Compréhension et modélisation de l'influence du taux de renforts et de la texture de déformation sur la recristallisation des aciers ODS ferritiques

Benjamin Hary

▶ **To cite this version:**

Benjamin Hary. Compréhension et modélisation de l'influence du taux de renforts et de la texture de déformation sur la recristallisation des aciers ODS ferritiques. Chimie inorganique. Université Paris Saclay (COmUE), 2017. Français. NNT : 2017SACLS339 . tel-01968026

HAL Id: tel-01968026

https://theses.hal.science/tel-01968026

Submitted on 2 Jan 2019

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

université PARIS-SACLAY

NNT : 2017SACLS339

Thèse de doctorat

UNIVERSITÉ PARIS SUD
Comprendre le monde, construire l'avenir

Compréhension et modélisation de l'influence du taux de renforts et de la texture de déformation sur la recristallisation des aciers ODS ferritiques

Thèse de doctorat de l'Université Paris-Saclay
préparée à l'Université Paris-Sud

École doctorale n°571 Sciences chimiques : molécules, matériaux, instrumentation et biosystèmes (2MIB)

Spécialité de doctorat : Chimie

Thèse présentée à Gif-sur-Yvette, le 16 Novembre 2017, par

Benjamin Hary

Composition du Jury :

Damien FABRÈGUE Professeur, INSA Lyon (MATEIS)	Rapporteur
Angéline POULON Maître de conférences, Université de Bordeaux (ICMCB)	Rapporteur
Alexis DESCHAMPS Professeur, Université Grenoble-Alpes (SIMAP)	Président du jury
Marc BERNACKI Professeur, Mines ParisTech (CEMEF)	Examinateur
Marie-Hélène MATHON Ingénieur de recherche, CEA (Laboratoire Léon Brillouin)	Examinateur
Thierry BAUDIN Directeur de recherche CNRS, Université Paris-Sud (ICMMO)	Directeur de thèse
Roland LOGÉ Professeur, Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne (LMTM)	Co-Directeur de thèse
Yann de CARLAN Ingénieur de recherche, CEA	Encadrant CEA

DE LA RECHERCHE À L'INDUSTRIE
cea
PARIS-SACLAY

« *Never in the field of human conflict was so much owed by so many to so few* »

Winston Churchill, à propos des pilotes de la RAF pendant la bataille d'Angleterre, le 20 Août 1940

« *Tu sais Daisy, faut pas se leurrer, si je suis si souvent si bien accompagné, c'est pour mon pognon, c'est pas pour mon odeur, et ça ça fait mal* »

François Damiens *alias* Claudy Focan, Dikkenek

Sommaire

Remerciements **1**

Introduction **5**

Chapitre I. Contexte et état de l'art **9**

1. Contexte 10
2. Théorie de la recristallisation 12
   2.1 Physique de la recristallisation 13
      2.1.1 Forces motrices de la recristallisation 13
      2.1.2 Influence des particules de seconde phase : 16
      2.1.3 Influence de la mobilité des joints de grains : 18
      2.1.4 Influence des atomes en solution solide : 20
   2.2 Les différents mécanismes de recristallisation statique 20
3. Texture et orientation cristalline 22
   3.1 Description des orientations cristallines 22
   3.2 Espace et angles d'Euler : 22
   3.3 Figure de pôles directe 24
   3.4 Figure de pôles inverse 25
   3.5 La fonction de distribution des orientations cristallines (ODF) 26
   3.6 Textures dans les aciers de structure cubique centrée 27
      3.6.1 Les textures de déformation 27
      3.6.2 Les textures de recristallisation 28
4. Les aciers ODS : métallurgie et gamme de fabrication 28
   4.1 Le co-broyage 29
   4.2 La consolidation 30
      4.2.1 La compression isostatique à chaud 31
      4.2.2 Le filage à chaud 32
   4.3 Le laminage à froid à pas de pélerin 33
5. La précipitation 34
   5.1 Cinétique de dissolution et de précipitation 34
   5.2 Nature et tailles de précipités 35
   5.3 Influence du titane 36
6. La recristallisation dans les aciers ODS 36
   6.1 La recristallisation après mise en forme 37
   6.2 Influence de la déformation et de la texture sur la recristallisation 38
   6.3 Influence de la précipitation sur la recristallisation 45

Conclusion de l'état de l'art 46
Bibliographie 47

Chapitre II. Matériaux et techniques expérimentales 53

1. Matériaux de l'étude 54
2. Outils de caractérisation expérimentale 55
2.1 Directions macroscopiques et découpe des échantillons 55
2.2 Diffraction des électrons rétrodiffusés (EBSD) 55
2.2.1 Préparation des échantillons 55
2.2.2 Acquisition 55
2.2.3 Traitement des données 57
2.3 Microscope Electronique en Transmission 60
2.4 Diffusion des neutrons aux petits angles (DNPA) 62
2.5 Calorimétrie différentielle à balayage (DSC) 65
2.6 Déformation à froid après filage 66
2.6.1 Compression uniaxiale 67
2.6.2 Compression multiaxiale alternée (CMAA) 67
2.7 Nano-indentation instrumentée 70
Conclusion : 70
Bibliographie 71

Chapitre III. Influence du taux de renforts sur les évolutions microstructurales dans les nuances filées 73

1. Introduction 74
2. Caractérisations microstructurales 74
2.1 Essais de micro-dureté 74
2.2 Analyse des microstructures et des textures 75
2.2.1 État de reception 75
2.2.2 Après recuit isotherme 79
3. Etude de la précipitation 84
3.1 Caractérisation des nanoparticules 84
3.2 Caractérisation de la précipitation intermédiaire 88
4. Stabilité des phases et influence de la composition chimique 91
4.1 Analyse thermique par calorimétrie différentielle 91
4.2 Transformation de phases partielle dans les ODS ferritiques 94
5. Mécanismes d'évolutions microstructurales 96
5.1 Croissance des grains dans la nuance NonR 96
5.2 Compétition entre pressions motrice et retardatrice dans les nuances ODS 97
5.3 Restauration dans la nuance STi 98

5.4 Restauration et croissance anormale dans la nuance R0,05 100
5.4.1 Modèle de croissance anormale utilisé 101
5.4.2 Etude de 3 configurations modèles 103
5.4.3 Application du modèle aux microstructures expérimentales 105
5.4.4 Conclusion sur la croissance anormale et comparaison avec la nuance STi 106
Conclusion sur l'influence du taux de renforts sur la stabilité des microstructures filées 108
Bibliographie 109

Chapitre IV. Influence de la déformation plastique à froid sur la recristallisation des ODS 113

Introduction 114
1. Déformation par compression uniaxiale 114
1.1 Compression dans la direction de filage 114
1.1.1 Etats déformés 114
1.1.2 Etats recuits 120
1.1.3 Influence du taux de déformation 127
1.1.4 Etude de la nano-précipitation dans les états recuits 131
1.1.5 Mesure des températures de recristallisation 135
1.1.6 Discussion des mécanismes de germination 136
1.2 Influence du chemin de déformation 143
1.2.1 Etats déformés 143
1.2.1 Etats recuits 146
2. Compression multi-axiale alternée 151
2.1 Comportement mécanique 152
2.2 Caractérisation des microstructures 155
2.3 Dissolution des nano-oxydes par déformation plastique 159
2.3.1 Résultats 159
2.3.2 Discussion 162
Conclusion sur l'influence de la déformation à froid sur la recristallisation des ODS 164
Bibliographie 165

Chapitre V. Modélisation de la croissance de grains et de la recristallisation statique dans les ODS 169

Introduction 170
1. Modélisation par méthode Monte Carlo 170
1.1 Etat de l'art 170
1.2 Description du modèle 173
1.2.1 Energie d'interface 174
1.2.2 Energie stockée 175

1.2.3 Epinglage par les nanoparticules 176
1.2.4 Traitement des pixels non-indexés 177
1.3 Mécanismes considérés : 177
1.3.1 Croissance de grains : 177
1.3.2 Recristallisation discontinue par germination saturée (SSN) : 177
1.3.3 Introduction d'une population de nanoparticules : 178
1.3.4 Exemples 178
1.4 Résultats obtenus 180
1.4.1 Microstructure filée 180
1.4.2 Microstructure déformée par compression simple 188
1.4.3 Conclusion sur la méthode Monte Carlo 194
2. Comparaison avec la méthode déterministe LevelSet 195
2.1 Croissance de grains sans particules 196
2.2 Croissance de grains avec des nanoparticules 198
2.3 Croissance de grains avec des particules micrométriques 200
Conclusion sur la modélisation 202
Bibliographie 204

Chapitre VI. Propriétés en traction : étude expérimentale et modélisation .. 207

Introduction 208
1. Essais de traction 208
2. Mécanismes de durcissement structural à température ambiante 214
2.1 Durcissement par les éléments en solution solide 215
2.2 Durcissement par les joints de grains 216
2.3 Durcissement par les dislocations 216
2.4 Durcissement par les précipités 216
2.5 Analyse des contributions 217
Conclusion sur les propriétés en traction 220
Bibliographie 222

Chapitre VII. Analyse des gammes de fabrication des tubes produits au CEA 225

Introduction 226
1. Les gammes CEA pour les tubes ferritiques 226
2. Comparaison avec les gammes japonaises 228
Conclusion 230
Bibliographie 231

Conclusion générale 233

Perspectives 235
2.1 La recristallisation dans la gamme de mise en forme actuelle 235
2.2 Réflexion sur l'optimisation des nuances CEA 235
2.2.1 Composition chimique 235
2.2.2 Procédé d'élaboration et de mise en forme 237
2.3 Etudes complémentaires 237
Bibliographie 238

Annexe A : Compléments sur les microstructures et les textures 239
1. Cartographies IPF de poudres brutes de broyage et recuites 1h à 1100°C 239
2. Cartographies IPF des nuances R0,3, R0,2 et R0,1 brutes de filage et après recuit 1h à 1300°C 240
3. Mesure par DRX dans la nuance R0,05 avant et après recuit 1h à 1300°C 241
4. Micrographie optique de la nuance STi recuite 10h à 1150°C 244
5. Analyse par microsonde de Castaing de la nuance STi recuite 6 min à 1300°C 245
6. Cartographie IPF de la nuance STi déformée par CU//DT ($\varepsilon = 0,7$) et recuite 1h à 1150°C 246

Annexe B : Compléments sur la précipitation dans les états compressés à froid et recuits 247
1. Caractéristiques des distributions de nano-particules avant et après compression à froid et recuits 247
2. Clichés MET des nanoparticules après recristallisation 248

Annexe C : Nuances déformées par compression multi-axiale alternée (CMAA) 249
1. Courbes de la déformation plastique appliquée par frappe : 249
2. Cartographies IPF des nuances après déformation par CMAA 250
3. Image FSD des nuances déformées par CMAA et recuites 1h à 1150°C 251
4. Courbes de DNPA des nuances déformées par CMAA : 253

Annexe D : Essais de traction et durcissement structural 254
1. Courbes de traction à 20°C et 700°C 254
2. Identification des contributions des dislocations et des précipités au durcissement structural 259

Annexe E : Dépouillement des courbes brutes de DNPA 260

Remerciements

Pour commencer, je tiens à remercier grandement Angéline Poulon et Damien Fabrègue d'avoir accepté de rapporter cette thèse et par conséquent d'en avoir fait une lecture approfondie et une critique détaillée, je sais que cela représente un travail très conséquent dans une période particulièrement chargée. Je remercie aussi sincèrement les autres membres du jury qui ont examiné ce travail: Marie-Hélène Mathon qui m'a guidé dans mes premiers pas en Diffusion des Neutrons aux Petits Angles et Marc Bernacki avec qui les échanges sur la modélisation ont été particulièrement enrichissants. Enfin, merci à Alexis Deschamps, qui m'a fait l'honneur de présider ce jury et qui m'avait dispensé un enseignement très riche que j'ai redécouvert en thèse en travaillant sur la compréhension du comportement mécanique.

Je tiens ensuite à remercier chaleureusement Thierry Baudin et Roland Logé, mes directeurs de thèse, pour leur expertise scientifique à laquelle j'ai toujours pu me raccrocher en cas de besoin mais aussi pour leur gentillesse et la confiance qu'ils m'ont accordé durant ces trois années de thèse.

Par ailleurs, la structure et les moyens dont dispose le CEA m'ont évidemment été bénéfiques au cours de cette thèse et à ce titre, je remercie tour à tour Philippe Chapelot et Laurence Portier de m'avoir accueilli au sein du SRMA. De même, merci à Jean-Luc Béchade puis à Jean Henry grâce à qui j'ai toujours pu travailler dans de bonnes conditions au LA2M. Je remercie également les responsables du projet MACNA, Marion le Flem puis Caroline Bisor.

Mon engouement pour cette thèse aurait surement été moindre sans l'encadrement de Yann de Carlan. Muni de son désormais célèbre « c'est impec champion ! », il garde toujours un optimisme à tout égard, qui je l'avoue s'est avéré contagieux. Ainsi, je lui dis un grand merci pour la confiance qu'il m'a accordé dès le début et pendant les trois années qui ont suivi. J'espère que nous aurons encore l'occasion d'échanger par la suite, autant professionnellement que personnellement, autour d'un jus de patate de l'Est de l'Oural.

Je remercie maintenant toutes les personnes grâce auxquelles j'ai pu réaliser ce travail de thèse dans des conditions optimales : Tout d'abord Elodie, qui a pris le temps de me former à l'EBSD et s'est toujours arrangée pour me permettre d'avoir accès au MEB (à ce propos, j'ai emporté une pièce en souvenir, je te laisse trouver laquelle) ; Stéphane, bien qu'il soit breton, pour avoir réalisé les essais de nano-indentation et la dissolution sélective, et Thomas, grâce à qui j'ai toujours pu bénéficier d'un accès aux fours et aux équipements d'analyse thermique ainsi que de conseils pour le traitement des données.

Je remercie aussi tout particulièrement Joël Ribis, pour avoir réalisé les manips de microscopie en transmission et pour son expertise quant à la discussion des résultats. Merci également à Didier pour les analyses par microsonde et pour son humour, certes breton, mais que j'ai néanmoins apprécié !

Mes remerciements vont également à Pierre Wident et à Jean-Luc Flament du LC2M pour la planification et la réalisation des essais mécaniques. De même, merci à Denis Sornin du LTMEx pour l'approvisionnement en matériau et pour les discussions scientifiques occasionnelles mais toujours très intéressantes.

Je n'oublie pas non plus Marc-Antoine, qui a également eu cette chance inouïe de faire sa thèse sur la recristallisation des ODS. Ses explications pour le dépouillement des données de DNPA et plus généralement les discussions que nous avons eu ensemble m'ont été très bénéfiques. De plus, je remercie tout particulièrement Mathijs van der Meer de l'EPFL pour le temps qu'il a passé à réaliser les essais de

déformation toujours de manière très rigoureuse, François Brisset pour la qualité de ses cartographies EBSD et Benoit Arnal pour la préparation minutieuse des lames MET.

Merci également à Raphaëlle, alias « Radio Guillou 101.3 », pour avoir, à ma demande, retraité 3 fois des analyses de DRX et aussi pour ses critiques cinématographiques du matin. Je remercie Adrien qui m'a permis de connaitre les joies de l'encadrement d'un stagiaire (même ce n'est pas toujours facile avec lui) ainsi qu'à Flore pour la coopération sur la modélisation que j'ai trouvé très enrichissante. Enfin, un grand merci à Liliane puis Karine pour m'avoir allégé des formalités administratives.

Je souhaite également associer à ces remerciements les autres membres du laboratoire et du service pour leur sympathie au quotidien lors des repas, des pauses, ou simplement au détour d'un couloir. Merci donc à Caroline, Véronique, France, Paul, Jean-Christophe, Françoise, Amélie, Georges, Dominique, Justine, Denis M, Thierry, Sylvie, Alexandra, Marie-Pierre, Olivier C, Lionel, Joël M, Fabien et tous les autres.

Ces trois années de thèse n'auraient pas été les mêmes sans les autres doctorants, et maintenant amis, du laboratoire. Je me suis dit que j'allais écrire cette partie par ordre de préférence mais en réalité, cela aurait été frustrant, surtout pour le dernier (indice : c'est une belle blonde qui bosse sur le champ de phase). Ainsi, je vais donc simplement procéder par ordre d'ancienneté. Pour commencer, merci à Gilles, dont le coup de pied retourné fait encore frémir de peur les plus grands boxeurs de notre temps ; Sylvain, mon mentor des aciers, qui réussit l'exploit d'être à la fois mon ancien et mon futur collègue et Nicolas (dit Nico-Pomme) pour m'avoir appris la théorie de la gamba. Merci aussi aux autres « anciens » du laboratoire : Emma, Camille, Nesrine, Mickael et Isabelle pour avoir participé à la bonne ambiance lors de mon début de thèse.

Passons à la génération d'en dessous : Merci à Baptiste entre autres pour m'avoir chaleureusement accueilli en Australie avant le début de rédaction, Bertrand pour avoir été mon meilleur acolyte quand il s'agissait de faire des blagues sur Marine, et Pierre pour m'avoir fait réaliser que nonchalance extrême et excellence scientifique n'étaient pas incompatibles. Merci aussi à Olivier T et Emilie pour leur sympathie quotidienne.

Vient le tour de ceux avec qui j'ai mené ces trois années du début à la fin : Merci à Vianney, mon fidèle collègue de bureau, pour m'avoir permis d'entretenir mes connaissances en humour belge. Merci aussi à Alexia (et à sa voiture), pour sa bonne humeur et son vocabulaire singulier du 93. Enfin, mes remerciements vont à Marine, entre autres pour avoir essayé pendant trois ans de me convaincre de l'existence des requins pamplemousses en Guadeloupe.

J'associe à ces remerciements Esther, qui risque de se transformer en minion avant la fin de sa thèse ; Adrien, qui je l'espère insérera un chapitre sur les photomontages Powerpoint dans son manuscrit et Amal. Pour finir, je souhaite maintenant bon courage aux plus jeunes, Flore, Aymeric et Gabriel pour les trois années qui viennent.

Merci également aux collègues Phelma du CEA ; j'ai ainsi nommé Adriana, Barbara, Benjamin, Margaux et Olivier avec qui j'ai pu ressasser les vieux souvenirs d'école d'ingénieurs lors de quelques repas du midi. Je tiens aussi à mentionner tous mes amis qui m'ont permis d'avoir une vie sociale épanouie en dehors du travail : Théo, Remy, Clément C, Nabil, Hugo, Clément T, Pauline, Thomas, Amaury, Romain et tous les autres ! Enfin, j'ai une pensée pour mes *tovaritchs* russes : Théodore, Fabien et Arnaud.

Merci à mon chien Tango, pour être content de me voir en toute circonstance, même quand je sors des toilettes.

Je souhaite remercier (et féliciter) Elise pour m'avoir supporté durant cette dernière année de thèse.

Pour finir, un grand merci à ma famille et tout particulièrement à mes parents pour m'avoir encouragé et soutenu tout au long de mes études et m'avoir permis de faire aujourd'hui ce qui me plait. Je leur en suis profondément reconnaissant.

Introduction

Les Réacteurs à Neutrons Rapides refroidis au sodium (RNR-Na) constituent en France un des concepts les plus avancés pour les réacteurs de quatrième génération. Pour assoir la rentabilité de cette filière, il est nécessaire de développer un gainage du combustible extrêmement performant. Au CEA, de nouveaux alliages ferritiques/martensitiques ODS (Oxide Dispersion Strengthened) renforcés par une distribution nanométrique d'oxydes sont en cours de développement avec une forte concurrence internationale. Ces matériaux sont également envisagés pour les gainages optimisés (Accident Tolerant Fuel) des réacteurs GENII/III et pour certains composants de structure dans les réacteurs à fusion. En effet, leur matrice ferritique leur procure une très bonne résistance au gonflement sous irradiation entre 400 et 600°C jusqu'à des doses de 200 dpa (déplacements par atome) et la distribution de nano-oxydes renforce considérablement leurs propriétés en fluage.

Ces matériaux de très haute technicité sont fabriqués par métallurgie des poudres, via le procédé de mécanosynthèse qui permet de dissoudre les oxydes durant le broyage et de les faire reprécipiter de manière fine et homogène pendant la consolidation à chaud. Une fois consolidés, ces matériaux sont mis en forme à froid, le procédé de référence étant le laminage à pas de pèlerin pour la fabrication des tubes de gainage.

Les passes d'écrouissage à froid génèrent des contraintes internes dans le matériau qu'il est nécessaire de diminuer avec des traitements de restauration afin de ne pas dépasser des valeurs critiques de dureté (proche de 400 HV) et de limiter le risque d'endommagement des pièces. De plus, la déformation induit une texture morphologique et cristallographique de la microstructure qui peut affecter le comportement mécanique du matériau. Dans les aciers ODS ferritiques (Cr > 12%), les traitements de restauration à haute température permettent de relaxer partiellement les contraintes internes mais ne permettent pas d'effacer la texture de déformation. Une alternative consiste à recristalliser le matériau afin de faciliter la mise en forme et d'obtenir un matériau avec des propriétés plus isotropes.

Classiquement les ODS présentent une stabilité remarquable avec des températures de recristallisation très élevées ($> 0{,}9T_{fusion}$) et un recuit à ces températures est difficilement envisageable dans le cas d'une production industrielle. Cette stabilité est due aux nano-oxydes qui épinglent fortement les joints de grains et les dislocations et qui ne se dissolvent pas, même à très haute température. Il en découle des microstructures seulement partiellement recristallisées et souvent hétérogènes. Pour maîtriser la recristallisation dans ces matériaux, il est nécessaire d'optimiser le taux de renforts introduit et d'appliquer des traitements thermomécaniques adaptés.

Il est maintenant essentiel pour le programme MACNA (MAtériaux de Cœur pour les réacteurs à neutrons rapides refroidis au sodium (NA)) et le développement des nuances ODS ferritiques de connaître avec précision d'une part, les teneurs limites en taux de renforts qui permettent de contrôler au maximum ces phénomènes, et d'autre part, les textures et taux de déformation nécessaires pour une recristallisation homogène. Dans le but d'effectuer une étude générique pour comprendre et maîtriser la recristallisation des ODS, six nuances modèles avec différents taux de renforts, présentées sur la Figure 1, ont été élaborées et consolidées par filage à chaud. Dans un premier temps, la stabilité thermique des microstructures à l'état de réception (brut de filage) a été étudiée. Ensuite, ces nuances ont été déformées à froid selon différents chemins de déformation afin d'analyser l'influence de la texture de déformation et de l'énergie stockée sur la recristallisation. Un modèle Monte Carlo a été développé pour permettre une

meilleure compréhension des mécanismes mis en jeu. De plus, les propriétés mécaniques en traction de différents états métallurgiques ont été déterminées et une modélisation du durcissement structural a été utilisée pour identifier les contributions des différents éléments de la microstructure.

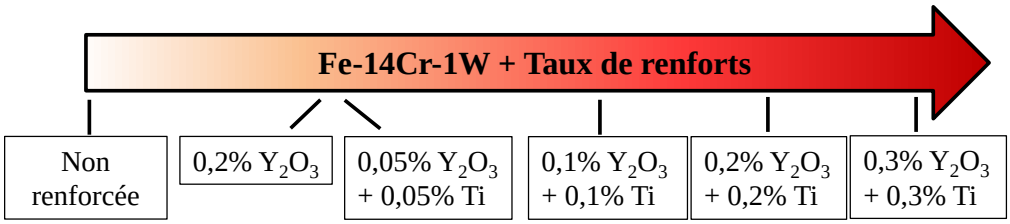


Figure 1 : Composition chimique nominale des nuances modèles

Ce manuscrit est composé de sept chapitres numérotés de I à VII :

- Dans un premier temps, une présentation du contexte de l'étude est effectuée suivie d'une synthèse bibliographique sur la fabrication des aciers ODS et sur leurs microstructures. Les mécanismes de recristallisation dans les métaux sont également présentés et certains travaux effectués sur la recristallisation des ODS ont été analysés plus en détails. Ce chapitre montre entre autres la difficulté d'obtenir des microstructures homogènes lors de la mise en forme à froid dans les ODS.

- Le deuxième chapitre présente les matériaux de l'étude et leur composition chimique ainsi que les différentes techniques expérimentales utilisées et les méthodes de dépouillements associées à ces techniques.

- Le troisième chapitre constitue l'étude expérimentale de la stabilité thermique des nuances filées en fonction du taux de renforts suite à différents traitements thermiques. L'évolution des microstructures et des textures a été analysée principalement par EBSD tandis que les distributions de nanoparticules ont été mesurées par Diffusion des Neutrons aux Petits Angles. A partir des résultats obtenus, des modèles analytiques de croissance de grains sont proposés et leur validité est discutée. Dans ce chapitre, l'existence d'un taux de renforts seuil au-delà duquel les microstructures sont très stables a été identifiée.

- L'influence de l'écrouissage à froid étant connue pour favoriser la recristallisation, on s'intéresse dans ce quatrième chapitre à déformer les nuances par des modes de compression variés. Les influences du taux de déformation et de la température de recuit sur la recristallisation sont discutées. On montre notamment dans ce chapitre qu'il y a une forte influence du chemin de déformation et de la distribution de l'énergie stockée sur les microstructures recristallisées. L'émergence des textures de recristallisation est également expliquée. Enfin, l'analyse de la microstructure et de la nano-précipitation d'une nuance ODS hyper-déformée est présentée avant et après recuit.

- Le cinquième chapitre est dédié à la modélisation par la méthode Monte Carlo de la recristallisation et de la croissance des grains dans les aciers ODS. Les simulations sont effectuées à partir de cartographies EBSD expérimentales. Différents mécanismes sont simulés en présence et en l'absence de nanoparticules et les résultats obtenus permettent d'appuyer les discussions des chapitres III et IV. Certains des résultats sont comparés avec

une autre technique de modélisation, basé sur la méthode LevelSet (intégrée dans un formalisme élements finis), utilisée au CEMEF dans le cadre du stage de Flore Villaret[1].

- Dans le sixième chapitre, l'influence de la recristallisation sur les propriétés mécaniques est évaluée par des essais de traction à température ambiante et à 700°C. Les contributions à la limite d'élasticité sont estimées grâce à un modèle de durcissement structural. Ces essais de traction ont permis d'estimer un taux de renforts minimum pour le respect du cahier des charges.

- Enfin dans le dernier chapitre, les gammes de transformation actuelles des aciers ODS au CEA sont commentées et comparées à d'autres études afin de proposer des optimisations pour favoriser l'obtention d'une microstructure recristallisée et homogène en fin de gamme.

Le manuscrit s'achève sur une conclusion générale qui présente les principaux résultats obtenus et sur des perspectives concernant des études futures à conduire sur les compositions chimiques et les procédés de mise en forme des ODS. Des résultats complémentaires sont présentés dans les annexes.

[1] Flore Villaret, « 2D grain growth modeling in ODS steel with different full field approaches », Rapport de stage ingénieur ENSIACET, CEMEF-Mines ParisTech, 2017.

Chapitre I. Contexte et état de l'art

1. Contexte 10
2. Théorie de la recristallisation 12
2.1 Physique de la recristallisation 13
2.2 Les différents mécanismes de recristallisation statique 20
3. Texture et orientation cristalline 22
3.1 Description des orientations cristallines 22
3.2 Espace et angles d'Euler : 22
3.3 Figure de pôles directe 24
3.4 Figure de pôles inverse 25
3.5 La fonction de distribution des orientations cristallines (ODF) 26
3.6 Textures dans les aciers de structure cubiques centrés 27
4. La gamme de fabrication des aciers ODS 28
4.1 Le co-broyage 29
4.2 La consolidation 30
4.3 Le laminage à froid à pas de pélerin 33
5. La précipitation 34
5.1 Cinétique de dissolution et de précipitation 34
5.2 Nature et tailles de précipités 35
5.3 Influence du titane 36
6. La recristallisation dans les aciers ODS 36
6.1 La recristallisation après mise en forme 37
6.2 Influence de la déformation et de la texture sur la recristallisation 38
6.3 Influence de la précipitation sur la recristallisation 45
Conclusion de l'état de l'art 46
Bibliographie 47

1. Contexte

Actuellement, les enjeux énergétiques mondiaux poussent les pays à réfléchir à de nouveaux moyens de production d'énergie sûrs et plus économiques. L'industrie du nucléaire est particulièrement concernée par ces problèmes. En effet, en France, l'électricité d'origine nucléaire constitue l'une des sources les plus importantes puisqu'elle représente environ 80% de la production totale d'électricité. De nombreux réacteurs actuels arriveront en fin de vie dans les prochaines décennies et il est nécessaire de travailler à leur remplacement. Les organismes de sureté nucléaire sont particulièrement exigeants vis-à-vis des dangers potentiels pour l'environnement et les populations civiles. Ainsi, le forum Génération IV, issu d'une coopération internationale, envisage plusieurs solutions pour les réacteurs nucléaires du futur afin de répondre aux critères suivants :

- Sûreté accrue
- Compétitivité vis-à-vis des autres sources d'énergies
- Réduction de la production de déchets nucléaires
- Optimisation des ressources naturelles
- Résistance à la prolifération et aux attaques terroristes

Les réacteurs à neutrons rapides à caloporteur sodium (RNR-Na) ont été l'une des solutions proposées, et est celle la plus étudiée en France. Ces réacteurs ont déjà été étudiés par le passé et exploités à l'image des centrales Phénix et Superphénix. Le projet ASTRID devrait conduire à la construction d'un nouveau réacteur expérimental de ce type, dont la mise en service est prévue au-delà de 2020. Ces réacteurs sont refroidis par du sodium liquide qui a l'avantage d'avoir une capacité thermique importante et de ne pas « thermaliser » les neutrons, contrairement à l'eau utilisée dans les réacteurs à eau pressurisée (REP) par exemple. Les neutrons dits « rapides » possèdent une énergie élevée. Ils ont l'avantage de pouvoir provoquer une fission sur tous les noyaux lourds et également une transmutation des noyaux fertiles en noyaux fissiles. De plus, ce réacteur n'a pas besoin d'être mis sous pression, et avec le sodium, si la teneur en oxygène est contrôlée, les phénomènes de corrosion sont bien maîtrisés. Le RNR-Na a été proposé lors du forum Génération IV puisqu'il permettrait le recyclage des actinides et la génération de plutonium fissile (Pu^{239}) à partir d'uranium fertile (U^{238}), prolongeant ainsi son fonctionnement et limitant la quantité d'uranium nécessaire. Cependant, les neutrons rapides, de par leur énergie plus importante, sollicitent beaucoup plus les matériaux de gainage (150 déplacements par atome (dpa) à haute température (650°C)), et les alliages de zirconium utilisés dans les REP ne peuvent plus être utilisés dans le cas des RNR-Na. Les aciers austénitiques 316Ti et 15/15Ti sont envisageables pour cette application mais ils peuvent présenter un gonflement important au-delà d'une certaine dose d'irradiation [1], comme on peut le voir sur la Figure I.1. Ils seront donc utilisés durant les premières années de fonctionnement du réacteur ASTRID et devraient pouvoir supporter une dose de 100 à 120 dpa. Des études sont en cours pour optimiser leur durée de vie.

Afin d'obtenir des meilleurs rendements économiques, il est nécessaire d'utiliser des matériaux de gainage encore plus performants et capables de supporter des doses d'irradiation plus importantes. Les aciers renforcés par dispersion nanométrique d'oxydes, dit aciers ODS (Oxide Dispersion Strengthened), sont les candidats de référence et peuvent supporter des doses supérieures à 150 dpa. En effet, ces aciers présentent l'avantage de ne pas gonfler sous de fortes doses d'irradiation grâce à leur matrice de structure cubique centrée, ferritique ou martensitique [1]. De plus, ce sont des aciers qui possèdent une bonne

résistance à la corrosion et la présence des renforts accroît de manière significative les propriétés mécaniques, en particulier en fluage à haute température (Figure I.2).

De par leurs bonnes propriétés sous irradiation à hautes températures, les aciers ODS sont également envisagés comme matériau de structure pour les réacteurs à fusion. Le programme européen Eurofusion est d'ailleurs dédié au développement des ODS pour cette application.

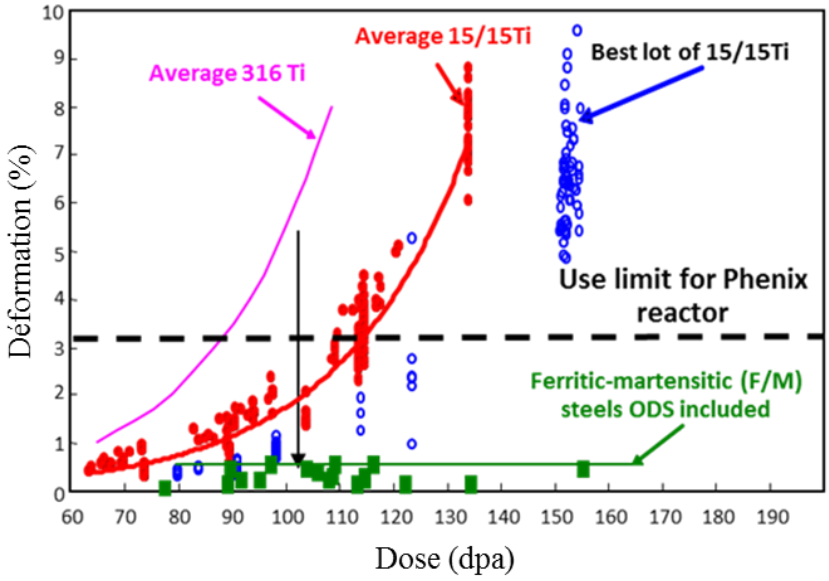


Figure I.1 : Gonflement sous irradiation dans le réacteur Phénix de différents types d'aciers [1]

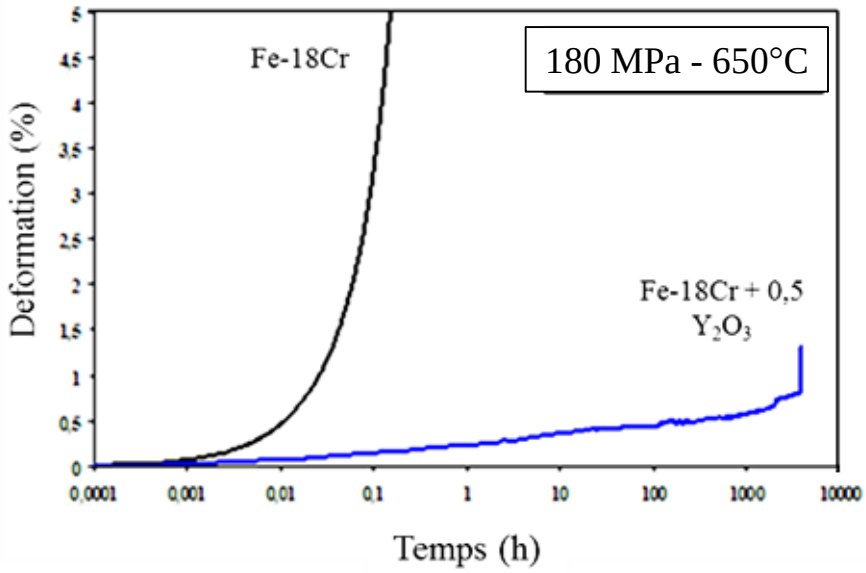


Figure I.2 : Influence des nano-renforts sur les propriétés en fluage à haute température [2]

Il existe principalement deux catégories d'aciers ODS, visibles sur la Figure I.3 : les ODS martensitiques (bleu) avec une teneur en chrome inférieur à 12% et les ODS ferritiques (rouge) avec une teneur en chrome de 12% à 20%. Les premiers présentent un comportement mécanique isotrope ainsi qu'une mise en forme relativement aisée grâce à une transformation de phase ferrite-austénite vers 900°C [3]. Cette transformation réinitialise totalement la microstructure et permet d'effacer les défauts introduits

lors de l'élaboration et de la mise en forme ainsi que les éventuelles textures morphologiques et cristallographiques [4]. Il s'en suit des propriétés mécaniques isotropes dans les différentes directions de sollicitation. Cependant, la quantité de chrome relativement faible dans ces aciers ODS les rend vulnérables à la corrosion, notamment lors des traitements de recyclage des gaines.

