition chimique, en % at., des carbures de titane nanométrique formés dans le 15-15Ti AIM1 après 18h de recuit à 650°C C (Kountchou Tawokam, 2018).

Quelques carbures de titane nanométriques sont entourés en rouge sur la micrographie MET présentée en Figure I. 18 (Mateus Freire, 2018). Ils apparaissent sous forme de franges de Moiré en raison d'interférences dans le signal transmis. Ces interférences sont provoquées par le désaccord de maille avec la matrice. Les contrastes plus foncés autour des précipités sont les dislocations et les déformations qu'elles induisent. La morphologie des précipités est elliptique et leur taille n'excède jamais une dizaine de nanomètres.

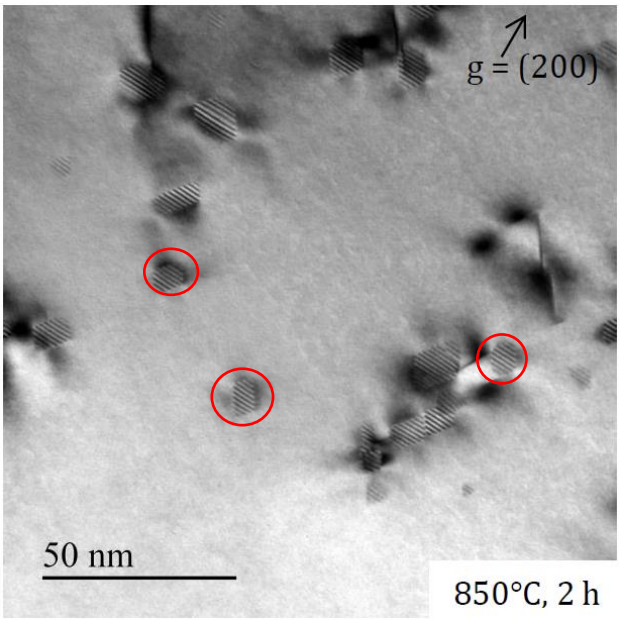


Figure I. 18 : Micrographie MET en champ clair de nano-TiC formés dans le 15-15Ti AIM1 après 2 h de vieillissement à 800°C ($\vec{g}$= 200), (Mateus Freire, 2018).

Les carbures de chrome :

Les carbures de chrome sont de formule $M_{23}C_6$, où M représente le chrome, mais il peut être substitué par des éléments tels que le molybdène, le fer, le nickel (Lacombe et al., 1993). Ils ont une structure cristallographique CFC et leur paramètre de maille est $a = 10,60$ Å (Goldschmidt, 1967). Les relations d'orientation entre la matrice et les carbures $M_{23}C_6$ sont les suivantes (Lai, 1983) :

- $\{100\}_\gamma$ // $\{100\}$ $M_{23}C_6$
- $<100>_\gamma$ // $<100>$ $M_{23}C_6$

Ces carbures précipitent de manière préférentielle aux joints de grains. Cela provoque une déplétion en chrome dans ces zones, rendant l'acier sensible à la corrosion intergranulaire (Paxton, Austin, 1972). Pour cette raison, la précipitation des carbures de chrome n'est le plus souvent pas souhaitée.

Pour l'acier 15-15Ti AIM1, l'ajout de titane permet de ralentir la précipitation des $M_{23}C_6$: le titane, ayant une plus grande affinité pour le carbone que le chrome, la précipitation des TiC intervient en premier lieu et une quantité moindre de carbone reste disponible pour former des $M_{23}C$ (Grot, Spruiell, 1975).

Les $M_{23}C_6$ peuvent atteindre la taille du micromètre (Spruiell et al., 1973). Ils ont souvent une forme allongée dans la direction du joint de grains.

2.2.1.1.2. Les phases intermétalliques

En dehors des carbures, la formation de phases intermétalliques est possible. Ces phases sont indésirables car très fragiles. La nucléation de la phase σ, de formule stœchiométrique $(Cr,Mo)_{35}(Fe,Ni)_{65}$, requiert une haute énergie d'interface associée par exemple à des joints triples ou des joints de grain fortement désorientés (Singhal, Martin, 1969).
D'autres phases intermétalliques peuvent également apparaître comme la phase χ de formule $Fe_{36}Cr_{12}Mo_{10}$ (Kasper, 1954) ou des phases de Laves η de formule Fe_2Mo (Weiss, Stickler, 1972).

2.2.1.1.3. Les borures et phosphures

La précipitation de borures est envisageable dans les aciers 15-15Ti contenant une très faible quantité de bore. Pour un acier DIN 1.4970 proche du 15-15Ti AIM1, (Padilha, Schanz, 1980) observent la précipitation de borures à partir d'une teneur globale en bore de 30 ppm. Ils sont souvent composés de chrome et de fer et suivent la stœchiométrie $(Cr,Fe)B_2$. Ils ont une forme allongée pouvant aller jusqu'à plusieurs centaines de nanomètres, et sont localisés aux joints de grains (Garcia-Borquez, Kesternich, 1985).
La thèse de (Delalande, 1992) nous renseigne sur la précipitation de phosphures. Leur formation n'est possible que si l'acier a une teneur supérieure à 700 ppm de phosphore. Par ailleurs, la présence d'éléments stabilisants (Ti, Nb, V) est nécessaire. La morphologie des phosphures s'apparente à des aiguilles très fines pouvant atteindre quelques centaines de nanomètres de long. Ils germeraient à proximité des dislocations. Comme les TiC secondaires, les phosphures permettraient de stabiliser le réseau de dislocations et de constituer des sites de recombinaison pour les défauts induits par l'irradiation.

2.2.1.2. Cinétique de précipitation et domaine d'existence en températures des précipités

La précipitation dans les aciers inoxydables austénitiques stabilisés a largement été étudiée pour des domaines de température supérieurs à 600°C. Quelques données sont disponibles sur le domaine d'intérêt de la thèse (400°C-600°C). Elles vont être décrites dans la partie qui suit.

2.2.1.2.1. Analyses des diagrammes TTP

Il est possible de représenter la cinétique de précipitation par des diagrammes TTP (Temps – Température – Précipitation). Aucun diagramme TTP n'existe pour le 15-15Ti AIM1, mais il est possible de se référer à des aciers 15-15Ti voisins tel que le DIN 1.4970 comme reporté en Figure I. 19.

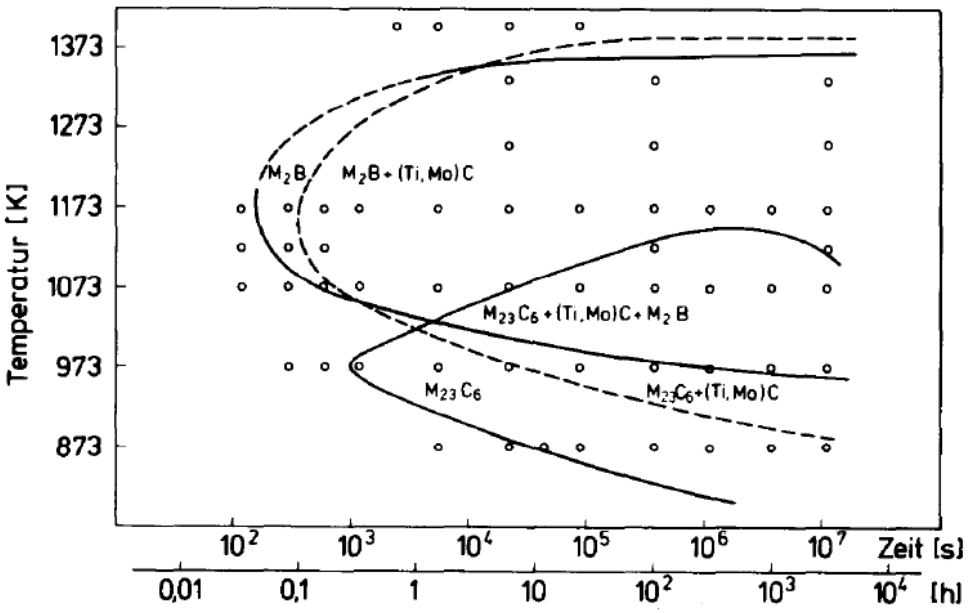


Figure I. 19 : Diagramme TTP d'un acier 15-15Ti écroui (ε = 15%) répondant à la norme DIN 1.4970 (Padilha et al., 1982).

On constate sur le diagramme la présence d'un nez de précipitation à 900°C (1173K) pour les borures et les TiC. Concernant les $M_{23}C_6$, la cinétique de précipitation est la plus rapide à 700°C (973K). Plus la température diminue, plus le temps nécessaire pour l'apparition de ces précipités augmente.

Selon le diagramme, la précipitation des TiC secondaires ne se produirait à la température de 600°C qu'après un temps de maintien d'au minimum 5000 heures. Les $M_{23}C_6$ peuvent apparaitre quant à eux dès 8 heures de vieillissement. Ils sont également susceptibles de se former à des températures inférieures, par exemple à 500°C après environ 500 heures de traitement.

La précipitation de borures ne survient qu'à des températures supérieures à 700°C. Concernant les phosphures, le diagramme n'y fait pas référence car l'acier en question ne contient pas de phosphore. Cependant, ils ont été observés dès 15 h de vieillissement à 650°C sur le 15-15Ti AIM1 (Kountchou Tawokam, 2018). Il n'est pas à exclure qu'ils apparaissent à plus basses températures pour des temps longs.

Enfin, la précipitation de phases intermétalliques n'est pas décelée pour les temps de maintien mis en œuvre. Par ailleurs, la présence de phases intermétalliques est fortement improbable dans le 15-15Ti AIM1, d'après (Mateus Freire, 2018).

2.2.1.2.2. Mécanisme de germination et étude spécifique de la cinétique de précipitation des TiC secondaires

L'importance des TiC secondaires vis-à-vis de la résistance au gonflement a conduit à de nombreuses études visant à comprendre leur mécanisme de germination et leur cinétique de précipitation.

Un mécanisme impliquant les dislocations a été proposé par (Kesternich, 1985a) : lors du vieillissement en température, la mobilité des dislocations augmente. Les dislocations en mouvement balayent des solutés de titane et de carbone. Lorsqu'elles réagissent, la concentration en soluté est suffisante pour faire germer un TiC. Ensuite, la taille des TiC augmente jusqu'à épingler les dislocations

et arrêter leur mouvement. Ceci marque la fin de la croissance des TiC. C'est pour cette raison qu'ils n'excèdent jamais plus d'une dizaine de nanomètre en taille.
Des travaux très récents suggèrent que les TiC ne germent pas sur les lignes des dislocations parfaites, mais sur les lignes des dislocations partielles (Cautaerts et al., 2019).

La croissance limitée des TiC est confirmée pour le 15-15Ti AIM1 comme le montre la Figure I. 20. Celle-ci représente l'évolution de la taille des TiC en fonction du temps lors d'un vieillissement à 650°C (Kountchou Tawokam, 2018). A cette température, la formation des TiC se produit dès les premières minutes de maintien. Puis, le diamètre moyen des carbures se stabilise à partir de 25 heures aux alentours de 5 nanomètres. Sur la figure est également tracée l'évolution de la taille des TiC dans un acier 15-15Ti (selon DIN 1.4970) à 750°C (Kesternich, 1985b). On observe la même tendance que celle observée dans le 15-15Ti AIM1 à 650°C, avec un diamètre moyen des TiC un peu plus élevé en cohérence avec l'écart de température de 100°C.

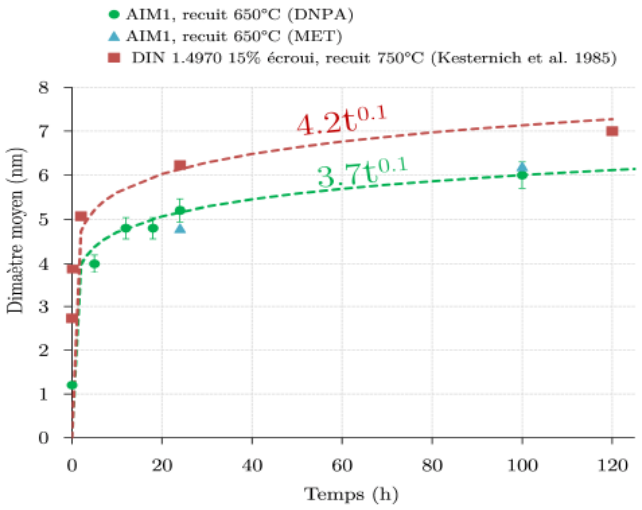


Figure I. 20 : Evolution du diamètre moyen des TiC en fonction du temps de vieillissement à 650 et 750°C (Kountchou Tawokam, 2018).

Pour la cinétique de précipitation à plus basse température, des recherches également récentes sur l'acier 15-15Ti DIN 1.4970 écroui (ε = 24%) révèlent l'apparition de TiC dès 4 heures de vieillissement à 600°C (Cautaerts et al., 2018). Ce résultat est en contradiction avec le diagramme TTP de la Figure I. 19 selon lequel un temps de plusieurs milliers d'heures était requis pour former des TiC. Ceci pourrait être expliqué par une différence de taux d'écrouissage (ε =24% ici contre ε =15% précédemment).

Aucune précipitation n'est détectée après vieillissement à 500°C sur le DIN 1.4970. Il est avancé que le seuil d'apparition des TiC se situe entre 500°C et 600°C (Cautaerts et al., 2018).

2.2.2. Phénomène de restauration

Il a été évoqué au paragraphe précédent que la mobilité des dislocations, induites par écrouissage, augmente lors d'un maintien à température suffisante. L'interaction des dislocations entre elles peut conduire à une restauration du matériau.

Selon (Chowdhury et al., 2011), le processus de restauration de l'acier 15-15Ti « D9I » se déroule en deux étapes :

- La première consiste en la formation de domaines (cellules de dislocations, composées de murs denses et de zones pauvres en dislocations) grâce au réarrangement des dislocations. La taille des domaines est alors en forte croissance.
- La deuxième étape est une phase d'annihilation. En effet, la densité de dislocations devient très élevée dans les murs des cellules. Par conséquent, la probabilité qu'une dislocation s'annihile en rencontrant (par glissement, glissement dévié ou plus rarement par montée) une autre dislocation, ayant un vecteur de Burgers opposé et un vecteur de ligne de même sens, augmente sensiblement. La croissance des domaines devient beaucoup plus faible.

Les auteurs ont suivi l'évolution de la taille des domaines en fonction du temps et de la température de vieillissement en diffraction in-situ des rayons X sur poudre d'acier « D9I » lourdement écrouie (ε = 80%). Les résultats sont présentés sur la Figure I. 21. Pour chaque température, les lignes continues modélisent l'étape 1 du processus de restauration où les dislocations se réarrangent ; Les lignes en pointillés modélisent l'étape 2 où les dislocations s'annihilent.
On constate que plus la température de vieillissement est élevée, plus la taille des domaines devient grande et plus la transition entre les mécanismes de réarrangement et d'annihilation des dislocations s'opère rapidement. Ceci est expliqué par l'activation du glissement dévié et de la montée avec la température qui facilite fortement la mobilité des dislocations.
Par ailleurs, il est souligné qu'en dessous de 550°C (823K), la croissance des domaines est très faible et seul le mécanisme d'arrangement des dislocations est présent. En effet, on observe sur la Figure I. 21 que l'évolution de la taille des domaines à 400°C et 500°C (673 et 773K) est uniquement tracée par des lignes continues modélisant l'étape 1 du processus de restauration. Selon les auteurs, la restauration ne pourra jamais être complète à ces températures.

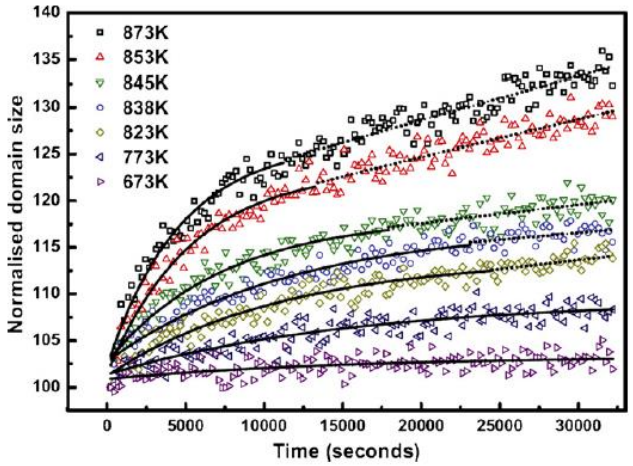


Figure I. 21 : Evolution de la taille des domaines en fonction de la durée et de la température de vieillissement. Les lignes noires continues modélisent l'étape 1 où les dislocations se réarrangent. Les lignes en pointillés modélisent l'étape 2 où les dislocations s'annihilent (Chowdhury et al., 2011).

D'autres travaux par calorimétrie différentielle à balayage (Tripathy et al., 2013) révèlent que le pic de restauration de poudre d'acier « D9I » fortement écrouie ($\varepsilon \approx 85\%$) se site à 542°C.

Cependant, l'ensemble de ces travaux portent sur des poudres et non des matériaux massifs.

Des études menées sur des nuances antérieures au 15-15Ti AIM1 avancent que la restauration ne débute pas avant 650°C pour des états écrouis à 20% (Ghuezaiel, 1985 ; Delalande, 1992).

Les dernières recherches effectuées sur le 15-15Ti AIM1, notamment en diffraction des neutrons, indique que la densité de dislocations n'aurait diminué que de 30% après 100 heures de vieillissement à 650°C (Mateus Freire, 2018).
Enfin, des observations au MET, pour les mêmes conditions de traitement, montrent que le réseau de dislocations reste très dense comme illustré sur la Figure I. 22 (Kountchou Tawokam, 2018). Les cellules de dislocation sont de même taille (≈ 200 nm) que celles identifiées dans l'état avant vieillissement.

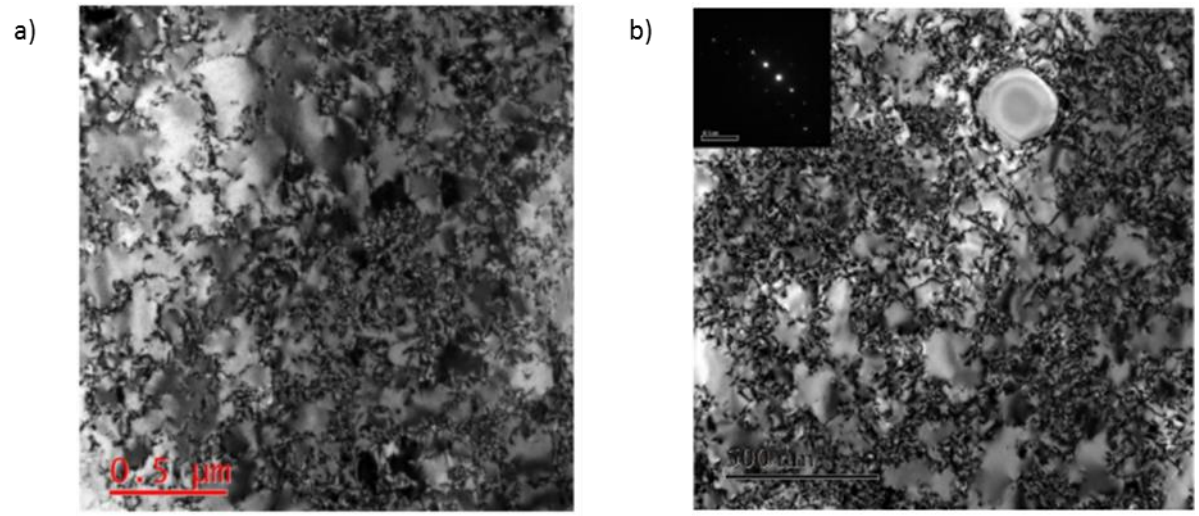


Figure I. 22 : Micrographies MET du 15-15Ti AIM1 à l'état initial pour a), après vieillissement thermique à 650°C pendant 100h pour b) (Kountchou Tawokam, 2018).

2.3. Singularités du comportement en traction du 15-15Ti AIM1

Il est possible de préciser les singularités de comportement décrites au § 1.3 pour le cas de la nuance AIM1. On se limitera à évoquer ici la singularité observée en traction à 200°C et l'effet Portevin-Le Chatelier.

2.3.1. Singularité de comportement

Comme pour d'autres aciers austénitiques inoxydables (cf. § 1.3.2), le 15-15Ti AIM1 présente une singularité de comportement en traction. Celle-ci a notamment été soulignée dans les travaux de thèse de L. Courtin (Courtin, 2015).

La Figure I. 23 présente les courbes conventionnelles contrainte-déformation en traction aux températures de 20°C, 200°C, 400°C, 600°C, 650°C, 700°C pour un 15-15Ti AIM1 écroui (ε = 23%) par martelage.
Il s'agit d'essais réalisés sur des éprouvettes « tuile » prélevées dans les tubes de gaine, où la vitesse de déformation est de 3.10^{-4} s^{-1}.

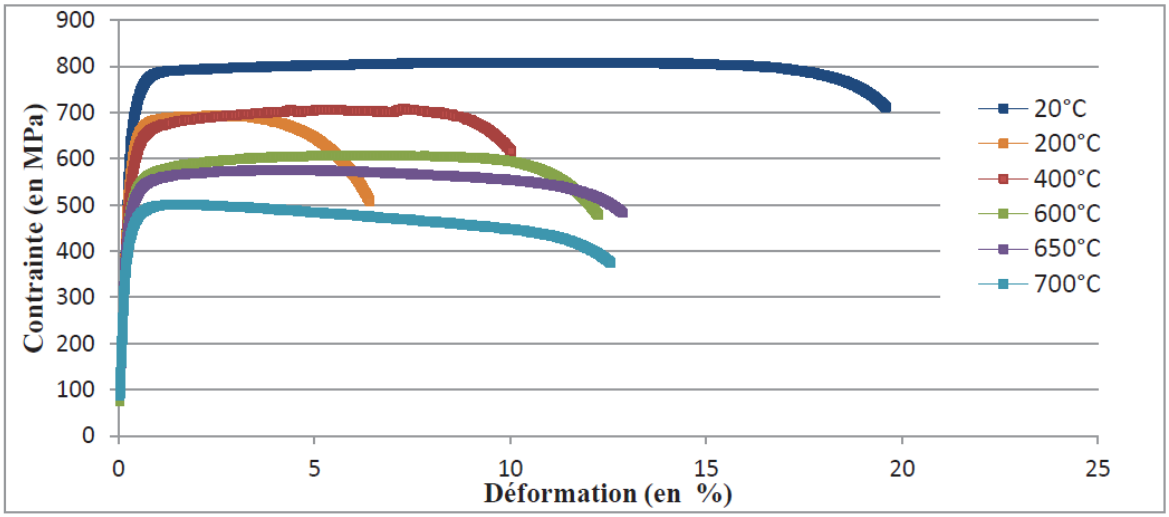


Figure I. 23 : Courbes conventionnelles de traction selon la température pour un acier 15-15Ti écroui par martelage (Courtin, 2015).

L'analyse des six courbes du graphe apporte des renseignements sur plusieurs points :

- Comme pour les autres aciers austénitiques inoxydables, qu'ils soient stabilisés ou non, écrouis ou non, l'acier 15-15Ti AIM1 présente une baisse continue de la résistance maximale à la traction (R_m) et de la limite d'élasticité ($R_{p0,2}$) avec l'augmentation de la température d'essai.
- L'allongement total est maximal à 20°C aux alentours de 20%. Puis, il chute fortement jusqu'à 6% à 200°C. Il est donc divisé par un facteur supérieur à 3 entre 20°C et 200°C. Il augmente ensuite à la température de 400°C où il passe à ~10%. La valeur maximale mesurée au-delà de 200°C est de 12-13% pour les températures d'essai comprises entre 600°C et 700°C. On observe donc un minimum d'allongement à 200°C comme pour l'acier 316Ti, également stabilisé au titane.
- L'allure des courbes est similaire aux autres aciers inoxydables écrouis, et se singularise par un plateau qui s'étend sur le domaine de plasticité uniforme entre 20°C et 600°C. Pour les températures de 650°C et 700°C, l'allure diffère : R_m est atteinte dès le début de la plasticité, et il s'en suit une baisse continue de la contrainte conventionnelle avec l'augmentation de la déformation. Ceci est caractéristique de la viscoplasticité du matériau à ces températures (Courtin, 2015).

2.3.2. Vieillissement dynamique et Effet Portevin-Le Chatelier

Le vieillissement dynamique se produit dans les aciers lorsque la vitesse de diffusion des solutés est du même ordre de grandeur que la vitesse déplacement des dislocations. Une compétition de mobilité a lieu entre les dislocations et les solutés, qui se traduit par des phénomènes d'ancrages-désencrages successifs des dislocations. Cela engendre une augmentation du coefficient d'écrouissage et une forte sensibilité du matériau à la vitesse de déformation (Garnier, 2007).

Le vieillissement dynamique conduit à des instabilités de déformation plastique. Elles peuvent se manifester sur les courbes de traction par l'apparition de chutes brutales de la contrainte suivie d'un rechargement rapide. Elles sont appelés instabilités de type Portevin-Le Chatelier (PLC).

Pour l'acier 15-15Ti AIM1, le domaine d'existence des instabilités de type PLC en fonction de la température et de la vitesse d'essai de traction est détaillé sur la Figure I. 24. Aux faibles vitesses de déformation (10^{-5} s^{-1}), il se manifeste pour des températures entre 400°C et 600°C.

Il a été déterminé sur les aciers de type 15-15Ti que les solutés mobiles, à l'origine du vieillissement dynamique, peuvent être des éléments tels que le carbone ou le titane (S. Venkadesan, Phaniraj, et al., 1992).

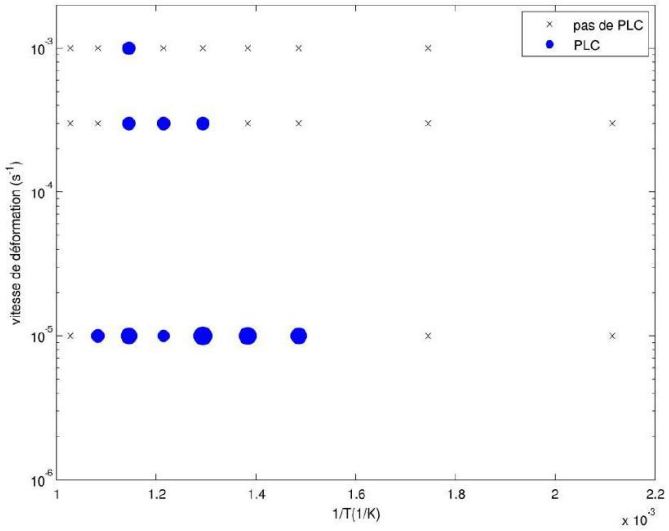


Figure I. 24 : Domaine d'existence de l'effet PLC pour le 15-15Ti AIM1, où la taille des points indique de façon qualitative l'amplitude des oscillations sur les courbes de traction (Courcelle et al., 2014).

3. Synthèse de l'étude bibliographique

Pour les aciers austénitiques des séries 304, 316 et les nuances 15-15Ti, plusieurs mécanismes de déformation sont possibles dont notamment :

- Le glissement et le stockage des dislocations parfaites,
- Le maclage lié au glissement des dislocations partielles.

Pour tenter d'expliquer les singularités de comportement observées lors d'un essai de traction sur ces aciers, il convient de prendre en compte plusieurs paramètres pouvant influencer les mécanismes de déformation :

Des paramètres « matériau » tels que :

- La composition chimique qui peut modifier l'EDE et influer sur le vieillissement dynamique (solutés mobiles),
- L'état métallurgique (état écroui ou recristallisé) qui modifie sensiblement les courbes de traction selon la température d'essai.

Des paramètres liés à l'essai tels que :

- La température et la vitesse de traction qui influent sur l'EDE et le vieillissement dynamique,
- Le niveau de contrainte appliquée au cours de l'essai.

Pour ces familles d'aciers, il semble entendu que le maclage permet une augmentation significative du coefficient d'écrouissage à 20°C. Cela se traduit sur les propriétés en traction par une ductilité accrue qui diminue lorsque la température augmente où une localisation précoce de la déformation peut survenir.

Pour l'acier 15-15Ti AIM1 faiblement écroui, on observe des singularités de comportement en traction comme pour d'autres nuances d'acier austénitiques inoxydables. En particulier, la littérature souligne la présence d'un minium de ductilité à 200°C et la présence d'un effet PLC lié au vieillissement dynamique, notamment entre 400°C et 600°C. Cependant, peu d'études nous éclairent sur les évolutions microstructurales, hors flux, lors d'un maintien isotherme dans ce domaine de température (densité et réseau de dislocations, précipités …).

Chapitre II. Etude des mécanismes de déformation élémentaires

L'objectif de ce chapitre est d'élucider les mécanismes de déformation élémentaires, qui sont responsables de la singularité de comportement identifiée dans le 15-15Ti AIM1 (pour rappel la singularité de comportement est détaillée au Chapitre I, § 2.3.1).

Néanmoins, le 15-15Ti AIM1 n'est initialement disponible que sous forme de tubes de gaine, dont la géométrie limite le nombre de techniques de caractérisation utilisables. Pour remédier à cela, nous avons fait le choix d'élaborer un matériau modèle : il doit être le plus représentatif possible des tubes de gaine en acier 15-15Ti AIM1, mais avec une géométrie adaptée à une vaste gamme de techniques de caractérisation. Une tôle en acier 15-15Ti a été ainsi fabriquée dans le laboratoire.

Par ailleurs, la démarche adoptée dans cette étude s'appuie sur une approche multi-échelle comprenant la réalisation d'essais de traction in-situ au MEB et au MET. Les essais réalisés dans le MEB donnent un aperçu de la microstructure à l'échelle de plusieurs grains tandis que ceux réalisés dans le MET donnent des informations à une échelle beaucoup plus locale, dans la mesure où cette technique permet d'imager les événements à l'échelle de la dislocation. De plus, des essais de chauffage statique in-situ au MET ont été également effectués en vue de suivre l'évolution des caractéristiques physico-chimiques élémentaires du matériau.

1. Présentation du matériau modèle : la tôle en acier 15-15Ti

En 2012, une nouvelle coulée a été réalisée par l'aciériste Aubert & Duval. Sa composition chimique est indiquée dans le Tableau II. 1. Elle respecte les spécifications de composition émises pour le 15-15Ti AIM1.

Eléments	**Cr**	**Ni**	**Ti**	**C**	**Mo**	**Mn**	**Si**	**P**	**N**
Fraction massique (%)	14,3 ± 0,7	15,0 ± 0,6	0,40 ± 0,08	0,091 ± 0,001	1,51 ± 0,12	1,41 ± 0,09	0,84 ± 0,05	0,04 ± 0,01	0,006 ± 0,001

Tableau II. 1 : Composition chimique de la coulée mère (Aubert & Duval).

A partir de cette coulée, une première étape de transformation à chaud a permis d'obtenir deux ronds forgés, qui ont été ensuite utilisés pour la fabrication industrielle de plusieurs centaines de tubes en 15-15Ti AIM1. Au préalable, des tranches ont été prélevées aux extrémités des ronds forgés et conservées pour d'éventuels besoins de fabrication à l'échelle du laboratoire.

Un larget a été découpé dans l'une de ces tranches, puis transformé à froid pour obtenir le matériau modèle, que l'on dénomme « tôle en acier 15-15Ti ». Les étapes de fabrication de cette tôle sont décrites dans le Tableau II. 2.

Etape de fabrication		Références et dimensions
Elaboration	Fusion induction sous vide (VIM)	Coulée Mère
	Refusion par électrode consommable (VAR)	Coulée de Refusion
Forgeage à chaud	/	Rond Forgé Φ 220 mm
Prélèvement	Découpe d'un larget	Long. 220 mm x Larg. 100 mm x Ep. 22 mm
Cycle de transformation à froid	Laminage plan (laboratoire)	Tôle Ep. ~ 4,6 mm
	Hypertrempe	/
	Laminage plan (laboratoire)	Tôle Ep. = 1,40 mm
	Hypertrempe finale	/

Tableau II. 2 : Etapes de fabrication du matériau modèle pour l'étude des mécanismes de déformation élémentaires.

L'hypertrempe finale respecte les caractéristiques définies pour le 15-15Ti AIM1 (pour rappel, elles sont détaillées au Chapitre I, § 2.1.3). Après l'hypertrempe finale, la tôle n'est pas écrouie pour conserver les grains vierges de déformation plastique.

En résumé, la tôle a la même composition chimique que les tubes de gaine en acier 15-15Ti AIM1. Sa microstructure est proche de celle des tubes de gaine dans la mesure où elle a subi un cycle de transformation à froid suivi d'un traitement d'hypertrempe. Cependant, elle ne peut pas porter l'appellation « AIM1 » parce qu'elle ne respecte pas les critères de géométrie et d'écrouissage.

2. Mise en évidence des mécanismes de déformation actifs à température ambiante par essais de traction in-situ au MEB

2.1. Description de l'expérience

Les essais de traction in-situ sont réalisés au CEA Saclay (SRMA/LA2M) et s'effectuent grâce à une platine de micro-traction développée par la société Michromeca. Elle est équipée d'un capteur de déplacement et d'une cellule de force de 2000 Newtons. Un mors mobile permet d'imposer une vitesse de déplacement choisie à 3.10^{-4} s^{-1}, correspondante à des conditions quasi-statiques.

Les éprouvettes de traction, dont le plan est présenté en Figure II. 1, sont obtenues par électroérosion au fil dans la tôle en 15-15Ti. Elles ont une section et longueur utile respectivement de 2,8 mm² et de 12 mm. Une face des éprouvettes, orientée selon la direction dénommée «normale» sur la Figure II. 1, est mécaniquement polie jusqu'à l'état miroir. La couche d'écrouissage de surface est ensuite enlevée par électro-polissage. Il est à noter que nous avons fait le choix de faire coïncider la direction de traction avec la direction de laminage.

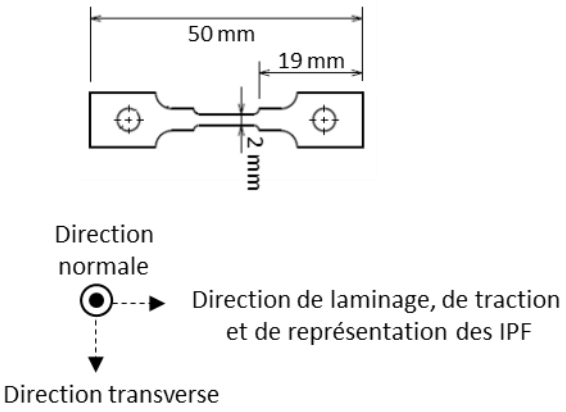


Figure II. 1 : Plan et référentiel des éprouvettes de traction pour essais in-situ en MEB.

La platine de micro-traction permet d'assurer un suivi de la déformation à la fois en électrons secondaires et en EBSD grâce à une inclinaison de 70° de l'éprouvette par rapport au faisceau d'électrons incidents. Le MEB utilisé est un microscope équipé d'un canon à émission de champ ZEISS SIGMA HD. Les analyses EBSD sont effectuées avec le système d'acquisition Quantax 400 (Esprit 1.9) et une caméra Bruker e-Flash HR. Les conditions d'acquisition optimales correspondent à une tension d'accélération de 20 keV et une distance de travail de 15 mm.

Le pas de faisceau pour des cartographies EBSD est de 220 nm : ce choix résulte d'un compromis entre temps d'expérience et résolution. Les cartographies EBSD sont représentées via les figures de pôle inverses (IPF), orientées selon la direction de traction (qui est la direction de laminage). Sur chacune des IPF est superposé l'indice de qualité du diagramme de diffraction (Index Quality), ce qui permet de mieux révéler les défauts de la microstructure tels que les macles. Pour éviter d'éventuels artefacts, les cartographies EBSD sont brutes et ne sont pas « nettoyées ». Notons que l'axe de traction est horizontal dans toutes les cartographies réalisées.

Enfin, une séquence typique de traction in-situ caractérise systématiquement la même zone de l'éprouvette et se déroule selon une série d'étapes du type :

1. Traction jusqu'à une valeur d'allongement donnée,
2. Arrêt du moteur et relevé de la charge sur le capteur de force,
3. Attente de 5 minutes pour permettre l'amorce de la relaxation de l'éprouvette,
4. Cartographie à allongement constant (la durée d'une cartographie est d'environ 3 heures),
5. Reprise de l'essai (les étapes 4 et 5 engendrent une relaxation qui ne dépasse pas 40 MPa).

2.2. Séquence de traction

La Figure II. 2 montre l'évolution de la microstructure du 15-15Ti pendant un essai de traction à température ambiante : la topographie de surface, positionnée en colonne de gauche sur la figure, est obtenue par imagerie en électrons secondaires. A la suite, l'orientation des cristaux, placée en colonne de droite sur la figure, est déterminée par cartographie EBSD.

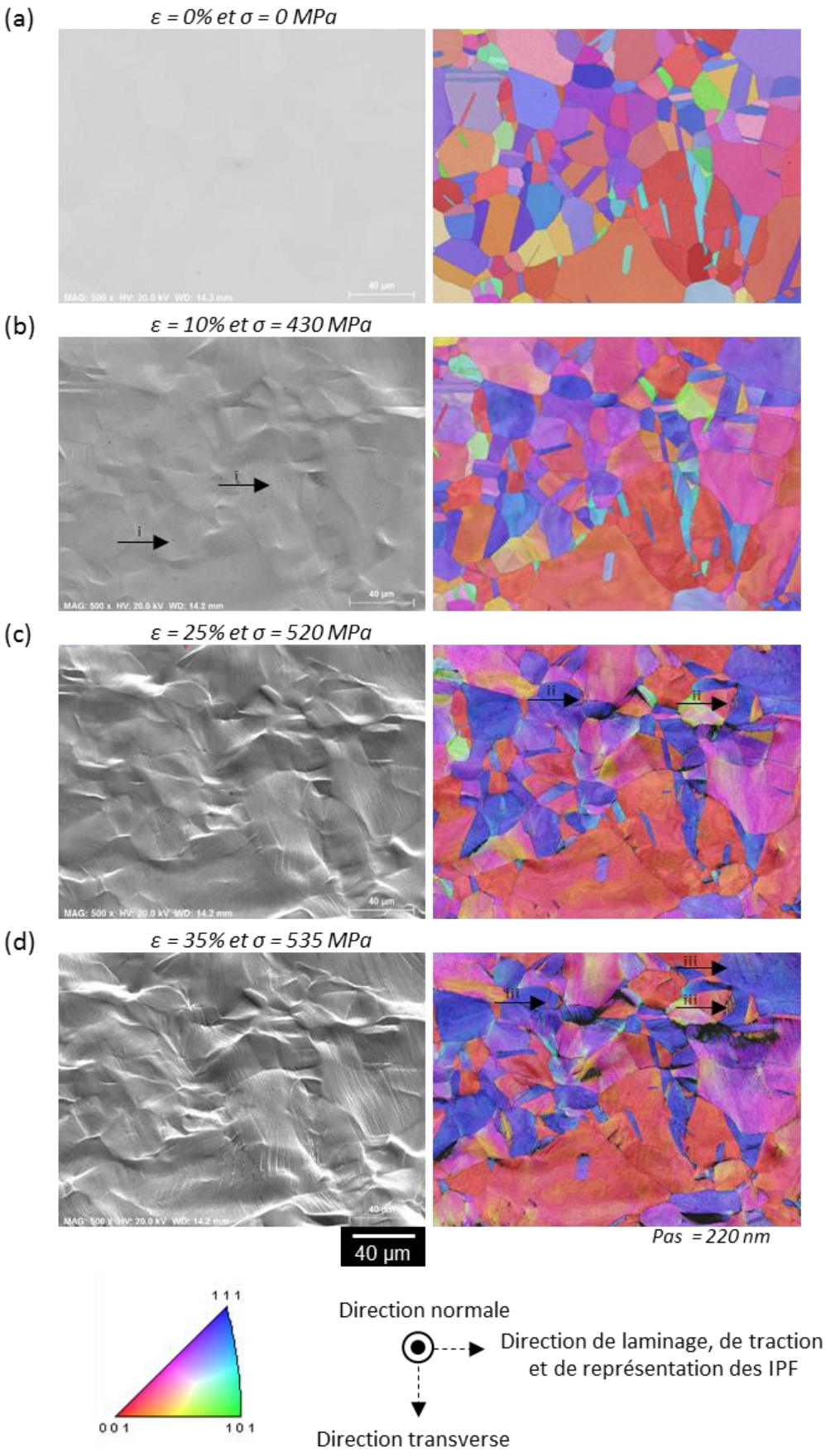


Figure II. 2 : Séquence de déformation in-situ dans le MEB à température ambiante. A gauche et à droite est représenté respectivement le suivi de la déformation en électrons secondaires et en EBSD.

Au tout début de l'essai (Figure II. 2(a)), la surface de l'éprouvette est parfaitement lisse et les grains ne sont pas déformés plastiquement. On observe seulement des macles épaisses d'origine thermique.

La déformation plastique ne devient visible qu'au-delà de 10% de déformation et une contrainte mesurée de 430 MPa au moment de l'arrêt du moteur (Figure II. 2(b)). Elle est assurée par le glissement et le stockage de dislocations puisque l'on observe :

- L'émergence de bandes de glissement sur la surface de l'échantillon (repère (i)) ;
- L'apparition de gradients de couleurs au sein des grains, reflétant des distorsions du réseau cristallographique.

Après 25% de déformation et une contrainte mesurée de 520 MPa au moment de l'arrêt du moteur (Figure II. 2(c)), le glissement et le stockage de dislocation se sont intensifiés. Par ailleurs, on constate l'apparition de désorientations abruptes (voir repère (ii)), qui correspond aux premières macles mécaniques.

A la fin de l'essai (taux de déformation de 35% et contrainte de 535 MPa au moment de l'arrêt du moteur, Figure II. 2(d)), le nombre de macles a fortement augmenté (Cf. repère (iii)). L'importante rugosité de surface indique aussi un régime de glissement et de stockage de dislocations très marqué.

2.3. Bilan de l'expérience

Les essais de traction in-situ en MEB nous informent de la coexistence de deux mécanismes de déformation dans le 15-15Ti à température ambiante. Dès que la contrainte dépasse la limite d'élasticité (≈ 215 MPa) le premier mécanisme de déformation plastique activé est le glissement et le stockage des dislocations. Il continue à opérer durant toute la durée de la déformation.

A partir d'un certain taux de déformation associé à un certain seuil de contrainte (ici respectivement 25% et 520 MPa), un autre mécanisme entre en jeux : le maclage mécanique.

Notons que dans les conditions expérimentales utilisées, la détection du maclage est sujette à la résolution des cartographies. En particulier, le maclage peut être activé à une échelle nanométrique (cf. Chapitre I, § 1.2.3.2) : avec un pas de balayage de 220 nm, seules les macles déjà suffisamment épaisses seront visibles. Il est donc nécessaire de réaliser des essais plus localisés, notamment au moyen d'un MET.

3. Mise en évidence des mécanismes de déformation actifs de 20°C à 400°C par essais de traction dans un MET

3.1. Description de l'expérience

3.1.1. Essais de traction dans un MET

Les essais de traction in-situ sont réalisés grâce au support financier du réseau « METSA » (FR CNRS 3507) sur la plateforme du CEMES-CNRS à Toulouse avec l'aide de Frédéric Mompiou. Ils se déroulent dans un MET de marque JEOL 2010 opérant à 200 keV. Le porte-objet est équipé d'un mors mobile et d'une résistance chauffante permettant la réalisation d'essais de traction à température variable. Ce porte-objet est un « simple tilt » et ne permet donc le basculement de l'échantillon qu'autour de l'axe de traction. Les observations du déplacement des défauts s'effectuent lors de la relaxation de la contrainte après incréments de déplacement du mors mobile. Les séquences sont alors enregistrées à l'aide d'une caméra vidéo. On notera que la direction de traction est orientée suivant la direction verticale dans toutes les micrographies présentées dans cette étude.

Pour la préparation des éprouvettes, une zone de la tôle en 15-15Ti (2 x 2 cm) est tout d'abord découpée puis polie sur les deux faces afin d'obtenir une plaquette d'une épaisseur de 100 µm. Dans cette plaquette, des éprouvettes de traction, dont une est présentée en Figure II. 3, sont usinées par micro-fraisage. Puis, elles sont amincies par un double jet d'électrolyte maintenu à -10° et contenant 10% d'acide perchlorique et 90% d'éthanol. Au centre de l'éprouvette se forme un trou, localisé par le repère (i) et dont les contours constituent une plage de très faible épaisseur (une centaine de nm) pour une bonne transparence aux électrons. Il est à noter que la contrainte ne se concentre que dans les zones latérales au trou dans la direction de traction. Ces zones sont les seuls endroits susceptibles de donner lieu à des événements de plasticité observables.

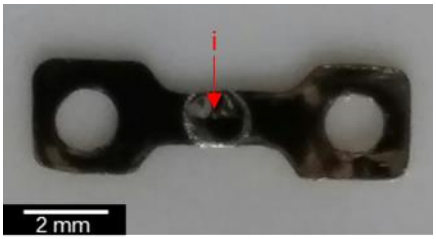


Figure II. 3 : Eprouvette de traction in-situ en MET.

3.1.2. Méthode de détermination des systèmes de glissement des dislocations

Pour déterminer les systèmes de glissement des dislocations, il est indispensable de bien connaitre l'orientation cristallographique du grain observé. Pour ce faire, on réalise des diagrammes de diffraction (SADP) à différents angles de tilt (α) et l'indexation des plans diffractants est ensuite obtenue avec le logiciel « INDEX », développé par le CEMES-CNRS.

Connaissant l'angle de tilt, le vecteur de diffraction et l'inclinaison de ce dernier par rapport à la direction de traction, il est possible d'indexer l'orientation du cristal à l'aide de projections stéréographiques sur la base de deux ou trois orientations expérimentales de l'échantillon. Ces projections sont simulées grâce au logiciel « Stereoproj », également développé par le CEMES-CNRS.

En effectuant des simulations de rotation autour des vecteurs de diffraction identifiés, on fait coïncider entre elles les projections stéréographiques obtenues à des angles de tilt différents. Ceci permet de retrouver par la simulation n'importe quelle configuration cristallographique obtenue expérimentalement.

Enfin, la détermination des plans de glissement des dislocations s'effectue à l'aide des traces de glissement : lors du glissement, la dislocation laisse sur son passage deux traces correspondantes à l'émergence des segments de la dislocation sur les deux surfaces libres de la lame. Ces traces de glissement sont représentatives de l'intersection entre la surface et le plan de glissement de la dislocation. La détermination des plans de glissement des dislocations repose sur le report de l'orientation de ces traces sur la projection stéréographique obtenue à l'étape précédente.

3.1.3. Déroulement des essais

Les essais de traction ont été réalisés sur deux éprouvettes, que l'on appellera éprouvette A et B. Dans chaque échantillon, plusieurs zones d'intérêt ont été examinées. Les parties 3.2 et 3.3 présentent respectivement des séquences de déformation acquises dans différentes zones aux températures de 20°C et de 200°C. La partie 3.4 compare la microstructure d'une même zone entre 20°C et 400°C.

Sur chacune des figures, la projection stéréographique, qui a permis de reconstruire le grain, est également présentée après les micrographies MET.

		Zones d'intérêt	
		1	2
Eprouvettes	A	Séquence N°1 (20°C)	Séquence N°3 (200°C)
	B	Séquence N°2 (20°C)	Comparaison des microstructures (20°C à 400°C)

Tableau II. 3 : Tableau récapitulatif des différents essais réalisés.

3.2. Séquences de déformation à 20°C

3.2.1. Séquence n°1 (éprouvette A, zone 1)

La première séquence de déformation est exposée dans la Figure II. 4. La zone d'intérêt se situe à l'intérieur d'un grain, qui est déformé selon une direction <233>.

On observe, sur les Figure II. 4 (a) et (b), des dislocations parfaites glissant dans un plan $(\bar{1}\bar{1}1)$, tracé en rouge sur la projection stéréographique (Figure II. 4(d)). Ces dislocations sont repérées par l'indice (i). Puis, elles sont arrêtées par un obstacle, qui est hors du champ d'observation. Un empilement de dislocations se forme alors (repère (ii)). La micrographie de la Figure II. 4 (c) est obtenue à un grandissement plus faible et permet de visualiser l'empilement (ii) en entier et l'obstacle contre lequel il s'est formé : il s'agit d'un joint de grains (repère (iii)).

Cette séquence met en évidence le stockage de dislocations parfaites, et notamment l'origine de l'émergence des lignes de glissement observées à l'échelle mésoscopique dans la Figure II. 2 et indexées par (i).

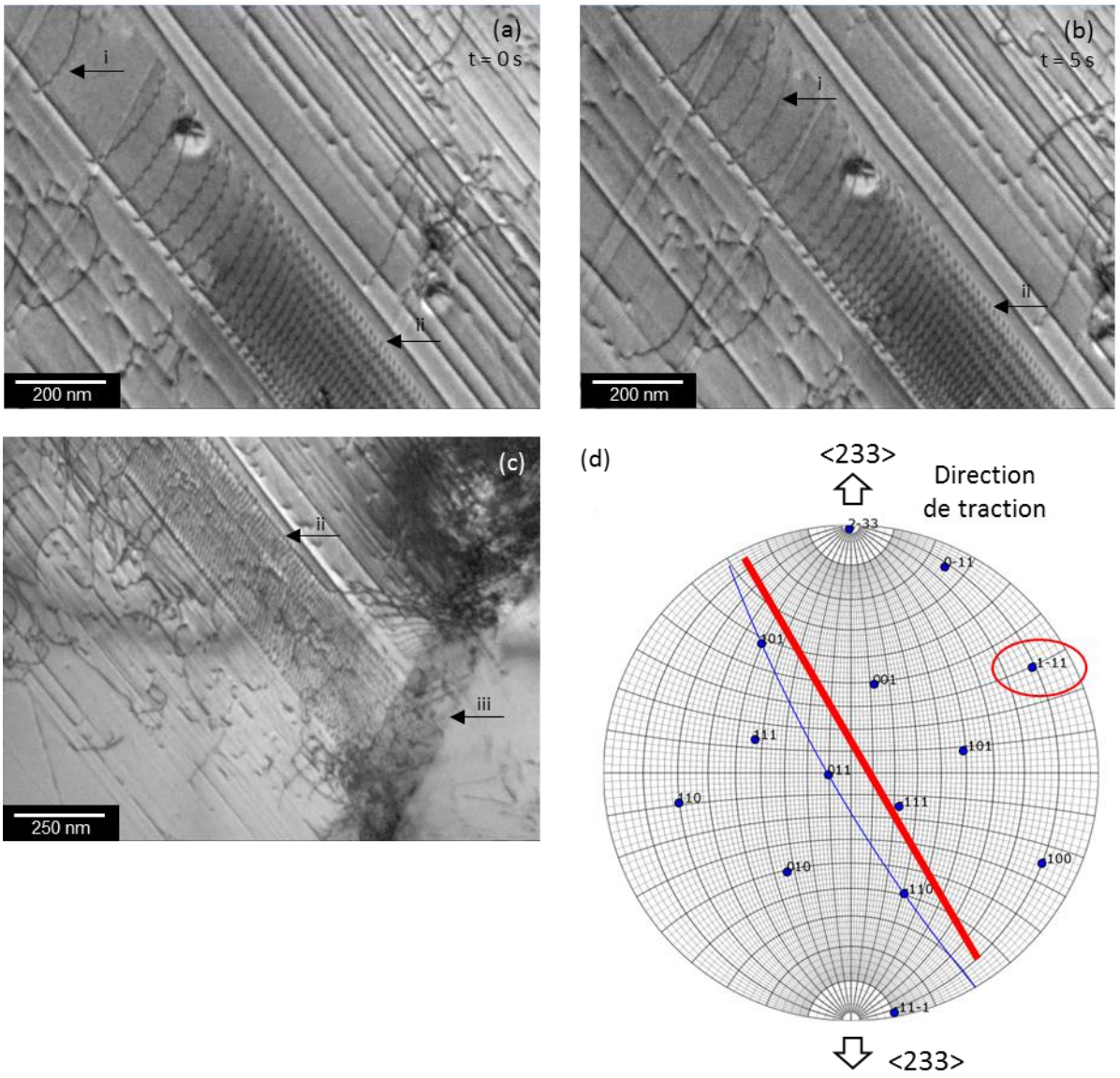


Figure II. 4 : Eprouvette A, zone 1 : Séquence de déformation N°1 à 20°C.

3.2.2. Séquence n°2 (éprouvette B, zone 1)

La Figure II. 5 montre une séquence de déformation d'un grain observé dans l'éprouvette B. On note que la contrainte est appliquée dans ce grain suivant une direction <032>.

Au début de la séquence (Figure II. 5(a)), on identifie deux défauts déjà présents avant l'application de la contrainte ; ils sont indiqués par les repères (i). Leur contraste alternant des franges claires et sombres montre que ce sont des défauts d'empilement. Ils sont contenus dans un plan (111), tracé en rouge sur la projection stéréographique, et ils sont stables et immobiles durant toute la séquence de déformation.

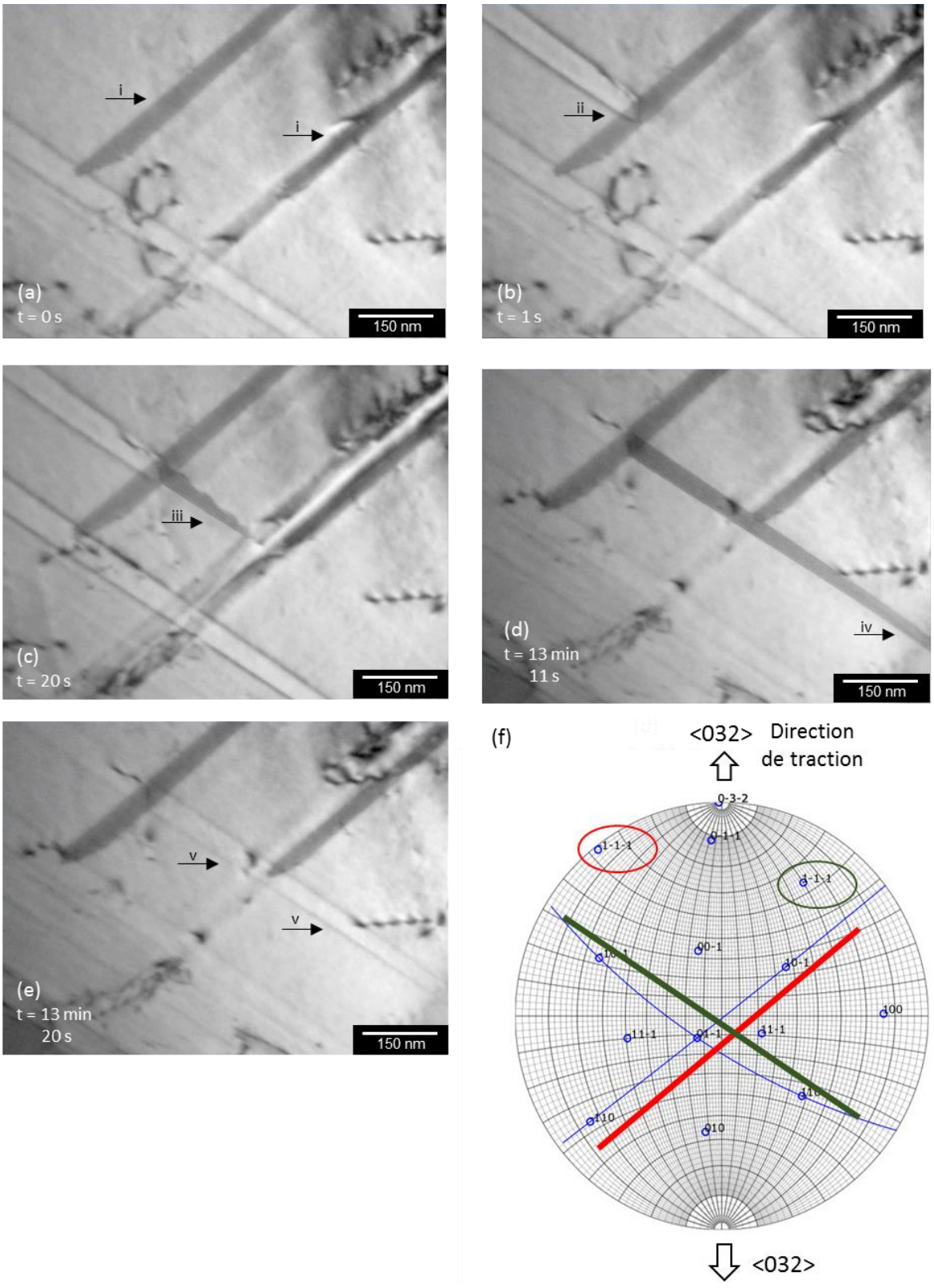


Figure II. 5 : Eprouvette B, zone 1 : Séquence de déformation N°2 à 20°C.

Lorsque la déformation commence, une dislocation parfaite se met à glisser au travers du grain dans un plan $(1\bar{1}\bar{1})$, tracé en vert sur la projection stéréographique. Son déplacement est stoppé lorsqu'elle rencontre le défaut d'empilement positionné le plus en haut de l'image. Un point d'ancrage se crée

(voir repère (ii) sur la Figure II. 5(b)). Malgré l'augmentation de la contrainte appliquée, la dislocation reste toujours ancrée et n'arrive pas à franchir l'obstacle. Soudainement, la dislocation parfaite se dissocie et une dislocation partielle de tête apparait de l'autre côté du point d'ancrage laissant derrière elle un défaut d'empilement indiqué par le repère (iii) (Figure II. 5(c))).

Sur la Figure II. 5(d), la nouvelle dislocation partielle se propage au travers du grain sous l'effet de la contrainte et sort même du champ de l'image induisant un étalement important du défaut d'empilement (indice (iv)).

Enfin, la nucléation de la partielle de queue occasionne la fermeture du défaut d'empilement, ce qui permet de rétablir un cristal parfait comme en témoigne le contraste de l'image en Figure II. 5(e).

Cette séquence fait ressortir des éléments importants à propos des mécanismes de déformation du 15-15Ti à 20°C. Tout d'abord, la séquence met en exergue la coexistence du glissement des dislocations parfaites et du glissement des dislocations partielles. Elle montre ensuite que les dislocations partielles peuvent provenir de la dissociation de dislocations préalablement non-dissociées. Cette dissociation semble favorisée par la présence d'obstacles au glissement des dislocations parfaites, ici la présence d'un défaut d'empilement préexistant. Ceci suggère qu'une densité critique d'obstacles serait peut-être requise pour que la contribution de ce mécanisme soit significative. Enfin, ce mécanisme de dissociation semble apparaître comme une des solutions permettant aux dislocations parfaites de franchir séquentiellement certains obstacles, assurant ainsi une meilleure mobilité aux dislocations dans le matériau.

3.3. Séquence de déformation à 200°C (éprouvette A, zone 2)

Les essais de traction ont été menés à 200°C à la fois sur les éprouvettes A et B. Il faut tout d'abord noter qu'à cette température la vitesse des dislocations est élevée, rendant leur observation difficile.

Le premier fait marquant à 200°C est l'absence de dissociation des dislocations (à l'échelle d'observation) contrairement à ce qui a été observé à 20°C. Le mécanisme prépondérant est donc le glissement de dislocations parfaites accompagné assez fréquemment par du glissement dévié (séquence N°3, Figure II. 6). Les micrographies de la Figure II. 6 sont extraites d'une séquence obtenue dans une deuxième zone lors de la déformation de l'éprouvette A. On note que l'axe de traction est parallèle à la direction <133> du grain. Sur la Figure II. 6(a), des traces de glissement correspondantes à un plan $(\bar{1}\bar{1}1)$ sont visibles (Cf. repère (i)). Ce plan est identifié sur la projection stéréographique en rouge. Sur la Figure II. 6(b), une dislocation parfaite glisse initialement dans ce plan $(\bar{1}\bar{1}1)$ et soudainement dévie dans un autre plan. Le nouveau plan de glissement est un plan $(1\bar{1}\bar{1})$, repéré par (ii). Il est tracé en vert sur la projection stéréographique. Enfin, la dislocation s'immobilise à l'endroit indiqué par (iii).

Cette séquence met en exergue que le glissement parfait est le mécanisme de déformation privilégié à 200°C. Par ailleurs, **l'activation du glissement dévié** devient possible à cette température.

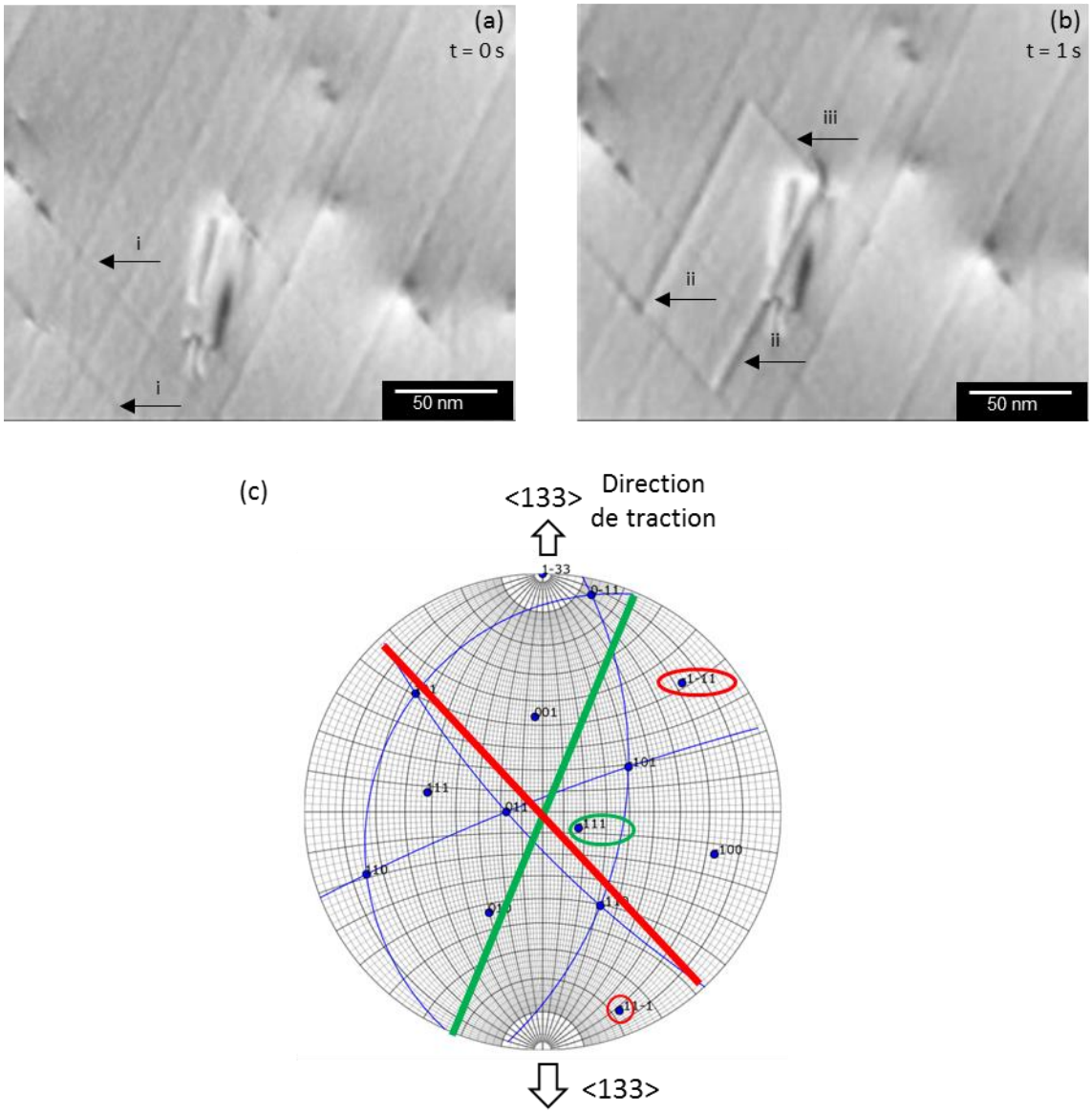


Figure II. 6 : Eprouvette A, zone 2 : Séquence de déformation N°3 à 200°C.

3.4. Comparaison des microstructures de déformation en fonction de la température (éprouvette B, zone 2)

Les essais de traction dans le MET permettent également de comparer les microstructures observées dans la même zone à différentes températures. Ceci a été réalisé avec l'éprouvette B dans la zone 2 aux températures de 20°C, 200°C, 300°C et 400°C. Les résultats sont présentés sur la Figure II. 7.

Il faut dans un premier temps souligner que les microstructures de déformation comparées ne sont pas exactement identiques. En effet, à chaque température, des microdéformations sont appliquées, ce qui entretient le glissement et la création de défauts. Néanmoins, sur les micrographies de la Figure II. 7, la densité de défauts apparente semble similaire, ce qui rend la comparaison possible.

La zone 2 de l'éprouvette B se situe dans le même grain que la zone 1. Pour rappel, ce grain est déformé selon une direction <032>. Conformément à la trace en orange placée sur la projection

stéréographique, on observe des dislocations glissant dans un plan $(\bar{1}1\bar{1})$, qui est délimité par des pointillés oranges sur la micrographie de la Figure II. 7(a).

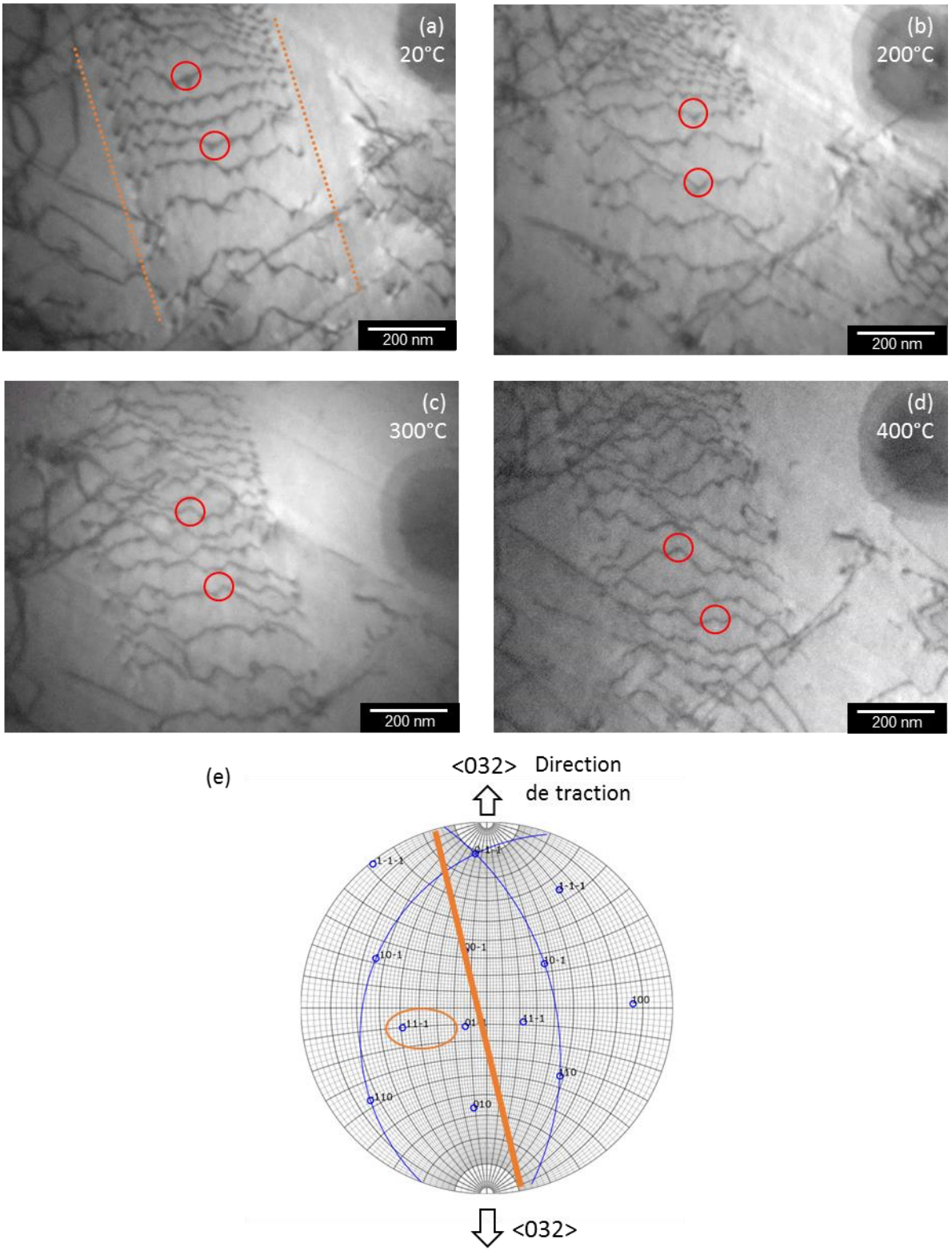


Figure II. 7 : Eprouvette B, zone 2 : Comparaison des microstructures entre 20 et 400°C.

Les lignes de dislocations dans ce plan présentent un profil particulier, avec des irrégularités de forme triangulaire (cerclées en rouge) : il s'agit de nœuds résultant de l'interaction avec d'autres dislocations, invisibles dans les conditions d'observation choisies. L'aspect remarquable ici est l'extension de ces nœuds, qui décroit lorsque la température augmente de 20°C à 400°C.

Nous précisons que le grandissement utilisé pour les micrographies de la Figure II. 7 a été choisi pour donner une vue d'ensemble de la microstructure et du profil général des dislocations. Par la suite, nous avons étudié précisément l'extension des nœuds de dislocations, comme présenté dans la prochaine section de ce chapitre.

Selon (Whelan, 1959), l'extension des nœuds est dépendante de l'Energie de Défaut d'Empilement : plus l'EDE est faible, plus les nœuds sont dissociés et présentent une grande extension. Au vu des micrographies de la Figure II. 7, on peut envisager une évolution de l'EDE du 15-15Ti entre 20°C et 400°C. Cependant, comme mentionné précédemment, la résolution des images est trop faible pour quantifier cette évolution. De plus, le porte-objet à simple tilt utilisé pour les essais de traction in-situ ne permet pas la caractérisation complète des structures de dislocations.

L'étude précise de l'EDE et de l'extension des nœuds de dislocations, est donc présentée dans la suite du chapitre.

4. Approches théoriques pour la mesure de l'EDE

La mesure expérimentale de l'énergie de défaut d'empilement (EDE) est devenue possible vers la fin des années 1950 grâce à l'amélioration de la résolution ponctuelle du MET et aux développements liés à la préparation des échantillons. De nombreux modèles théoriques ont ainsi vu le jour pour exploiter des configurations géométriques liées à des interactions de dislocations rigoureusement décrites par l'expérience. Sur la base de quelques configurations synthétisées par (Ruff, 1970), nous avons retenu la méthode des nœuds dissociés et la méthode des tétraèdres de défaut d'empilement car ces configurations ont clairement été identifiées dans notre alliage.

4.1. Méthode des nœuds dissociés

4.1.1. Formation des nœuds

Dans la structure CFC, les nœuds dissociés sont une configuration particulière des dislocations, qui se forme selon un mécanisme proposé par (Whelan, 1959) et exposé en Figure II. 8.

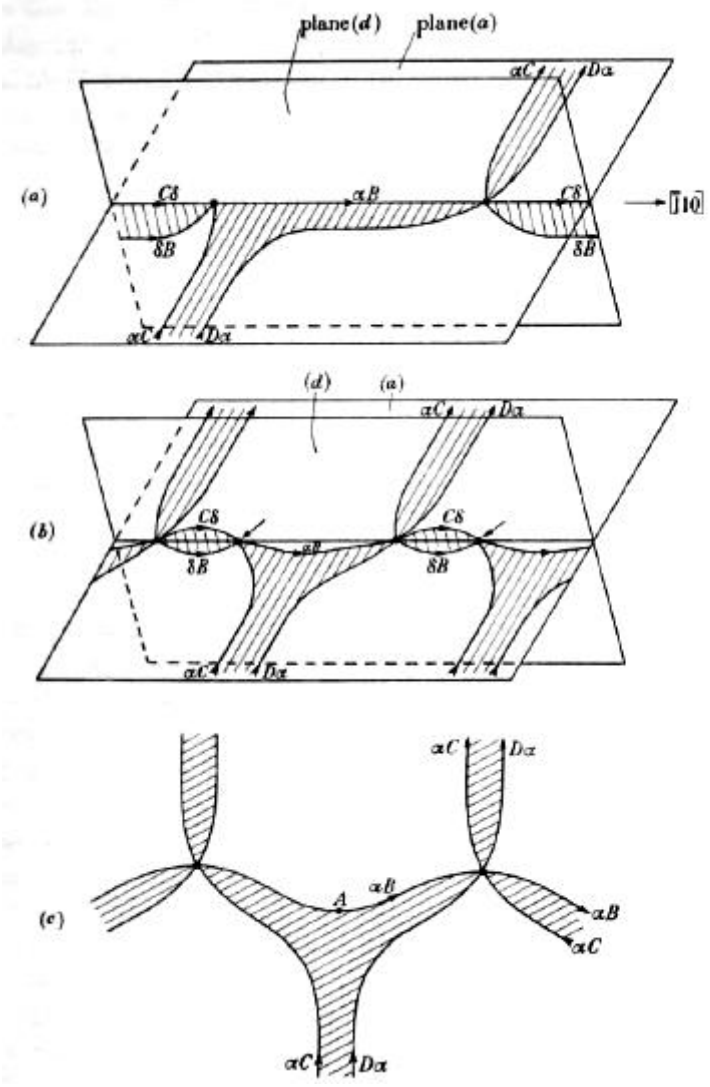


Figure II. 8 : Etapes de formation d'un nœud de dislocations (Whelan, 1959).

Ce mécanisme résulte de l'interaction de deux dislocations parfaites faiblement dissociées :

- La dislocation contenue dans un plan (a) est dite « intersectée ».
- La dislocation contenue dans un plan (d) est celle qui « intersecte ».

La Figure II. 8(a) représente le premier stade de l'intersection des deux dislocations faiblement dissociées. Les dislocations partielles Cδ et δB, appartenant au plan (d), sont combinées avec la dislocation partielle αC du plan (a). Il se forme ainsi la dislocation partielle αB.

Or le segment de dislocation αC n'est pas stable dans cette configuration rectiligne. La tension de ligne de DααC pousse αB dans le plan (a). Cette étape est illustrée par la Figure II. 8(b). Par ailleurs, la Figure II. 8(b) traite du cas où plusieurs dislocations s'intersectent.

Enfin, pour un meilleur équilibre entre les tensions de ligne des dislocations, les dislocations partielles Cδ et δB contenues dans le plan (d) dévient dans le plan (a). La configuration finale des dislocations est montrée en Figure II. 8(c).

Les dislocations constituent un nouveau réseau entièrement contenu dans le plan (a) (contenu dans le plan de la Figure II. 8(e)). On observe la coexistence de nœuds contractés (i) et de nœuds étendus ou dissociés (ii). La morphologie d'un nœud dissocié résulte d'un équilibre entre la courbure des segments de dislocations le constituant et l'étalement du défaut d'empilement en son centre. De ce fait, les modèles proposés pour mesurer l'EDE tiennent compte de ces mêmes grandeurs à savoir l'étendue du défaut d'empilement ainsi que le rayon de courbure des segments.

4.1.2. Théories

En première approximation, (Whelan, 1959) suggère un équilibre entre la force attractive refermant le défaut d'empilement et la force nécessaire pour maintenir le rayon de courbure R des dislocations partielles bordant le défaut. En prenant la tension de ligne des dislocations égale à $\frac{Gb_p^2}{2}$, l'EDE γ se calcule selon l'équation (II. 1) :

$$\gamma = \frac{Gb_p^2}{2R} \qquad \textit{(II. 1)}$$

Où G est le module de cisaillement et b_p la norme du vecteur de Burgers des dislocations partielles. Leurs valeurs sont consultables en Annexe A du manuscrit.

Cependant cette théorie est incomplète et introduit, selon (AW Ruff, 1970), une erreur d'un facteur minimum de 2 sur les mesures d'EDE.

Une théorie améliorée est proposée par (Brown, 1964 ; Brown, Thölén, 1964) qui font l'hypothèse de l'élasticité isotrope du milieu. Par ailleurs, ils remplacent la tension de ligne des dislocations par la notion de « self-stress of a dislocation » : chaque dislocation partielle est divisée en une multitude de segments rectilignes (voir Figure II. 9(a)) dont chacun interagit avec le reste des segments. Il faut ajouter à cela l'effet du défaut d'empilement au centre.

Le nœud adopte une configuration telle que l'expansion du défaut d'empilement atteint une limite (un état d'équilibre) donnant lieu à cette configuration géométrique ayant des dimensions caractéristiques pour un matériau donné.

Cette théorie s'appuie sur la mesure du rayon y du cercle inscrit dans le nœud et du rayon de courbure R des dislocations partielles (voir Figure II. 9(b)). Les auteurs proposent deux équations ((II. 2) et (II. 3)), où les valeurs obtenues pour l'EDE doivent coïncider compte tenu du caractère des dislocations considérées.

$$\gamma_1 = \frac{G{b_p}^2}{R}\left\{0{,}27 - 0{,}08\left(\frac{\upsilon}{1-\upsilon}\right)cos2\alpha + \left[0{,}104\left(\frac{2-\upsilon}{1-\upsilon}\right) + 0{,}24\left(\frac{\upsilon}{1-\upsilon}\right)cos2\alpha\right]Log_{10}\frac{R}{\epsilon}\right\} \quad (II.\ 2)$$

$$\gamma_2 = \frac{G{b_p}^2}{y}\left\{0{,}055\left(\frac{2-\upsilon}{1-\upsilon}\right) - 0{,}06\left(\frac{\upsilon}{1-\upsilon^2}\right)cos2\alpha + \left[0{,}018\left(\frac{2-\upsilon}{1-\upsilon}\right) + 0{,}036\left(\frac{\upsilon}{1-\upsilon}\right)cos2\alpha\right]Log_{10}\frac{R}{\epsilon}\right\} \quad (II.\ 3)$$

υ est le coefficient de Poisson (sa valeur est consultable en Annexe A du manuscrit), α est le caractère de la dislocation au point de mesure. ϵ est un paramètre lié au rayon de cœur des dislocations et les auteurs proposent que $\epsilon \approx b_p$. Les autres paramètres sont définis de manière similaire à ceux de l'équation (II. 1).

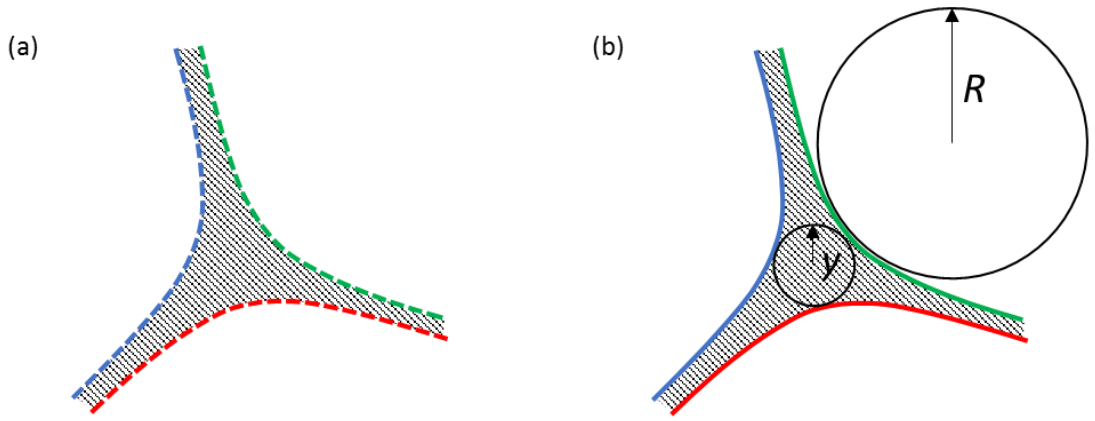


Figure II. 9 : Représentation shématique d'un nœud illustrant (a) le concept de « self stress of a dislocation », (b) la mesure de y et R.

Par ailleurs, le nœud imagé sur l'écran phosphore ou la caméra du MET est seulement une projection du véritable nœud, qui est souvent incliné dans la lame mince comme illustré sur la Figure II. 10(a). Cette projection est distordue si la direction du faisceau électronique n'est pas orthogonale au plan contenant le nœud. Dans ce cas, la valeur mesurée de y est erronée. Pour compenser cet effet, (Tisone et al., 1968) ont proposé de mesurer le périmètre P d'un triangle équilatéral inscrit dans le cercle projeté comme montré sur la Figure II. 10(b).

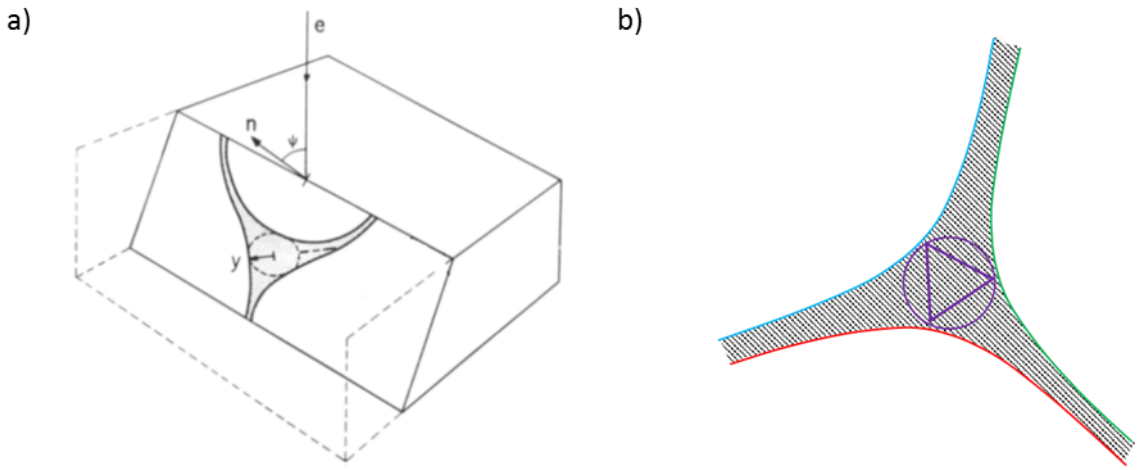


Figure II. 10 : Représentation shématique illustrant (a) l'inclinsaisont du nœud dans la lame d'après (AW Ruff, 1970), (b) la mesure du périmètre P.

La valeur réelle de y, nommée y_t, est alors donnée par l'équation (II. 4) :

$$y_t = \frac{P}{\sqrt{3}[1+\sqrt{1+3\,cos^2(\psi)}]} \qquad (II.\ 4)$$

Où ψ est l'angle entre la normale du plan du nœud et le faisceau électronique (voir Figure II. 10(a)).

Enfin, l'incertitude sur l'EDE liée à la fiabilité de ce modèle est de l'ordre de 5% (AW Ruff, 1970).

4.2. Méthode des tétraèdres de défaut d'empilement

Une autre configuration propice à la mesure de l'EDE est l'organisation des dislocations en tétraèdres de défaut d'empilement.

Sur ces tétraèdres, les arêtes sont constituées par des dislocations partielles et coïncident avec les directions <110> du cristal. Les 4 faces correspondent aux plans {111}. Comme elles sont délimitées par des dislocations partielles, chacune d'elles contient un défaut d'empilement sur toute sa surface.

La Figure II. 11(a) schématise un tétraèdre de défaut d'empilement dans le volume du cristal. La direction BD (direction de type <110>) est parallèle à la direction du faisceau électronique dans le MET. La Figure II. 11(b) représente la projection de ce tétraèdre sur l'écran phosphore ou la caméra du MET. Il ne s'agit alors pas d'un tétraèdre, mais d'un triangle avec des franges d'interférence dues aux défauts d'empilement.

Les mécanismes expliquant la formation des tétraèdres de défaut d'empilement sont controversés (AW Ruff, 1970). Cependant, il semblerait qu'une boucle de Frank soit d'abord nécessaire. Elle peut se former de deux manières :

- Par trempe du métal et coalescence de lacunes (Silcox, Hirsch, 1959),
- Suite à une déformation mécanique induisant du glissement de dislocations (Loretto et al., 1965).

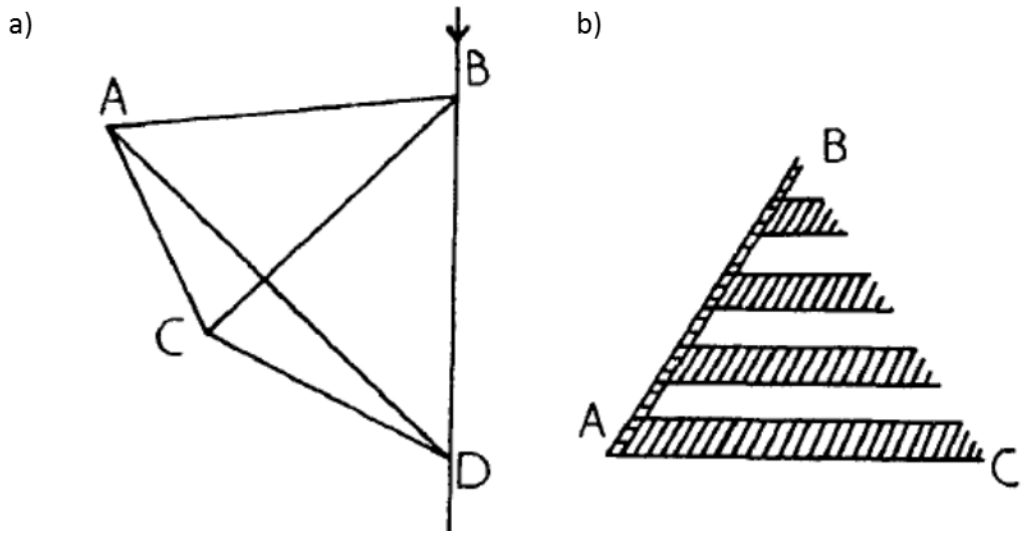


Figure II. 11 : Représentation shématique (a) d'un tétraèdre dans le volume du cristal, (b) de la projection observable d'un tétraèdre (Silcox, Hirsch, 1959).

Par la suite, la boucle de Frank peut évoluer vers une configuration donnant lieu à un tétraèdre de défaut d'empilement par des réactions de déviation et de dissociation.

(Silcox, Hirsch, 1959) proposent d'estimer l'énergie d'un tétraèdre E_T en fonction de la longueur de son arête l selon l'équation (II. 5) :

$$E_T = \frac{Ga^2 l}{12\pi(1-\nu)} \log\left(\frac{l}{r_0}\right) + \sqrt{3} l^2 \gamma \qquad (II.\ 5)$$

Où a est le paramètre de maille et r_0 le rayon de cœur de la dislocation. Il peut être approximé par $\frac{b}{2}$ où b est la norme du vecteur de Burgers des dislocations parfaites. Les autres paramètres sont définis comme pour l'équation (II. 2).

Les auteurs suggèrent que si l devient trop grand, la boucle de Frank est alors la configuration la plus stable. Il est ainsi possible d'estimer l'énergie d'une boucle de Frank E_B en fonction de la taille du tétraèdre selon l'équation (II. 6) :

$$E_B = \frac{Ga^2 l}{4\pi(1-\nu)} \log\left(\frac{l}{r_0}\right) + \frac{\sqrt{3}}{4} l^2 \gamma \qquad (II.\ 6)$$

L'EDE se calcule grâce à la taille critique des tétraèdres (la longueur critique de l'arrête est appelée l_C) qui est obtenue en égalisant les équations (II. 5) et (II. 6). En isolant γ, on obtient l'équation (II. 7) :

$$\gamma = \frac{2Ga^2}{9\sqrt{3}\pi(1-\nu)} \frac{\log\left(\frac{l_c}{r_0}\right)}{l_c} \qquad (II.\ 7)$$

L'incertitude sur l'EDE liée à la fiabilité de ce modèle est élevée (de l'ordre de 10%) (AW Ruff, 1970).

5. Mesure de l'EDE à température ambiante

L'EDE du 15-15Ti a pu être mesurée à la température ambiante grâce aux deux méthodes décrites au § 4.

La mesure a été réalisée à l'Institut Pprime dans un MET JEOL 3010 opérant avec une tension d'accélération de 300 keV et équipé d'un porte-objet « double tilt ». Les lames minces sont issues de plaquettes de 100 µm d'épaisseur, prélevées dans la tôle en 15-15Ti, et elles sont ensuite amincies électrolytiquement par le même procédé que celui appliqué aux éprouvettes de traction in-situ en MET.

5.1. Méthode des nœuds dissociés

L'utilisation de la méthode des nœuds dissociés requiert une caractérisation rigoureuse des dislocations constituant le nœud. Il est donc nécessaire de connaitre leurs vecteurs de Burgers et leurs caractères. Par ailleurs, la mesure des dimensions du nœud peut s'avérer délicate.

Pour illustrer la procédure expérimentale, un nœud typique, mis en évidence dans la Figure II. 12, va être caractérisé finement. On note sur la micrographie que les conditions « deux ondes » sélectionnées pour l'observation du nœud ($\vec{g}$= (200)) permettent d'observer simultanément les 3 branches du nœud et le défaut d'empilement au centre.

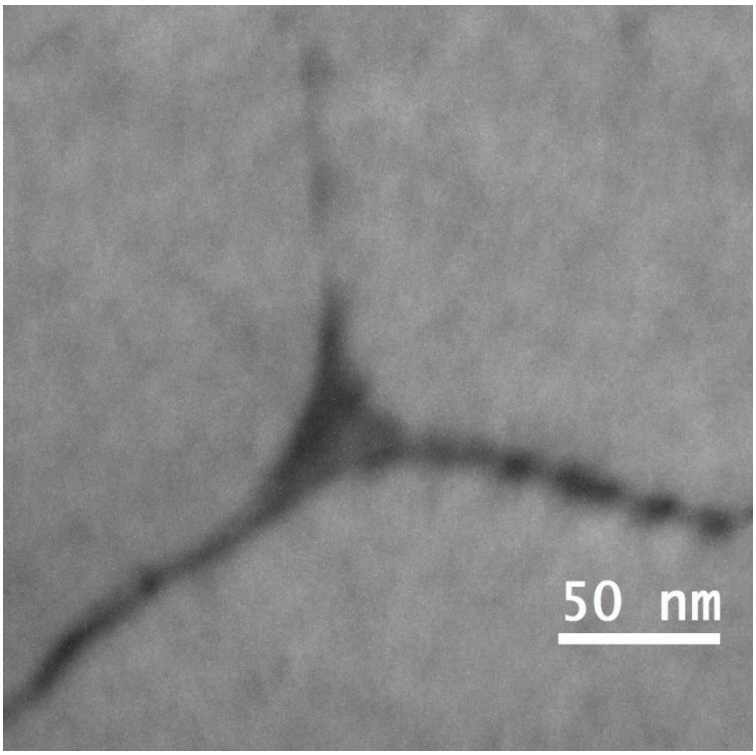


Figure II. 12 : Micrographie MET en champ clair d'un nœud de dislocations dissocié dans le 15-15Ti ($\vec{g}$= (200)).

5.1.1. Caractérisation des dislocations du nœud

La démarche est relativement proche de celle décrite au § 3.1.2 à l'exception que le porte-objet utilisé est un « double-tilt ». En orientant le cristal proche d'un axe de zone, il devient ainsi plus aisé de réaliser des images contrastées en basculant l'échantillon selon des conditions « deux ondes » autour

de cet axe. La détermination des vecteurs de diffraction en conditions « deux ondes » découle directement de l'indexation du diagramme de diffraction de l'axe de zone.

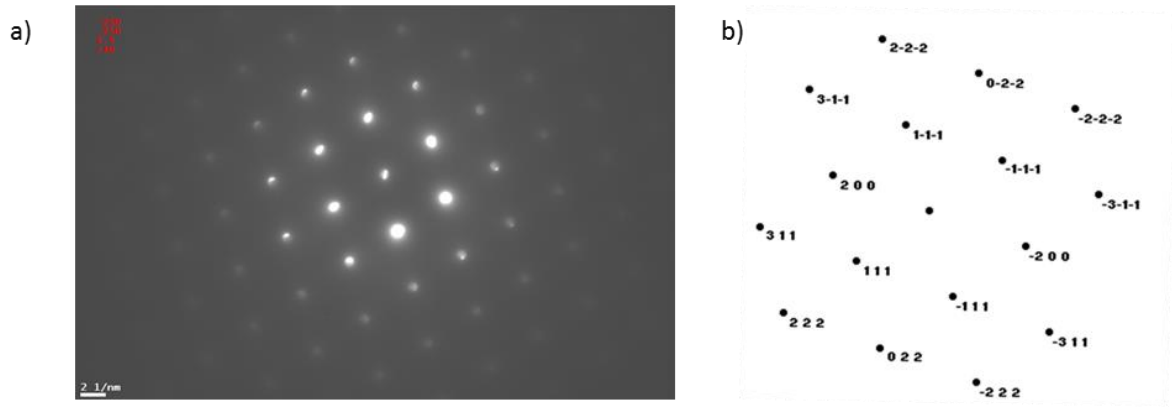


Figure II. 13 : (a) Diagramme de diffraction proche de l'axe de zone $[\bar{1}10]$; (b) Simulation cinématique du diagramme diffraction en (a).

A faible angle de tilt, un axe de zone indexé conventionnellement $[\bar{1}10]$ a pu être repéré. Le diagramme de diffraction correspondant est présenté dans la Figure II. 13(a). Sur la Figure II. 13(b) se trouve l'indexation des spots de diffraction.

De même, la reconstruction du cristal s'effectue grâce aux projections stéréographiques. Cependant, elles sont simulées avec le logiciel « Carine » qui prend en compte l'effet du double tilt.

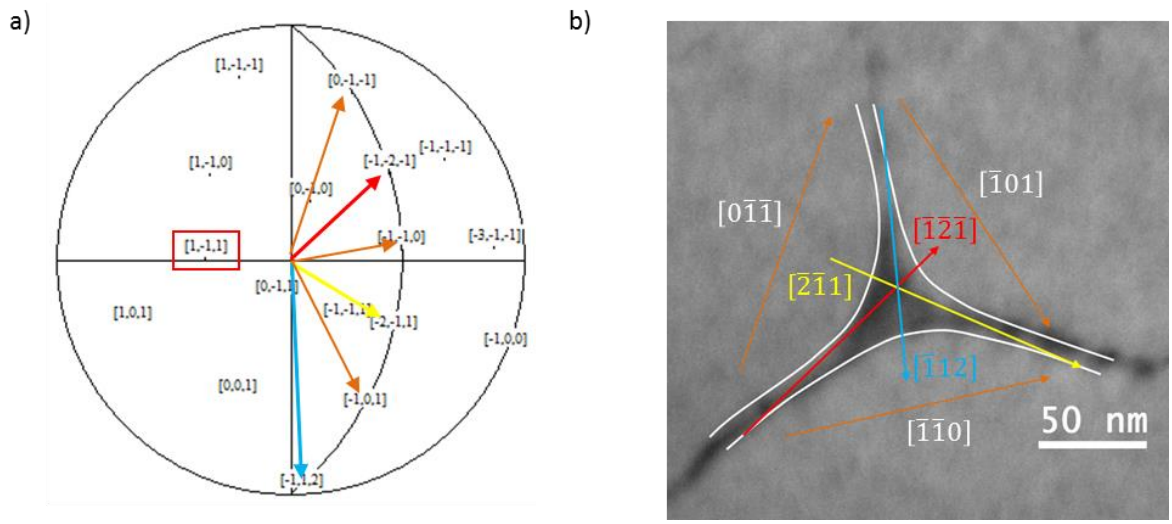


Figure II. 14 : (a) Projection stéréographique du cristal (grain) contenant le nœud, (b) directions caractéristiques du nœud étudié.

L'absence de traces de glissement rend plus complexe la détermination du plan du nœud ; on réalise donc des micrographies à différents tilts, ce qui permet d'identifier le bon plan en se basant sur l'évolution de la longueur des segments constituant le nœud. Le plan compatible avec la présente configuration est le plan $(1\bar{1}1)$ comme on peut le voir dans la Figure II.14.

Notons que le code couleur utilisé sur cette figure associe les directions cristallographiques dans le plan $(1\bar{1}1)$ aux orientations des trois branches du nœud.

Par ailleurs, il est possible maintenant d'estimer l'angle entre la normale du plan du nœud et le faisceau électronique (la direction du faisceau électronique étant au centre de la projection stéréographique). On trouve ψ = 40°.

La détermination du vecteur de Burgers des dislocations partielles a été effectuée selon la méthode d'extinction, qui a été appliquée aux segments de dislocations bordant le défaut d'empilement. En effet, si le produit scalaire $\vec{g}.\vec{b}$ est nul, alors le segment apparait hors contraste. Pour cela, on réalise plusieurs extinctions pour chaque segment, mais on se limite à présenter sur la Figure II. 15 une seule extinction par segment :

- Pour $\vec{g}$=(3$\bar{1}\bar{1}$), le segment en bas du nœud est éteint (i).
- Pour $\vec{g}$=(311), le segment à gauche du nœud est éteint (ii).
- Pour $\vec{g}$=(022), le segment à droite du nœud est éteinte (iii).

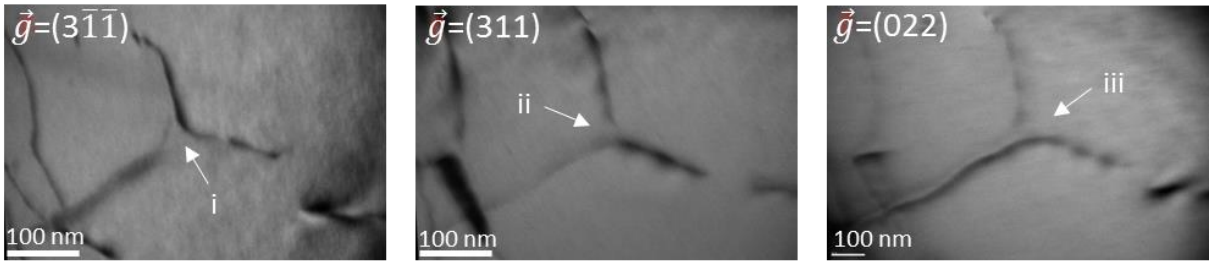


Figure II. 15 : Séries d'extinction de dislocations en faisant varier le vecteur diffractant.

La Figure II. 16 associe maintenant le même code couleur que celui utilisé en Figure II. 14 à chaque segment de dislocations et vecteur de Burgers.

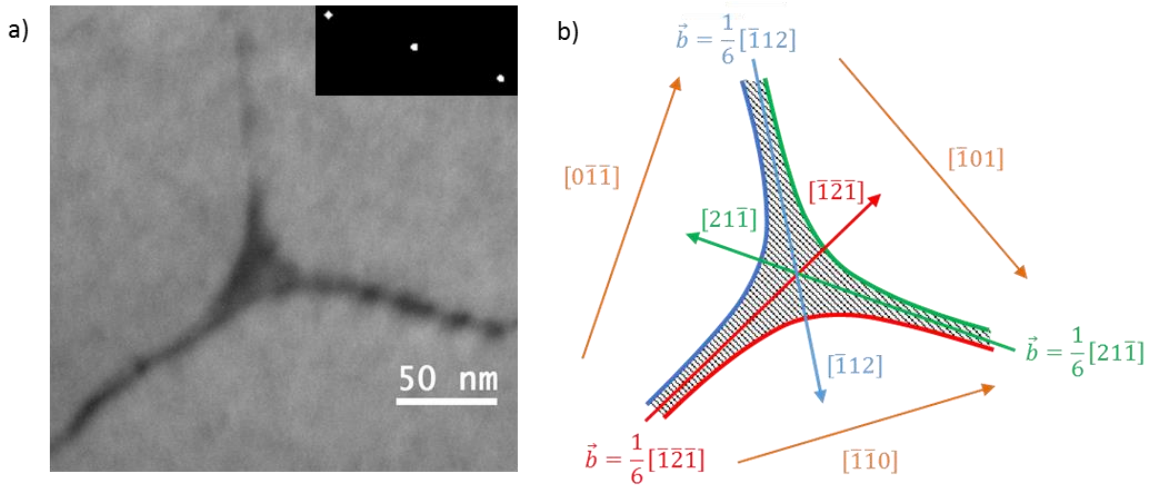


Figure II. 16 : (a) Rappel du nœud étudié, (b) Représentation shématique du nœud avec les dislocations le constiutant et leurs vecteurs de Bugers.

La dernière étape de la caractérisation des dislocations du nœud est la détermination de leur caractère (α). Il correspond à l'angle entre la direction du vecteur de Burgers et la tangente à la ligne de dislocation à l'endroit où le rayon est mesuré (Figure II. 17). Dans tous les nœuds caractérisés, la valeur de α approche toujours 30°. Ce résultat sera confirmé par la suite lors de l'estimation de l'EDE du 15-15 Ti à température ambiante.

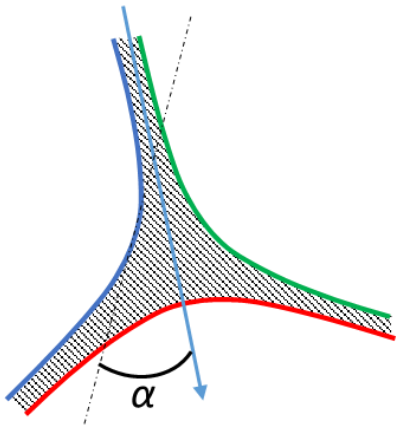


Figure II. 17 : Représentation shématique du nœud précisant la mesure de α.

5.1.2. Calcul de l'EDE à partir de y et R

Selon (AW Ruff, 1970), le rayon interne du nœud y est mesurable avec une bonne précision. Si l'on inscrit un cercle dans le nœud, son diamètre est connu avec une incertitude de l'ordre de la résolution du MET conventionnel, soit 1 nm. On évalue ainsi l'incertitude sur y à ± 0.5 nm.
Or, comme ψ = 40°, la projection du nœud observé est soumise à une distorsion. Sur la Figure II. 18(a), on ne mesure donc pas y mais P, le périmètre du triangle équilatéral inscrit dans le cercle, lui-même inscrit dans le nœud (voir repère (i)). On trouve $P = 75\ nm$. En appliquant l'équation (II. 4), la valeur réelle de y, y_t, est égale à 16 nm. Compte tenu des incertitudes de mesure évaluées à ± 0.5 nm, on a donc $\mathbf{y = 16 \pm 0.5\ nm}$.

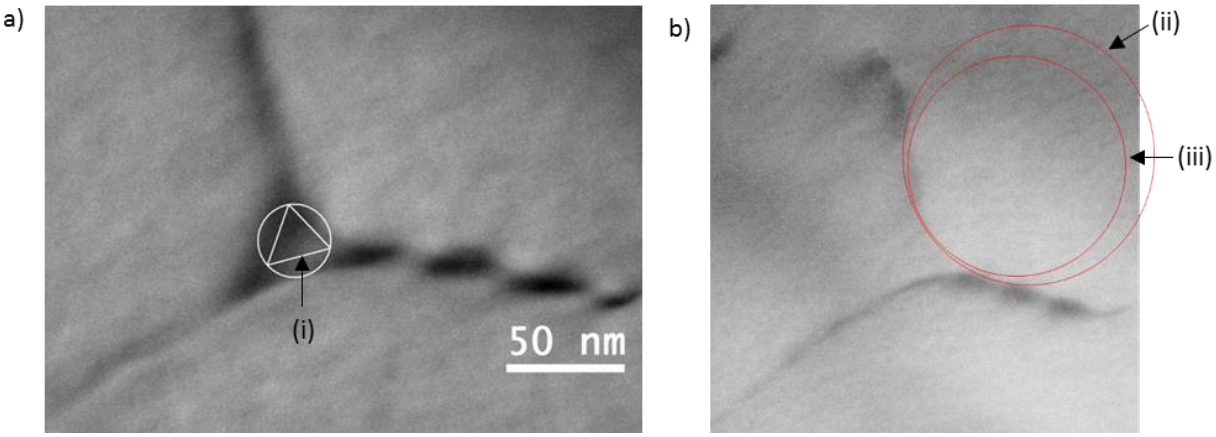


Figure II. 18 : Approches pour la mesure des rayons caractéristiques : (a) mesure de y et (b) mesure de R.

Contrairement à y, la mesure du rayon de courbure R des dislocations partielles est beaucoup plus subjective comme souligné par (Christian, Swann, 1965). On observe sur la Figure II. 18(b) les différents cercles pouvant approcher la courbure des dislocations partielles : le repère (ii) montre le cercle de plus grand diamètre possible et le repère (iii), celui de plus petit diamètre possible. Dans la présente étude, nous avons estimé l'incertitude sur la valeur du diamètre à ± 10 nm, ce qui donne une incertitude de ± 5 nm sur la valeur du rayon R. Dans le cas de la Figure II. 18(b), R est mesuré à $\mathbf{67\ nm \pm 5\ nm}$.

L'EDE du 15-15Ti est donné par les équations (II. 2) et (II. 3) compte tenu des valeurs de y et R mesurées à température ambiante. La Figure II. 19 compare les valeurs obtenues de γ_1 et γ_2 en fonction du caractère α des dislocations.
Les valeurs de γ_1 et de γ_2 ne sont compatibles entre elles que pour un seul angle α égal à 30°. Ce résultat est en accord avec le caractère attendu pour ces dislocations à savoir une valeur de α autour de 30°.
On remarque par ailleurs que γ_1 est très dépendante du caractère des dislocations alors que γ_2 ne l'est que faiblement. Pour γ_2, on constate que le passage d'un caractère purement vis vers un caractère purement coin ne fait varier l'EDE que de 1 mJ/m².
Par conséquent, γ_2 sera désormais privilégiée pour l'estimation de l'EDE par la méthode des nœuds dissociés.

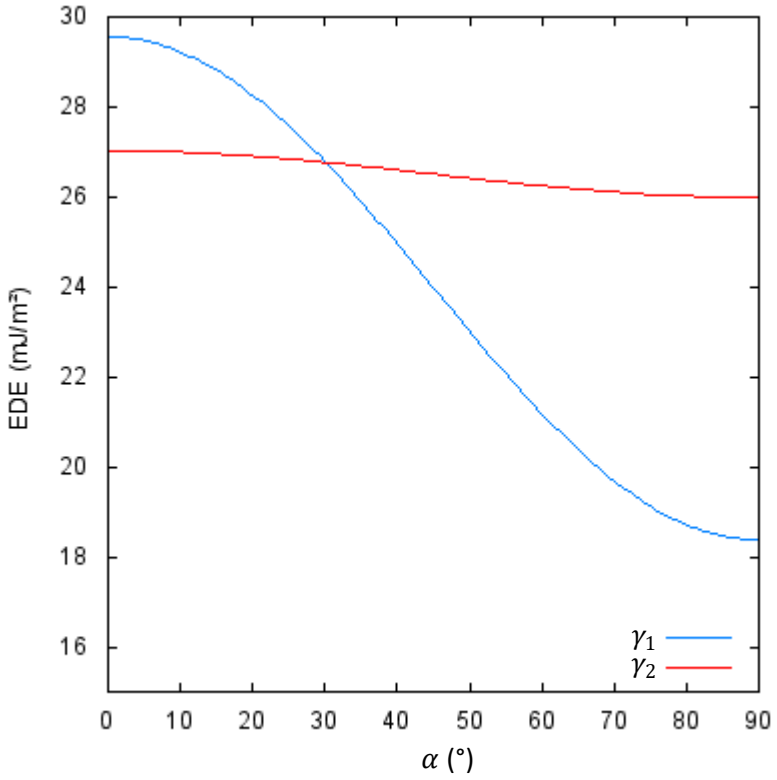


Figure II. 19 : Evolution de l'EDE en fonction du caractère des dislocations compte tenu du modèle choisie.

Les incertitudes liées à la fiabilité du modèle et aux erreurs de mesure sur y et R sont chacune évaluées à ±1 mJ/m². Par conséquent, compte-tenu des incertitudes et sachant que α = 30°, on estime l'EDE du 15-15Ti à $\mathbf{27 \pm 2\ mJ/m^2}$.

Pour valider ce résultat, une dizaine d'autres nœuds ont été caractérisés et ils ont tous conduit aux mêmes valeurs d'EDE, ce qui suggère une très bonne fiabilité de la mesure effectuée.

5.2. Méthode des tétraèdres de défaut d'empilement

La méthode des tétraèdres de défaut d'empilement est plus simple à appliquer puisqu'il n'est pas nécessaire de caractériser les dislocations du tétraèdre. La longueur l du côté du tétraèdre est le seul paramètre à mesurer.

Pour déterminer l'EDE du 15-15Ti à partir de cette méthode, nous allons étudier deux types de tétraèdres de défaut d'empilement :

- Ceux d'origine thermique (formés par hypertrempe),
- Ceux d'origine mécanique (formés par déformation).

5.2.1. Tétraèdres de défaut d'empilement d'origine thermique

Les tétraèdres d'origine thermique ont été abondamment observés dans les lames brutes d'hypertrempe. La Figure II. 20 expose une zone où trois tétraèdres ont été localisés de manière très rapprochée. Cependant, on peut constater une large dispersion concernant leur taille. De ce fait, toute mesure de l'EDE donnerait des valeurs aussi dispersées et donc peu pertinentes.

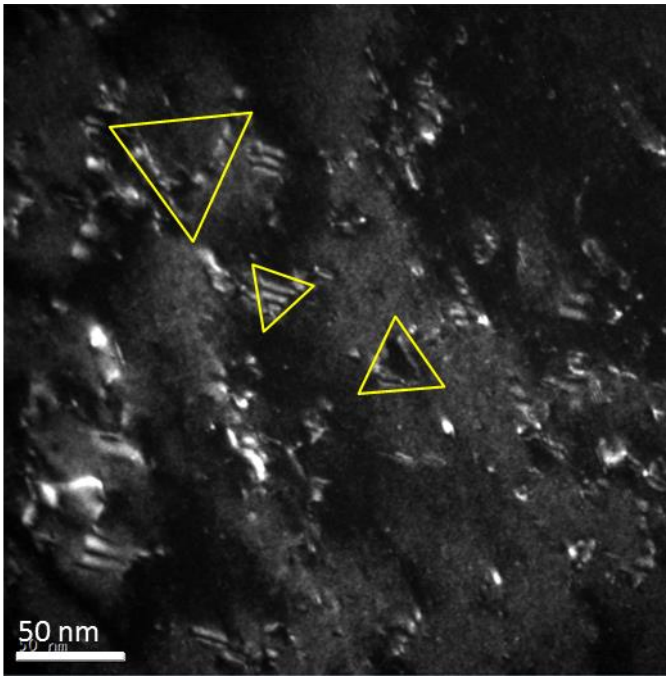


Figure II. 20 : Micrographie MET en champ sombre mettant en évidence des tétraèdres de défaut d'empilement d'origine thermique.

5.2.2. Tétraèdres de défaut d'empilement d'origine mécanique

A l'opposé, les tétraèdres de défaut d'empilement d'origine mécanique présentent des tailles beaucoup plus homogènes (Loretto et al., 1965).

Nous avons pu constater la présence de tels défauts dans notre matériau suite à une déformation accidentelle d'une des lames minces préalablement étudiée. La Figure II. 21 montre trois tétraèdres formés mécaniquement dans le 15-15Ti.

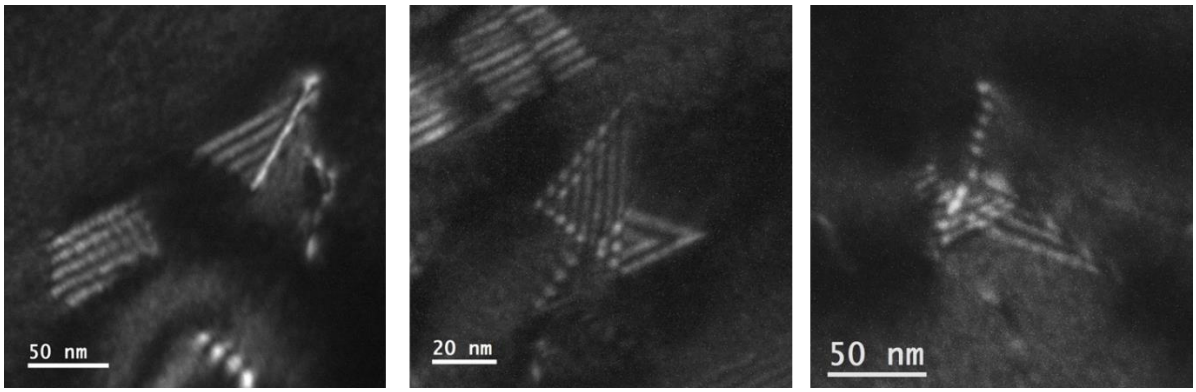


Figure II. 21 : Micrographies MET en champ sombre mettant en évidence des tétraèdres de défaut d'empilement d'origine mécanique.

La taille critique des tétraèdres varie dans un intervalle compris entre 55 et 75 nm avec une moyenne à 65 nm. On estime donc la taille critique des tétraèdres à $\mathbf{65 \pm 10\ nm}$.

Ces valeurs sont fiables et permettent de déterminer l'EDE du 15-15Ti. La Figure II. 22 représente l'évolution de l'EDE en fonction de la taille critique des tétraèdres selon l'équation (II. 7).

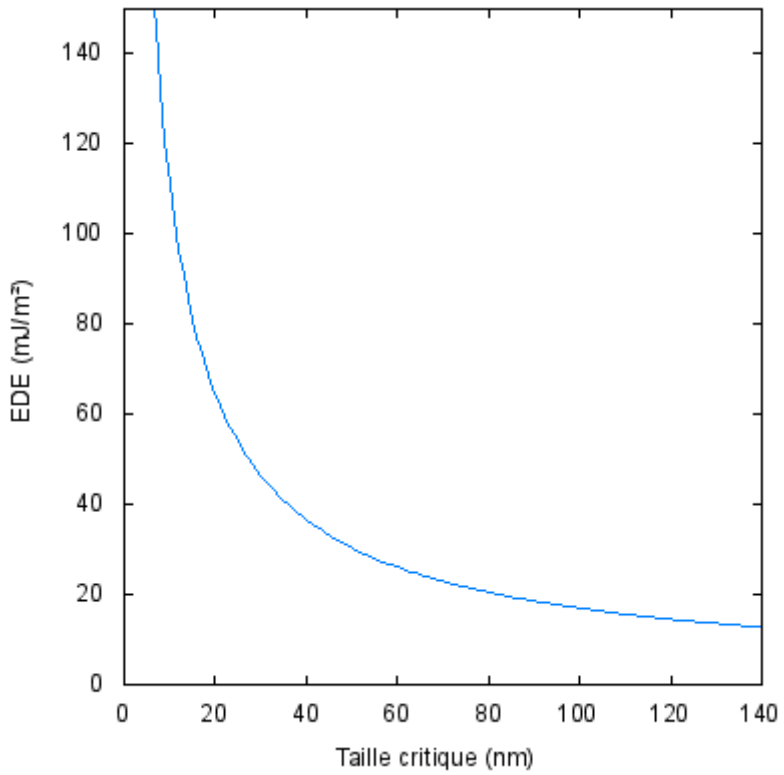


Figure II. 22 : Evolution de l'EDE en fonction de la taille critique des tétraèdres.