Concernant les aciers ODS ferritiques, leur teneur plus élevée en chrome leur confère une meilleure résistance à la corrosion. En contrepartie, ces aciers sont à l'état ferritique sur toute la gamme de température jusqu'à la température de fusion. Il y a donc beaucoup plus de difficultés à effacer la texture de déformation et à obtenir des microstructures isotropes suite à la mise en forme. Seule l'activation de mécanismes de recristallisation peut permettre de réinitialiser la microstructure et de ne pas dépasser un taux d'écrouissage critique (400 HV) au-delà duquel des fissures peuvent apparaître.

Ces deux catégories d'aciers ODS sont actuellement étudiés au CEA [5][6] en collaboration avec d'autres entités [7] et doivent encore être améliorés. Le comportement mécanique à chaud (ténacité, traction, fluage) ainsi que la mise en forme du matériau sont les axes prioritaires de développement. Dans le cadre de cette thèse, on se focalisera sur les aciers ODS ferritiques à 14%Cr, et plus particulièrement sur les problématiques de recristallisation.

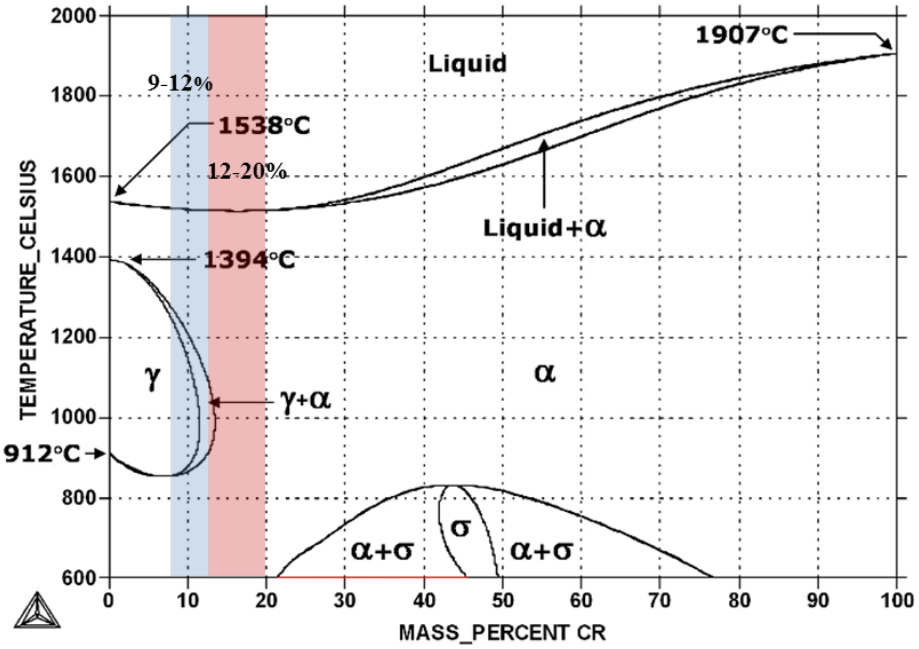


Figure I.3 : Diagramme de phases fer-chrome

2. Théorie de la recristallisation

Dans les métaux, la recristallisation est un processus thermodynamique durant lequel la microstructure, ayant stockée de l'énergie sous forme de défauts (principalement des dislocations) au cours de la déformation, tend à évoluer vers un état plus stable. Cette évolution est possible grâce à un apport d'énergie, généralement sous forme de chaleur, qui active des mécanismes intra et intergranulaires conduisant à la formation de germes puis de grains dit recristallisés. La recristallisation peut avoir lieu pendant une déformation en température, on parle de recristallisation dynamique, où bien suite à un traitement thermique sur un état déformé à froid, on parle de recristallisation statique. On se concentrera ici sur les mécanismes de recristallisation statique.

2.1 Physique de la recristallisation

2.1.1 Forces motrices de la recristallisation

La recristallisation statique peut être décomposée en deux étapes : la germination et la croissance de ces germes. Il est admis que la germination se fait par mouvements de dislocations et plus généralement de sous-joints (joints de grains faiblement désorientés) au sein de la matrice déformée [8]. Les dislocations se recombinent conduisant à l'apparition de cellules restaurées au sein de la matrice déformée [9]. Certaines de ces cellules vont alors conduire à la formation de germes. C'est pourquoi les germes recristallisés ont en général une orientation cristallographique qui était déjà présente (ou proche) dans la matrice déformée. Les germes sont généralement séparés de la matrice écrouie par des joints de grains fortement désorientés puisque c'est en partie la mobilité importante de ces interfaces qui va permettre la croissance des germes par la suite [10]. Il existe des zones préférentielles pour l'apparition des germes qui sont les joints de grains de la matrice déformée et les zones fortement désorientées (autour de grosses particules, bandes de cisaillement et de déformation). Une fois la formation des germes achevée, on peut s'intéresser à l'évolution du système gouvernée par la valeur de l'énergie libre de Gibbs, G. Soit un système de deux grains A et B séparés par un joint de grains, on suppose le grain B comme étant un germe recristallisé et le grain A comme étant un grain écroui. L'énergie libre totale du système G est égale à :

$$G = g_A V_A + g_B V_B + \gamma S_{JG} \qquad \text{(I.1)}$$

Où g et V correspondent respectivement à l'énergie libre par unité de volume et au volume des grains A et B, γ est l'énergie d'interface du joint de grains et S_{JG} sa surface. Il est important de noter que l'énergie d'interface dépend de la désorientation θ de cette interface. D'après le modèle de Read et Shockley [11], elle augmente progressivement avec la désorientation pour les angles faibles puis atteint une valeur constante γ_m à partir de $\theta_m = 15°$. Cette énergie peut être calculée grâce à l'équation de Read et Shockley :

$$\gamma = \gamma_m \frac{\theta}{\theta_m}\left(1 - ln\frac{\theta}{\theta_m}\right) \qquad \text{(I.2)}$$

L'angle de 15° est généralement considéré comme la valeur seuil entre un joint faiblement désorienté et un joint fortement désorienté bien que d'autres valeurs comprises entre 5° et 15° peuvent être choisies en fonction des microstructures et du matériau [12][13][14]. Les différences entre ces deux types d'interfaces seront explicitées par la suite. Puisqu'un système thermodynamique tend toujours à évoluer vers une énergie libre plus faible, l'énergie motrice (en réalité une pression) P_{tot} qui régit la croissance des germes pendant la recristallisation correspond à l'opposé du gradient d'énergie à travers le joint de grains. On peut donc écrire que :

$$P_{tot} = -\frac{dG}{dV} = -(g_A \frac{dV_A}{dV} + g_B \frac{dV_B}{dV} + \gamma \frac{dS_{JG}}{dV}) \qquad \text{(I.3)}$$

Le volume total du système est constant d'où :

$$\frac{dV_B}{dV} = -\frac{dV_A}{dV}$$

On obtient que:

$$P_{tot} = (g_B - g_A)\frac{dV_A}{dV} - \gamma\frac{dS_{JG}}{dV} = E_s + P_c \quad \text{(I.4)}$$

Il est donc possible de décomposer la pression motrice totale en deux contributions : l'une volumique, c'est la pression motrice due à l'énergie stockée (E_s) et l'autre surfacique, que l'on dénomme pression capillaire (P_c). Dans un premier temps, on considère un joint de grains plan qui se déplace sans variation de surface (Figure I.4). La pression capillaire (composante surfacique) P_c est alors nulle et le mouvement du joint est uniquement lié à la pression volumique qui se traduit par une différence d'énergie stockée. L'énergie stockée dans un grain est proportionnelle à la densité de dislocations ρ qu'il contient. La pression motrice volumique due à l'énergie stockée peut ainsi s'écrire [8]:

$$E_s = \alpha\mu b^2(\rho_A - \rho_B) \quad \text{(I.5)}$$

Avec α une constante égale à 0,5, μ le module de cisaillement et b le vecteur de Burgers. On constate que plus la densité de dislocations du grain A est importante par rapport à celle du grain B, plus l'énergie motrice est élevée et favorise le mouvement du joint de B vers A. Gouverné par cette énergie motrice, le système va donc évoluer jusqu'à l'équilibre, c'est-à-dire que le germe recristallisé B va croître aux dépens du grain écroui A jusqu'à ce que la différence de densité de dislocations entre les grains soit nulle. A l'échelle de la microstructure (ensemble du grain), ce mécanisme est appelé recristallisation primaire.

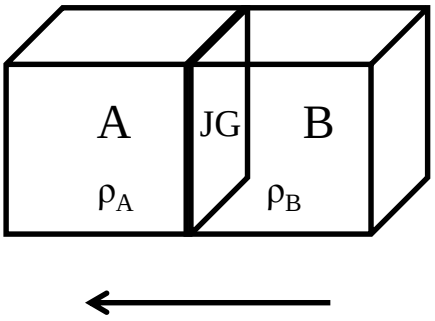


Figure I.4 : Schéma explicatif du mouvement d'un joint de grains induit par les forces volumiques

En réalité, un joint de grains est rarement plan et sa surface est amenée à évoluer, et ce même pendant la recristallisation primaire. Cependant la pression capillaire associée à cette énergie d'interface est en général faible par rapport à celle générée par le gradient d'énergie stockée pendant la recristallisation primaire. Ceci n'est plus le cas à la fin de la recristallisation primaire lorsque les densités de dislocations parmi les grains sont faibles et similaires. L'expression de la pression capillaire dans l'Eq. (I.4) montre que celle-ci est positive uniquement si la surface du joint diminue. Pour déterminer le domaine de validité de cette condition, il est nécessaire de s'intéresser aux pressions de part et d'autre du joint de grains. Dans le cas d'un joint de grains non plan séparant les grains A et B (Figure I.5), la pression capillaire exercée sur le joint du côté du grain A est définie par :

$$P_{C,A} = \frac{\gamma}{r_A} \quad \text{(I.6)}$$

Où r_A est le rayon de courbure moyen du joint défini par :

$$\frac{1}{r_A} = (\frac{1}{r_1} + \frac{1}{r_2}) \quad \text{(I.7)}$$

Ici, r_1 et r_2 représentent les rayons de courbure principaux du joint.

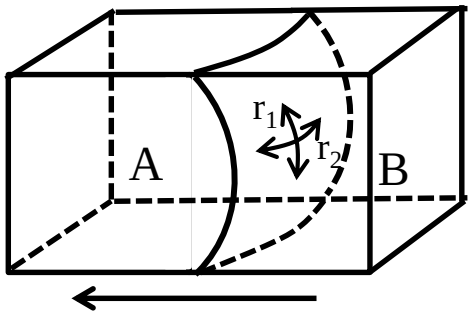


Figure I.5 : Mouvement d'un joint de grains induit par une énergie surfacique

La Figure I.6 illustre que dans le cas d'un grain sphérique, on a $r_1 = r_2 = R_A$, avec R_A le rayon du grain sphérique A. Ceci n'est pas le cas pour des morphologies non sphériques comme les grains ellipsoïdaux par exemple ou l'un des rayons de courbure est très supérieur à l'autre.

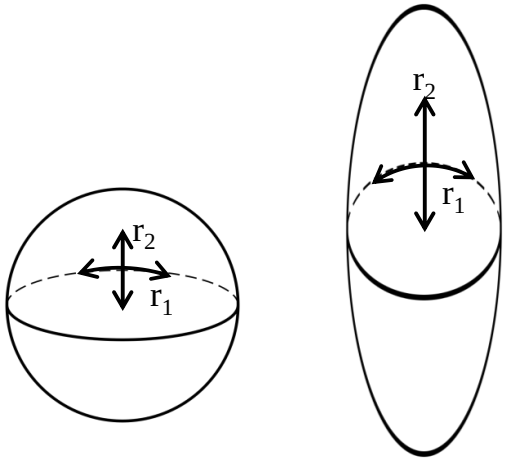


Figure I.6: Schéma simplifié d'un grain sphérique et d'un grain ellipsoïdal

Cette relation entre la courbure du joint de grains et le rayon du grain proposée par Burke et Turnbull [15] conduit, à partir de l'Eq. (I.6), à l'expression :

$$P_{c,A} = 2\frac{\gamma}{R_A} \quad \text{(I.8)}$$

De plus, il n'y a pas de vide entre les joints de grains dans les métaux solides et on peut considérer que les courbures de part et d'autre du joint sont simplement de signe opposé soit $r_B = -r_A$. On en déduit donc la pression capillaire exercée sur le joint du côté du grain B :

$$P_{c,B} = -2\frac{\gamma}{R_A} \quad \text{(I.9)}$$

On constate donc que plus le joint est courbé, plus le rayon de courbure est faible et plus la pression capillaire est importante. Le système sera à l'équilibre lorsque le rayon de courbure du joint tendra vers l'infini, c'est-à-dire une fois que le joint sera plan. Ceci est donc cohérent avec le fait que la surface du joint doit être minimisée. On s'aperçoit donc sur la Figure I.5 que le grain B qui est concave, est amené à croître au détriment du grain A, qui est convexe.

Cette pression capillaire est le moteur du phénomène classique de **croissance de grains** observé dans les métaux lors d'un traitement thermique. Dans le cas présent, il se produit après la recristallisation primaire. Dans le cas où la microstructure ne présente pas d'hétérogénéités, un phénomène de **croissance normale** est observé et tous les grains ont des tailles similaires à la fin du processus de croissance. Cela n'est pas toujours le cas notamment lorsque les microstructures présentent une distribution hétérogène de précipités, une texture accusée ou encore des joints spéciaux avec une énergie et une mobilité différente du reste de la microstructure. Il peut alors y avoir uniquement une croissance excessive de certains grains au détriment des autres : c'est une **croissance anormale**. Lorsque le système atteint l'équilibre, la microstructure n'est plus constituée que de gros grains et la texture peut être très différente de celle juste après recristallisation primaire. Il est commun d'appeler **recristallisation secondaire** ce phénomène de croissance anormale après la recristallisation primaire.

Il est néanmoins important de rappeler que l'expression de P_c mentionnée dans l'Eq. (I.8) constitue une approximation valable dans le cas théorique de grains sphériques. Des expressions analytiques plus détaillées peuvent être utilisées pour décrire la courbure (et donc la pression capillaire) de grains avec des morphologies plus réalistes et plus anisotropes [16]. Sallez [17] propose d'utiliser le ratio d'élongation des grains dans l'expression de la pression capillaire pour prendre en compte leur anisotropie. Dans un formalisme plus général, on décrit donc la pression capillaire appliquée sur un grain de rayon R par la relation :

$$P_c = \frac{\gamma}{\beta R} \quad \text{(I.10)}$$

Où β est une constante géométrique, égale à 0,5 dans l'hypothèse des grains sphériques de Burke et Turnbull. Néanmoins, dans le cas on l'on souhaite décrire précisément le mouvement de chaque interface dans une microstructure, il est nécessaire de se tourner vers des techniques de modélisation en champ complet [18] (champ de phases, vertex, LevelSet, automate cellulaire ou Monte Carlo).

2.1.2 Influence des particules de seconde phase :

Les mécanismes présentés ci-dessus sont donc les pressions motrices du processus de recristallisation et de croissance de grains dans la plupart des métaux. Cependant, il est souvent nécessaire de considérer une troisième force qui agit comme un frein. Cette force de freinage est due aux particules de seconde phase présentes dans le matériau et en particulier dans les aciers ODS. En effet, durant la recristallisation, les joints de grains et les dislocations peuvent être épinglés par ces particules et leur mouvement s'en trouve alors limité voir inhibé. Différents modèles ont été proposés pour décrire cette force de freinage. Le plus connu est celui de Smith et Zener en 1948 [19] qui décrit l'interaction d'un joint plan rigide avec une particule sphérique incohérente et immobile (Figure I.7). Il permet ainsi de déterminer la taille maximum que les grains peuvent atteindre en fonction de la population de particules de seconde phase lors d'un mécanisme de croissance normale des grains.

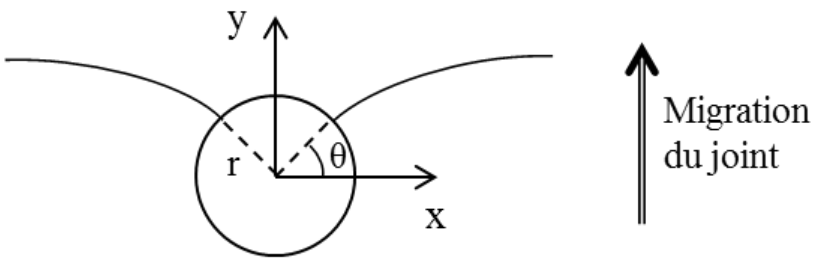


Figure I.7 : Epinglage d'un joint de grains plan par une particule sphérique

La résultante des forces selon une direction verticale opposée au sens de migration du joint a pour expression :

$$F = 2\pi r\gamma \ cos\,\theta\, sin\,\theta \tag{I.11}$$

Où r est le rayon du précipité et θ l'angle de contact entre le joint de grains et le précipité. Cette force de freinage est maximale pour θ = 45°, ce qui donne :

$$F_{max} = \pi r\gamma \tag{I.12}$$

Connaissant la force exercée par une particule, on peut déterminer la force de freinage à plus grande échelle en prenant en compte toutes les particules interagissant avec le joint par unité de surface. Ce nombre de particules est défini par :

$$N_s = \frac{3F_v}{2\pi r^2} \tag{I.13}$$

Avec F_v la fraction volumique de particules. On a ainsi :

$$P_Z = N_s F_{max} \tag{I.14}$$

Dans le cas du modèle du joint plan rigide, on définit donc la pression de Zener comme :

$$P_Z = \frac{3\gamma F_v}{2r} \tag{I.15}$$

On note que plus les particules sont fines et nombreuses, plus la force de freinage exercée est importante. Il faut également relever que plus l'énergie d'interface est élevée (joints fortement désorientés), plus la force d'épinglage est importante. Si on considère uniquement la pression capillaire, ce qui est le cas lors du phénomène de croissance de grains, l'équation d'équilibre des forces conduit à l'expression de la taille maximale qui peut être atteinte par les grains dans le cas d'une croissance normale :

$$\frac{\gamma}{\beta R_{max}} = \frac{3\gamma F_v}{2r} \tag{I.16}$$

Soit :

$$R_{max} = \frac{2r}{3\beta F_v} \quad \text{(I.17)}$$

Néanmoins, le formalisme de Zener nécessite de faire des hypothèses qui peuvent être particulièrement fortes dans certains cas. Pour ces raisons, l'épinglage par des particules peut être décrit par une relation plus générale telle que :

$$P_Z = K\frac{\gamma {F_v}^n}{r} \quad \text{(I.18)}$$

Avec K et n des coefficients qui varient en fonction de l'interaction du joint avec les particules, de la forme des particules ou encore de leur degré de cohérence avec la matrice. Dans une review, Manohar *et al.* [20] ont reporté différentes expressions de la pression d'épinglage utilisées dans la littérature avec les coefficients K et n associés. Dans le cas du formalisme de Zener, on a donc K = 3/2 et n = 1.
Au final, on peut exprimer la pression totale comme :

$$P_{tot} = P_v + P_s - P_Z \quad \text{(I.19)}$$

Soit :

$$P_{tot} = \alpha\mu b^2.\Delta\rho + \frac{\gamma}{\beta R} - K\frac{\gamma F_v^n}{r} \quad \text{(I.20)}$$

Le Tableau 1 présente l'estimation des pressions motrices (hyptothèse de grains sphériques) et d'épinglage (en considérant le formalisme de Zener) pour différents paramètres microstructuraux.

Pression due à l'énergie stockée				
ρ (m^{-2})	10^{14}	5.10^{14}	10^{15}	5.10^{15}
E_s (MPa)	**0,24**	**1,20**	**2,40**	**12**
Pression capillaire				
Rayon des grains (µm)	0,2	1	10	100
γ ($J.m^{-2}$)	0,79	0,79	0,79	0,79
P_c (MPa)	**7,9**	**1,6**	**0,2**	**0,02**
Pression de Zener				
Rayon des précipités (nm)	2	10	2	10
F_v (%)	0,5	0,5	1	1
P_z (MPa)	**3**	**0,6**	**5,9**	**1,2**

Tableau 1 : Ordres de grandeur des pressions (en MPa) pour différents paramètres microstructuraux

2.1.3 Influence de la mobilité des joints de grains :

La pression motrice totale identifiée ci-dessus représente donc la capacité du joint de grains à se mouvoir au sein de la microstructure. Cependant, la condition pour provoquer la migration de ces derniers dépend également d'une grandeur physique appelée mobilité qui influence la vitesse (V) du joint (assimilable à la vitesse de croissance du grain) telle que :

$$V = M.P_{tot} \quad \text{(I.21)}$$

Où M est la mobilité du joint de grains. Ce paramètre est dépendant de la température et suit une loi d'Arrhenius telle que :

$$M = M_0 exp(-\frac{Q}{RT}) \quad \text{(I.22)}$$

Avec M_0 le facteur pré-exponentiel, Q l'énergie d'activation de la diffusion aux joints de grains et R est la constante des gaz parfaits. Il est explicité ici la nécessité d'apporter de l'énergie extérieure au système, sous forme de chaleur, pour amorcer la recristallisation. En effet, si la température (T) tend vers 0, la mobilité tend vers 0 et il en est de même pour la vitesse du joint de grains. En réalité, l'Eq. (I.22) constitue l'expression générale de la mobilité mais elle ne prend pas en compte la désorientation du joint de grains, qui est pourtant déterminante. Humphreys [21] propose ainsi d'intégrer la désorientation dans l'expression de la mobilité :

$$M = M_0 ex\,p\left(-\frac{Q}{RT}\right) \times \left[1 - exp(-B\left(\frac{\theta}{\theta_m}\right)^n\right] \quad \text{(I.23)}$$

Avec n = 4, B = 5. La Figure I.18 montre l'évolution de la mobilité relative (M/M_0) en fonction de la désorientation du joint de grains à différentes températures en prenant θ_m = 15°. On remarque que la mobilité est presque nulle pour les très faibles angles de désorientation à toutes les températures. Celle-ci augmente rapidement avec la désorientation jusqu'à une valeur d'angle de 15°. Au-delà de cette valeur, la mobilité devient indépendante de la désorientation (sauf pour les joints CSL définis ci-après).

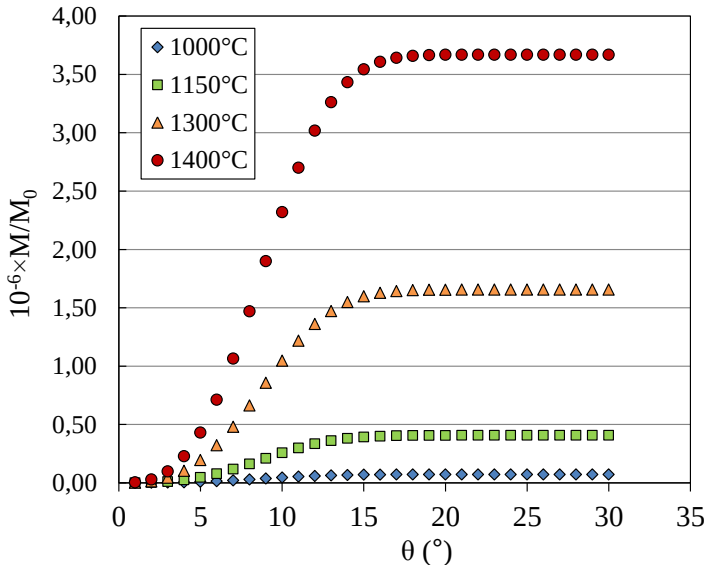


Figure I.8 : Mobilité relative en fonction de l'angle de désorientation du joint de grains à différentes températures

La Figure I.8 nous permet donc d'introduire la distinction entre deux types d'interfaces : les joints de grains faiblement désorientés (LAGB : Low Angle Grain Boundary) pour lesquels $\theta < \theta_m$ et M = f(θ) et les joints fortement désorientés (HAGB : High Angle Grain Boundary) où $\theta > \theta_m$ et M est constante.

- *Les joints faiblement désorientés (LAGB) :*

Ils sont régulièrement appelés sous-joints puisqu'ils sont généralement présents au sein des grains déformés. On peut également trouver des fractions significatives de LAGB dans des microstructures recristallisées fortement texturées. Les LAGB sont constitués d'un arrangement de dislocations géométriquement nécessaires (GND, définies dans le Chapitre II) créant une légère désorientation. Leur mobilité est relativement faible et la migration de ces interfaces se produit par des montées et des

glissements des dislocations, entre autre lors de la restauration et de la formation des germes pour la recristallisation [8].

- *Les joints fortement désorientés (HAGB) :*

Ces interfaces délimitent les grains dans la microstructure. Leur mobilité est supérieure à celle des LAGB et elle est indépendante de leur désorientation comme le montre Figure I.8. Le mouvement de ces joints est dû aux transferts d'atomes d'un grain à l'autre à travers l'interface pendant la recristallisation primaire et après, lors de la phase de croissance des grains. L'énergie d'interface associée à ces joints est égale à 0,79 $J.m^{-2}$ [22] dans les aciers ferritiques.

- *Cas particulier des HAGB, les joints CSL :*

Lorsque la désorientation du joint est d'une valeur d'angle donnée autour d'un axe particulier du réseau, cela conduit à des joints spéciaux appelés CSL (*Coïncidence Site Lattice*) qui présentent des propriétés différentes des HAGB conventionnels. Ces joints sont caractérisés par une valeur Σ*X* où l'inverse de *X* traduit la fraction de sites atomiques coïncidant entre les deux grains séparés par le joint. Les joints CSL présentent une valeur de X faible, c'est-à-dire une fraction relativement importante d'atomes en coïncidence. A titre d'exemple, les joints CSL Σ3 correspondent à une désorientation de 60° autour d'un axe <111> entre deux grains possédant 1/3 des atomes sur des sites qui coïncident (ce sont les macles dans les métaux cubiques à faces centrées). Ces joints avec des relations de coïncidence possèdent une mobilité plus faible que les HAGB et leur présence tend alors à ralentir la recristallisation. En revanche, malgré la nature plus ordonnée de ces interfaces par rapport aux HAGB conventionnels, leur énergie d'interface n'est pas nécessairement plus faible [23]. Plus la valeur de Σ est élevée, moins il y a de sites atomiques en coïncidence entre les deux grains et plus le joint se rapproche d'un HAGB conventionnel [24].

2.1.4 Influence des atomes en solution solide :

Dans le cas où le matériau contient une concentration importante d'atomes en solution solide tels que des éléments d'alliages, la mobilité des joints s'en trouve affectée. Il faut alors appliquer un terme correcteur afin de prendre en compte le drainage des atomes lors du mouvement des joints de grains. Soit M la mobilité du métal pur, la mobilité M' en présence d'une concentration élevée d'atomes en solution solide peut alors s'exprimer par :

$$M' = \frac{1}{M} + \alpha_{drag} X_i^{-1} \qquad \text{(I.24)}$$

Où X_i est la concentration en soluté *i* et α_{drag} est un paramètre dépendant de la température. Cependant, ce phénomène est rarement considéré dans les aciers ODS puisque ses effets sont négligeables devant l'épinglage exercé par les nanoparticules.

2.2 Les différents mécanismes de recristallisation statique

- *La recristallisation discontinue :*

Ce processus correspond à une recristallisation de type germination-croissance. Le matériau subit une restauration locale qui a pour conséquence l'annihilation des dislocations à l'intérieur des cellules ou leur

arrangement en sous-joints plus ou moins désorientés, processus appelé polygonisation. Cela induit la formation de sous-grains restaurés qui par coalescence et/ou croissance donnent naissance à des germes pratiquement exempts de défauts. Ces germes sont séparés de la matrice écrouie par des joints de grains plus ou moins désorientés. Ils vont alors croître par différence d'énergie stockée et donner lieu à la recristallisation primaire. Ensuite, les nouveaux grains formés vont croître par capillarité jusqu'à atteindre l'équilibre des pressions. Ce mécanisme est favorisé pour les microstructures dont les dislocations ont du mal à se réorganiser. C'est donc le mécanisme privilégié dans les métaux à basse énergie de fautes d'empilement (aciers austénitiques, argent) où cette réorganisation des dislocations est limitée.

- *La recristallisation continue :*

Contrairement à la recristallisation discontinue, ce processus n'est pas dicté par un mécanisme en deux étapes de type germination/croissance et il n'y a pas de front de recristallisation où les grains recristallisés consomment la matrice déformée. Sous l'effet des énergies motrices, les dislocations vont s'arranger en sous-joints faiblement désorientés au sein des grains pour accommoder la déformation. La désorientation de ces sous-joints va progressivement augmenter jusqu'à donner lieu à deux grains distincts de part et d'autres du sous-joint. La microstructure résultante peut être encore constituée de sous-structures et la texture après recristallisation est similaire à la texture de déformation. La recristallisation continue est favorisée pour les matériaux avec une mobilité faible de joints de grains et une forte capacité des dislocations à se réorganiser pendant la déformation au lors de recuits ultérieurs. Les matériaux à haute énergie de fautes d'empilement (aciers ferritiques, aluminium…) et les microstructures à petits grains fortement déformées recristalliseraient préférentiellement par ce mécanisme [8]. Ce mécanisme peut dans certains cas être assimilé à une croissance de sous-grains et être appelé restauration généralisée.

- *Mécanisme SIBM (Strain Induced Boundary Migration) :*

Ce mécanisme implique une migration des joints de grains de forte désorientation par différence d'énergie stockée. Les joints de grains se courbent dans la direction des grains ayant emmagasinés le plus d'énergie, et ces derniers vont disparaître aux dépens des grains de moindre énergie stockée. Une zone exempte de défauts est laissée là où le joint de grains est passé. Cette zone va donner lieu à un nouveau grain, de même orientation cristallographique que celle du grain parent. C'est donc la différence d'énergie stockée et la désorientation des joints HAGB qui contribuent à la recristallisation. Ce mécanisme est très similaire à la recristallisation discontinue à l'exception qu'il n'y a pas nécessairement d'étape de restauration pour expliquer la germination et que le HAGB est déjà présent initialement dans la microstructure déformée.

- *Mécanisme PSN (Particle Stimulated Nucleation)*

Dans différents types d'alliages, la présence de particules grossières supérieures à une taille d'environ 1 µm peut favoriser l'apparition de germes pour la recristallisation. Cela est dû à l'accumulation des dislocations à l'interface particule-matrice lors de la déformation qui conduit à une énergie stockée plus importante au voisinage de ces particules. La texture développée suite à ce mécanisme dépend de la déformation autour de la particule et diffère souvent du reste de la microstructure [8]. Ce mécanisme a été observé dans des aciers à bas carbone à proximité de particules de cémentite [25] et également dans des aciers ODS 9%Cr où des grains recristallisés sont visibles au voisinage de carbures $M_{23}C_6$ [26].

3. Texture et orientation cristalline

3.1 Description des orientations cristallines

Connaissant la dépendance de la mobilité du joint de grains à sa désorientation, il apparaît que la texture et donc l'orientation cristalline des grains va jouer un rôle prépondérant dans la capacité d'un matériau à recristalliser. Que ce soit en EBSD ou en diffraction des neutrons ou des rayons X, il est primordial de s'intéresser au repère dans lequel les orientations sont représentées. Il faut distinguer le repère de l'échantillon du repère du cristal. Le repère de l'échantillon est défini à partir de la géométrie de l'échantillon. Par exemple, dans le cas d'une tôle laminée, on peut définir les 3 axes macroscopiques DL, DT et DN (Direction de Laminage, Direction Normale et Direction Transverse) (Figure I.9). Concernant le repère du cristal, il est défini dans la base ($\overrightarrow{e_1}$, $\overrightarrow{e_2}$, $\overrightarrow{e_3}$) et les coefficients appliqués à ces vecteurs sont les indices de direction *u*, *v* et *w*. Les trois vecteurs de bases sont donc respectivement décrits par les directions [100], [010] et [001]. L'orientation des plans est définie par les indices de Miller *h*, *k* et *l*.

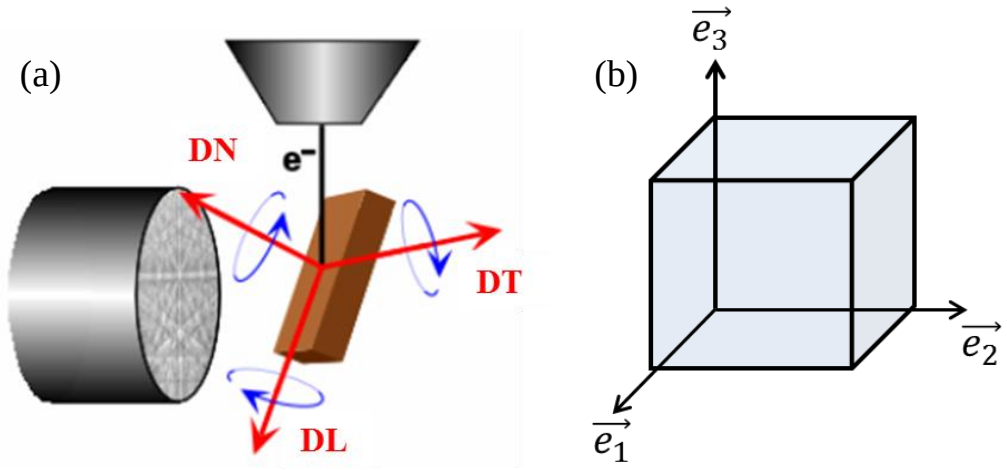


Figure I.9 : a) Repère de l'échantillon avec les directions macroscopiques (DL, DT, DN) et b) repère du cristal avec les directions cristallographiques [100], [010] et [001]

En métallurgie, on s'attache toujours à donner les orientations cristallographiques des cristaux par rapport aux axes macroscopiques de l'échantillon. De ce fait, il est impératif de bien définir le repère de cet échantillon. Il est commun de définir une orientation {hkl}<uvw> où un plan de la famille {hkl} est parallèle au plan d'observation de l'échantillon et où une direction de la famille <uvw> est parallèle à une direction macroscopique donnée (la direction de laminage par exemple). Le passage du repère du cristal au repère de l'échantillon se fait grâce à une matrice de transformation G qui dépend des angles d'Euler, qui seront évoqués par la suite ou des paramètres h, k, l, u, v et w.