Le report de la taille obtenue de 65 nm sur le graphique en Figure II. 22 donne une valeur d'EDE centrée sur 25 mJ/m². La dispersion de la taille des tétraèdres engendre une incertitude de ± 3 mJ/m². L'incertitude sur l'EDE liée à la fiabilité du modèle est évaluée à ± 2 mJ/m².

L'EDE du 15-15Ti mesurée par la méthode des tétraèdres de défaut d'empilement est donc estimée à $\mathbf{25 \pm 5\ mJ/m^2}$.

Cette valeur est légèrement inférieure à celle obtenue par la méthode des nœuds dissociés. Pour rappel, elle est de $27 \pm 2\ mJ/m^2$. Cependant, les deux résultats sont en cohérence compte tenu des incertitudes.

Etant donné que la méthode des nœuds dissociés comporte une incertitude plus faible on ne retiendra que la valeur fournie par cette méthode pour la température ambiante.

6. Mesure de la variation de l'EDE entre 20°C et 500°C par la méthode des nœuds dissociés

La méthode des nœuds dissociés est la plus utilisée pour la mesure de l'EDE en température comme souligné par (Rémy et al., 1978). Par ailleurs, comme vu précédemment, celle s'appuyant sur les tétraèdres de défaut d'empilement est moins précise ; nous n'avons donc pas retenu cette seconde méthode.

L'expérience a été réalisée à l'Institut Pprime dans un MET-FEG JEOL 2200 FS opérant à 200 kV et est équipé d'un porte-objet chauffant de modèle 628Ta fabriqué par Gatan. Le nœud caractérisé en température a fait l'objet d'une étude minutieuse préalable dans un autre MET équipé d'un porte-objet double tilt, ce qui a permis de bien positionner l'échantillon dans le porte-objet chauffant qui est un simple tilt.

La séquence de chauffe est illustrée par la Figure II.24 où l'on constate une évolution de la taille du nœud entre 20°C et 500°C. On observe une nette constriction du nœud lorsque la température augmente. Aux températures de 400°C et de 500°C, le nœud n'est presque plus dissocié (dans la limite de résolution des conditions d'observation).

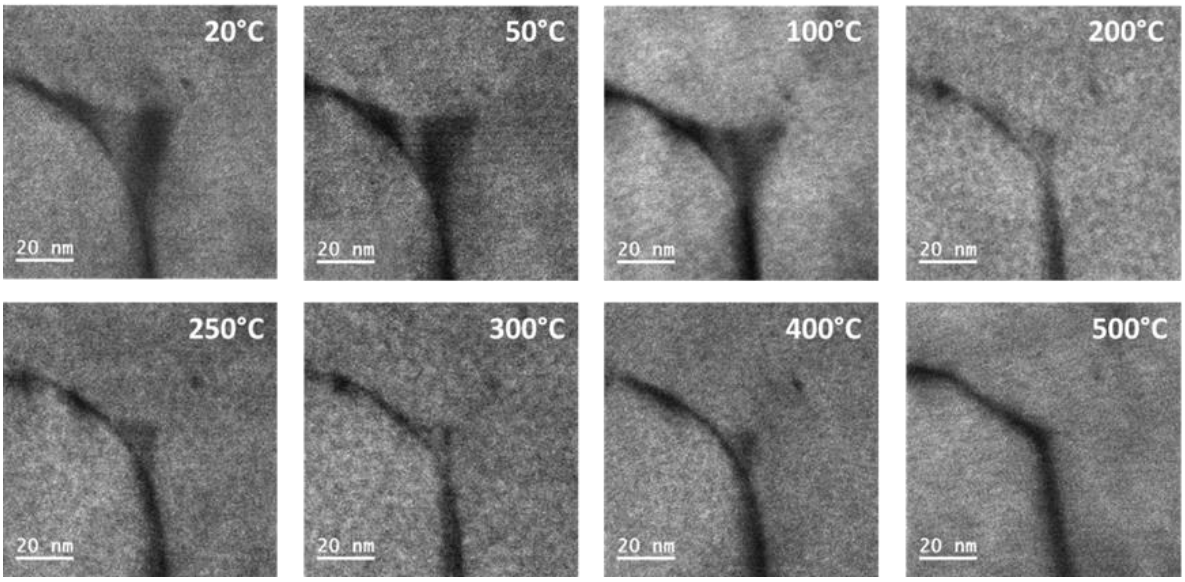


Figure II. 23 : Micrographies MET en champ clair traduisant l'évolution de la taille d'un nœud dissocié en fonction de la température ($\vec{g}$= 002).

Le Tableau II. 4 rassemble les données nécessaires pour calculer l'EDE à chaque température en utilisant l'équation (II. 3). Les valeurs obtenues d'EDE et l'incertitude associée sont données dans les deux dernières colonnes.
Il faut souligner que de manière générale les incertitudes augmentent avec la température. Pour 400°C et 500°C, elles sont très fortes en raison de la difficulté à mesurer y et R. Par conséquent, les valeurs d'EDE à ces températures figurent entre guillemets (et sont reportées sous la forme de symboles rouges sur la Figure II. 24).

T (°C)	y (nm)	R (nm)	γ (mJ/m²)	$\Delta\gamma$ (mJ/m²)
20	16 (±0,5)	72 (±5)	27	± 2
50	15 (±0,5)	69 (±5)	28	±2
100	12 (±0,5)	55 (±5)	34	±2
200	8 (±0,5)	36 (±5)	46	±3
250	7 (±0,5)	33 (±5)	51	±4
300	6.5 (±0,5)	31 (±5)	53	±4
400	5.5 (±1)	27 (±10)	« 59 »	-6/+12
500	5 (±1)	22 (±10)	« 60 »	-7/+14

Tableau II. 4 : Valeurs calculées de l'EDE et incertitudes associées en fonction de la température.

La Figure II. 24 illustre l'évolution de l'EDE avec la température obtenue grâce aux valeurs du Tableau II. 4. En dehors d'une augmentation significative de l'EDE entre 20°C et 500°C, deux tendances principales apparaissent :

- Une évolution quasi-linéaire entre 20°C et 300°C où la variation dγ/dT est estimée à **0.09 ± 0.02 mJ/m²/°C**.
- Une stabilisation autour de **60 mJ/m²** à partir de 400°C.

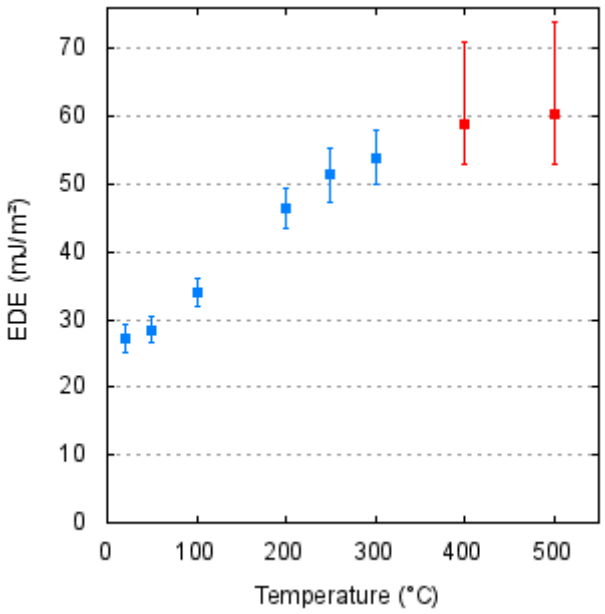


Figure II. 24 : Evolution de l'EDE en fonction de la température (les points rouges ont une plus forte incertitude).

7. Synthèse du chapitre

Ce chapitre avait pour objectif d'améliorer la compréhension des mécanismes de déformation élémentaires responsables de la singularité de comportement du 15-15Ti AIM1. Pour cela, un matériau modèle a été élaboré : une tôle hypertrempée obtenue par laminage plan avec une composition similaire à celle du 15-15Ti AIM1.

Trois types de caractérisations in-situ complémentaires ont été mises en œuvre :

- La traction in-situ dans le MEB permet une étude des mécanismes de déformation à l'échelle de plusieurs grains (échelle mésoscopique). Il en ressort une coexistence de deux mécanismes de déformation à température ambiante :
    - Le glissement et le stockage des dislocations, qui semble être le premier mécanisme à s'activer.
    - Le maclage, qui semble s'initier si une certaine déformation et/ou contrainte est atteinte.

- La traction en température in-situ dans le MET offre une analyse des mécanismes de déformation à l'échelle du grain (échelle microscopique).
    - Les essais à 20°C mettent en évidence que :
        - Le premier mode de glissement opérant semble être le glissement des dislocations parfaites.
        - Le glissement des dislocations partielles semble survenir si une densité critique de défauts est présente.
        - La dissociation des dislocations parfaites apparaît comme un mécanisme permettant de franchir les obstacles.
    - Les essais réalisés à 200°C révèlent que :
        - Seul le glissement des dislocations parfaites est opérant.
        - Le glissement dévié est actif à cette température.

- Le chauffage statique in-situ dans le MET a permis l'exploration de la variation des caractéristiques physico-chimiques élémentaires du matériau. Il apparait une hausse de l'Energie de Défaut d'Empilement lorsque la température augmente. Elle est estimée à :
    - 27 ± 2 mJ/m² à 20°C,
    - 46 ± 3 mJ/m² à 200°C.

Toutes ces informations seront discutées et mises en perspectives des autres résultats obtenus dans le chapitre V.

Chapitre III. Etude du comportement en traction des tubes de gaine et des mécanismes de déformation associés

Après s'être intéressé en deuxième partie à l'évolution en température des mécanismes de déformation élémentaires et des caractéristiques physico-chimiques d'échantillons modèles en 15-15Ti, cette troisième partie se concentre sur les objets concrets : les tubes de gaine. Elle a pour objectif de les caractériser et d'étudier leur comportement en traction et les mécanismes de déformation associés.

La démarche suivie repose sur la réalisation d'essais de traction puis sur l'examen post-mortem des microstructures de déformation à l'aide d'une combinaison de techniques de caractérisation à différentes échelles telles que le MEB-EBSD, le STEM et le MET.

1. Caractérisation des tubes de gaine en 15-15Ti AIM1 à l'état de réception

1.1. Présentation du matériau d'étude : les tubes de gaine en 15-15Ti AIM1 du lot STP 1

1.1.1. Gamme de fabrication

La nouvelle coulée de matière approvisionnée chez l'aciériste Aubert & Duval, déjà évoquée au chapitre II, a permis la fabrication industrielle de tubes de gaine. Les travaux de la thèse sont réalisés sur un lot portant la référence N°150739, que nous désignerons par « lot STP1 ». Le Tableau III. 1 présente les étapes de fabrication de ce lot.

Les deux premières étapes d'élaboration et de forgeage à chaud sont les mêmes que celles détaillées au Tableau II. 2. En effet, l'obtention de ronds forgés constitue le point de départ de fabrication des tubes de gaine étudiés dans ce chapitre et de la tôle en 15-15Ti étudiée dans le chapitre précèdent.

Pour l'obtention des tubes, ces ronds forgés sont par la suite forés et filés à chaud afin d'obtenir une première ébauche. Cette ébauche est ensuite transformée à froid par laminage VMR (Vertikaler Massenausgleich Ringwalzei) puis par plusieurs passes d'étirage avec des traitements d'hypertrempe inter-passes. Rappelons brièvement que l'intérêt de l'utilisation du laminage VMR dans la fabrication de tubes en 15-15Ti AIM1 a été récemment mis en évidence dans les travaux de thèse de (Courtin, 2015). Enfin, les deux dernières étapes de fabrication (hypertrempe finale et passe d'écrouissage par étirage) sont appliquées : leur rôle primordial pour l'application a déjà été précisé au chapitre I § 2.1.3.

La dernière passe d'étirage conduit à un écrouissage des tubes aux alentours de **20%.** Elle donne également les dimensions finales aux tubes, qui sont les suivantes :

- Diamètre externe : 9,70 mm
- Diamètre interne : 8,70 mm

La longueur requise pour les cœurs de RNR-Na est de ~2000 mm. Toutefois, les tubes ont été fabriqués avec une sur-longueur.

Etape de fabrication		Références et dimensions
Elaboration	Fusion induction sous vide (VIM)	Coulée Mère VG 1344
	Refusion par électrode consommable (VAR)	Coulée de Refusion HR 228401
Forgeage à chaud	/	Rond Forgé Φ 220 mm
Filage à chaud	Forage	/
	Filage ébauche creuse	Φext 73 mm x Ep 11 mm
Cycle de transformation à froid	Laminage VMR	/
	Etirage et traitement d'hypertrempe inter-passes	/
	Hypertrempe finale et passe d'écrouissage	Φext 9,70 mm x Ep 0,50 mm

Tableau III. 1 : Etapes de fabrication des tubes de gaine du lot STP1.

1.1.2. Contrôles après fabrication

Il a été demandé à l'industriel d'effectuer des examens et des contrôles sur les tubes de gaine en fin de fabrication pour valider leur conformité par rapport au cahier des charges du CEA.

La composition chimique des tubes finis a notamment été déterminée. Les valeurs obtenues pour les principaux éléments sont indiquées dans le Tableau III. 2, dans lequel les résultats de la coulée mère, déjà fournis dans le Tableau II. 1, sont également redonnés. On note que les teneurs en titane et en carbone, éléments clé de la résistance au gonflement, sont conformes à la spécification AIM1 à la fois pour la coulée mère et les tubes finis.

Fraction massique (%)	Cr	Ni	Ti	C	Mo	Mn	Si	P	N
Coulée (rappel)	14,3 ± 0,7	15,0 ± 0,6	0,40 ± 0,08	0,091 ± 0,001	1,51 ± 0,12	1,41 ± 0,09	0,84 ± 0,05	0,04± 0,01	0,006 ± 0,001
Tubes finis Lot STP1	14,6 ± 0,7	15,7 ± 0,6	0,40 ± 0,08	0,091 ± 0,001	1,65 ± 0,12	1,40 ± 0,09	0,75 ± 0,05	0,04± 0,01	0,006 ± 0,001

Tableau III. 2 : Composition chimique de la coulée mère (Aubert&Duval) et des tubes finis.

Concernant les caractéristiques mécaniques, l'industriel a procédé à des essais de traction directement sur les tubes dans son laboratoire. Ils ont permis de déterminer les valeurs de limite d'élasticité, de

résistance maximale et d'allongement à rupture à 20°C et 200°C. Elles sont récapitulées dans le Tableau III. 3.
On constate que les valeurs à la fois de $Rp_{0,2\%}$, R_m et A_{total} diminuent lorsque la température augmente de 20°C à 200°C. Cette évolution est cohérente pour $Rp_{0,2\%}$ et R_m mais elle ne l'est pas pour A_{total} , qui est réduit d'un facteur de plus de 2. De facto, les tubes en 15-15Ti AIM1 de ce lot industriel présentent bien la singularité de comportement décrite au Chapitre I § 2.3.1. Elle va être caractérisée finement par d'autres essais de traction décrits dans la suite de ce chapitre.

Température	**$Rp_{0,2\%}$ (MPa)**	**R_m (MPa)**	**A_{total} (%)**
20°C	685	769	31,4
200°C	623	680	12,8

Tableau III. 3 : Caractéristiques mécaniques des tubes du lot STP1 (moyenne sur 3 essais à 20°C et un essai à 200°C).

Aux termes d'un ensemble de contrôles comprenant des contrôles santé par ultrasons et par courant de Foucault, les tubes ont été déclarés conformes aux exigences du CEA émises pour le gainage du combustible des RNR-Na.

1.1.3. Examens microstructuraux

A la suite de la réception des tubes, des examens microstructuraux ont été menés dans le cadre de la thèse.

La microstructure a été caractérisée par microscopie optique à l'état final de fabrication à la fois en coupe transverse (perpendiculaire à l'axe du tube) et en coupe longitudinale (parallèle à l'axe du tube). Les micrographies obtenues sont présentées en Figure III. 1. Une analyse de la taille de grain sur la coupe transversale permet d'estimer un indice de grosseur de grain G de 8-9 soit un diamètre moyen de grain compris entre 15 et 22 µm. Par ailleurs, on identifie la présence de gros précipités, localisés par le repère (i), qui correspondent aux précipités primaires issus de la solidification du lingot et qui ne peuvent pas être dissous lors de l'hypertrempe finale. Leur présence a déjà été évoquée au Chapitre I § 2.2.1.
Les observations de la coupe longitudinale révèlent :

- Un allongement peu marqué des grains,
- Des alignements de précipités primaires dans le sens de la déformation de laminage et d'étirage (voir indice (ii)).

La composition chimique de ces précipités primaires a été étudiée par Energy Dispersive Spectroscopy (EDS) à l'aide d'un MEB-FEG JEOL 7001F-TTLS équipé d'un détecteur EDS Oxford Instrument, situé à l'Institut Pprime. On recense une population de précipités de type :

- Ti(C,N)
- (Ti,Mo)C
- (Ti,Mo)(C,N)

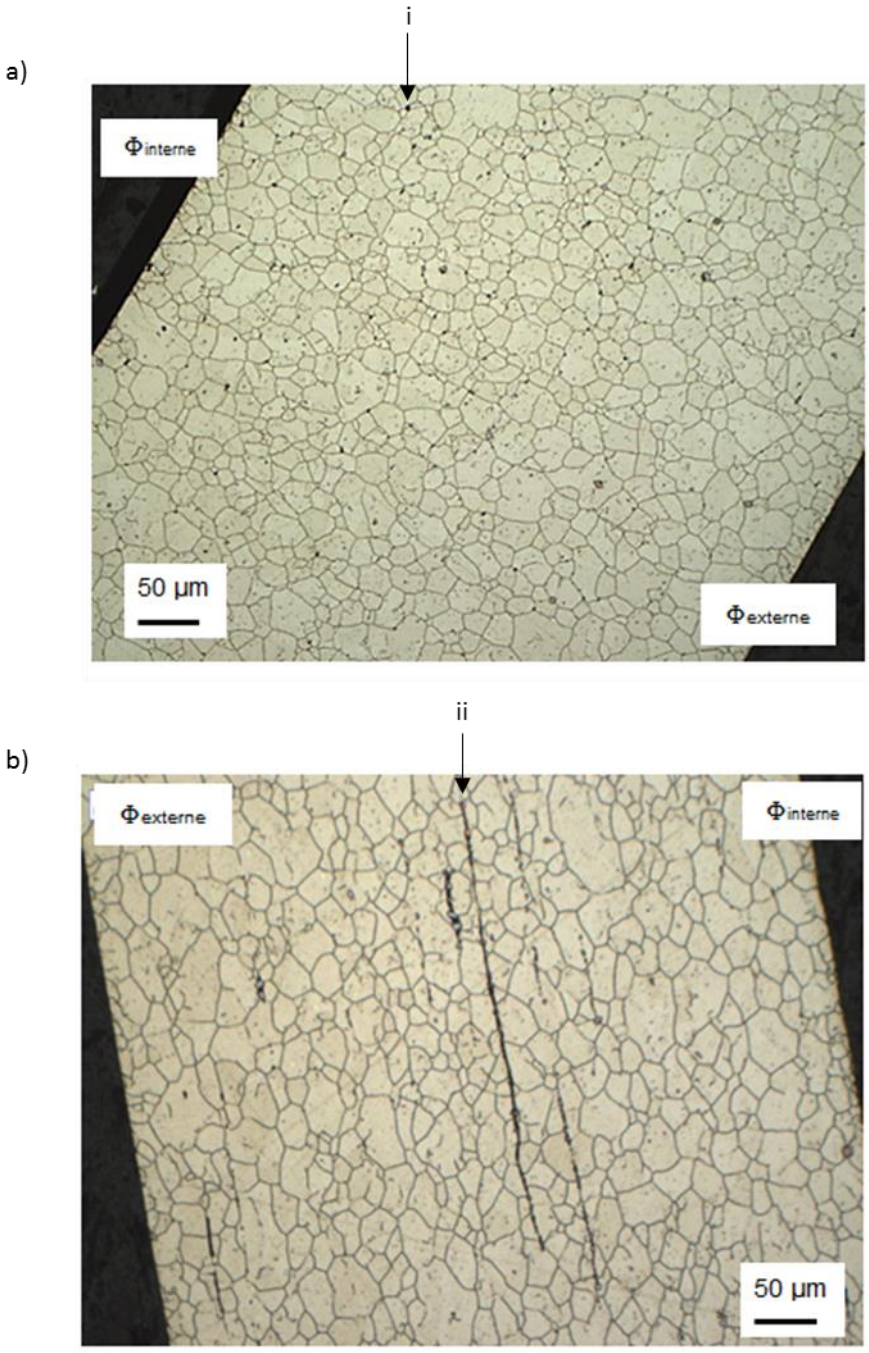


Figure III. 1 : Micrographies optiques du lot STP1 de la coupe transversale pour a) et de la coupe longitudinale pour b).

Concernant les (Ti,Mo)(C,N), comme le montre la Figure III. 2, ils ont la même structure cœur-coquille que celle mise en évidence dans la thèse de (Courtin, 2015) et déjà détaillée au Chapitre I § 2.2.1.

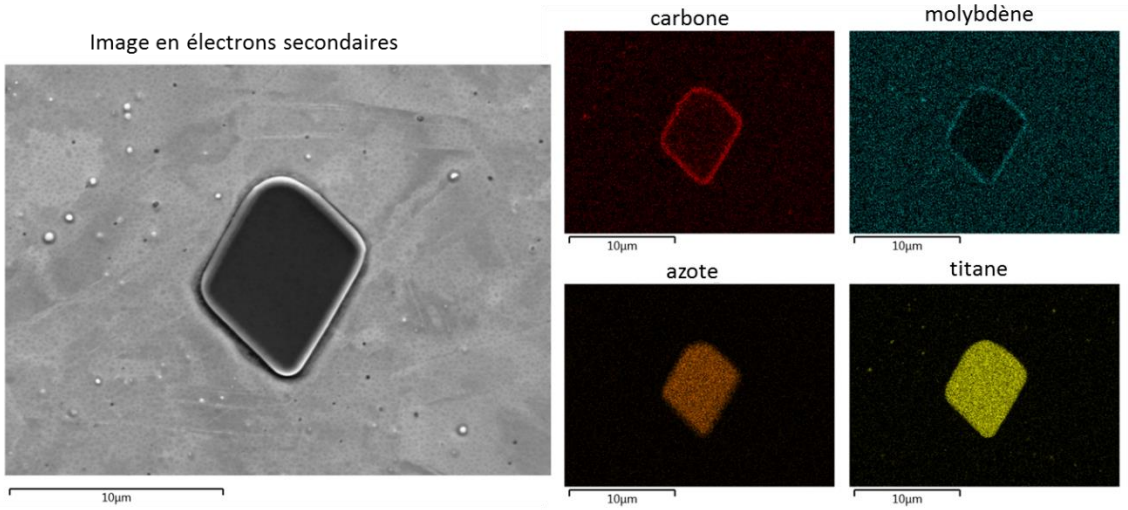


Figure III. 2 : Micrographie MEB et cartographies EDS de composition d'un précipité du type (Ti,Mo)(C,N).

La microstructure générale des tubes de gaine a été également observée à l'échelle du MET en utilisant un microscope FEI TECNAI 30 G2 opérant à 300 keV, situé au CEA Saclay (SEMI/LM2E). Concernant la préparation des lames minces, elles sont tout d'abord extraites d'une tuile issue d'un prélèvement dans le sens long du tube. En suivant, cette tuile est amincie par polissage mécanique pour former une plaquette de 100 µm d'épaisseur. La suite de la procédure est similaire à celle utilisée pour les lames minces du Chapitre II (Cf.Figure III. 1 début § 5).

L'indice (i) sur la micrographie de la Figure III. 3(a) met en exergue un précipité primaire de taille submicronique (≈ 200 nm) avec morphologie qui n'est plus cuboïdal mais sphérique. D'après (Courtin, 2015), ce type de précipité est typique d'une composition chimique (Ti,Mo)C avec une couronne enrichie en Mo.
On note d'autre part que la passe finale d'écrouissage a introduit une forte densité de dislocations qui sont réparties de façon homogène dans les grains, conformément à l'effet recherché : les dislocations étant des puits d'élimination de défauts d'irradiation, on souhaite que la densité de puits soit uniforme dans toute la matrice pour éviter un gonflement hétérogène. Cependant, des cellules de dislocations peuvent se former dans certaines zones comme celle identifiée par le repère (ii).

Outre les dislocations, l'écrouissage introduit de nombreuses macles mécaniques, visibles sur les micrographies de la Figure III. 3(b) et (c). Ces macles sont très fines et très longues, avec une longueur pouvant atteindre la taille du grain. On note qu'elles s'organisent en faisceaux ou paquets comme illustré par l'indice (iii). L'indice (iv) désigne une série de macles extrêmement fines dont l'épaisseur n'excède pas la dizaine de nanomètres. Elles sont dénommées par le terme « nano-macles ».

Enfin, la Figure III. 3(d) met en évidence, à fort grandissement, la densité importante de tétraèdres de défaut d'empilement (cerclés en rouge sur la micrographie) dans le 15-15Ti AIM1. Pour rappel, ce type de structure a été étudiée au chapitre II §5.2. On relève ici que ces tétraèdres ont des tailles disparates, ce qui tendrait à affirmer qu'ils ont été introduits par l'hypertrempe finale et non par l'étape d'écrouissage (A. W. Ruff, 1970).

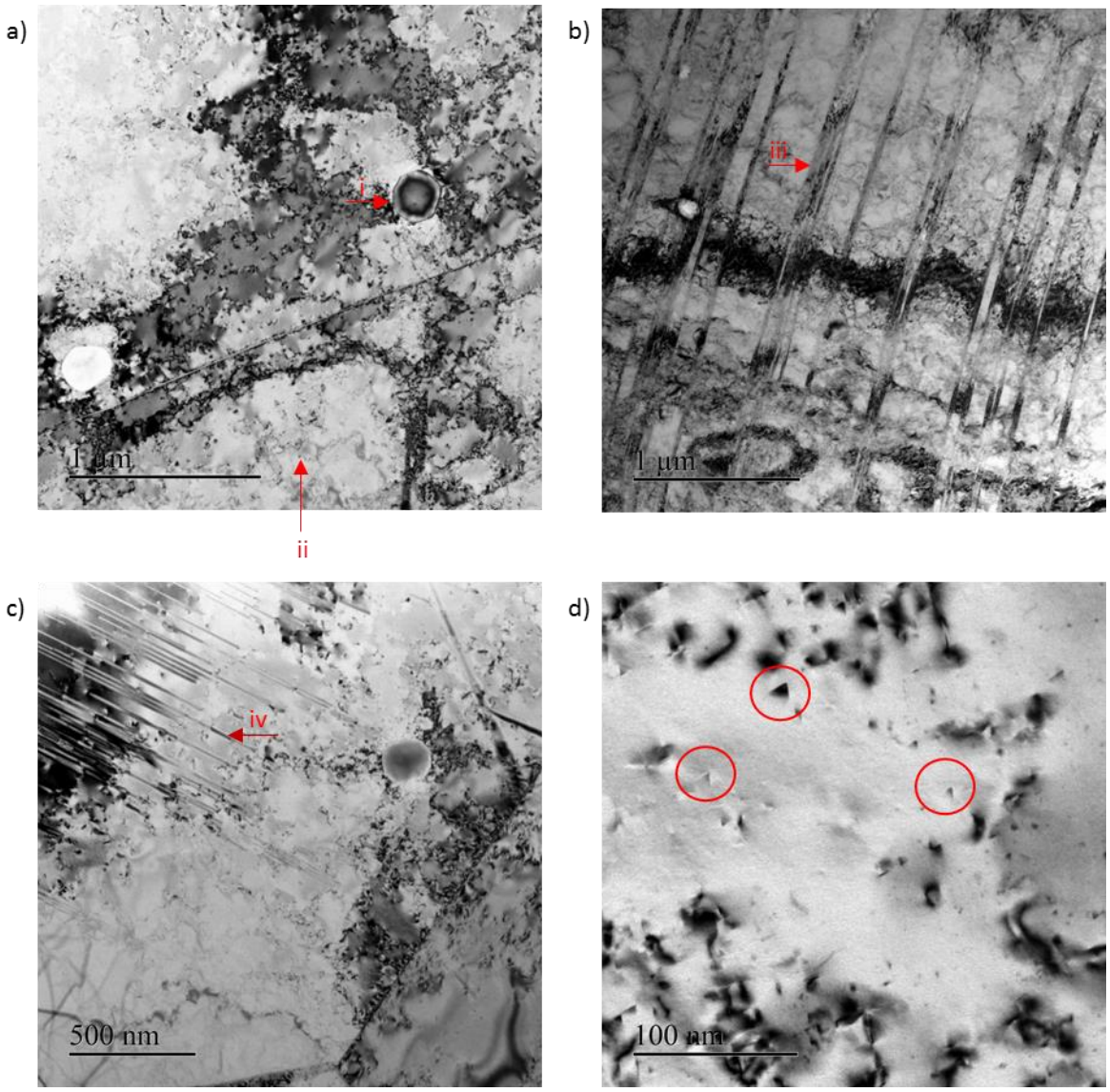


Figure III. 3 : Micrographies MET du 15-15Ti AIM1 à l'état de réception.

1.2. Etude du comportement en traction des tubes de gaine en 15-15Ti AIM1

1.2.1. Description du dispositif de traction

Les essais de traction sont réalisés au CEA Saclay (SEMI/LCMI) à l'aide d'une machine INSTRON 8862, équipée d'une cellule de force de 100 kN et dont le déplacement est assuré par un vérin électromécanique. Le pilotage se fait avec le logiciel BLUEHILL, qui gère aussi l'acquisition des données à chaque instant.

Les essais en température se font à l'aide d'un four cylindrique AET, repéré par (i) sur la Figure III. 4(a) et se fermant sur la zone utile de la machine. A l'intérieur, un balayage d'azote est effectué pour limiter l'oxydation des éprouvettes et garantir une température homogène. De surcroît, deux thermocouples de type K sont mis en contact dans les deux têtes d'éprouvettes pour assurer un gradient inférieur à 2°C le long des éprouvettes durant l'essai.

Les éprouvettes utilisées, dites à géométrie « Bi-jambes », sont directement prélevées dans le sens long des tubes conformément au plan présenté en Figure III. 4(b). Elles sont usinées par découpe au fil et un bouchon en 316L est emmanché-serré dans les deux têtes pour y éviter toute déformation. Leurs dimensions principales sont une longueur utile de 30 mm et une section utile de 3,06 mm².

Les essais sont arrêtés dès qu'une jambe rompt pour garantir les conditions d'uni-axialité.

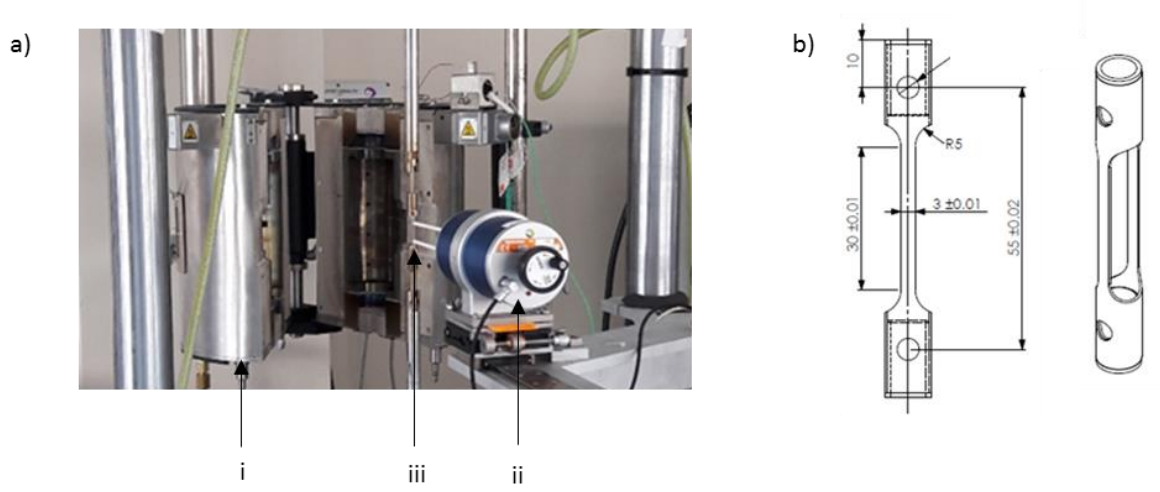


Figure III. 4 : Dispositif de traction en (a) et Plan des éprouvettes bi-jambes en (b).

Les essais ont été menés à deux vitesses de déformation dont les caractéristiques sont données comme suit :

Essais en conditions quasi-statiques :

La vitesse de déformation en traction choisie pour les essais en conditions quasi-statiques est $\dot{\varepsilon}_1 = 3.10^{-4}\, s^{-1}$. Dans ce cas, le suivi de la déformation de la zone utile de l'éprouvette peut être assuré par un extensomètre axial haute-température MAYTEC PMA 12 à tiges, repéré par (ii) sur la Figure III. 4(a) : Deux tiges en céramique sont en contact au niveau de l'une des jambes de l'éprouvette avec un écartement initial de 25 mm (voir (iii)). La déformation est mesurée par l'écartement de ces tiges à l'aide d'un capteur LVDT situé à l'intérieur de l'extensomètre. Les tiges sont reculées après que la résistance maximale à la traction soit atteinte pour éviter leur endommagement lors de la rupture. L'acquisition des données extensométriques s'arrête donc après la valeur de R_m. Par la suite, l'acquisition des données de déformation jusqu'à la rupture repose uniquement sur le déplacement du vérin.

Par conséquent, l'ensemble des résultats de traction obtenus en conditions quasi-statiques présentés dans ce chapitre provient des données extensométriques, à l'exception des allongements à rupture et des courbes conventionnelles contrainte – déformation allant jusqu'à rupture.

Essais à forte vitesse de déformation :

Pour ce type d'essais, la vitesse de déformation a été sélectionnée de manière à être représentative de celle vue par les tubes lors de l'écrouissage final. Chez l'industriel, les tubes sont étirés à la vitesse $\varepsilon = 2\ m.min^{-1}$, ce qui correspond à une vitesse d'essai de traction $\dot{\varepsilon}_2 = 10^{-1}\, s^{-1}$ pour des essais sur éprouvettes. Dans ce cas, le suivi de la déformation par extensométrie n'est pas envisageable et seul le déplacement du vérin peut être enregistré.

Il est important de noter que les courbes de traction ont été corrigées pour faire correspondre leur pente élastique au module d'Young mesuré par ailleurs à l'aide d'une technique ultrasonore (voir Annexe A).

La matrice des essais de traction à l'état de réception en fonction de la température d'essai et de la vitesse de déformation est donnée dans le Tableau III. 4. Certains essais ont été doublés voire triplés pour certaines températures.

	Températures (°C)								
Vitesse (s^{-1})	**20**	**100**	**150**	**200**	**250**	**300**	**400**	**500**	**600**
$\mathbf{3.10^{-4}}$ (nbr. d'essais)	3	1	1	3	1	1	2	1	1
$\mathbf{10^{-1}}$ (nbr. d'essais)	1	-	-	1	-	-	1	1	-

Tableau III. 4 : Matrice d'essais de traction menés sur les tubes en 15-15TI AIM1 à l'état de réception.

1.2.2. Mise en évidence de la singularité de comportement en conditions quasi-statiques

1.2.2.1. Courbes conventionnelles de 20°C à 600°C

La Figure III. 5 présente la comparaison des courbes conventionnelles contrainte-déformation obtenues entre 20°C et 600°C en conditions quasi-statiques ($\dot{\varepsilon} = \dot{\varepsilon}_1$) pour les tubes de gaine en 15-15Ti AIM1 à l'état de réception.

Les courbes présentent un plateau à pente quasi-nulle dans le domaine plastique, ce qui est typique des états écrouis (Cf. Chapitre I §1.3.2). On note également la présence d'oscillations sur la courbe de l'essai à 400°C traduisant l'activé d'un effet Portevin – Le Chatelier (PLC). Ces oscillations sont vues aussi sur la courbe de l'essai à 500°C, non présentée sur la Figure III. 5 pour plus de clarté.

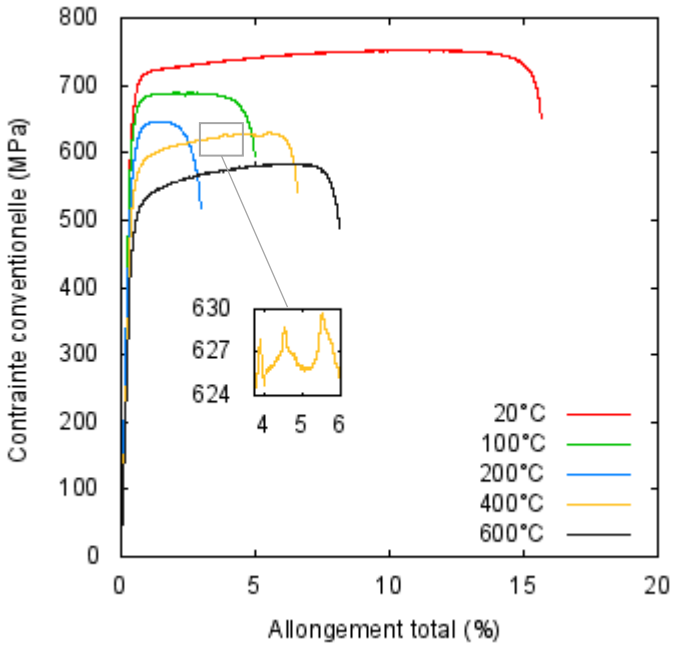


Figure III. 5 : Courbes conventionnelles de traction contrainte-déformation des tubes de gaine en 15-15Ti AIM1 entre 20 et 600°C ($\dot{\varepsilon} = \dot{\varepsilon}_1$).

1.2.2.2. Propriétés en traction de 20°C à 600°C

Les évolutions des propriétés en traction (A_t, A_g, $Rp_{0,2\%}$, R_m) en fonction de la température, tirées des courbes de traction, sont présentées en Figure III. 6. Pour les essais doublés ou triplés, ce sont les valeurs moyennes qui sont fournies. De plus, nous ajoutons que l'incertitude sur ces valeurs est faible et contenue dans la taille des symboles utilisés.

L'étude de l'évolution de l'allongement total (A_t) fait ressortir deux domaines (Cf. Figure III. 6(a)) :

- Une baisse entre 20°C et 200°C où A_t varie entre 14% et 3%.
- Une augmentation entre 200°C et 600°C où A_t atteint environ 8%.

Par comparaison, A_t mesuré directement sur les tubes par l'industriel en charge de leur fabrication est plus élevé : A_t = 31,4% à 20°C et 12,8% à 200°C.
L'écart entre les valeurs obtenues peut être imputable à l'utilisation, dans notre cas, de la géométrie bi-jambe. Quoi qu'il en soit, les tendances observées sont les mêmes, à savoir que l'on observe une chute importante de A_t entre 20°C et 200°C.

L'évolution de l'allongement homogène (A_g) fait quant à elle apparaitre quatre domaines (Cf. Figure III. 6(a)) :

- Une forte baisse entre 20°C et 150°C où A_g est divisé par un facteur de 6.
- Un minimum local d'allongement entre 150°C et 200°C avec une valeur de Ag de 1,25%.
- Une augmentation dans le domaine de température entre 200 et 500°C.
- Une stabilisation entre 500°C et 600°C aux alentours de 6%.

Il est intéressant de noter que les allongements aux hautes températures (≥ 500°C) ne regagnent jamais les valeurs obtenues à 20°C.

La Figure III. 6(b)) présente l'évolution de la limite d'élasticité à 0,2% d'allongement ($Rp_{0,2\%}$) en fonction de la température. Comme pour tous les états écrouis, la limite d'élasticité est élevée. En effet, sa valeur est d'environ 700 MPa à 20°C et elle chute de façon quasi-linéaire avec la température pour atteindre~ 500 MPa à 600°C.
L'évolution de la résistance maximale (R_m) est représentée sur le même graphe : à 20 °C, elle est proche de 750 MPa puis décroit pour atteindre ~650 MPa à 200°C où un « pseudo » plateau est observé jusqu'à 400°C. Au-delà, la valeur continue à chuter et vaut 580 MPa à 600°C.

Pour chaque température, l'écart entre $Rp_{0,2\%}$ et R_m est relativement réduit comme souligné par les plateaux observés dans le domaine plastique sur les courbes de traction de la Figure III. 5. Ceci est le signe d'un écrouissage supplémentaire faible du métal pendant l'essai de traction et d'une propension précoce à la localisation de la déformation.

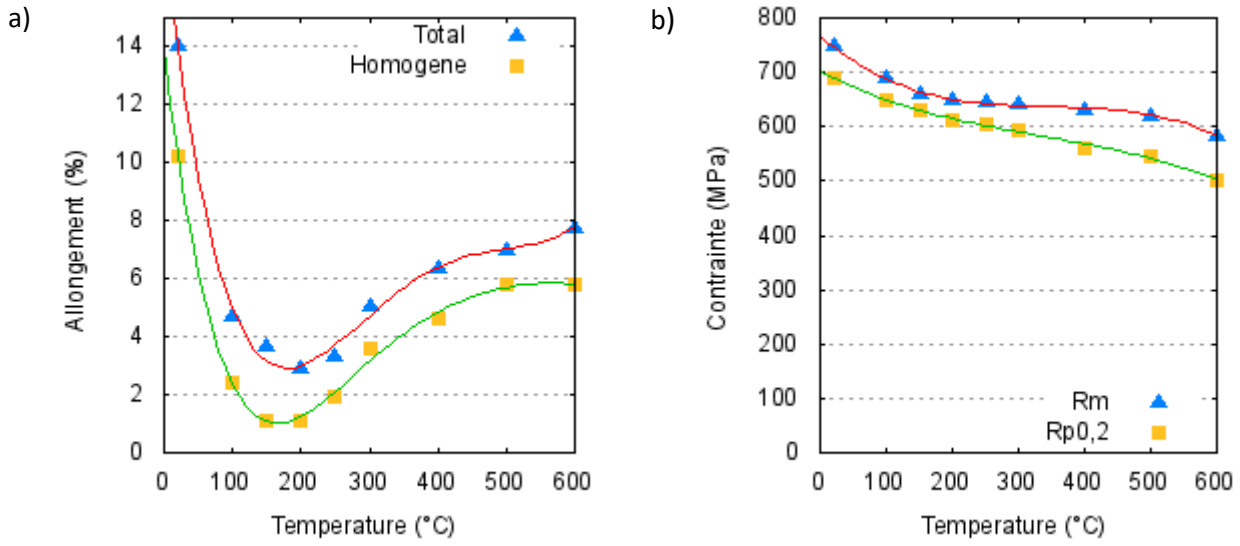


Figure III. 6 : Evolution en fonction de la température de A_g et A_t pour a) et de $Rp_{0,2\%}$ et R_m pour b) des tubes de gaine en 15-15 Ti AIM1 ($\dot{\varepsilon} = \dot{\varepsilon}_1$).

Par rapport aux travaux déjà effectués sur le même acier (Courtin, 2015), nos résultats apportent des précisions par l'ajout d'essais à des températures resserrées autour de 200°C. Elles confirment la singularité de comportement en traction du 15-15Ti AIM1 avec un minimum d'allongement à 150°C-200°C. Cet acier se démarque ainsi d'autres aciers austénitiques inoxydables écrouis (Cf. Chapitre I §1.3.2) :

- Pour le 316LN écroui, le minium d'allongement est observé à 400°C.
- Pour le 316 Ti écroui, un double minimum d'allongement est présent à 200°C et 400°C.

1.2.3. Influence de la vitesse de déformation

L'influence de la vitesse de déformation sur le comportement est étudiée en procédant à des essais à forte vitesse de déformation, c'est dire $\dot{\varepsilon} = \dot{\varepsilon}_2$ (définie au paragraphe 1.2.1).

La Figure III. 7 présente, dans ces conditions, les courbes conventionnelles contrainte-déformation entre 20°C et 500°C des tubes de gaine à l'état de réception. En comparant ces résultats avec ceux obtenus à $\dot{\varepsilon} = \dot{\varepsilon}_1$, on observe à nouveau un plateau sur les courbes dans le domaine plastique.

Cependant, deux différences notables sont à souligner :

- L'allongement total à 400°C devient aussi faible qu'à 200°C,
- La présence d'oscillations dues à l'effet PLC n'est pas détectée sur toute la plage de température.

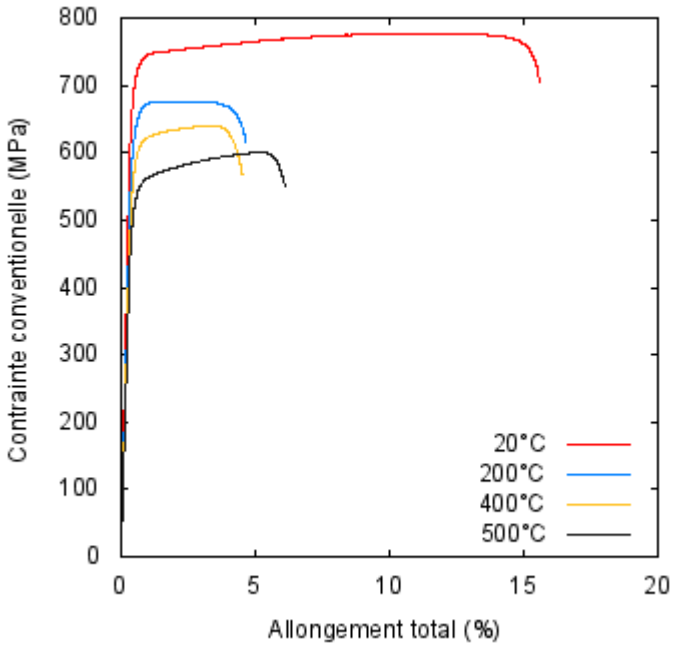


Figure III. 7 : Courbes conventionnelles contrainte-déformation des tubes de gaine en 15-15Ti AIM1 entre 20 et 500°C ($\dot{\varepsilon} = \dot{\varepsilon}_2$).

Les évolutions en fonction de la température de l'allongement homogène et de la résistance maximale sont comparées pour les deux vitesses de déformation sur la Figure III. 8. On remarque principalement une **translation du minimum de A_g vers les hautes températures** pour la vitesse $\dot{\varepsilon}_2$. Concernant la valeur de R_m, il est difficile de déceler une tendance car les différences entre les valeurs des deux vitesses sont de l'ordre de grandeur des incertitudes. Cependant, il semblerait que R_m décroit de manière plus importante pour les conditions de vitesse de déformation élevée.

La réalisation d'essai à différentes vitesses de déformation permet une étude plus précise de la sensibilité S de la contrainte à la vitesse de déformation, qui est définie selon l'équation (III. 1) (Beukel, 1980) :

$$S = \frac{\Delta\sigma}{\ln(\frac{\dot{\varepsilon}_1}{\dot{\varepsilon}_2})} \qquad (III.\ 1)$$

Généralement, S est déterminée en réalisant des sauts de vitesse durant les essais de traction pour obtenir S, dite instantanée. Cependant, dans le cadre de la thèse, il n'a pas été possible de procéder à cela. Par conséquent, S est mesurée en se basant sur la variation d'un niveau de contrainte à une déformation équivalente pour les deux vitesses : on choisit $Rp_{0,2\%}$.

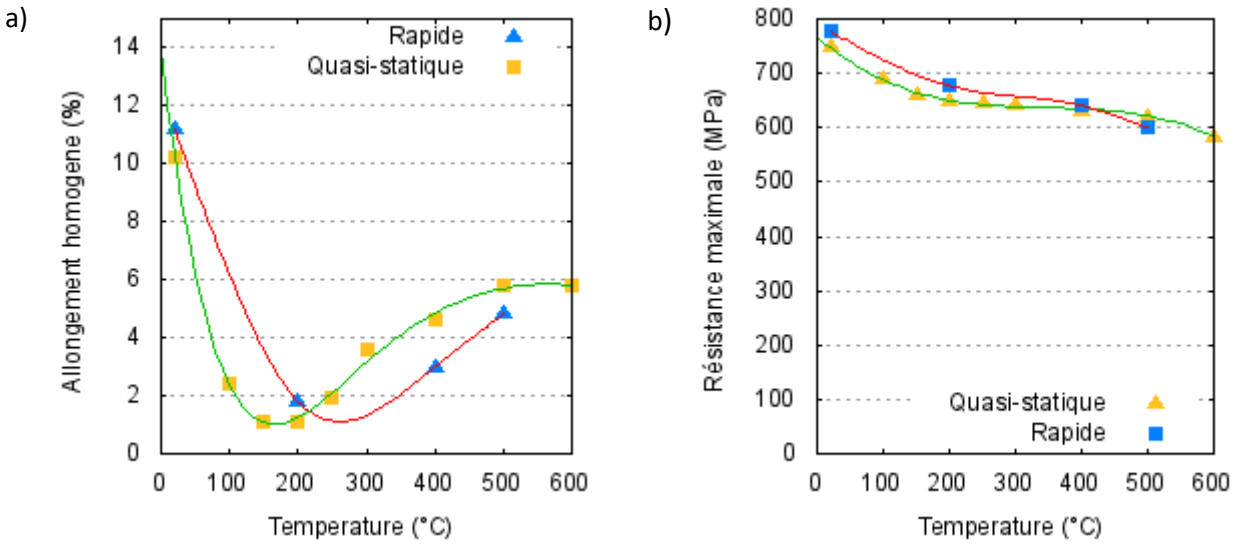


Figure III. 8 : Comparaison en fonction de la vitesse de déformation de l'évolution en température de A_g pour a) et du R_m pour b) des tubes de gaine en 15-15 Ti AIM1.

La Figure III. 9 montre l'évolution en fonction de la température de *S* calculée à partir de la variation de $Rp_{0,2\%}$ pour les tubes de gaine en 15-15Ti AIM1.
Cette évolution est croissante de manière parfaitement linéaire entre 20°C et 400°C, ce qui traduit une sensibilité normale du matériau à la vitesse de déformation, où l'écrouissage augmente avec cette dernière. A 500°C, la sensibilité est négative, ce qui est expliqué par la présence de vieillissement dynamique (Hong, Lee, 2004 ; Garnier, 2007).

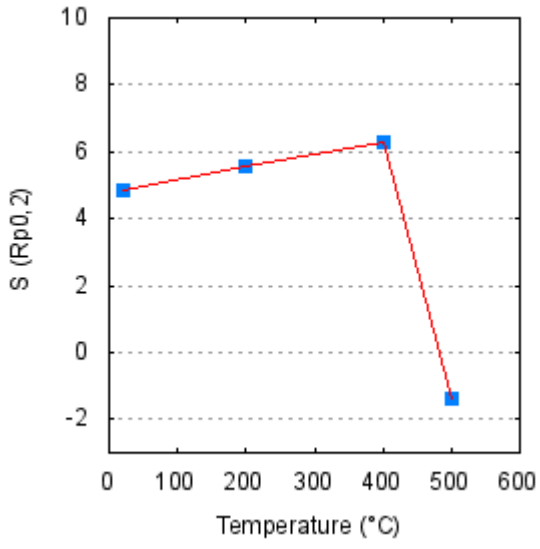


Figure III. 9 : Evolution en fonction de la température de S, déterminée à partir de la variation de la limite d'élasticité, pour les tubes de gaine en 15-15 Ti AIM1.

Les propriétés en traction des tubes de gaines en 15-15Ti AIM1 étant maintenant connues de manière plus précise, la suite de l'étude va se concentrer sur les températures de 20°C et 200°C où la singularité de comportement a été observée. Pour en éclaircir l'origine, des caractérisations post-mortem vont

être menées sur les éprouvettes déformées en conditions quasi-statiques, représentatives des conditions de déformation vues par les gaines en réacteur, hors conditions accidentelles.

1.3. Caractérisations post-mortem des éprouvettes déformées à 20°C et 200°C

1.3.1. Observation des fractographies de rupture

Les premières analyses menées pour comprendre l'origine de la singularité de comportement ont consisté en l'observation des faciès de rupture. Les images des fractographies à 20°C et 200°C, présentées en Figure III. 10, ont été acquises à l'aide d'un MEB de table HIROX, SH 3500MB fonctionnant à 5 keV.

L'examen de ces fractographies révèle dans chacun des cas un faciès de rupture majoritairement ductile à cupules. On note tout de même une différence sur la morphologie des cupules, qui peut être directement corrélée aux valeurs de A_t : dans le cas de l'état rompu à 20°C ($A_t \approx 14\%$) , les cupules sont nombreuses et fines alors qu'elles sont beaucoup plus hétérogènes et grossières dans le cas de l'état rompu à 200°C où A_t est beaucoup plus faible ($A_t \approx 3\%$).

Certains auteurs mentionnent des ruptures en biseau lorsque la température augmente (Braski, Maziasz, 1984) ou en « hélice » sur des éprouvettes tubulaires (Courtin, 2015), qui peuvent être un indice d'une localisation précoce de la déformation. Néanmoins, ces aspects ne transparaissent pas clairement sur le 15-15Ti AIM1 entre 20°C et 200°C.

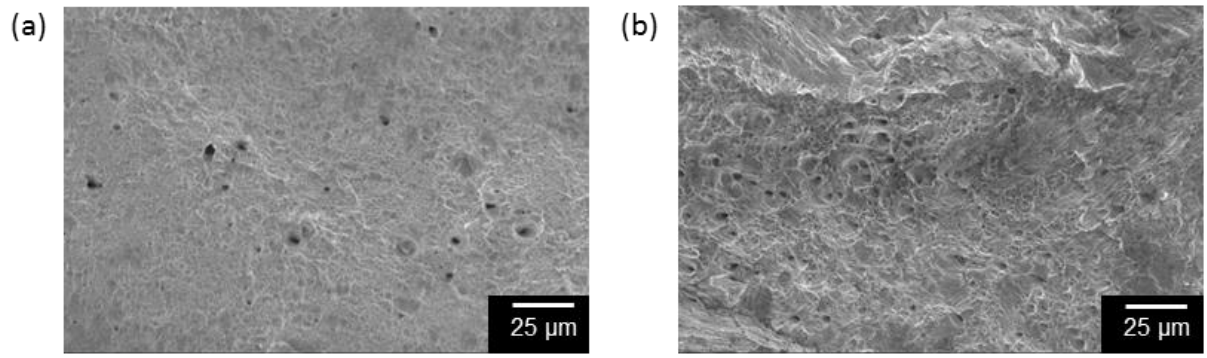


Figure III. 10 : Faciès de rupture après essais à 20°C pour a) et à 200°C pour b).

En résumé, ces résultats ne sont pas suffisants pour conclure sur une quelconque évolution des mécanismes de déformation du 15-15Ti AIM1 entre 20°C et 200°C. Une étude plus poussée va être effectuée au MEB grâce à l'EBSD.

1.3.2. Caractérisation des microstructures de déformation par EBSD

1.3.2.1. Description du protocole expérimental

Pour la caractérisation des microstructures de déformation par EBSD, des segments d'éprouvettes sont tout d'abord prélevés avec un soin particulier porté à la sélection de zones d'intérêt loin de la région présentant de la striction. L'allongement vu par les zones en question est donc l'allongement

homogène. Ceci est confirmé par un marquage, à base de points de peinture, placés sur les éprouvettes : on mesure ainsi la position des marques avant et après essais, ce qui permet d'obtenir l'allongement local de manière précise.

Ensuite, les segments des éprouvettes sont enrobés à chaud (180°C pendant 3 minutes) dans une résine conductrice. Ils sont positionnés de façon à ce que la coupe transverse des éprouvettes soit en surface du plot d'enrobage. Puis, la surface du plot est polie mécaniquement jusqu'à l'état miroir. Enfin, la couche d'écrouissage induite dans le métal est enlevée par 6 heures de polissage vibratoire dans une solution d'OPS.

Le MEB utilisé pour la caractérisation EBSD des microstructures de déformation est un Helios Nanolab G3 CX DualBeam à canon à émission de champ (FEG) fabriqué par ThermoFisher, situé à l'Institut Pprime. Il est équipé d'une caméra EBSD haute sensibilité HIKARI Super de EDAX Instrument. Les cartographies EBSD sont acquises avec le logiciel TEAM et post-traitées avec le logiciel OIM 7. Elles sont représentées via les figures de pole inverses (IPF), qui sont orientées de manière normale à la coupe transverse, c'est-à-dire parallèlement à la direction de traction. Les conditions d'acquisition sont une tension de 10 keV et une intensité de courant de 10 nA.

Afin d'indexer au mieux les plus petits défauts de la microstructure tels que les nano-macles observées au MET en Figure III. 3, une étude en EBSD haute résolution est adoptée avec un pas de faisceaux fixé à 25 nm. Avec un tel pas, la taille des zones cartographiées est limitée en dimension à environ 80 x 80 µm en raison du poids des fichiers générés. En effet, les cartographies obtenues selon ces caractéristiques contiennent aux alentours de 10 millions de pixels et nécessitent une trentaine d'heures d'acquisition. La qualité d'indexation (Index Quality, IQ) est également superposée sur chaque IPF pour accentuer la présence des défauts de la microstructure, induisant une modification de IQ.

1.3.2.2. Comparaison des cartographies EBSD après déformation à 20°C et 200°C

La comparaison des cartographies EBSD (IPF+IQ) après déformation à 20°C et 200°C est effectuée sur la Figure III. 11. Pour comparaison, il est aussi présenté la cartographie de l'état initial avant traction.