3.2 Espace et angles d'Euler :

Comme il a été mentionné précédemment, l'espace d'Euler permet de relier le repère de l'échantillon au repère du cristal. Cet espace à trois dimensions est communément défini par les trois angles (φ_1, ϕ, φ_2) selon la notation de Bunge [27].

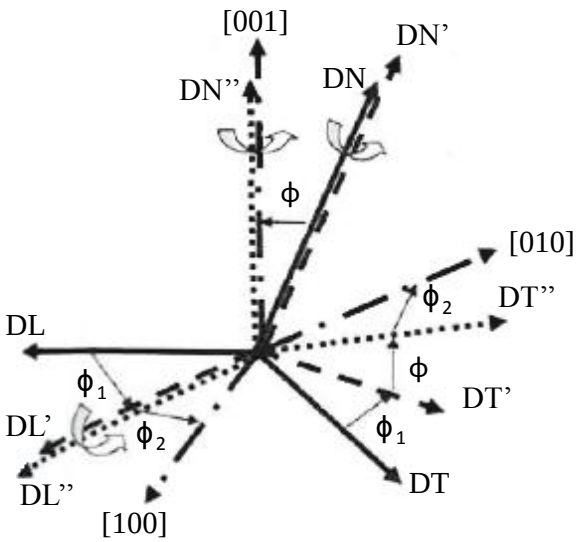


Figure I.10 : Schéma des rotations selon les angles d'Euler (φ_1, ϕ, φ_2) pour passer du repère de l'échantillon (DL, DT, DN) au repère du cristal défini par la famille de directions <100>

Le changement de repère s'effectue en trois rotations représentées sur la Figure I.10 et chaque rotation est définie par l'un des angles d'Euler. La première rotation φ_1 autour de DN amène DL en DL' et DT en DT'. La seconde rotation ϕ s'effectue autour de DL' et amène DN en DN'' ([001]) et DT' en DT''. Enfin, la dernière rotation φ_2 autour de DN'' conduit au repère final qui est celui du cristal, défini par les trois directions de la famille de <100>. Chaque rotation peut être décrite en utilisant une matrice g. Ainsi, on a :

$$g_{\varphi 1} = \begin{pmatrix} cos\,\varphi_1 & sin\,\varphi_1 & 0 \\ -sin\,\varphi_1 & cos\,\varphi_1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \quad \text{(I.25)}$$

$$g_{\phi} = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & cos\,\phi & sin\,\phi \\ 0 & -sin\,\phi & cos\,\phi \end{pmatrix} \quad \text{(I.26)}$$

$$g_{\varphi 2} = \begin{pmatrix} cos\,\varphi_2 & sin\,\varphi_2 & 0 \\ -sin\,\varphi_2 & cos\,\varphi_2 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \quad \text{(I.27)}$$

On peut alors définir la matrice de rotation finale $G = g_{\varphi_2} \times g_{\phi} \times g_{\varphi_1}$:

$$G = \begin{pmatrix} cos\,\varphi_1 cos\,\varphi_2 - sin\,\varphi_1 sin\,\varphi_2 cos\,\phi & sin\,\varphi_1 cos\,\varphi_2 + cos\,\varphi_1 sin\,\varphi_2 cos\,\phi & sin\,\varphi_2 sin\,\phi \\ -cos\,\varphi_1 sin\,\varphi_2 - sin\,\varphi_1 cos\,\varphi_2 cos\,\phi & -sin\,\varphi_1 sin\,\varphi_2 + cos\,\varphi_1 cos\,\varphi_2 cos\,\phi & cos\,\varphi_2 sin\,\phi \\ sin\,\varphi_1 sin\,\phi & -cos\,\varphi_1 sin\,\phi & cos\,\phi \end{pmatrix} \quad \text{(I.28)}$$

La première colonne de cette matrice représente la direction <uvw> du cristal orienté selon DL et la troisième représente la normale au plan {hkl} orientée selon DN. Dans le cas d'un cristal cubique avec une symétrie d'échantillon triclinique, l'espace d'Euler peut être réduit à $\varphi_1 \in [0 ; 2\pi]$, $\phi \in [0 ; \pi/2]$ et $\varphi_2 \in [0 ; \pi/2]$. On représente rarement l'espace d'Euler dans son ensemble mais plutôt sous forme de coupes bidimensionnelles où l'on fixe un des angles constant, notamment pour la représentation des fonctions de distributions des orientations cristallines (ODF). La Figure I.11 représente une coupe à φ_2 = 45°,

couramment utilisée pour l'identification des textures, en particulier dans les métaux de structure cubique centrée. Les différents points représentent des orientations cristallographiques « types ». Les orientations pour lesquelles φ_1= 0°, φ_2 = 45° et ϕ varie de 0 à 90° (en rouge) représentent la fibre α et correspondent à des cristaux dont la direction <110> est parallèle à DL. La fibre α comprend également les orientations {001}<110> et {111}<011>. Par ailleurs, les orientations pour lesquelles φ_2 = 45°, ϕ = 55° et φ_1 varie de 0 à 90°C (en bleu) appartiennent à la fibre γ. Les cristaux selon ces orientations ont leurs plans {111} parallèles au plan (DL, DT) et donc la normale à ces plans est parallèle à DN. L'orientation {111}<110> appartient simultanément aux deux fibres. En considérant d'autres coupes de l'espace d'Euler, on est capable de visualiser d'autres orientations. D'autres fibres (θ, η, ζ) peuvent être identifiées dans des coupes différentes de l'espace d'Euler [28] mais sont moins fréquemment évoquées dans la littérature.

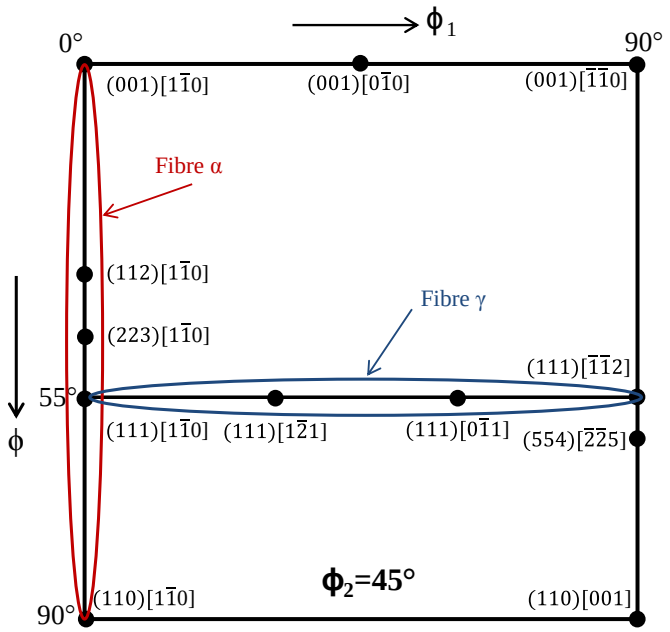


Figure I.11 : Coupe de l'espace d'Euler à φ_2 = 45°

3.3 Figure de pôles directe

La figure de pôles directe est un outil qui permet de représenter d'une manière globale l'orientation des cristaux dans un matériau. Cette figure se construit par projection stéréographique de la distribution des densités de pôles d'une famille de plans de cristaux dans le plan de l'échantillon caractérisé par les directions DL, DT et DN (Figure I.12). La figure de pôles {hkl} correspond donc à la projection stéréographique des plans {hkl} du cristal dans un plan de l'échantillon. On représente en général l'orientation de cristaux {hkl}<uvw> à partir des figures de pôles {001}, {110} et {111}. A titre d'exemple, la Figure I.13 présente ces trois figures de pôle pour un cristal orienté {001}<100>.

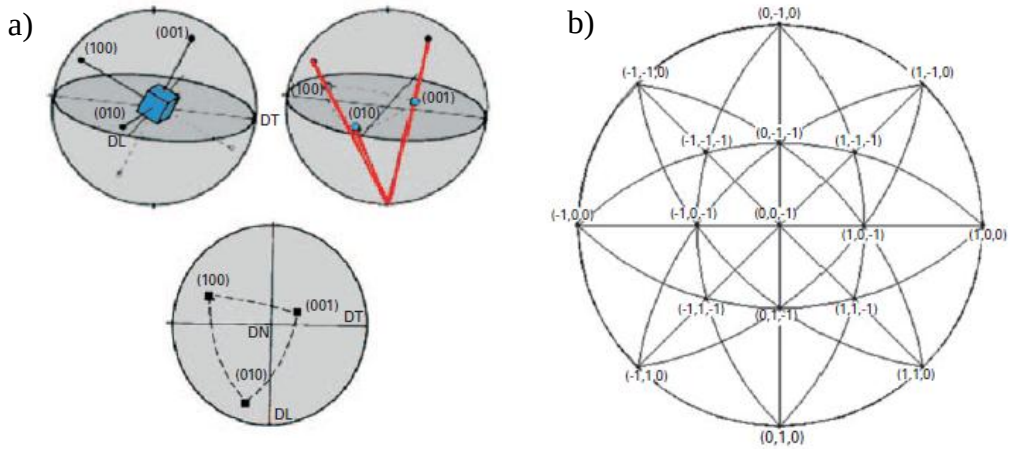


Figure I.12 : a) Construction d'une figure de pôles {100} pour un cristal d'orientation aléatoire et b) projection standard de la figure de pôles {001} [29]

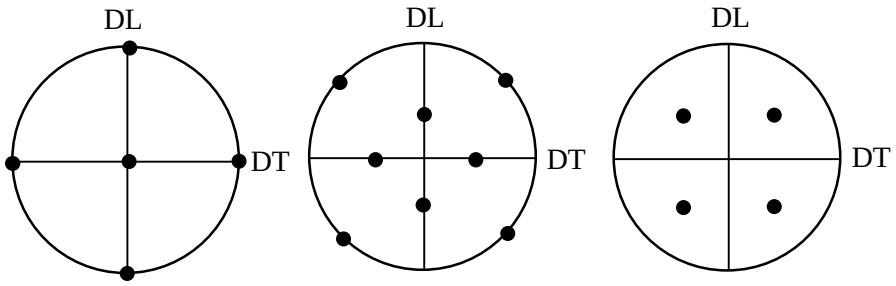


Figure I.13 : Figures de pôles {001}, {110} et {111} correspondant à une orientation {001}<100>

Lorsque que le matériau présente une texture cristallographique, le tracé des figures de pôles des différentes familles de plans adopte un aspect caractéristique qui permet l'identification de cette texture.

3.4 Figure de pôles inverse

La figure de pôles inverse est utilisée pour représenter la densité de pôles d'une direction macroscopique donnée de l'échantillon dans le repère du cristal. Par exemple, la Figure I.14 montre que dans le cas d'un acier ODS à 14%Cr brut de filage, la direction cristallographique parallèle à la direction de filage est majoritairement la direction <110>. La représentation se fait dans un triangle où chaque sommet correspond à une direction cristallographique différente.

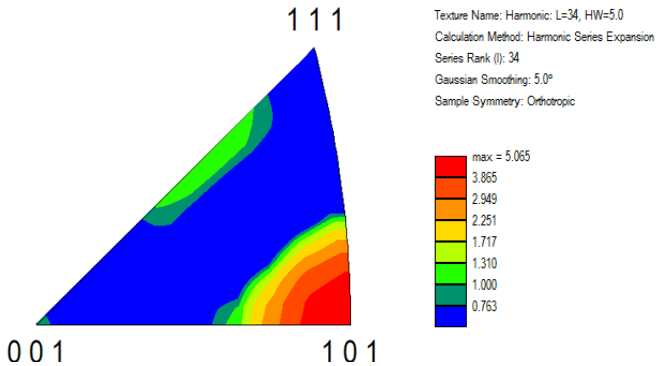


Figure I.14 : Exemple d'une figure de pôles inverse pour l'acier ODS à 14%Cr dans le cas où la direction macroscopique choisie est la direction de filage

Ce type de représentation est en général peu utilisé pour décrire les textures dans la littérature. Cependant, sur ce principe, il est possible de réaliser des cartographies d'orientations en figures de pôles inverses en EBSD (Electron BackScatter Diffraction). Celles-ci permettent de représenter la direction cristallographique des grains dans un matériau par rapport à une direction macroscopique à l'aide d'un code de couleur. Dans le cas de la Figure I.15a, on représente la direction cristallographique parallèle à la direction macroscopique DN. Cette direction cristallographique correspond donc à la normale au plan {hkl} des grains. Dans le deuxième cas (Figure I.15b), c'est la direction cristallographique <uvw> parallèle à la direction macroscopique DL que l'on identifie. La complémentarité de ces deux cartographies permet alors d'obtenir l'orientation exacte {hkl}<uvw> en tout point. Il faut noter qu'ici, le triangle est utilisé pour définir un code couleur, et non pour quantifier les densités de pôles comme sur la Figure I.14.

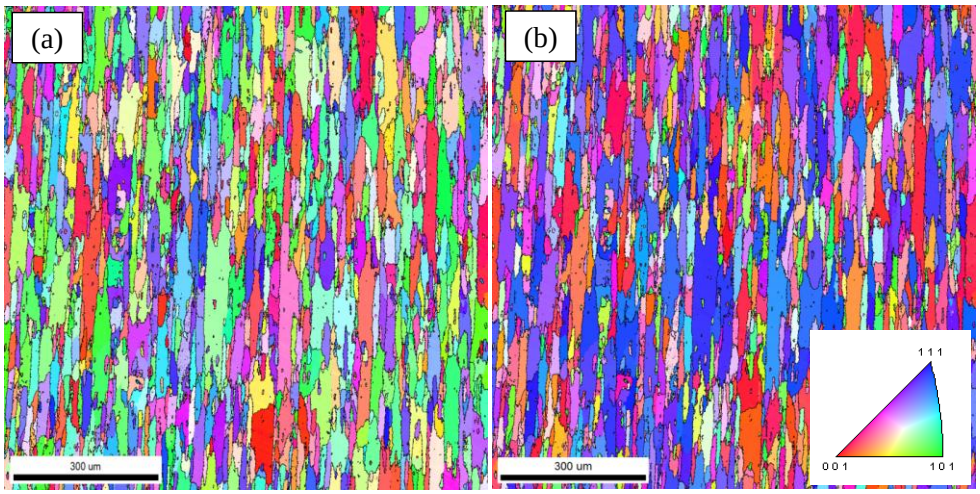


Figure I.15 : Cartographies en figure de pôles inverse (IPF) d'un acier ODS 14%Cr représentant la direction des grains (a) parallèle à la direction macroscopique DN et (b) parallèle à la direction macroscopique DL

3.5 La fonction de distribution des orientations cristallines (ODF)

La fonction de distribution des orientations cristallines F(g) (« *Orientation Distribution Function* » ou ODF) est un outil qui permet de définir de façon quantitative la texture d'un matériau. Elle permet de déterminer la fraction volumique V(g)/V de grains ayant une orientation g à dg près [27].

$$\frac{V(g)}{V} = F(g) \times dg \tag{I.29}$$

dg correspond alors au volume élémentaire dans l'espace d'Euler soit :

$$dg = \frac{1}{8\pi^2} sin\phi d\phi d\varphi_1 d\varphi_2 \tag{I.30}$$

L'ODF est calculée en chaque point de l'espace d'Euler à partir des figures de pôles en inversant l'équation qui donne la densité de pôles P(y) en un point *y* en fonction de l'ODF :

$$P(y) = \frac{1}{2\pi} \times \int_0^{2\pi} F(g)dy \qquad \text{(I.31)}$$

La résolution de cette équation peut être effectuée par différentes méthodes mathématiques. La méthode utilisée ici est une décomposition sur des bases d'harmoniques sphériques dont on définit l'ordre de développement L. Cette valeur peut être définie jusqu'à 34 mais dépend avant tout du nombre de figures de pôles expérimentalement obtenues par diffraction des rayons X et des neutrons et de la structure cristalline du matériau. Dans le cas de l'EBSD, chaque orientation individuelle (pixel de la cartographie) est modélisée par une gaussienne et c'est à partir de ces orientations que l'on calcul les coefficients de l'ODF. Le nombre de figures de pôles n'est plus un paramètre limitant et le calcul de l'ODF peut systématiquement être développé jusqu'à l'ordre maximal. L'ODF est normée à 1 et s'exprime en multiple de la densité aléatoire. On a donc F(g) = 1 pour une texture isotrope. Une orientation pour laquelle F(g) = 5 correspond par exemple à une orientation 5 fois plus importante en densité d'orientation qu'une orientation aléatoire.

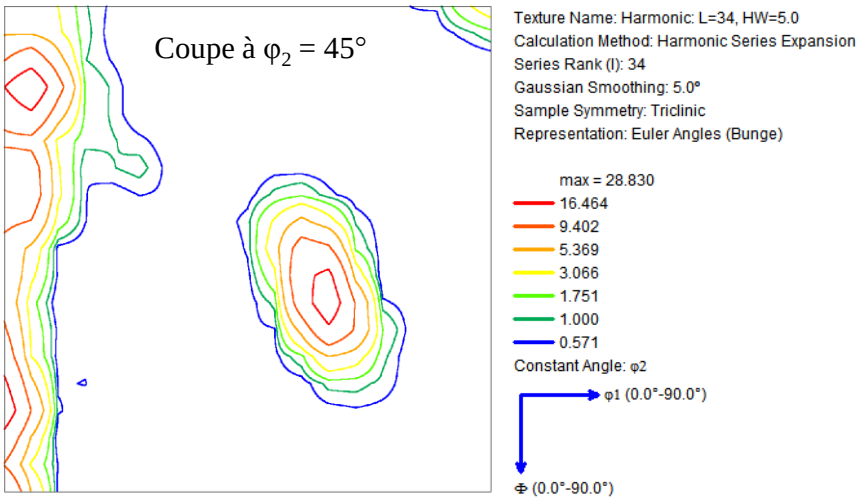


Figure I.16 : Coupe de l'ODF (L=34) à φ_2 = 45° de l'espace d'Euler caractéristique d'une fibre α d'un acier ODS 14%Cr brut de filage

Dans la suite du manuscrit, les textures seront majoritairement représentées à l'aide d'une coupe de l'ODF puisque c'est cette méthode de visualisation qui permet de décrire la texture de la manière la plus complète possible.

3.6 Textures dans les aciers de structure cubique centrée

3.6.1 Les textures de déformation

Les textures de déformation dans les aciers à bas carbone varient en fonction du procédé et du taux de déformation mais ne dépendent pas de la composition chimique. Concernant la texture après extrusion, la direction de glissement s'aligne avec la direction d'écoulement et c'est le développement d'une fibre α pure autour de l'axe <110> parallèlement à la direction d'extrusion qui est privilégiée. De même, la déformation en traction induit une rotation des grains qui alignent leur <110> parallèlement à la direction de traction [30][31]. Des études menées après laminage à froid [32][33][34] montrent qu'il se développe dans les aciers une texture mixte fibre α / fibre γ qui s'accentue avec la déformation. Après un taux de

laminage de 50%, les composantes les plus fortes sont la {111}<110> (fibre γ et α), la {111}<112> (fibre γ) et les {112}<110> et {001}<110> (fibre α). Pour la compression, la texture qui se développe est une fibre double autour des axes <111> et <100> parallèlement à l'axe de compression [35][36]. En revanche, il n'a pas été noté de travaux signalant qu'une distribution de nanoparticules stables avait une influence sur la texture de déformation dans les métaux cubiques centrés.

3.6.2 Les textures de recristallisation

Durant le processus de recristallisation, la microstructure est amenée à évoluer et la texture après déformation ne correspond pas nécessairement à la texture du matériau après recristallisation. Il existe principalement 2 théories pour expliquer le développement d'une nouvelle texture au cours de la recristallisation. Il s'agit de la **germination orientée** et de la **croissance orientée** [10]. Dans le premier cas, on suppose que les germes privilégient une orientation particulière pour se former. Le nombre de germes plus important selon cette orientation conduit donc au développement de la texture lors de la croissance des grains, c'est **un effet de fréquence**. La deuxième théorie stipule que les germes apparaissent selon des orientations aléatoires mais certains vont voir leur croissance favorisée. Cela s'observe par exemple dans le cas d'un mécanisme d' « orientation pinning » [37] où les grains recristallisés faiblement désorientés par rapport à la matrice vont croître moins rapidement du fait de la faible mobilité de leur interface. La texture est alors causée par les gros grains qui ont cru selon une ou plusieurs autres orientations, c'est **un effet de taille de grains.**

Les données présentes dans la littérature montrent que pour les aciers à bas carbone, il y a une tendance au développement de la fibre γ pendant la recristallisation. Notamment après une déformation par laminage, la fibre α est partiellement éliminée tandis que la fibre γ est renforcée, avec une intensification de la composante {111}<110> ou de la {111}<112> [31]. Il semble que la germination se fasse en priorité dans les grains déformés appartenant à la fibre γ. Barnett [38] propose que c'est la présence de bandes de cisaillement qui augmentent la désorientation (et donc l'énergie stockée) au sein de ces grains et favorisent l'apparition de germes. Il y aurait ensuite croissance de ces germes due à une grande mobilité des joints. Il s'agirait donc à la fois d'un mécanisme de germination orientée et de croissance orientée. Suite au laminage, Wauthier-Monnin *et al*. [39] montrent également que la fibre γ stocke plus d'énergie stockée que la fibre α mais seulement à partir de 60% de déformation.

4. Les aciers ODS : métallurgie et gamme de fabrication

L'élaboration d'une gaine de combustible en acier ODS nécessite un procédé spécifique et complexe [40] dont les principales étapes sont présentées sur la Figure I.17. En effet, il n'est pas possible d'utiliser les techniques d'élaboration classiques de la métallurgie comme la coulée, car celles-ci ne permettent pas d'obtenir une dispersion fine (nanométrique) et homogène des renforts dans la matrice. Pour obtenir ces matériaux, on utilise la métallurgie des poudres. Le procédé de fabrication peut être scindé en trois parties : le co-broyage des poudres, la consolidation par filage à chaud ou par compactage isostatique à chaud (CIC) et la mise en forme à froid.

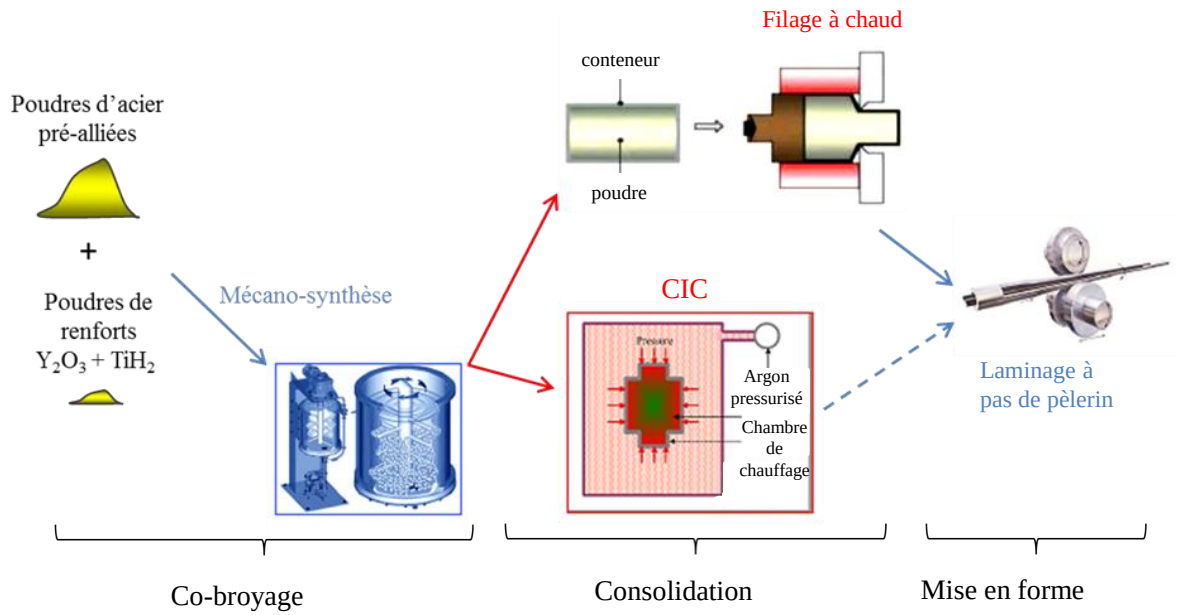


Figure I.17 : Gamme de fabrication des aciers ODS

4.1 Le co-broyage

L'obtention d'une poudre d'acier ODS est réalisée par co-broyage d'une poudre pré-alliée et de poudres de renforts. Ce procédé est appelé mécanosynthèse [41]. Tout d'abord, une poudre métallique pré-alliée base fer avec différents éléments d'alliage (Cr, W, Mn, Ni…) est obtenue, par exemple par atomisation sous atmosphère d'argon (société Aubert&Duval). Comme il est visible sur la Figure I.18a, les particules sont sphériques avec une surface lisse. Leur diamètre varie de 5 µm à 250 µm avec une valeur moyenne de 80 µm. Des analyses EBSD des poudres au cours du procédé d'élaboration ont été réalisées dans le cadre de la thèse de Boulnat [42] (Figure I.19). Les distributions de tailles de grains sont également présentées sur cette figure. Les résultats montrent qu'après atomisation (Figure I.19a), les particules sont constituées de grains de ferrite équiaxes d'orientations différentes mesurant en majorité entre 20 et 40 µm de diamètre. On note également quelques porosités aux joints triples.

A la suite de cette étape d'atomisation, la poudre pré-alliée est mélangée à des poudres de renforts d'oxyde d'yttrium (Y_2O_3) et de TiH_2 et co-broyée pour obtenir la poudre ODS. L'oxyde d'yttrium a été choisi car il présente une excellente stabilité thermique et sous irradiation [5][6]. Cette étape de co-broyage des poudres peut être réalisée soit par une société industrielle (Plansee, Zoz) soit au CEA (laboratoire LTMEx). Les granulométries des poudres de renforts sont comprises entre quelques nanomètres et la dizaine de micromètres. Les poudres sont placées dans un attriteur à haute énergie. Cet appareil qui contient des billes et plusieurs bras mécaniques permet de co-broyer les poudres entre elles, si possible sous atmosphère protectrice (Ar, H), grâce aux chocs mécaniques produits par les billes. Après plusieurs heures de broyage, on montre que les oxydes sont totalement dissous dans la matrice [43]. Des analyses par microsonde électronique montrent une répartition homogène du titane, de l'oxygène et de l'yttrium. Pendant le broyage, une pollution en éléments légers (C, N et O) est introduite [44] et doit être maîtrisée pour ne pas dégrader les propriétés mécaniques finales du matériau.

A l'issue du co-broyage, les grains de poudre sont fortement écrouis et adoptent une forme aplatie plus irrégulière (Figure I.18b et c) due aux fractures et soudures à froid successives durant le broyage. Sur les Figure I.19b et c, les analyses EBSD montrent en revanche que les poudres sont constituées de grains

beaucoup plus fins, de taille voisine de la centaine de nanomètres. L'orientation cristallographique de ces grains ne révèle pas de texture particulière. Chen *et al.* [45] montrent que l'augmentation du temps de co-broyage affine la taille des particules mais augmente la déformation plastique et donc la densité de dislocations. Une diminution de la masse volumique apparente est observée après le co-broyage par rapport aux poudres atomisées [46]. Cela serait dû à la présence à la fois de très fines particules et de grosses particules après l'étape d'atomisation, ce qui favorise un meilleur empilement et donc une densité plus élevée.

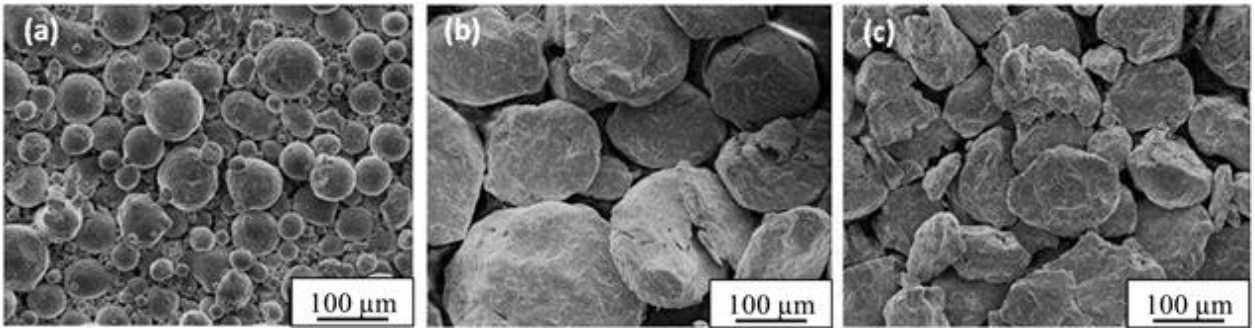


Figure I.18 : Observation au MEB de particules de poudres (a) après atomisation, (b) après broyage dans le cas d'une nuance sans renforts et (c) après co-broyage avec la poudre de renforts [47]

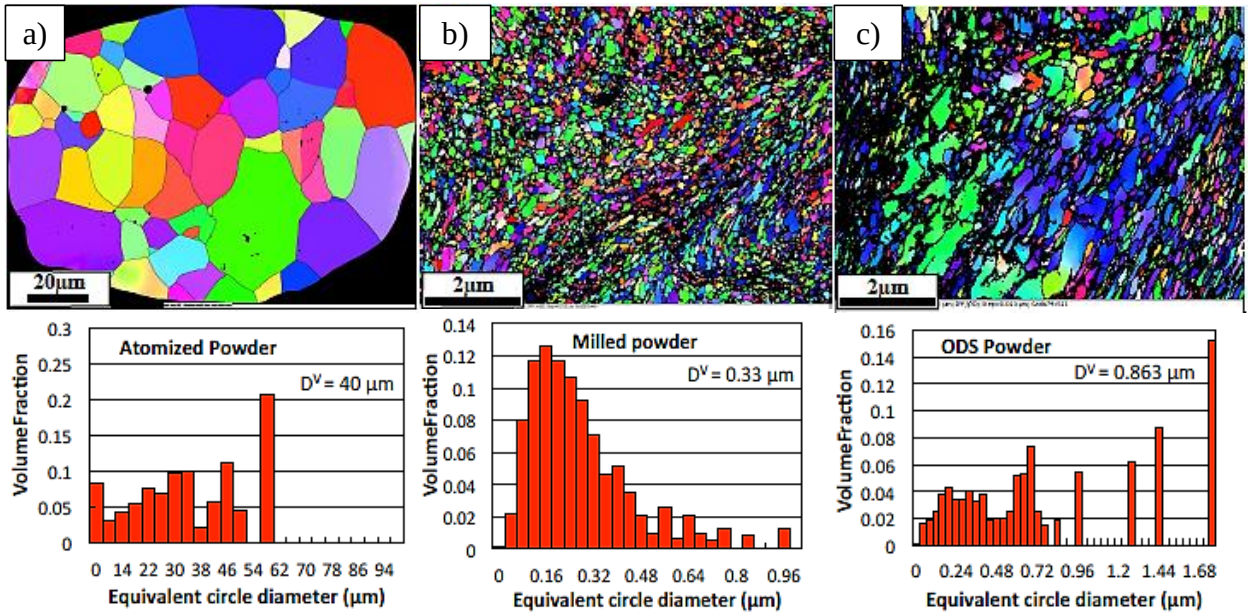


Figure I.19 : Cartographies d'orientations EBSD et histogrammes de taille de grains pour (a) une particule de poudre après atomisation, (b) la poudre pré-alliée broyée et (c) la poudre co-broyée ODS [42]

4.2 La consolidation

Une fois que le mélange est homogène et que les renforts ont été dissous en solution solide dans la matrice ferritique, la poudre ODS co-broyée est placée dans un conteneur. Elle subit un dégazage à basse température (entre 300°C et 400°C) puis est consolidée à haute température, généralement au-dessus de 1000°C. Cette étape permet d'obtenir un matériau avec une densité pratiquement égale à 100%. Durant cette phase, les oxydes reprécipitent dans la matrice de façon homogène et leur très grande stabilité ne permet plus que leur coalescence, sans jamais être redissous. Les deux procédés principaux de

consolidation des poudres ODS sont le compactage isostatique à chaud (CIC) et le filage à chaud. Dans le premier cas, un lopin est obtenu par application d'un cycle thermique sous une pression isostatique d'environ 100 MPa à l'intérieur d'une enceinte. Dans le cas du filage à chaud, la matière est chauffée et pré-compactée à l'intérieur du conteneur, puis passe dans une filière qui diminue sa section et conduit à l'obtention d'une barre fortement écrouie. Le taux d'écrouissage est déterminé par la réduction de section entre la canette et la sortie de filière. Il faut noter que les microstructures, et par conséquent les propriétés mécaniques, obtenues à l'issue de ces 2 étapes de consolidation sont particulièrement différentes. L'étude comparative de la microstructure des aciers ODS suite à ces deux modes de consolidation a fait l'objet de plusieurs études [47][48][49][50]. Il existe également une méthode de consolidation par courant électrique appelé Spark Plasma Sintering (SPS) dont l'application aux aciers ODS a été étudiée entre autres lors de la thèse de Boulnat [18] et par Pandey *et al.* [51]. Chacun de ces procédés influence de manière déterminante la microstructure et les propriétés mécaniques des aciers ODS.

4.2.1 La compression isostatique à chaud

La compression isostatique à chaud (CIC) ou « *Hot Isostatic Pressure* » est un procédé de consolidation régulièrement utilisé en métallurgie des poudres qui consiste à appliquer un cycle thermique sous une pression isostatique à l'intérieur d'une enceinte. La pression est appliquée via un gaz inerte, de l'argon, et peut atteindre 1000 à 2000 bars (100 MPa à 200 MPa). La CIC peut être utilisée avec pratiquement tous les alliages métalliques, certaines céramiques et des polymères ainsi que des intermétalliques. A l'issue de la consolidation, la poudre initiale est transformée en un lopin avec une densité très élevée (supérieure à 99%) et très peu de porosités internes. L'avantage de ce procédé est que la pression isostatique appliquée permet d'obtenir une microstructure et une texture isotrope constituée de grains fins. Cela conduit à des matériaux avec des propriétés mécaniques élevées (ductilité, limite d'élasticité, résistance en fatigue). L'utilisation d'un moule peut permettre l'obtention de pièces aux géométries complexes, difficiles à obtenir par usinage.

En ce qui concerne les aciers ODS, la CIC est donc un procédé de choix pour atteindre les propriétés du cahier des charges industriel. La poudre co-broyée est placée dans un conteneur (acier 316L ou autre). Après un dégazage sous vide secondaire à 400°C pendant 2h, la consolidation est généralement réalisée entre 1100°C et 1200°C sous une pression de 1000 bars. La vitesse de chauffage est inférieure à 10 $°C.min^{-1}$. La durée totale du procédé est d'environ 8h. A la fin, l'acier doux visible sur la Figure I.20a est retiré et le lopin d'acier ODS à l'intérieur est usiné afin d'effectuer les caractérisations microstructurales et mécaniques.

La microstructure après CIC ne présente pas de texture cristallographique ni morphologique mais on observe une population bimodale de grains particulièrement visible sur la Figure I.20 avec des grains ultrafins de moins de 100 nm et des gros grains de plusieurs micromètres. La présence de ces deux populations est due à l'hétérogénéité d'énergie stockée lors du co-broyage qui va provoquer la recristallisation et la croissance de certains grains uniquement [42]. Le matériau présente une densité de dislocations moyenne déterminée par microscopie électronique en transmission de 5.10^{13} m^{-2}. Il apparaît que les gros grains présentent très peu de dislocations puisqu'ils sont recristallisés tandis que les grains ultra-fins sont particulièrement déformés et ont une densité de dislocations élevée, d'où leur aspect plus sombre en microscopie en transmission sur la Figure I.20b.

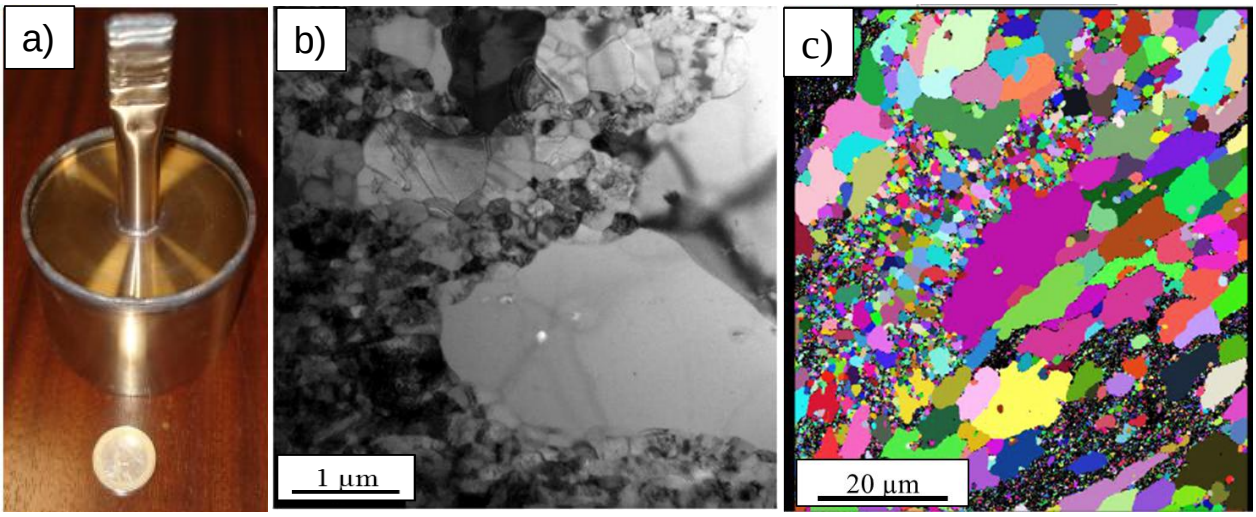


Figure I.20 : a) Conteneur avec à l'intérieur le lopin ODS issu d'une consolidation par CIC, b) microstructure d'un acier ODS consolidé par CIC observée par MET et c) par EBSD [52]

4.2.2 Le filage à chaud

Le filage, ou extrusion à chaud est un procédé de consolidation durant lequel un matériau est chauffé, passe dans une filière qui diminue sa section et conduit à l'obtention d'une barre. La poudre est au préalable placée dans un conteneur d'acier doux et pré-compactée. Le taux de déformation est évalué en fonction du rapport entre les sections avant et après filage. La microstructure après filage est bimodale et fortement texturée, autant du point de vue morphologique que cristallographique [53]. En effet, les grains sont fins (diamètre inférieur à 1µm sur la Figure I.21a et allongés dans la direction de filage comme le montre la Figure I.21b) avec un facteur de forme pouvant être supérieur à 10. Ils présentent une texture marquée de type fibre α avec leur direction <110> alignée avec l'axe de filage. Le filage déforme fortement le matériau et la microstructure est écrouie avec des densités de dislocations de l'ordre d'environ 5.10^{14} m^{-2} [17][54], supérieures à celles obtenues après CIC. Cette déformation importante associée à un taux de triaxialité négatif conduit à un matériau sans porosités (quelques porosités locales peuvent être observées après CIC) et des résistances mécaniques plus élevées.

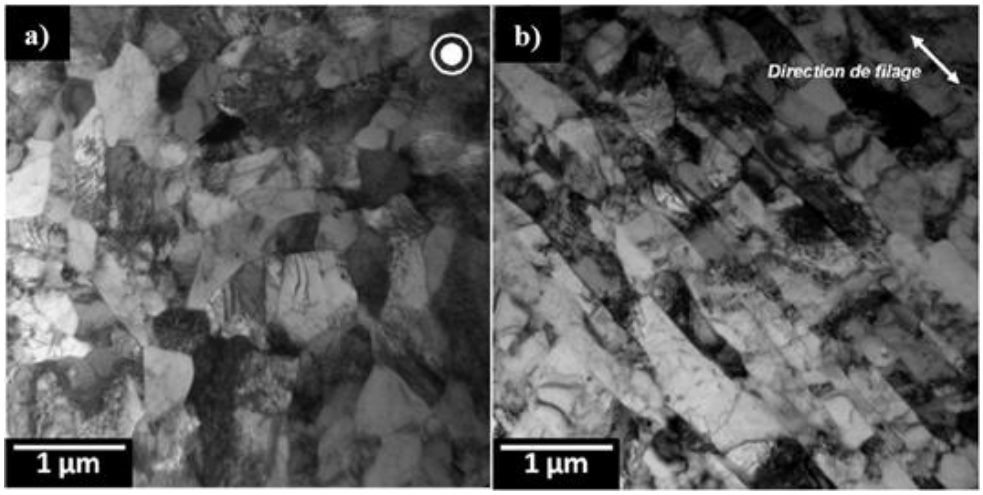


Figure I.21 : Observations au MET d'une nuance Fe-14Cr-1W après filage dans la direction a) transversale et b) longitudinale [47]

L'analyse d'une nuance Fe-14Cr-1W par EBSD [53] montre une population bimodale de grains avec des gros grains allongés et des « amas » de petits grains submicroniques plus équiaxes. Il est intéressant de noter que les gros grains ont presque tous une texture appartenant à la fibre α tandis que les petits grains sont orientés plus aléatoirement. Deux hypothèses proposées par Karch [55] et Toualbi [56] et pourraient permettre d'expliquer cette microstructure. La première est que les petits grains sont issus d'une recristallisation discontinue et qu'ils germent selon des orientations différentes de la fibre α induite par le filage. La deuxième est que les « amas » de petits grains proviennent de la structure de poudre recuite. Les densités de dislocations et/ou de nano-précipités dans ces zones pourraient être plus importantes, rendant ces grains plus durs. Ces grains sont alors peu affectés par la déformation et suivent l'écoulement lors du filage sans prendre une orientation préférentielle. Les gros grains quant à eux plus mous, sont beaucoup plus affectés par la déformation. Des analyses KAM (Kernel Average Misorientation) permettant de quantifier l'énergie stockée (méthodologie détaillée dans le Chapitre II) permettent de pencher pour la seconde hypothèse. En effet, suite au filage, des sous structures (sous-joints) se sont formés dans les gros grains afin d'accommoder la déformation plastique : Il s'agit d'un mécanisme de recristallisation dynamique continue. Ces sous-joints sont beaucoup moins présents dans les petits grains, traduisant une énergie stockée plus faible lors de la déformation.

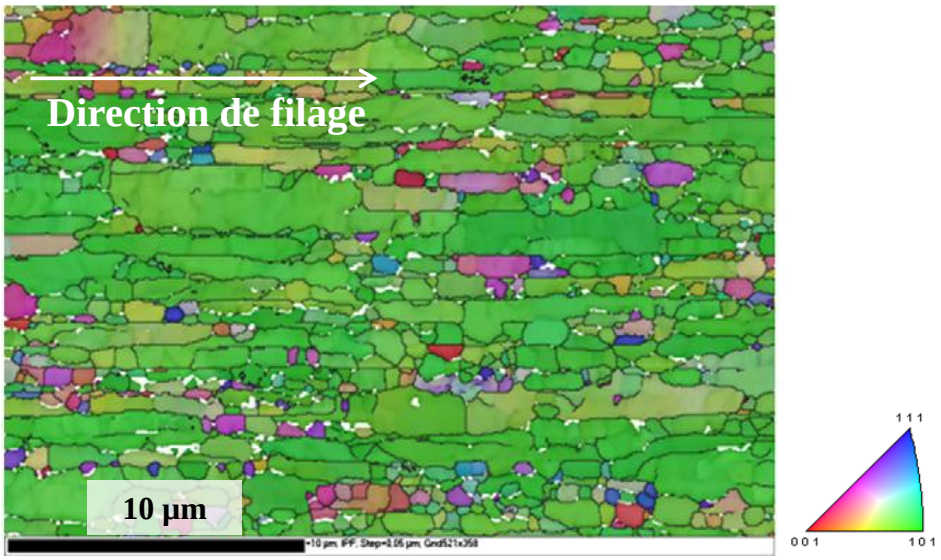


Figure I.22 : Cartographie IPF (directions cristallographiques // DF) dans une nuance ODS 14%Cr brut de filage [53]

4.3 Le laminage à froid à pas de pélerin

La matière consolidée est mise en forme à froid sous forme de tube grâce à plusieurs passes de laminage à pas de pèlerin HPTR (High Pressure Tube Reduction) afin de réduire la section et d'allonger le matériau. Actuellement, cette étape est réalisée uniquement suite à une consolidation par filage. Les passes de laminage induisent des contraintes internes importantes ainsi qu'une augmentation de la résistance mécanique due à l'écrouissage. C'est pourquoi des traitements thermiques intermédiaires de détentionnement sont réalisés pour éviter d'endommager l'ébauche et donc pour faciliter la mise en forme. Le laminage induit également une microstructure avec des grains allongés et une texture cristallographique de type fibre α (direction <110> des grains parallèle à la direction de filage). Différents traitements thermiques finaux peuvent être appliqués au tube, afin de modifier la microstructure, la texture et donc le comportement mécanique [56].

5. La précipitation

5.1 Cinétique de dissolution et de précipitation

L'étude de la précipitation est un axe d'étude important dans la métallurgie des aciers ODS puisque la nature, la taille, la distribution et la localisation des précipités dans le matériau jouent un rôle déterminant sur les mécanismes de recristallisation et sur les propriétés mécaniques. Lors du procédé d'élaboration des aciers ODS, la poudre de renforts est mélangée à la poudre pré-alliée lors de l'étape de co-broyage. La dissolution des renforts et leur précipitation lors de la consolidation dépend fortement des paramètres de broyage.

Dès 1995, Okuda et Fujiwara [57] ont proposé que les oxydes se dissolvaient au cours du broyage et reprécipitaient lors des traitements thermiques et que le titane favorisait leur dissolution. Différents travaux ont confirmé cette analyse mais M. Ratti [2] a précisé que le titane n'améliorait pas la dissolution des oxydes mais formait des phases plus stables que les simples oxydes d'yttrium. Ratti a montré que l'on pouvait envisager d'introduire l'oxygène, le titane ou l'yttrium lors du co-broyage des ODS à partir de différents composés ou éléments purs (poudre de titane ou d'yttrium), intermétalliques, hydrures ou oxydes. Ceci a aussi été étudié dans d'autres travaux de thèse [58][59][60] au cours des dernières années.

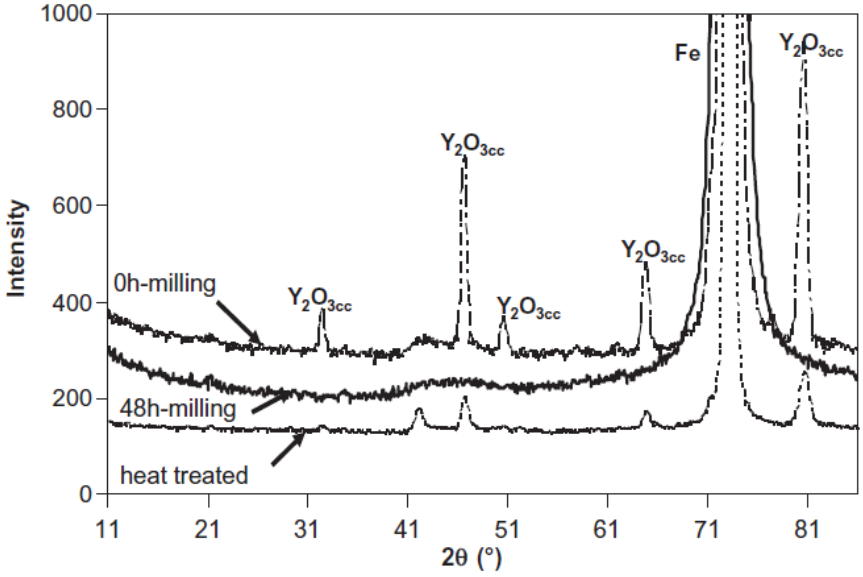


Figure I.23 : Diagramme de diffraction des neutrons d'une poudre avant et après co-broyage et après traitement thermique de précipitation [61]

Lors d'un co-broyage avec des teneurs plus fortes en Y2O3 (10%), Toualbi *et al.* [61] proposent deux mécanismes différents pour expliquer la disparition des raies de diffraction après broyage : une fraction faible serait dissoute en solution solide dans la matrice sous la forme d'atomes d'yttrium et d'oxygène contribuant à une légère augmentation du paramètre de maille a_{Fe}. Les particules de renfort restantes semblent subir une fracturation suivie d'une amorphisation. Des mesures de diffraction des neutrons présentées sur la Figure I.23 [61] montrent qu'à la suite de 48h de broyage, les raies de l'oxyde d'yttrium ne sont plus visibles. La vitesse de dissolution est plus importante dans les premières heures de broyage. Les renforts précipitent entièrement à la suite du traitement thermique lors de la consolidation.

Dans l'ensemble des nuances étudiées, il est apparu que la précipitation des nano-renforts est finalisée avec un simple traitement thermique d'une heure sur les poudres à des températures inférieures à 1000°C [62]. Ainsi, la précipitation est complète bien souvent avant la fin de la consolidation du matériau. Les précipités Y-Ti-O restent stables jusqu'à 1300°C, température à partir de laquelle ils coalescent selon un mécanisme de murissement d'Ostwald et où la densité de précipités diminue et minimise l'énergie de surface [52]. Cette évolution de la taille des précipités avec la température a été confirmée par des mesures de DNPA sur des échantillons consolidés par CIC et SPS [42].

5.2 Nature et tailles de précipités

L'état de précipitation (nature chimique, taille et densité) est évidement directement lié à la composition chimique de l'alliage mais également au mode de consolidation. Dans les nuances filées conventionnelles enrichies en titane, la densité des nanoparticules est comprise entre 10^{23} et 10^{24} m^{-2} [49][63]. Les précipités les plus fins (< 20 nm) qui contribuent le plus au durcissement structural sont riches en Ti, O et Y [53][64][65][66]. Les précipités de composition stœchiométrique présentent une structure cristallographique de type pyrochlore $Y_2Ti_2O_7$ et des relations d'orientations cube-cube avec la matrice telles que $\{100\}_m \parallel \{100\}_p$ et $<100>_m \parallel <100>_p$. Des précipités cubiques de type Y_2O_3 peuvent être présents également. La Figure I.24a montre la distribution spatiale des nano-précipités dans un ODS filé et la Figure I.24b montre un précipité Y_2Ti2O_7 observé en haute résolution par Ribis et al. [67].

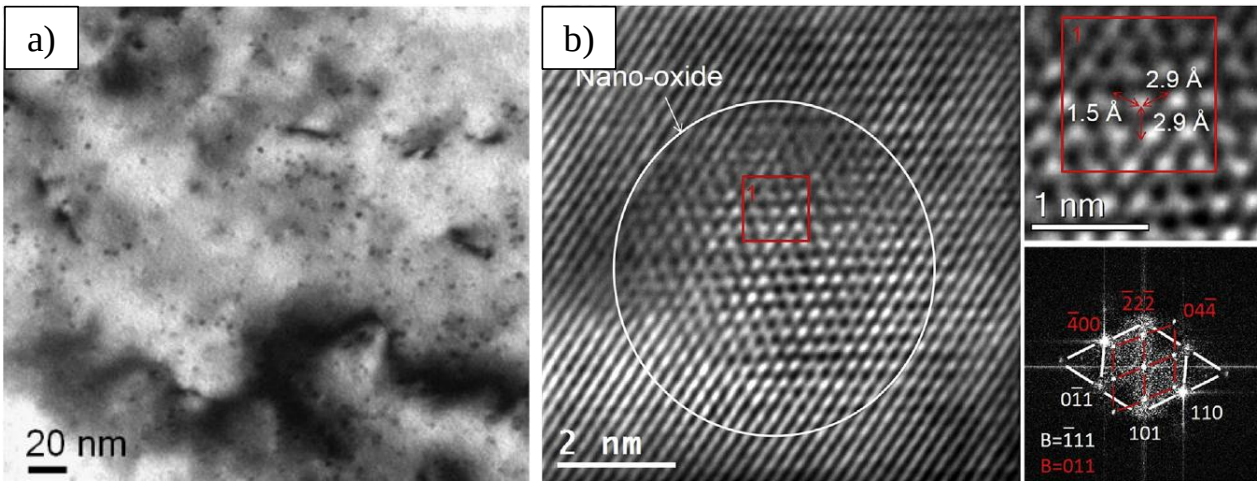


Figure I.24 : a) Cliché MET des nanoparticules dans une nuance ODS CEA brute de filage [68] et b) image haute résolution d'un précipité $Y_2Ti_2O_7$ cohérent avec la matrice [67]

Ces précipités $Y_2Ti_2O_7$ ont également été observés dans la nuance MA957 [69][70]. Les précipités plus gros peuvent être assimilés à des carbures de chrome ou de tungstène [46]. Les densités de précipités sont similaires dans les nuances consolidées par CIC et atteignent entre 10^{23} et 10^{24} m^{-3} [71]. Les précipités sont également de type Y-Ti-O pour les plus fins et sont répartis de manière homogène dans les grains ultrafins comme dans les gros grains. D'autres précipités de taille supérieure (centaine de nm) sont détectés et semblent être constitués d'Al, de Ti et d'O. Enfin, les précipités les plus gros (>500 nm) correspondent à des carbures. Il a également été observé un enrichissement en Cr et W dans les gros grains [52].

5.3 Influence du titane

Ratti *et al.* [62] ont étudié sur une nuance Fe-18Cr-1W l'influence du titane sur la dissolution des nano-phases lors de la mécanosynthèse et sur leur précipitation lors de traitements thermiques ultérieurs. Après recuits, des mesures de Diffusion des Neutrons aux Petits Angles (DNPA) montrent que le taux de précipités d'Y_2O_3 inférieurs à 10nm dans la poudre après 48h de co-broyage est supérieur dans la nuance contenant du titane. De plus, celui-ci stabilise et limite la coalescence des nano-phases lors des traitements thermiques à haute température. En effet, après 1h à 1300°C, il subsiste 1% massique de nanoparticules avec un diamètre inférieur à 10 nm tandis qu'ils sont tous supérieurs à cette taille dans la nuance sans titane. Ces observations ont également été faites par Zhong et al. [72] et sont clairement visibles sur la Figure I.25.

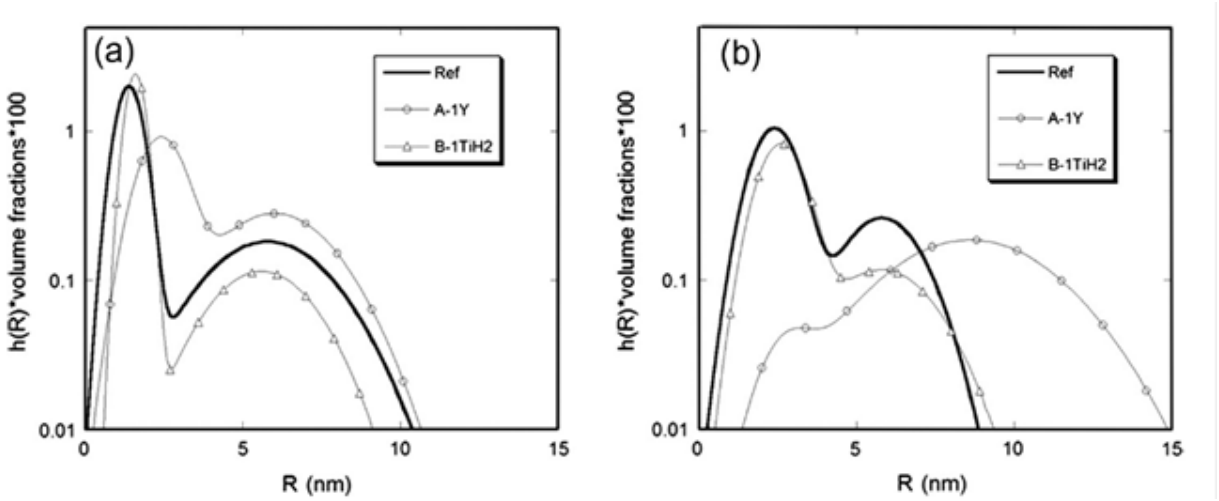


Figure I.25 : Influence de l'ajout d'yttrium et de titane sur la distribution de nanoparticules à l'état a) brut de filage et b) après un recuit d'1h à 1300°C [72]

D'autres études [46][49] confirment ces analyses et montrent que l'ajout de titane entraîne un affinement de la taille des précipités et une augmentation de leur densité dans le matériau après consolidation. Une augmentation de la résistance mécanique a également été montrée, probablement en lien avec la précipitation plus fine. Cependant, lorsque la concentration en titane devient supérieure à 0,5%, de grosses particules de TiO_2 se forment lors de la consolidation ce qui conduit à une fragilisation du matériau [43]. De plus, le titane favorise la cohérence des nanoparticules avec la matrice [73] ce qui est bénéfique pour la résistance à la coalescence à haute température mais défavorable à la recristallisation comme nous le verrons par la suite. Le titane permet donc la formation de phases pyrochlores $Y_2Ti_2O_7$ (ou proche de cette stœchiométrie) qui sont encore plus stables que les Y_2O_3. En revanche, un excès de titane conduit à la formation d'oxydes plus grossiers qui ne sont pas souhaitables dans les ODS.

6. La recristallisation dans les aciers ODS

La fine dispersion de nano-oxydes dans les aciers ODS améliore considérablement leurs propriétés mécaniques en bloquant les mouvements des dislocations et cela rend également leur microstructure très stable. Cependant, il s'avère que les différents procédés de déformation utilisés au cours de la gamme de fabrication conduisent à des microstructures très texturées et difficiles à restaurer, ce qui complique la mise en forme à froid de ces matériaux et rend leur propriétés mécaniques anisotropes. De plus, la

composition chimique avec une teneur de chrome de 14%Cr ne permet pas d'utiliser la transformation de phases comme mécanisme de restauration de la microstructure, comme c'est le cas dans les ODS martensitiques (Cr < 12%). Il est donc nécessaire de provoquer une recristallisation au sein du matériau afin d'optimiser la microstructure.

6.1 La recristallisation après mise en forme

Plusieurs travaux ont consisté à faire recristalliser des nuances d'aciers ODS ferritiques après consolidation (filage ou CIC) à l'aide d'un traitement thermique [74][75][76]. Chou et Bhadeshia [76] ont comparé la capacité à recristalliser d'un aciers ODS MA957 de composition nominale Fe-14Cr-1Ti-0,3Mo-0,25Y_2O_3 avec un autre acier ODS, l'acier MA956 de composition Fe-20Cr-4,5Al-0,5Ti-0,5Y_2O_3. Les deux nuances ont été filées à 1000°C puis laminées à 1000°C. Chou et Bhadeshia trouvent que l'alliage MA957 à l'état brut de filage recristallise à plus haute température (1429°C) que l'alliage MA956 (1273°C) bien que ce dernier ait moins d'énergie stockée et un taux de nano-renforts (Y_2O_3) plus important. Les auteurs expliquent cela par la différence de texture entre les deux nuances. L'acier MA 957 présente une légère texture de fibre <110> tandis que celle-ci est beaucoup plus accentuée dans le cas de l'acier MA 956, avec notamment une forte intensité de la composante {111}<110> (Figure I.26a). Or, comme dans les aciers plus « classiques », il est supposé que cette orientation appartenant également à la fibre γ favorise grandement la germination et la croissance des grains recristallisés. Cela expliquerait donc que l'alliage MA956 recristallise à plus basse température. Afin de développer cette texture dans la microstructure de l'alliage MA957, un traitement de « pré-recristallisation » a été appliqué à 1150°C pendant 160h. A la suite de ce traitement, la texture est semblable à celle de l'alliage MA 956 brut de filage (Figure I.26b) et la microstructure de l'alliage MA957 recristallise cette fois à 1362°C.

Ces travaux présentent l'intérêt de poser le problème de la capacité à recristalliser des ODS en fonction de la texture présente. A l'époque, la présence des nano-renforts Y-Ti-O en très grande densité dans l'alliage MA957 n'avait pas été identifiée et le recuit de 160h effectué sur le MA957 a surement permis de faire coalescer les nano-oxydes et d'abaisser la température de recristallisation. Dans le cas présent, l'influence de la texture n'est vraisemblablement pas si importante.

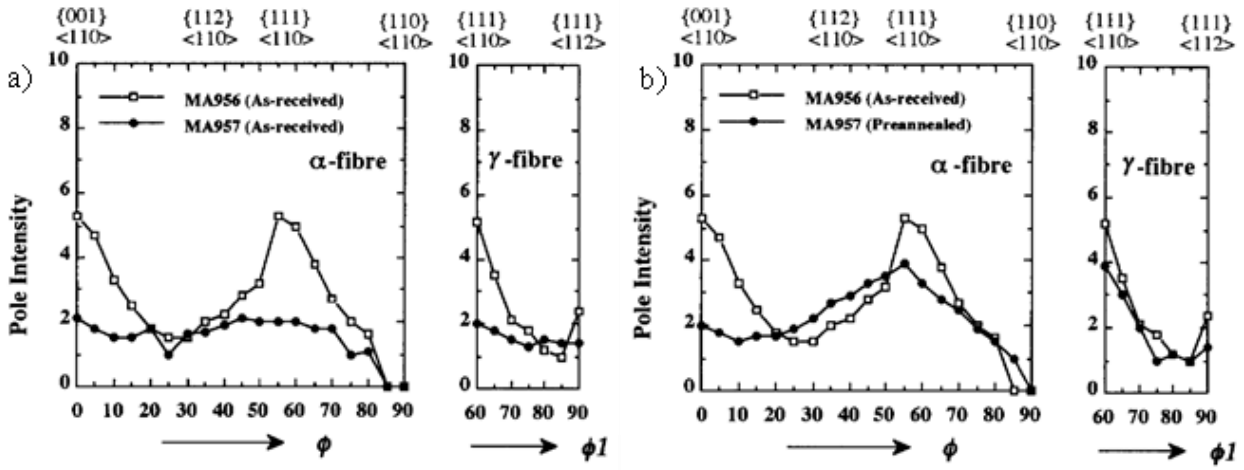


Figure I.26 : Comparaison des densités d'orientations en fonction des angles d'Euler ϕ et φ_1 entre la nuance MA956 brute de filage et a) la nuance MA957 à l'état brut de filage et b) la nuance MA 957 recuite 160h à 1150°C [76]

6.2 Influence de la déformation et de la texture sur la recristallisation

Il apparaît donc que la recristallisation dans les aciers ODS ferritiques après consolidation n'est observable qu'à très haute température (≈ 0,9 T_{fusion}). Afin de réduire cette température pour faciliter leur mise en forme, plusieurs modes de déformation à froid suivis de traitements thermiques peuvent être appliqués sur des nuances compactées à chaud et/ou filées. En effet, comme expliqué dans le paragraphe 2.1.1, la déformation permet d'introduire de l'énergie sous forme de dislocations et de faciliter l'amorçage de la recristallisation primaire.

Grosdidier *et al.* [77] ont montré que la déformation influence la morphologie des grains et la texture après recristallisation. Lors de cette étude, deux échantillons d'une nuance filée ODS Fe-40%Al ont été observés après respectivement 10% et 16% de compression et un traitement thermique de recristallisation d'une heure à 1000°C. Les analyses EBSD sur la Figure I.27 révèlent que la forte texture de fibre α {hkl}<110> due au filage a été remplacée par une texture {hkl}<111> caractéristique des déformations en compression dans les métaux de structure cubique centrée. Cependant, les auteurs constatent au vu des ODF que cette texture <111> après recristallisation est d'autant moins marquée que la déformation est importante. A la suite du traitement de recristallisation, l'échantillon déformé de 10% présente des grains allongés de plusieurs centaines de micromètres dans la direction de filage (ED) (Figure I.27c). L'échantillon déformé de 16% présente quant à lui des grains beaucoup plus fins et équiaxes dans les deux directions de prélèvement (Figure I.27b et d). Les auteurs expliquent ce comportement par le fait qu'à faible déformation, le nombre de germes est plus faibles, les grains recristallisés grossissent plus et sont en contact avec un nombre plus important de précipités alignés dans la direction de filage. Les grains sont alors contraints de croître dans cette direction, parallèlement à l'alignement des précipités, qu'ils ne peuvent pas traverser. Ce phénomène ne s'observe pas pour les déformations plus élevées puisque le nombre important de germes provoque rapidement le recouvrement des grains entre eux. Ceux-ci cessent alors de croître et gardent une morphologie équiaxe. Cette microstructure est ensuite très stable puisqu'elle ne montre pas d'évolution même après un traitement de 45h à 1000°C.

Cette étude montre ainsi l'intérêt de la combinaison déformation/traitement thermique à basse température afin de limiter la croissance des grains, le développement d'une texture et également la coalescence des précipités dans le but d'augmenter les propriétés mécaniques.

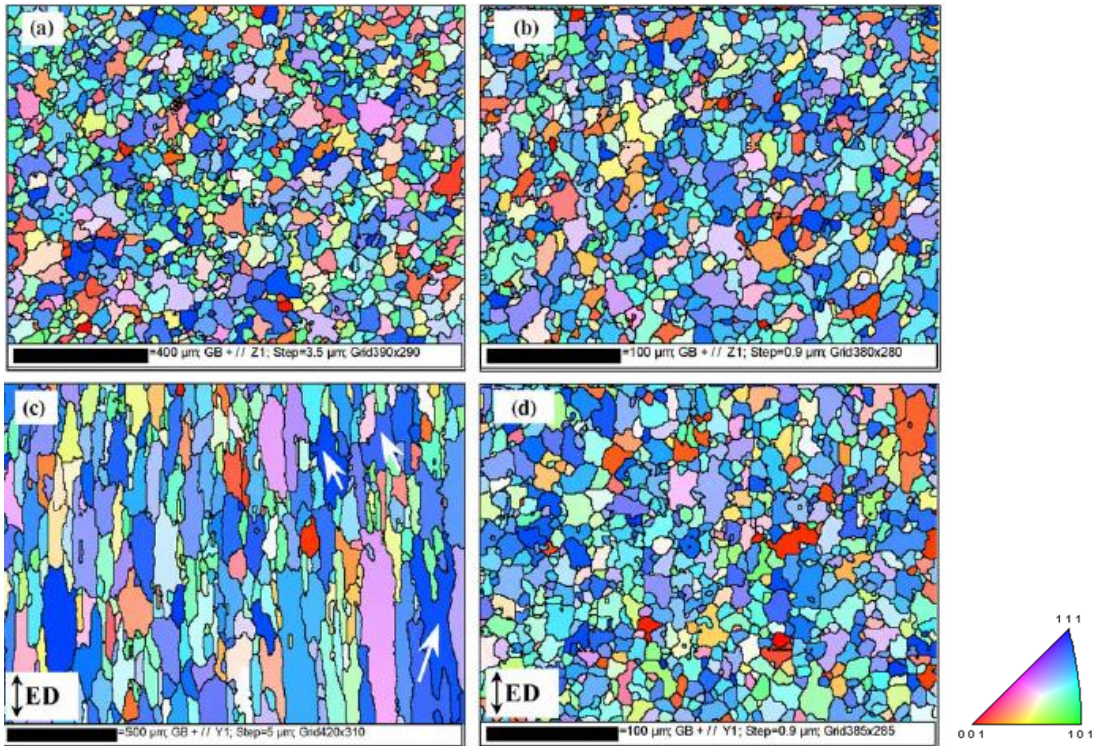


Figure I.27 : Cartographies IPF (directions cristallographies // ED) des coupes (a, b) transverses et (c, d) longitudinales des échantillons traités 1h à 1000°C après compression de (a, c) 10% et (b, d) 16% [77]

Des essais de compression simple ont également été réalisés pendant la thèse de Dadé [52]. Une compression de 40% d'un échantillon ODS 14%Cr filé a conduit à cette même texture <111> // DF. Suite à un traitement thermique à 1450°C pendant 30 min, la microstructure est recristallisée et la texture <111> est maintenue mais avec une acuité moins importante, ce qui reste inexpliqué. Ces travaux ont aussi montré qu'il était possible d'effectuer des analogies taux de compression/température. En effet, la déformation de 40% suivie d'un traitement de 30min à 1450°C conduit à une microstructure similaire à celle obtenue après une déformation de 70% suivie d'un traitement de 30 min à 1150°C. Ceci est intéressant puisque connaissant les phénomènes de coalescence des nano-précipités et de grossissement de grains à haute température, on préfèrera le second traitement thermo-mécanique.

Capdevilla *et al.* [78] se sont intéressés à la recristallisation après déformation de l'alliage MA957 (Fe-14Cr-1Ti-0,3Mo-0,27Y_2O_3). Le matériau a été filé à 1000°C puis laminé à 1000°C pour réduire le diamètre de la barre. Des essais à différents taux de flexion ont été réalisés sur des barres visibles sur la Figure I.28 afin de créer un gradient de déformation dans la section ainsi qu'un changement de signe de la déformation plastique. Suite à cela, un traitement thermique d'une heure a été appliqué à 1330°C sur une barre non déformée (température minimum à laquelle le matériau recristallise) et à 1300°C sur les barres déformées.