La Figure III. 11(a) présente l'état initial du 15-15Ti AIM1 où la microstructure est déjà écrouie. On observe que deux mécanismes de déformation sont actifs durant l'étirage des tubes :

- Le glissement et le stockage de dislocations qui est révélé par la présence de gradients de couleurs au sein des grains. Ces gradients de couleurs reflètent les distorsions du réseau cristallin.
- Le maclage mécanique, qui est représenté par l'apparition de désorientations abruptes dans les grains (voir l'exemple du repère (i) sur la Figure III. 11). En outre, on précise que la plupart des macles sont trop fines pour être indexées : comme vu sur la micrographie MET en Figure III. 3(c), l'épaisseur des macles peut être seulement de l'ordre de 10 nm, c'est-à-dire environ deux fois plus petite que le pas faisceau du MEB (= 25 nm). Néanmoins, la présence de ces nano-macles dégrade localement l'indexation de la zone, ce qui est transcrit sur l'IQ par des traces noires dans les grains comme indiqué par le repère (ii). On remarque notamment grâce à cela que, pour un même grain, deux systèmes de maclage peuvent s'activer résultant en l'intersection des macles (Cf. repère (iii)).

La Figure III. 11(b) montre l'effet d'un essai de traction à 20°C sur la microstructure du 15-15Ti AIM1 où la déformation homogène est alors égale ≈ 10%. On constate que le nombre de macles a augmenté fortement par rapport à l'état initial et la plupart sont désormais résolues, traduisant leur

élargissement. De plus, les gradients de couleur sont plus prononcés traduisant une intensification du glissement et du stockage de dislocations.

La Figure III. 11(c) montre, quant à elle, l'effet d'un essai de traction à 200°C où la déformation homogène est dans ce cas égale ≈ 1,25%. Cette fois-ci, la cartographie EBSD ne révèle pas d'évolutions significatives de la microstructure par rapport à l'état initial. Concernant les macles mécaniques visibles, il est difficile de savoir si elles ont été introduites par l'écrouissage initial ou l'essai de traction.

Par conséquent, il apparaît peu pertinent d'étudier les mécanismes de déformation en utilisant un état initial déjà écroui. Il est préférable de débuter avec un état vierge de déformation pour être assuré que les défauts présents dans la microstructure ont été introduits uniquement par l'essai de traction et non par une autre sollicitation mécanique. Pour cette raison, la caractérisation post-mortem des éprouvettes doit être préférablement menée sur l'état hypertrempé. Même si cet état n'est pas représentatif de celui des gaines en réacteur, les résultats qu'il fournira permettront une meilleure compréhension de ceux obtenus sur l'état écroui.
La suite de ce chapitre porte donc sur la compréhension des mécanismes de déformation des tubes de gaine via l'étude du comportement en traction de ces tubes à l'état hypertrempé.

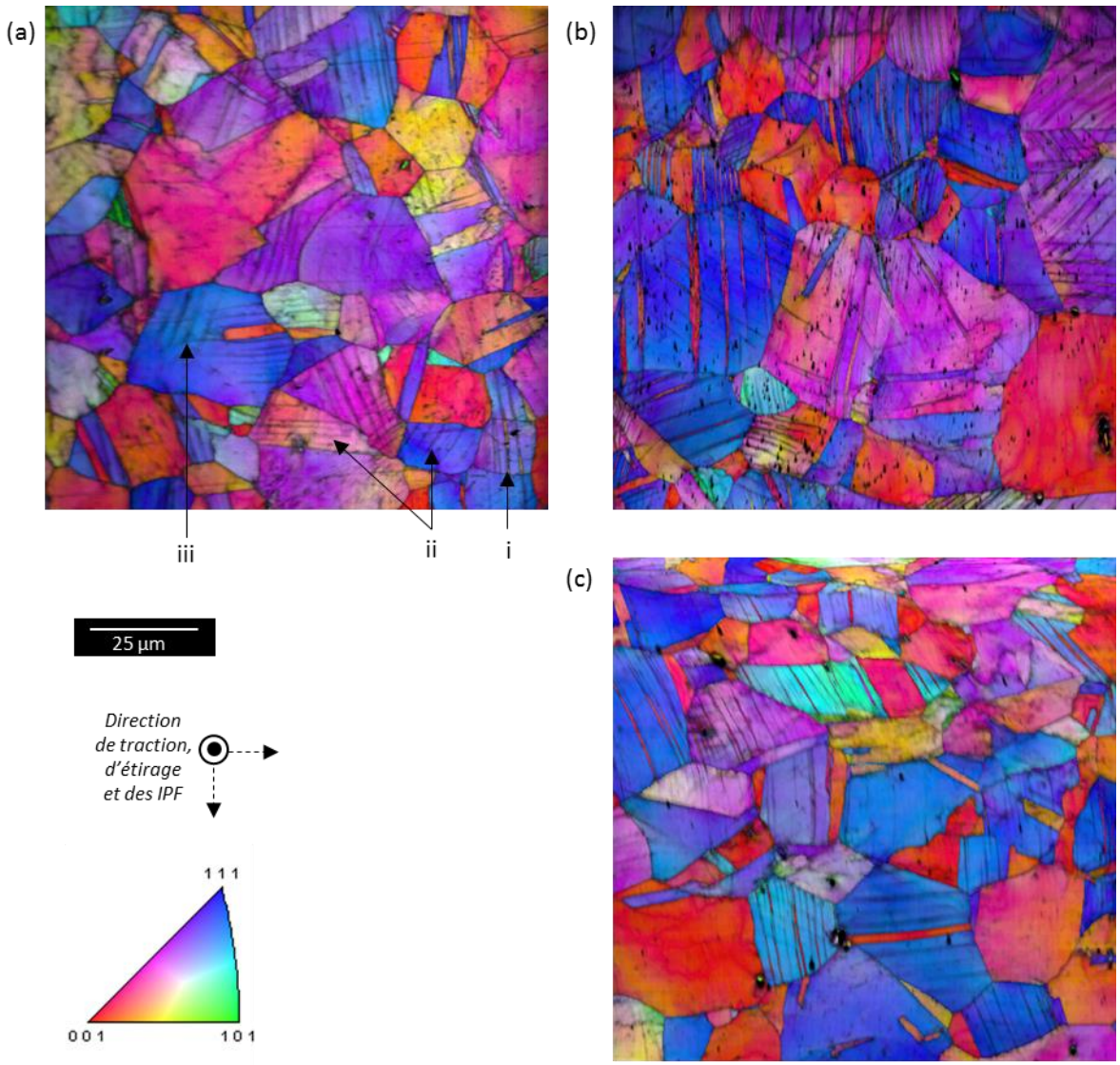


Figure III. 11 : Cartographies EBSD (IPF+ IQ) des tubes de gaine en 15-15Ti AIM1 à l'état initial pour a); testé à 20°C jusqu'à A_g ≈ 10% pour b) ; testé à 200°C jusqu'à A_g ≈ 1,25% pour c).

2. Compréhension des mécanismes de déformation des tubes de gaine

Les tubes de gaine stockés au CEA sont uniquement disponibles à l'état spécifié pour l'utilisation en réacteur, c'est-à-dire à l'état écroui. Or, la nécessité de disposer d'un état initial vierge de déformation impose de faire subir à nouveau à ces tubes une hypertrempe. Pour cela, un traitement le plus proche possible de l'hypertrempe finale de la spécification AIM1 a été réalisé sur deux tubes dans un four du laboratoire.

Comme ces tubes ne respectent pas la spécification d'écrouissage, ils ne peuvent pas porter l'appellation « AIM1 ». Ils seront uniquement dénommés par « tubes de gaine en 15-15Ti hypertrempé » dans la suite de ce chapitre.

2.1. Etude du comportement en traction des tubes de gaine en 15-15Ti hypertrempé

La réalisation des essais de traction sur tubes de gaine hypertrempé s'effectue selon la même procédure que celle pour les tubes à l'état écroui, décrite au § 1.2.1. Seule la matrice d'essai (exposée dans le Tableau III. 5) est adaptée à la quantité plus faible de matière disponible dans cet état métallurgique.

	Températures (°C)								
Vitesse (s^{-1})	**20**	**100**	**150**	**200**	**250**	**300**	**400**	**500**	**600**
$\mathbf{3.10^{-4}}$ (nbr. d'essais)	2	1	1	2	1	1	2	1	1
$\mathbf{10^{-1}}$ (nbr. d'essais)	1	-	-	1	-	1	1	1	-

Tableau III. 5 : Matrice d'essais de traction menés sur les tubes en 15-15TI à l'état hypertrempé.

2.1.1. Résultats des essais en conditions quasi-statiques

2.1.1.1. Courbes conventionnelles de 20°C à 600°C

La Figure III. 12 présente les courbes conventionnelles contrainte-déformation des tubes de gaine en 15-15Ti à l'état hypertrempé de 20°C à 600°C.

L'allure des courbes est différente de celle de l'état écroui : il s'agit de courbes en forme d'arc de cercle avec au début une pente très raide et qui devient nulle en s'approchant de R_m. On observe que les courbes sont très resserrées et forment un faisceau pour les températures d'essais entre 200°C et 400°C. Par ailleurs, les allongements totaux sont bien supérieurs à ceux de l'état écroui, au contraire des limites d'élasticité, qui sont réduites d'un facteur supérieur à 3. Les valeurs de R_m sont légèrement plus faibles que pour l'état écroui.
Enfin, l'effet Portevin-Le Chatelier est détecté sur les courbes des essais à 400°C et 600°C. Concernant les courbes non présentées sur la Figure III. 12, on note son apparition à la fois à 300°C et à 500°C.

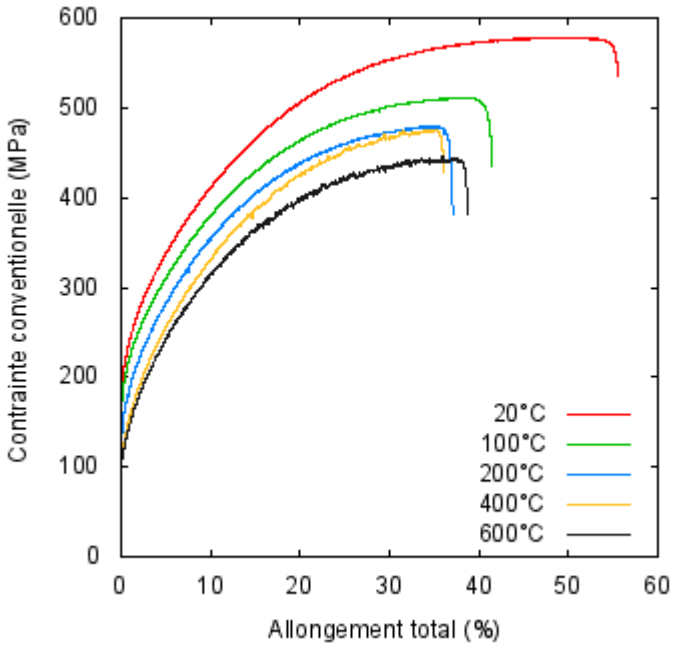


Figure III. 12 : Courbes conventionnelles de traction contrainte-déformation des tubes de gaine en 15-15Ti à l'état hypertrempé entre 20°C et 600°C ($\dot{\varepsilon} = \dot{\varepsilon}_1$).

2.1.1.2. Propriétés en traction de 20°C à 600°C

Les évolution des propriétés mécaniques (A_t, A_g, $Rp_{0,2\%}$, R_m) en fonction de la température, tirées des courbes de traction, sont présentées en Figure III. 13. Pour les essais doublés, ce sont les valeurs moyennes qui sont fournies. Pour rappel, l'incertitude sur ces valeurs est faible et est contenue dans la taille des symboles utilisés.

L'évolution en fonction de la température de l'allongement total (A_t) est représentée sur la Figure III. 13(a). A 20°C, il avoisine la valeur conséquente de 55%. Une forte décroissance est observée en passant à 200°C : A_t est réduit à 36%. En revanche, 200°C ne constitue plus le minimum d'allongement car A_t continue à décroitre jusqu'à 300°C où il est mesuré à 32%. Par ailleurs, cette température n'est pas la seule où un minimum d'allongement est présent. A 400°C, A_t augmente légèrement à 35% et diminue de nouveau à 32% à 500°C, qui est la seconde température où un minimum est présent. A 600°C, A_t remonte presque à 40%. Une évolution similaire a déjà été observé sur l'acier 316Ti comme vu au chapitre I § 1.3.2.

La Figure III. 13(a) présente également l'évolution de l'allongement homogène (A_g). A_g suit la même tendance que A_t : il diminue de 45% à 31% entre 20°C et 200°C. Le double minimum d'allongement est détecté de même à 300°C et 500°C. Néanmoins, il est plus prononcé à 500°C où sa valeur mesurée est de 27%. Enfin, un regain de la valeur de A_g se produit à 600°C.

Concernant la résistance maximale à la traction (R_m) et la limite d'élasticité à 0,2% d'allongement ($Rp_{0,2\%}$), leurs évolutions en fonction de la température sont montrées sur la Figure III. 13(b). On note une diminution nette de 100 MPa de R_m entre 20°C et 200°C. Entre 200°C et 500°C, les valeurs restent constantes et un plateau est observé aux environ de 480 MPa. Enfin, une baisse s'opère à nouveau à 600°C. $Rp_{0,2\%}$ décroit de manière quasi-linéaire sur toute la plage de température investiguée où elle diminue presque de moitié.

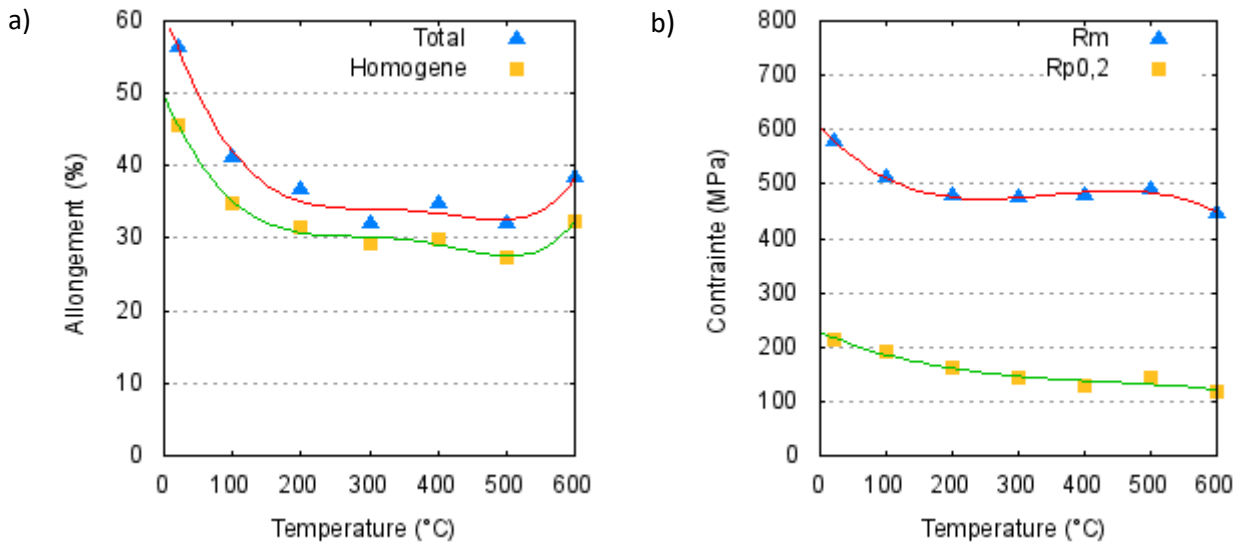


Figure III. 13 : Evolution en fonction de la température de A_g et A_t pour a) et de $Rp_{0,2\%}$ et R_m pour b) des tubes de gaine en 15-15Ti à l'état hypertrempé.

Ces résultats sont en cohérence avec le comportement d'autres aciers hypertrempés comme le 304, 316 ou 316LN (Cf. Chapitre I §1.3.2).

2.1.1.3. Analyse des courbes de traction à 20°C et 200°C

Une analyse plus détaillée des courbes de traction est effectuée en s'intéressant au coefficient d'écrouissage à 20°C et à 200°C où l'on observe la baisse importante des allongements. Notons que la présence de l'effet PLC à partir de 300°C ne permet pas de réaliser correctement cette analyse.

Cette analyse est réalisée en calculant le coefficient (ou taux) d'écrouissage n du matériau, définit en tout point de la courbe de traction rationnelle par l'équation (III. 2) (Bouaziz, Guelton, 2001) :

$$n(\varepsilon_{vraie}) = \frac{d(\ln \sigma_{vraie})}{d(\ln \varepsilon_{vraie})} = \frac{\varepsilon_{vraie}}{\sigma_{vraie}} \frac{d\sigma_{vraie}}{d\varepsilon_{vraie}} \qquad (III.\ 2)$$

Selon cette définition, le critère de Considère est validé si :

$$n(\varepsilon_{vraie}) = \varepsilon_{vraie} \qquad (III.\ 3)$$

Pour rappel, si le critère de Considère est validé alors le matériau ne se déforme plus plastiquement de manière homogène et la déformation commence à se localiser, ce qui se traduit par l'apparition d'une striction.

La Figure III. 14 représente l'évolution du coefficient d'écrouissage n en fonction de la déformation vraie jusqu'au début de la striction à 20°C et 200°C.
On remarque que les tubes de gaine respectent relativement bien le critère de Considère. En effet, aucune striction prématurée n'est observée aux deux températures. Jusqu'à $\varepsilon_{vraie} = 0{,}12$, le coefficient d'écrouissage est supérieur pour la température de 200°C mais au-delà la tendance s'inverse : n diminue fortement à 200°C alors qu'il est maintenu élevé à 20°C.
Selon (Bouaziz, Guelton, 2001), ce durcissement accru à 20°C est directement relié à l'activation du maclage.

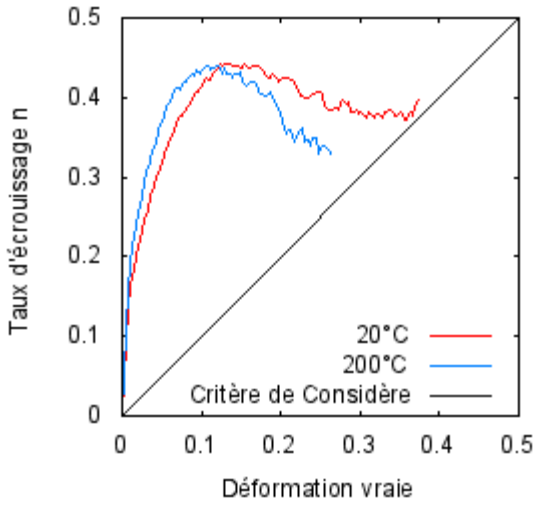


Figure III. 14 : Evolution du coefficient d'écrouissage n des tubes de gaine en 15-15Ti hypertrempé en fonction de la déformation vraie à 20°C et 200°C.

2.1.2. Influence de la vitesse de traction

De manière similaire à l'état écroui, l'influence de la vitesse de traction est étudiée sur les tubes à l'état hypertrempé. La Figure III. 15 présente donc les courbes conventionnelles contrainte-déformation obtenues à la vitesse de déformation $\dot{\varepsilon}_2$.

En dehors de l'absence d'effet PLC à toutes les températures étudiées, la seule observation de l'allure des courbes ne fait pas ressortir de différences probantes vis-à-vis des résultats obtenus à la vitesse de déformation $\dot{\varepsilon}_1$.

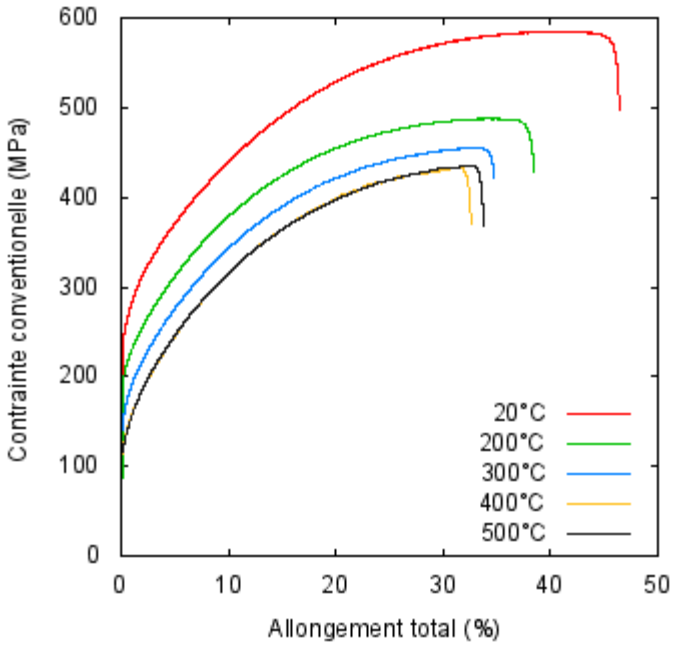


Figure III. 15 : Courbes conventionnelles contrainte-déformation des tubes de gaine en 15-15Ti hypertrempé entre 20°C et 500°C ($\dot{\varepsilon} = \dot{\varepsilon}_2$).

La Figure III. 16 permet une analyse plus précise de l'effet de la vitesse de déformation. Sur la Figure III. 16(a), des évolutions disparates de A_g sont à relever. Pour $\dot{\varepsilon}_2$, la chute de A_g est plus faible entre 20°C et 200°C : il passe de 40% à 33%. A 300°C, la valeur reste approximativement constante et un minimum semble être présent à 400°C. Au vu de ce résultat, il est plausible d'avancer que la singularité d'allongement en traction est moins prononcée pour cette vitesse de déformation. Concernant les évolutions de R_m, elles sont présentées sur la Figure III. 16(b). Les valeurs sont similaires pour les deux vitesses à 20°C et 200°C puis elles décroissent plus fortement entre 200°C et 400°C pour la vitesse $\dot{\varepsilon}_2$.

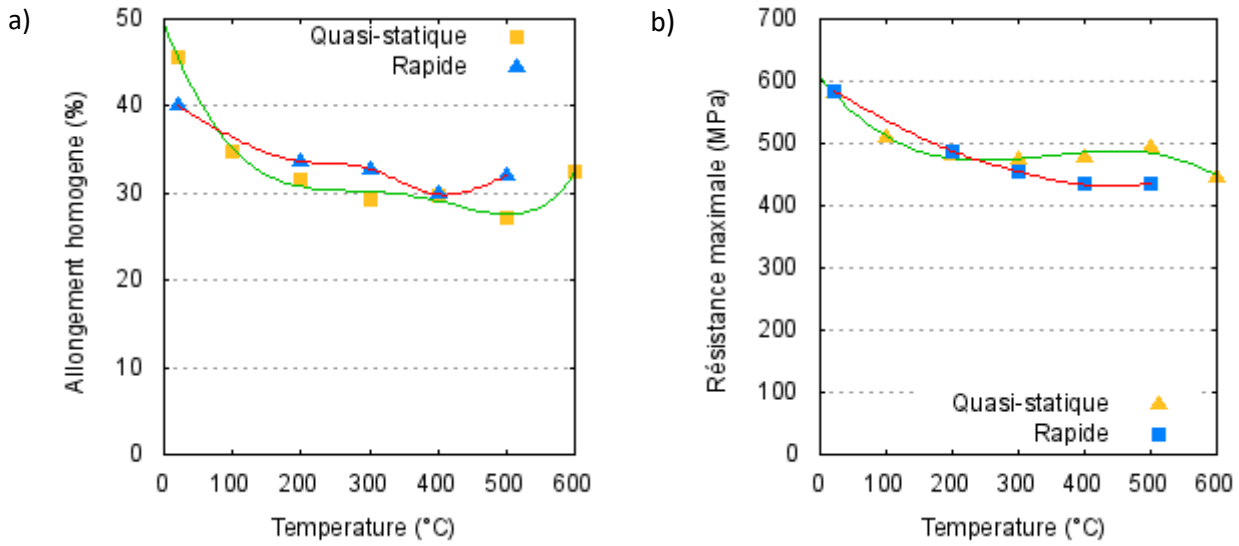


Figure III. 16 : Comparaison en fonction de la vitesse de déformation de l'évolution en température de A_g pour a) et du R_m pour b) des tubes de gaine en 15-15 Ti hypertrempé.

La sensibilité S de la contrainte à la vitesse de déformation, obtenue via l'étude des variations de la limite élastique ($Rp_{0,2\%}$), est tracée en fonction de la température sur Figure III. 17.

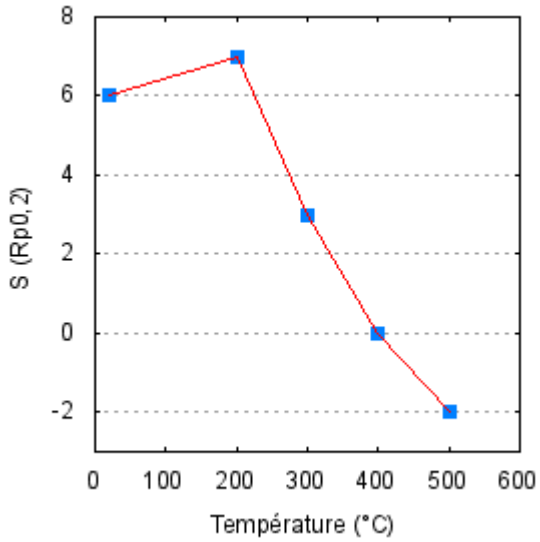


Figure III. 17 : Evolution en fonction de la température de S, déterminée à partir de la variation de la limite d'élasticité, pour les tubes de gaine en 15-15 Ti hypertrempé.

Elle est légèrement croissante entre 20°C et 200°C, ce qui traduit la sensibilité normale du matériau à la vitesse de déformation. Cependant, elle chute à partir de 300°C et devient nulle voire négative à partir de 400°C, signe de l'entrée dans le domaine de vieillissement dynamique à ces températures.

2.1.3. Bilan des essais de traction

Les essais de traction réalisés à différentes vitesses sur états écroui et hypertrempé font ressortir à la fois des similarités et disparités de comportement.

On retient notamment que les évolutions en fonction de la température des allongements homogène et total n'ont pas les mêmes variations selon l'état métallurgique. Les principales différences sont résumées dans le Tableau III. 6. Même si les amplitudes sont modifiées, ces tendances sont d'une manière générale conservées en changeant la vitesse de déformation.

Concernant le vieillissement dynamique, il se manifeste soit par l'effet PLC soit par une sensibilité nulle à la vitesse de déformation. Il apparait à partir de 300°C sur l'état hypertrempé et 400°C sur l'état écroui.

<table>
<tr><td></td><td colspan="2">Evolution des allongements (A_t et A_g)</td></tr>
<tr><td>Température (°C)</td><td>Etat écroui
($\varepsilon \approx 20\%$)</td><td>Etat hypertrempé</td></tr>
<tr><td>20</td><td rowspan="3">Baisse</td><td rowspan="3">Baisse</td></tr>
<tr><td>100</td></tr>
<tr><td>200</td></tr>
<tr><td>300</td><td rowspan="4">Hausse</td><td rowspan="3">Approximativement Constant</td></tr>
<tr><td>400</td></tr>
<tr><td>500</td></tr>
<tr><td>600</td><td>Hausse</td></tr>
</table>

Tableau III. 6 : Différences de comportement en traction entre les tubes de gaines à l'état écroui et hypertrempé.

Les résultats de traction obtenus sur l'état hypertrempé montrent que cet état présente la même singularité de comportement que l'état écroui entre 20°C et 200°C. L'analyse post-mortem des éprouvettes de traction hypertrempées sollicitées en conditions quasi-statiques est donc pertinente pour éclaircir l'origine de cette singularité.

2.2. Caractérisations post-mortem des éprouvettes déformées à 20°C et 200°C

Du fait que, sur l'état hypertrempé, la déformation plastique présente a été uniquement introduite par les essais de traction, les microstructures de déformation sont plus simples à analyser. La caractérisation post-mortem des éprouvettes déformées en conditions quasi-statiques va donc permettre de coupler des examens à l'échelle mésoscopique telles que l'EBSD ou le STEM à des analyses à l'échelle microscopique telle que le MET.

2.2.1. Caractérisations des microstructures de déformation par EBSD

La préparation et les caractérisations des échantillons ont été menées suivant le même protocole expérimental que celui utilisé pour l'état écroui, décrit au §1.3.2.1 de ce chapitre.

2.2.1.1. Comparaison des cartographies EBSD après déformation à 20°C et 200°C

La comparaison des cartographies EBSD (IPF+IQ) après déformation à 20°C et 200°C est effectuée sur la Figure III. 18. Il est également présenté la cartographie de l'état initial avant traction.

La Figure III. 18(a) montre la microstructure des tubes de gaine en 15-15Ti après un traitement d'hypertrempe où l'on peut confirmer que les grains sont bien vierges de déformation plastique : aucun gradient de couleur n'est présent en leur sein. De plus, seule la présence de macles thermiques épaisses, repérées par les repères (i), est identifiée. Par ailleurs, l'IQ ne fait pas transparaitre de défauts non indexés.

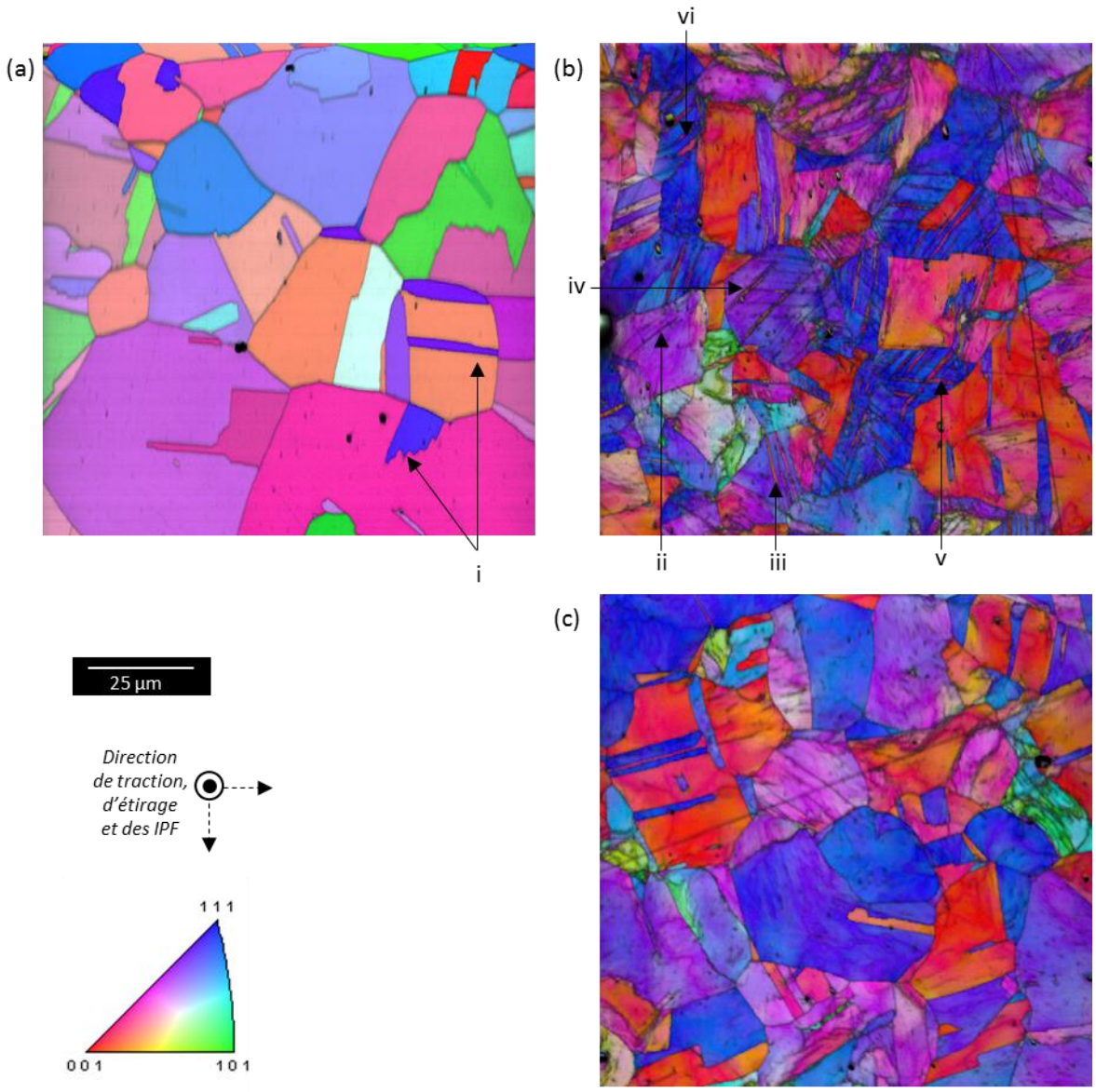


Figure III. 18 : Cartographies EBSD (IPF+IQ) des tubes de gaine en 15-15Ti hypertrempé à l'état initial pour a); testé à 20°C jusqu'à $A_g \approx 45\%$ pour b) ; testé à 200°C jusqu'à $A_g \approx 31\%$ pour c).

Les Figure III. 18(b) et (c) exposent, sur la microstructure de l'état hypertrempé, l'effet d'un essai de traction :

- A 20°C, accompagné d'une déformation homogène de 45%,
- A 200°C, accompagné d'une déformation homogène de 31%.

On décèle sur l'éprouvette déformée à 20°C la coexistence du glissement et du stockage de dislocations avec le maclage mécanique.
On remarque que les macles mécaniques traversent généralement entièrement les grains mais sont de largeur variable : certaines sont uniquement révélées par l'IQ (voir repère (ii)) et d'autres ont une largeur de quelques micromètres (repère (iii)). Dans certains cas, les macles prennent une forme lenticulaire comme le montre le repère (iv). Dans quelques grains, on identifie jusqu'à trois systèmes de maclage actifs qui s'intersectent (repère (v)). Enfin, on constate que les macles mécaniques peuvent elles aussi subir de la déformation plastique et se distordre le reste des grains (repère (vi)).

Après déformation à 200°C, aucune macle mécanique n'est détectée et seul le glissement et le stockage de dislocations semble actif. Par rapport à l'état écroui où des macles mécaniques étaient observées après essai à 200°C, la caractérisation de l'état hypertrempé lève l'ambiguïté : elles n'ont pas été introduites par l'essai de traction mais par l'écrouissage préalable.

2.2.1.2. Analyses de texture

En plus de fournir les IPF, la cartographie EBSD permet de procéder à des analyses de textures de déformation via les figures de pôles. Dans ce cas, des cartographies plus grandes en taille mais moins résolues sont utilisées pour analyser un nombre suffisant de grains. Les figures de pôles suivant les trois directions principales des cristaux (<001>, <011> et <111>) sont présentées sur la Figure III. 19. Elles concernent chacune des microstructures examinées au paragraphe précédent (§2.2.1.1)

Les figures de pôles de la Figure III. 19(a) nous renseignent sur l'existence d'une texturation légère pour l'état hypertrempé : l'intensité maximale est de 3,9. Cette texture se concentre surtout dans la direction <111> suivant le sens d'étirage. Il s'agit d'une texture résiduelle issue des étapes de mise forme des tubes précédant le traitement d'hypertrempe.

L'analyse des figures de pôles de la microstructure après traction à 20°C (Cf. Figure III. 19(b)) montre l'apparition d'une forte texture avec une intensité maximale de 8,7. Les renforts d'intensité se situent au niveau des directions <001> et <111> suivant la direction de traction.

Enfin, l'examen des figures de pôles de la Figure III. 19(c) indique que lors d'un essai à 200°C, une texturation similaire à celle développée lors d'un essai à 20°C se forme mais seulement avec une intensité moyenne. En effet, l'indice d'intensité maximale s'élève à la valeur intermédiaire de 5,8 au lieu de 8,7. Ceci est directement corrélable à l'allongement homogène qui est lui aussi plus faible qu'à 20°C.

D'une manière générale, la texturation suivant le sens de traction se traduit sur les cartographies EBSD (IPF+IQ) en Figure III. 18(b) et (c) par des grains proches d'une couleur respectivement rouge pour la direction <001> et bleue pour la direction <111>. Cela permet de distinguer l'émergence de deux principales familles de grains dans les microstructures après traction :

- Les grains que l'on va nommer de « type I » dont la direction <001> est parallèle au sens de traction,
- Les grains que l'on va nommer de « type II » dont la direction <111> est parallèle au sens de traction.

L'observation fine de ces grains révèle que **seuls les grains de type II maclent**.

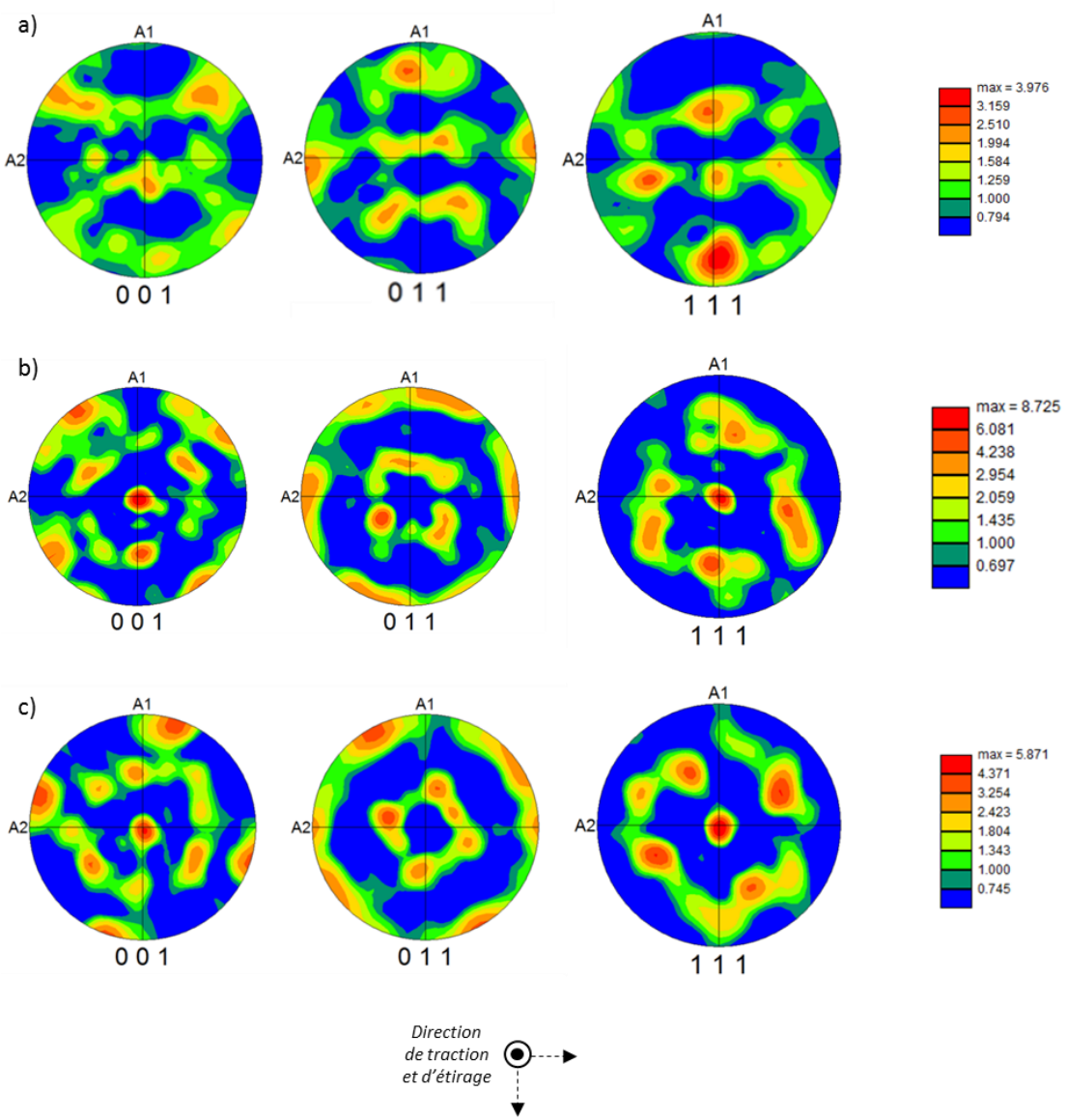


Figure III. 19 : Figures de pôles des tubes de gaine en 15-15Ti hypertrempé à l'état initial pour a); testé à 20°C jusqu'à $A_g \approx 45\%$ pour b) ; testé à 200°C jusqu'à $A_g \approx 31\%$ pour c).

L'émergence de ces deux familles apparait également sur l'état écroui mais de manière moins prononcée. Par ailleurs, on repère que, pour l'état brut d'écrouissage (Cf. Figure III. 11(a)), les macles mécaniques se répartissent au contraire de manière uniforme dans l'ensemble des grains quelle que soit leur orientation.

En conclusion partielle, on peut affirmer que la caractérisation par EBSD des microstructures de déformation de l'état hypertrempé s'est avérée efficace pour mettre en évidence et isoler les mécanismes de déformation actifs durant les essais de traction. Cependant, ces résultats sont fiables sous réserve que la résolution du MEB permette de détecter, au moins avec l'IQ, toutes traces de maclage mécanique. Par exemple, il n'est pas possible d'exclure pour le moment l'hypothèse d'un maclage très fin à 200°C. Pour confirmer ou infirmer cela, il est nécessaire de réduire l'échelle d'observation et d'utiliser la microscopie électronique en transmission.

2.2.2. Caractérisation des microstructures de déformation par STEM et MET

2.2.2.1. Description du protocole expérimental

Valider les résultats obtenus en EBSD par la microscopie électronique en transmission implique de procéder à des caractérisations sur les mêmes objets microstructuraux. Pour ce faire, nous avons choisi de réaliser des extractions localisées de lames minces : une zone d'intérêt est tout d'abord repérée sur une cartographie EBSD, puis une lame mince est extraite par Focused Ion Beam (FIB) dans la zone ciblée.

L'extraction des lames minces s'effectue en profondeur dans le massif (i.e. l'éprouvette de traction enrobée dans la résine conductrice) et se fait selon la procédure classique dite de « lift-out » dont les grandes étapes sont les suivantes :

- Un premier dépôt de platine est réalisé sur la zone d'intérêt par condensation du gaz organométallique sous l'effet du faisceau électronique. Puis, ce dépôt est complété par un second de la même nature, mais obtenu par condensation du gaz organométallique sous l'effet du faisceau ionique. La bande de platine ainsi déposée mesure une dizaine de µm de longueur et avec une largeur d'un µm environ.
- A forte intensité de courant, un trou est formé par bombardement ionique tout autour du dépôt de platine pour isoler la lame mince.
- La lame est ensuite soudée par des dépôts de platine à un micro-manipulateur constitué d'une pointe en tungstène (Easy-lift) et ses extrémités sont ensuite découpées à une intensité de courant moyenne pour pouvoir la dégager du massif.
- La lame mince est enfin soudée à une grille de cuivre et est affinée à faible courant jusqu'à une épaisseur de moins de 100 nm.

Pour plus de détail sur la méthode, le lecteur peut se référer à (Langford, Clinton, 2004).

Les observations en Scanning Transmission Electron Microscopy (STEM) sont réalisées directement après la fin de la préparation de chaque lame dans la chambre du MEB-FIB. Ces observations permettent notamment d'avoir une vision complète de la microstructure sur toute la lame mais à un grandissement limité. Pour une meilleure résolution, les lames sont examinées ultérieurement de manière très locale au MET JEOL 3010 dont les caractéristiques sont déjà fournies au Chapitre II §5.

2.2.2.2. Corrélation des cartographies EBSD et des micrographies STEM

L'extraction des lames minces ayant été faite de manière localisée, le recoupement des résultats obtenus par EBSD en surface et par STEM en profondeur est possible comme illustré sur la Figure III. 20. Cet assemblage des deux techniques s'établit autour de la représentation d'un certain volume de matière de forme parallélépipédique.

La face supérieure du parallélépipède est une partie de la surface de la section transverse de l'éprouvette examinée en EBSD. La face avant est une micrographie STEM de la lame mince prélevée verticalement en profondeur, au niveau de la zone d'intérêt. L'arrête supérieure avant constitue les points où les résultats des deux techniques coïncident.

Les interfaces entre les grains de type I et II ont été privilégiées comme zones d'intérêt avec une attention particulière portée aux macles mécaniques dans les cas où elles étaient observées sur la cartographie EBSD.

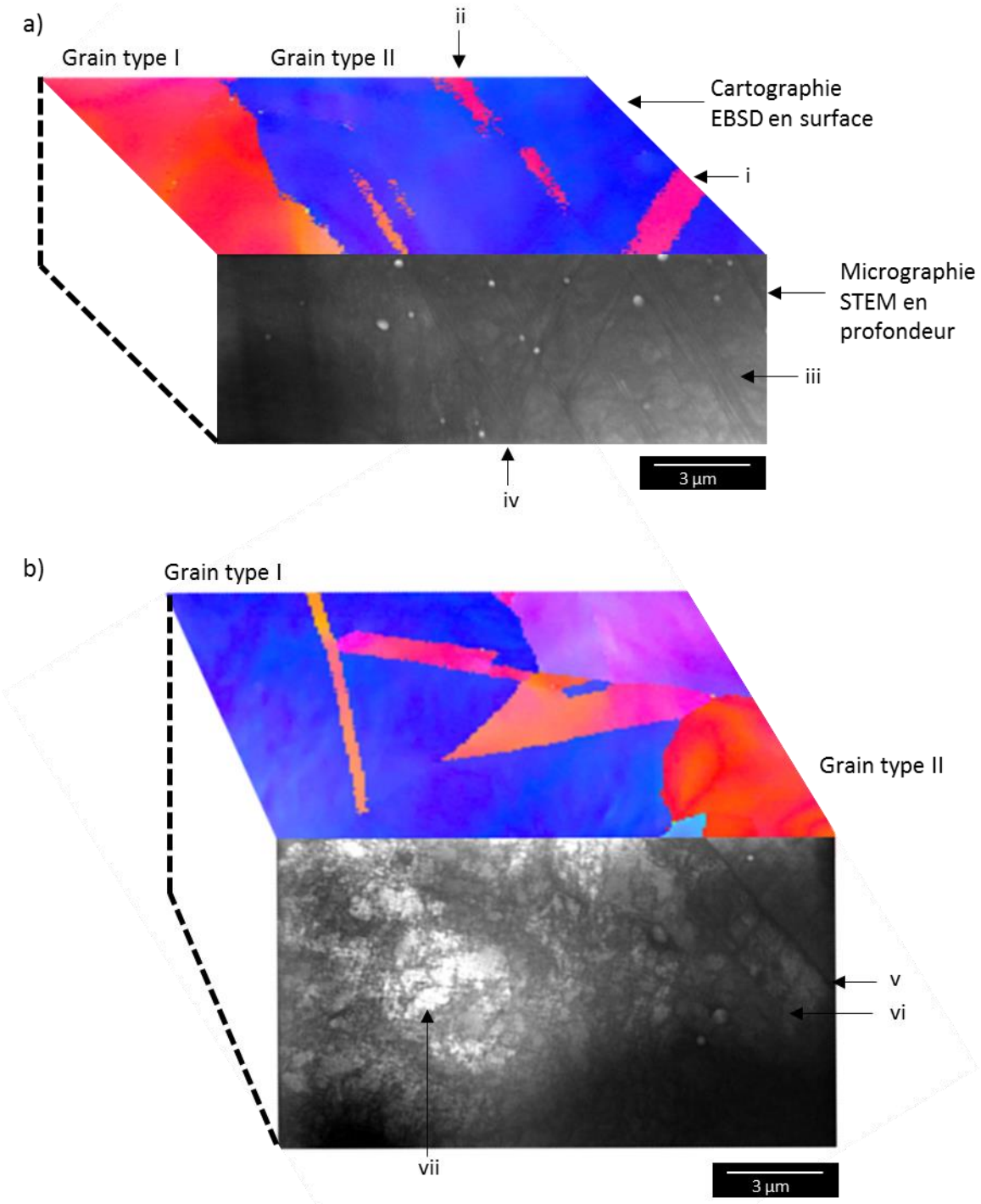


Figure III. 20 : Combinaison des analyses de surface par EBSD et des analyses en profondeur par STEM effectuées sur tubes de gaine en 15-15Ti hypertrempé après traction à 20°C jusqu'à $A_g \approx 45\%$ pour a) et à 200°C jusqu'à $A_g \approx 31\%$pour b).

La Figure III. 20(a) montre la juxtaposition des données EBSD et STEM acquises après déformation à 20°C. On repère sur la cartographie EBSD en surface que le grain de type I (couleur rouge) se situe à gauche du volume et le grain de type II (couleur bleue) se situe à droite. Dans le grain de type II, des macles mécaniques moyennement résolues sont présentes (voir (i) et (ii)).
La micrographie STEM, exposée en face avant, reflète une tranche du volume de matière sous la surface cartographiée en EBSD. Sur la droite, on y décèle aisément les macles mécaniques du grain de type II, qui sont très fines et qui s'organisent en faisceaux (voir (iii) et (iv)).

L'arrête supérieure avant du parallélépipède constitue la jonction où les macles imagées en EBSD et en STEM se recoupent. On constate qu'une macle qui apparait unique en EBSD est en réalité un faisceau de nano-macles très resserrées. La relative largeur de la macle (i) s'explique par le fait qu'elle correspond à l'intersection de deux faisceaux de macles dont un qui est très dense (faisceau (iii)). Par ailleurs, la micrographie STEM montre que l'intersection de ces faisceaux de nano-macles crée des sous-volumes clos dans les grains.
Enfin, même si l'épaisseur de la lame est importante au niveau du grain de type I, aucune macle mécanique n'a été détectée à l'intérieur.

La Figure III. 20(b) montre, quant à elle, la juxtaposition des données EBSD et STEM acquises après déformation à 200°C. A l'inverse de la figure précédente, le grain de type I se situe à droite et le grain de type II se situe à gauche dans le volume étudié. Au niveau de la micrographie STEM, les deux grains ne sont pas directement en contact puisqu'un troisième petit grain se trouve entre les deux. La présence de ce troisième grain n'était pas souhaitée mais elle illustre bien la difficulté d'extraire de manière localisée les lames minces.
Sur cette micrographie, les joints de grain ((v) et (vi)) ressortent très bien et il est ainsi possible de connaitre leur orientation dans le volume : ils ont une inclinaison très forte vers la droite et sortent de la lame à une faible profondeur, ce qui a pour conséquence de limiter la proportion de grain de type I analysable.
De ce fait, l'autre grain, de type II, devient le principal grain présent sur la lame. Pour rappel, il s'agit du type de grain le plus susceptible de macler à 20°C. Or, aucune macle n'y est détectée et, au contraire, une organisation des dislocations en cellules semble se mettre en place (vii). Ce résultat va être confirmé au paragraphe suivant par les observations plus fines au MET.

2.2.2.3. Micrographies MET des lames minces extraites

En complément des analyses STEM, les observations au MET, présentées en Figure III. 21, offrent une caractérisation des lames minces à une échelle beaucoup plus locale.

Des faisceaux de nano-macles sont clairement visibles sur la micrographie MET de la Figure III. 21(b) montrant un grain de type II après déformation à 20°C. Cette micrographie permet d'étudier de manière plus précise l'intersection des macles : on remarque notamment qu'il existe des faisceaux primaires (M1) dont les macles traversent tout le grain et des faisceaux secondaires (M2) qui se forment entre ceux de M1.
Concernant les autres grains, il est maintenant possible d'avancer formellement que les macles mécaniques sont absentes des grains de type I après déformation à 20°C (Cf. Figure III. 21(a)) ainsi que de l'ensemble des grains après déformation à 200°C, quelle que soit leur orientation (Cf. Figure III. 21(c) et (d)).
Comme déjà présumé au STEM, des structures de cellules de dislocations bien définies se sont développées dans les deux familles de grains déformés à 200°C. Pour la température de 20°C, un début d'organisation similaire apparait uniquement dans les grains de type I.

Par conséquent, les résultats obtenus en STEM et MET sont cohérents avec ceux fournis par l'EBSD et confirment la validité de cette technique pour l'étude des mécanismes de déformation où le maclage est en jeu (sous réserve de respecter les paramètres opératoires fixés au § 1.3.2.1.)

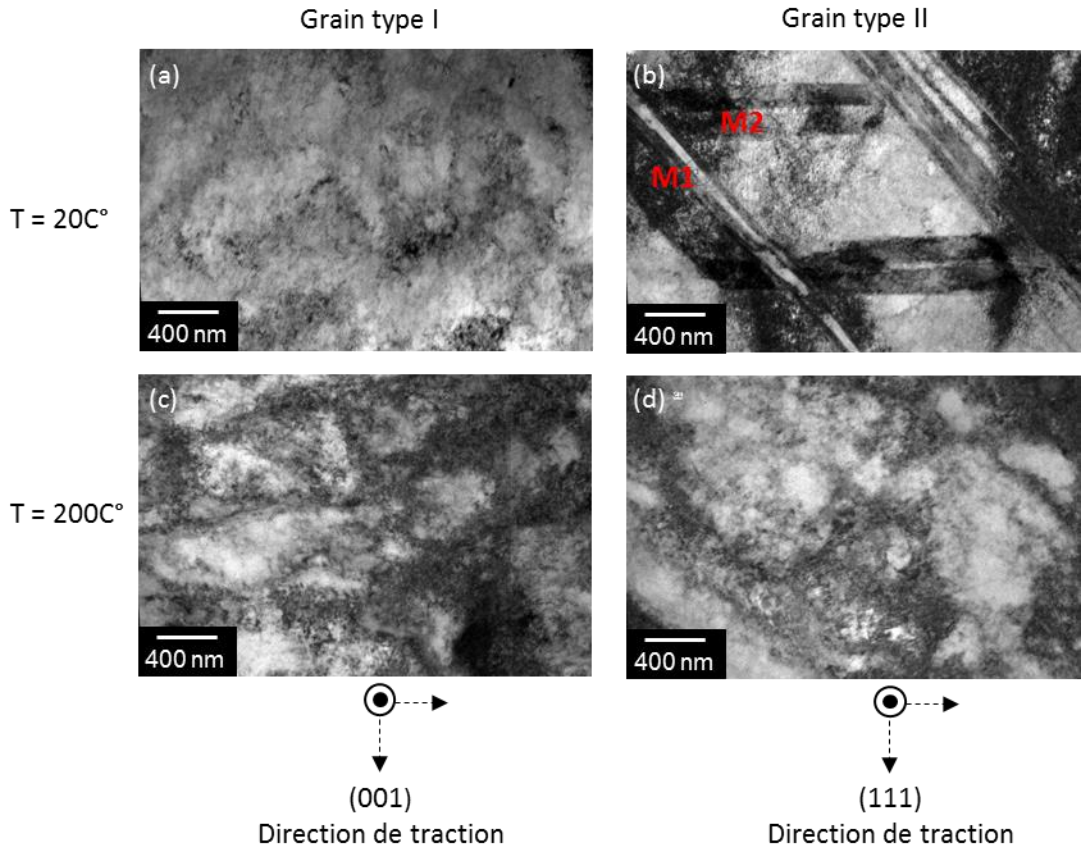


Figure III. 21 : Micrographies MET des lames minces extraites au FIB présentant pour : (a) un grain de type I déformé à 20°C jusqu'à Ag ≈ 45%, (b) un grain de type II déformé à 20°C jusqu'à Ag≈ 45%, (c) d'un grain de type I déformé à 200°C jusqu'à Ag ≈ 31%, (d) d'un grain de type II déformé à 200°C jusqu'à Ag ≈ 31%.

2.3. Etude de l'influence de la vitesse de traction sur les mécanismes de déformation

Des variations de propriétés en traction ont été mises en évidence au §1.2.3 et 2.1.2 lorsque la vitesse de déformation augmente. En effet, le minium d'allongement est translaté d'une centaine de degrés pour l'état écroui et une atténuation de la singularité de comportement apparait pour l'état hypertrempé. Ces évolutions peuvent être imputées à une éventuelle modification des mécanismes de déformation.

La Figure III. 22 présente donc les caractérisations post-mortem par EBSD des tubes de gaine à l'état hypertrempé testés à la vitesse de déformation $\dot{\varepsilon}_2$ aux températures de 20°C et de 200°C. Pour garantir la validité de l'analyse des mécanismes de déformation par cette technique, les paramètres opératoires du MEB sont identiques à ceux choisis aux § 1.3.2.1.

Les cartographies révèlent que le glissement et le stockage de dislocations est actif pour les deux températures de déformation investiguées (voir Figure III. 22(a) pour 20°C et Figure III. 22(b) pour 200°C). De plus, l'émergence des deux familles de grains de type I et II apparait clairement.

Par ailleurs, la même dépendance du maclage en température et en orientation que celle vu pour $\dot{\varepsilon}_1$ se produit : seuls les grains de type II sont sujets au maclage à 20°C. Cependant la microstructure de maclage est différente car on observe qualitativement que les macles sont moins nombreuses mais plus larges et d'une manière générale plutôt bien définies.