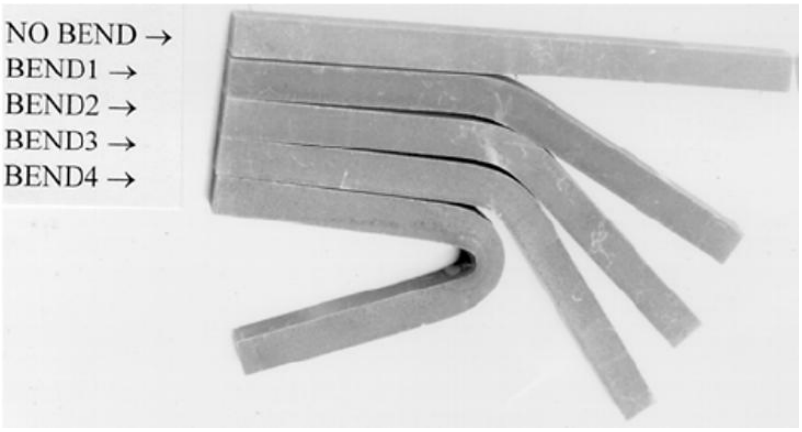


Figure I.28 : Eprouvettes déformées en flexion selon différents taux [78]

La Figure I.29 présente les microstructures obtenues : la barre non déformée montre un début de recristallisation avec des gros grains sur les bords de la barre (Figure I.29a). La barre déformée n°2 présente des gros grains recristallisés dans toute l'épaisseur au niveau du coude de flexion mais des zones non recristallisées au centre lorsqu'on s'éloigne du coude (Figure I.29b). La barre déformée n°4 montre des zones recristallisées à petits grains sur les bords, où la déformation en compression/traction est maximale. Une bande de gros grains recristallisés persiste au centre (Figure I.29c). La Figure I.29d montre que la taille des grains recristallisés est étroitement liée à la densité d'énergie de déformation plastique (calculée par éléments finis avec le logiciel COMSOL en considérant un matériau élasto-plastique et un critère de plasticité de Von Mises) : plus celle-ci est élevée, plus les grains sont petits.

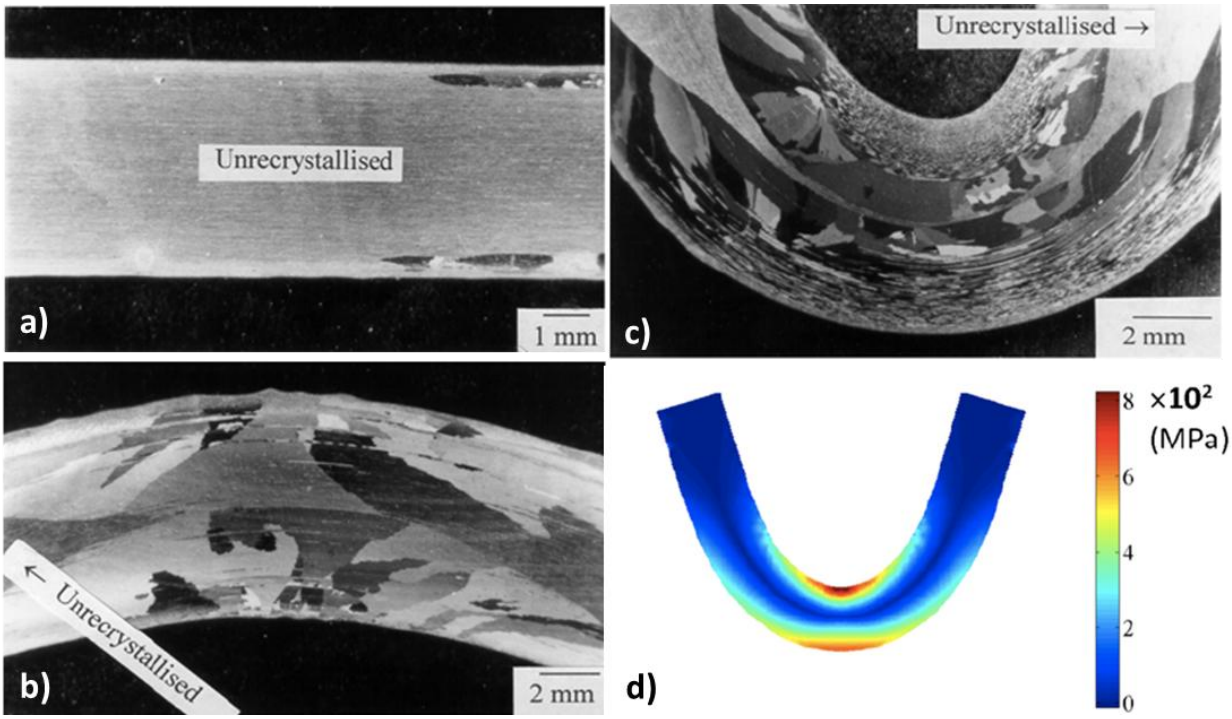


Figure I.29 : Micrographie optique (a) de la barre non-déformée après 1h à 1330°C, (b) de la barre 2 et (c) de la barre 4 après 1h à 1300°C et (d) modélisation par élément finis de la densité d'énergie de déformation pour la barre 4 [78]

Les auteurs [78] relient l'apparition des grains recristallisés directement à la texture de déformation à froid qui serait favorable à la germination. L'état brut de laminage montre une texture où les grains orientent leur direction <110> parallèlement à l'axe de la barre (DT) et leur direction <100> parallèlement à la direction radiale DR de la barre. Dans la zone en compression de la barre 4, ils montrent que la déformation par flexion conduit à fortement atténuer la texture de laminage et à orienter un nombre conséquent de grains selon la fibre γ (plan {111} des grains dans le plan de laminage (DT,DR) et direction <111> normale au plan). Ensuite, les grains recristallisés germeraient plus facilement dans ces zones du fait que la mobilité des grains γ serait plus élevée. Les auteurs évoquent donc la mobilité des joints plus que l'énergie stockée pour expliquer la texture de recristallisation.

La thèse de Réglé [79] a porté sur l'étude de deux procédés de mise en forme à froid différents de l'alliage MA957, l'étirage et le martelage rotatif (4 marteaux), afin de voir leur influence sur la microstructure du matériau avant puis après un traitement de recristallisation. L'étirage maintient la texture de fibre α obtenue après filage où la direction <110> est alignée avec l'axe de la barre. Cependant cette texture tend à diminuer avec l'augmentation de la déformation et la direction <110> des grains s'écarte de plus en plus de l'axe de la barre. Concernant le martelage, une composante cyclique de type {332}<110> semble s'ajouter à la texture de fibre α et cette composante s'accentue avec les passes successives de martelage. Après déformation, quel que soit le procédé, la morphologie des grains est semblable à celle après filage.

Suite à cela, des traitements thermiques d'une heure ont été appliqués pour provoquer la recristallisation du matériau. La température de recristallisation a été mesurée pour différents taux de réduction de section pour ces deux procédés (Figure I.30). Dans cette étude, cette température est définie comme la température à partir de laquelle la structure initiale à grains fins a totalement été remplacée par une structure constituée de gros grains recristallisés. L'évolution de cette température est très différente selon le mode de déformation adopté. L'augmentation de la réduction de section par étirage induit une diminution progressive de la température de recristallisation qui devient inférieure à 1100°C après environ 40%. La déformation par martelage influence beaucoup moins la température de recristallisation, qui reste supérieure à 1300°C même après 60% de réduction de section. Selon Réglé [79], la difficulté à provoquer la recristallisation dans le matériau suite à la déformation par martelage provient de la forte texture du matériau qui limite le mouvement des joints de grains.

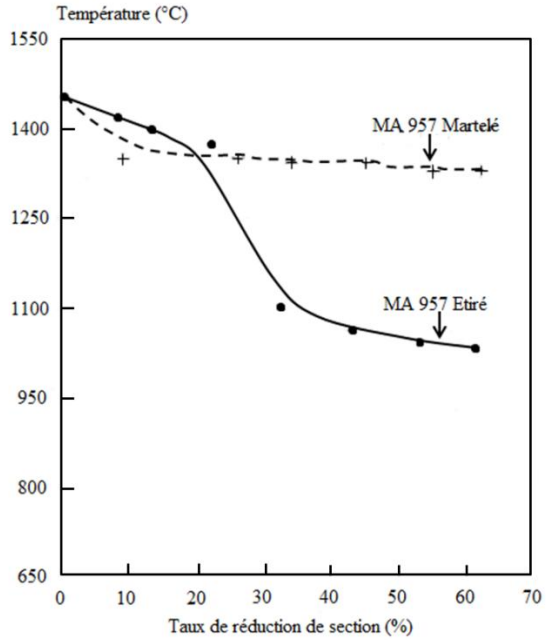


Figure I.30 : Température de recristallisation de l'alliage MA957 déformé par étirage ou martelage [79]

L'étude s'est également portée sur la texture après recristallisation sur l'état étiré à 60% et l'état martelé à 60%. Sur l'état étiré, les grains sont effilés dans la direction de la barre et mesurent entre 50 et 100 µm de diamètre. La texture est de type fibre et les grains orientent majoritairement leur direction <111> dans la direction de la barre. Concernant l'échantillon martelé, il présente deux populations de grains possédant chacune une texture spécifique : Des gros grains de 500 µm au centre et au bord qui suivent majoritairement une direction de type <111> parallèle à la direction de la barre. Les petits grains (diamètre moyen 10 µm) qui forment une couronne à mi-rayon présentent tous une direction <110> alignés avec la direction de la barre.

A partir de ces résultats, Réglé a cherché à comprendre l'origine de cette microstructure recristallisée à gros grains. La première hypothèse est qu'elle est issue d'une recristallisation primaire suivie d'une croissance anormale causée par la forte texture : les joints de grains faiblement désorientés sont peu mobiles et seuls quelques germes d'orientations différentes vont pouvoir donner lieu à la croissance. La deuxième hypothèse est qu'il s'agit d'une recristallisation primaire avec peu de sites de germination qui peuvent croître par différence d'énergie stockée. La texture finale est alors fortement liée à l'orientation de ces grains recristallisés.

Chen et *al.* [80] ont montré l'influence du taux de laminage à froid sur la recristallisation d'une nuance ODS PM2000 à 20%Cr consolidée à 1000°C puis laminée à chaud. Quatre états ont été analysés : brut de laminage à chaud puis laminé à froid de 30, 50 et 70 %. Pour chaque état, des traitements thermiques de 15, 30 et 60 min à 1380°C ont été appliqués. Les auteurs ont montré que la recristallisation n'était pas possible à l'état brut de laminage même après un traitement de 1h à 1380°C. L'énergie stockée est trop faible soit à cause d'une température trop importante lors du laminage à chaud soit à cause d'une restauration lors du traitement thermique. Ces deux phénomènes diminuent l'énergie motrice pour la recristallisation. Pour l'échantillon laminé de 30%, une restauration est privilégiée lors des traitements courts et un début de recristallisation est observé en surface de la tôle après 1h, là où les contraintes de cisaillement sont plus importantes. Concernant l'échantillon laminé de 50%, la recristallisation apparaît

dès le traitement à 15 min mais celle-ci n'est pas uniforme à cause des hétérogénéités (bandes de cisaillement essentiellement) introduites dans le matériau lors du laminage. Après une heure, quelques zones non recristallisées persistent au centre de la tôle mais la majorité du matériau est constituée de gros grains recristallisés. Quant à l'échantillon laminé de 70%, il est totalement recristallisé dès le traitement de 30 min à 1380°C. La température de début de recristallisation est estimée par DSC à 1130 °C.

La recristallisation après laminage à froid a aussi été étudiée par Leng et *al.* [81] sur une nuance ODS 15%Cr. L'étude montre la capacité des grains à stocker plus ou moins d'énergie en fonction de leur orientation cristalline. L'évolution de la texture au cours des traitements thermomécaniques est présentée sur la Figure I.31.

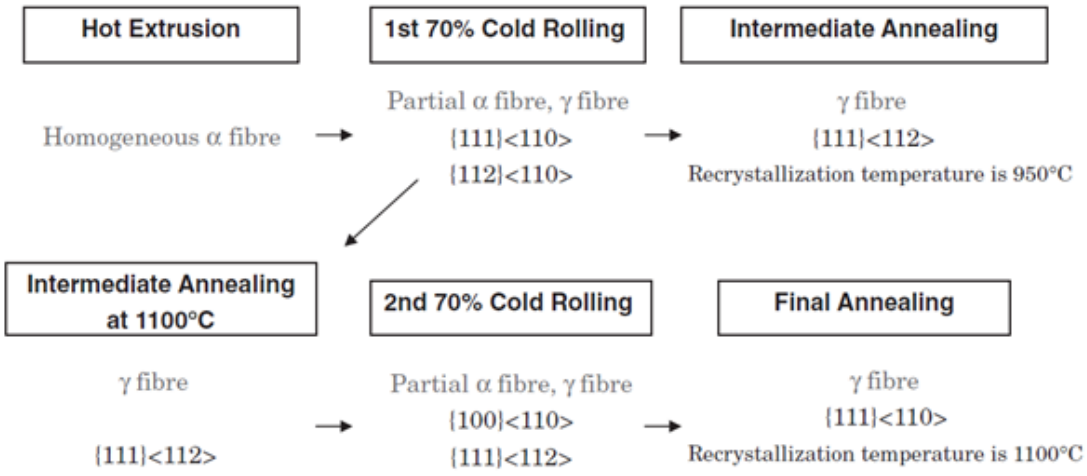


Figure I.31 : Evolution de la texture au cours de la gamme de mise en forme d'un acier ODS 14%Cr PM2000 [81]

Après une première passe de laminage, le matériau présente une texture composée d'une fibre α partielle marquée entre les orientations {111}<110> et {112}<110>. Une légère fibre γ se développe également. Après un traitement de recristallisation de 30 min à 950°C, la texture de fibre α est fortement atténuée et les grains recristallisés présentent majoritairement la composante {111}<112> de la fibre γ. Une deuxième passe de laminage est ensuite appliquée et conduit à l'obtention de l'orientation {100}<110> tandis que l'orientation {111}<112> se maintient. Cette microstructure ne recristallise qu'à partir de 1100°C et développe la composante {111}<110>. De nouveau, la prédominance d'une orientation appartenant à la fibre γ après recristallisation est observée, suggérant la capacité de cette fibre à favoriser la recristallisation dans les aciers de structure cubique centrée. Pour comprendre l'augmentation de la température de recristallisation suite au 2nd laminage, les auteurs se basent sur le classement de l'énergie stockée en fonction du plan cristallographique des grains aligné avec le plan de laminage proposé par Dillamore et Katoh [82] tel que $E_{s\{111\}} > E_{s\{110\}} > E_{s\{100\}}$. Cela expliquerait donc que les grains avec l'orientation {100}<110> stockent peu d'énergie lors du laminage ce qui conduit à une augmentation de la température de recristallisation. Inversement, l'énergie stockée élevée dans les grains de la fibre γ favorise la germination de grains recristallisés.

Concernant le laminage à pas de pèlerin, à l'heure actuelle, les équipes japonaises de JAEA sont les seules à maîtriser la recristallisation des tubes de gainage en ODS avec ce procédé de mise en forme. Narita *et al.* [83] ont travaillé sur l'influence du traitement thermomécanique sur la recristallisation de tubes ODS ferritiques à 12%Cr. Les textures de recristallisation après une déformation par laminage à pas

de pèlerin (Vertikaler Massenausgleich Ringwalzei, VMR) diffèrent du laminage sur tôle et ont tendance à générer une texture plus marquée avec la prédominance de l'orientation {111}<110> (Figure I.32).

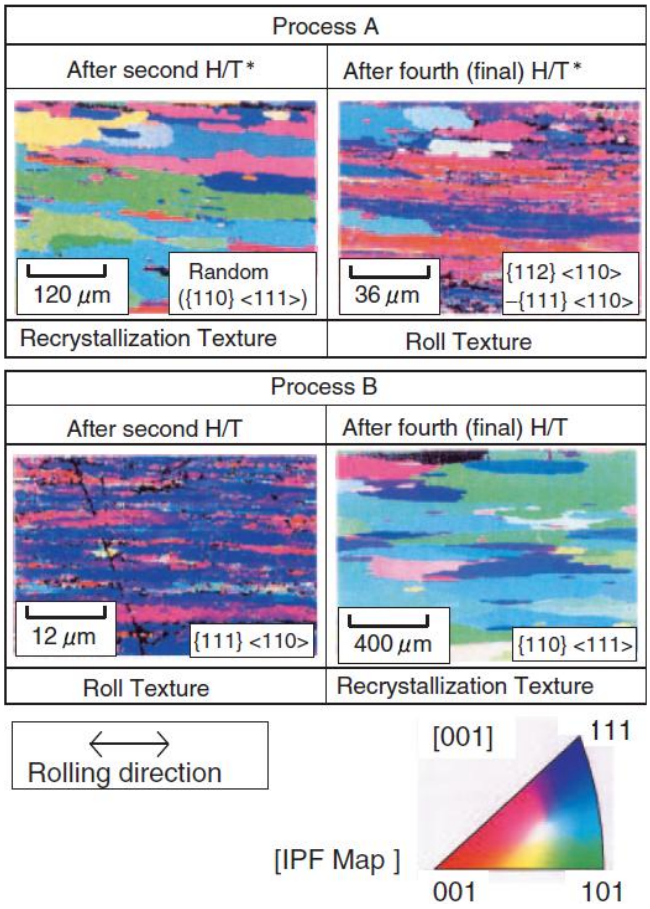


Figure I.32 : Cartographies IPF (directions cristallographiques // normale au plan d'observation) après déformation et après recuit lors de la mise en forme de tube ODS 12%Cr [83]

Narita *et al.* [83] considèrent qu'il est important d'éviter toute recristallisation au cours de la gamme de mise en forme pour obtenir une microstructure totalement recristallisée au dernier traitement thermique. En effet, le laminage de tubes induit une texture {111}<110> favorable à la recristallisation, comme il a été mentionné précédemment. Cependant, d'après Narita *et al.*, une recristallisation intermédiaire produit l'apparition d'une texture {110}<111> qui après laminage donne une texture mixte plus aléatoire de type {112}<110> - {111}<110>. L'acuité moins importante de l'orientation {111}<110> provoque alors une augmentation de la température de recristallisation et la microstructure n'est pas recristallisée comme le montre la Figure I.30 (Process A). A l'inverse, lorsqu'aucune recristallisation intermédiaire n'a lieu, la composante {111}<110> est forte et une recristallisation totale a lieu après traitement thermique et la texture est principalement {110}<111> (Figure I.31, Process B). En revanche, les auteurs n'expliquent pas les raisons pour lesquelles la texture de recristallisation est sensiblement différente de la texture de déformation.

6.3 Influence de la précipitation sur la recristallisation

Comme il a été dit précédemment, la présence des renforts dans les aciers ODS est un phénomène limitant la recristallisation puisqu'ils génèrent une force de freinage sur le mouvement des dislocations et des joints de grains. Ce mécanisme est d'autant plus conséquent que les précipités sont nanométriques et il en découle une stabilité thermique très importante de la microstructure des ODS. L'effet du ratio Ti/Y sur la recristallisation a été investigué sur une nuance filée ODS 14%Cr par Zhong et *al.* [72]. Les résultats montrent que lorsque ce ratio est supérieur à 1, aucune recristallisation n'est constatée même après un traitement à 1300°C. Les nanoparticules sont cohérentes avec la matrice et par conséquent très stables compte tenu de la faible énergie d'interface [84]. Il en découle un ancrage important des dislocations et des joints de grains sur celles-ci. A contrario, une recristallisation est observée après 1h à 1300°C lorsque le ratio Ti/Y est inférieur à 1. Les nanoparticules sont semi-cohérentes et coalescent rapidement lors du traitement thermique pour minimiser leur énergie d'interface. Le mouvement des dislocations est favorisé et celles-ci peuvent s'arranger pour amorcer la recristallisation. A la fin du traitement thermique, il subsiste uniquement quelques gros grains très faiblement désorientés entre eux et présentant une orientation {110}<111>, ou la direction <111> est parallèle à la direction de filage. Une autre étude menée par Guessama *et al.* [85] montre que dans le cas du filage, les renforts ont tendance à s'aligner dans la direction de filage. Ceux-ci créent alors un obstacle au mouvement des joints de grains dans la direction transverse ce qui conduit à l'obtention de grains allongés. Néanmoins, il s'agit de particules enrichies en aluminium et plus grosses que les nano-oxydes de type Y-Ti-O observés dans l'alliage MA957 et les nuances CEA.

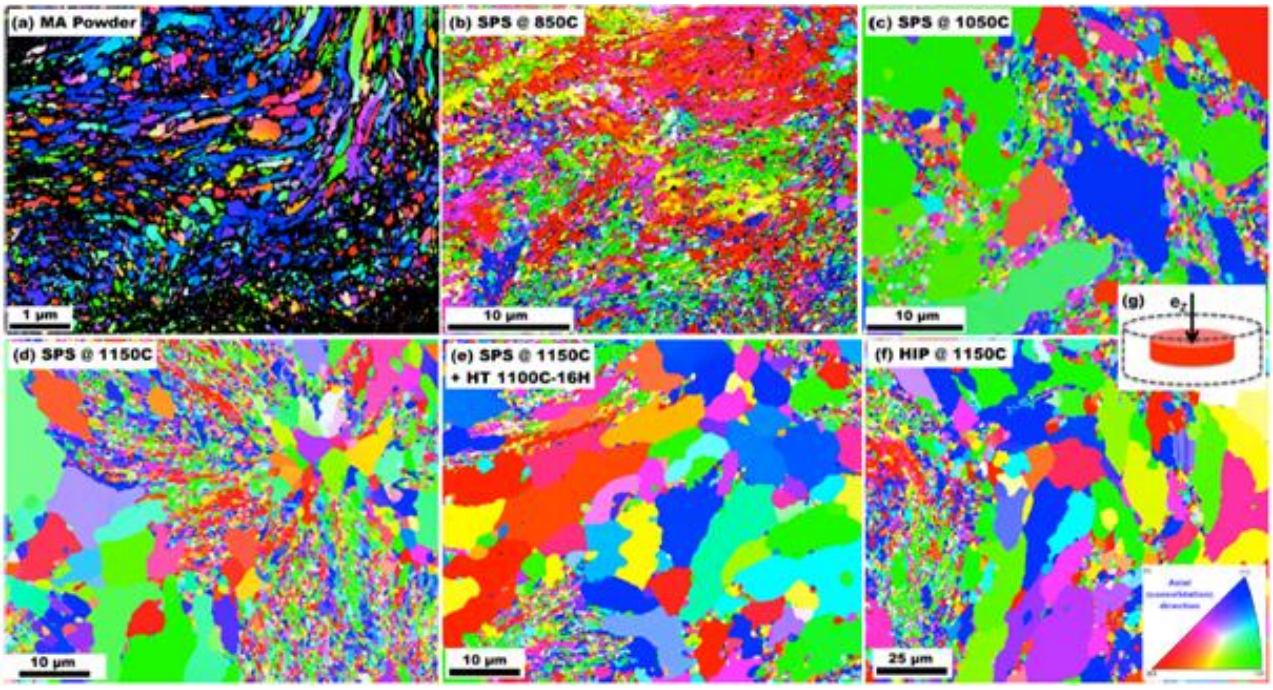


Figure I.33 : Cartographies EBSD montrant la microstructure d'un échantillon ODS (a) brut de broyage, consolidé par SPS à (b) 850°C, (c) 1050°C, (d) 1150°C puis (e) recuit 16h à 1100°C et (f) consolidé par HIP à 1150°C [42]

Sur des nuances consolidées par SPS et CIC, Boulnat [42] et Sallez *et al.* [86] ont montré que la recristallisation lors de la consolidation avait lieu jusqu'à ce que les nanoparticules précipitent à une température proche de 850°C et épinglent complètement les joints de grains. Suite à cela, la microstructure

acquiert une stabilité remarquable et n'évolue plus au-dessus de 1050°C : elle conserve une population de grains bimodale comme il est visible sur les cartographies EBSD décrites sur la Figure I.33. Boulnat *et al.* [87] montrent également une forte dépendance entre la température à laquelle les gros grains recristallisés apparaissent et le taux de nano-renforts : plus ce dernier est élevé, plus les gros grains apparaissent à des températures élevées traduisant l'augmentation de l'énergie d'activation nécessaire à la recristallisation.

Conclusion de l'état de l'art

Cette synthèse bibliographique recense une partie des travaux de recherche sur les aciers ODS ferritiques au cours de ces dernières années et concerne plus particulièrement les mécanismes de recristallisation au sein de ces matériaux.

Il ressort que les procédés de consolidation lors de l'élaboration des aciers ODS génèrent des microstructures anisotropes avec une énergie stockée relativement faible. Ces microstructures sont difficiles à faire recristalliser de façon homogène. Il apparaît que les hétérogénéités dues au broyage provoquent une recristallisation partielle de certains grains uniquement lors de la consolidation à chaud. Après CIC, on a donc une population bimodale de grains avec des gros grains recristallisés et des grains submicroniques déformés. Dans le cas du filage, il faut ajouter à cela la présence de grains allongés et d'une texture de fibre α très marquée. De plus, la distribution fine et homogène de nanoparticules bloque le mouvement des dislocations et des joints de grains ce qui donne lieu à des microstructures très stables. Seuls des traitements thermiques à très haute température ($> 0{,}9T_{fusion}$) peuvent donner lieu à une recristallisation.

Pour remédier à ce problème, des études se sont portées sur l'introduction d'énergie dans le matériau sous forme de dislocations par le biais d'une déformation à froid. La déformation à froid peut conduire à l'apparition de nouvelles orientations cristallographiques susceptibles de favoriser le stockage d'énergie dans les grains mais aussi la mobilité des joints de grains. Il semblerait que les grains appartenant à la fibre γ présentent de telles propriétés puisqu'il est commun d'observer cette texture après recristallisation dans les aciers ODS et dans les métaux de structure cubique centrée plus généralement.

Un autre paramètre influençant les mécanismes de recristallisation est la distribution de nano-précipités dans le matériau. Il apparaît qu'en diminuant la densité de précipités où en changeant leur nature chimique, la recristallisation peut être favorisée. En effet, la réduction de la pression de Zener favorise le mouvement des joints de grains, phénomène indispensable à la recristallisation.

Dans l'ensemble, ces études conduisent à des constats similaires concernant les microstructures après recristallisation dans les aciers ODS. Tout d'abord, celles-ci sont rarement homogènes du fait de la présence d'hétérogénéités de déformation. Il semble plus judicieux de combiner une déformation et un traitement thermique à température moyenne plutôt qu'un simple traitement thermique à haute température sur un état brut de consolidation. Ceci permet d'éviter une coalescence des nano-précipités, une accentuation de la texture et une croissance des grains non maîtrisée. Enfin, comme dans la plupart des métaux, l'augmentation du taux de déformation entraîne une diminution de la température de recristallisation ainsi que de la taille des grains après recristallisation, il semble donc intéressant de pouvoir utiliser le taux de déformation pour contrôler la microstructure finale après recristallisation.

Bibliographie

[1] P. Yvon and F. Carré, "Structural materials challenges for advanced reactor systems," *J. Nucl. Mater.*, vol. 385, no. 2, pp. 217–222, 2009.

[2] M. Ratti, "Développpement de nouvelles nuances d'aciers ferritiques/martensitiques pour le gainage d'éléments combustibles des réacteurs à Neutrons Rapides au sodium," Thèse de doctorat, Université Polytechnique de Grenoble, 2008.

[3] L. Toualbi, C. Cayron, P. Olier, J. Malaplate, M. Praud, M.-H. Mathon, D. Bossu, E. Rouesne, A. Montani, R. Logé, and Y. de Carlan, "Assessment of a new fabrication route for Fe–9Cr–1W ODS cladding tubes," *J. Nucl. Mater.*, vol. 428, no. 1–3, pp. 47–53, 2012.

[4] L. Toualbi, C. Cayron, P. Olier, R. Logé, and Y. de Carlan, "Relationships between mechanical behavior and microstructural evolutions in Fe 9Cr–ODS during the fabrication route of SFR cladding tubes," *J. Nucl. Mater.*, vol. 442, no. 1–3, pp. 410–416, Nov. 2013.

[5] P. Dubuisson, Y. De Carlan, V. Garat, and M. Blat, "ODS Ferritic/martensitic alloys for Sodium Fast Reactor fuel pin cladding," *J. Nucl. Mater.*, vol. 428, no. 1–3, pp. 6–12, 2012.

[6] Y. de Carlan, J. L. Bechade, P. Dubuisson, J. L. Seran, P. Billot, a. Bougault, T. Cozzika, S. Doriot, D. Hamon, J. Henry, M. Ratti, N. Lochet, D. Nunes, P. Olier, T. Leblond, and M. H. Mathon, "CEA developments of new ferritic ODS alloys for nuclear applications," *J. Nucl. Mater.*, vol. 386–388, pp. 430–432, 2009.

[7] J. Boutard, V. Badjeck, L. Barguet, C. Barouh, A. Bhattacharya, Y. Colignon, and C. Hatzoglou, "Oxide dispersion strengthened ferritic steels : a basic research joint program in France," *J. Nucl. Mater.*, vol. 455, pp. 605–611, 2014.

[8] F. J. Humphreys and M. Hatherly, *Recrystallisation and Related Annealing Phenomena, Second Edition*, Elsevier. 2004.

[9] R. W. Cahn, "Recrystallisation of single crystals after plastic bending," *J. Inst. Met.*, 1949.

[10] R. D. Doherty, D. A. Hughes, F. J. Humphreys, J. J. Jonas, D. Juul Jensen, M. E. Kassner, W. E. King, T. R. McNelley, H. J. McQueen, and A. D. Rollett, "Current issues in recrystallization: A review," *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 238, pp. 219–274, 1997.

[11] W. T. Read, *Dislocations in Crystals*, McGraw Hil. 1953.

[12] A. Karch, D. Sornin, F. Barcelo, S. Bosonnet, Y. De Carlan, and R. Logé, "Microstructural characterizations of 14Cr ODS ferritic steels subjected to hot torsion," *J. Nucl. Mater.*, vol. 459, pp. 53–61, 2015.

[13] C. Moussa, M. Bernacki, R. Besnard, and N. Bozzolo, "About quantitative EBSD analysis of deformation and recovery substructures in pure Tantalum," *IOP Conf. Ser. Mater. Sci. Eng.*, vol. 89, p. 12038, 2015.

[14] A. Bowles, K. Nogita, M. Dargusch, C. Davidson, and J. Griffiths, "Grain Size Measurements in Mg-Al High Pressure Die Castings Using Electron Back-Scattered Diffraction (EBSD)," *Mater. Trans.*, vol. 45, no. 11, pp. 3114–3119, 2004.

[15] J. E. Burke and D. Turnbull, "Recrystallization and Grain Growth," in *Progress in Metal Physics*, 1952, p. 220.

[16] F. N. Rhines and K. R. Craig, "Mechanism of Steady-State Grain Growth in Aluminum," *Metall. Trans.*, vol. 5, no. February, pp. 413–425, 1974.

[17] N. Sallez, "Recrystallization, abnormal grain growth and ultrafine micrsotructure of ODS ferritic steels," Thèse de Doctorat, Université de Grenoble, 2014.

[18] M. A. Miodownik, "A review of microstructural computer models used to simulate grain growth and recrystallisation in aluminium alloys," *J. Light Met.*, vol. 2, no. 3 SPEC., pp. 125–135, 2002.

[19] C. S. Smith, "Grains, phases and interfaces : An interpretation of microstructure," *Trans. Amer. Inst. Min Met. Engrs*, vol. 175, 1948.

[20] P. A. Manohar, M. Ferry, and T. Chandra, "Five Decades of the Zener Equation.," *ISIJ Int.*, vol. 38, no. 1 998, pp. 913–924, 1998.

[21] F. J. Humphreys, "A unified theory of recovery, recrystallization and grain growth, based on the stability and growth of cellular microstructures - I. The basic model," *Acta Mater.*, vol. 45, no. 10, pp. 4231–4240, 1997.

[22] L. E. Murr, *Interfacial Phenomena in Metals and Alloys*. 1975.

[23] A. P. Sutton and R. W. Balluffi, "On geometric criteria for low interfacial energy," *Acta Metall.*, vol. 35, no. 9, pp. 2177–2201, 1987.

[24] L. Priester, *Les joints de grains, de la théorie à l'ingénierie*. 2006.

[25] L. Li, W. Yang, and Z. Sun, "Dynamic Recrystallization of Ferrite with Particle-Stimulated Nucleation in a Low-Carbon Steel," *Metall. Mater. Trans. A*, vol. 44A, pp. 2060–2069, 2013.

[26] H. R. Z. Sandim, R. A. Renzetti, A. F. Padilha, R. Lindau, and D. Raabe, "Annealing behavior of RAFM ODS-Eurofer steel," *Fusion Sci. Technol.*, vol. 61, 2012.

[27] H. J. Bunge, *Texture Analysis in Materials Science*, Butterwort. London, 1982.

[28] E. Aydogan, S. Pal, O. Anderoglu, S. A. Maloy, S. C. Vogel, G. R. Odette, J. J. Lewandowski, D. T. Hoelzer, I. E. Anderson, and J. R. Rieken, "Effect of tube processing methods on the texture and grain boundary characteristics of 14YWT nanostructured ferritic alloys," *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 661, pp. 222–232, 2016.

[29] T. Baudin, "Analyse EBSD - Principe et Cartographie d'orientations," *Tech. l'ingénieur*, 2010.

[30] M. Cai, X. Wei, B. Rolfe, and P. D. Hodgson, "Microstructure and texture evolution during tensile deformation of symmetric/asymmetric-rolled low carbon microalloyed steel," *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 641, pp. 297–304, 2015.

[31] A. Samet-Meziou, A. L. Etter, T. Baudin, and R. Penelle, "Relation between the deformation sub-structure after rolling or tension and the recrystallization mechanisms of an IF steel," *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 473, pp. 342–354, 2008.

[32] K. Hamad, B. K. Chung, and Y. G. Ko, "Effect of deformation path on microstructure, microhardness and texture evolution of interstitial free steel fabricated by differential speed rolling," *Mater. Charact.*, vol. 94, pp. 203–214, 2014.

[33] J. H. Park, K. Hamad, I. P. Widiantara, and Y. G. Ko, "Strain and crystallographic texture evaluation of interstitial free steel cold deformed by differential speed rolling," *Mater. Lett.*, vol. 147, pp. 38–41, 2015.

[34] P. S. Bate and J. Quinta da Fonseca, "Texture development in the cold rolling of IF steel," *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 380, no. December 2003, pp. 365–377, 2004.

[35] I. L. Dillamore, H. Katoh, and K. Haslam, "The nucleation of recrystallization and the development of textures in heavily compressed iron-carbon alloys," *Texture*, vol. 1, pp. 151–156, 1974.

[36] A. Lodini and T. Baudin, *Rayonnement synchrotron, rayons X et neutrons au service des matériaux : Analyse des contraintes et des textures*. EDP Science, 2012.

[37] D. J. Jensen, "Growth rates and misorientation relationships between growing nuclei/grains and the

surrounding deformed matrix during recrystallization," *Acta Met. Mater.*, vol. 43, no. 11, pp. 4117–4129, 1995.

[38] M. R. Barnett, "Role of in-grain shear bands in the nucleation of <111>//ND recrystallisation textures in warm rolled steel," *ISIJ Int.*, vol. 38, no. 1 998, pp. 78–85, 1998.

[39] A. Wauthier-Monnin, T. Chauveau, O. Castelnau, H. Réglé, and B. Bacroix, "The evolution with strain of the stored energy in different texture components of cold-rolled if steel revealed by high resolution X-ray diffraction," *Mater. Charact.*, vol. 104, pp. 31–41, 2015.

[40] M. Inoue, T. Kaito, and S. Ohtsuka, "Research and development of oxide dispersion strenghtened ferritic steels for SFR breeder reactor fuels," in *Materials Issues for Generation IV Systems*, V. Ghetta, Ed. 2007, pp. 311–325.

[41] J. S. Benjamin, "Dispersion strengthened superalloys by mechanical alloying," *Metall. Trans.*, vol. 1, no. October, pp. 2943–2951, 1970.

[42] X. Boulnat, "Fast high-temperature consolidation of ODS (ODS) steels : process, microstructure, precipitation, properties," Thèse de Doctorat, INSA de Lyon, 2014.

[43] Z. Oksiuta and N. Baluc, "Optimization of the chemical composition and manufacturing route for ODS RAF steels for fusion reactor application," *Nucl. Fusion*, vol. 49, p. 55003, 2009.

[44] P. Olier, M. Couvrat, C. Cayron, N. Lochet, and L. Chaffron, "Incidence of Mechanical Alloying Contamination on Oxide and Carbide Formation in ODS Ferritic Steels," *J. Nucl. Mater.*, vol. 442, p. 2011, 2011.

[45] C. L. Chen and Y. M. Dong, "Effect of mechanical alloying and consolidation process on microstructure and hardness of nanostructured Fe-Cr-Al ODS alloys," *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 528, no. 29–30, pp. 8374–8380, 2011.

[46] P. Olier, J. Malaplate, M. H. Mathon, D. Nunes, D. Hamon, L. Toualbi, Y. de Carlan, and L. Chaffron, "Chemical and microstructurale evolution on ODS Fe-14CrWTi steel during manufacturing stages," *J. Nucl. Mater.*, vol. 428, pp. 40–46, 2015.

[47] M. Praud, "Plasticité d'alliages renforcés par nano-précipitation," Thèse de Doctorat, Université de Toulouse, 2013.

[48] C. C. Eiselt, H. Schendzielorz, A. Seubert, B. Hary, Y. de Carlan, P. Diano, B. Perrin, and D. Cedat, "ODS-materials for high temperature applications in advanced nuclear systems," *Nucl. Mater. Energy*, vol. 9, pp. 22–28, 2016.

[49] P. Unifantowicz, Z. Oksiuta, P. Olier, Y. de Carlan, and N. Baluc, "Microstructure and mechanical properties of an ODS RAF steel fabricated by hot extrusion or hot isostatic pressing," *Fusion Eng. Des.*, vol. 86, no. 9–11, pp. 2413–2416, Oct. 2011.

[50] Z. Oksiuta, P. Hosemann, S. C. Vogel, and N. Baluc, "Microstructure examination of Fe–14Cr ODS ferritic steels produced through different processing routes," *J. Nucl. Mater.*, vol. 451, no. 1–3, pp. 320–327, Aug. 2014.

[51] A. Pandey, K. Jayasankar, P. Parida, M. Debata, B. K. Mishra, and S. Saroja, "Optimization of milling parameters, processing and characterization of nano-crystalline oxide dispersion strengthened ferritic steel," *Powder Technol.*, vol. 262, pp. 162–169, 2014.

[52] M. Dadé, "Plasticité d'alliages nanorenforcés pour le gainage combustible des réacteurs de 4ème génération : Compréhension et modélisation de l'influence des différents paramètres microstructuraux sur le comportement d'alliages modèles," Thèse de Doctorat, Université Grenoble-Alpes, 2015.

[53] M. Serrano, M. Hernández-Mayoral, and A. García-Junceda, "Microstructural anisotropy effect on the mechanical properties of a 14Cr ODS steel," *J. Nucl. Mater.*, vol. 428, no. 1–3, pp. 103–109,

2012.

[54] M. Praud, F. Mompiou, J. Malaplate, D. Caillard, J. Garnier, A. Steckmeyer, and B. Fournier, "Study of the deformation mechanisms in a Fe-14% Cr ODS alloy," *J. Nucl. Mater.*, vol. 428, no. 1–3, pp. 90–97, 2012.

[55] A. Karch, "Etudes des évolutions microstructurales lors de la déformation à chaud d'aciers ODS ferritiques," Thèse de doctorat, Mines Paris-Tech, 2015.

[56] L. Toualbi, "Optimisation de la gamme de fabrication de tubes en aciers renforcés par une dispersion d'oxydes (ODS) : compréhension des relations microstructure/propriétés mécaniques," Thèse de Doctorat, Mines ParisTech, 2012.

[57] T. Okuda and M. Fujiwara, "Dispersion behaviour of oxide particles in mechanically alloyed ODS steel," *J. Mater. Sci. Lett.*, vol. 14, pp. 1600–1603, 1995.

[58] M. Brocq, "Synthèse et caractérisation d'un acier ODS préparé par un procédé inspiré du broyage réactif - Etude de l'influence des conditions de broyage et recuit," Thèse de doctorat, Université de Rennes, 2012.

[59] S.-Y. Zong, "Etude des évolutions microstructurales à haute température en fonction des teneurs initiales en Y, Ti et O et de leur incidence sur les hétérogénités de déformation dans les aciers ODS Fe-14Cr-1W," Thèse de doctorat, Université Paris-Sud, 2012.

[60] M.-A. Thual, "Etude de la cinétique de coalescence de nano-oxydes et incidence sur la recristallisation dans des alliages ODS," Thèse de doctorat, Université Paris-Saclay, 2017.

[61] L. Toualbi, M. Ratti, G. André, F. Onimus, and Y. De Carlan, "Use of neutron and X-ray diffraction to study the precipitation mechanisms of oxides in ODS materials," *J. Nucl. Mater.*, vol. 417, no. 1–3, pp. 225–228, 2011.

[62] M. Ratti, D. Leuvrey, M. H. Mathon, and Y. de Carlan, "Influence of titanium on nano-cluster (Y, Ti, O) stability in ODS ferritic materials," *J. Nucl. Mater.*, vol. 386–388, pp. 540–543, 2009.

[63] M. Couvrat, "Fabrication d'aciers ODS à haute performance : relation procédé - microstructure - propriétés mécaniques," Thèse de Doctorat, Université de Rennes, 2013.

[64] M.-L. Lescoat, J. Ribis, A. Gentils, O. Kaïtasov, Y. de Carlan, and A. Legris, "In situ TEM study of the stability of nano-oxides in ODS steels under ion-irradiation," *J. Nucl. Mater.*, vol. 428, pp. 176–182, 2012.

[65] M. J. Alinger, G. R. Odette, and D. T. Hoelzer, "The development and stability of Y – Ti – O nanoclusters in mechanically alloyed Fe – Cr based ferritic alloys," *J. Nucl. Mater.*, vol. 333, pp. 382–386, 2004.

[66] J. Ribis and Y. de Carlan, "Interfacial strained structure and orientation relationships of the nanosized oxide particles deduced from elasticity-driven morphology in oxide dispersion strengthened materials," *Acta Mater.*, vol. 60, pp. 238–252, 2012.

[67] J. Ribis, M. A. Thual, T. Guilbert, Y. de Carlan, and A. Legris, "Relaxation path of metastable nanoclusters in oxide dispersion strengthened materials," *J. Nucl. Mater.*, vol. 484, pp. 183–192, 2017.

[68] J. Ribis, M. Lescoat, S. Y. Zhong, M. Mathon, and Y. De Carlan, "Influence of the low interfacial density energy on the coarsening resistivity of the nano-oxide particles in Ti-added ODS material," *J. Nucl. Mater.*, vol. 442, pp. 101–105, 2013.

[69] M. K. Miller, D. T. Hoelzer, E. A. Kenik, and K. F. Russell, "Nanometer scale precipitation in ferritic MA/ODS alloy MA957," *J. Nucl. Mater.*, vol. 329–333, no. 2004, pp. 338–341, 2004.

[70] H. Sakasegawa, L. Chaffron, F. Legendre, L. Boulanger, T. Cozzika, M. Brocq, and Y. de Carlan,

"Correlation between chemical composition and size of very small oxide particles in the MA957 ODS ferritic alloy," *J. Nucl. Mater.*, vol. 384, no. 2, pp. 115–118, 2009.

[71] X. Boulnat, M. Perez, D. Fabrègue, S. Cazottes, and Y. de Carlan, "Characterization and modeling of oxides precipitation in ferritic steels during fast non-isothermal consolidation," *Acta Mater.*, vol. 107, pp. 390–403, 2016.

[72] S. Y. Zhong, J. Ribis, T. Baudin, N. Lochet, Y. de Carlan, V. Klosek, and M. H. Mathon, "The effect of Ti/Y ratio on the recrystallisation behaviour of Fe–14%Cr oxide dispersion-strengthened alloys," *J. Nucl. Mater.*, vol. 452, no. 1–3, pp. 359–363, Sep. 2014.

[73] P. Dou, A. Kimura, R. Kasada, T. Okuda, M. Inoue, S. Ukai, S. Ohnuki, T. Fujisawa, and F. Abe, "Effects of titanium concentration and tungsten addition on the nano-mesoscopic structure of high-Cr oxide dispersion strengthened (ODS) ferritic steels," *J. Nucl. Mater.*, vol. 442, no. 1–3, pp. S95–S100, 2013.

[74] Z. Oksiuta, P. Mueller, P. Spätig, and N. Baluc, "Effect of thermo-mechanical treatments on the microstructure and mechanical properties of an ODS ferritic steel," *J. Nucl. Mater.*, vol. 412, no. 2, pp. 221–226, May 2011.

[75] J. Shen, H. Yang, Y. Li, S. Kano, and Y. Matsukawa, "Microstructural stability of an as-fabricated 12Cr-ODS steel under elevated-temperature annealing," *J. Alloys Compd.*, vol. 695, pp. 1946–1955, 2017.

[76] T. S. Chou and H. K. D. H. Bhadeshia, "Recrystallization temperatures in mechanically alloyed ODS MA956 and MA957 steels," *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 189, pp. 229–233, 1994.

[77] T. Grosdidier, E. Suzon, and F. Wagner, "Primary recrystallization in an ODS FeAl alloy: An effective way to modify texture and microstructure," *Intermetallics*, vol. 12, pp. 645–654, 2004.

[78] C. Capdevila, I. Toda-Caraballo, G. Pimentel, and J. Chao, "Influence of plastic deformation on recrystallized microstructure of Fe-base ODS alloy," *Met. Mater. Int.*, vol. 18, pp. 799–804, 2012.

[79] H. Réglé, "Alliages ferritiques 14/20% de chrome renforcés par dispersion d'oxydes : Effets des procédés de mise en forme sur les textures de déformation, la recristallisation et les propriétés de traction," Thèse de Doctorat, Université Paris-Sud, 1994.

[80] C.-L. Chen, Y.-M. Dong, and S.-M. Fu, "Strain Heterogeneity, Recovery and Recrystallization of Nanostructured ODS Alloys during Cold Deformation," *Mater. Trans.*, vol. 53, no. 10, pp. 1795–1800, Sep. 2012.

[81] B. Leng, S. Ukai, T. Narita, Y. Sugino, Q. Tang, N. Oono, S. Hayashi, F. Wan, S. Ohtsuka, and T. Kaito, "Effects of Two-Step Cold Rolling on Recrystallization Behaviors in ODS Ferritic Steel," *Mater. Trans.*, vol. 53, no. 4, pp. 652–657, 2012.

[82] I. L. Dillamore and H. Katoh, "The mechanism of recrystallization in cubic metals with particular reference to their orientation -dependence," *Met. Sci.*, vol. 8, no. 1, pp. 73–83, 1974.

[83] T. Narita, S. Ukai, and T. Kaito, "Development of Two-Step Softening Heat Treatment for Manufacturing 12Cr – ODS Ferritic Steel Tubes," *J. Nucl. Sci. Technol.*, vol. 41, no. 10, pp. 1008–1012, 2004.

[84] S. Y. Zhong, J. Ribis, N. Lochet, Y. de Carlan, V. Klosek, and M. H. Mathon, "Influence of nano-particle coherency degree on the coarsening resistivity of the nano-oxide particles of Fe–14Cr–1W ODS alloys," *J. Nucl. Mater.*, vol. 455, no. 1–3, pp. 618–623, 2014.

[85] S. Guessasma, E. Suzon, T. Grosdidier, and F. Wagner, "Static recrystallisation in an ODS FeAl alloy: The effect of particles on texture and anisotropic grain growth developments," *Intermetallics*, vol. 16, no. 8, pp. 1013–1025, Aug. 2008.

[86] N. Sallez, P. Donnadieu, E. Courtois-Manara, D. Chassaing, C. Kübel, F. Delabrouille, M. Blat-

Yrieix, Y. de Carlan, and Y. Bréchet, “On ball-milled ODS ferritic steel recrystallization: From as-milled powder particles to consolidated state,” *J. Mater. Sci.*, vol. 50, pp. 2202–2217, 2015.

[87] X. Boulnat, N. Sallez, M. Dadé, a. Borbély, J. L. Béchade, Y. De Carlan, J. Malaplate, Y. Bréchet, F. De Geuser, a. Deschamps, P. Donnadieu, D. Fabrègue, and M. Perez, “Influence of oxide volume fraction on abnormal growth of nanostructured ferritic steels during non-isothermal treatments: An in situ study,” *Acta Mater.*, vol. 97, pp. 124–130, 2015.

Chapitre II. Matériaux et techniques expérimentales

1. Matériaux de l'étude 54
2. Outils de caractérisation expérimentale 55
2.1 Directions macroscopiques et découpe des échantillons 55
2.2 Diffraction des électrons rétrodiffusés (EBSD) 55
2.2.1 Préparation des échantillons 55
2.2.2 Acquisition 55
2.2.3 Traitement des données 57
2.2.3.A Généralités 57
2.2.3.B Mesure de la densité de dislocations 57
2.3 Microscope électronique à transmission 60
2.4 Diffusion des neutrons aux petits angles (DNPA) 62
2.5 Calorimétrie différentielle à balayage (DSC) 65
2.6 Déformation à froid après filage 66
2.6.1 Compression uniaxiale 67
2.6.2 Compression multiaxiale alternée (CMAA) 67
2.7 Nano-indentation instrumentée 70
Conclusion : 70
Bibliographie 71

1. Matériaux de l'étude

Les matériaux élaborés dans le cadre de cette étude sont issus d'une poudre pré-alliée atomisée par Aubert&Duval Fe-14Cr-1W et co-broyée au CEA (SRMA/LTMEx) avec des poudres nanométriques de de TiH_2 et d'Y_2O_3. Le co-broyage est effectué en attriteur pendant 10h sous atmosphère d'argon à une vitesse de 400 tours par minute. La cuve de l'attriteur est en acier ferritique et le ratio volumique bille/poudre est égal à 15. Après broyage, la poudre est compactée dans une billette, dégazée puis chauffée à 1100°C pendant 1h. La consolidation s'achève avec un filage à 1100°C où le ratio de réduction de section est d'environ 13. Les barres obtenues après extrusion présentent un diamètre de 15 mm et sont refroidies à l'air.

Afin de comprendre l'influence du taux de renforts sur les mécanismes de recristallisation dans les aciers ODS ferriques, on s'est proposé d'élaborer 6 nuances avec des concentrations différentes en titane et en yttrium. Parmi elles, une nuance non renforcée ainsi qu'une nuance sans titane ont été considérées. La nuance R0,3 et dans une moindre mesure la R0,2 présentent des taux de renforts proches de ceux des nuances CEA actuelles . Les compositions nominales en pourcentages massiques des différentes nuances sont présentées dans le Tableau II.1.

Nuances	**Cr**	**W**	**Ti**	**Y_2O_3**	**Fe**
NonR	14	1	0	0	Bal.
STi	14	1	0	0,2	Bal.
R0,05	14	1	0,05	0,05	Bal.
R0,1	14	1	0,1	0,1	Bal.
R0,2	14	1	0,2	0,2	Bal.
R0,3	14	1	0,3	0,3	Bal.

Tableau II.1: Compositions chimiques visées en % massique des nuances de l'étude

L'analyse chimique des barres a été effectuée par le bureau Veritas. Les résultats sont présentés dans le Tableau II.2. Le nickel, le manganèse et le silicium sont des éléments d'alliages ajoutés dans la poudre pré-alliée en concentration constante, ce qui est confirmé pour le Mn et le Ni. Le Si a été dosé uniquement dans la nuance R0,3 mais sa concentration est peu susceptible d'être différente dans les autres nuances. La concentration en oxygène est issue de 2 contributions : (i) l'oxygène introduit sous forme d'Y_2O_3 et (ii) la pollution introduite lors du broyage. La concentration d'oxygène due à la pollution varie peu d'une nuance à l'autre et est comprise entre 0,07% et 0,08%. On notera la concentration anormalement élevée en O dans la nuance STi, qui pourrait influer sur les résultats obtenus par la suite. Le carbone, l'azote et l'aluminium sont également attribués à la pollution lors du broyage. La nuance non renforcée n'ayant pas été co-broyée, elle présente une pollution plus faible que les autres nuances. La comparaison des analyses entre la nuance R0,3 avant (poudre) et après consolidation permet de constater que le filage n'induit pas, a priori, de modifications de la composition chimique.

Nuances	**Cr**	**W**	**Ti**	**Y**	**O**	**Ni**	**Mn**	**C**	**N**	**Si**	**Al**	**Fe**
NonR	14,1	0,97	0	0	0,045	0,2	0,28	0,009	0,018	/	0,003	Bal.
STi	14,2	0,95	0	0,14	0,21	0,2	0,29	0,039	0,044	/	0,007	Bal.
R0,05	14,2	0,99	0,05	0,05	0,076	0,2	0,29	0,037	0,041	/	0,007	Bal.
R0,1	14,2	0,97	0,15	0,07	0,09	0.2	0,29	0,03	0,04	/	0,01	Bal.
R0,2	14,1	0,91	0,2	0,13	0,11	0,2	0,29	0,03	0,04	/	0,01	Bal.
R0,3	14,1	0,88	0,31	0,2	0,11	0,2	0,29	0.03	0,05	0.25	0,01	Bal.
R0,3 (poudre)	13,5	0,89	0,32	0,21	0.13	0,2	0,28	0,03	0,05	/	0,02	Bal

Tableau II.2: Compositions chimiques mesurées en % massique des nuances de l'étude

2. Outils de caractérisation expérimentale

2.1 Directions macroscopiques et découpe des échantillons

Les matériaux étant élaborés sous forme de barres. On peut définir des directions principales et des plans (ou coupes) macroscopiques qui vont nous permettre d'expliciter par la suite les directions de prélèvement et d'observation des échantillons. Ces directions principales et coupes sont présentées sur le schéma de la Figure II.1.

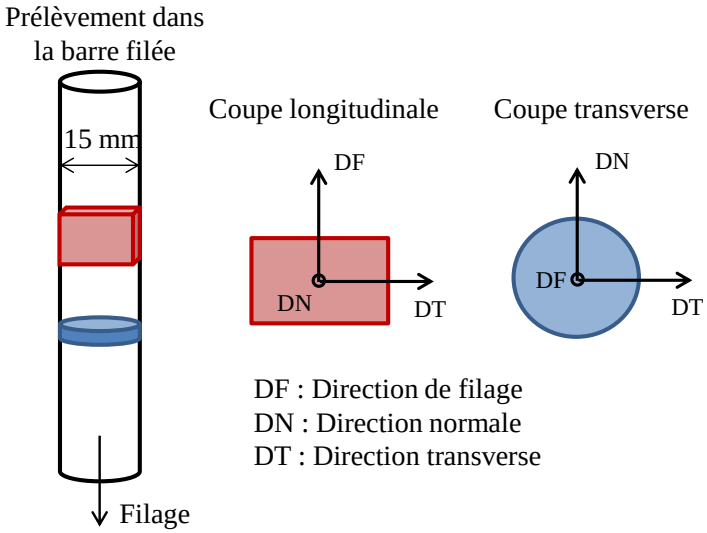


Figure II.1 : Définition des directions macroscopiques principales et des coupes

Dans le cadre de cette thèse, les échantillons sont observés au microscope (optique et électronique) par défaut sur les coupes longitudinales. Néanmoins, dans certains cas particuliers, les échantillons pourront être observés en coupes transverses, cela sera alors précisé. On peut préciser que dans le cas des états filés, la symétrie axiale de la barre fait que DN et DT sont équivalentes et correspondent à une direction radiale. Néanmoins, après déformation à froid, en fonction du chemin de déformation appliqué, la distinction entre ces deux directions peut avoir son importance.

2.2 Diffraction des électrons rétrodiffusés (EBSD)

2.2.1 Préparation des échantillons

Les échantillons pour l'EBSD sont polis mécaniquement aux papiers SiC 500 et 1200. Ensuite, un polissage avec de la pâte diamantée est effectué sur des draps de 9µm à 1µm. L'étape de finition consiste en un polissage vibrant pendant 6h avec une solution de silice colloïdale ou en un polissage électrolytique de 30 secondes avec une solution contenant 70% d'éthanol et 10% d'acide perchlorique (solution appelée « 721 ») .

2.2.2 Acquisition

Le système d'acquisition EBSD est intégré à un microscope électronique à balayage muni d'un canon à émission de champ (MEB-FEG). La technique est basée sur le principe de la diffraction des électrons rétrodiffusés (Electron BackScatter Diffraction) selon la loi de Bragg [1]. L'échantillon doit être incliné de

70° par rapport au faisceau incident, afin d'être dans les conditions pour avoir le rendement de rétrodiffusion maximal. Lorsque les électrons incidents, après avoir diffusés ou non dans le cristal, sont en conditions de Bragg avec les plans cristallographiques {*hkl*} d'un grain, ils forment 2 cônes de diffractions (voir Figure II.2). Ces cônes interceptent l'écran phosphorescent d'une caméra placée à proximité dans la chambre du MEB. Du fait que les électrons diffractent dans un grand domaine angulaire, les cônes de diffraction sont fortement ouverts. Il en résulte que les interceptions des 2 arcs de cercle avec l'écran peuvent être assimilées à des lignes droites comme celles visibles sur la Figure II.2 : ce sont les lignes de Kikuchi. La superposition de toutes les paires de lignes sur l'écran issues des différentes familles de plans cristallins forme le diagramme de Kikuchi. L'image de ces diagrammes est captée en temps réel par la caméra EBSD qui permet une indexation automatique. On peut ensuite remonter à l'orientation cristallographique du volume ciblé par les électrons incidents [2]. La répétition de cette étape sur un grand nombre de points (dépendant du pas et de la taille de la zone analysée) suite au balayage du faisceau permet l'acquisition de la cartographie EBSD. Sur celle-ci, on visualise, via un code de couleurs, la direction cristallographique des grains parallèles à une direction macroscopique définie. On a donc accès à la texture morphologique et cristallographique du matériau.

La plupart des analyses sont effectuées avec un système d'acquisition Quantax 400 (Esprit 1.9) et une caméra Bruker e-Flash HR montée sur un microscope à émission de champ ZEISS SIGMA HD. Les analyses EBSD sur les poudres sont effectuées sur le même modèle de MEB mais équipé d'un système d'acquisition TSL-EDAX OIM et d'une caméra NORDIF UF 1100. Les conditions d'acquisition optimales sont une tension d'accélération de 20 keV, une distance de travail de 15 mm et une distance caméra-échantillon de 15 mm.

Il est primordial de choisir un pas d'analyse et un grandissement appropriés à la microstructure afin d'avoir un compromis optimal entre résolution, temps d'acquisition et statistique. Ainsi, pour les microstructures déformées où les cellules de dislocations peuvent être particulièrement fines, le pas est fixé à 50 nm et le grandissement à 2500 (cartographie de 35 µm × 45 µm). Pour les microstructures partiellement ou totalement recristallisées qui présentent des grains plus grossiers, le pas est le plus souvent fixé à 250 nm et le grandissement à 400 (cartographie de 215 µm × 290 µm).

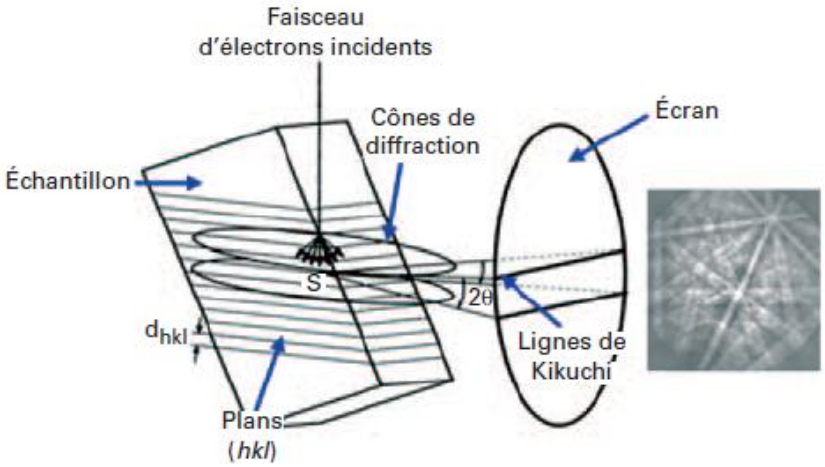


Figure II.2 : Principe de l'EBSD [2]

2.2.3 Traitement des données

2.2.3.A Généralités

Le traitement des données EBSD est effectué avec le logiciel OIM Analysis (version 7) fourni par la société TSL-EDAX. La procédure de nettoyage des cartographies comprend d'abord une dilatation des grains afin de réorienter des pixels mal indexés avec l'orientation de leurs voisins correctement indexés. Ensuite, un filtre sur l'indice de confiance (CI) est appliqué pour supprimer les pixels non-indéxés auxquels une orientation par défaut a été attribuée par le logiciel de traitement. L'indice de confiance est compris entre 0 et 1 et traduit l'incertitude (définie par le logiciel EBSD) sur l'orientation cristallographique d'un pixel. Plus la valeur de CI est proche de 1, plus l'incertitude sur l'orientation du pixel est faible.

En considérant une valeur de pas choisie judicieusement, le nombre minimum de pixels pour considérer l'existence d'un grain est au moins égal à 5. De plus, on définit deux grains distincts si la désorientation qui les sépare est supérieure à 10°. En effet, en prenant 15° (valeur communément trouvée dans la littérature), on observait la fusion de plusieurs grains distincts dans les microstructures filées. La valeur de 10° a donc été choisie afin de limiter ce phénomène et de garder des morphologies de grains cohérentes avec les observations MEB en imagerie conventionnelle ou en imagerie FSD (Forward Scattered Dectector). Ainsi, lorsque la désorientation entre deux grains est supérieure à 10°, l'interface correspond à un joint fortement désorienté (HAGB), sinon il s'agit d'un joint faiblement désorienté (LAGB), où plus spécifiquement d'un sous-joint (mur de dislocations) dans le cas des microstructures déformées. Les désorientations inférieures à 2° ne sont pas considérées comme des interfaces. Par la suite, la moyenne sur les tailles de grains est donnée en nombre et les valeurs énoncées correspondent à des diamètres équivalents. Ce diamètre correspond à celui d'un grain idéal « sphérique » de surface égale au grain observé expérimentalement. L'erreur standard SE sur la taille moyenne est donnée par la relation :

$$SE = \frac{\sigma}{\sqrt{N}} \tag{II.1}$$

Avec σ l'écart type de la distribution et N le nombre de grains. Dans la suite, on considèrera une limite de confiance à 95%, correspondant à ± 2SE autour de la valeur moyenne. Enfin, l'EBSD permet également de mesurer quantitativement les fractions surfaciques (ou volumiques dans le cas d'analyse 3D) des composantes de texture d'une microstructure. La tolérance angulaire autour de la direction cristallographique a été choisie dans cette étude égale à 12°. A titre d'exemple, pour la fibre α, tous les grains présentant une direction cristallographique parallèle à DF de ±12° autour de la direction <110> seront considérés comme appartenant à la fibre α.

2.2.3.B Mesure de la densité de dislocations

Comme défini dans le Chapitre I, l'énergie stockée dans un matériau est proportionnelle à la densité de dislocations. Deux types de dislocations peuvent être définis au sein d'une matrice déformée : Les dislocations géométriquement nécessaires (GND) et les dislocations statistiquement stockées (SSD). Cette distinction fut initialement proposée par Ashby [3] : Les GND sont responsables de l'accommodation de l'inhomogénéité de la déformation par le matériau, notamment au niveau des interfaces particules-matrice et des sous-joints de grains, qui constituent des murs de dislocations. A l'inverse, les SSD sont stockées de manière aléatoire dans le réseau cristallin et ne génèrent aucune désorientation intragranulaire du fait que leur vecteur de Burgers moyen sur une zone spatiale définie est nul, ce qui n'est pas le cas des GND. Il

apparaît que pour les faibles déformations, la densité de GND est faible devant celle des SSD, et inversement pour les fortes déformations [4]. On peut définir la densité de dislocations totale telle que:

$$\rho_{tot} = \rho_{GND} + \rho_{SSD} \quad \text{(II.2)}$$

Notons qu'il est particulièrement difficile d'estimer ρ_{SSD} en EBSD puisque ces dislocations n'induisent pas de désorientations cristallographiques mesurables dans la microstructure. Des techniques telles que la Microscopie en Transmission, la diffraction des neutrons ou des rayons X peuvent alors être utilisées pour mesurer leur contribution. A l'inverse, il existe une relation linéaire entre le gradient de déformation plastique η et la densité de GND [4][5] telle que $\rho_{GND} = \eta/b$ où b est le vecteur de burgers. La validité de cette relation se limite à une échelle mésoscopique où la distance caractéristique est comprise entre 0,1 et 1 µm [5]. En effet, le gradient de déformation plastique est linéaire seulement localement ce qui limite la taille de cette distance caractéristique. Néanmoins, celle-ci doit être supérieure à la distance inter-dislocations afin de considérer plusieurs dislocations. Par Microscopie Electronique en Transmission, Hansen *et al.* [6] et Liu *et al.* [7] ont utilisé cette relation pour estimer la densité de GND et l'énergie stockée à partir de la désorientation cristallographiques moyenne θ des murs de dislocations et de la distance D entre eux:

$$\rho_{GND} = \frac{\alpha\theta}{Db} \quad \text{(II.3)}$$

Avec α une constante qui dépend de la nature de l'interface formée par les GND (2 pour une interface purement « *tilt* » et 4 pour une purement « *twist* ») et b le vecteur de burgers (0,248 nm dans les aciers ferritiques). Cette méthode de calcul de la densité de GND est transposable à l'EBSD comme l'ont montré différents travaux [8][9][10][11]. En effet, il est possible de mesurer la désorientation intragranulaire de différentes manières sur les cartographies EBSD [12]. L'une d'elles consiste à calculer un paramètre appelé Kernel Average Misorientation (KAM). L'expression générale du KAM, permettant d'estimer la désorientation intragranulaire au pixel i est :

$$\theta_{KAM} = \frac{1}{n_k}\sum_{j=1}^{n_k}\theta_{ij} \quad \text{(II.4)}$$

Où θ_{ij} est la désorientation entre le pixel i et l'un de ses voisins j et n_k est le nombre de voisins en considérant les $k^{ièmes}$ voisins. Dans une grille hexagonale, on a n = 6k. Notons que l'on ne prend en compte que les pixels à la périphérie du kernel pour calculer le KAM comme le montrent la Figure II.3a et la Figure II.3b respectivement pour les 1^{ers} et $2^{èmes}$ voisins. Dans le cas où un joint de grains (HAGB) est présent au voisinage du pixel dont on calcule le KAM, on considère uniquement les pixels voisins du même grain, afin de prendre en compte uniquement la désorientation intragranulaire. Dans le cas particulier de la Figure II.3c, on a donc :

$$\theta_{KAM} = \frac{1}{2}(\theta_{i3} + \theta_{i4}) \quad \text{(II.5)}$$

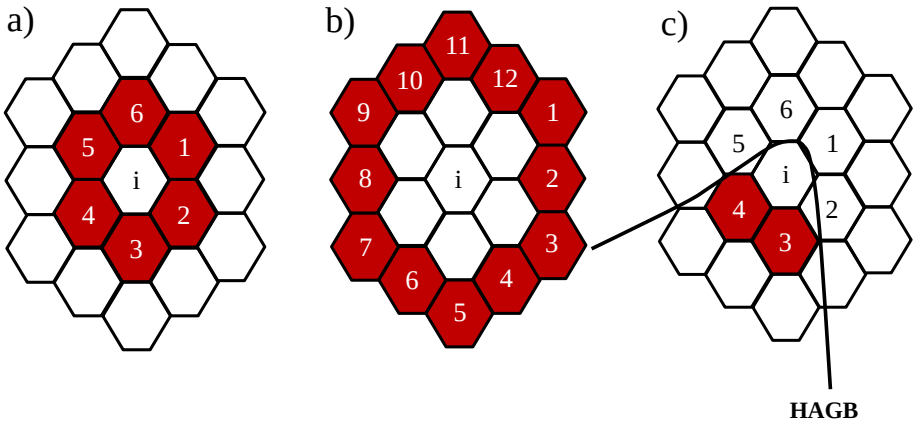


Figure II.3: Représentation schématique du kernel en considérant a) les 1ers voisins, b) les 2èmes voisins et c) les 1ers voisins au voisinage d'un joint de grains

A partir de θ_{KAM} et de la taille du kernel, il est possible d'évaluer la densité de GND :

$$\rho_{GND} = \frac{\alpha \theta_{KAM}}{kab} \tag{II.6}$$

Où α est la même constante que dans l'équation (I.1) et *a* est le pas d'analyse EBSD. Ici le produit *ka* est le rayon du kernel et représente l'équivalent de la distance D dans l'équation (I.1). En comparant avec des mesures de diffraction des neutrons, Ateba-Betanda *et al.* [8] montrent avec cette technique que la part d'énergie stockée associée au SSD reste relativement faible comparée à celle des GND dans le cas d'un acier Fe-48%Ni laminé à froid de 99% de réduction.

Des travaux menés par Kamaya [13] montrent que cette technique est particulièrement sensible au bruit de fond et au pas d'analyse. De plus, Kamaya [13] met en évidence la dépendance linéaire de θ_{KAM} à la taille du kernel, où l'ordonnée à l'origine correspond au bruit de fond mesuré en EBSD. Nous nous sommes intéressés à vérifier cette dépendance sur nos matériaux, dans le cas de trois microstructures différentes : filée, déformée à froid par compression uniaxiale (ε = 0,7) et recristallisée. Les résultats obtenus sont présentés sur la Figure II.4. La dépendance linéaire est vérifiée dans les trois cas et on note également une très forte variation de la pente, assimilable à un gradient d'orientations, entre les différentes nuances : le paramètre θ_{KAM} augmente fortement avec la taille du kernel dans le cas de la microstructure déformée à froid après filage tandis qu'il reste presque constant pour la microstructure recristallisée. Le Tableau II.3 présente les valeurs du bruit de fond et du gradient d'orientations mesurées dans les trois nuances. On constate directement l'influence de la déformation plastique sur la désorientation intragranulaire.