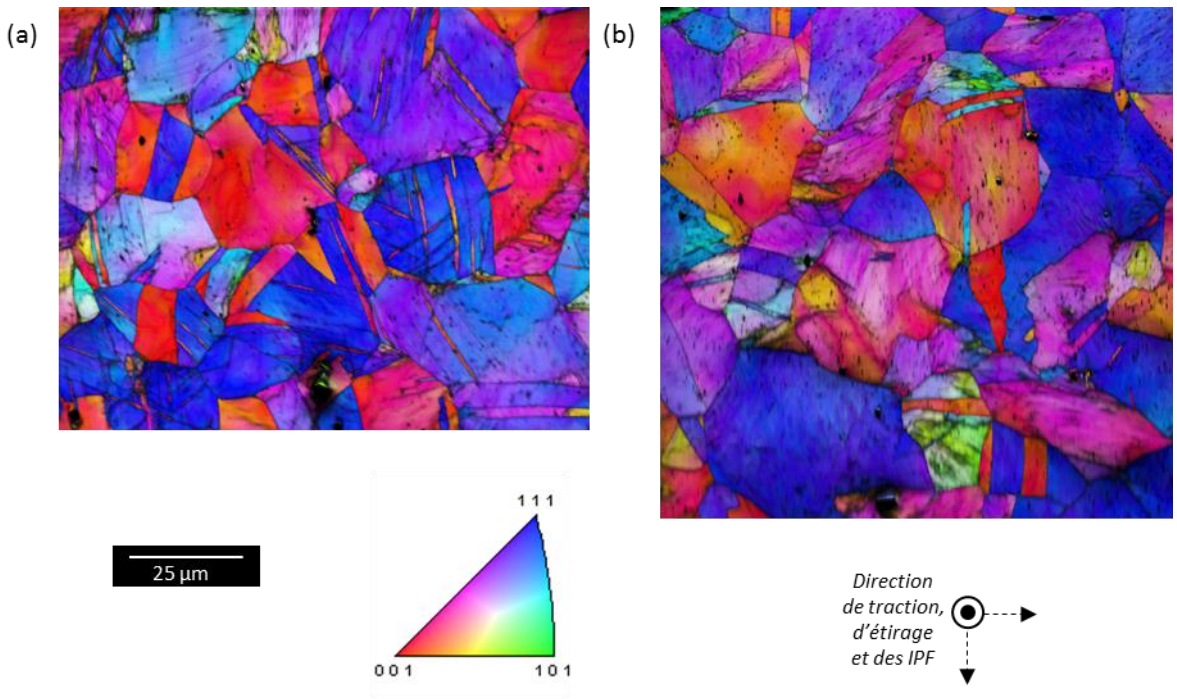


Figure III. 22 : Cartographies EBSD (IPF+IQ) des tubes de gaine en 15-15Ti hypertrempé testés à forte vitesse de déformation à 20°C jusqu'à $A_g \approx 40\%$ pour a) et à 200°C jusqu'à $A_g \approx 33\%$ pour b).

En résumé, la vitesse de déformation semble jouer principalement sur la localisation du maclage qui a tendance à plus se concentrer en grosses macles lorsque la vitesse augmente.

3. Synthèse du chapitre

Les essais de traction sur les tubes de gaine en 15-15Ti montrent la présence :

- Pour l'état écroui :
    - D'un minimum d'allongement à 150°C-200°C,
    - De vieillissement dynamique à partir de 400°C.

- Pour l'état hypertrempé :
    - D'une baisse d'allongement entre 20°C et 200°C suivie d'un maintien de la valeur atteinte jusqu'à 500°C,
    - De vieillissement dynamique à partir de 300°C,
    - D'un durcissement accru à 20°C par rapport aux températures plus élevées.

Les caractérisations post-mortem des éprouvettes révèlent que lors d'un essai de traction :

- Deux familles de grains se dégagent dans la microstructure, dont les directions principales parallèles à l'axe de traction sont les suivantes :
    - <001>
    - <111>

- Le glissement et le stockage des dislocations sont opérants dans tous les grains aux deux températures. Les dislocations s'organisent en cellules à 200°C.

- Le maclage est un mécanisme de déformation supplémentaire dont l'activation dépend de :
    - La température puisqu'il est actif à 20°C mais pas à 200°C,
    - L'orientation car il se concentre uniquement dans les grains dont les directions <111> sont parallèles à l'axe de traction.

L'utilisation d'une forte vitesse de déformation entraine une modification du comportement qui :
- Translate vers les plus hautes températures le minimum d'allongement de l'état écroui,
- Atténue la singularité de comportement sur l'état hypertrempé,
- Concentre l'activité de maclage.

Chapitre IV. Influence du vieillissement entre 400°C et 600°C sur la microstructure et le comportement en traction des tubes de gaine

Au cours de la thèse de (Mateus Freire, 2018), le vieillissement thermique a été largement étudié en conditions incidentelles, c'est-à-dire au-dessus de 650°C. A l'heure actuelle, peu de données sont disponibles pour des vieillissements aux limites basses des températures vues en service, c'est-à-dire entre 400°C et 600°C.

Par ailleurs, tel que décrit au Chapitre I § 2.1.2, c'est également dans cette gamme de température que persiste le pic de gonflement de « première bosse » (Séran, 2014). Ensuite, pour l'application RNR-Na et dans l'hypothèse d'un combustible « chaud » de type U-PuO_2, les estimations faites par les neutroniciens/thermiciens nous alertent sur le fait que l'aiguille combustible peut s'échauffer très fortement une fois les pastilles combustibles insérées dans les tubes de gaines. Les profils thermiques indiquent que des températures de l'ordre de 500°C peuvent être atteintes avant la mise en service en réacteur. Ainsi en conditions de stockage et/ou transport, le tube de gaine peut être exposé pendant des durées importantes (plusieurs mois, voire plusieurs années) à des températures correspondant au cœur de la gamme de vieillissement étudiée dans ce chapitre.
Enfin, comme montré au cours du chapitre 3, la présence de vieillissement dynamique a été mise en exergue à partir de 400°C sur le 15-15Ti AIM1.
Pour toutes ces raisons, il est primordial d'étudier l'influence d'un vieillissement statique entre 400°C et 600°C sur la microstructure et le comportement en traction des tubes de gaine.

1. Protocole expérimental de vieillissement

Les traitements thermiques de vieillissement sont directement réalisés sur les tubes de gaine en 15-15Ti AIM1 du lot STP 1, dont les caractéristiques ont été fournies au Chapitre III § 1. Rappelons brièvement que nous procédons aux vieillissements uniquement sur l'état métallurgique représentatif des tubes de gaine en réacteur, c'est à dire l'état écroui à 20%.

Nous avons utilisé des températures de vieillissement de précisément 400°C, 500°C, 550°C et 600°C. Pour chaque température, des temps de maintien de 100 h, 500 h et 1000 h sont sélectionnés en se basant à la fois sur le diagramme TTP du DIN 1.4970 exposé au chapitre I § 2.2.1.2.1 et sur les différents couples température-temps déjà étudiés dans la littérature.
D'après le diagramme TTP, la température la plus basse, où sont détectés les premiers précipités avec une cinétique très lente de plusieurs milliers d'heure, est 500°C. Nous avons donc mis en œuvre des durées de vieillissement plus longues allant jusqu'à 4775 h (200 jours) à cette température.

Deux fours sont employés pour procéder aux vieillissements thermiques :

- Un four tubulaire sous vide de marque AET et de modèle FL2, qui permet de traiter de grandes quantités de matière. Le vide est y établi par une pompe primaire, qui garantit une pression pendant le traitement de 10^{-2} mbar. Les échantillons sont enfournés et récupérés à froid. Pour atteindre le palier de maintien, la rampe de chauffe est de 600°C/h puis le refroidissement s'effectue à 200°C/h jusqu'à 300°C. Un contrôle par deux thermocouples de type K, positionnés le long des tubes, permet de garantir une uniformité de la température à 5°C près. Enfin, l'ensemble du cycle en température est enregistré.
  Ce four a permis de traiter les échantillons à chaque température pour les durées inférieures ou égales à 1000 h.

- Un four sous air référencé « ETR », qui par sa plus grande disponibilité autorise les traitements supérieurs à 1000 h pour la température de 500°C. Dans ce cas, les échantillons sont d'abord

enveloppés dans un feuillard d'acier 316 pour limiter leur oxydation, puis ils sont introduits et retirés à chaud du four. Le Tableau IV. 1 expose le référentiel des traitements de vieillissement étudiés dans ce chapitre, en précisant pour chaque condition la quantité de matière traitée et l'atmosphère de vieillissement.

Température (°C)	Durée (h)	Quantité linéaire de tube (cm)	Atmosphère
600	100	2 x 50	Vide primaire
	500		
	1000	3 x 50	
550	100	2 x 50	
	500		
	1000	3 x 50	
500	100	2 x 50	
	500		
	1000	3 x 50	
	2375	3x 15	Air
	4775		
400	100	2 x 50	Vide primaire
	500		
	1000	3 x 50	

Tableau IV. 1 : Référentiel des traitements de vieillissement effectués.

Une fois traités, ces échantillons vont permettre d'étudier l'influence du vieillissement thermique hors flux à la fois sur la microstructure et sur les propriétés mécaniques du 15-15Ti AIM1.

Concernant les évolutions microstructurales possibles, elles vont être investiguées en s'intéressant d'abord à la microdureté puis plus spécifiquement :

- Au réseau de dislocations en lien avec la restauration de l'acier,
- A la précipitation.

Enfin, les évolutions des propriétés mécaniques seront explorées par la réalisation d'essais de traction en conditions quasi-statiques.

2. Etude de l'évolution de la microstructure

2.1. Evolution de la microdureté

La microdureté étant intimement liée à la microstructure de l'acier, un vieillissement peut entrainer une évolution de celle-ci. Afin de la quantifier, des mesures ont été effectuées sur les tubes à l'état de réception (AR) et vieillis à toutes les températures pour des durées allant de 100 h à 1000 h.

Les essais de micro-dureté réalisés sont de type Vickers : ils sont menés avec un microduromètre VMHT30A de la marque Leica, sous une charge de 100 grammes appliquée pendant 10 secondes sur les coupes transversales des tubes. Pour une meilleure représentativité, les valeurs de micro-dureté de chaque état vieilli, présentées sur la Figure IV. 1, sont la moyenne de 48 mesures.
Par soucis de clarté, les barres d'erreurs ne sont pas représentées sur le graphique, mais nous soulignons sur chaque point un écart-type moyen important de l'ordre de **10 $HV_{0.1}$**, qui est lié à la forte dispersion des données.

A l'état AR, la microdureté du 15-15Ti AIM1 est mesurée à **290 $HV_{0,1}$**, qui est une valeur relativement élevée pour un acier austénitique mais en cohérence avec son taux d'écrouissage (Venkadesan, Bhaduri, et al., 1992). On relève qu'un léger durcissement apparait pour chaque température dès 100 h de vieillissement. Ensuite, la microdureté croît toujours faiblement entre 100 h et 500 h, puis se stabilise jusqu'à 1000 h. Cette tendance ne se vérifie pas pour les états vieillis à 500°C pour lesquels on relève un maximum de dureté après 500 h.

Cependant, toutes les valeurs restent proches de **300 $HV_{0,1}$** et présentent, après 100 h de vieillissement, des variations minimes voire non significatives au regard de l'écart-type moyen.

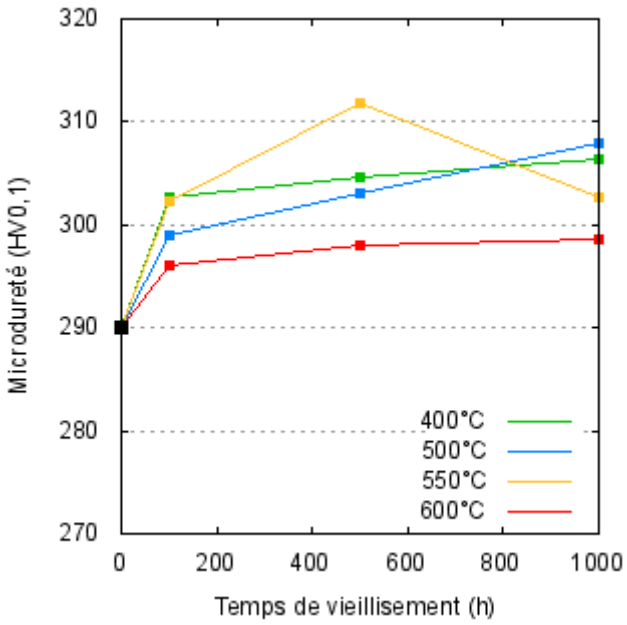


Figure IV. 1 : Evolution de la microdureté HV0.1 en fonction des conditions de vieillissement.

Comme vu au Chapitre I § 2.2, deux phénomènes peuvent avoir lieu durant le vieillissement thermique de l'acier 15-15Ti AIM1 : la précipitation et la restauration du matériau.

Or, ces deux phénomènes ont des effets présumés antagonistes sur la microdureté : la précipitation est susceptible d'avoir un effet durcissant, alors que la restauration s'accompagne en principe d'une baisse de dureté. En effet, la précipitation entrave la mobilité des dislocations alors que l'élévation de température favorise leur mobilité et donc leur recombinaison/annihilation.

Ici, on observe un léger durcissement systématique pouvant être lié à la précipitation secondaire se produisant lors du vieillissement. Cependant, ce durcissement semble plus marqué à 400°C par rapport à 600°C, alors qu'on sait qu'à 600°C, la cinétique de précipitation est plus rapide (Cf. Chapitre I § 2.2.1.2). Néanmoins, une restauration plus marquée, quand la température s'élève, pourrait compenser l'effet durcissant des précipités.

Par conséquent, il est difficile de déterminer la contribution de chacun de ces phénomènes à partir des seules évolutions de la microdureté. L'étude distincte de la précipitation et de la restauration lors du vieillissement est donc nécessaire. La restauration du 15-15Ti AIM1 va être examinée au paragraphe suivant de ce chapitre via l'analyse de l'évolution du réseau de dislocations. Concernant la précipitation, elle va être investiguée dans le § 2.3.

2.2. Evolution du réseau de dislocations

2.2.1. Evolution de l'organisation du réseau de dislocations

Le premier examen mené pour étudier l'évolution du réseau de dislocations a consisté en l'observation directe de celui-ci au MET après vieillissement. Les conditions opératoires et la préparation des lames minces sont les mêmes que celles décrites au Chapitre III § 1.1.3.

La Figure IV. 2 présente une vue générale des microstructures avant et après vieillissement : il est reporté en (a) et (b) les micrographies MET de l'état AR, déjà montrées en Figure III. 3. En (c) et (d) se trouvent des micrographies des états vieillis 1000 h respectivement à 600°C et à 500°C, qui sont représentatives d'un grand nombre d'images acquises.

Pour les deux états vieillis, l'organisation du réseau de dislocations apparait similaire à celle de l'état AR : la densité de dislocations ne semble pas diminuer et demeure toujours très élevée. On ne note pas de multiplication du nombre de cellules de dislocations ni d'accroissement de leur taille comme illustré par l'indice (i). De plus, une forte densité de macles mécaniques reste présente (Cf. indice (ii)).

Ces observations sont cohérentes avec celles de la littérature, où (Kesternich, Meertens, 1986) mesurent une densité de dislocations constante ($\approx 15.10^{14}$ m^{-2}) sur un acier DIN 1.4970 écroui à 15% et vieilli pendant 100 h à 600°C. Ceci reste à contraster avec les travaux récents de (Cautaerts et al., 2018), qui décèlent tout de même une plus forte dissociation des dislocations après vieillissement à 600°C sur le même acier.

Sur la base de nos examens au MET, il semble que l'organisation du réseau de dislocations évolue peu après vieillissement pour des températures inférieures ou égales à 600°C et des durées maximales de 1000 h.

Cependant, ces examens consistent uniquement en une observation générale de la microstructure, qui n'est que qualitative. Procéder à des analyses plus quantitatives comme la détermination des contraintes résiduelles selon les conditions de vieillissement mises en œuvre devrait nous permettre d'apporter des précisions.

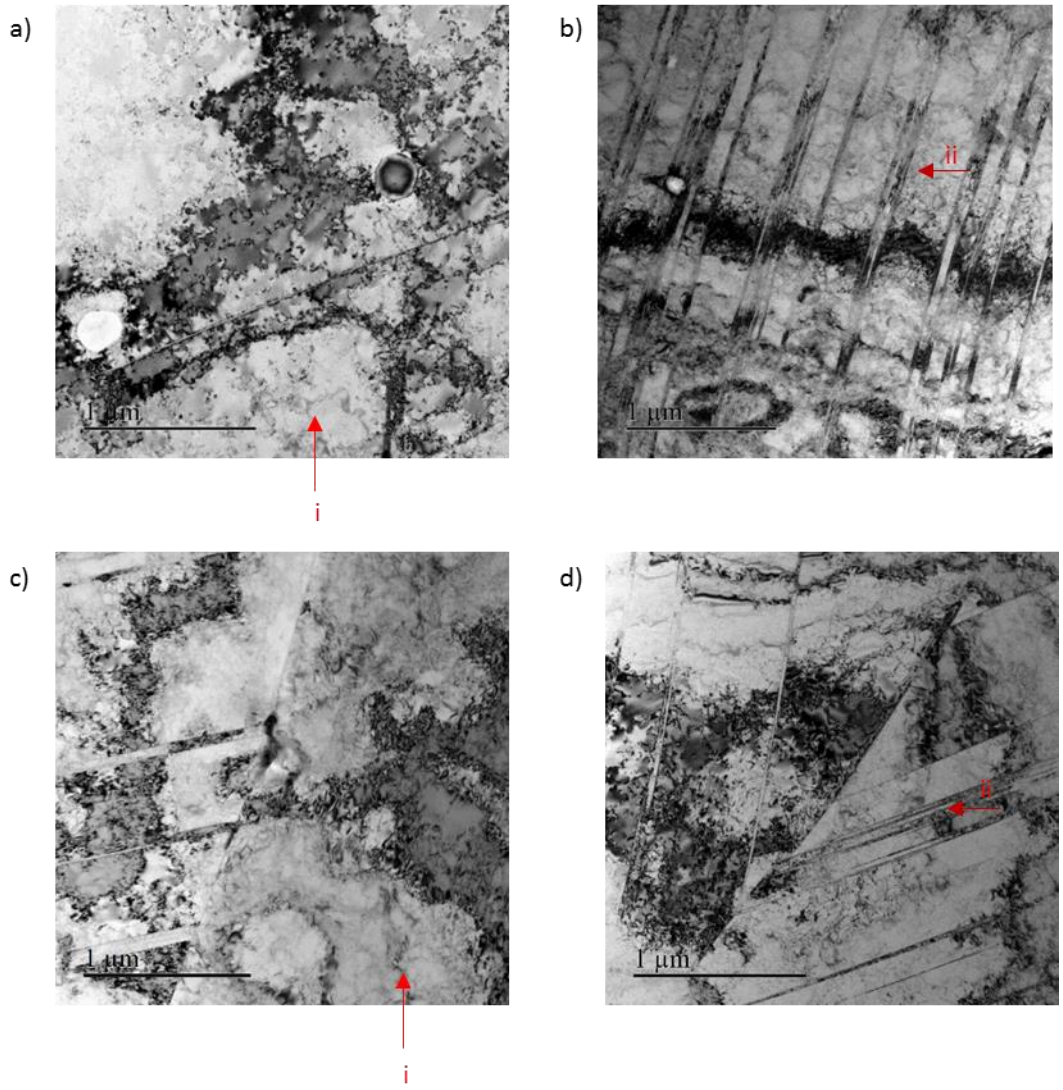


Figure IV. 2 : Micrographies MET montrant le réseau de dislocations et de macles à l'état AR pour a) et b) et après 1000 h de vieillissement à 600°C pour c) et à 500°C pour d).

2.2.2. Détermination de l'évolution des contraintes résiduelles

La dernière passe d'étirage conduit à une déformation plastique des tubes de gaine en 15-15Ti AIM1, qui résulte en l'apparition de contraintes résiduelles. L'étude de la variation des contraintes résiduelles peut ainsi renseigner sur les évolutions possibles de la microstructure et donc du réseau de dislocations au cours du vieillissement.

Pour cela, nous proposons d'examiner l'évolution des macro et micro-contraintes résiduelles sur les états AR, hypertrempé et vieillis 1000 h à 400°C, 500°C, 550°C et 600°C. Les macro-contraintes résiduelles, dites d'ordre 1, sont mesurées par Diffraction des Rayons X (DRX) en surface externe des tubes dans la direction axiale. Les micro-contraintes résiduelles intra-granulaires, dites d'ordre 3, sont mesurées par Diffraction des Neutrons (DN) dans tout le volume des tubes.

Pour plus de détails sur la nature et l'origine de ces contraintes, le lecteur est invité à se référer à l'article de (Barralis et al., 1999).

2.2.2.1. Macro-contraintes résiduelles surfaciques axiales (ordre 1)

Les contraintes internes résiduelles à l'échelle macroscopique peuvent être déterminées en utilisant la DRX de laboratoire. Dans ce cas, la pénétration des Rayons X se limite à environ 5 µm de profondeur dans les tubes et la taille de sonde est de quelques mm². Par ailleurs, sur la géométrie tubulaire, seules les contraintes dans la direction axiale peuvent être connue avec une précision suffisante.
On mesure donc ici les **macro-contraintes résiduelles surfaciques axiales**.

Elles sont obtenues en mesurant le déplacement d'un pic θ_{hkl} correspondant à la distance inter-réticulaire de la famille de plan (hkl). La précision obtenue étant meilleure aux grands angles de diffraction, nous avons choisi de nous intéresser à la raie (400) à $2\theta \approx 118{,}5°$. En effet, cette raie, visible sur la Figure IV. 3 , possède une intensité suffisante tout en respectant la recommandation angulaire $(2\theta > 115°)$.

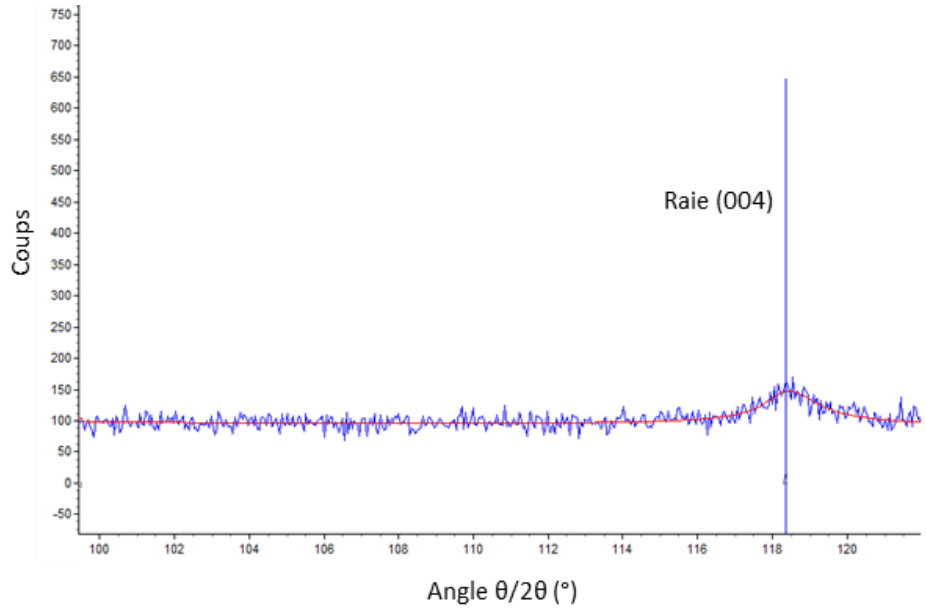


Figure IV. 3 : Diagramme de diffraction θ/2θ du 15-15Ti AIM1 à l'état AR.

A l'aide de la loi des $sin^2\psi$ (dont plus de détails sont fournis en Annexe B.1), la mesure du déplacement de la raie (004) nous permet de tracer la courbe montrée en Figure IV. 4 dans le cas de l'état vieilli 1000 h à 600°C. Le coefficient directeur de l'approximation linéaire de cette courbe est ensuite utilisé pour calculer les macro-contraintes résiduelles surfaciques axiales des tubes grâce à l'équation (IV. 1).

$$\sigma_{interne} = coefficient\ directeur * \frac{E}{1+\nu} \qquad (IV.\ 1)$$

Avec, dans le cas du 15-15Ti AIM1 à 20°C, $E = 203{,}4\ GPa$ et $\nu = 0{,}28$, comme spécifié en annexe A. Nous précisons que l'incertitude des mesures est d'environ ± 30 MPa. L'ensemble des caractéristiques techniques concernant l'acquisition des spectres de diffraction sont disponibles en annexe B.1.

Les résultats obtenus pour chaque état métallurgique sont exposés en Figure IV. 5, qui illustre, en parallèle, le cycle thermomécanique subis par les tubes de gaine et les valeurs de contraintes résiduelles associées aux différents stades de ce même cycle.
On remarque tout d'abord que les valeurs mesurées sont positives, ce qui signifie que les contraintes macroscopiques présentes en surface des tubes dans la direction axiale sont des contraintes de tension.

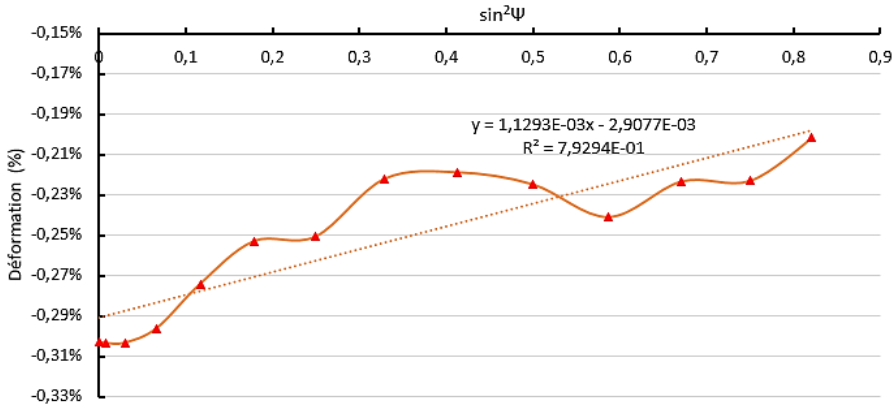


Figure IV. 4 : Approximation linéaire de la courbe de la déformation en fonction des sin²Ψ obtenue par la mesure des déplacements de la raie (004) en fonction de l'angle Ψ vieilli 1000 h à 600°C.

L'état hypertrempé présente un niveau de contrainte très faible (σ_{int} = 7 MPa), ce qui est une valeur attendue pour un matériau dans un état recristallisé. L'état AR présente un niveau de contrainte relativement important (σ_{int} = 229 MPa), en cohérence avec celui d'un état écroui.
Concernant les états vieillis, une hausse des contraintes internes est observée après vieillissement de 1000 h à 400°C et 600°C. C'est pour le traitement à 400°C, que la hausse la plus marquée est constatée avec une augmentation proche de 100 MPa. A l'opposé, une légère baisse de ces dernières se produit pour les températures de vieillissement de 500°C et 550°C.

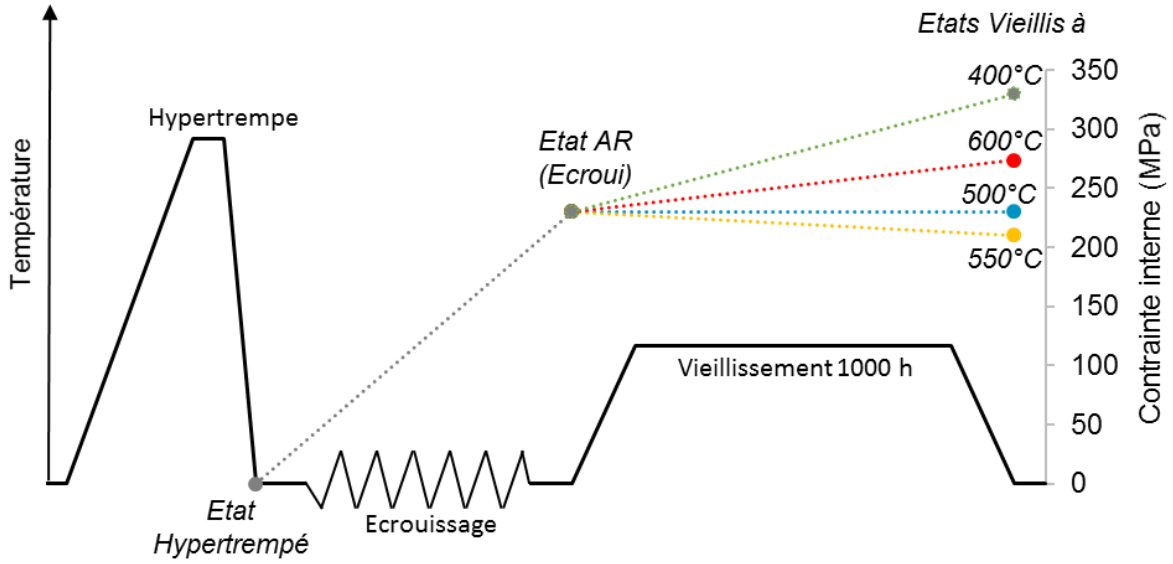


Figure IV. 5 : Evolution des contraintes macroscopiques mesurées par DRX dans l'AIM1 en fonction de l'état métallurgique.

En définitive, l'analyse des résultats montre que les états vieillis entre 400°C et 600°C conservent un niveau de macro-contraintes résiduelles élevé et comparable à celui de l'état écroui 20%. De plus, on peut noter quelques écarts entre les valeurs obtenues pour les états vieillis selon les températures utilisées, qu'il ne nous parait pas trivial à expliquer (en particulier, la valeur plus élevée obtenue à 600°C par rapport à 500°C et 550°C).

2.2.2.2. Micro-contraintes résiduelles intra-granulaires par DN (ordre 3)

Les mesures de micro-contraintes ont été réalisées sur la ligne 3T2 du réacteur ORPHEE. Cette ligne est conçue selon une géométrie de type Debye-Scherrer avec une taille de faisceau de 5,5 x 1,2 cm, ce qui permet d'analyser l'ensemble du volume de segments entiers de tubes de gaine. Les diffractogrammes ont été acquis sur un domaine 2θ allant de 5° à 120° avec un pas de 0,05°.

La présence de micro-contraintes résiduelles dans le matériau engendre un élargissement des pics de diffraction comme illustré sur la Figure IV. 6, qui compare l'élargissement du pic (422) de l'état hypertrempé à celui de l'état écroui 20% (état AR).
La détermination des micro-contraintes repose ainsi principalement sur la mesure de la largeur à mi-hauteur des différents pics de diffraction, puis à l'application d'une méthode d'analyse comme celle de Wiliamson et Hall.

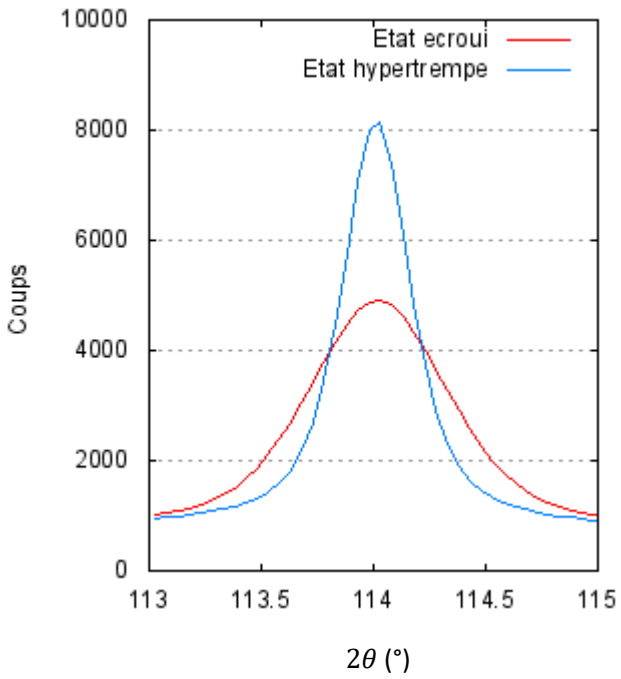


Figure IV. 6 : Elargissement du pic (422) dû aux micro-contraintes.

Après la campagne de diffraction, nous avons utilisé le logiciel FullProf afin d'ajuster les paramètres d'un spectre théorique avec les spectres de diffraction expérimentaux. La Figure IV. 7 montre la comparaison entre la courbe expérimentale et la courbe calculée avec le logiciel pour le 15-15Ti AIM1 à l'état de réception ($\varepsilon \sim 20\%$).
On observe un très bon accord entre les deux courbes sauf pour l'intensité de la raie (220), qui s'explique par la forte texturation des échantillons après l'étirage que nous n'avons pas pu simuler sur FullProf.

A la suite du traitement de tous les spectres de diffraction, nous avons obtenu les largeurs à mi-hauteur (Full-Width at Half-Maximum, FWHM) pour chacun des pics calculés à l'aide d'une fonction de type Thompson-Cox-Hastings pseudo-Voigt.

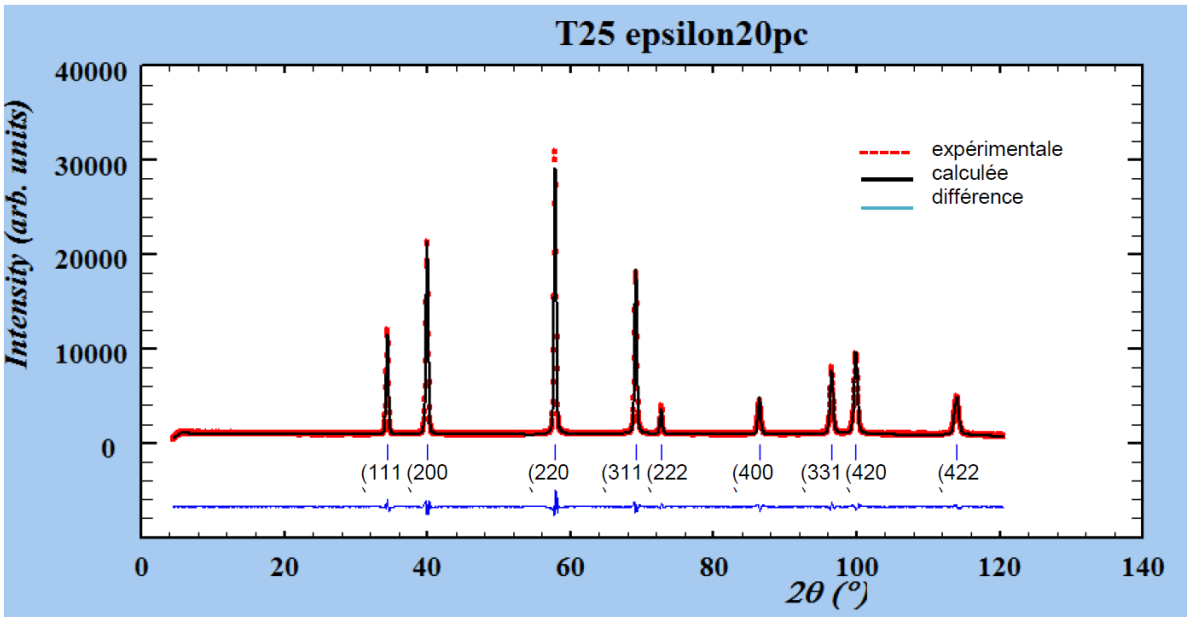


Figure IV. 7 : Exemple de résultat du logiciel FullProf.

La Figure IV. 8 montre l'évolution de ces largeurs pour chaque échantillon vieilli, normées par rapport à celles de l'état AR. La Figure IV. 8(a) représente l'évolution de la moyenne arithmétique des FWHM de tous les pics des spectres. En complément, la Figure IV. 8(b) détaille, sur une échelle des ordonnées réduites, l'évolution de la FWHM de chacun des pics.

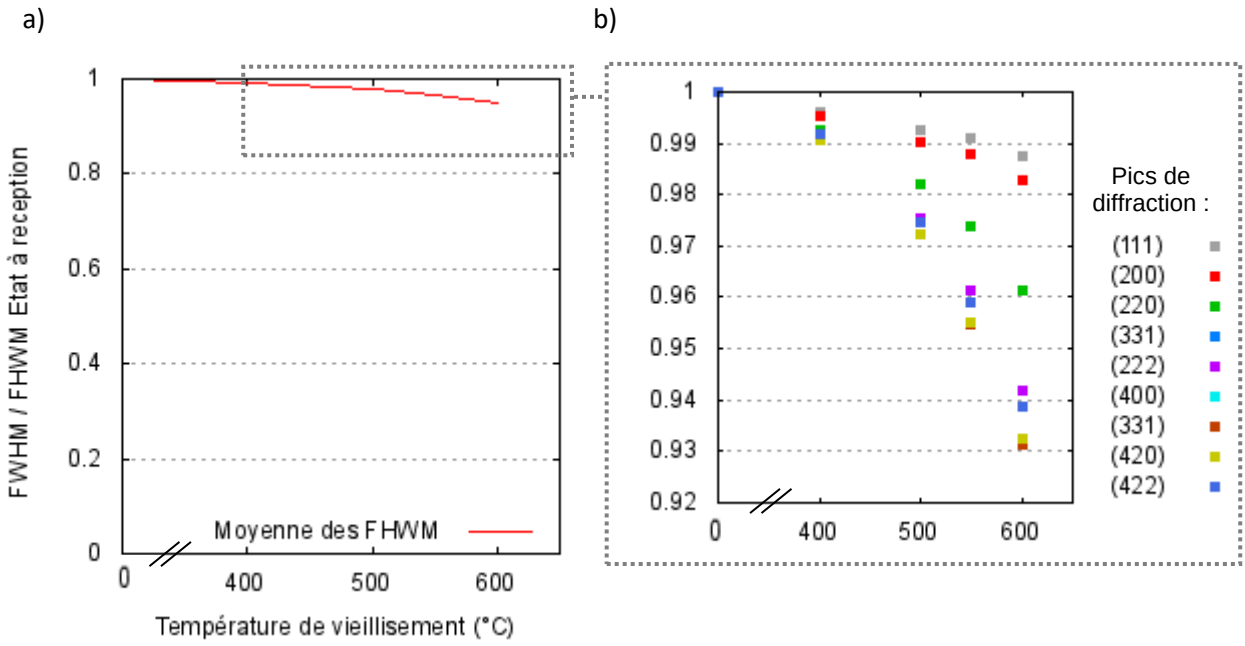


Figure IV. 8 : Evolution en fonction de la température pour un vieillissement de 1000 h de la moyenne arithmétique des largeurs à mi-hauteur de tous les pics de DN (a), de la largeur à mi-hauteur de chacun des pics de DN (b).

On constate une diminution de la largeur des pics en fonction de la température de vieillissement, qui est plus marquée sur certains pics que sur d'autres. En effet, pour les raies (111) et (200) qui se trouvent aux plus faibles angles 2θ, la FWHM relative ne diminue que d'environ 1-2% après un vieillissement de 1000 h à 600°C. Dans le cas des raies (420) et (422) qui se trouvent aux plus grands angles 2θ, la FWHM diminue d'environ 6-7%. Ceci ne s'explique pas par une micro-déformation moins importante des plans (111) et (200), mais par une meilleure résolution angulaire pour des angles 2θ plus élevés. Par ailleurs, chaque réflexion est différemment sensible aux dislocations.
Toutefois, la diminution moyenne des largeurs à mi-hauteur reste très faible, ce qui suggère une évolution mineure des micro-contraintes après vieillissement.

2.2.3. Conclusions sur les effets du vieillissement sur les dislocations

Nos examens au MET, corroborés à la littérature (Kesternich, Meertens, 1986), ne nous permettent pas de mettre en évidence d'évolution notable du réseau de dislocations entre un état écroui (AR) et les états vieillis. Néanmoins, certains auteurs relèvent une plus forte dissociation des dislocations après vieillissement (Cautaerts et al., 2018).
La diffraction des rayons X et des neutrons montre par ailleurs une variation limitée des contraintes internes à la fois à l'échelle macroscopique et microscopique dans le 15-15Ti AIM1 après vieillissements de 1000 h à des températures comprises entre 400°C et 600°C.
Sachant que les contraintes microscopiques sont en partie dépendantes de la densité de dislocations (Barralis et al., 1999), on peut en déduire, en cohérence avec les observations MET du § 2.2.1, **une très faible évolution du réseau et de la densité de dislocations** lors d'un traitement de vieillissement dans ces conditions.

Après s'être intéressé au réseau de dislocations, nous allons maintenant nous attarder sur la précipitation induite par un vieillissement entre 400°C et 600°C.

2.3. Effets du vieillissement sur la précipitation

Dans cette partie, nous allons étudier les différents précipités apparaissant dans les états vieillis et plus précisément l'évolution de leur taille, de leur densité et de leur nature en fonction des conditions de vieillissement.
A cet égard, les précipités nanométriques ont d'abord été examinés, avant de s'intéresser dans un second temps aux précipités de taille plus importante (de quelques centaines de nanomètres à quelques micromètres).

2.3.1. Précipités nanométriques

Comme vu au chapitre I § 2.2.1, les précipités nanométriques susceptibles de se former après vieillissement entre 400°C et 600°C sont les TiC (ou (Ti,Mo)C) et les phosphures. Le MET est le moyen le plus adapté pour vérifier leur présence et les caractériser. Les conditions opératoires et la préparation des lames minces sont les mêmes que celles utilisées au § 2.2.1 de ce chapitre et décrites au préalable dans le Chapitre III § 1.1.3.

2.3.1.1. Imagerie des précipités secondaires au MET

En champ clair

La Figure IV. 9 présente les micrographies MET en champ clair de précipités nanométriques de TiC, apparus après un traitement de vieillissement aux températures de 500°C, 550°C et 600°C. Elles ont été acquises en conditions deux ondes $\vec{g} = (200)$, qui offrent le meilleur contraste.

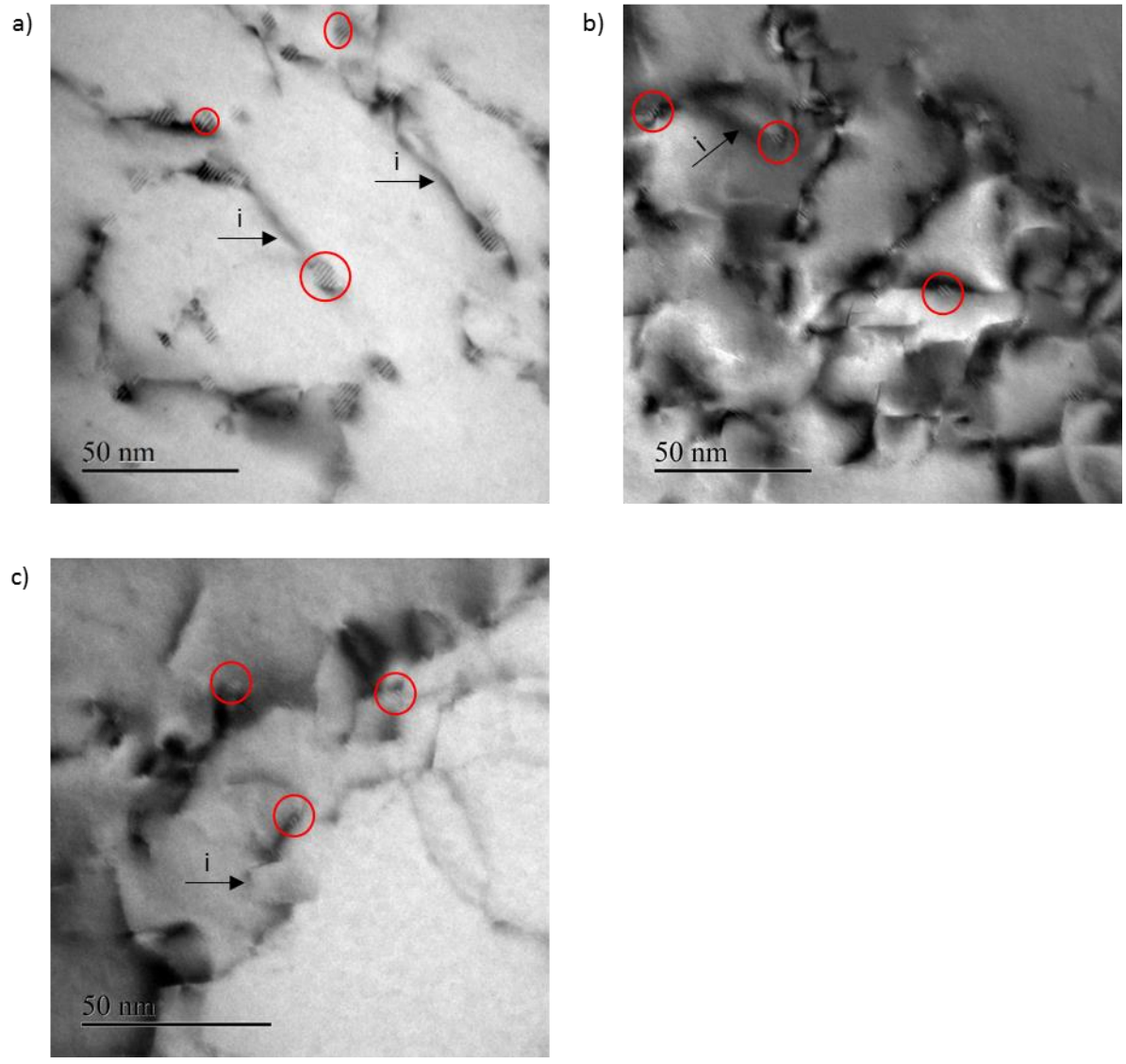


Figure IV. 9 : Micrographies MET en champ clair de précipités nanométriques de TiC après 1000 h de vieillissement à 600°C pour (a) (x350k) ; après 1000 h de vieillissement à 550°C pour (b) (x350k) et après 4775 h de vieillissement à 500°C pour (c)(x420k).

Les TiC, cerclés en rouge, sont alors visibles sous forme de franges de Moiré en raison de leur désaccord paramétrique avec la matrice. On remarque qu'ils se répartissent de manière homogène sur les dislocations, qui sont repérées sur les images par les indices (i).
Les précipités sont bien définis pour les conditions de vieillissement de 1000 h à 600°C (Figure IV. 9(a)) et à 550°C ((Figure IV. 9(b)).

Pour la température de 500°C, ils sont à la limite de résolution du MET et il a été nécessaire de choisir un temps de vieillissement plus long (4775 h) pour faciliter les observations (Figure IV. 9(c)).

Ces résultats sont cruciaux pour la connaissance de la cinétique de précipitation des TiC secondaires puisqu'il s'agit :

- D'une confirmation de leur présence après vieillissement à 600°C sur l'acier 15-15Ti AIM1.
- De la première fois où ils sont détectés après vieillissement à 500°C et 550°C sur un acier de type 15-15Ti.

La mise en œuvre d'un temps de vieillissement important (≥ 1000 h) est certainement le paramètre principal ayant permis l'obtention de tels résultats. En effet, la cinétique de précipitation est lente à ces températures comme suggéré par le diagramme TTP présenté dans le Chapitre I § 2.2.1.2.

Il est donc possible sur la base de nos résultats d'abaisser la température seuil de précipitation des TiC secondaires à 500°C pour un temps de maintien proche de 5000 heures.

Pour rappel, la littérature récente pour une nuance d'acier 15-15Ti, suggérait un seuil d'apparition situé entre 500°C et 600°C, dans la mesure où les nanoprécipités étaient détectés pour 600°C-4h et n'étaient pas observés pour 500°C-300h (Cautaerts et al., 2018).

Lors de nos observations, la recherche de phosphures a également été menée, sans succès. Deux hypothèses peuvent être avancées pour expliquer ce résultat :

- Soit les températures de 500°C, 550°C et 600°C sont trop faibles pour initier leur précipitation.
- Soit ces températures sont suffisantes, mais les temps de vieillissement ne sont pas assez longs.

<u>En champ sombre</u>

Lorsque les TiC secondaires sont assez gros (c'est le cas pour un vieillissement de 1000 h à 600°C), ils peuvent faire diffracter suffisamment le faisceau incident d'électrons pour former des spots sur les clichés de diffraction.

La Figure IV. 10(a) est un cliché de diffraction d'un grain de la matrice en conditions deux ondes $\vec{g} = (200)$ très proche d'un axe de zone $\vec{B} = [011]$. A côté des spots (200) et (-200) de la matrice, deux autres spots de très faible intensité (identifiés par (i)) sont discernables : ce sont les spots de diffraction des TiC.

On remarque que les spots des TiC sont dans le même alignement que ceux de la matrice car ces précipités sont en épitaxie avec cette dernière. Cependant, ils ne se superposent pas à cause du désaccord paramétrique entre les deux structures cristallines. Dans le réseau réciproque, D_{hkl} est en effet plus faible pour les TiC.

Si un de ces spots de diffraction des TiC est sélectionné pour former l'image au lieu du faisceau transmis, il se forme alors une micrographie en champ sombre comme celle de la Figure IV. 10(b), où uniquement les TiC sont éclairés. Toutes les taches blanches, que l'on voit sur la figure (dont deux sont repérées par (ii)), correspondent aux TiC.
L'intérêt de cette micrographie, acquise à un grandissement intermédiaire (x 82k), est notamment de faire apparaitre la forte densité de TiC ayant précipité dans la matrice.

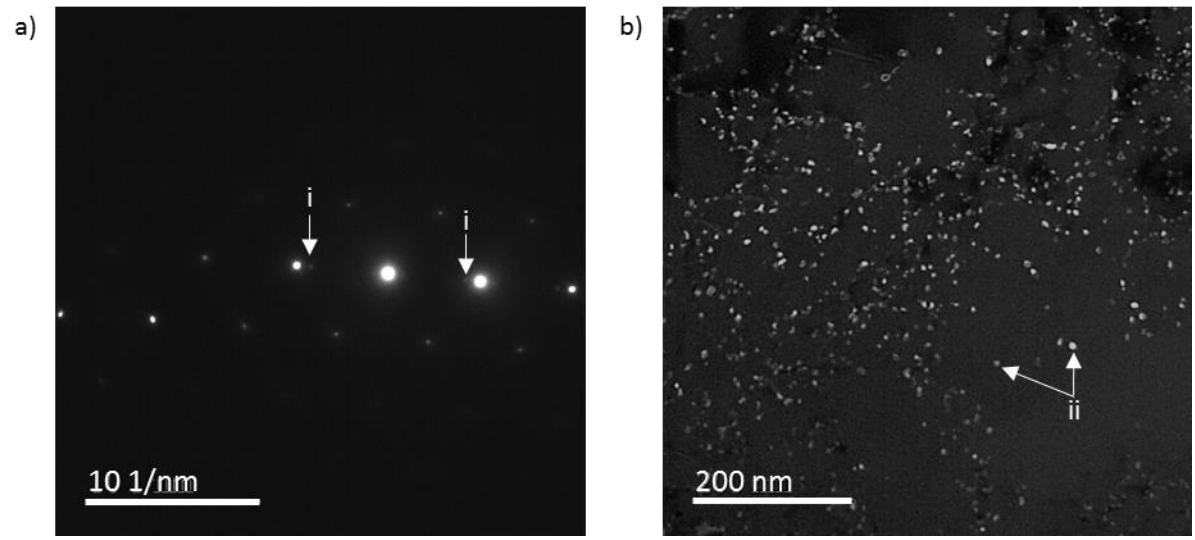


Figure IV. 10 : Analyse au MET d'un échantillon vieilli 1000 h à 600°C : Cliché de diffraction en condition deux ondes $\vec{g}$ = (200) proche d'un axe de zone $\vec{B}$ = [011] pour (a) ; Micrographie MET en champ sombre des TiC secondaires.

Pour une analyse quantitative de cette précipitation secondaire, des analyses d'images ont été mises en œuvre afin d'obtenir la taille et la densité moyenne de ces TiC secondaires.

2.3.1.2. Estimation de la taille et de la densité moyenne des TIC secondaires par analyse d'images

Les nano-précipités de TiC sont comptés sur la base des images en champ clair à l'aide des logiciels DigitalMicrograph et Visilog. Les détails de la méthodologie de comptage sont présentés en Annexe B.2. Les images en champ sombre n'ont pas été exploitées car il n'était pas possible de les seuiller en niveau de gris proprement et d'isoler uniquement les TiC.

Les résultats du comptage sont présentés dans le Tableau IV. 2 où ils sont confrontés à d'autres données issues de la littérature.

On constate une augmentation de la taille moyenne des précipités simultanément avec l'augmentation de la température. Par ailleurs, les tailles obtenues sont cohérentes avec les mesures effectuées à T ≥ 600°C dans ce type d'acier (Kountchou Tawokam, 2018 ; Mateus Freire, 2018 ; Cautaerts et al., 2018 ; Kesternich, 1985a).

Des analyses en spectroscopie de perte d'énergie des électrons (EELS) ont montré que l'épaisseur des lames était de l'ordre de 100 nm. En considérant cette épaisseur, la densité moyenne des précipités évolue peu ou augmente légèrement avec l'accroissement de la température entre 500°C et 600°C. Toutefois, compte-tenu des incertitudes de mesure notables, cette tendance serait à confirmer par des analyses complémentaires. La valeurs que nous obtenons pour 600°C-1000h de 2,1 ± 0,5 x 10^{22} m^{-3} se situe un peu en dessous de celle obtenue par (Cautaerts et al., 2018) de 4 ± 2 x 10^{22} m^{-3}. Il est à noter que selon cette source, la densité moyenne évolue peu entre 600°C et 800°C excepté pour le temps de maintien le plus long (66h) testé à 800°C où la densité chute pour atteindre 8 ± 2 x $10^{21}$$m^{-3}$, ce qui laisse penser qu'une possible coalescence des fins précipités survient pour ces conditions.

	Grossissement utilisé	Nombre d'images traitées	Nombre de précipité comptés	Diamètre sphérique moyen (nm)	Densité moyenne (m^{-3})	Fraction volumique (%)
650°C – 100h (Kountchou Tawokam, 2018)	-	-	-	6	-	≈ 0,4
600°C – 500h (Cautaerts et al., 2018)	-	-	97	4.3 ± 1,7	$4 \pm 2 \times 10^{22}$	-
600°C – 1000h (nos mesures)	x350k	22	921	4.3 ± 1,6	$2,1 \pm 0,5 \times 10^{22}$	0,095
550°C – 1000h (nos mesures)	x350k	17	680	3.0 ± 0,9	$1,7 \pm 0,5 \times 10^{22}$	0,030
500°C – 4775h (nos mesures)	x420k	6	64	2.4 ± 0,5	$6,3 \pm 2 \times 10^{21}$	0,0046

Tableau IV. 2 : Résultats du comptage des précipités TiC secondaires.

Du point de vue des fractions volumiques, elles connaissent une forte hausse concomitante avec l'accroissement de la température, qui s'explique simplement par l'augmentation de la taille des précipités. Concernant la valeur estimée de 0,4% fournie par (Kountchou Tawokam, 2018), bien que déterminée à 650°C, elle est très supérieure à celles que nous obtenons pour une température maximale de 600°C.

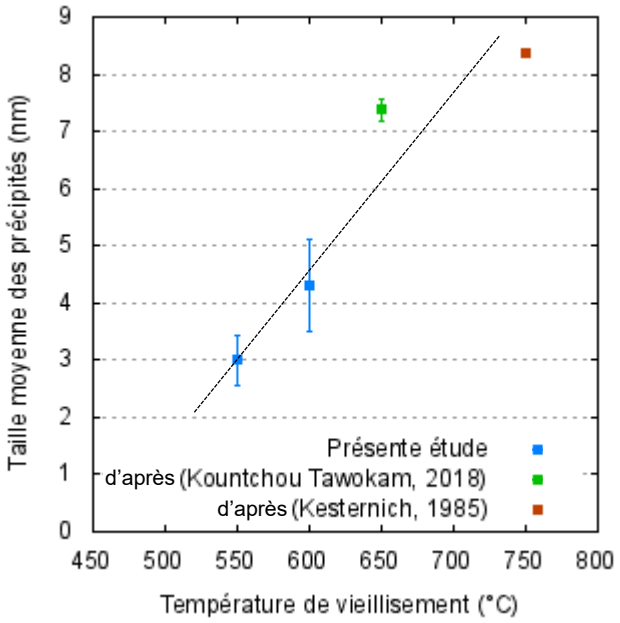
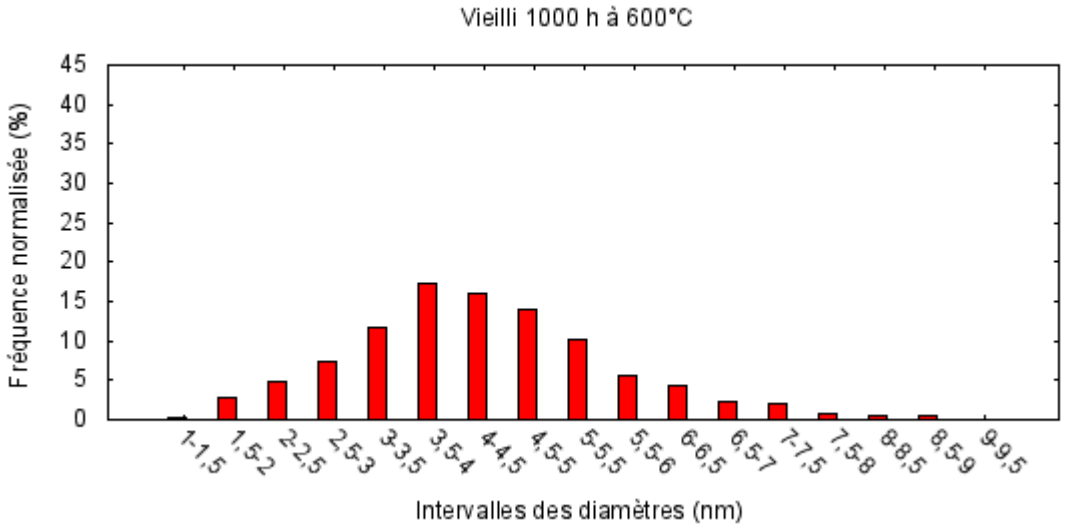
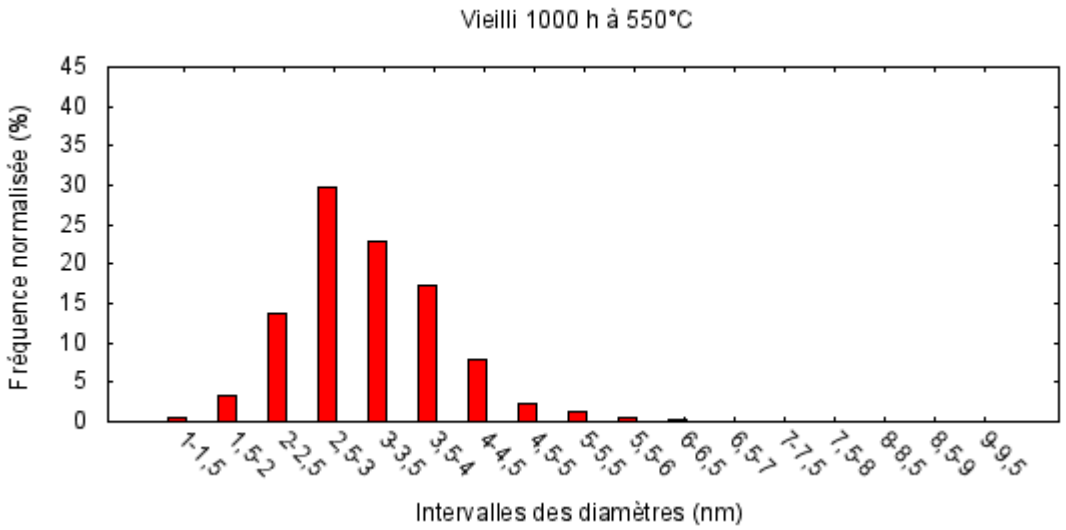


Figure IV. 11 : Evolution de la taille moyenne des précipités de TiC en fonction de la température après 1000 h de vieillissement.

a)



b)



c)

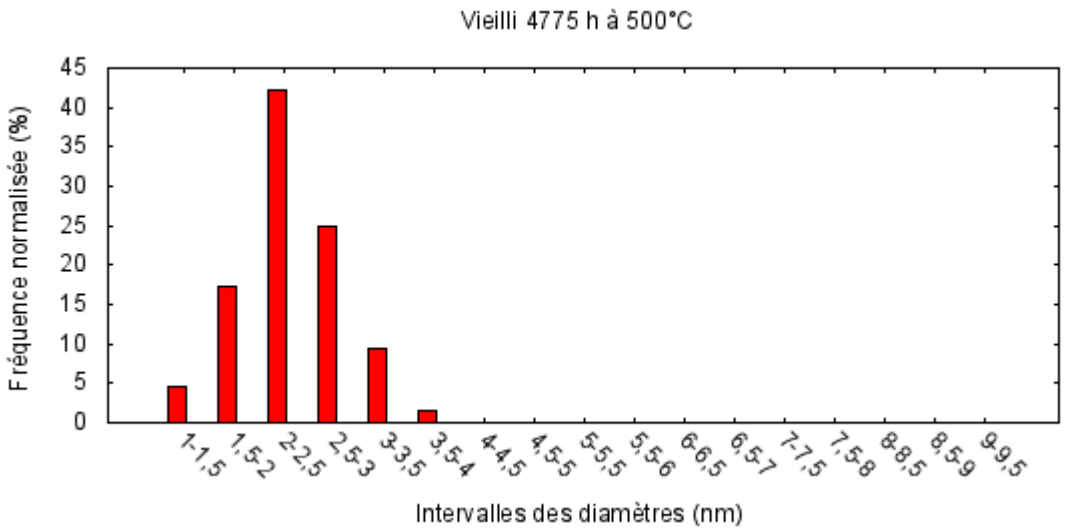


Figure IV. 12 : Histogrammes de répartition des tailles de précipités secondaires de TiC pour différentes conditions de vieillissement.

La Figure IV. 11 compare les résultats de notre étude à des valeurs de la littérature, qui ont été extrapolées jusqu'à 1000 h de vieillissement (durée similaire à celle subie par nos échantillons). L'extrapolation repose sur le modèle proposé par (Kountchou Tawokam, 2018), qui avait déjà été évoqué au Chapitre I § 2.2.1.2.2 et qui prédit une **cinétique de croissance de la taille des précipités proportionnelle à $t^{0.1}$** pour une température donnée.

On observe que, pour un vieillissement de 1000 h, la taille moyenne des précipités est bien croissante avec la température même lorsque celle-ci dépasse 600°C. Il semblerait également que la croissance de la taille des précipités suit une loi quasi-linéaire avec la température de vieillissement entre 550°C et 750°C.

Enfin, la représentation par histogrammes, exposée en Figure IV. 12, renseigne sur la dispersion de la taille des précipités pour chaque échantillon où un comptage a été effectué.
On remarque que la variation de la taille des nano TiC peut être approchée par une loi normale, de type Gaussienne, centrée autour de la valeur moyenne. La faible dispersion des tailles sur l'état vieilli 4775 h à 500°C, où les précipités sont très petits et où l'on peut supposer qu'ils viennent de se former, suggère **une germination quasi-simultanée de tous les TiC**. Ceci est confirmé par le constat d'une faible évolution de la densité moyenne selon la durée et la température de vieillissement. Ensuite, l'augmentation progressive de la dispersion de taille avec la température suggère une croissance plus hétérogène de la population.

2.3.2. Caractérisation des précipités secondaires autres que les TiC nanométriques

Le comptage des précipités secondaires de TiC à partir des micrographies MET a fourni des données sur la fine précipitation. Afin d'étudier les précipités de taille plus importante (typiquement de taille ≥ 100 nm), nous avons utilisé la dissolution sélective, qui consiste à dissoudre la matrice dans un bain d'acide et isoler les précipités pour les analyser. Dans nos expériences, les précipités sont récupérés sur un filtre dont la taille des pores est de 220 nm. De par un colmatage du filtre lors de l'expérience, on estime qu'une partie des précités de taille inférieure à la taille des pores peut être également retenue. Enfin, le filtre est analysé par DRX.
L'objectif est d'évaluer la fraction massique de précipités dans l'acier puis de déterminer leur nature. L'ensemble de la méthodologie expérimentale concernant ces caractérisations est disponible dans l'Annexe B.3 de ce manuscrit.

2.3.2.1. Evolution de la fraction massique de précipités

La dissolution sélective a été réalisée à la fois sur les états AR et vieillis 1000 h à 400°C, 500°C, 550°C et 600°C. Les fractions massiques des précipités obtenues sont présentés en Figure IV. 13

La fraction massique de précipités à l'état AR, mesurée à 0,30%, représente la quantité de précipités primaires présente dans le matériau. Comme vu au chapitre I § 2.2.1, il s'agit principalement de carbures et de carbonitrures de titane.
Après vieillissement, on s'attend à une hausse de cette fraction massique sur les états vieillis due à la précipitation secondaire. La Figure IV. 13 montre que pour l'échantillon vieilli à 400°C, la fraction massique de précipités est relativement proche de celle à l'état AR. C'est à partir de 500°C qu'elle augmente fortement et de manière linéaire, jusqu'à 0,78%, pour l'état vieilli à 600°C, soit une quantité supérieure au double de précipités par rapport à l'état initial.

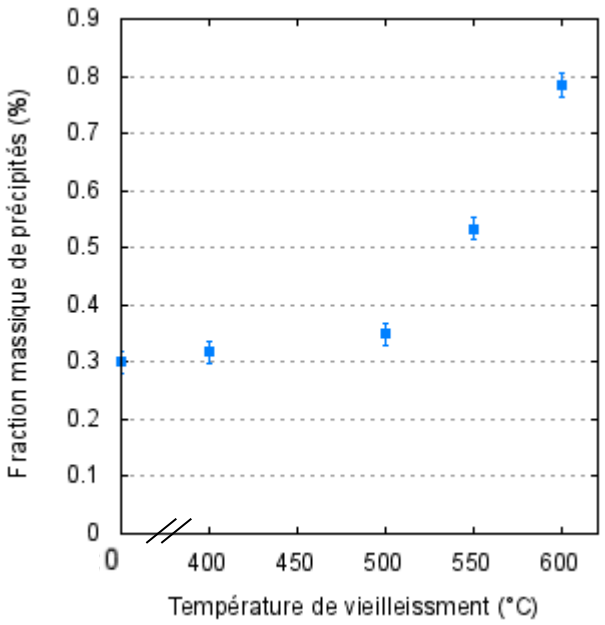


Figure IV. 13 : Evolution de la fraction massique de précipités (mesurée sur résidu d'extraction sélective) après un vieillissement de 1000 h en fonction de la température de vieillissement.

On peut en déduire que pour des vieillissements de 1000 h à 400°C et à 500°C, la technique utilisée ne permet pas de mettre en évidence d'évolution de la fraction massique précipitée par rapport à l'état initial écroui 20%. Sachant, d'après les analyses au MET, que les TiC formés à ces températures de vieillissement ont une taille de quelques nanomètres, ils ne sont vraisemblablement pas collectés sur le filtre et ne sont donc pas pris en compte. A 550°C et à 600°C, l'augmentation de la fraction massique précipitée peut s'expliquer par la présence de précipités de plus grande taille, comme les carbures de chrome notamment.

2.3.2.2. Analyse des précipités par diffraction des RX

Les précipités isolés de la matrice par dissolution sélective et recueillis sur un filtre sont ensuite analysés par DRX afin, dans un premier temps, d'identifier leur nature chimique.

Les mesures des paramètres de maille des précipités sont reportées en annexe B.3. Ces mesures sont comparées à celles de fichiers de référence ICDD et à des mesures issues de la littérature.

Sur la Figure IV. 14, deux diffractogrammes caractéristiques sont présentés :

- Le premier est celui obtenu pour l'état vieilli 1000 h à 400°C (Figure IV. 14(a)). Il est similaire à celui de l'état AR, non présenté ici.
- Le second est celui obtenu pour l'état vieilli 1000 h à 600°C (Figure IV. 14(b)). Il est semblable à celui des états vieillis 1000 h à 500°C et 550°C.

Dans le premier cas (Figure IV. 14(a)), trois phases ont été identifiées :

- Les carbures de titane (TiC),
- Les nitrures de titane (TiN) de structure cubique à faces centrées (CFC),
- Les carbosulfures de titane (Ti_2CS) de structure hexagonale.

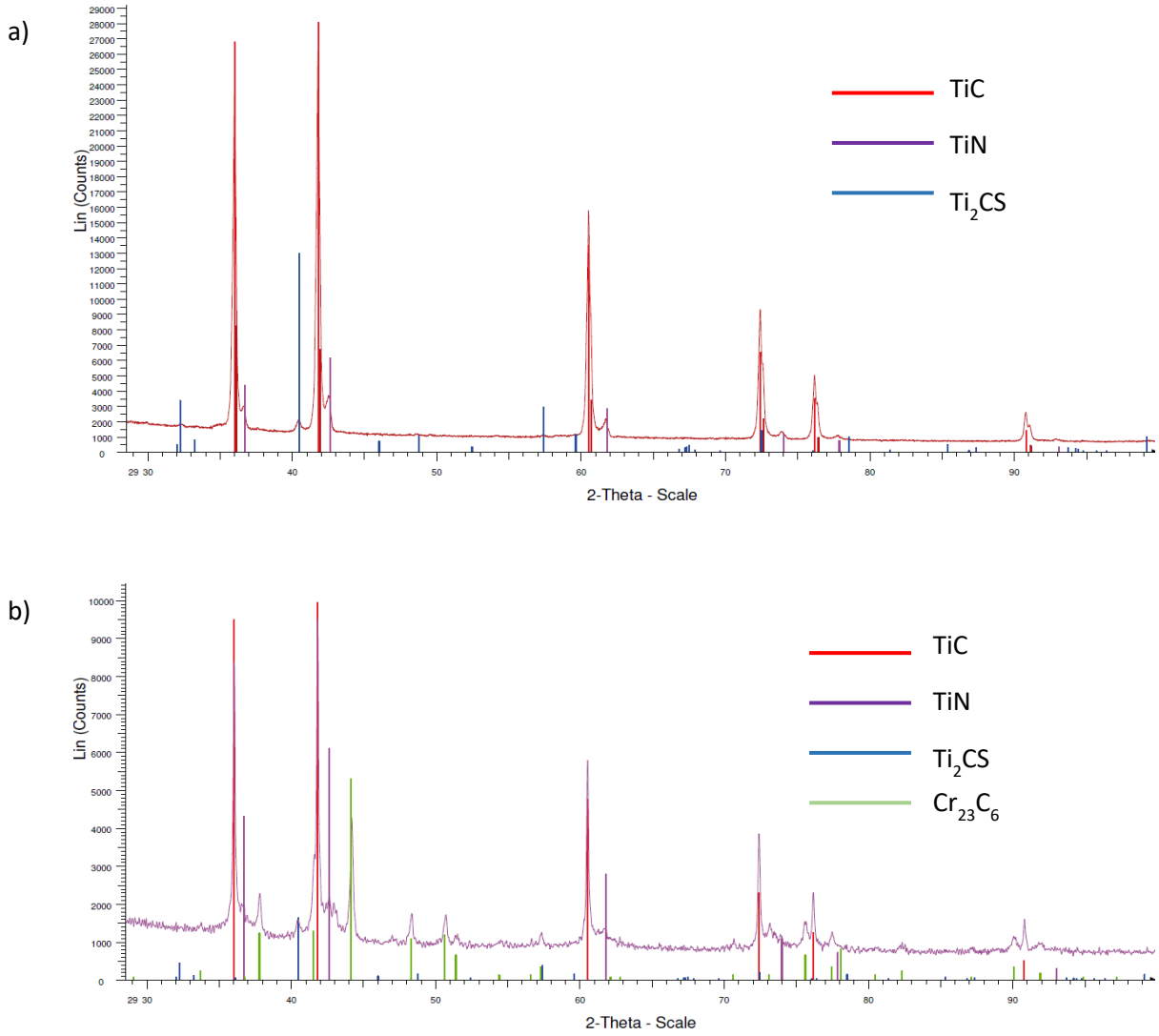


Figure IV. 14 : Diffractogrammes indexés des résidus de dissolution sélective pour l'état vieilli 1000 h à 400°C pour a) et pour l'état vieilli 1000 h à 600°C pour b).

Dans le second cas (Figure IV. 14(b)), en plus de ces trois phases, on détecte la présence de **carbures de chrome ($Cr_{23}C_6$)**. On note que les phases identifiées sont en accord avec la littérature (Courtin, 2015 ; Padilha et al., 1982).

Ensuite, nous avons cherché à estimer la fraction volumique relative de chacun des précipités dans les résidus provenant de la dissolution de la matrice du 15-15Ti AIM1.

Pour ce faire nous avons utilisé une méthode (détaillée en Annexe B.3) de rapport d'intensité des raies principales de chaque phase par rapport à une valeur de référence. Les résultats de cette analyse sont présentés dans le Tableau IV. 3. L'incertitude sur les fractions volumiques relatives fournies par cette méthode est de ± 5%.

On distingue rigoureusement dans le tableau les précipités de type :

- Primaires qui correspondent aux (TiC), (TiN) et (Ti_2CS),
- Secondaires qui correspondent exclusivement aux ($Cr_{23}C_6$).

En effet, les précipités de nature TiC sont considérés uniquement comme primaires car on estime que la quantité de type secondaire déposée sur le filtre est négligeable comparée à celle de type primaire, même si le taux de colmatage du filtre est important. En effet, la taille des TiC secondaires, de l'ordre de quelques nanomètres, est bien inférieure à la taille des pores du filtre (≈ 220 nm).

Etats métallurgiques	Fraction volumique relative (%)			
	Précipités primaires			Précipités secondaires
	TiC	TiN	Ti_2CS	$Cr_{23}C_6$
AR – Ecroui 20%	86	10	4	-
Vieilli 1000h à 400°C	85	11	5	-
Vieilli 1000h à 500°C	81	9	4	6
Vieilli 1000h à 550°C	68	10	5	18
Vieilli 1000h à 600°C	51	11	6	31

Tableau IV. 3 : Fraction volumique relative des précipités à l'état de réception et pour différents états vieillis (déduite des résultats de DRX).

Pour les états AR et vieilli 1000 h à 400°C, seuls les précipités primaires sont reportés. La répartition des fractions volumiques relatives dans ce cas est similaire avec environ 85% de TiC, ~10% de TiN et 4 à 5% de Ti_2CS. Pour les vieillissements à plus hautes températures, la fraction relative de TiC diminue au profit de celle des $Cr_{23}C_6$, qui augmente avec la température de vieillissement. Après 1000 h à 600°C, la fraction de carbures de titane est minimale (≈ 51%) alors que celle des carbures de chrome est maximale (≈ 31%).
Ces évolutions s'expliquent simplement par le fait que la quantité de précipités de TiC reste constante au cours du vieillissement puisqu'on ne comptabilise que les primaires, alors que celle de $Cr_{23}C_6$ croît lorsque la température augmente.
Concernant les fractions relatives des TiN et Ti_2CS, elles évoluent peu et oscillent autour de leur valeur initiale, étant donné que les faibles écarts mesurés sont dans l'incertitude de la méthode des rapports d'intensité des raies principales.

En conclusion, on peut considérer que l'augmentation de la fraction massique totale de précipités dans l'acier vue en Figure IV. 13 est essentiellement imputable à l'apparition des carbures de chrome.

2.3.3. Conclusion sur les effets du vieillissement sur la précipitation

Le vieillissement thermique entre 400°C et 600°C conduit à une **précipitation secondaire,** avec deux principales familles de carbures :

- Des carbures de titane, qui ont été décelés pour la première fois sur un acier de type 15-15Ti à partir de 500°C (pour un temps de 4775 h) à l'aide d'observations au MET. Ils n'avaient pas été observés jusqu'ici pour des températures inférieures à 600°C, probablement en lien avec leur taille de quelques nanomètres qui rend leur détection difficile. Selon nos analyses, la taille moyenne et la fraction volumique de ces nano-précipités sont croissantes avec

l'augmentation de la température de vieillissement. Enfin, leur densité volumique semble augmenter faiblement avec l'augmentation de la température et la durée du vieillissement. Ceci, associé à une faible dispersion de leur taille dès leur apparition, suggère une germination quasi-simultanée de l'ensemble des précipités.

- Des carbures de chrome, dont la précipitation a été confirmée sur le 15-15Ti AIM1 dès 500°C (pour un temps de 1000 h) par dissolution sélective de la matrice, suivie d'une analyse de phase en DRX. La littérature (Weiss, Stickler, 1972 ; Spruiell et al., 1973) et nos résultats des expériences de dissolution sélective suggèrent que leur taille est nettement supérieure à celle des TiC nano. Par ailleurs, leur quantité augmente de manière importante avec la température de vieillissement.

Les évolutions microstructurales mises en évidence dans cette partie sont susceptibles de modifier le comportement mécanique des tubes de gaine en 15-15Ti AIM1. Pour évaluer cela, une campagne d'essai de traction a été menée sur les états vieillis 1000 h à chaque température, dont les résultats vont être exposés dans la partie suivante.

3. Effets du vieillissement sur le comportement en traction

L'objectif de cette campagne d'essais de traction est d'étudier l'influence de la température de vieillissement et de la température d'essai sur les propriétés en traction de l'acier 15-15Ti AIM1. Un intérêt particulier est porté aux essais à 200°C car, pour rappel, l'état AR de cet acier présente des minima d'allongements total et homogène à cette température.

Les essais de traction sont menés sur éprouvettes bi-jambes directement prélevées sur les tubes vieillis et ils sont réalisés selon la même procédure que celle décrite au § 1.2.1 du Chapitre III, en conditions quasi-statiques. Compte tenu du nombre limité d'éprouvettes, nous n'avons pu doubler que quelques essais. Par facilité de mise en œuvre et de durée de l'expérience, nous avons privilégié de doubler les essais à 20°C. La matrice des essais est détaillée dans le Tableau IV. 4.

	Température d'essai (°C)			
Conditions de vieillissement	**20**	**200**	**300**	**400**
400°C, 1000h (nbr. d'essais)	1	1	1	1
500°C, 1000h (nbr. d'essais)	2	1	1	1
550°C, 1000h (nbr. d'essais)	2	1	1	1
600°C, 1000h (nbr. d'essais)	2	1	1	1

Tableau IV. 4 : Matrice des essais de traction menés sur les tubes en 15-15Ti AIM1 après différentes conditions de vieillissement.

3.1. Courbes conventionnelles à 20°C et 200°C

La Figure IV. 15 montre les courbes conventionnelles de contrainte-déformation des essais à 20°C et 200°C des tubes vieillis pendant 1000 h à 400, 500, 550 et 600°C. Sur cette figure, on a également reporté les courbes obtenues pour l'état AR aux deux températures, et déjà exposées sur la Figure III. 5 au chapitre précédent. Les courbes des essais à 300 et 400°C ne sont pas présentées par souci de clarté, mais l'analyse des propriétés observées ($Rp_{0,2\%}$, R_m, A_t, A_g) est détaillée au paragraphe suivant.

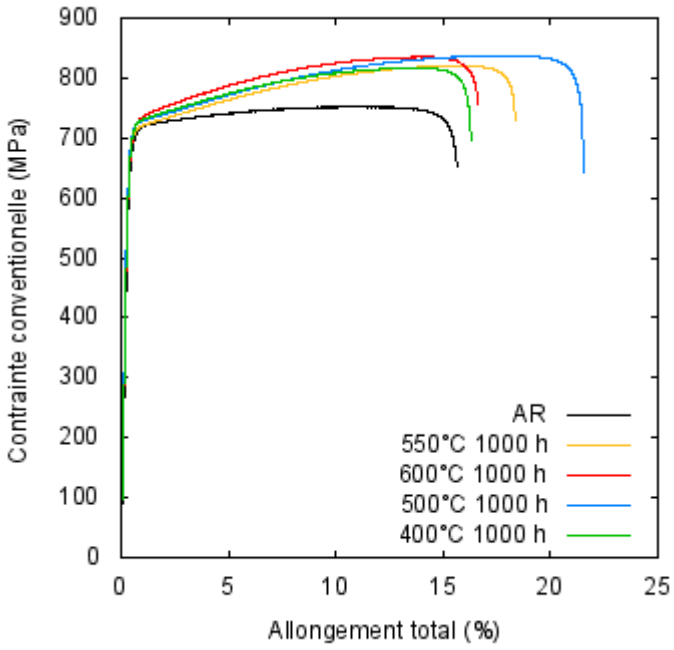
On observe que les courbes à 20°C (Figure IV. 15(a)) des états vieillis se regroupent en un faisceau homogène qui se démarque clairement de l'état AR, quelle que soit la température de vieillissement :

- La courbe de l'état AR se situe au-dessous de celles des états vieillis que ce soit en termes de contrainte ou d'allongement.
- L'allure en quasi-plateau de l'état AR disparait au profit de l'apparition d'une pente, synonyme **d'un écrouissage plus important de l'acier** durant la phase de plasticité. Cet aspect va être plus amplement examiné au § 3.3 de ce chapitre.

A 200°C (Figure IV. 15(b)), la tendance vue à 20°C se renforce ostensiblement : les courbes des états vieillis se confondent parfaitement jusqu'à environ 8% d'allongement et elles s'écartent encore plus de l'état AR.

Par ailleurs, il doit être mentionné que la présence d'oscillations sur les courbes due à l'effet PLC n'a jamais été détectée même lors des essais à 400°C.

a)



b)

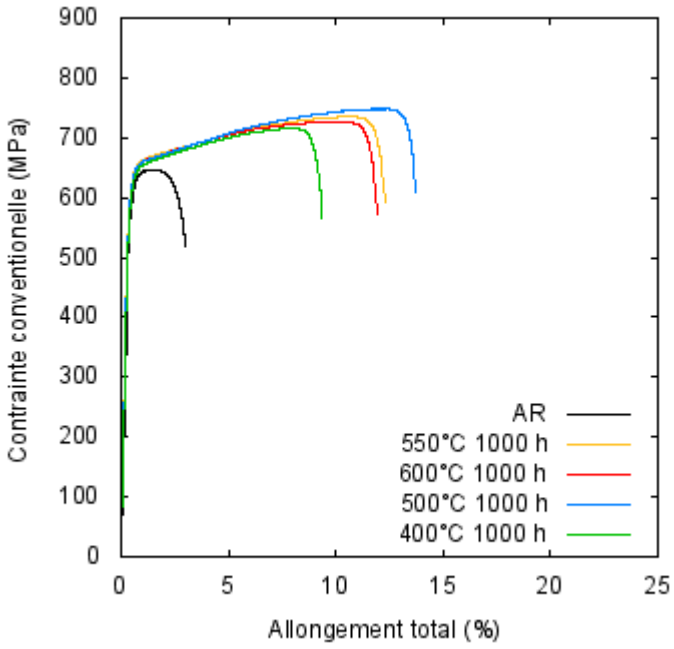


Figure IV. 15 : Courbes conventionnelles contrainte-déformation à 20°C pour a) et 200°C pour b) en fonction de la température de vieillissement.

3.2. Evolution des propriétés en traction entre 20°C et 400°C après vieillissement

Les évolutions des propriétés mécaniques ($Rp_{0,2\%}$, R_m, A_t, A_g) de 20°C à 400°C, tirées des courbes de traction, vont être examinées dans cette partie. Pour les essais doublés, ce sont les valeurs moyennes qui sont fournies.

La Figure IV. 16 présente à la fois l'évolution de la limite d'élasticité et de la résistance maximale de chacun des états vieillis 1000 h à 400°C, 500°C, 550°C et 600°C; Les résultats obtenus sont comparés à ceux obtenus sur l'état AR entre 20°C et 600°C.

Concernant la limite d'élasticité (Figure IV. 16(a)) on remarque que :

- $Rp_{0,2\%}$ décroit de manière quasi-linéaire avec l'augmentation de la température d'essai pour tous les états métallurgiques.
- Pour les états vieillis, les valeurs de $Rp_{0,2\%}$ sont très proches peu importe la température de vieillissement.
- Pour l'état AR, les valeurs de $Rp_{0,2\%}$ sont systématiquement inférieures d'une vingtaine de MPa à celles des états vieillis, à l'exception de l'essai à 400°C sur l'échantillon vieilli 1000 h à 600°C où elles sont égales.

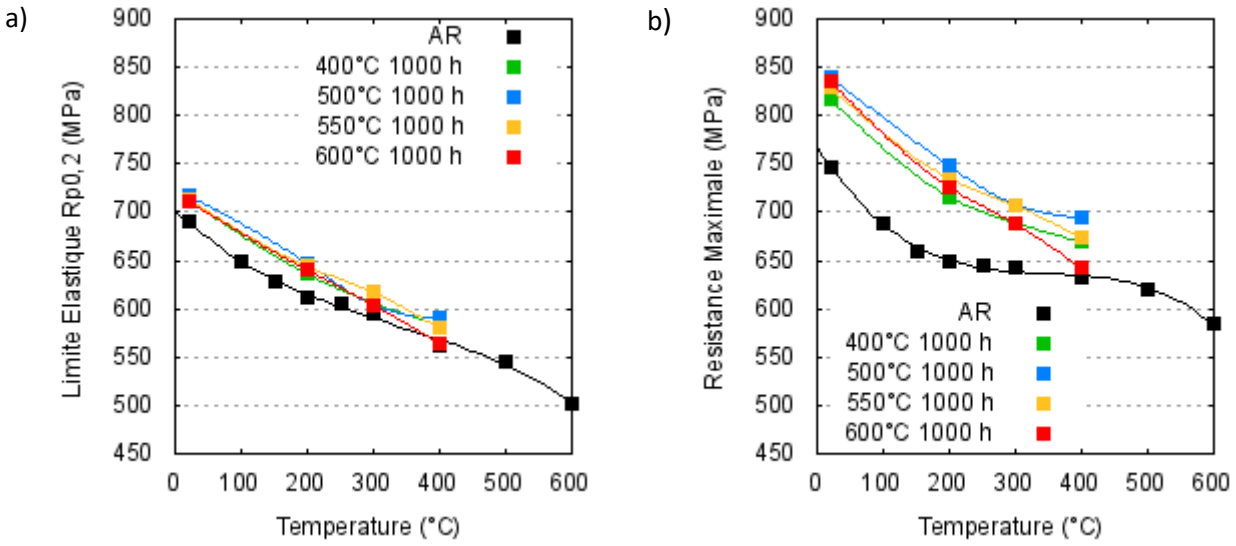


Figure IV. 16 : Evolution respectivement de la limite d'élasticité ($Rp_{0,2\%}$) et de la résistance maximale pour a) et pour b) en fonction des températures d'essai pour différents vieillissements.

Concernant la résistance maximale (Figure IV. 16(b)) on remarque que :

- R_m diminue avec l'augmentation de la température d'essai pour tous les états métallurgiques.
- Pour les états vieillis, les valeurs de R_m semblent décroître selon un régime quasi-linéaire.
- Pour l'état AR, la décroissance de R_m semble suivre un régime en trois étapes : une diminution rapide entre 20°C et 200°C, suivie d'un palier entre 200°C et 400°C-500°C et finalement une reprise de la baisse notable de 500°C à 600°C.
- Tous les états vieillis présentent des valeurs de R_m sensiblement plus élevées que l'état AR (l'écart est de plusieurs dizaines de MPa), à l'exception de l'essai à 400°C sur l'échantillon vieilli 1000 h à 600°C.

- Par ailleurs, au contraire de $Rp_{0,2\%}$, les valeurs de R_m se différencient plus facilement à chaque température d'essai. Il en ressort que les valeurs de R_m les plus élevées sont obtenues après un vieillissement de 1000 h à 500°C.

Enfin, comme souligné à deux reprises ci-dessous, l'état vieilli 1000 h à 600°C affiche des propriétés mécaniques similaires à celles de l'état AR en matière de limite d'élasticité et de résistance mécanique, qui pourrait être en relation avec un début de restauration pour ces conditions de vieillissement.

La Figure IV. 17 présente l'évolution des allongements total et homogène pour les états vieillis entre 20°C et 400°C et pour l'état AR entre 20°C et 600°C.

On observe une hausse très importante des allongements après vieillissement :

- Pour la température de 200°C où le 15-15Ti AIM1 (état AR) présente un allongement homogène critique de l'ordre de 1%, **le traitement thermique à 400°C conduit à un gain d'un facteur 7 et le traitement à 500°C, un gain d'un facteur 12.**
- Pour les températures de vieillissement plus élevées, cette hausse reste notable bien que moins marquée.
- Concernant les tendances, le minimum des allongements total et homogène, très resserré sur la température de 200°C, ne transparait plus sur les états vieillis. Une décroissance de l'ordre d'un facteur 2 en moyenne persiste tout de même entre 20°C et 200°C mais ensuite une stabilisation s'opère entre 200°C et 400°C.

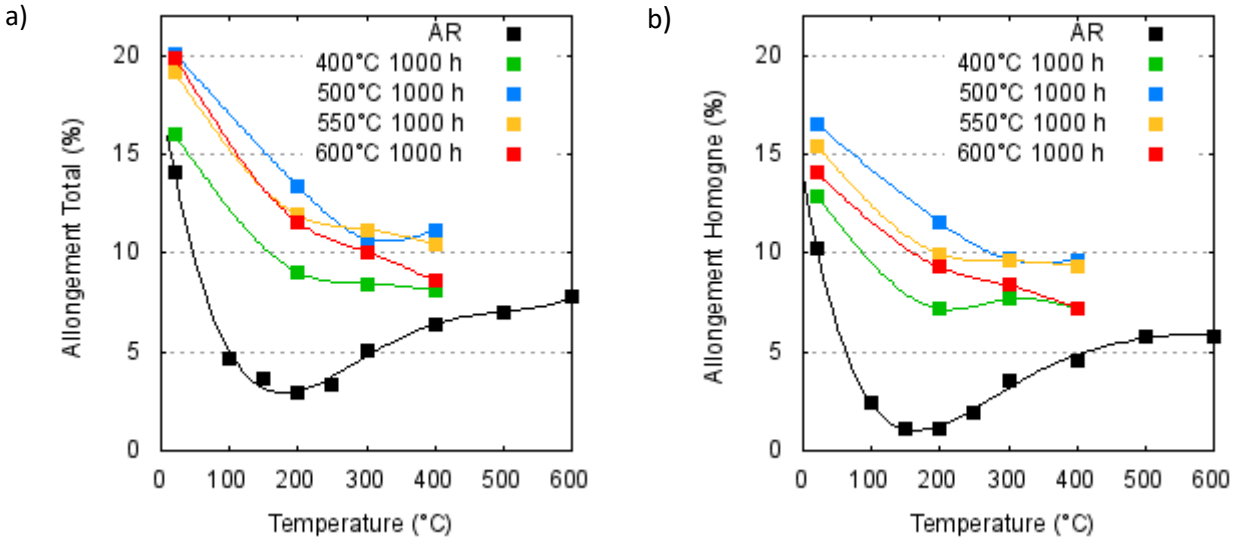


Figure IV. 17 : Evolution des allongements total et homogène respectivement pour a) et pour b) en fonction des températures pour différents vieillissements.

Généralement le vieillissement des aciers s'accompagne d'un durcissement et d'une diminution de la ductilité (Grumbach, 1993 ; Michaud et al., 1994). (Fahr, 1973), qui compare le comportement d'un acier 316 écroui 20% avant et après vieillissement entre 450°C et 650°C pendant 4000 h, note en revanche que les allongements (A_t, A_g) et les résistances ($Rp_{0,2\%}$, R_m) évoluent peu voire diminuent faiblement.

L'acier 15-15Ti AIM1 vieilli se singularise par un faible durcissement associé à un gain en résistance maximale à la traction (Rm) et par une augmentation simultanée de la ductilité, en termes d'allongement homogène et d'allongement total.
Ce gain important d'allongement homogène pour un état vieilli, constaté sur une large plage de température entre 20°C et 400°C, constitue un résultat marquant sur lequel nous reviendrons au chapitre suivant.

3.3. Analyse du coefficient d'écrouissage

Nous venons de constater au § 3.1 que les courbes de comportement entre l'état AR et les états vieillis se différencient par une variation très notable de la pente $d\sigma/d\varepsilon$ dans le domaine plastique.
Cette pente peut être analysée plus précisément en s'intéressant au coefficient n (ou taux) d'écrouissage, déjà défini au Chapitre III § 2.1.1.3.
Son évolution est tracée sur la Figure IV. 18 en fonction de la déformation vraie à 20°C et 200°C pour l'état AR et l'état vieilli 1000 h à 500°C, qui présente les meilleures propriétés.

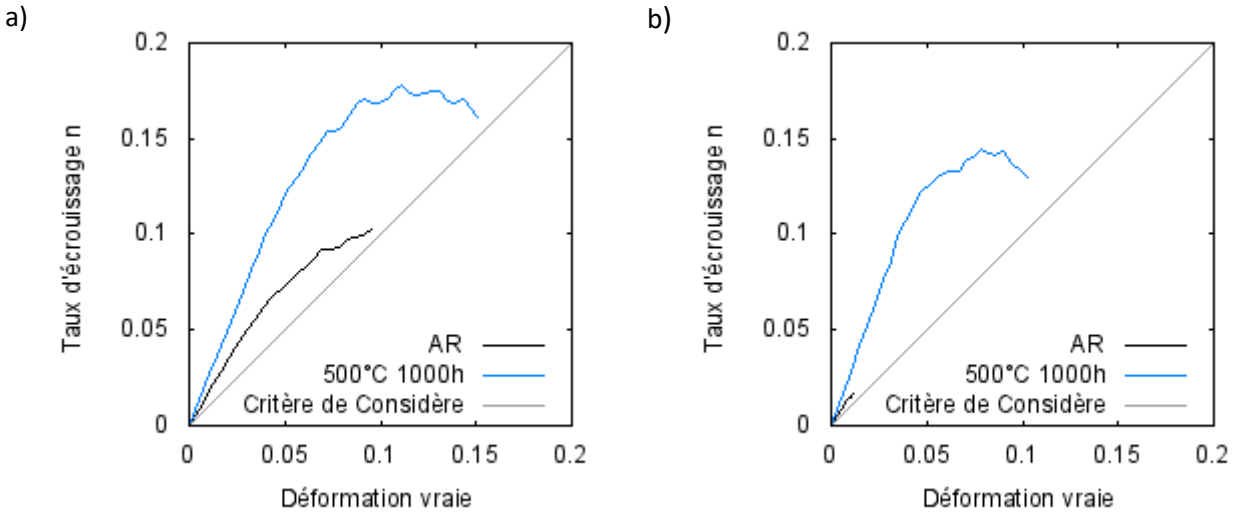


Figure IV. 18 : Evolution du taux d'écrouissage n en fonction de l'état métallurgique et de la déformation vraie à 20°C pour a) et 200°C pour b).

On observe tout d'abord que les deux états métallurgiques respectent relativement bien le critère de Considère aux deux températures où les courbes de traction ont été analysées.
Cependant, l'information la plus importante à retenir de la figure est **l'augmentation significative du coefficient d'écrouissage sur l'état vieilli** par rapport à l'état AR.

- A 20°C (Figure IV. 18(a)), cette augmentation est de l'ordre du double pour une déformation proche de 0,1.
- A 200°C (Figure IV. 18(b)), la comparaison est difficile, puisque la déformation vraie reste très faible pour l'état AR, mais on perçoit la même tendance.

La hausse du coefficient d'écrouissage sur les états vieillis permet de retarder la validation du critère de Considère. De ce fait, la localisation de la déformation intervient seulement après de plus grandes déformations, et c'est ce qui explique macroscopiquement la ductilité accrue sur ces états.

3.4. Conclusion concernant l'effet du vieillissement sur les propriétés en traction

Les différents résultats obtenus dans cette partie montrent que **le vieillissement entre 400°C et 600°C a un effet bénéfique sur les propriétés en traction du 15-15Ti AIM1** pour des essais menés jusqu'à 400°C. En effet, une augmentation simultanée de la limite élastique, de la résistance maximale, des allongements total et homogène et du taux d'écrouissage se produit après vieillissement.

D'une manière générale, les propriétés en traction connaissent la même évolution suivant la température de vieillissement :

($Rp_{0,2\%}$, R_m, A_t, A_g) vieilli à 500°C > ($Rp_{0,2\%}$, R_m, A_t, A_g) vieilli à 550°C > ($Rp_{0,2\%}$, R_m, A_t, A_g) vieilli à 600°C > ($Rp_{0,2\%}$, R_m, A_t, A_g) vieilli à 400°C.

Les meilleures propriétés en traction sont donc obtenues pour une température de vieillissement de 500°C et un temps de maintien de 1000 heures.

Le gain important d'allongement homogène pour un état vieilli constaté sur une large plage de température entre 20°C et 400°C constitue un résultat marquant qu'il conviendra d'analyser et tenter d'interpréter.

4. Synthèse de l'effet du vieillissement sur la microstructure et les propriétés en traction

Les résultats majeurs sur l'effet d'un vieillissement, hors flux, des gaines en acier 15-15Ti AIM1 entre 400°C et 600°C sont les suivants :

- Du point de vue de la microdureté, un léger durcissement d'environ 10 $HV_{0.1}$ se produit sur les états vieillis dès 100 h de maintien (temps le plus court étudié) entre 400°C et 600°C. L'intensité de durcissement est similaire pour toutes les températures de vieillissement.

- Du point de vue des contraintes résiduelles et plus spécifiquement celles d'ordre 3, le vieillissement n'a qu'une très faible influence sur leur relaxation après 1000 h, ce qui traduit une évolution limitée du réseau de dislocations. Ceci est également confirmé par des observations au MET.

- Du point de vue de la nano-précipitation, la température seuil d'apparition des nano-précipités de TiC a été établie pour la première fois à 500°C suite à des examens fins au MET. Ces précipités de quelques nanomètres sont observés pour des vieillissements proches de 5000 heures à 500°C et de 1000h à 550°C. Selon nos observations, la taille moyenne et la fraction volumique de ces nano-précipités sont croissantes quand la température de vieillissement augmente entre 500°C et 600°C. De plus, il a été mis en évidence que les TiC germaient tous de manière quasi-simultanée car leur densité évolue peu avec la température.

- Du point de vue des précipités de taille plus grossière, pour un vieillissement de 1000 h, des carbures de chrome ont été détectés par dissolution sélective suivie d'une analyse DRX à partir de 500°C. Lorsque la température de vieillissement croît de 500°C à 600°C, leur quantité augmente fortement et atteint environ 30% du volume total des précipités dans l'acier (600°C-1000 h).

- Du point de vue des propriétés en traction, on constate à la fois un gain en résistance mécanique (R_m) et en ductilité (Ag et At) des états vieillis pendant 1000 h par rapport à l'état brut (état écroui ~ 20%). Ce comportement est observable sur toute la plage de température testée en traction (entre 20°C et 400°C).

Les évolutions majeures de comportement en traction entre l'état écroui (état AR) et les états vieillis ne sont donc pas accompagnées d'indices notables d'une restauration mais sont en revanche associées à l'apparition de nano-précipités voire à leurs précurseurs (puisqu'un effet est détecté dès la température de vieillissement de 400°C). Compte-tenu de ce que nous savons désormais sur les mécanismes de déformation, ceci sera à considérer dans la discussion qui va être engagée au chapitre suivant.

Chapitre V. Discussion, conclusion et perspectives

Ce dernier chapitre dresse tout d'abord le bilan des résultats sur le comportement en traction des tubes de gaine en acier 15-15Ti suivant les états métallurgiques étudiés :

- Etat Hypertrempé,
- Etat écroui à 20%, correspondant à la spécification 15-15Ti AIM1,
- Etat écroui à 20% puis vieilli pendant 1000 h entre 400°C et 600°C.

A la suite, une discussion est conduite visant à expliquer les évolutions de comportement de chaque état en fonction de la température, en se basant sur les études microstructurales. Ce chapitre contient également la conclusion générale du manuscrit. Celle-ci propose des réponses aux objectifs fixés initialement. Enfin, il se termine par des perspectives et des recommandations qui pourraient être mises en œuvre après cette thèse.

1. Bilan du comportement en traction des tubes en 15-15Ti pour différents états métallurgiques

Dans ce bilan, seul le comportement en traction en conditions quasi-statiques ($\dot{\varepsilon} = 3.10^{-4}\, s^{-1}$), correspondant aux principales sollicitations des tubes en réacteur, est récapitulé. La Figure V. 1 présente, en appui, les évolutions des propriétés mécaniques (A_t, A_g, $Rp_{0,2\%}$, R_m) pour chaque état métallurgique à 20°C, 200°C et 400°C. Pour l'état écroui à 20% puis vieilli, les valeurs exposées sont les moyennes des propriétés obtenues à chaque température de vieillissement.
Concernant le comportement en traction obtenu pour des essais à vitesse rapide ($\dot{\varepsilon} = 10^{-1}\, s^{-1}$), les tendances sont similaires à celles observées en conditions quasi-statiques, elles ne sont donc pas rappelées ici.

1.1. Etat hypertrempé

L'état hypertrempé est un état parfaitement recristallisé, où les grains sont (quasi-)vierges de défauts cristallins induits par le traitement de recristallisation précédent. On relève par conséquent une très faible limite d'élasticité ($Rp_{0,2\%}$ ≈ 220 MPa à 20°C) et des allongements homogène et total conséquents (A_t ≈ *55%* à 20°C). A toutes les températures d'essai, les courbes conventionnelles s'infléchissent à partir de la limité d'élasticité puis prennent une forme en arc de cercle dans le domaine plastique, avec au début une pente très raide qui devient nulle en s'approchant de R_m. Ceci est le signe d'un écrouissage très important de l'acier lors de la déformation.

Concernant les évolutions des propriétés, la limite d'élasticité décroit lorsque la température augmente. La résistance maximale suit la même tendance, avec néanmoins une plage de température de 200°C à 500°C où les valeurs restent quasi-constantes. Au sujet des allongements, une baisse notable intervient bien sur cet état lorsque la température augmente, mais de manière limitée : A_g diminue seulement de 45% à 31% entre 20°C et 200°C. Cette baisse est suivie par une stabilisation des valeurs entre 300°C et 500°C, puis par une remontée qui devient perceptible à partir de 600°C.

Enfin, l'entrée dans le domaine de vieillissement dynamique se fait dès 300°C pour ce type d'état métallurgique, ce qui se traduit par une sensibilité nulle à la vitesse de déformation.

La spécification 15-15Ti AIM1 impose aux industriels en charge de la fabrication des tubes de les tester en traction à l'état hypertrempé à 20°C avec des exigences sur les valeurs de R_m, $Rp_{0,2}$ et A_t. Nos résultats à 20°C sont conformes à ce qui est attendu, et nous constatons une évolution des propriétés en température que l'on peut qualifier de cohérente avec ce qui est reporté dans la littérature sur des nuances proches comme celles des aciers 304 ou 316 (Byun et al., 2004).

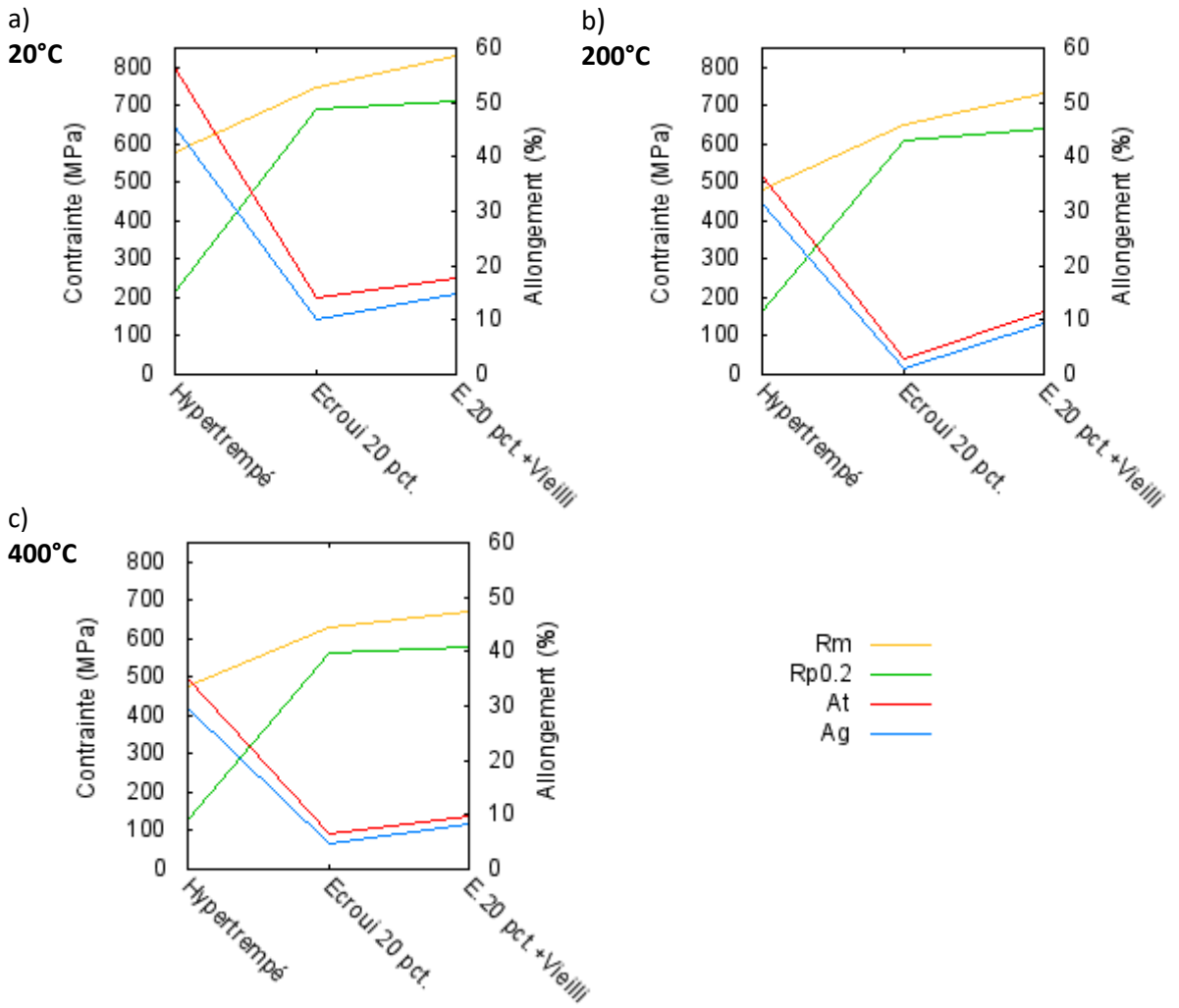


Figure V. 1 : Evolutions des propriétés mécaniques (A_t, A_g, $Rp_{0,2\%}$, R_m) de l'état hypertrempé, écroui à 20% et écroui à 20% suivi d'un vieillissement (E.20 pct + Vieilli) pour a) à 20°C ; b) à 200°C et c) à 400°C.

1.2. Etat écroui

Au contraire de l'état hypertrempé, l'état écroui 20% présente une limite d'élasticité élevée ($Rp_{0,2\%}$ ≈ 700 MPa à 20°C) et des allongements moyens à faibles (A_t ≈ *14%* à 20°C). L'allure des courbes conventionnelles se distingue par un plateau quasi-horizontal lors du régime de plasticité, synonyme d'un écrouissage très faible et d'une propension à une localisation précoce de la déformation.

C'est sur cet état métallurgique que la singularité de comportement est la plus prononcée : une nette baisse des allongements se produit entre 20°C et 200°C où A_g est divisé par un facteur 6. Il n'excède pas alors 1,5% à 200°C. A partir de 250°C, les valeurs connaissent, à l'inverse, une hausse régulière jusqu'à 600°C où A_g est mesuré à environ 6%. S'agissant de la limite d'élasticité et de la résistance maximale, elles diminuent de manière progressive, comme attendu, sur toute la plage de température étudiée.

Par rapport à l'état hypertrempé, l'entrée dans le domaine de vieillissement dynamique ne se fait qu'à partir de 400°C sur cet état et se manifeste par la présence d'oscillations sur la courbe de traction.

Ces résultats sont en bonne cohérence avec les connaissances déjà acquises, notamment grâce aux études de (Courtin, 2015). On peut souligner toutefois que les valeurs d'allongements que nous

mesurons sont plus faibles que celles obtenues par le fabricant, ce qui peut être lié à la géométrie d'éprouvette utilisée (éprouvette bi-jambe plutôt que tronçon de tube). De plus, nos travaux révèlent que la singularité de comportement est indépendante du lot matière de 15-15Ti AIM1 employé et permettent de préciser le domaine d'allongement minimal en température par l'ajout d'essais à des températures resserrées autour de 200°C.

1.3. Etat écroui puis vieilli

Après vieillissement pendant une durée de 1000 h entre 400°C et 600°C, on constate systématiquement une amélioration significative des propriétés mécaniques du 15-15Ti AIM1 : une augmentation simultanée de la limite d'élasticité, de la résistance maximale et des allongements homogène et total apparait. Les meilleures propriétés sont obtenues après un vieillissement de 1000 h à 500°C. Par exemple, l'allongement homogène dans ces conditions est multiplié par un facteur 12 pour la température d'essai de 200°C.
Sur l'ensemble des états vieillis, la singularité de comportement est toujours présente, mais est nettement moins marquée.
Enfin, l'amélioration des propriétés mécaniques est associée à un important regain de durcissement. Il se traduit par une nette évolution des courbes conventionnelles dans le domaine plastique où le coefficient d'écrouissage (n) augmente sensiblement, notamment aux températures de 20°C et 200°C (cf. Figure IV. 18).

Généralement, le vieillissement des aciers après écrouissage s'accompagne d'un durcissement et d'une diminution de la ductilité. Dans le cas de l'acier 15-15Ti AIM1 vieilli, on observe effectivement un faible durcissement associé à un gain en résistance maximale à la traction (R_m) mais également une augmentation sensible de la ductilité, en termes d'allongement homogène et d'allongement total. Ce gain important d'allongement homogène pour un état vieilli constaté sur une large plage de température entre 20°C et 400°C constitue un résultat marquant de notre étude.

La partie suivante présente une discussion dont l'objectif est de mieux comprendre l'origine des évolutions de comportement énoncées ci-dessus. Elle se focalise principalement sur la plage de température où apparaît la singularité en allongement, c'est-à-dire entre 20°C et 200°C. Elle donne par ailleurs des éléments sur l'origine des tendances observées au-delà de 200°C. Enfin, elle tente d'élucider la raison de l'amélioration des propriétés mécaniques après vieillissement.

2. Discussion

Dans cette discussion, nous nous proposons tout d'abord de synthétiser et de discuter des résultats concernant la compréhension des mécanismes de déformation sur le 15-15Ti hypertrempé. Dans un second temps, nous discutons de la transposabilité de ces résultats à l'état de référence (écroui à 20% ou nuance 15-15Ti AIM1). La dernière partie se focalise sur l'explication de l'évolution du comportement après vieillissement.

2.1. Compréhension des mécanismes de déformation de l'état hypertrempé

Nous nous focalisons dans cette partie des phénomènes intervenant entre 20°C et 200°C où se manifeste la singularité de comportement. Au cours de l'étude, il a été montré que les mécanismes de déformation du 15-15Ti hypertrempé étaient dépendants simultanément de la température et de l'orientation des grains. Ces deux dépendances sont discutées de manière distincte l'une après l'autre dans les paragraphes suivants.

2.1.1. Dépendance des mécanismes de déformation en température

Etude de la variation de l'EDE

Dans la partie bibliographique, l'EDE a été identifiée comme un paramètre physico-chimique propre au matériau, dont le rôle pourrait être prépondérant dans la mise en place des mécanismes de déformation. Les résultats des mesures de variation de l'EDE en fonction de la température du 15-15Ti hypertrempé (cf. Chapitre II) sont donc ici confrontés à la littérature. L'EDE étant fortement dépendante de la composition chimique de l'alliage et notamment de la teneur en éléments majoritaires comme le chrome ou le nickel (Bampton et al., 1978), les valeurs d'EDE du 15-15Ti hypertrempé sont comparées préférentiellement à celles obtenues sur des aciers proches en composition.

A 20°C, comme il existe des données sur les aciers austénitiques inoxydables contenant en poids 15% de chrome et 15% de nickel, elles sont privilégiées pour la comparaison des résultats. Nous pouvons donc considérer qu'il existe un point de référence à 20°C.
A plus haute température, comme aucune donnée n'est disponible sur ce type d'acier, les résultats sont confrontés à ceux d'autres systèmes Fe-Ni-Cr. Dans ce cas, on s'intéressera principalement aux tendances.
Enfin, il est indispensable d'ajouter que la méthode des nœuds dissociés, ayant servi à mesurer l'EDE dans notre étude, est fiable jusqu'à 325°C selon (Latanision, Ruff, 1971). En effet, un changement réversible de la taille des nœuds est observé jusqu'à cette température pour des aciers de type 11Ni-18Cr et 16Ni-19Cr. Au-delà, des effets de vieillissement, comme la formation d'atmosphères de Cottrell, sont à prendre en considération : la taille des nœuds ne dépend plus uniquement de l'EDE du matériau, mais également de la contrainte exercée par les solutés mobiles sur les dislocations partielles bordant les nœuds. Les mesures effectuées au-delà de 300°C sont donc à considérer avec précaution.

Fort de ces points de considération, il est donc possible de comparer nos résultats à ceux disponibles dans la littérature.

Tout d'abord, à 20°C, les différentes valeurs d'EDE des aciers contenant en poids 15% de chrome et 15% de nickel, principalement recensées par (Meric de Bellefon et al., 2017), sont incluses dans un intervalle entre 22 et 30 mJ/m². Par ailleurs, l'EDE du DIN 1.4970 (acier similaire au 15-15Ti

hypertrempé, mais sans phosphore) est reportée à 30 mJ/m². La valeur que nous obtenons à 20°C de 27 ± 2 mJ/m² pour le 15-15Ti hypertrempé apparait donc parfaitement cohérente avec la littérature.

Concernant les résultats en température, nous avons mesuré l'EDE jusqu'à 500°C. Cependant, à cause des effets de vieillissement, nous pouvons considérer que seules nos valeurs entre 20°C et 300°C sont suffisamment fiables pour être discutées. Par ailleurs, ce sont celles qui présentent les incertitudes de mesures les plus faibles.
Dans cet intervalle de température, une évolution quasi-linéaire de l'EDE du 15-15Ti hypertrempé a été constatée et une régression des valeurs donne une pente, dγ/dT, de 0,09 ± 0,02 mJ/m²/°C. Cette tendance est en accord avec d'autres proposées dans la littérature :

- (Lecroisey, Pineau, 1972) trouve un coefficient directeur de 0,08 mJ/m²/°C à température ambiante pour des aciers ayant une gamme de composition chimique en poids entre 7% et 18% de chrome et 11% et 20% de nickel.
- (Abrassart, 1973) calcule une pente de 0,1 mJ/m²/°C pour un acier 18Cr-7Ni-0.18C dans la gamme de température entre 20°C et 330°C.

A propos des mesures au-delà de 300°C, nous pouvons ajouter à titre de simple commentaire que la tendance à la stabilisation des valeurs d'EDE à environ 60 mJ/m² pourrait effectivement être le signe de l'influence du vieillissement, qui tend à faire saturer la largeur de dissociation.

En conclusion, on peut affirmer que nos mesures d'EDE entre 20°C et 300°C sont en bon accord avec la littérature existante sur des nuances d'acier proches en composition.

<u>Confrontation aux modèles de déformation existants</u>

En préambule, il convient d'indiquer que nous considérons que les seuls mécanismes de déformation expliquant la singularité de comportement sont ceux dont la manifestation, en fonction de la température, est décrite au cours des Chapitre II et III de ce manuscrit, à savoir :

- Une coexistence du maclage et du glissement des dislocations parfaites à 20°C,
- Une prédominance du glissement des dislocations parfaites à 200°C.