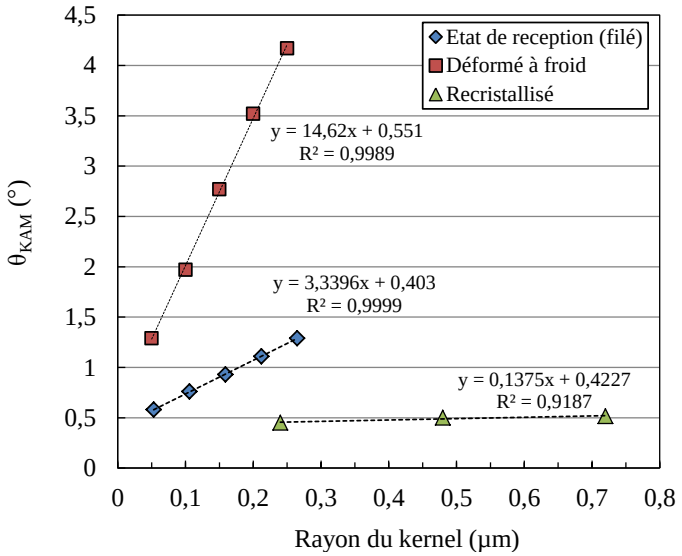


Figure II.4: Evolution de θ_{KAM} en fonction de la taille du kernel pour différents états métallurgiques

Nuances	Etat de réception	Déformée à froid	Recristallisé
Pas d'analyse (µm)	0,05	,0,05	0,24
Bruit de fond (°)	0,40	0,55	0,42
Gradient d'orientation (°/µm)	3,34	14,62	0,14
ρ_{GND} (m^{-2})	$4{,}7.10^{14}$	$2{,}1.10^{15}$	2.10^{13}

Tableau II.3: Bruit de fond et gradients d'orientations mesurés par EBSD pour différentes états métallurgiques

Pour s'affranchir de la contribution du bruit de fond et du pas, Kamaya [13] propose une description plus précise de la désorientation intragranulaire mesurée par EBSD en considérant directement le gradient d'orientations $d\theta_{KAM}/dx$ (qui correspond aux pentes des courbes de la Figure II.4). La nouvelle équation pour estimer la densité de GND dans le matériau est donc :

$$\rho_{GND} = \frac{\alpha}{b}\frac{d\theta_{KAM}}{dx} \qquad \text{(II.7)}$$

Notons que le gradient d'orientations doit alors être converti en rad.m^{-1}. Les valeurs de ρ_{GND} calculées à partir des gradients d'orientations associées aux trois microstructures sont présentées dans le Tableau II.3. Moussa *et al.* [14] ont utilisé cette méthode pour cartographier la distribution des GND dans un échantillon de tantale pur à partir d'une analyse EBSD. Nous utiliserons également cette méthode par la suite pour estimer l'énergie stockée dans nos matériaux après différents traitements thermiques. Néanmoins, il peut exister une incertitude significative sur cette valeur puisqu'on ne considère pas la contribution des SSD, même si cette dernière devrait être minoritaire au vu des taux de déformation importants appliqués. Dans la suite de ce manuscrit, l'évolution linéaire du gradient d'orientation dans les microstructures filées et déformées (pas de 50 nm) est vérifié jusqu'à une distance de 250 nm, ce qui correspond au rayon du kernel lorsque les $5^{ème}$ voisins sont considérés.

2.3 Microscope Electronique en Transmission

La Microscopie Electronique en Transmission (MET) permet une analyse morphologique, structurale et chimique de matériaux jusqu'à l'échelle atomique. Cette technique consiste à faire interagir un faisceau d'électrons incident avec un matériau mince. La récupération du

faisceau d'électrons transmis issu de l'interaction avec l'échantillon permet d'imager ce dernier. L'utilisation d'un faisceau d'électrons plutôt que d'un faisceau de photons offre une meilleure résolution (inférieure au nanomètre) du fait de la faible longueur d'onde des électrons. La colonne du microscope est maintenue sous vide secondaire (d'au moins 10^{-5} Pa) afin d'assurer le bon fonctionnement de l'optique électronique. Les échantillons étudiés doivent être préalablement amincis afin d'être transparents aux électrons. Pour cela différentes techniques de préparation existent telles que l'electro-polissage de lames mince ou l'amincissement par faisceau d'ions (FIB : Focused Ion Beam). Dans le cadre de la thèse, les échantillons ont été préparés sous forme de lames minces électro-polies avec une solution de 90% d'éthanol et 10% d'acide perchlorique.

Il existe deux modes de fonctionnement du MET, le mode imagerie et le mode diffraction. Le passage de l'un à l'autre se fait par le changement de focalisation de la lentille intermédiaire. En mode imagerie, le plan objet de la lentille intermédiaire est le plan image de la lentille objectif. En mode diffraction, le plan objet de la lentille intermédiaire est le plan focal de la lentille objectif. La Figure II.5 présente un schéma des deux modes de fonctionnement du MET.

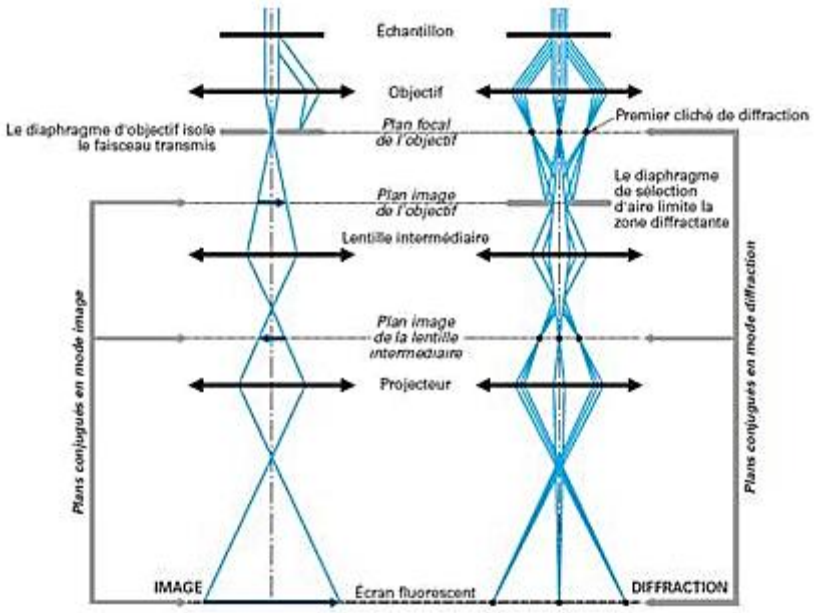


Figure II.5 : Représentation schématique des deux modes de fonctionnement du MET (image et diffraction) [15]

En microscopie électronique à transmission, les rayons X et les électrons ayant subi une diffusion inélastique sont exploités afin d'analyser la composition chimique de l'échantillon. L'une de ces techniques est la spectrométrie de perte d'énergie (Electron Energy Loss Spectroscopy) et l'imagerie filtrée (EFTEM). En interagissant avec l'échantillon, une partie des électrons incidents perd de l'énergie par diffusion inélastique. Chaque perte d'énergie est caractéristique d'un élément chimique. Cette dernière est exploitée par spectrométrie de perte d'énergie (EELS) grâce à un spectromètre couplé à une caméra CCD (GIF : Gatan Imaging Filter) placé sous l'écran d'observation. Le spectromètre fourni alors un spectre EELS. L'EFTEM repose sur le même principe, il en résulte une image corrélant la perte d'énergie à la position.

Un autre mode d'analyse consiste à observer les échantillons en haute résolution (HRTEM). L'observation en Haute Résolution (HR) permet de déterminer les structures cristallographiques et les paramètres de mailles des phases en présence. Lorsque les conditions d'observations sont respectées, une

image HR peut être obtenue à fort grandissement (> x 200k). Cette dernière est constituée d'une juxtaposition de points noirs et blancs alignés. Les distances entre ces alignements sont égales aux distances interplanaires du cristal réel.

Dans le cadre de cette thèse, deux microscopes ont été utilisés pour caractériser les matériaux. Il s'agit d'un MET JEOL 2100 (filament LaB_6) de tension d'accélération 200 kV pour les analyses EFTEM et d'un MET JEOL 2010 FEG (canon à émission de champ) de tension d'accélération 200 kV pour les observations HRTEM.

2.4 Diffusion des neutrons aux petits angles (DNPA)

La DNPA est une technique permettant de caractériser une population d'objets (particules, cavités, joints de grains …) au sein d'un matériau à partir de la diffusion d'un faisceau de neutrons monochromatique de basse énergie. Cette technique est particulièrement adaptée à la caractérisation des aciers ODS de par la densité importante (10^{23}-10^{24} m^{-3}) de particules nanométriques présentes dans la matrice. Une description complète de la technique, des corrections des mesures et du traitement des données adaptées aux aciers ODS a été faite par Mathon et al. [16]. Dans le cadre de cette étude, les expériences ont été menées au laboratoire Léon Brillouin (LLB, CEA-CNRS) sur le spectromètre PAXY. Un détecteur bidimensionnel est utilisé permettant l'acquisition d'une diffusion anisotrope. Les mesures sont effectuées dans deux configurations qui sont caractérisées par la distance échantillon-détecteur et la longueur d'onde : 2m/0,6nm et 5m/0,9nm. L'acquisition faite dans ces 2 configurations permet de détecter les particules dans un intervalle de taille plus large, entre 1 et 30 nm, selon la relation reliant la norme du vecteur de diffusion $\vec{q}$ à la longueur d'onde λ:

$$q = \frac{4\pi \sin\theta}{\lambda} \tag{II.8}$$

Où 2θ est l'angle de diffusion. Dans le cas des aciers ODS, l'expression de l'intensité diffusée par unité de volume est :

$$\frac{d\Sigma}{d\Omega}(q) = f_p\left[\Delta\rho_{nucl}^2 + \Delta\rho_{mag}^2 sin^2\alpha\right]F^2(q, R, h(R)) \tag{II.9}$$

Avec f_p la fraction atomique de précipités, F(q, R, h(R)) le facteur de forme des particules (supposées sphériques dans notre cas), α l'angle entre $\vec{q}$ et la direction du champ magnétique appliqué et $\Delta\rho_{nucl,mag}^2$ les contrastes nucléaire ou magnétique tels que:

$$\Delta\rho_{nucl,mag} = \frac{b_{nucl,mag}^p}{v_{at}^p} - \frac{b_{nucl,mag}^m}{v_{at}^m} \tag{II.10}$$

Où *b* est la longueur de diffusion moyenne nucléaire ou magnétique dans les précipités ou dans la matrice et *v* le volume atomique moyen des précipités et de la matrice. Les paramètres nécessaires au calcul sont présentés dans le Tableau II.4. L'application d'un champ magnétique saturé H est particulièrement adaptée à la caractérisation des précipités dans les aciers ODS. Ce champ permet de générer une anisotropie de diffusion et de séparer la contribution de la matrice magnétique de celle des précipités non-magnétiques. En effet, les atomes de fer α de la matrice présentent des moments magnétiques qui vont s'aligner dans la direction du champ magnétique. La contribution magnétique de l'intensité diffusée est

donc 0 parallèlement au champ ($\alpha = 0$ car $\vec{q} \parallel \vec{H}$) et maximale dans la direction perpendiculaire au champ ($\alpha = 90°$ car $\vec{q} \perp \vec{H}$). Le ratio entre l'intensité diffusée perpendiculairement à celle diffusée parallèlement au champ correspond au rapport A et renseigne sur la nature chimique des particules :

$$A = \frac{I_{\perp H}}{I_{\parallel H}} = 1 + \frac{\Delta\rho_{mag}^2}{\Delta\rho_{nucl}^2} \qquad \text{(II.11)}$$

A partir de la valeur de $\Delta\rho_{nucl}$ pour différentes natures de particules, on peut calculer le rapport A théorique associé et le comparer à la valeur expérimentale obtenue par le ratio des intensités perpendiculaires et parallèles au champ magnétique. Il est important de vérifier que ce ratio est constant sur toute la gamme de vecteur de diffusion analysée afin d'être sûr que l'anisotropie de diffusion est seulement générée par le champ magnétique et non par une éventuelle anisotropie de la microstructure (grains allongés dans une direction préférentielle par exemple).

Grandeur	***Expression/Valeur***	*Définition*
$\boldsymbol{b_{nucl}^p}$	$\sum b_i C_i$	C_i concentration de l'espèce i = Y,Ti,O…
$\boldsymbol{b_{mag}^p}$	0	Précipités non-magnétiques
$\boldsymbol{b_{nucl}^m}$	$\sum b_i C_i$	C_i concentration de l'espèce i = Fe,Cr,W
$\boldsymbol{b_{mag}^m}$	$-\gamma r_0/2\mu$	
γ	-1,913	Facteur gyromagnétique du neutron
r_0	$0{,}2818.10^{-14}$ m	Rayon d'un électron
μ_{Fe}	*2,217*	Moment magnétique du fer
μ	$\mu = \mu_{Fe}$-*2,39*C_{Cr}	Moment magnétique moyen
$\boldsymbol{v_{at}^p}$	a_m^3/Z_m	*a : paramètre de maille ; Z : nombre de motifs/mailles*
$\boldsymbol{v_{at}^m}$	a_p^3/Z_p	*a : paramètre de maille ; Z : nombre de motifs/mailles*

Tableau II.4 : Grandeurs physiques pour le calcul des contrastes nucléaire et magnétique [16]

Un plexiglas est utilisé pour atténuer le flux de neutrons incidents sur le détecteur afin de ne pas endommager ce dernier. On évalue son facteur d'atténuation en utilisant un échantillon de graphite qui présente une section efficace de diffusion cohérente très élevée. Pour le traitement des données, on applique un filtre qui sélectionne uniquement les cellules du détecteur dans un domaine angulaire de +/- 10° autour de l'axe vertical et de l'axe horizontal du détecteur. Il est ensuite nécessaire de corriger les données de la contribution du faisceau vide, du porte échantillon et de l'efficacité des cellules du détecteur.

Pour l'exploitation des résultats, on commence par tracer séparément les courbes de l'intensité parallèlement et perpendiculairement au champ magnétique à 2m et à 5m et on vérifie que le ratio entre les deux courbes est indépendant de la norme de $\vec{q}$. Si c'est le cas, on représente ensuite le logarithme de l'intensité magnétique diffusée ($I_{\perp H} - I_{\parallel H}$) en fonction de la norme du vecteur $\vec{q}$. On trace donc cette courbe pour la configuration à 5 mètres et pour celle à 2 mètres puis on raccorde les deux (communément pour q compris entre 0,2 et 0,4 nm^{-1}) afin d'avoir une seule courbe continue (dépouillement des courbes brutes pour un échantillon détaillé en Annexe E). On peut alors identifier différents domaines sur la courbe finale obtenue, visible sur la Figure II.6 dans le cas d'une nuance ODS et d'une nuance non-renforcée. L'intensité diffusée pour les valeurs de q supérieures à 1 nm^{-1} est sensible à la présence des plus petites particules dont le rayon est compris entre 1 nm et 2 nm. Le domaine intermédiaire correspondant à

des valeurs de q proche de 0,5 nm^{-1} renseigne sur la présence de particules plus grosses d'une dizaine de nanomètres (rayon entre 4 et 6 nm). Enfin, le signal visible aux faibles valeurs de q est attribué aux objets diffusants de la microstructure tels les joints de grains et les plus grosses particules. Cette partie du signal suit généralement une loi de Porod où $I \propto q^{-4}$. Lorsque le matériau ne présente pas de particules comme dans le cas de la nuance non renforcée de la Figure II.6, cette loi est valide sur toute la gamme du vecteur de diffusion.

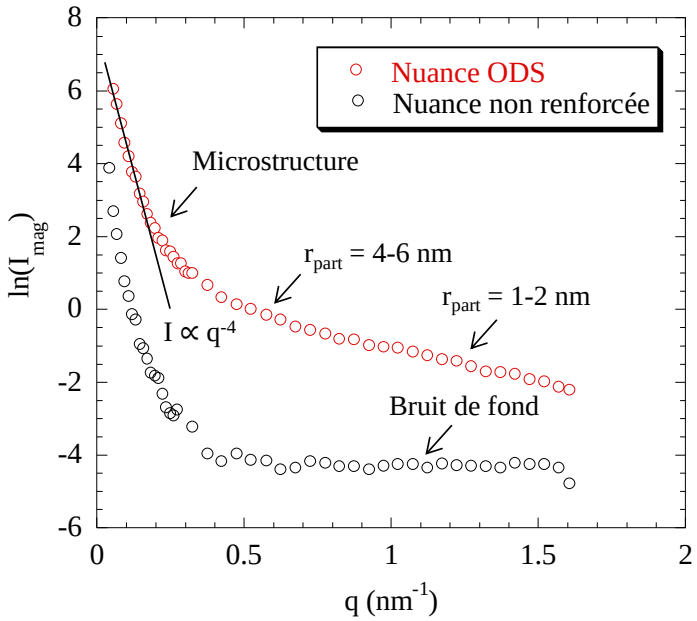


Figure II.6: Intensité magnétique diffusée obtenue pour un acier ODS 14%Cr

A partir des courbes d'intensité diffusée, on peut évaluer les caractéristiques principales d'une population de particules telles que son rayon moyen, sa dispersion et sa fraction volumique. Comme cela a été mentionné dans le Chapitre I, la littérature montre que la population de nanoparticules dans les aciers ODS s'approche d'une distribution bimodale et gaussienne. En partant de cette approximation, on simule deux distributions gaussiennes dont on fait varier le rayon moyen r_m et la dispersion σ afin que la courbe théorique résultante de l'intensité diffusée s'approche au plus près de la courbe expérimentale. Les fractions en nombre $f_{n,1}$ et $f_{n,2}$ relatives aux 2 populations sont également des variables (où $1\text{-}f_{n,1} = f_{n,2}$). Chacune des distributions s'exprime telle que :

$$h(r) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma} exp\left[-\frac{(r-r_m)^2}{2\sigma^2}\right] \qquad \text{(II.12)}$$

L'estimation de la fraction volumique totale $F_{v,tot,}$ est effectuée via le paramètre C à partir du contraste magnétique $\Delta\rho^2_{mag}$ tel que :

$$F_{V,tot} = \frac{e^{-C}}{\Delta\rho^2_{mag}} \qquad \text{(II.13)}$$

Il en découle les fractions volumiques $f_{v,1}$ et $f_{v,2}$ de chaque population telle que $f_v = f_n \times F_{v,tot}$. Une fois ces paramètres connus, on en déduit la densité de particules n associée à chaque population :

$$n = \frac{3f_v}{[4\pi(r_m^2 + 3\sigma^2)r_m]} \qquad \text{(II.14)}$$

Et la densité totale N_{tot} est simplement la somme des densités n_1 et n_2.

2.5 Calorimétrie différentielle à balayage (DSC)

L'appareil utilisé est un calorimètre Multi-HTC de marque SETARAM. Il fonctionne sur le principe de la mesure d'une différence de température entre un échantillon à analyser et une référence, reliés par une série de thermocouples dans une enceinte adiabatique (voir Figure II.7). Lors d'un cycle thermique, si l'échantillon ne subit pas de transformation, sa température est égale à celle de la référence (qui est égale à celle imposée par le four). L'occurrence d'un phénomène physique induit un échange de chaleur entre l'échantillon et son environnement (voir la liste non-exhaustive donnée dans le Tableau II.5). Il en découle alors une modification de la température de l'échantillon par rapport à la référence. La différence de température mesurée permet de remonter au flux de chaleur induit par la transformation. Evidemment, la référence n'est soumise à aucun échange thermique et sa température reste égale à celle imposée par le four durant tout le cycle. Cette technique permet de déterminer les températures de transformations physico-chimiques, les enthalpies de réaction et les chaleurs spécifiques. Un exemple de courbe DSC est présentée en Figure II.8. Le calorimètre est calibré en température et en sensibilité en utilisant des métaux purs.

Phénomène physique	Echange de chaleur associé
Transition ferro→paramagnétique (point de Curie)	Endothermique
Transformation de phases (α→γ)	Endothermique
Dissolution de particules	Endothermique
Fusion	Endothermique
Transformation de phases (γ→α)	Exothermique
Transformation de phases (γ→M)	Exothermique
Recristallisation	Exothermique
Restauration	Exothermique
Solidification	Exothermique
Précipitation de particules	Exothermique

Tableau II.5: Phénomènes physiques détectables en DSC et type d'échange associé

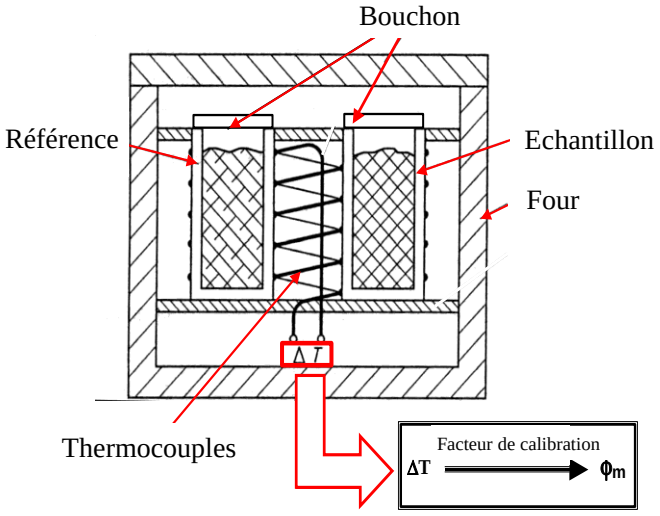


Figure II.7: Fonctionnement du calorimètre

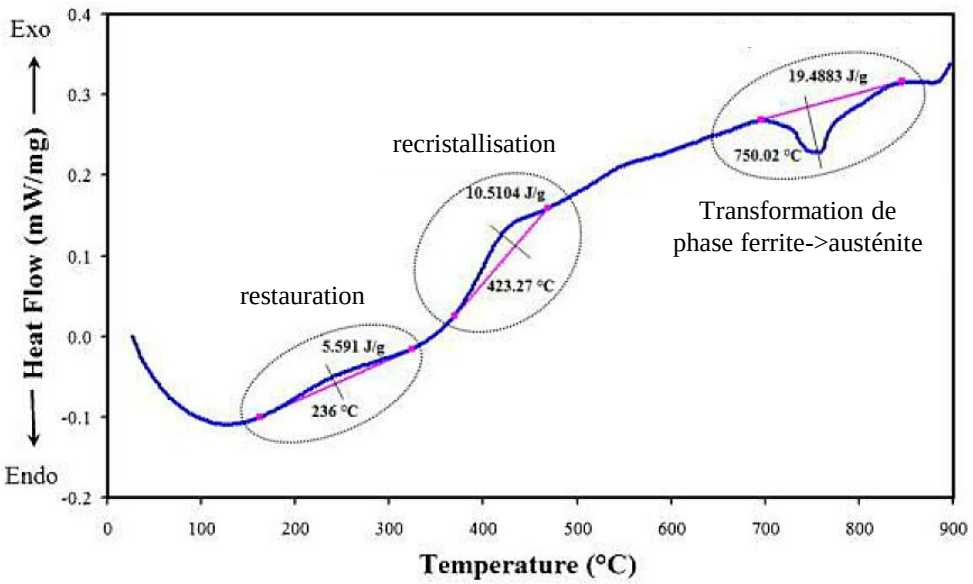


Figure II.8 : Exemple de courbe DSC tirée de la littérature [17] où différents phénomènes physiques sont détectés

Dans le cadre de cette étude, deux cycles thermiques sont appliqués depuis la température ambiante jusqu'à 1400°C avec une vitesse de chauffage de 10°C.min^{-1} sous atmosphère d'argon. Le deuxième cycle permet de distinguer les phénomènes réversibles (transformation de phases, changement d'état magnétique) des non-réversibles (recristallisation, précipitation des particules ODS). Le refroidissement est effectué à four éteint. Dans ces conditions, la vitesse de refroidissement est estimée à environ 50°C.min^{-1} entre 1400°C et 800°C et 25°C.min^{-1} en dessous de 800°C. Pour chaque analyse, on prélève environ 1,5 gramme de matière que l'on place dans un creuset en alumine.

2.6 Déformation à froid après filage

La déformation à froid des nuances filées a été effectuée avec une machine Gleeble 3800 (Figure II.9) de la société Dynamics System Inc. La force maximale applicable est de 20 tonnes et la vitesse de déplacement maximale est de 2 m.sec^{-1}. La machine comprend plusieurs modules interchangeables afin d'appliquer différents modes de déformation (traction, compression, torsion…). Les échantillons sont placés dans la chambre. Afin de limiter au maximum les frottements durant les essais, les outils sont graissés avec une graisse au polytétrafluoroéthylène (PTFE).

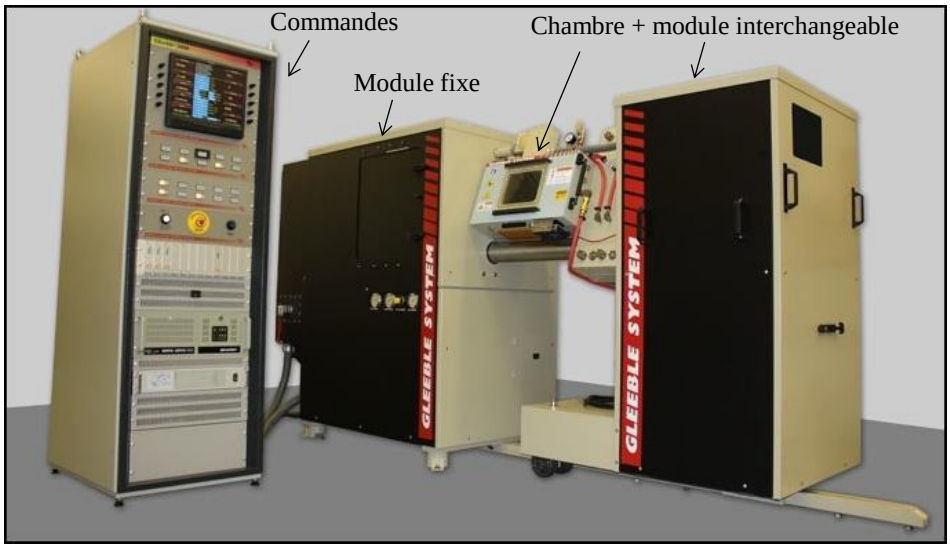


Figure II.9 : Système Gleeble 3800

2.6.1 Compression uniaxiale

Pour ce mode de déformation, les échantillons sont des pions cylindriques de dimension 8 mm ×12 mm (diamètre × hauteur) usinés dans les barres filées. Ces dimensions ont été choisies afin que la contrainte maximale pendant l'essai ne dépasse pas les limites de la machine (20 tonnes). Les échantillons sont placés entre deux mors en carbure de tungstène et compressés à une vitesse de 0,01 s^{-1} jusqu'à ce que la dimension finale soit atteinte. Les surfaces entre l'échantillon et les mors sont lubrifiées afin de limiter au maximum les effets de frottement (mise en tonneau, déformation désaxée…). Le taux de déformation est calculé à partir des dimensions de l'échantillon avant et après compression.

2.6.2 Compression multiaxiale alternée (CMAA)

Ce mode d'écrouissage permet d'atteindre des taux de déformation plastique équivalente $\varepsilon_{eq,plast}$ très élevés ($\varepsilon_{eq,plast} > 10$) puisqu'il consiste à compresser le matériau de façon alternative dans deux directions perpendiculaires tandis que la troisième dimension est contrainte à ne pas subir de déformation (Figure II.10). On peut donc assimiler chaque frappe à une compression en déformation plane. Afin de se rapprocher des conditions de mise en forme par laminage à pas de pèlerin, on déforme selon les deux directions radiales à la direction de filage et c'est cette dernière qui est contrainte (direction z sur la Figure II.10). Théoriquement, la conservation de volume du matériau fait que l'échantillon peut être déformé à l'infini (en compression, le taux de triaxialité est négatif et défavorable à la propagation des fissures). En réalité, le refoulement progressif de matière, l'allongement non nul de l'éprouvette et la concentration de contraintes dans les arrêtes limitent le nombre de frappes maximum. La taille de l'éprouvette étant relativement conséquente et pour des raisons d'économie de matière, une éprouvette bi-matériau a été imaginée avec des glissières en acier à outils Z200 munies d'alésages dans lesquels on vient insérer l'éprouvette en acier ODS. La longueur totale de l'éprouvette en ODS est de 27,2 mm. Celle-ci est constituée d'une partie utile de 12 mm de long et de deux extrémités mesurant chacune 7,6 mm de long qui viennent s'emboiter dans les alésages des glissières. La section de la partie utile de l'éprouvette ODS a volontairement été réduite à 6 × 6 µm² par rapport aux dimensions de référence (10 × 10 µm²) afin d'augmenter la déformation par frappe. De plus, au vu du matériau très dur et du risque de fissuration élevé qui en découle, cette réduction de section permet également une plus grande résistance dans les

zones d'emprises aux jonctions avec les glissières (de section 10 × 10 µm²) qui sont soumises à moins d'effort. La vitesse de déformation est égale à 0,01 s^{-1}. Après chaque frappe, le dispositif effectue une rotation autour de l'axe z (direction de filage de l'éprouvette) et la partie utile est donc compressée tour à tour dans les directions x et y.

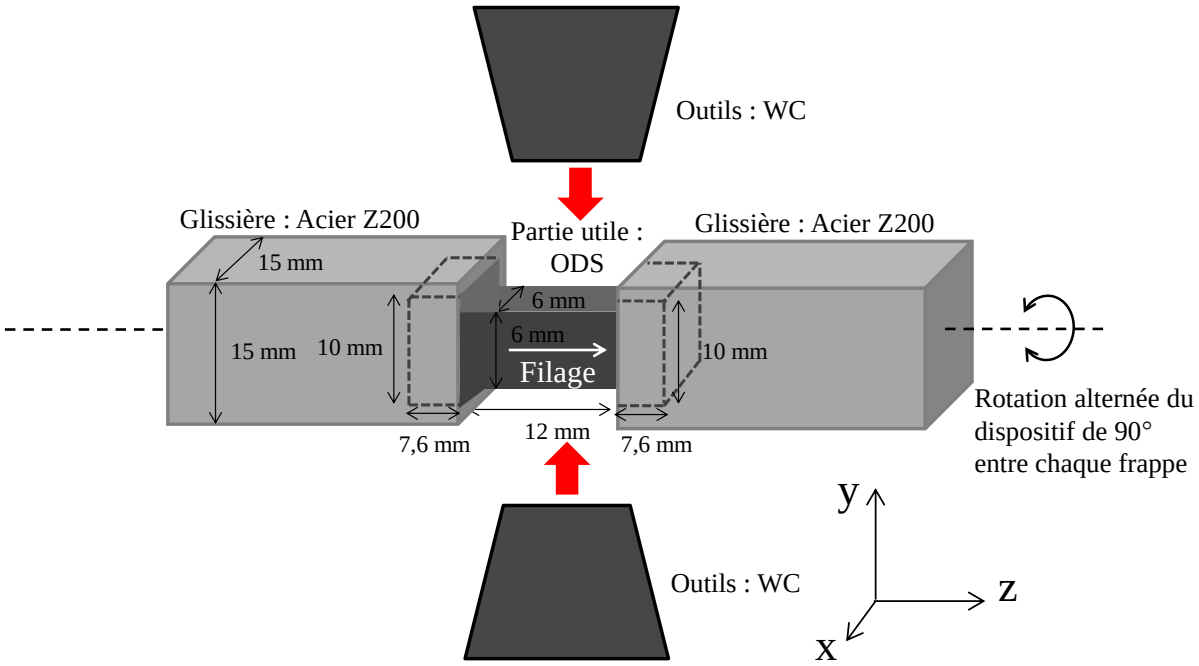


Figure II.10: Schéma de l'éprouvette de compression multiaxiale alternée

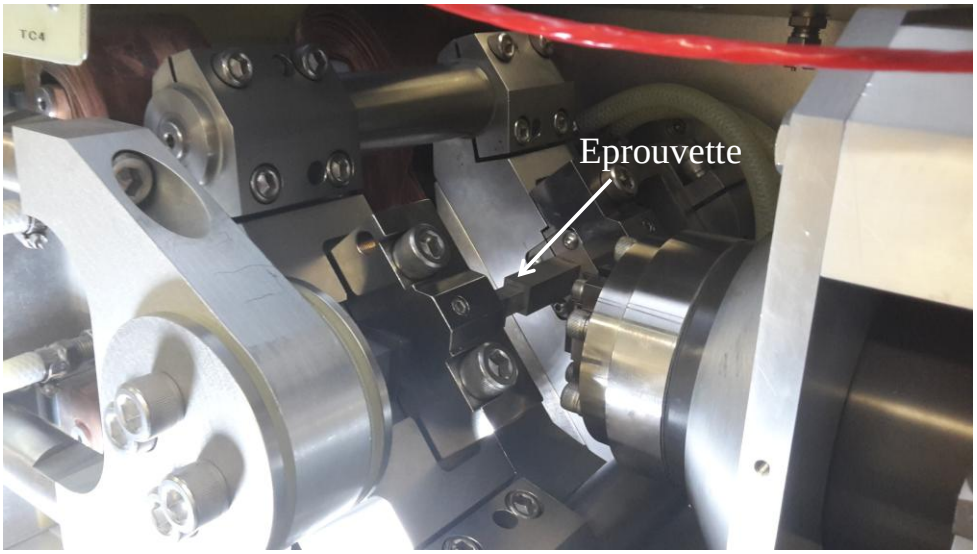


Figure II.11 : Dispositif de compression multiaxiale alternée

Le calcul de la déformation totale pour ce type d'essai n'est pas aussi immédiat que dans le cas de la compression simple. Ici, il n'est pas possible de mesurer expérimentalement la déformation à chaque frappe à l'aide d'un pied à coulisse car il faudrait retirer le dispositif soumis à d'importantes contraintes et refaire le « zéro » systématiquement.

En considérant un état de déformation plane et en négligeant les contraintes de cisaillement, la déformation équivalente à chaque frappe *i* s'exprime par la relation :

$$\varepsilon_{eq,i} = \sqrt{\frac{2}{3}(\varepsilon_x^2 + \varepsilon_y^2 + \varepsilon_z^2)} \quad \text{(II.15)}$$

Où ε_d est la déformation dans la direction *d* (ici *d* correspond à *x*, *y* ou *z*). La direction *z* étant contrainte, on a $\varepsilon_z = 0$ et en supposant la conservation du volume, on a $\varepsilon_x = -\varepsilon_y$. L'équation (II.15) devient alors :

$$\varepsilon_{eq,i} = \frac{2}{\sqrt{3}}\varepsilon_{y,i} \quad \text{(II.16)}$$

Avec ε_y mesuré par la relation :

$$\varepsilon_{y,i} = ln\ (\frac{L_i + \Delta L(F) + L_m(F)}{L_i}) \quad \text{(II.17)}$$

Où L_i est la largeur de la partie utile avant compression de la frappe *i*, mesurée par l'écart entre les mors au moment lorsque la force commence à augmenter linéairement, $\Delta L(F)$ est l'épaisseur de matière compressée (négative par convention) qui augmente avec l'augmentation de la force et $L_m(F)$ est l'élasticité de la machine qui est une fonction linéaire de la force. A la fin de la compression, on a $F = F_{max}$ et $L_i + \Delta L(F_{max}) + L_m(F_{max}) = L_{fin}$ avec L_{fin} la largeur finale de la partie utile à la fin de la compression (constante pour toutes les frappes). On précise que le retour élastique du matériau après compression, lorsque les mors se retirent n'est pas pris en compte dans l'Eq. (II.17).