En outre, nous précisons que nous avons détecté l'activation du glissement dévié à 200°C par l'observation en traction in-situ au MET d'évènements de glissement dévié par les dislocations (cf. Figure II.6) et par l'organisation du réseau de dislocations en cellules après traction à cette température (cf. Figure III.21).

On exclura une intervention du vieillissement dynamique, bien qu'il soit connu que celui-ci peut entrainer une baisse des allongements homogène et total (Bouchaud et al., 1991). En effet, l'entrée dans le domaine de vieillissement dynamique n'est détectée qu'à partir de 300°C sur les aciers de type 15-15Ti (S Venkadesan, Phaniraj, et al., 1992 ; Samuel et al., 2006). Donc, il nous parait peu vraisemblable que ce phénomène soit à l'origine de la baisse des allongements entre 20°C et 200°C. Ceci est confirmé par (Hong, 2004), qui avance que le vieillissement dynamique joue bien sur la ductilité de l'acier 316L, mais seulement à partir de 250°C.

Les modèles de déformation des aciers austénitiques existants vont être maintenant discutés avec une attention particulière vis-à-vis des circonstances d'activation du maclage, déjà évoquées au Chapitre I § 1.4.2. Pour rappel, celles-ci sont susceptibles de dépendre des paramètres suivants :

a) L'énergie de Défaut d'Empilement (EDE),
b) La contrainte appliquée,
c) Couplage des deux paramètres précédents.

A 20°C, la présence du maclage mécanique s'explique aisément par une EDE faible de 27 mJ/m² ; à 200°C, la disparition du maclage mécanique s'accompagne d'une élévation de l'EDE à 46 mJ/m². Ce résultat est en accord avec l'apparition d'un seuil en EDE (correspondant au paramètre a)), qui marquerait une transition entre les mécanismes de déformation. Ce seuil semble se situer entre 27 et 46 mJ/m², ce qui est parfaitement compatible avec les valeurs suggérées dans la littérature aux alentours de 35-40 mJ/m² (S Allain et al., 2004 ; Lee et al., 2010 ; Dumay et al., 2008 ; Sato et al., 1989 ; Frommeyer et al., 2003 ; Kim et al., 2011).

A propos de l'approche purement en contrainte (paramètre b)), la résistance maximale en traction du 15-15 Ti hypertrempé, exprimée en contrainte rationnelle, est de 870 MPa à 20°C et de 650 MPa à 200°C. Ainsi, si l'on souhaite définir une contrainte critique de maclage (σ_T) pour le 15-15Ti hypertrempé, elle doit se situer entre 650 et 870 MPa. Il est à noter que cette fourchette est plus élevée que la valeur seuil de 600 MPa proposée par (Byun et al., 2003) sur un acier 316LN. Cette approche ne peut donc être considérée valide que si l'on fait l'hypothèse d'une propension à macler plus faible du 15-15Ti par rapport à celle du 316LN, dont l'origine reste à déterminer.

Enfin, le dernier modèle s'appuie sur un couplage des approches en EDE et en contrainte (paramètre c)) : il existerait une relation de proportionnalité, qui relie la valeur d'EDE à σ_T (cf. équation (I. 14)). Avec une EDE de 27 mJ/m² à 20°C, si on applique le coefficient proposé par (Byun, 2003) et égal à $\frac{6,14}{b_p}$, alors σ_T serait de 1135 MPa. Cette valeur est bien au-dessus du R_m du 15-15Ti hypertrempé, même en rationnel. Par conséquent, la présente relation ne fonctionne pas pour notre nuance d'acier et ne permet pas de justifier l'activation du maclage à 20°C. Deux raisons peuvent expliquer la faillite du modèle couplé :

- Le coefficient de proportionnalité proposé par (Byun, 2003), basé sur l'application de la formule de Peach et Koehler sur les dislocations partielles dans l'acier 316, est trop élevé. A ce sujet, (De Cooman et al., 2018 ; Park et al., 2010) notent que l'équation (I. 14) conduit effectivement à une surestimation de σ_T. Par ailleurs, (Talonen, Hänninen, 2007) suggèrent que l'estimation de l'EDE à 14,2 mJ/m² faite par (Byun, 2003) pour l'acier 316 est erronée. Selon ces auteurs, elle est trop faible et se situe plutôt dans une gamme supérieure à 20 mJ/m². Il conviendrait donc de revoir la relation qui relie l'EDE à la contrainte critique de maclage.
- Il n'existe pas de relation simple entre l'EDE et la contrainte critique de maclage.

On vient de faire le constat que les modèles pour prédire l'activation du maclage en fonction d'une contrainte critique (paramètres b) et c)), tels qu'utilisés par certains auteurs pour des aciers 316 hypertrempés, ne sont pas directement applicable au 15-15Ti hypertrempé. De plus, la question de la pertinence de l'utilisation d'une contrainte critique mérite d'être soulevée : cette contrainte critique, définie macroscopiquement selon une direction donnée pour un essai de traction uni-axial, est en effet susceptible de différer fortement de la contrainte locale tridimensionnelle, vue par les grains, notamment à cause de leurs orientations spécifiques et des interactions avec leurs voisins. De ce fait, la contrainte locale est très souvent largement supérieure à la contrainte macroscopique. En outre, dans un matériau polycristallin, les contraintes locales demeurent très difficiles à déterminer, rendant peu pertinentes les approches en contrainte.

Au final, l'approche (a), reposant sur un seuil exprimé uniquement en terme d'EDE, nous semble la plus adéquate pour prédire l'activation du maclage dans le 15-15Ti hypertrempé. Or, il a déjà été précisé qu'une faible EDE est une condition nécessaire, mais non suffisante pour activer le maclage (Allain, 2004). Par conséquent, cette approche doit être complétée en prenant en compte des éléments supplémentaires.

Proposition d'une compétition entre les mécanismes de maclage et de glissement dévié

L'approche en EDE doit être enrichie en considérant l'énergie totale de tout le système durant la déformation : lors d'un essai de traction, un matériau emmagasine principalement de l'énergie de déformation élastique provenant de l'étirement des liaisons atomiques, dû à la déformation appliquée. Pour une meilleure stabilité, le matériau doit minimiser cette énergie, et il optera toujours pour l'option la plus favorable énergétiquement.
Dans les métaux, le glissement des dislocations parfaites est souvent le mécanisme le plus efficace pour y parvenir, car il permet un réarrangement local de la position des atomes à faible coût. Cependant, il est susceptible d'être entravé par la présence d'autres dislocations, atomes en soluté, précipités, joint de grains, macles et défauts d'empilement. Quand cela se produit, il requiert une plus grande quantité d'énergie pour opérer et il n'est plus nécessairement le mécanisme le plus favorable pour libérer l'énergie de déformation élastique.

Les évènements se produisant lors de la séquence de déformation in-situ présentée en Figure II.5 (Chapitre II, § 3.2.2) peuvent être analysés en suivant cette approche. La Figure II.5 montre tout d'abord une dislocation parfaite qui glisse librement dans un grain jusqu'à ce qu'elle rencontre un défaut d'empilement, qui bloque son mouvement. A ce stade, la dislocation dispose de plusieurs options : elle peut rester immobile, dévier dans un autre plan de glissement ou se dissocier en deux dislocations partielles.
A 20°C, le glissement dévié est trop couteux énergétiquement, donc ce n'est pas une possibilité envisageable pour contourner l'obstacle. L'éprouvette continuant à être déformée, l'énergie de déformation élastique augmente jusqu'à ce que, localement, elle dépasse l'EDE. Il devient alors énergétiquement plus favorable pour la dislocation de se dissocier, le glissement de la dislocation partielle de tête entrainant la formation d'un défaut d'empilement sur la Figure II.5(b).

Dans l'acier 15-15Ti hypertrempé, l'EDE est de seulement 27 mJ/m² à 20°C ; ainsi l'énergie de déformation élastique peut atteindre aisément cette valeur et rendre favorable la nucléation des dislocations partielles dont le glissement génère des défauts d'empilements et, par accumulation, des macles.
A contrario, à la température de 200°C, l'EDE s'élève à 46 mJ/m² ; ceci a pour effet d'augmenter fortement le niveau d'énergie de déformation élastique minimal indispensable à la nucléation des dislocations partielles. En parallèle, l'énergie requise aux dislocations parfaites pour dévier diminue avec la température. Le glissement dévié devient donc le mécanisme de déformation le plus favorable énergiquement, tandis que le maclage l'est de moins en moins.

En conclusion, dès que le glissement libre d'une majorité des dislocations parfaites est entravé, des mécanismes alternatifs de déformation de l'acier 15-15Ti hypertrempé entrent en jeu : à 20°C, le maclage est le plus favorable, remplacé à 200°C par le glissement dévié.

Conséquence sur les propriétés macroscopiques

Au cours de ce manuscrit, nous avons souligné la coexistence du glissement de dislocations parfaites et du maclage mécanique. Dès lors, ces deux mécanismes doivent interagir entre eux et il est possible de citer à titre d'exemple la présence d'enchevêtrement de dislocations contre les joints de macles, comme observé en Figure III.21(b) (Chapitre III, § 2.2.2.3). Les macles sont de ce fait des obstacles bloquant le déplacement des dislocations au même titre que les joints de grain et viennent donc contribuer au durcissement de la microstructure. Par conséquent, le phénomène d'effet Hall-Petch dynamique, évoqué au Chapitre I § 1.4.3, se produit sur le 15-15Ti hypertrempé et permet probablement d'expliquer la ductilité accrue à 20°C.

A 200°C, le maclage mécanique disparait et la déformation est alors uniquement assurée par le glissement des dislocations parfaites. Par ailleurs, le glissement dévié devient énergétiquement favorable à cette température, ce qui permet aux dislocations de contourner les obstacles de manière plus aisée. De plus, il facilite la recombinaison et le réarrangement des dislocations en cellules comme celles vues en Figure III.21(c) et (d) (Chapitre III, § 2.2.2.3). Tous ces éléments combinés limitent donc fortement le coefficient d'écrouissage de l'acier, ce qui favorise une localisation rapide de la déformation et l'apparition d'une striction conduisant à une rupture prématurée.

2.1.2. Dépendance des mécanismes de déformation vis-à-vis de l'orientation cristallographique à 20°C

En plus d'une dépendance en température, le maclage présente une dépendance vis-à-vis de l'orientation cristallographique (Cf. Chapitre III § 2.2.1.2). En effet, lors d'un essai de traction uni-axial à 20°C sur le 15-15Ti hypertrempé, nous avons observé que :

- Les grains, dénommés de type I et dont la direction <001> est parallèle à celle en traction, ne sont pas sujet au maclage et se déforment uniquement par le biais des dislocations parfaites.
- Les grains, dénommés de type II et dont la direction <111> est parallèle à celle traction, se déforment à la fois par glissement des dislocations parfaites et par maclage.

Cette dépendance est très largement documentée dans la littérature et s'explique généralement par les valeurs du facteur de Schmid (Oh et al., 2013 ; Lee, 2012 ; Yang et al., 2006 ; Beladi et al., 2011).

Le Tableau V. 1 rassemble les valeurs du facteur de Schmid maximum des dislocations parfaites et partielles glissant dans le plan de glissement primaire, selon le type de grains.
On remarque principalement que, pour les grains de type I, le facteur de Schmid maximal des dislocations partielles de tête est à la fois plus petit que le facteur de Schmid maximal des dislocations parfaites et des dislocations partielles de queue. Pour les grains de type II, c'est le contraire : le facteur de Schmid des dislocations partielles de tête est le plus grand.

Type de grains	**Facteur de Schmid maximum**		
	Dislocations parfaites	**Dislocations partielles**	
		de tête	**de queue**
I	0,41	0,23	0,47
II	0,28	0,31	0,16

Tableau V. 1 : Valeurs des facteurs de Schmid maximums des dislocations parfaites et partielles en fonction du type de grains pour un essai de traction uni-axial.

Ce constat mène à des interprétations différentes pour expliquer la dépendance en orientation du maclage :

- (Karaman et al., 1998 ; 2000 ; Kuprekova et al., 2008) proposent une EDE effective, qui serait dépendante de l'orientation des grains. Les auteurs prennent en compte dans le calcul de cette EDE effective la différence entre les facteurs de Schmid maximum des dislocations partielles de queue et de tête. Si la différence est :
    - Positive (cas des grains de type I), alors l'EDE du grain est augmentée,
    - Négative (cas des grains de type II), alors l'EDE du grain est abaissée.

  L'EDE effective des grains de type I étant plus importante, c'est la raison pour laquelle ils ne maclent pas.

Cependant cette hypothèse prête à controverse étant donné que l'EDE se définit comme une grandeur physico-chimique intrinsèque, principalement liée à la composition de la phase, de ce fait elle devrait donc être indépendante de l'orientation des grains

- D'après d'autres auteurs (Copley, Kear, 1968 ; Goodchild et al., 1970), la formation des défauts d'empilement s'effectue de manière totalement indépendante de l'orientation des grains. Cependant, leur croissance est liée aux facteurs de Schmid des dislocations partielles les délimitant.
  Dans le cas des grains de type II, comme le facteur maximal des dislocations partielles de tête est environ deux fois plus grand que celui des dislocations partielles de queue, alors le glissement de la dislocation partielle de tête est favorisé dans les grains. Par conséquent, la taille des défauts d'empilement ne cesse de croitre et, par multiplication des dislocations partielles, aboutit à la formation de macles mécaniques traversant entièrement les grains.
  Dans le cas des grains de type I, la situation inverse se produit : comme le glissement de la dislocation partielle de queue est plus favorable, la tendance est à la fermeture du défaut d'empilement, ce qui ne permet pas le maclage.

Cette hypothèse semble bien plus probable que la première. Elle peut même être généralisée au facteur de Schmid des dislocations parfaites en tenant compte du principe de minimisation de l'énergie totale du système, que nous avons suggéré au paragraphe précédent. En effet, au regard des grains de type I, comme le facteur de Schmid maximal des dislocations parfaites est beaucoup plus important que celui des dislocations partielles de tête, le glissement des dislocations parfaites reste le mécanisme le plus favorable énergétiquement pour libérer l'énergie de déformation élastique, même s'il est entravé par des obstacles.
A l'opposé, dans les grains de type II, comme le facteur de Schmid des dislocations partielles de tête est le plus grand, c'est alors le glissement des dislocations partielles de tête, qui est le mécanisme le plus favorable énergétiquement. Cependant, ceci est vérifié uniquement si la création d'un défaut d'empilement est moins couteuse que le glissement des dislocations parfaites.

2.2. Compréhension des mécanismes de déformation du 15-15Ti AIM1

Dans notre étude, peu de caractérisations ont été effectuées sur le 15-15Ti à l'état écroui, i.e. le 15-15Ti AIM1, à cause de la difficulté à étudier une microstructure très déformée et contenant une forte densité de défauts.

C'est la raison pour laquelle la plupart des résultats sur les mécanismes de déformation sont issus d'analyses menées sur le 15-15Ti à l'état hypertrempé. Cependant, il reste à savoir dans quelle mesure ces résultats sont transposables à l'état écroui 20%.

2.2.1. Transposition des mécanismes de déformation à l'état écroui 20%

Aspects macroscopiques

Dans la mesure où le procédé d'étirage consiste en la traction de tubes au travers d'une filière, des points communs peuvent être établis entre la traction uni-axiale et l'étirage. Par exemple, en appliquant la loi de la conservation du volume de matière lors de la déformation plastique, un taux d'écrouissage par étirage de 20% entraine un allongement des tubes de 28,5%. Pour confirmer cela au niveau macroscopique, nous avons procédé à une analyse des courbes de traction à 20°C.

La Figure V. 2 présente la comparaison des courbes de contrainte-déformation rationnelles à 20°C des états hypertrempé et écroui issues des essais de traction du Chapitre III. Si l'on translate horizontalement la courbe de l'état écroui jusqu'à 0,25 d'allongement rationnel, on remarque que les deux courbes se superposent parfaitement l'une sur l'autre. A ce stade, précisons qu'une déformation rationnelle de 0,25 correspond effectivement à une déformation nominale de 28,5%. Cela suggère que :

- Un écrouissage en étirage de 20% semble être équivalent du point de vue de la courbe mécanique macroscopique à une déformation en traction uni-axiale de 0,25 en rationnel ou 28,5% en nominal ;
- Les coefficients d'écrouissage sont les mêmes entre un essai de traction et une passe d'étirage.

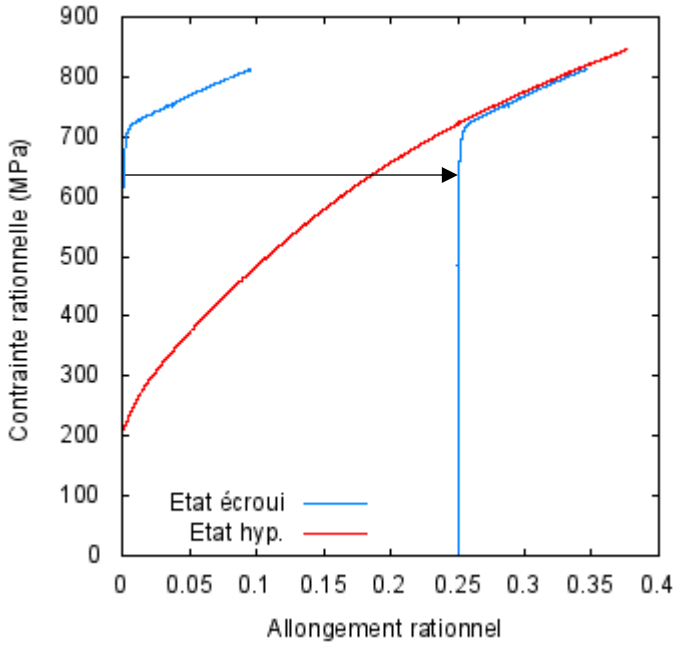


Figure V. 2 : Comparaison des courbes rationnelles à 20°C des états hypertrempé et écroui 20%.

Il existe donc de fortes similarités de comportement en traction pour l'état écroui et hypertrempé. Cependant, il s'agit uniquement du point de vue macroscopique et une étude plus approfondie à l'échelle microscopique s'avère nécessaire pour corroborer cela.

Aspects microscopiques

A l'échelle microscopique, l'EDE a été identifiée au paragraphe 2.1.1 comme le paramètre clé, qui contrôle les mécanismes de déformation du 15-15Ti hypertrempé entre 20°C et 200°C. Il est important de s'assurer que cette grandeur physico-chimique est bien indépendante du taux d'écrouissage, afin de transposer à l'état écroui les conclusions avancées pour l'état hypertrempé.

Au premier abord, il n'est pas à exclure que l'EDE puisse être influencée par l'environnement microstructural local. De nombreux auteurs (Curtze, Kuokkala, 2010 ; Ferreira, Müllner, 1998) font précisément la différence entre une EDE idéale, qui est uniquement liée à la composition chimique de l'acier et une EDE réelle, qui est en plus dépendante de l'énergie de déformation élastique emmagasinée. En effet, lorsque la densité de défauts augmente fortement dans la microstructure, la possibilité des défauts d'empilement de se former et de s'étendre dans les grains parait plus difficile,

ce qui aurait tendance à provoquer une hausse de l'EDE réelle du matériau. Cependant, (Pierce et al., 2014) a réussi à quantifier la différence entre l'EDE réelle et idéale et elle n'excède pas 1 à 4 mJ/m². Considérant une valeur d'EDE de 27 mJ/m² pour le 15-15Ti à 20°C, une variation maximale de ± 4 mJ/m² ne peut pas entrainer de modifications majeures des mécanismes de déformation. Ceci est confirmé par les caractérisations EBSD post-mortem des éprouvettes bi-jambes (Cf. Chapitre III - Figure III. 11) : si l'EDE du 15-15Ti AIM1 à l'état à réception était bien plus élevée que la valeur citée précédemment, alors le maclage deviendrait beaucoup plus rare à 20°C, or ce n'est pas ce qui est observé.

Par ailleurs, une hausse de l'EDE corrélée avec le taux de déformation est généralement en lien avec une surestimation de la valeur par la technique de mesure employée. Par exemple, la méthode dite des « dislocations isolées », qui consiste à mesurer la largeur de dissociation naturelle des dislocations, est fortement influencée par les contraintes subies par les dislocations (Lu et al., 2016). Concernant la technique de la mesure de la taille des nœuds de dislocations que nous avons utilisée, elle est au contraire faiblement sujette à l'environnement microstructural local, car les nœuds de dislocations correspondent à une structure très stable du réseau de dislocations (Whelan, 1959).
Enfin, d'une manière plus générale, nous avons déjà précisé au § 2.1.2 que l'EDE était une grandeur intrinsèque au matériau, il est donc peu probable qu'elle soit dépendante du taux de déformation de l'acier.

2.2.2. Limite de la transposition des résultats

Aspects macroscopiques

De la même manière que dans le paragraphe précédent, nous allons voir maintenant la limite de la transposition des résultats à l'échelle macroscopique en utilisant les courbes de traction. Nous nous intéressons dans ce cas à la température de 200°C.

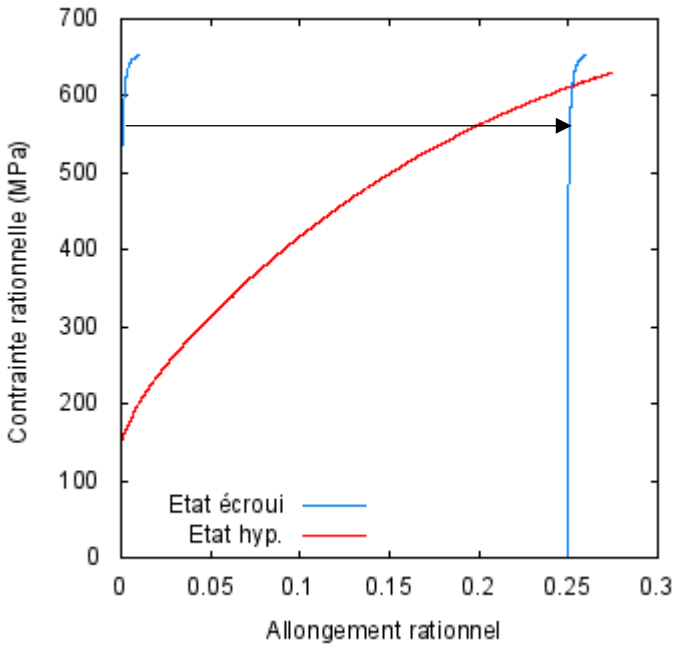


Figure V. 3 : Comparaison des courbes rationnelles à 200°C des états hypertrempé et écroui 20%

La Figure V. 3 présente la comparaison des courbes de contrainte-déformation rationnelles à 200°C des états hypertrempé et écroui issues des essais de traction du Chapitre III. Si l'on translate horizontalement pareillement à la Figure V. 2 la courbe de l'état écroui jusqu'à 0,25 d'allongement rationnel, on observe alors que les deux courbes sont très différentes et ne se superposent plus du tout. Cette différence de comportement s'explique trivialement par le fait que l'état écroui est en réalité déformé au préalable par étirage à 20°C.

Pour évaluer l'effet d'un étirage sur le comportement mécanique, nous avons tenté d'en reproduire l'effet par un essai de traction uni-axial « composite ». La procédure expérimentale est la même que celle décrite au Chapitre III § 1.2.1 à l'exception que la machine de traction est programmée pour arrêter le déplacement du vérin après une certaine déformation (ici en l'occurrence égale à 0,25 en rationnel). Les résultats de cette expérience sont présentés en Figure V. 4.

On observe sur la figure :

- **En pointillés bleus**, la courbe rationnelle de traction (issue du Chapitre III) jusqu'à rupture de l'état hypertrempé déformé à 20°C à $\dot{\varepsilon} = 10^{-1}\, s^{-1}$ (vitesse représentative de la déformation des tubes sur le banc d'étirage) ;
- **En pointillés rouges**, la courbe rationnelle de traction (issue du Chapitre III) jusqu'à rupture de l'état hypertrempé déformé à 200°C à $\dot{\varepsilon} = 3.10^{-4}\, s^{-1}$ (conditions quasi-statiques).

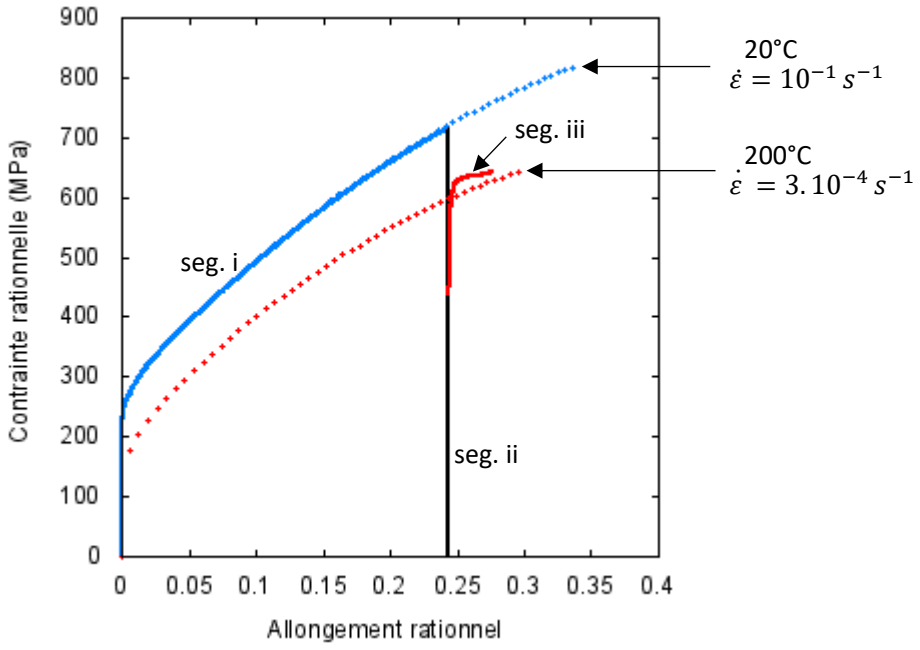


Figure V. 4 : Courbe de traction rationnelle de l'essai interrompu jusqu'à 0,25 d'allongement à 20°C à $\dot{\varepsilon} = 10^{-1}\, s^{-1}$, puis prolongé jusqu'à rupture à 200°C à $\dot{\varepsilon} = 3.10^{-4}\, s^{-1}$, comparée à celles de l'état hypertrempé déformé à 20°C à $\dot{\varepsilon} = 10^{-1}\, s^{-1}$ et à 200°C à $\dot{\varepsilon} = 3.10^{-4}\, s^{-1}$.

Il est également tracée sur la figure la courbe de l'essai « composite », apparaissant comme une courbe continue découpée en 3 segments :

- **Le premier segment, i** (ligne bleue continue), représente la reproduction de l'étirage. Il s'agit d'un essai effectué à $\dot{\varepsilon} = 10^{-1}\, s^{-1}$ jusqu'à 0,25 d'allongement rationnel à 20°C sur une éprouvette bi-jambe hypertrempée ;

- **Le deuxième segment, ii** (ligne noire continue), représente une phase de décharge de l'éprouvette et de chauffe du four de 20 à 200°C ;
- **Le troisième segment, iii** (ligne rouge continue), représente la reprise de l'essai à 200°C jusqu'à rupture à la vitesse $\dot{\varepsilon} = 3.10^{-4}\, s^{-1}$.

Après interruption de l'essai à $\dot{\varepsilon} = 10^{-1}\, s^{-1}$ à 20°C (segment i), décharge puis chauffe à 200°C (segment ii), on constate que la courbe de traction du prolongement de l'essai à $\dot{\varepsilon} = 3.10^{-4}\, s^{-1}$ à 200°C (segment iii) se rapproche et tend vers celle de l'état hypertempé testé à $\dot{\varepsilon} = 3.10^{-4}\, s^{-1}$ à 200°C (courbe en pointillés rouge).
Autrement dit, cela signifie que l'acier peut continuer à se déformer à 200°C en adoptant les mécanismes d'écrouissage actifs à cette température malgré la pré-déformation à 20°C.

D'une manière plus précise, il est maintenant possible de comparer directement les courbes des essais de traction à 200°C suivantes :

- L'état écroui par étirage (courbe bleue sur la Figure V. 3),
- L'état pré-déformé en traction uni-axiale jusqu'à 0,25 d'allongement rationnel à 20°C (seg. iii sur la Figure V. 4).

Cette comparaison est effectuée sur la Figure V. 5. On observe alors que la courbe de l'état pré-déformé en traction se situe au-dessous de la courbe de l'état écroui (par étirage) en terme de contrainte. Cela signifie que la pré-déformation à 20°C en traction uni-axiale ne permet pas de générer parfaitement le niveau d'écrouissage introduit par un étirage. De plus, l'allongement homogène de l'état pré-déformé est plus de trois fois supérieur à celui de l'état écroui (0,032 contre 0,009).

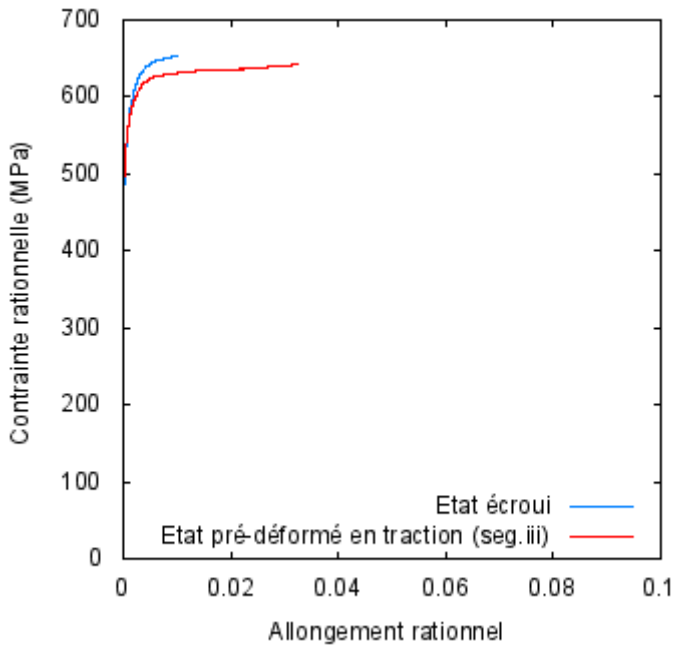


Figure V. 5 : Comparaison des courbes des essais de traction à 200°C de l'état écroui et pré-déformé en traction ($\dot{\varepsilon} = 3.10^{-4}\, s^{-1}$).

Par conséquent, la traction uni-axiale est insuffisante pour reproduire un étirage et il existe donc une spécificité propre à ce mode de déformation, qui justifie le comportement à 200°C. Elle va être discutée au prochain paragraphe.

Aspects microscopiques

La différence majeure entre une passe d'étirage et un essai de traction concerne la nature de la direction des contraintes : lors d'un essai de traction, la contrainte est appliquée de manière uni-axiale en tension sur l'éprouvette. Dans le procédé d'étirage, la composante en tension est toujours présente dans la direction axiale des tubes, mais il faut également ajouter une composante de compression dans la direction radiale liée à la pression de contact au niveau de la filière. Nous pouvons alors nous poser la question de quel est l'effet d'une telle composante sur la microstructure du 15-15Ti.

Rappelons tout d'abord que la direction de la contrainte vient directement influer sur les systèmes de glissement et de maclage qui s'activent durant la déformation. Or, l'activation de ces derniers est régie par le facteur de Schmid. Le Tableau V. 2 rassemble donc les valeurs des facteurs de Schmid maximum des dislocations parfaites et partielles selon le type de grains pour une sollicitation en compression.

Par rapport au Tableau V. 1, les facteurs de Schmid des dislocations parfaites sont inchangés mais la situation est différente pour les dislocations partielles. Pour les grains de type I, le facteur de Schmid maximal des dislocations partielles de tête augmente fortement et vient dépasser celui des dislocations parfaites. Ainsi, lors d'une sollicitation en compression, c'est le maclage qui est le mécanisme de déformation énergétiquement favorable dans ces grains. Au contrainte, dans les grains de type II, le facteur de Schmid maximal des dislocations partielles de tête baisse et devient inférieur à celui des dislocations parfaites. Par conséquent, le maclage n'est plus favorable énergétiquement et ces grains doivent se déformer uniquement par glissement des dislocations parfaites.

Type de grains	**Facteur de Schmid maximum**		
	Dislocations parfaites	**Dislocations partielles**	
		de tête	**de queue**
I	0,41	0,47	0,23
II	0,28	0,16	0,31

Tableau V. 2 : Valeurs des facteurs de Schmid maximums des dislocations parfaites et partielles en fonction du type de grains pour une sollicitation en compression.

Par conséquent, le procédé d'étirage, combinant à la fois traction et compression, est susceptible d'aboutir au maclage de tous les grains (et pas seulement ceux de type II comme lors des essais de traction). Même si cela ne transparait pas clairement sur la cartographie EBSD du 15-15Ti AIM1 à l'état de réception (Chapitre III - Figure III. 11(a)), des grains de type I maclés sont bien présents dans la microstructure brute d'écrouissage. Par exemple, la Figure V. 6 montre un grain proche d'une orientation <001> avec deux systèmes de maclage activés.

La question est maintenant de savoir quel est le devenir de ces macles dans les grains de type I lors d'un essai de traction uni-axial où elles ne sont pas supposées se former.
Dans la mesure où elles correspondent à des systèmes de maclage qui ne peuvent plus s'activer, on peut penser qu'elles restent présentes sans évoluer. Dans ce cas, leur rôle se limite à réduire la taille initiale des grains de type I, ce qui provoque tout de même un durcissement supérieur de la microstructure par rapport à l'état hypertrempé par effet Hall-Petch « statique ».

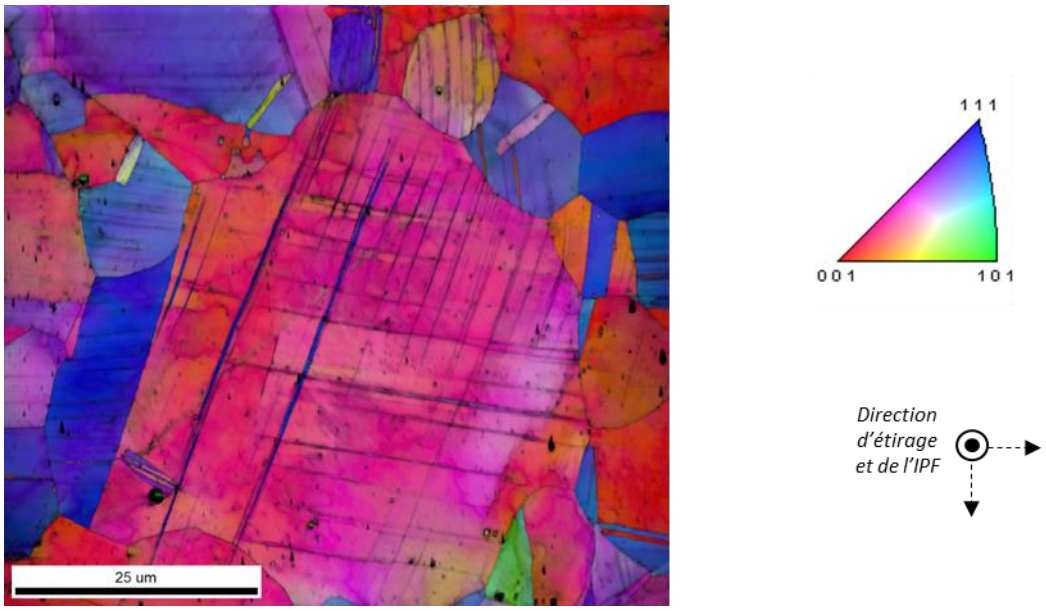


Figure V. 6 : Cartographie EBSD (IPF+ IQ) présentant un grain de type I maclé dans un tube de gaine en 15-15Ti AIM1 à l'état à réception.

Bien que nous n'ayons pas réalisé d'étirage à 200°C, il nous semble plausible d'avancer que le maclage mécanique possible dans tous les grains durant l'étirage à 20°C est l'élément le plus défavorable pour la ductilité de l'état écroui à cette température. En effet, cela permet d'introduire une quantité importante de défauts dans la microstructure, qui est nettement supérieure à ce que pourrait stocker le matériau si le maclage n'était pas activé. Ainsi, dès le début de l'essai à 200°C, la microstructure se retrouve très chargée voire saturée en défauts, et comme aucun mécanisme de durcissement n'est disponible pour en emmagasiner plus, la déformation se localise très précocement.

En conclusion, les résultats obtenus sur le 15-15Ti hypertrempé sont bien transposables au 15-15Ti AIM1, sous réserve d'une spécificité liée aux contraintes de compression présentes lors du procédé d'étirage.

2.2.3. Eléments de discussion du comportement en traction au-delà de 200°C et comparaison avec l'état hypertrempé

Des évolutions différentes de comportement ont été constatées entre l'état écroui et hypertrempé pour les températures de 200°C à 600°C : les valeurs d'allongements homogène et total augmentent dans l'état écroui alors qu'elles se stabilisent dans l'état hypertrempé.

- Pour l'état écroui, l'augmentation des allongements pourrait éventuellement être liée à une réactivation du maclage, sous réserve d'une l'EDE suffisamment basse. Or, même si nous avons vu au § 2.1.1 que les mesures d'EDE sont moins fiables à partir de 300°C, il est clair que la tendance est croissante avec l'augmentation de température. Cette hypothèse parait donc peu probable, d'autant plus qu'une augmentation des allongements n'est pas constatée sur l'état hypertrempé. Une autre hypothèse est de considérer qu'une augmentation naturelle de la ductilité survient avec la température. En effet, nous avons observé une organisation des dislocations en cellules après des essais à 200°C (Cf. Chapitre III - Figure III.21), qui témoigne déjà d'une grande mobilité des dislocations dès cette température. A plus hautes températures, on

peut présumer que la mobilité des dislocations s'accroit encore plus grâce à une intensification du glissement dévié et à l'apparition de la montée. Ainsi, les dislocations ont une plus grande facilité à s'annihiler entre elles, ce qui augmente la restauration dynamique. La quantité de dislocations s'accroit donc plus lentement et un allongement homogène plus important est nécessaire pour atteindre la saturation en défauts.

- Pour l'état hypertrempé, le même phénomène devrait se produire mais cet état est beaucoup plus sensible au vieillissement dynamique que l'état écroui. En effet, la quantité de solutés mobiles à diffuser est la même pour les deux états, mais l'état écroui contient déjà initialement une forte densité de dislocations immobiles, qui forment des forêts dans chaque grain et qui ne participent pas à la déformation. Ces dislocations captent une grande proportion de solutés et seulement une faible partie d'entre eux interagissent alors avec les dislocations mobiles. Dans le cas de l'état hypertrempé, les solutés mobiles ne peuvent diffuser au contraire que sur les dislocations mobiles, entrainant des mécanismes d'ancrage et de désancrage très puissants. Par conséquent, les dislocations perdent en mobilité et une contrainte supérieure est requise pour les déplacer. Ceci expliquerait le maintien à des valeurs presque constantes des allongements homogène et total, ainsi que de la résistance maximale sur toute la plage de température du vieillissement dynamique, c'est-à-dire de 300°C à 600°C.

2.3. Compréhension de l'évolution du comportement en traction après vieillissement (400°C-600°C)

L'amélioration des propriétés mécaniques et notamment le regain important d'allongement après vieillissement sur le 15-15Ti AIM1 (l'état écroui) peuvent s'expliquer par les évolutions microstructurales identifiées dans le chapitre IV.

Sachant que la restauration est très faible dans ces conditions de vieillissement, elle ne peut pas consister en une cause valable pour justifier l'évolution du comportement, même si elle a été envisagée à de nombreuses reprises au cours de la thèse. En effet, si l'on suppose une activité de restauration, la densité de dislocations initiales du 15-15Ti AIM1 devrait diminuer. De ce fait, il serait possible de stocker de nouvelles dislocations lors de l'essai de traction, et donc d'augmenter l'allongement. Par ailleurs, cette conjecture implique une baisse de la limité d'élasticité, or c'est bien le contraire qui se produit.

L'amélioration des propriétés mécaniques pourrait plutôt être liée à la précipitation intervenant lors du vieillissement. A ce stade, il convient tout d'abord de rappeler quels sont les précipités pouvant se former lors d'un vieillissement hors flux :

- D'après nos examens au MET, nous détectons la présence de nano TiC dès 550°C après 1000 heures de traitement. Ils ont également pu être observés à 500°C après une durée de 5000 heures.
- La dissolution sélective suivie d'une analyse de phase en DRX montre l'apparition de carbure de chrome ($Cr_{23}C_6$) de taille grossière (>100 nm) dès 1000 heures de vieillissement à 500°C.

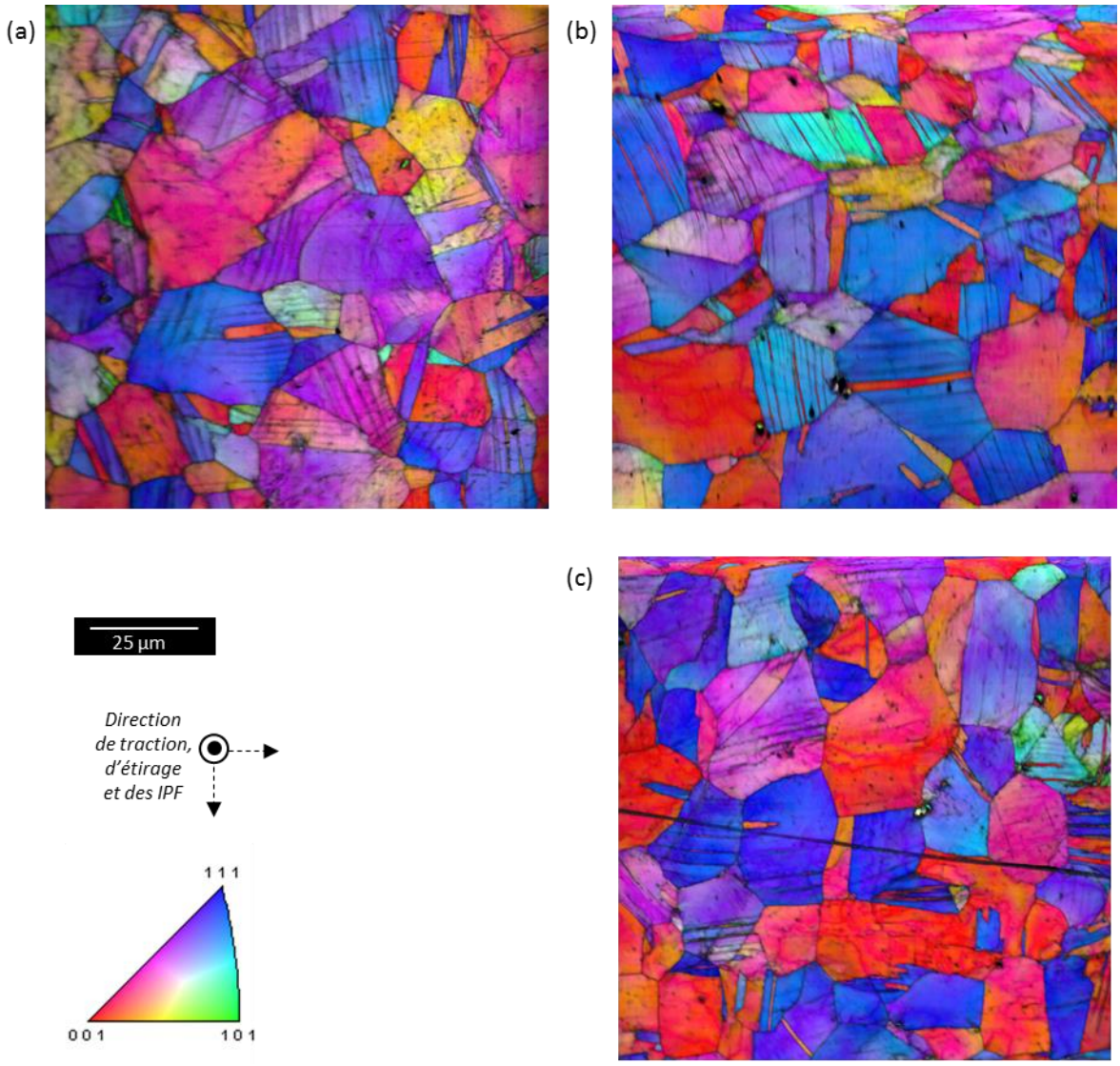


Figure V. 7 : Cartographies EBSD (IPF+IQ) des tubes de gaine en 15-15Ti AIM1 à l'état initial pour a); testé à 200°C jusqu'à A_g ≈ 1,25% pour b) ; vieillis 1000 h à 500°C puis testé à 200°C jusqu'à A_g ≈ 12,5% pour c).

Une hypothèse intéressante, mentionnée dans la littérature, est la possible variation de l'EDE après vieillissement. Sur un acier 316 contenant de la ferrite résiduelle, (Lach et al., 2017) observent une diminution simultanée du R_m et de A_g après 1500 heures de traitement thermique à 400°C. Les auteurs invoquent alors que la décomposition de la ferrite résiduelle durant le vieillissement vient entrainer une hausse de l'EDE de la matrice austénitique. La propension de l'acier à macler devient plus faible et il en découle un durcissement moindre de la microstructure. Par conséquent, la localisation de la déformation s'effectue plus rapidement à la fois en termes de contrainte et d'allongement.

Dans le cas du 15-15Ti AIM1, nous pouvons postuler que l'inverse se produit. En effet, selon l'équation (I.9) qui prédit l'EDE des alliages en fonction de leur composition chimique, le carbone est l'élément qui a le plus tendance à faire augmenter l'EDE. Ainsi, s'il précipite sous forme de carbures, il n'est plus présent en solution solide, et dès lors l'EDE devrait diminuer. Le maclage deviendrait très énergétiquement favorable, même à 200°C, ce qui expliquerait la hausse d'allongement aussi importante à cette température après vieillissement.

Pour vérifier cette hypothèse, nous avons procédé à des caractérisations post-mortem des éprouvettes de traction par EBSD. La Figure V. 7(a) et la Figure V. 7(b) présentent en guise de rappel respectivement la cartographie du 15-15Ti AIM1 à l'état à réception et après traction à 200°C jusqu'à la valeur d'allongement homogène. La Figure V. 7(c) montre quant à elle la cartographie du 15-15Ti AIM1 vieilli 1000 h à 500°C et testé ensuite en traction à 200°C jusqu'à la valeur d'allongement homogène (il est à noter que Ag a été multiplié par 10 par rapport à l'état initial).
On observe sur la Figure V. 7(c) des traces de maclage, mais celles-ci ne sont pas plus nombreuses que sur les Figure V. 7(a) et (b). Elles semblent même au contraire être présentes en plus faible quantité. Ces observations ne vont pas dans le sens d'une activation du maclage à 200°C pour un état vieilli. Par conséquent, l'hypothèse d'une baisse de l'EDE en lien avec la précipitation de carbures n'est pas confirmée par nos observations.

La dernière hypothèse envisageable est que les précipités de TiC ont un rôle dans le regain de l'allongement. Ce rôle peut consister en une stabilisation du réseau de dislocations initial : en germant, les précipités figent totalement les dislocations introduites par l'écrouissage. Elles ne peuvent plus interagir et surtout s'annihiler avec les nouvelles dislocations issues de la déformation en traction. Ainsi, la restauration dynamique des dislocations mobiles est ralentie et il est donc possible d'en stocker plus (Kocks, Mecking, 2003). Cela durcit davantage la microstructure, ce qui retarde la localisation de la déformation et la rupture de l'éprouvette.
Ce phénomène est particulièrement efficace pour l'écrouissage, voire plus que le maclage. En effet, cela est clairement traduit par l'augmentation très importante du coefficient d'écrouissage n après vieillissement, tel que le montre la Figure IV. 18.
Enfin, les meilleures propriétés mécaniques sont obtenues après un vieillissement de 1000 h à 500°C, ce qui suggère que c'est dans ces conditions que les distributions dimensionnelle et spatiale sont les plus efficaces. Dans ce cas, il est nécessaire de préciser que les précipités sont encore trop petits pour être détectés au MET conventionnel.

3. Conclusion

Les objectifs de la thèse étaient, en premier lieu, d'élucider l'origine de la baisse de ductilité (en termes de Ag et At) entre 20°C et 200°C du 15-15Ti AIM1.
Nous avons pu établir que cette singularité de comportement est en lien avec une évolution des mécanismes de déformation pour l'état hypertrempé. Nous avons montré :

- Une coexistence du maclage et du glissement de dislocations parfaites à 20°C ;
- Une prédominance du glissement de dislocations parfaites associée à du glissement dévié à 200°C ;
- Une hausse continue de l'Energie de Défaut d'Empilement (EDE) entre 20°C et 200°C, avec des valeurs respectivement de 27 mJ/m² et de 46 mJ/m².

Ainsi, nous avons décelé que l'évolution des mécanismes de déformation entre 20°C et 200°C s'explique par une compétition entre le maclage et le glissement dévié pour minimiser l'énergie totale du matériau.
L'activation du maclage à 20°C conduit à un durcissement important de la microstructure par effet Hall-Petch dynamique, ce qui se traduit par une ductilité élevée. Au contraire, l'activation du glissement dévié associée à la disparition du maclage à 200°C résulte en un durcissement limité de la microstructure, responsable d'une localisation précoce de la déformation.
Ensuite, la transposabilité de ces résultats pour l'état écroui 20%, correspondant à la spécification 15-15Ti AIM1, a été étudiée. Les raisons à l'origine d'une exacerbation de la singularité sur cet état métallurgique particulier ont été aussi envisagées.

En second lieu, les objectifs de la thèse étaient d'étudier l'influence d'un vieillissement hors flux dans une gamme de température comprise entre 400°C et 600°C sur les évolutions microstructurales et sur le comportement en traction incluant la singularité de comportement.
Pour des vieillissements entre 400°C et 600°C et des temps de maintien allant jusqu'à 1000 h, on ne perçoit pas d'indice notable d'une évolution du réseau de dislocations. En revanche, des examens au MET permettent de déterminer un seuil d'apparition des carbures de titane (TiC) nanométriques pour un maintien isotherme de 5000 h à 500°C. La taille moyenne et la fraction volumique de ces nano-précipités sont croissantes quand la température de vieillissement augmente entre 500°C et 600°C. De plus, il semble d'après nos observations que les TiC germent tous de manière quasi-simultanée.

En traction, on constate après vieillissement une nette amélioration du comportement mécanique en termes de résistance mécanique (R_m) et surtout de ductilité (A_g et A_t). Il est à noter que le gain très significatif en ductilité, constatée sur toute la plage de température testée (entre 20°C et 400°C), est couplé à une augmentation du coefficient d'écrouissage. Cela pourrait s'expliquer par des évolutions chimiques en lien avec la précipitation de carbures de titane nanométriques.

4. Perspectives

Au vu de la réponse aux objectifs fixés et des éléments laissés sans réponse ou qui sont apparus lors de l'étude, il convient d'éclaircir encore quelques points dans les domaines de la compréhension des mécanismes de déformation, de la caractérisation de l'effet d'un vieillissement hors flux et de l'optimisation de la gamme de fabrication du 15-15Ti AIM1.

Au cours de la thèse, l'étude des mécanismes de déformation s'est faite uniquement par la réalisation d'essais de traction, en particulier dans la direction axiale des tubes. Or, ce type de sollicitation n'est pas la plus représentative de celles vues par les gaines en réacteur. Il serait intéressant de procéder à d'autres types d'essais mécaniques et de comparer les résultats. Dans un premier temps, des essais sur géométrie anneau pourraient être menés, afin d'investiguer les mécanismes de déformation lorsque les tubes sont sollicités en direction circonférentielle. Dans un second temps, des essais de type EDC (Expansion Due à la Compression), qui consistent à placer à l'intérieur des tubes un matériau mou comme de l'aluminium et ensuite à le comprimer pour exercer une pression sur les tubes, sont à envisager pour une meilleure représentativité des conditions en réacteur.

D'autre part, une donnée s'est avérée manquante pour procéder à une analyse véritablement quantitative des microstructures après déformation : aucun comptage ou recensement du nombre de macles mécaniques n'a été effectué lors des travaux, principalement à cause d'une grande difficulté à les détecter. Néanmoins, quelques méthodes seraient à tester comme le traitement de clichés de micrographies optiques après attaque chimique pouvant permettre une estimation de la fraction surfacique de grains maclés (Garnier, 2007). D'autres méthodes ont également été développées récemment sur les aciers TWIP pour palier à ce problème. Par exemple, les recherches de (Collet, 2009) proposent de déconvoluer un terme de probabilité de défaut d'empilement dans les largeurs de raies de diffraction en rayon X, qui permet de remonter à la densité de macles. D'une autre façon, (Barbier, 2009) suggère de combiner l'EBSD, qui détermine bien les orientations des grains mais pas celles des macles, avec la DRX, qui donne les orientations du matériau indistinctement pour les grains et les macles. Ainsi, pour un domaine d'orientation donné, la différence entre la fraction volumique de matériaux évaluée par DRX et EBSD, est égale à la fraction de macle de ce domaine.

Concernant l'étude de l'influence d'un vieillissement thermique hors flux, elle a montré le rôle primordial des nano-précipités de TiC sur le comportement mécanique des tubes de gaine en 15-15Ti AIM1. Cependant, l'examen de ces précipités s'est limité à des observations au MET sur quelques états vieillis et se doit donc d'être affinée. Leur taille et leur densité pourraient être déterminées de manière précise en utilisant la technique de diffusion des rayons X aux petits angles (Small Angle X-ray Scattering, SAXS). Par ailleurs, des analyses en Sonde Atomique Tomographique (SAT) permettraient de mieux connaitre leur nature chimique, ainsi que de détecter les clusters de taille sub-nanométrique, précurseurs des TiC.

Compte-tenu qu'aucun vieillissement sous flux n'a pu être réalisé pendant la thèse, des campagnes d'irradiations aux ions pourraient être envisagées. Elles apporteraient des renseignements précieux sur l'influence de l'irradiation aux températures les plus basses des conditions de service en réacteur, où un pic de gonflement persiste toujours. Il serait particulièrement intéressant de vérifier quelle est l'évolution des propriétés en traction après un vieillissement sous flux.

Enfin, dans un cadre plus large, notre étude ouvre la voie à de nouvelles réflexions en lien avec la spécification du 15-15Ti AIM1 et notamment la gamme de fabrication et la composition chimique.

- Les travaux de thèse ont mis en avant que les TiC secondaires nanométriques, favorables pour la résistance au gonflement, ont une cinétique de précipitation très lente en dessous de 550°C et ceci pourrait favoriser la persistance du « gonflement de première bosse » à ces températures.
  Sur la base de ce constat, un traitement thermique sur les gaines faiblement écrouies pourrait permettre l'introduction de ces fins précipités de TiC dans la microstructure avant à la mise en réacteur. Par exemple, un post-traitement à la température de 600°C présenterait l'intérêt de permettre une précipitation suffisamment rapide tout en préservant le réseau de dislocations.
  Cependant, les caractérisations menées sur les états vieillis entre 400°C et 600°C se sont principalement focalisées sur une durée de 1000 h, qui correspond à une durée incompatible avec une gamme de fabrication industrielle. Il serait judicieux de tester des temps plus courts de l'ordre de quelques heures et d'effectuer de nouvelles caractérisations, en mettant l'accent sur le comportement sous irradiation. En effet, la stabilité des TiC d'origine thermique reste encore à démontrer sous flux. Il convient donc de s'assurer qu'un tel post-traitement n'est pas un effet inverse à celui recherché en appauvrissant trop tôt la matrice en éléments inhibiteurs de gonflement.
  Par ailleurs, à la lumière des résultats obtenus montrant une évolution sensible du comportement en traction des états vieillis par rapport à l'état écroui 20%, nous pouvons recommander de bien prendre en compte et tracer le cycle thermique qui sera vu par la gaine avant sa mise en réacteur, pendant les étapes de montage des aiguilles, puis de transport et de stockage des faisceaux d'aiguilles. En effet, durant ses étapes la gaine au contact des pastilles de combustible peut s'échauffer jusqu'à des températures élevées pouvant atteindre 500°C. Auquel cas, le post-traitement évoqué plus avant pourrait être subi avant la mise en service et il serait pertinent de tester sous flux un tel état métallurgique en le comparant à l'état écroui de référence.

- Pour le moment, les recherches sur l'optimisation de la composition chimique des aciers de gainage austénitiques prennent en considération des aspects comme la modification de la solution solide ou l'ajout d'éléments stabilisants. Toutefois, une étude a mis en évidence très récemment le rôle bénéfique des macles mécaniques sur la résistance au gonflement d'un acier 316 (Bellefon et al., 2019). Il serait intéressant d'essayer de confirmer ce point en comparant le comportement sous flux d'une matrice de type 15/15Ti faiblement écrouie, avec ou sans macle. On a vu dans notre étude qu'il était possible d'obtenir un état écroui sans macle en pratiquant une déformation typiquement à 200°C au lieu de 20°C.
  Si le rôle favorable des macles vis-à-vis du gonflement était confirmé, on pourrait réfléchir à un ajustement de la composition chimique favorisant l'apparition d'une forte densité de macles lors de l'écrouissage, c'est-à-dire avec une EDE plutôt faible. Toutefois, un éventuel ajustement de la composition chimique ne devra pas induire une dégradation d'autres propriétés. Par exemple, d'après l'équation (I. 9), qui relie l'EDE de l'alliage à sa composition chimique, on constate qu'abaisser la teneur en nickel pourrait être efficace pour faire diminuer l'EDE, mais des études passées ayant conduit à définir la spécification AIM1 pour les dernières recharges des réacteurs Phénix et Superphénix ont montré une amélioration du comportement en service lors du passage d'un gainage en 316Ti (12 à 13% en poids en Ni) à un gainage en 15/15Ti (15% en nickel en poids). D'ailleurs, les travaux récents de (Rouxel, 2016) recommandent une augmentation de la teneur en nickel.

Références bibliographiques

ABRASSART, F., 1973. Stress-induced γ→ α martensitic transformation in two carbon stainless steels. Application to TRIP steels. In : *Metallurgical Transactions*. 1973. Vol. 4, n° 9, p. 2205–2216.

ALLAIN, S., CHATEAU, J.-P. et BOUAZIZ, O., 2004. A physical model of the twinning-induced plasticity effect in a high manganese austenitic steel. In : *Materials Science and Engineering: A*. Vol. 387‑389, p. 143‑147. DOI 10.1016/j.msea.2004.01.060.

ALLAIN, S., CHATEAU, J.-P., BOUAZIZ, O., MIGOT, S. et GUELTON, N., 2004. Correlations between the calculated stacking fault energy and the plasticity mechanisms in Fe–Mn–C alloys. In : *Materials Science and Engineering: A*. 2004. Vol. 387-389, p. 158–162.

ALLAIN, Sébastien, 2004. *Caractérisation et modélisation thermomécaniques multi-échelles des mécanismes de déformation et d'écrouissage d'aciers austénitiques à haute teneur en manganèse : application à l'effet TWIP*. Thèse de doctorat : Institut National Polytechnique de Lorraine. Disponible à l'adresse : http://www.theses.fr/2004INPL006N/document.

ANON., 2008. *Les combustibles nucléaires*. S.l. : Le Moniteur Editions. Cea/Editions Du Moniteur.

BAMPTON, C. C., JONES, I. P. et LORETTO, M. H., 1978. Stacking fault energy measurements in some austenitic stainless steels. In : *Acta Metallurgica*. 1978. Vol. 26, n° 1, p. 39–51.

BARBIER, David, 2009. *Etude du comportement mécanique et des évolutions microstructurales de l'acier austénitique Fe-22Mn-0.6C à effet TWIP sous sollicitations complexes. Approche expérimentale et modélisation*. Thèse de doctorat : UNIVERSITE PAUL VERLAINE DE METZ.

BARRALIS, J., CASTEX, L. et MAEDER, G., 1999. Précontraintes et traitements superficiels. In : *Techniques de l'ingénieur Traitements thermiques superficiels et thermochimiques* [en ligne]. 1999. Vol. base documentaire : TIB501DUO., n° ref. article : m1180. Disponible à l'adresse : https://www.techniques-ingenieur.fr/base-documentaire/materiaux-th11/traitements-thermiques-superficiels-et-thermochimiques-42501210/precontraintes-et-traitements-superficiels-m1180/.

BELADI, H., TIMOKHINA, I. B., ESTRIN, Y., KIM, J., COOMAN, B. C. De et KIM, S. K., 2011. Orientation dependence of twinning and strain hardening behaviour of a high manganese twinning induced plasticity steel with polycrystalline structure. In : *Acta Materialia*. 2011. Vol. 59, n° 20, p. 7787‑7799. DOI https://doi.org/10.1016/j.actamat.2011.08.031.

MERIC DE BELLEFON, G., ROBERTSON, I. M., ALLEN, T. R., VAN DUYSEN, J.-C. et SRIDHARAN, K., 2019. Radiation-resistant nanotwinned austenitic stainless steel. In : *Scripta Materialia*. 2019. Vol. 159, p. 123‑127. DOI https://doi.org/10.1016/j.scriptamat.2018.09.030.

VAN DEN BEUKEL, A., 1980. On the mechanism of serrated yielding and dynamic strain ageing. In : *Acta Metallurgica*. 1980. Vol. 28, n° 7, p. 965‑969. DOI https://doi.org/10.1016/0001-6160(80)90114-5.

BOUAZIZ, O., ALLAIN, S. et SCOTT, C., 2008. Effect of grain and twin boundaries on the hardening mechanisms of twinning-induced plasticity steels. In : *Scripta Materialia*. mars 2008. Vol. 58, n° 6, p. 484‑487. DOI 10.1016/j.scriptamat.2007.10.050.

BOUAZIZ, O. et GUELTON, N., 2001. Modelling of TWIP effect on work-hardening. In : *Materials Science and Engineering: A*. décembre 2001. Vol. 319‑321, p. 246‑249. DOI 10.1016/S0921-5093(00)02019-0.

BOUCHAUD, E., KUBIN, L. et OCTOR, H., 1991. Ductility and dynamic strain aging in rapidly solidified aluminum alloys. In : *Metallurgical Transactions A*. 1991. Vol. 22, n° 5, p. 1021–1028.

BRASKI, D. N. et MAZIASZ, P. J., 1984. Tensile properties of unirradiated PCA from room temperature to 700° C. In : *Journal of Nuclear Materials*. 1984. Vol. 122, n° 1‑3, p. 338–342.

BRNIC, J., TURKALJ, G., CANADIJA, M. et LANC, D., 2011. AISI 316Ti (1.4571) steel—Mechanical, creep and fracture properties versus temperature. In : *Journal of Constructional Steel Research*. décembre 2011. Vol. 67, n° 12, p. 1948‑1952. DOI 10.1016/j.jcsr.2011.06.011.

BROWN, L. M., 1964. The self-stress of dislocations and the shape of extended nodes. In : *Philosophical Magazine*. 1964. Vol. 10, n° 105, p. 441–466.

BROWN, L. M. et THÖLÉN, A. R., 1964. Shape of three-fold extended nodes. In : *Discuss. Faraday Soc.* 1964. Vol. 38, p. 35‑41. DOI 10.1039/DF9643800035.

BYUN, T.S., 2003. On the stress dependence of partial dislocation separation and deformation microstructure in austenitic stainless steels. In : *Acta Materialia*. 2003. Vol. 51, n° 11, p. 3063–3071.

BYUN, T.S., HASHIMOTO, N. et FARRELL, K., 2004. Temperature dependence of strain hardening and plastic instability behaviors in austenitic stainless steels. In : *Acta Materialia*. août 2004. Vol. 52, n° 13, p. 3889‑3899. DOI 10.1016/j.actamat.2004.05.003.

BYUN, T. S., LEE, E. H. et HUNN, J. D., 2003. Plastic deformation in 316LN stainless steel – characterization of deformation microstructures. In : *Journal of Nuclear Materials*. septembre 2003. Vol. 321, n° 1, p. 29‑39. DOI 10.1016/S0022-3115(03)00195-8.

CAUTAERTS, N., DELVILLE, R., STERGAR, E., SCHRYVERS, D. et VERWERFT, M., 2018. Tailoring the Ti-C nanoprecipitate population and microstructure of titanium stabilized austenitic steels. In : *Journal of Nuclear Materials*. 2018. Vol. 507, p. 177‑187. DOI https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2018.04.041.

CAUTAERTS, N., DELVILLE, R., STERGAR, E., SCHRYVERS, D. et VERWERFT, M., 2019. Characterization of (Ti,Mo,Cr)C nanoprecipitates in an austenitic stainless steel on the atomic scale. In : *Acta Materialia*. 2019. Vol. 164, p. 90‑98. DOI https://doi.org/10.1016/j.actamat.2018.10.018.

CHABAUD-REYTIER, Magali, 1999. *Étude de la fissuration différée par relaxation d'un acier inoxydable austénitique stabilisé au titane*. Thèse de doctorat : Ecole des Mines de Paris.

CHOWDHURY, P. S., GAYATHRI, N., MUKHERJEE, P., BHATTACHARYA, M., CHATTERJEE, A., DUTTA, A. et BARAT, P., 2011. In situ studies of evolution of microstructure with temperature in heavily deformed Ti-modified austenitic stainless steel by X-ray diffraction technique. In : *Materials Science and Engineering: A*. 2011. Vol. 528, n° 3, p. 967‑972.
DOI https://doi.org/10.1016/j.msea.2010.09.102.

CHRISTIAN, J. W. et MAHAJAN, S., 1995. Deformation twinning. In : *Progress in materials science*. 1995. Vol. 39, n° 1‑2, p. 1–157.

CHRISTIAN, J.W. et SWANN, P.R., 1965. Alloying behavior and effects in concentrated solid solutions. In : *Met. Soc. A IME Conf*. S.l. : Gordon and Breach New York and London. 1965. p. 105.

COHEN, J. B. et WEERTMAN, J., 1963. A dislocation model for twinning in fcc metals. In : *Acta metallurgica*. 1963. Vol. 11, n° 8, p. 996–998.

COLLET, Jean-Louis, 2009. *Les mécanismes de déformation d'un acier TWIP FeMnC : une étude par diffraction des rayons X*. Thèse de doctorat : Institut National Polytechnique de Grenoble. Disponible à l'adresse : http://www.theses.fr/2009INPG0018/document.

COPLEY, S.M. et KEAR, B.H., 1968. The dependence of the width of a dissociated dislocation on dislocation velocity. In : *Acta Metallurgica*. 1968. Vol. 16, n° 2, p. 227–231.

COTTRELL, A. H., 1953. *Dislocations and plastic flow in crystal*. S.l. : Oxford university press.

COTTRELL, A. H., 1964. Theory of crystal dislocations. 1964.

COTTRELL, A. H., 1975. An Introduction to Metallurgy, (London: Edward Arnold). In : *Diffusion Data*. 1975. Vol. 1.

COURCELLE, A., BOURDILIAU, B. JOHANN, P. et SIBILLE, Y., 2014. Note technique CEA : DEN/DANS/DMN/SEMI/LCMI/NT/2017-013 : *Propriétés de traction de l'acier de gainage AIM1 non irradié*. Communication privée CEA.

COURTIN, Laurine, 2015. *Optimisation de la transformation à froid des tubes de gaine en acier austénitique 15-15TI AIM1*. Thèse de doctorat : Université de Poitiers.

CURTZE, S. et KUOKKALA, V.-T., 2010. Dependence of tensile deformation behavior of TWIP steels on stacking fault energy, temperature and strain rate. In : *Acta Materialia*. septembre 2010. Vol. 58, n° 15, p. 5129‑5141. DOI 10.1016/j.actamat.2010.05.049.

DATABOOKS, INCO, 1968. Austenitic chromium-nickel stainless steels–engineering properties at elevated temperatures. In : *The International Nickel Company*. 1968.

DE COOMAN, B., ESTRIN, Y. et KIM, S. K., 2018. Twinning-induced plasticity (TWIP) steels. In : *Acta Materialia*. janvier 2018. Vol. 142, p. 283‑362. DOI 10.1016/j.actamat.2017.06.046.

DELALANDE, Christophe, 1992. *Influence du phosphore sur le comportement hors et sous irradiation des aciers austénitiques multistabilisés*. Thèse de doctorat : Université de Paris-sud.

DELEUZE, Camille., 2010. *Méthodologie d'analyse des contraintes résiduelles par diffraction des rayons X sur des pièces d'alliages de titane de nuance Ti-10V-2Fe-3Al.* S.l. : Ecole Nationale Supérieure d'Arts et Métiers.

DIETER,G. E. 1988. *Mechanical metallurgy*. Third edition. S.l. : McGraw-Hill company.

DUMAY, A., CHATEAU, J.-P., ALLAIN, S., MIGOT, S. et BOUAZIZ, O., 2008. Influence of addition elements on the stacking-fault energy and mechanical properties of an austenitic Fe–Mn–C steel. In : *Materials Science and Engineering: A*. juin 2008. Vol. 483‑484, p. 184‑187. DOI 10.1016/j.msea.2006.12.170.

FAHR, D., 1973. Analysis of stress-strain behavior of type 316 stainless steel. 1973. DOI 10.2172/4388210.

FERREIRA, P. J. et MÜLLNER, P., 1998. A thermodynamic model for the stacking-fault energy. In : *Acta Materialia*. 1998. Vol. 46, n° 13, p. 4479‑4484. DOI https://doi.org/10.1016/S1359-6454(98)00155-4.

FRANK, F.C. et READ, W.T., 1950. Multiplication processes for slow moving dislocations. In : *Physical Review*. 1950. Vol. 79, n° 4, p. 722.

FROMMEYER, G., BRÜX, U. et NEUMANN, P., 2003. Supra-Ductile and High-Strength Manganese-TRIP/TWIP Steels for High Energy Absorption Purposes. In : *ISIJ International*. 2003. Vol. 43, n° 3, p. 438‑446. DOI 10.2355/isijinternational.43.438.

GARCIA-BORQUEZ, A. et KESTERNICH, W., 1985. TEM-studies on the borides formed in an austenitic steel with 38 ppm boron. In : *Scripta metallurgica*. 1985. Vol. 19, n° 1, p. 57–62.

GARNIER, Jérôme, 2007. *Déformation sous flux des aciers austénitiques des structures internes des réacteurs à eau présurisée*. Thèse de doctorat : Institut National Polytechnique de Grenoble.

GEISSLER, D., FREUDENBERGER, J., KAUFFMANN, A., KRAUTZ, M., KLAUSS, H., VOSS, A., EICKEMEYER, J. et SCHULTZ, L., 2011. Appearance of dislocation-mediated and twinning-induced plasticity in an engineering-grade FeMnNiCr alloy. In : *Acta Materialia*. décembre 2011. Vol. 59, n° 20, p. 7711‑7723. DOI 10.1016/j.actamat.2011.08.040.

GHUEZAIEL, M.-J., 1985. Influence du titane sur la structure de revenu d'aciers austénitiques. In : *Note CEA-N-2454*.

GOLDSCHMIDT, H. J., 1967. Carbides. In : *Interstitial Alloys*. Springer. p. 88–213.

GOODCHILD, D, ROBERTS, WT et WILSON, DV, 1970. Plastic deformation and phase transformation in textured austenitic stainless steel. In : *Acta Metallurgica*. 1970. Vol. 18, n° 11, p. 1137–1145.

GOPALAN, P., RAJARAMAN, R., VISWANATHAN, B., GOPINATHAN, K. P. et VENKADESAN, S., 1998. The kinetics of formation and growth of TiC precipitates in Ti-modified stainless steel studied by positron annihilation spectroscopy. In : *Journal of Nuclear Materials*. 1998. Vol. 256, n° 2, p. 229‑234. DOI https://doi.org/10.1016/S0022-3115(98)00054-3.

GRÄSSEL, O., KRÜGER, L., FROMMEYER, G. et MEYER, L. W., 2000. High strength Fe–Mn–(Al, Si) TRIP/TWIP steels development—properties—application. In : *International Journal of plasticity*. 2000. Vol. 16, n° 10‑11, p. 1391–1409.

GROT, A. S. et SPRUIELL, J. E., 1975. Microstructural Stability of Titanium-Modified Type 316 and Type 321 Stainless Steel. In : *METALLURGICAL TRANSACTIONS*. 1975. Vol. 6, n°11 p. 2023-2030.

GRUMBACH, M., 1993. Vieillissement des aciers. In : *Techniques de l'ingénieur Méthodes de caractérisation et d'analyse des métaux et alliages*. Vol. base documentaire : TIB532DUO., n° ref. article : m235. Disponible à l'adresse : https://www.techniques-ingenieur.fr/base-documentaire/materiaux-th11/methodes-de-caracterisation-et-d-analyse-des-metaux-et-alliages-42532210/vieillissement-des-aciers-m235/.

GUTIERREZ-URRUTIA, I. et RAABE, D., 2012. Multistage strain hardening through dislocation substructure and twinning in a high strength and ductile weight-reduced Fe–Mn–Al–C steel. In : *Acta Materialia*. septembre 2012. Vol. 60, n° 16, p. 5791‑5802. DOI 10.1016/j.actamat.2012.07.018.

HEIDENREICH, R.D. et SHOCKLEY, W., 1948. Report of a Conference on the Strength of Solids, In : *London: Physical Society*. 1948. p. 57.

HONG, S., 2004. The tensile and low-cycle fatigue behavior of cold worked 316L stainless steel: influence of dynamic strain aging. In : *International Journal of Fatigue*. août 2004. Vol. 26, n° 8, p. 899‑910. DOI 10.1016/j.ijfatigue.2003.12.002.

HULL, D. et BACON, D. J., 2011. *Introduction to dislocations*. Fifth Edition. Butterworth-Heinemann.

INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY (IAEA), 2012. *Structural Materials for Liquid Metal Cooled Fast Reactor Fuel Assemblies Operational Behaviour*. International Atomic Energy Agency (IAEA).

IWAMOTO, T., TSUTA, T. et TOMITA, Y., 1998. Investigation on deformation mode dependence of strain-induced martensitic transformation in TRIP steels and modelling of transformation kinetics. In : *International Journal of Mechanical Sciences*. 1998. Vol. 40, n° 2, p. 173‑182. DOI https://doi.org/10.1016/S0020-7403(97)00047-7.

KARAMAN, I., SEHITOGLU, H., GALL, K. et CHUMLYAKOV, Y. I., 1998. On the deformation mechanisms in single crystal Hadfield manganese steels. In : *Scripta materialia*. 1998. Vol. 38, n° 6, p. 1009-1015.

KARAMAN, I., SEHITOGLU, H., GALL, K., CHUMLYAKOV, Y. I. et MAIER, H. J., 2000. Deformation of single crystal Hadfield steel by twinning and slip. In : *Acta materialia*. 2000. Vol. 48, n° 6, p. 1345–1359.

KASPER, J.S., 1954. The ordering of atoms in the chi-phase of the iron-chromium-molybdenum system. In : *Acta Metallurgica*. 1954. Vol. 2, n° 3, p. 456–461.

KESTERNICH, W., 1985a. Dislocation-controlled precipitation of TiC particles and their resistance to coarsening. In : *Philosophical Magazine A*. 1985. Vol. 52, n° 4, p. 533‑548. DOI 10.1080/01418618508237645.

KESTERNICH, W., 1985b. High Resolution Moire Imaging of Small Precipitates. In : *MRS Proceedings*. 1985. Vol. 62, p. 229. DOI 10.1557/PROC-62-229.

KESTERNICH, W. et MEERTENS, D., 1986. Microstructural evolution of a Titanium-stabilized 15Cr-15Ni steel. In : *Acta Metallurgica*. 1986. Vol. 34, n° 6, p. 1071‑1082. DOI https://doi.org/10.1016/0001-6160(86)90217-8.

KIBEY, S., LIU, J.B., JOHNSON, D.D. et SEHITOGLU, H., 2007. Predicting twinning stress in fcc metals: Linking twin-energy pathways to twin nucleation. In : *Acta Materialia*. décembre 2007. Vol. 55, n° 20, p. 6843‑6851. DOI 10.1016/j.actamat.2007.08.042.

KIM, J., LEE, S.-J. et DE COOMAN, B., 2011. Effect of Al on the stacking fault energy of Fe–18Mn–0.6C twinning-induced plasticity. In : *Scripta Materialia*. août 2011. Vol. 65, n° 4, p. 363‑366. DOI 10.1016/j.scriptamat.2011.05.014.

KOCKS, UF et MECKING, H, 2003. Physics and phenomenology of strain hardening: the FCC case. In : *Progress in materials science*. 2003. Vol. 48, n° 3, p. 171–273.

KOUNTCHOU TAWOKAM, Mikael, 2018. *Gonflement sous irradiation d'un acier de structure pour un réacteur de quatrième génération*. Thèse de doctorat : Université de Normandie. Disponible à l'adresse : http://www.theses.fr/2018NORMR108/document.

KUPREKOVA, E. I., CHUMLYAKOV, Yu. I. et CHERNOV, I. P., 2008. Dependence of critical cleavage stresses as a function of orientation and temperature in single crystals of Fe-18% Cr-14% Ni-2% Mo austenitic stainless steel containing hydrogen. In : *Metal Science and Heat Treatment*. mai 2008. Vol. 50, n° 5, p. 282–288. DOI 10.1007/s11041-008-9044-1.

LACH, T.G., BYUN, T. S. et LEONARD, K. J., 2017. Mechanical property degradation and microstructural evolution of cast austenitic stainless steels under short-term thermal aging. In : *Journal of Nuclear Materials*. 2017. Vol. 497, p. 139‑153. DOI https://doi.org/10.1016/j.jnucmat.2017.07.059.

LACOMBE, P., BAROUX, B., BÉRANGER, G., COLOMBIER, L., HOCHMANN, J., DAVIDSON, J. H. et LINDQUIST, J. B., 1993. *Stainless steels*. Les Editions de Physique.

LAI, J. K. L., 1983. A review of precipitation behaviour in AISI type 316 stainless steel. In : *Materials Science and Engineering*. 1983. Vol. 61, n° 2, p. 101–109.

LANGFORD, R.M et CLINTON, C, 2004. In situ lift-out using a FIB-SEM system. In : *Micron*. octobre 2004. Vol. 35, n° 7, p. 607‑611. DOI 10.1016/j.micron.2004.03.002.

LATANISION, R. M. et RUFF, A. W., 1971. The temperature dependence of stacking fault energy in Fe-Cr-Ni alloys. In : *Metallurgical Transactions*. 1971. Vol. 2, n° 2, p. 505–509.

LECROISEY, F. et PINEAU, A., 1972. Martensitic transformations induced by plastic deformation in the Fe-Ni-Cr-C system. In : *Metallurgical and Materials Transactions B*. 1972. Vol. 3, n° 2, p. 391–400.

LEE, E. H. et MANSUR, L. K., 2000. Fe–15Ni–13Cr austenitic stainless steels for fission and fusion reactor applications. III. Phase stability during heavy ion irradiation. In : *Journal of Nuclear Materials*. 2000. Vol. 278, n° 1, p. 20‑29. DOI https://doi.org/10.1016/S0022-3115(99)00236-6.

LEE, T.-H., SHIN, E., OH, C.-S., HA, H.-Y. et KIM, S.-J., 2010. Correlation between stacking fault energy and deformation microstructure in high-interstitial-alloyed austenitic steels. In : *Acta Materialia*. mai 2010. Vol. 58, n° 8, p. 3173‑3186. DOI 10.1016/j.actamat.2010.01.056.

LEE, Young-Kook, 2012. Microstructural evolution during plastic deformation of twinning-induced plasticity steels. In : *Scripta Materialia*. juin 2012. Vol. 66, n° 12, p. 1002‑1006. DOI 10.1016/j.scriptamat.2011.12.016.

LORETTO, M. H., CLAREBROUGH, L. M. et SEGALL, R. L., 1965. Stacking-fault tetrahedra in deformed face-centred cubic metals. In : *The Philosophical Magazine: A Journal of Theoretical Experimental and Applied Physics*. 1965. Vol. 11, n° 111, p. 459‑465. DOI 10.1080/14786436508224233.

LU, J., HULTMAN, L., HOLMSTRÖM, E., ANTONSSON, K. H., GREHK, M., LI, W., VITOS, L. et GOLPAYEGANI, A., 2016. Stacking fault energies in austenitic stainless steels. In : *Acta Materialia*. 2016. Vol. 111, p. 39–46.

MATEUS FREIRE, Lucie, 2018. *Évolutions microstructurales et comportement en fluage à haute température d'un acier inoxydable austénitique*. Thèse de doctorat : Ecole des Mines de Paris.

MERIC DE BELLEFON, G., VAN DUYSEN, J.C. et SRIDHARAN, K., 2017. Composition-dependence of stacking fault energy in austenitic stainless steels through linear regression with random intercepts. In : *Journal of Nuclear Materials*. août 2017. Vol. 492, p. 227‑230. DOI 10.1016/j.jnucmat.2017.05.037.

MEYERS, M.A., VÖHRINGER, O. et LUBARDA, V.A., 2001. The onset of twinning in metals: a constitutive description. In : *Acta Materialia*. novembre 2001. Vol. 49, n° 19, p. 4025‑4039. DOI 10.1016/S1359-6454(01)00300-7.

MICHAUD, W.F., TOBEN, P.T., SOPPET, W.K. et CHOPRA, O.K., 1994. Tensile-property characterization of thermally aged cast stainless steels. Nuclear Regulatory Commission, Washington. DOI 10.2172/10125220.

NIEWCZAS, M. et SAADA, G., 2002. Twinning nucleation in Cu-8 at.% Al single crystals. In : *Philosophical Magazine A*. 2002. Vol. 82, n° 1, p. 167–191.

OH, K. H., JEONG, J. S., KOO, Y. M. et LEE, D. N., 2013. Effect of stacking fault energy on formation of deformation twin in high Mn austenitic steel. In : *Materials Research Innovations*. 2013. Vol. 17, n° sup2, p. s73‑s78. DOI 10.1179/1432891713Z.000000000308.

OLIER, P., CURTET, E., URVOY, S., BONO, M. et COURCELLE, A., 2019. Fabrication and characterization of 15Cr-15Ni austenitic steel cladding tubes for sodium fast reactors. ICAPP'2019, May 2019, Juan-Les-Pins, France.

PADILHA, A. F. et SCHANZ, G., 1980. Precipitation of a boride phase in 15% Cr-15% Ni-Mo-Ti-B austenitic stainless steel (DIN 1.4970). In : *Journal of Nuclear Materials*. 1980. Vol. 95, n° 3, p. 229‑238. DOI https://doi.org/10.1016/0022-3115(80)90364-5.

PADILHA, A.F., SCHANZ, G. et ANDERKO, K., 1982. Ausscheidungsverhalten des titanstabilisierten austenitischen Stahls 15% Cr-15% Ni-1% Mo-Ti-B (DIN-Werkstoff-nr. 1.4970). In : *Journal of Nuclear Materials*. 1982. Vol. 105, n° 1, p. 77–92.

PARK, K.-T., JIN, K. G., HAN, S. H., HWANG, S. W. CHOI, K. et LEE, C. S., 2010. Stacking fault energy and plastic deformation of fully austenitic high manganese steels: Effect of Al addition. In : *Materials Science and Engineering: A*. juin 2010. Vol. 527, n° 16‑17, p. 3651‑3661. DOI 10.1016/j.msea.2010.02.058.

PAXTON, H. W. et AUSTIN, J. B., 1972. Historical account of the contributions of E. C. Bain. In : *Metallurgical Transactions*. mai 1972. Vol. 3, n° 5, p. 1035–1042. DOI 10.1007/BF02642435.

PICKERING, F.B., 1984. Physical metallurgical development of stainless steels. In : *Proc. Conf. on Stainless Steels 84, Göteborg, 3-4 Sept.*

PIERCE, D. T., JIMÉNEZ, J. A., BENTLEY, J., RAABE, D., OSKAY, C. et WITTIG, J. E., 2014. The influence of manganese content on the stacking fault and austenite/ε-martensite interfacial energies in Fe–Mn–(Al–Si) steels investigated by experiment and theory. In : *Acta Materialia*. 2014. Vol. 68, p. 238‑253. DOI https://doi.org/10.1016/j.actamat.2014.01.001.

PRYCE, L. and Andrews K. W., 1960. J. Iron Steel Institute 196, 415 (1960). In : *J. Iron Steel Institute*. 1960. Vol. 196, p. 415.

RÉMY, L., PINEAU, A. et THOMAS, B., 1978. Temperature dependence of stacking fault energy in close-packed metals and alloys. In : *Materials Science and Engineering*. 1978. Vol. 36, n° 1, p. 47–63.

ROUXEL, Baptiste, 2016. *Développement d'aciers austénitiques avancés résistant au gonflement sous irradiation*. Thèse de doctorat : Université Lille 1. Disponible à l'adresse : http://www.theses.fr/2016LIL10187/document.

RUFF, A. W., 1970. Measurement of stacking fault energy from dislocation interactions. In : *Metallurgical Transactions*. septembre 1970. Vol. 1, n° 9, p. 2391–2413. DOI 10.1007/BF03038368.

SAMUEL, K.G., RAY, S.K. et SASIKALA, G., 2006. Dynamic strain ageing in prior cold worked 15Cr–15Ni titanium modified stainless steel (Alloy D9). In : *Journal of Nuclear Materials*. septembre 2006. Vol. 355, n° 1‑3, p. 30‑37. DOI 10.1016/j.jnucmat.2006.03.016.

SATO, K., ICHINOSE, M., HIROTSU, Y. et INOUE, Y., 1989. Effects of deformation induced phase transformation and twinning on the mechanical properties of austenitic Fe–Mn–Al alloys. In : *ISIJ international*. 1989. Vol. 29, n° 10, p. 868–877.

SCHRAMM, R.E. et REED, R.P., 1975. Stacking fault energies of seven commercial austenitic stainless steels. In : *Metallurgical and Materials Transactions A*. 1975. Vol. 6, n° 7, p. 1345–1351.

SÉRAN, J.-L., 2014. DEN/DANS/DMN/13-006/B : *Synthèse des études sur le gonflement des alliages austénitiques développés au CEA pour le gainage du combustible RNR-NA - 1ere Partie : des aciers 316 à l'AIM1*.

SILCOX, J. et HIRSCH, P. B., 1959. Direct observations of defects in quenched gold. In : *The Philosophical Magazine: A Journal of Theoretical Experimental and Applied Physics*. 1959. Vol. 4, n° 37, p. 72‑89. DOI 10.1080/14786435908238228.

SINGHAL, L. et MARTIN, J., 1969. Sigma-phase precipitation in austenitic steels. In : *Iron Steel Institute*. 1969. Vol. 207, p. 1382.

SPRUIELL, J. E., SCOTT, J. A., ARY, C. S. et HARDIN, R. L., 1973. Microstructural stability of thermal-mechanically pretreated type 316 austenitic stainless steel. In : *Metallurgical Transactions*. juin 1973. Vol. 4, n° 6, p. 1533–1544. DOI 10.1007/BF02668005.

TALONEN, J. et HÄNNINEN, H., 2007. Formation of shear bands and strain-induced martensite during plastic deformation of metastable austenitic stainless steels. In : *Acta Materialia*. 2007. Vol. 55, n° 18, p. 6108‑6118. DOI https://doi.org/10.1016/j.actamat.2007.07.015.

TAYLOR, G. I. et FLOYD, W., 1938. J. Inst. Met.

TISONE, T. C., BRITTAIN, J. O. et MESHII, M., 1968. Stacking Faults in a Cu-15 at% Al Alloy. I. The Short Range Order and Temperature Dependence of the Stacking Fault Energy. In : *physica status solidi (b)*. 1968. Vol. 27, n° 1, p. 185‑194. DOI 10.1002/pssb.19680270119.

TRIPATHY, H., RAJU, S., RAI, A. K. et JAYAKUMAR, T., 2013. A Calorimetric Study of Recovery and Recrystallization in Fe–14.4 Cr–15.4 Ni–2.4 Mo–2.36 Mn–0.25 Ti–0.04 C–0.05 P (mass %) Austenitic Stainless Steel. In : *steel research international*. 2013. Vol. 84, n° 10, p. 1046‑1059. DOI 10.1002/srin.201300002.

VAUGOUDE, Adrien, 2019. *Développement d'aciers austénitiques avancés résistants au gonflement par cavités*. Thèse de doctorat : Université Lille 1.

VENABLES, J. A., 1964. The nucleation and propagation of deformation twins. In : *Journal of Physics and Chemistry of Solids*. 1964. Vol. 25, n° 7, p. 693–700.

VENABLES, J. A., 1974. On dislocation pole models for twinning. In : *Philosophical Magazine*. 1974. Vol. 30, n° 5, p. 1165–1169.

VENKADESAN, S., BHADURI, A. K., RODRIGUEZ, P. et PADMANABHAN, K. A., 1992. Effect of ageing on the microstructural stability of cold-worked titanium-modified 15Cr-15Ni—2.5Mo austenitic stainless steel. In : *Journal of Nuclear Materials*. 1992. Vol. 186, n° 2, p. 177‑184. DOI https://doi.org/10.1016/0022-3115(92)90332-F.

VENKADESAN, S., PHANIRAJ, C., SIVAPRASAD, P. V. et RODRIGUEZ, P., 1992. Activation energy for serrated flow in a 15Cr-15Ni Ti-modified austenitic stainless steel. In : *Acta metallurgica et materialia*. 1992. Vol. 40, n° 3, p. 569–580.

WEISS, B. et STICKLER, R., 1972. Phase Instabilities During High Temperature Exposure of 316 Austenitic Stainless Steel. In : *Metallurgical Transactions B*. 1972. Vol. 3 n° 4, p. 851–866.

WHELAN, M., 1959. Dislocation interactions in face-centred cubic metals, with particular reference to stainless steel. In : *Proc. R. Soc. Lond. A*. 1959. Vol. 249, n° 1256, p. 114–137.

WU, X., PAN, X., MABON, J. C., LI, M. et STUBBINS, J. F., 2006. The role of deformation mechanisms in flow localization of 316L stainless steel. In : *Journal of Nuclear Materials*. septembre 2006. Vol. 356, n° 1‑3, p. 70‑77. DOI 10.1016/j.jnucmat.2006.05.047.

YAN, F.K., LIU, G.Z., TAO, N.R. et LU, K., 2012. Strength and ductility of 316L austenitic stainless steel strengthened by nano-scale twin bundles. In : *Acta Materialia*. février 2012. Vol. 60, n° 3, p. 1059‑1071. DOI 10.1016/j.actamat.2011.11.009.

YANG, P., XIE, Q., MENG, L., DING, H. et TANG, Z., 2006. Dependence of deformation twinning on grain orientation in a high manganese steel. In : *Scripta Materialia*. octobre 2006. Vol. 55, n° 7, p. 629‑631. DOI 10.1016/j.scriptamat.2006.06.004.

Annexes

Annexe A : Détermination des constantes élastiques du 15-15Ti en fonction de la température

Pour déterminer les constantes élastiques du 15-15Ti à 20°C, les célérités longitudinales et transversales ont été mesurées par propagation des ultrasons dans un bloc de 15-15Ti hypertrempé. Le dispositif utilisé est le Modèle 5800 fabriqué par SOFRANEL.

On trouve :

$$V_L = 5697\ m/s$$

$$V_T = 3161\ m/s$$

Sachant que :

$$\frac{V_T}{V_L} = \sqrt{\frac{1-2\upsilon}{2(1-\upsilon)}}$$

On obtient donc : $\boldsymbol{\upsilon = 0,28}$

En considérant la masse volumique de l'acier 15-15Ti, $\rho = 7950\ Kg/m^3$, on peut déterminer le module de cisaillement G par :

$$G = \rho\, {V_T}^2$$

On obtient donc : $\boldsymbol{G = 79,4\ GPa}$

Sachant que :

$$E = 2\,G\,(1+\upsilon)$$

On obtient donc : $\boldsymbol{E = 203,4\ GPa}$

Pour les évolutions en températures, les valeurs sont extrapolées à partir de données sur l'acier 316 (Databooks, 1968).

Le donne les valeurs de E, G et υ pour l'acier 15-15Ti en fonction de la température de 20°C à 500°C.

T (°C)	E (GPa)	G (GPa)	υ
20	203.4	79,4	0,28
50	199,3	77,8	0,28
100	193,2	75,5	0,28
200	189,6	73,6	0,29
250	186,3	71,4	0,30
300	183,9	69,2	0,33
400	183,8	67,3	0,36
500	172,0	65,2	0,32

Tableau A. 1 : Valeurs de E, G et υ pour l'acier 15-15Ti en fonction de la température.

Annexes B : Détails des techniques expérimentales utilisées pour l'étude de l'effet d'un vieillissement

Annexe B.1 : Détermination des contraintes résiduelles macroscopiques par DRX

La méthode utilisée pour mesurer les contraintes internes macroscopiques dans le 15-15Ti AIM1 est la diffraction des rayons X, qui est basée sur la mesure des déplacements des pics de diffraction. En effet, la présence de contraintes tridimensionnelles dans un matériau déforme les mailles cristallines et donc modifie les distances inter-réticulaires, ce qui a pour effet un déplacement $\Delta\theta_{hkl}$ du pic de diffraction comme illustré la Figure B. 1 (Deleuze, 2010).

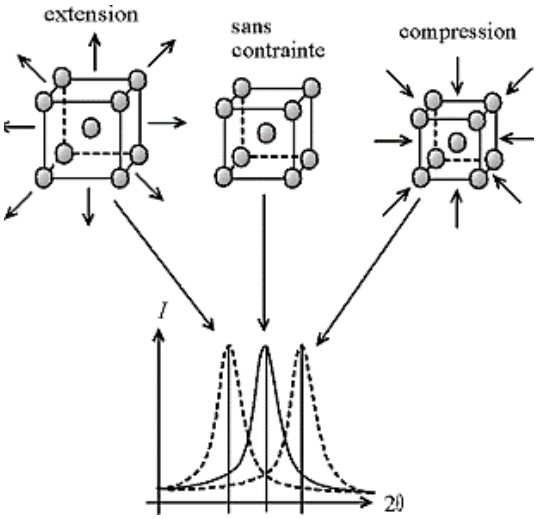


Figure B. 1 : Effet des contraintes macroscopiques sur le diagramme de diffraction (Deleuze, 2010).

La relation fondamentale permettant de relier le déplacement du pic à la déformation normale aux plans réticulaires de la famille hkl sélectionnée est la suivante :

$$\varepsilon_{hkl} = -cotan(\theta_{hkl}) \,.\, \Delta\theta_{hkl}$$

Avec cette équation, seules les déformations élastiques sont prises en compte. En effet, une déformation élastique engendre un déplacement du pic alors qu'une déformation plastique engendrerait un élargissement du dit pic. On utilise ensuite la loi des $sin^2\psi$ afin de relier la déformation élastique aux contraintes macroscopiques du matériau dans l'hypothèse d'une contrainte plane dans un matériau non texturé et isotrope. La définition des angles est présentée en Figure B. 2.

$$\varepsilon_{hkl}^{\phi\psi} = \frac{1+\nu}{E}\,\sigma_\phi sin^2\psi - \frac{\nu}{E}\,(\sigma_1+\sigma_2)$$

$$avec\ \sigma_\phi = \sigma_1\, cos^2\phi + \sigma_2\, sin^2\phi$$

Ainsi, en traçant $\varepsilon^{\varphi\psi}$ en fonction de $sin^2\psi$ on obtient une droite de pente proportionnelle à σ_ϕ ce qui nous permet d'obtenir le niveau de contraintes macroscopiques dans le matériau.

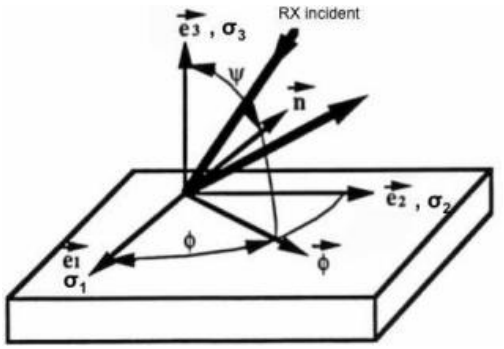


Figure B. 2 : Définition des angles Ψ et φ par rapport au référentiel rattaché à la pièce, pour la mesure de la déformation $\varepsilon^{\varphi\psi}$ (n est le vecteur directeur de cette déformation).

Afin de corriger l'erreur instrumentale, un scan a été réalisé sur un échantillon étalon (le standard certifié NIST 660b LaB_6) dont on connait avec exactitude le paramètre de maille. Cela permet d'obtenir un facteur correctif sur la position angulaire des pics. De plus, des paramètres visant à corriger les erreurs dues à la géométrie cylindrique des échantillons ont aussi été utilisés.

Dans notre cas, nous avons mesuré le déplacement du pic à 2θ = 118° correspondant aux plan (400) de la matrice du 15-15Ti AIM1 en réalisant des diagrammes θ/2θ en balayant ψ avec un pas de 5° entre 0° et 65°.

Les mesures ayant été réalisées sur des tubes, nous avons sélectionné ϕ = 0° car les effets de la géométrie de l'échantillon pour des angles plus importants sont mal connus.

L'acquisition de la raie est réalisée entre 115° et 122°, avec un pas de 0.02° et un temps de 15 s/coups.

Le goniomètre utilisé pour ces mesures est un D8 Discover A25 de BRUKER, situé au CEA Saclay (SRMA/LA2M). Il est équipé d'un berceau d'EULER ¼ de cercle au centre duquel se trouve une platine porte échantillon mobile dans les 3 axes de direction. Le détecteur utilisé est un détecteur Lynxeye, résolu en énergie, qui permet de s'affranchir de la fluorescence du fer.

Annexe B.2 : Méthodologie de comptage des précipités nanométriques par traitement d'images

La mesure de l'aire occupée par chaque précipité sur l'image est effectuée par le logiciel Visilog. Pour cela, les précipités doivent être entourés à la main, à l'aide d'une tablette graphique. La définition précise des contours des précipités pouvant s'avérer difficile sur l'image brute à cause d'un manque de contraste des précipités, l'image est préalablement traitée sur le logiciel Digital Micrograph. On utilise la fonction Fast Fourier Transformation (FFT) du logiciel afin d'obtenir le diagramme de diffraction dans l'espace réciproque de l'image. Ce diagramme prend la forme d'une grosse tache centrale due à la diffraction de la matrice du 15-15Ti AIM1 et de deux taches symétriques plus petites dues à la diffraction des précipités, qui sont en désaccord de paramètres de maille avec la matrice. En appliquant un masque sur le diagramme de diffraction, on isole la diffraction des précipités et en effectuant la transformée inverse de Fourier (IFFT) on obtient une nouvelle image faisant ressortir visiblement les précipités.

Sur cette image traitée, les précipités sont entourés manuellement, le plus précisément possible, à l'aide du logiciel Visilog. Par l'application d'une macro, l'aire occupée par chaque précipité sur l'image est extraite. A partir de cette aire, le diamètre sphérique puis la densité surfacique sont calculés.

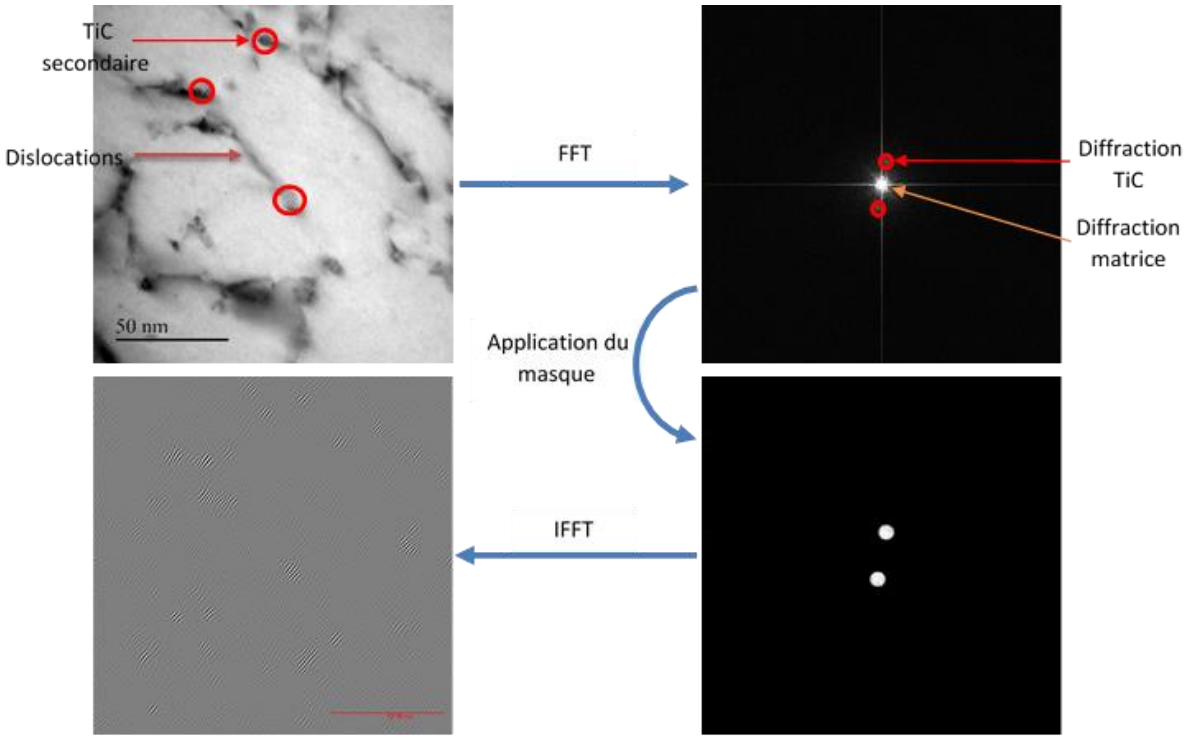


Figure B. 3 : Processus de traitement d'images pour le comptage des précipités.

Annexe B.3 : Dissolution sélective et analyse du résidu filtré par DRX

La méthode de dissolution sélective (ou extraction sélective), développée au CEA Saclay (SRMA/LA2M), a été utilisée afin d'estimer la fraction massique des précipités dans le 15-15Ti AIM1 en fonction des conditions de vieillissement. Elle permet également de déterminer la nature chimique de la précipitation. Cette méthode consiste à dissoudre sélectivement la matrice et à récupérer les précipités par filtration du substrat obtenu.

Obtention de la poudre et de la fraction massique de précipités

Afin d'obtenir suffisamment de précipités pour les analyser, trois dissolutions sont effectuées pour caractériser un même état métallurgique et les trois filtrations ont lieu sur le même filtre. Pour chaque dissolution, un tube de 10 cm de longueur est utilisé. Afin d'augmenter la précision des résultats, les tubes sont préalablement polis extérieurement et rodés intérieurement pour supprimer la couche d'oxyde en surface. Les échantillons et le filtre vierge sont ensuite pesés sur une balance précise à la dizaine de nanogrammes près. Le filtre choisi a une porosité de 220 nm et un diamètre de 40 mm.

L'échantillon est plongé dans une solution composée à 90% de méthanol et 10% d'acide chlorhydrique. Il est positionné au centre d'une grille circulaire en platine qui sert de cathode. La réaction à lieu

pendant ~7h30 sous un courant électrique constant de quelques centaines de milliampère. La Figure B. 4 présente le dispositif expérimental de dissolution sélective.

Une fois la réaction terminée, la solution est filtrée avec un système de filtration de type büchner utilisant une pompe à vide à membrane. Une fois les trois filtrations réalisées, le filtre est séché dans une étuve chauffée à 60°C pendant au moins 48h. Avant la pesée finale, le filtre est laissé à l'air libre pendant 24h pour absorber l'humidité de l'air. Cela permet de se rapprocher des conditions initiales du filtre vierge.

En mesurant la perte de masse des trois échantillons d'un même état métallurgique et la masse du résidu récupérée sur le filtre, on peut en déduire la fraction massique de précipités dans l'échantillon.

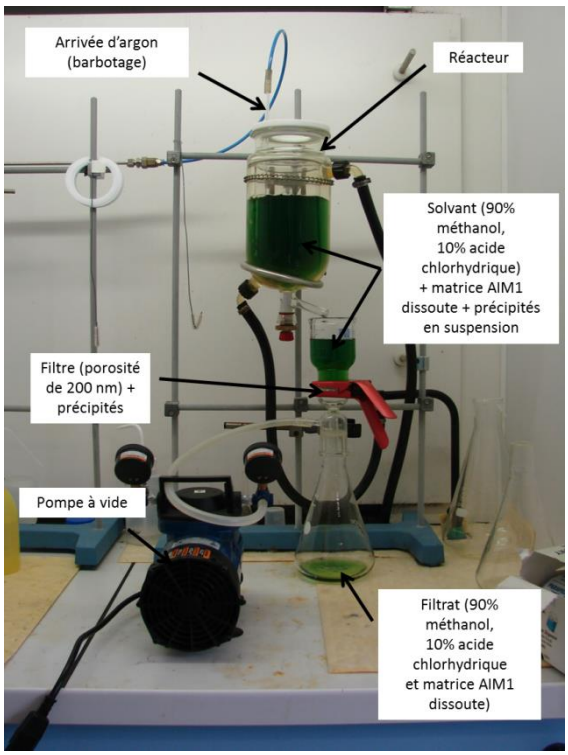


Figure B. 4 : Dispositif expérimental de dissolution sélective.

Analyse du résidu filtré par DRX.

Les analyses DRX du résidu filtré obtenu par dissolution sélective permettent d'identifier les précipités présents selon les différents états métallurgiques.

Le diffractomètre utilisé est un Advanced de la marque Bruker en configuration Bragg-Brentano (θ-θ), situé au CEA Saclay (SRMA/LA2M). Les conditions expérimentales sont les suivantes :

- Anticathode de cuivre (λ Cu-Kα = 0.1540598 nm),
- Domaine angulaire analysé : 20 à 140°,
- Pas d'analyse : 0,03°,
- Temps de comptage par pas : 5s,
- Rotation du porte-échantillon : 30 tr/min,
- Détecteur Linxeye, résolu en énergie, qui permet de s'affranchir de la fluorescence du fer.

Le logiciel permettant d'indexer les diffractogrammes est EVA, qui est couplé à la base de données ICDD PDF4+.

La diffraction des rayons X permet, en comparant le diffractogramme obtenu à ceux de la base de données, d'identifier les phases présentes dans l'échantillon analysé. De plus, il est possible de déterminer la fraction volumique de chaque phase en comparant le rapport d'intensité d'une famille de plan à une valeur de référence.

Calcul de la fraction volumique relative de chacun des précipités dans le résidu filtré

Pour appliquer la méthode de rapport d'intensité des raies principales de chaque phase, deux données théoriques sont nécessaires :

- La position angulaire de la raie principale,
- Le rapport I/Icor. Ce rapport est obtenu en comparant une intensité de raie d'un produit pur à celle obtenue dans le cas d'un mélange équimassique de la phase avec du corindon (Al_2O_3).

Ces données sont obtenues grâce aux fiches ICDD de la base de données Pdf4+. Les références ICDD, positions angulaires des raies principales et rapport I/Icor utilisés dans notre étude sont détaillées dans le Tableau B. 1 : Caractéristiques de référence des précipités.

Phases	Références Pdf4+	Paramètres de maille de référence (Å)	Position 2θ du pic principal (°)	Plan correspondant	facteur I/Icor
TiC	04-001-6845	a = 4,325	41,73387	(200)	3,83
TiN	04-013-0041	a = 4,244	42,59591	(200)	4,07
Ti_2CS	04-015-4620	a = 3,210 c = 11,20	40,42038	(103)	5,2
$Cr_{23}C_6$	04-007-5437	a = 10,65	44,09584	(333)	2,75

Tableau B. 1 : Caractéristiques de référence des précipités.

Les fractions volumiques sont ensuite calculées de la manière suivante :

$$Fraction\ volumique\ phase\ i = \frac{\frac{I_{exp}\ phase\ i}{\frac{I}{Icor}\ phase\ i}}{\frac{I_{exp}\ phase\ 1}{\frac{I}{Icor}\ phase\ 1} + \frac{I_{exp}\ phase\ 2}{\frac{I}{Icor}\ phase\ 2} + \frac{I_{exp}\ phase\ 3}{\frac{I}{Icor}\ phase\ 3} + \frac{I_{exp}\ phase\ 4}{\frac{I}{Icor}\ phase\ 4}}$$

Avec I_{exp}, l'intensité mesurée en coups de la raie principale de la phase concernée.

Résumé

Les futurs réacteurs nucléaires de IVème Génération doivent répondre à de nouvelles exigences en matière de sûreté, d'efficacité énergétique, et d'intégration dans le cycle du combustible nucléaire. Pour répondre à cette demande, le CEA développe de nouveaux concepts de réacteurs à neutrons rapides refroidis au sodium. Le matériau de gainage combustible candidat pour le cœur de ces réacteurs est l'acier 15-15Ti AIM1 (Austenitic Improved Material #1). Il s'agit d'un acier inoxydable austénitique avancé contenant 15% de chrome et 15% de nickel en masse, stabilisé au titane et utilisé à l'état faiblement écroui.

Cet acier présente une singularité marquée de comportement : sa ductilité diminue fortement entre 20°C et 200°C, ce qui se traduit par une diminution d'un facteur proche de 3 des allongements homogène et à rupture dans cet intervalle de température. Par ailleurs, l'effet du vieillissement thermique sur sa microstructure et son comportement mécanique reste peu connu aux températures les plus basses des conditions de service en réacteur, c'est-à-dire entre 400°C et 600°C.

Dans ce contexte, le but de cette thèse est double :

- Améliorer notre compréhension des mécanismes de déformation responsables de la singularité de comportement constatée à 200°C ;
- Etudier l'influence d'un vieillissement hors flux dans une gamme de température comprise entre 400°C et 600°C sur les évolutions microstructurales et sur le comportement en traction incluant la singularité de comportement.

Elucider l'origine de la singularité de comportement en lien avec les mécanismes de déformation a requis une approche multi-échelle regroupant des techniques comme les essais de traction, la diffraction des électrons rétrodiffusés (EBSD) et la Microscopie Electronique en Transmission (MET). Elles ont permis de révéler :

- Une coexistence du maclage et du glissement de dislocations parfaites à 20°C ;
- Une prédominance du glissement de dislocations parfaites associée à du glissement dévié à 200°C ;
- Une hausse de l'Energie de Défaut d'Empilement (EDE) entre 20°C et 200°C, avec des valeurs respectivement de 27 mJ/m² et de 46 mJ/m².

Ainsi, nous avons pu établir que l'évolution des mécanismes de déformation entre 20°C et 200°C s'explique par une compétition entre le maclage et le glissement dévié pour minimiser l'énergie totale du matériau. Il apparaît que l'activation du maclage à 20°C conduit à un durcissement important de la microstructure par effet Hall-Pech dynamique, ce qui se traduit par une ductilité élevée. Au contraire, l'activation du glissement dévié associée à la disparition du maclage à 200°C résulte en un durcissement limité de la microstructure responsable d'une localisation précoce de la déformation.

Pour des vieillissements entre 400°C et 600°C et des temps de maintien allant jusqu'à 1000 h, on ne perçoit pas d'indice notable de restauration. En revanche, des examens au MET permettent de déterminer un nouveau seuil d'apparition des carbures de titane (TiC) nanométriques pour un maintien isotherme de 5000 h à 500°C.

En traction, on constate sur tous les états vieillis entre 400°C et 600°C un gain à la fois en résistance mécanique (R_m) et en ductilité (A_g et A_t) par rapport à l'état initial écroui. Il est à noter que le gain très significatif en ductilité constaté sur toute la plage de température testée (entre 20°C et 400°C) est couplé à une augmentation du coefficient d'écrouissage. Une hypothèse proposée pour expliquer cette évolution de comportement repose sur le rôle des TiC nanométriques (ou de leurs précurseurs) susceptibles d'épingler les dislocations. Notamment, ils empêcheraient les dislocations initialement présentes dans l'acier de s'annihiler ou de se recombiner avec les dislocations introduites par l'essai de traction.

Mots clés : RNR-Na, Acier austénitique, Essais de traction, Mécanismes de déformation, Maclage mécanique, Energie de défaut d'empilement, Vieillissement thermique, Carbure de titane nanométrique

Abstract

The fourth generation of nuclear reactors must meet new requirements for safety, energy efficiency, and integration into the nuclear fuel cycle. The CEA is a primary actor in this field and is developing new concepts for sodium-cooled fast reactors. The fuel cladding material being considered for these reactors is 15-15Ti AIM1 steel (Austenitic Improved Material #1), which is an advanced austenitic stainless steel containing 15-wt% chromium and 15-wt% nickel, Ti-stabilized and slightly cold-worked.

This steel exhibits a singular loss of ductility between 20°C and 200°C: the uniform and total elongations (UE and TE) are reduced by a factor of 3 in this temperature range. In addition, the effect of thermal aging on the microstructure and mechanical behavior is poorly known in the lowest operating conditions that are between 400°C and 600°C.

In this context, the objectives of this Ph.D. thesis are:

- Increase our knowledge of the deformation mechanisms involved in the singular behavior at 200°C ;
- Study the influence of a thermal aging between 400°C and 600°C on the microstructural evolutions and on the mechanical behavior, with particular attention on the singularity at 200°C.

Examining the relation between the singular behavior at 200°C and the related deformation mechanisms required a multi-scale approach combining techniques such as tensile tests, Electron Backscatter Diffraction (EBSD), and Transmission Electron Microscopy (TEM). The analyses revealed:

- A coexistence of twinning and perfect slip at 20°C;
- An extinction of twinning replaced by a predominance of perfect slip associated with cross-slip at 200°C;
- An increase of the Stacking Fault Energy (SFE) from 20°C to 200°C. In particular, the measured values are respectively 27 mJ/m² and 46 mJ/m².

The evolution of the deformation mechanisms of 15-15Ti AIM can be explained by a competition between twinning and cross-slip for releasing the strain energy of the material. At 20°C, both dislocation glide and twinning are active, and the twinning produces a “Dynamic Hall-Petch Effect”, which produces continual strain hardening of the microstructure even at high strains, which leads to high ductility. On the other hand, the stacking fault energy is high at 200°C, so twinning no longer occurs, but cross-slip becomes active. Thus, little strain hardening occurs at 200°C, which leads to the rapid onset of strain localization and reduced ductility.

Samples that were aged between 400°C and 600°C for 1000 hours exhibit no evidence of material recovery. However, TEM observations established a new threshold for the precipitation of nanometric titanium carbides after an isothermal treatment at 500°C for 5000 hours. Concerning the tensile properties, the aged states present a gain both in strength (especially in Ultimate Tensile Strength) and in ductility (UE, TE) compared to the initial cold-worked state. This gain in ductility is observed for all of the temperatures tested (between 20°C and 400°C) and is accompanied by an increase of the strain hardening rate of the material. One plausible hypothesis to explain this improvement of the mechanical behavior relies on the nanometric titanium carbides formed during the aging process. These precipitates could prevent by pinning the initially present dislocations to recombine or annihilate with the dislocations introduced by the tensile test.

Keywords: SFR reactors, Austenitic steel, Tensile tests, Deformation mechanisms, Mechanical twinning, Stacking fault energy, Thermal aging, Nanometric titanium carbide.