A la fin de l'essai de CMAA, la déformation équivalente totale (élastique + plastique) s'exprime en faisant la somme des déformations équivalentes à $F = F_{max}$ sur les N frappes soit :

$$\varepsilon_{eq,tot} = \sum_{i=1}^{N} \varepsilon_{eq,i} \quad \text{(II.18)}$$

On peut ensuite estimer la contribution plastique de la déformation équivalente totale en mesurant les dimensions de l'éprouvette à la fin de l'essai et en supposant une conservation de volume de la partie utile tout au long l'essai. La vraie largeur $L_{fin,re}$ de l'éprouvette après compression et après retour élastique n'est plus constante et dépend de i. Elle est donnée par :

$$L_{fin,re,i} = \frac{V_0}{(12 + ia) \times L_i} \quad \text{(II.19)}$$

Où V_0 est le volume initial de la partie utile de l'éprouvette et *a* est l'allongement de l'éprouvette à chaque frappe i (l'allongement totale est mesuré à la fin de l'essai et on suppose un allongement linéaire au cours de l'essai). Notons qu'à l'issue de ce calcul, la contribution élastique de la déformation est surestimée car le refoulement de matière est indirectement pris en compte dans cette contribution élastique (puisque c'est de la matière qui n'est plus déformée plastiquement). On calcule ensuite la déformation plastique selon la direction de compression à chaque frappe i :

$$\varepsilon_{y,plast,i} = ln\ (\frac{L_{fin,re,i}}{L_i}) \quad \text{(II.20)}$$

Puis à partir des équations (II.16) et (II.18), on peut calculer la déformation plastique équivalente totale. Concernant le calcul de la contrainte équivalente (critère de Von Mises), son expression générale dans le repère *(x,y,z)* s'exprime par [18] :

$$\sigma_{eq} = \frac{1}{\sqrt{2}}\sqrt{(\sigma_x - \sigma_y)^2 + (\sigma_y - \sigma_z)^2 + (\sigma_z - \sigma_x)^2} \quad \text{(II.21)}$$

Or dans le cas présent, on suppose une contrainte nulle selon l'axe *x* ($\sigma_x = 0$) puisque la matière est libre dans cette direction lors d'une compression selon *y* (Figure II.10) et en déformation plane, on a la relation $\sigma_z = (\sigma_x+\sigma_y)/2$ ce qui conduit à simplifier l'Eq. (II.21) en:

$$\sigma_{eq} = \frac{\sqrt{3}}{2}\sigma_y \quad \text{(II.22)}$$

D'où la relation donnant l'évolution de la contrainte équivalent à chaque frappe i :

$$\sigma_{eq,i} = \frac{\sqrt{3}}{2} \times F \times \left(\frac{L_i + \Delta L(F) + L_m(F)}{10 \times L_i \times L_{fin}}\right) \quad \text{(II.23)}$$

2.7 Nano-indentation instrumentée

Dans le cadre de ces travaux, la nano-indentation a été utilisée pour estimer la distribution de la dureté dans les échantillons écrouis à froid et relier cette distribution à la distribution de la déformation plastique. L'appareil est un nano-indenteur NHT^2 de CSM Instruments. Un indenteur de type Berkovich modifié est utilisé, la charge appliquée est de 200 mN et le pas entre deux empreintes est de 100µm. Le diamètre moyen des empreintes est de 10,5 µm. L'indenteur Berkovich modifié correspond à un indenteur Berkovich dont l'angle de la pointe a été changé afin d'être analogue à celui d'une pointe Vickers [19]. Les résultats sont traités en utilisant la méthode développée par Oliver et Pharr [20] : A chaque empreinte, la dureté d'indentation H_{IT} est calculée à partir du ratio entre la force maximale appliquée P_{max} et l'aire de contact sous charge projetée *A*. Cette dernière est une fonction de la profondeur h_c à laquelle l'indenteur commence à déformer plastiquement le matériau telle que :

$$h_c = h_{max} - h_s \quad \text{(II.24)}$$

Où h_{max} est la profondeur à P_{max} et h_s est la profondeur de l'enveloppe élastique du matériau (épaisseur dans laquelle l'indenteur ne déforme pas plastiquement le matériau). La dureté H_{IT} est reliée à la dureté Vickers via un coefficient tel que H_{IT} (MPa) = 10,8 HV.

Conclusion :

L'utilisation de ces différentes techniques expérimentales va permettre d'effectuer une analyse multi-échelle des matériaux de l'étude depuis la caractérisation des nano-précipités avec la DNPA et le MET jusqu'à l'utilisation de la Gleeble pour les déformations macroscopiques, en passant par une échelle mésoscopique intermédiaire pour caractériser les microstructures à l'aide de l'EBSD.

Bibliographie

[1] W. H. Bragg and M. . F.R.S., "The Intensity of Reflexion of X-Rays by Crystals," *Philos. Mag.*, vol. 27, p. 881, 1914.

[2] T. Baudin, "Analyse EBSD - Principe et Cartographie d'orientations," *Tech. l'ingénieur*, 2010.

[3] M. F. Ashby, "The deformation of plastically non-homogeneous materials," *Philos. Mag.*, vol. 21, no. 170, pp. 399–424, 1970.

[4] L. P. Kubin and A. Mortensen, "Geometrically Necessary Dislocations and Strain-Gradient plasticity-a few critical issues," *Scr. Mater.*, vol. 48, pp. 119–125, 2003.

[5] H. Gao, Y. Huang, W. D. Nix, and J. W. Hutchinson, "Mechanism-based strain gradient plasticity - I. Theory," *J. Mech. Phys. Solids*, vol. 47, pp. 1239–1263, 1999.

[6] N. Hansen and X. Huang, "Microstructure and flow stress of polycrystals and single crystals," *Acta Mater.*, vol. 46, no. 5, pp. 1827–1836, 1998.

[7] Q. Liu, D. Juul Jensen, and N. Hansen, "Effect of grain orientation on deformation structure in cold rolled polycrystalline Aluminium," *Acta mater.*, vol. 46, no. 16, pp. 5819–5838, 1998.

[8] Y. Ateba Betanda, A. L. Helbert, F. Brisset, M. H. Mathon, T. Waeckerlé, and T. Baudin, "Measurement of stored energy in Fe-48%Ni alloys strongly cold-rolled using three approaches: Neutron diffraction, Dillamore and KAM approaches," *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 614, pp. 193–198, 2014.

[9] S. H. Choi and Y. S. Jin, "Evaluation of stored energy in cold-rolled steels from EBSD data," *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 371, no. August 2003, pp. 149–159, 2004.

[10] C. Zhu, T. Harrington, V. Livescu, G. T. Gray, and K. S. Vecchio, "Determination of geometrically necessary dislocations in large shear strain localization in aluminum," *Acta Mater.*, vol. 118, pp. 383–394, 2016.

[11] Y. Takayama and J. A. Szpunar, "Stored Energy and Taylor Factor Relation in an Al-Mg-Mn Alloy Sheet Worked by Continuous Cyclic Bending," *Mater. Tr*, vol. 45, no. 7, pp. 2316–2325, 2004.

[12] S. I. Wright, M. M. Nowell, and D. P. Field, "A review of strain analysis using electron backscatter diffraction.," *Microscopy and Microanalysis*, vol. 17. pp. 316–329, 2011.

[13] M. Kamaya, "Assessment of local deformation using EBSD: Quantification of accuracy of measurement and definition of local gradient," *Ultramicroscopy*, vol. 111, pp. 1189–1199, 2011.

[14] C. Moussa, M. Bernacki, R. Besnard, and N. Bozzolo, "About quantitative EBSD analysis of deformation and recovery substructures in pure Tantalum," *IOP Conf. Ser. Mater. Sci. Eng.*, vol. 89, p. 12038, 2015.

[15] J. Ghanbaja, *Microscopie électronique à transmission et ses techniques d'analyses*. 2008.

[16] M. H. Mathon, M. Perrut, S. Y. Zhong, and Y. de Carlan, "Small angle neutron scattering study of martensitic/ferritic ODS alloys," *J. Nucl. Mater.*, vol. 428, no. 1–3, pp. 147–153, 2012.

[17] F. Khodabakhshi and M. Kazeminezhad, "Differential scanning calorimetry study of constrained groove pressed low carbon steel: recovery, recrystallisation and ferrite to austenite phase transformation," *Mater. Sci. Technol.*, vol. 30, no. 7, pp. 765–773, 2014.

[18] P. A. Friedman, K. Liao, J. Pan, and F. Barlat, "Texture Development and Hardening Characteristics of Steel Sheets under Plane-Strain Compression," *J. Mater. Eng. Perform.*, vol. 8, no. 2, pp. 225–235, 1999.

[19] O. Maciejak and P. Aubert, "Mesure de dureté par nano-indentation," *Tech. l'ingénieur*, 2007.

[20] W. C. Oliver and G. M. Pharr, "Measurement of hardness and elastic modulus by instrumented indentation: Advances in understanding and refinements to methodology," *J. Mater. Res.*, vol. 19, no. 1, pp. 3–20, 2004.

Chapitre III. Influence du taux de renforts sur les évolutions microstructurales dans les nuances filées

1. Introduction 74
2. Caractérisations microstructurales 74
2.1 Essais de micro-dureté 74
2.2 Analyse des microstructures et des textures 75
2.2.1 État de reception 75
2.2.2 Après recuit isotherme 79
2.2.2.A Nuances fortement renforcées R0,3-R0,2-R0,1 79
2.2.2.B Nuance R0,05 80
2.2.2.C Nuance STi 82
2.2.2.D Nuance NonR 83
3. Etude de la précipitation 84
3.1 Caractérisation des nanoparticules 84
3.2 Caractérisation de la précipitation intermédiaire 88
4. Stabilité des phases et influence de la composition chimique 91
4.1 Analyse thermique par calorimétrie différentielle 91
4.2 Transformation de phases partielle dans les ODS ferritiques 94
5. Mécanismes d'évolutions microstructurales 96
5.1 Croissance des grains dans la nuance NonR 96
5.2 Compétition entre pressions motrice et retardatrice dans les nuances ODS 97
5.3 Restauration dans la nuance STi 98
5.4 Restauration et croissance anormale dans la nuance R0,05 100
5.4.1 Modèle de croissance anormale utilisé 101
5.4.2 Etude de 3 configurations modèles 103
5.4.3 Application du modèle aux microstructures expérimentales 105
5.4.4 Conclusion sur la croissance anormale et comparaison avec la nuance STi 106
Conclusion sur l'influence du taux de renforts sur la stabilité des microstructures filées 108
Bibliographie 109

1. Introduction

Ce chapitre est dédié à la compréhension des évolutions microstructurales observées sur les nuances à l'état de réception (après filage à chaud) et après des recuits isothermes pour différents couples temps/température. Bien que les nuances avec des taux de renforts conventionnels aient montré une stabilité remarquable des nano-précipités et de la microstructure dans différentes études (voir Chapitre I), on peut s'attendre à des comportements différents en ce qui concerne les nuances moins renforcées. Dans un premier temps, chacune des nuances a subi les traitements thermiques présentés sur la Figure III.1. Ensuite, à partir de résultats obtenus via différentes techniques de caractérisation (EBSD, DNPA, DSC), on s'attachera à comprendre les mécanismes responsables des évolutions microstructurales observées dans les différents états et si possible, à proposer des modèles analytiques adaptés. Dans le Chapitre V, certains de ces mécanismes seront modélisées par des modèles en champ complet.

Nuance	Renforts incorporés
R0,3	0,3%Ti-0,3%Y_2O_3
R0,2	0,2%Ti-0,2%Y_2O_3
R0,1	0,1%Ti-0,1%Y_2O_3
R0,05	0,05%Ti-0,05%Y_2O_3
STi	0,2%Y_2O_3
NonR	Non renforcée

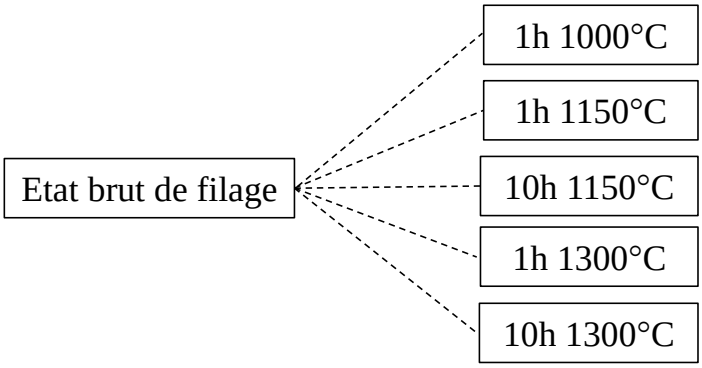


Figure III.1: Rappel du taux de renfort incorporés dans les nuances de l'étude et traitements thermiques appliqués sur les états brutes de filage des six nuances

2. Caractérisations microstructurales

Des premières caractérisations par micro-dureté ont été effectuées pour évaluer la réponse des microstructures aux traitements thermiques. Suite à cela, des caractérisations plus fines par analyses EBSD ont permis de visualiser les évolutions microstructurales et de mesurer notamment les tailles de grains, les textures et les densités de dislocations.

2.1 Essais de micro-dureté

Les essais ont été réalisés avec une charge de 1kg. La valeur de dureté sur chaque état est obtenue à partir de la moyenne faite sur 10 empreintes avec une distance de 1,5 mm entre chaque empreinte. Sur tous les échantillons, la taille des empreintes est inférieure à 150 µm. Les essais sont effectués sur des coupes transverses (perpendiculaires) à la direction de filage.

Les résultats sur la Figure III.2 montrent clairement la relation entre la résistance mécanique du matériau et le taux de renforts incorporé. Ainsi, à l'état de réception, la dureté augmente graduellement de 175 HV pour la nuance NonR jusqu'à 425 HV pour la nuance R0,3, la plus renforcée. L'évolution de la dureté avec les traitements thermiques pour les trois nuances les plus renforcées est relativement similaire : celle-ci diminue progressivement jusqu'à atteindre, après 10h à 1300°C, une valeur d'environ 100 HV inférieure à celle de l'état de réception. Dans le Chapitre VI, une analyse plus fine des différentes

contributions au durcissement structural couplée à des essais mécaniques en traction permettra de montrer que dans les nuances R0,1, R0,2 et R0,3, cette diminution de la dureté est majoritairement liée à la légère coalescence des nanoparticules. Concernant la nuance NonR, la dureté chute de manière significative à 150 Hv après 1h à 1000°C et semble ensuite moins sensible à l'augmentation de la température de recuit avec une dureté qui se maintient à 122 Hv après 10h à 1300°C.

Les résultats pour les nuances STi et R0,05 sont plus surprenants. On note premièrement que ces deux nuances présentent des duretés très similaires jusqu'à un recuit d'1h à 1150°C. Ensuite, la dureté de la nuance R0,05 décroît fortement de 240 Hv à 150 Hv après 10h à 1150°C tandis que celle de la nuance *STi* reste supérieur à 200 Hv. On montrera par la suite que cela est lié à une stabilité différente des nanoparticules dans ces deux nuances. Lors d'un recuit d'1h à 1300°C, la dureté de la nuance *STi* chute brusquement à 145 Hv pour retrouver une valeur proche de celle de de la nuance R0,05. Pour des recuits de 1h à 10h à 1300°C, les deux nuances montrent des duretés légèrement supérieures à la nuance NonR, laissant supposer une absence de l'effet de durcissement structural dû aux précipités.

Ces premiers résultats mettent en évidence l'influence du taux et de la nature des renforts sur la stabilité thermique des aciers ODS. On peut d'ores et déjà classer les nuances : les nuances conventionnelles R0,3 et R0,2 sont très stables tandis que les nuances R0,05 et STi sont peu stables et tendent vers la dureté d'une ferrite classique après des recuits à haute température. La nuance R0,1 peut être définie comme intermédiaire. Néanmoins, puisque la dureté d'un matériau résulte de différentes contributions (précipités, taille de grains, densité de dislocations et éléments en solution), des investigations supplémentaires sont nécessaires pour tenter de décolérer ces paramètres.

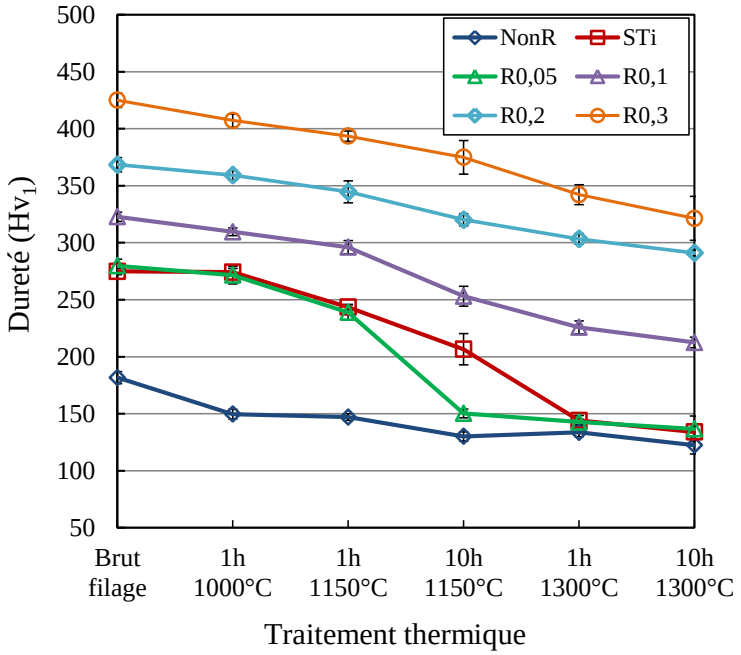


Figure III.2 : Dureté (charge 1kg) mesurée sur les nuances modèles de l'étude

2.2 Analyse des microstructures et des textures

2.2.1 État de reception

Les nuances ont d'abord été caractérisées par EBSD sur des coupes longitudinales de l'état brut de filage, selon les conditions d'acquisition mentionnées dans le Chapitre II. Les cartographies en figures de

pôles inverses (IPF) sont présentées sur la Figure III.3 et les ODFs correspondantes (coupes à φ_2=45°) sur la Figure III.4. Sur la Figure III.3, dans toutes les nuances renforcées, comme attendu, la microstructure est très texturée et les grains sont allongés dans la direction de filage. On discerne deux populations de grains, l'une constituée de gros grains majoritairement orientés selon la fibre α (direction <110> des grains // à la direction de filage DF) et l'autre correspondant à des grains plus petits et orientés de manière plus aléatoire, ces observations étant similaires à celles de travaux précédents [1][2]. La plupart des gros grains sont morcelés en sous-grains, séparés par des sous-joints (LAGB) comme le montre la Figure III.5 pour la nuance R0,3. Comme nous l'avons vu dans le Chapitre I, cette population bimodale après filage est directement liée au traitement thermique subit par les poudres lors du pré-chauffage avant consolidation. En effet, ces poudres (visibles avant et après recuit en Annexe A.1) subissent une recristallisation très hétérogène qui conduit à l'existence d'une part de gros grains recristallisés et d'autre part de très petits grains déformés par le co-broyage. Les microstructures obtenues ici sur des poudres recuites sont très similaires à celles obtenues après des consolidations par CIC ou SPS. Ensuite, lors du filage, les gros grains sont fortement déformés plastiquement et adopte la texture de fibre α tandis que les petits, moins déformés, gardent une orientation plus aléatoire.

Puisqu'il est difficile de définir la taille des grains par un diamètre équivalent pour ces morphologies très allongées, on utilisera plutôt la taille des sous-grains, plus équiaxes, pour décrire ce type de microstructures. Ainsi, le diamètre équivalent des sous-grains, la fraction de sous-joints (2°< θ <10°) et la fraction de fibre α (tolérance angulaire 12°) sont donnés dans le Tableau III.1 pour les 6 nuances. Pour rappel, les méthodes de calculs de ces grandeurs sont définies dans le Chapitre II. On note une augmentation de la taille des sous-grains de 0,63 µm pour la nuance R0,3 à 1,23 µm pour la nuance R0,05 et globalement une faible influence du taux de renforts sur la fraction de sous-joints dans ces nuances ODS. De même, la fraction des grains appartenant à la fibre α semble peu évoluer. Cette observation est confirmée par les ODFs (Figure III.4) qui montrent que la texture reste très marquée. La nuance STi montre une intensité élevée de la composante {112}⟨110⟩ et une fraction plus importante de sous-joints mais il s'agit probablement d'un effet de zone dû à la présence d'un gros grain orienté {112}⟨110⟩ au centre de la cartographie.

Les densités de GND (Dislocations Géométriquement Nécessaires) ont également été mesurées avec la technique présentée dans le Chapitre II. Dans le Tableau III.1, les valeurs proches de 5.10^{14} m^{-2} pour les taux de renforts conventionnels (R0,3 et R0,2) sont en cohérence avec celles trouvées par microscopie en transmission dans la littérature pour des nuances filées [3][4][5]. Il est intéressant de noter l'évolution de cette densité avec le taux de renforts, qui montre une tendance à diminuer lorsque la concentration en titane et en oxyde d'yttrium diminue. En effet, les nano-précipités jouent le rôle de points d'ancrage pour les GND lors de la déformation plastique. Dans les nuances conventionnelles, la densité plus élevée de nanoparticules épingle d'avantage les GND et les mécanismes d'annihilation des dislocations entre elles ou aux joints de grains sont limités. En revanche, lorsque le taux de renforts diminue, la possibilité pour les dislocations d'interagir et de s'annihiler est plus importante, ce qui donne lieu à une densité plus faible après déformation. La répartition des GND dans la microstructure de la nuance R0,3, dont la valeur moyenne est de $6{,}7.10^{14}$ m^{-2}, a été cartographiée et est représentée sur la Figure III.5c. Cette répartition est particulièrement hétérogène avec une localisation des GND au niveau des sous-joints et de certains grains submicroniques. Dans ces zones, la densité peut atteindre des valeurs supérieures à 1.10^{15} m^{-2} (20% des points de la Figure III.5c). Inversement, le reste de la microstructure, constituée majoritairement de sous-grains et de grains orientés selon la fibre α, présente des densités plus faibles pouvant atteindre des valeurs inférieures à 2.10^{14} m^{-2} pour certains sous-grains (zones bleues, 33% des points de la Figure III.5c). Cette

microstructure constituée de sous-grains restaurés séparés par des sous-joints est caractéristique de la recristallisation dynamique continue qui a lieu pendant le filage à chaud.

A l'inverse, la nuance NonR présente des grains beaucoup plus gros (19,5 µm en moyenne) et équiaxes. Les fractions de sous-joints et de fibre α sont plus faibles que pour les autres nuances. Enfin, la densité de GND est inférieure à 10^{13} m^{-2}. Ces caractéristiques sont celles d'une microstructure qui a recristallisé, soit lors de la déformation à chaud (recristallisation dynamique) dans la filière et les grains ont ensuite crus lors du refroidissement à l'air, soit juste après la fin de la déformation plastique à chaud au début du refroidissement (recristallisation post-dynamique). Des zones à très petits grains sont visibles et correspondent à de la martensite. Ces zones martensites sont très peu texturées comme le montre l'ODF sur la Figure III.4. Ces zones traduisent l'existence d'un domaine biphasé α/γ à haute température, dont nous allons vérifier l'existence par la suite à l'aide d'analyses thermiques.

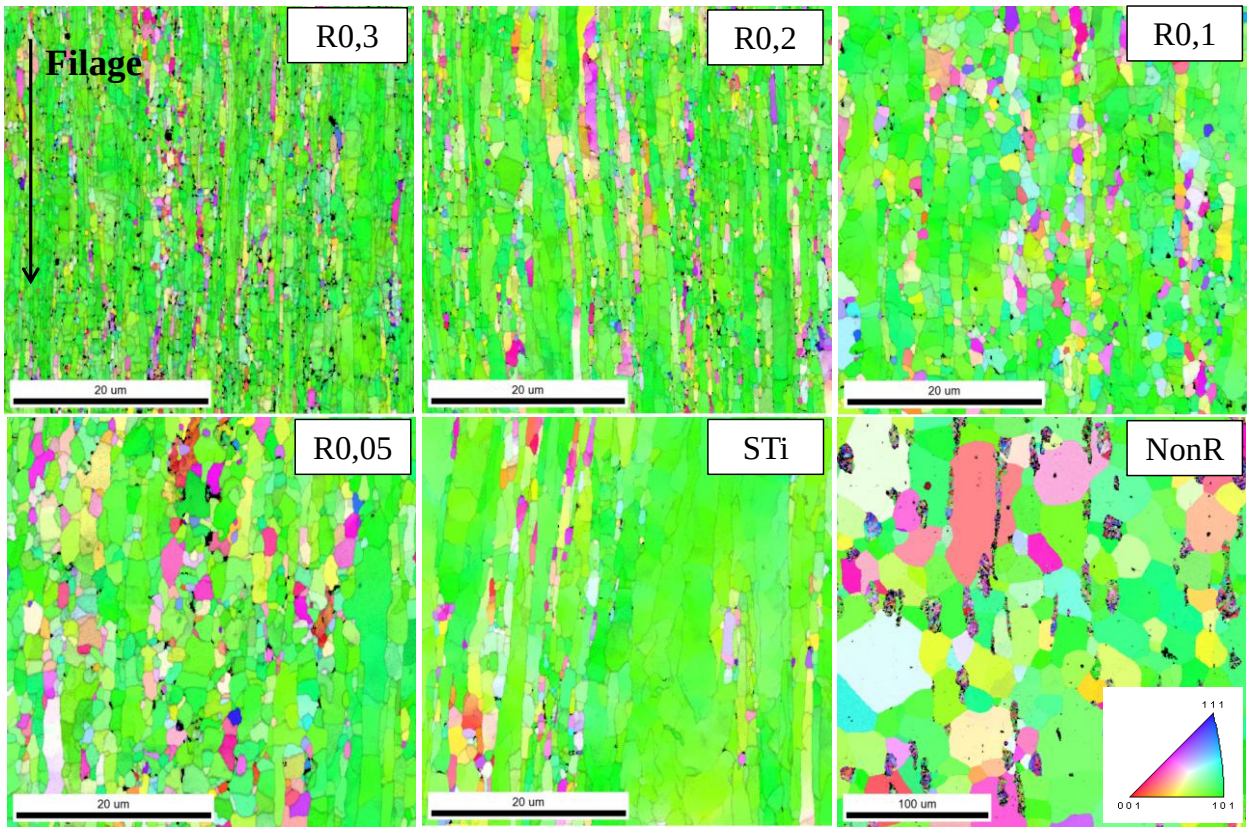


Figure III.3 : Cartographie IPF (directions cristallographiques // DF) de coupes longitudinales des 6 nuances à l'état brut de filage

Nuances	$D_{sous\text{-}grains}$ (µm)	Sous-joints (%)	Fibre α (%)	Densité moyenne de GND (m^{-2})
R0,3	0,63 ± 0,02	34 ± 3	75 ± 5	$6{,}7.10^{14}$
R0,2	0,78 ± 0,02	26 ± 3	73 ± 5	$4{,}7.10^{14}$
R0,1	1,08 ± 0,04	28 ± 3	68 ± 5	$3{,}4.10^{14}$
R0,05	1,23 ± 0,04	23 ± 3	68 ± 5	$2{,}5.10^{14}$
STi	1,25 ± 0,10	39 ± 3	74 ± 5	$3{,}5.10^{14}$
NonR	19,50 ± 1,40	17 ± 3	41 ± 5	$9{,}4.10^{12}$

Tableau III.1 : Taille des sous-grains, fraction de sous-joints, fraction de fibre α et densité de dislocations dans les 6 nuances à l'état de réception

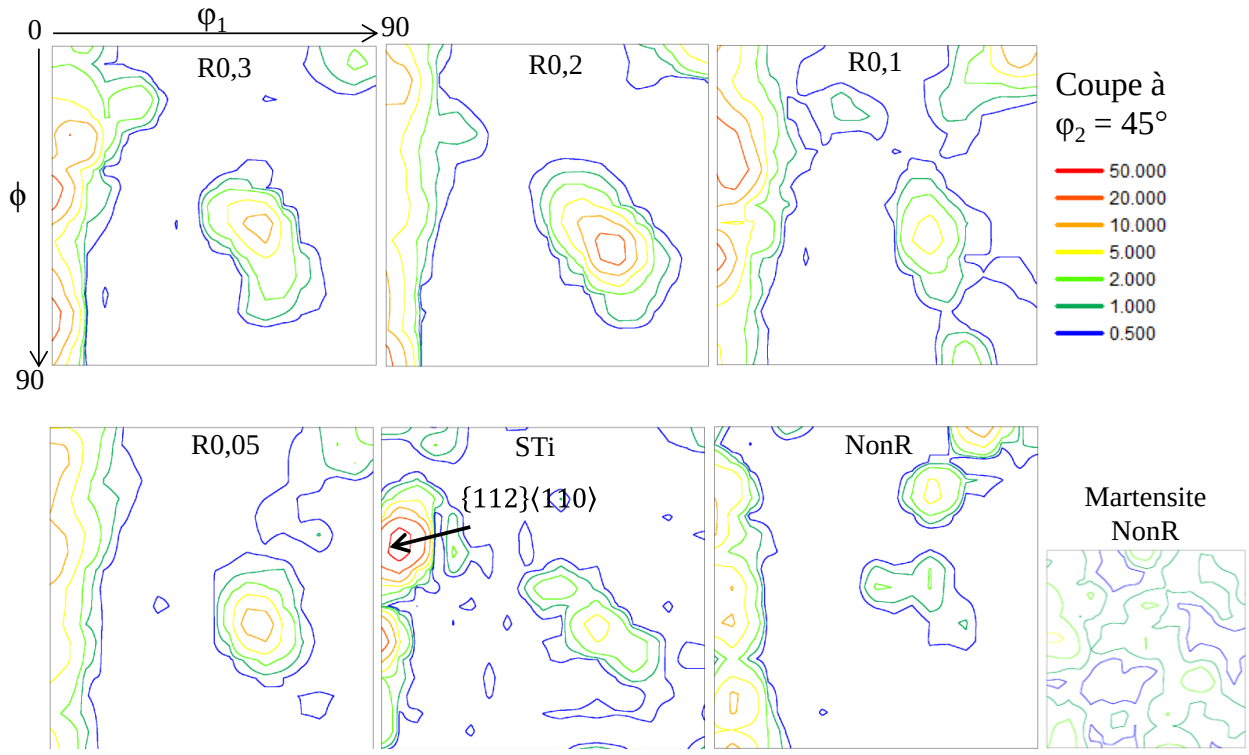


Figure III.4 : Coupe à φ_2 = 45° des ODF des états bruts de filage 5 nuances ODS, de la nuance NonR et de la martensite dans la nuance NonR

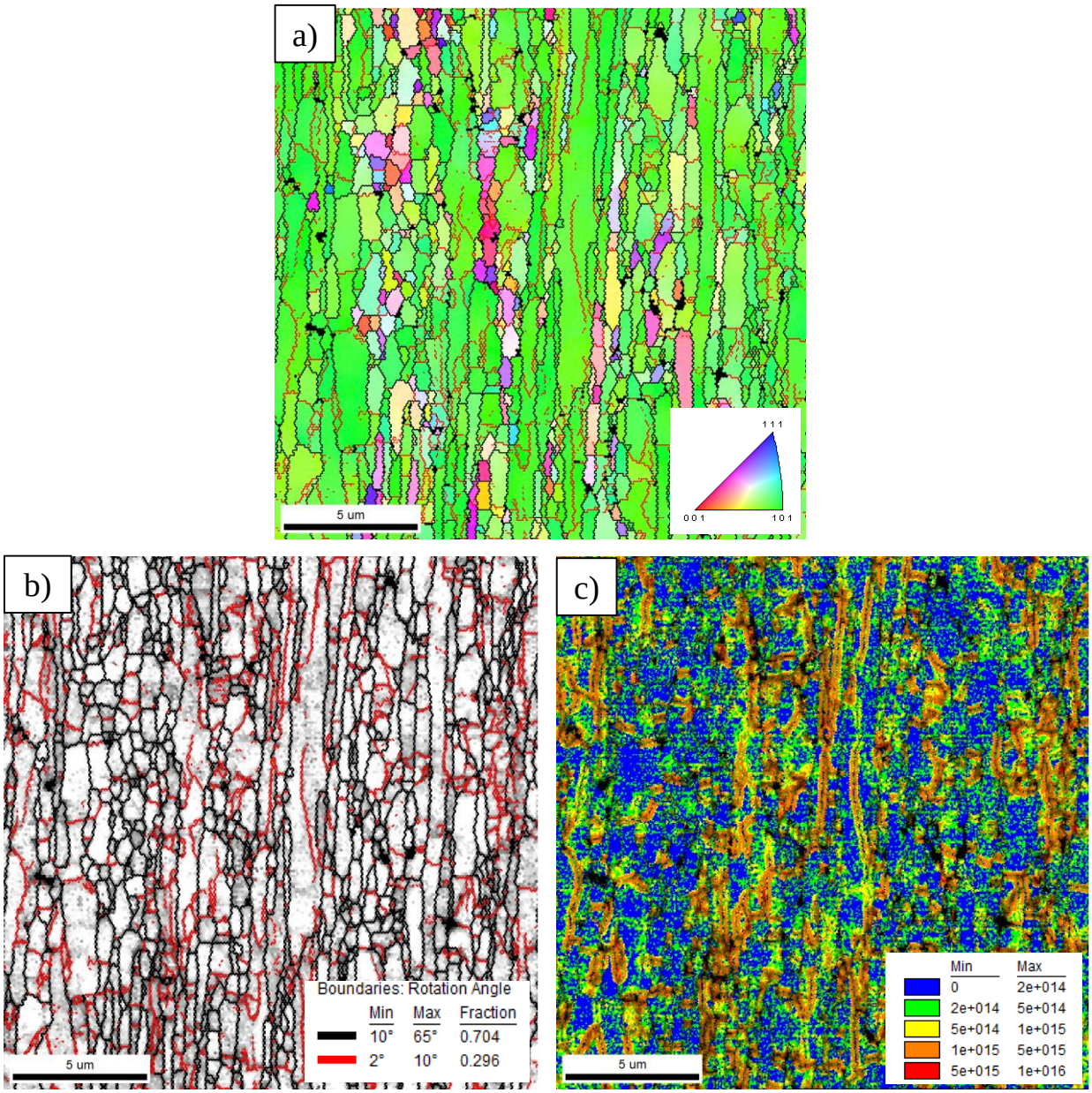


Figure III.5 : a) Cartographie IPF, b) carte de la distribution des joints de grains (noir) et des sous-joints de grains (rouge) et c) carte de la densité de GND dans la nuance R0,3 (zoom) à l'état de réception

2.2.2 Après recuit isotherme

Les mesures ayant montré une diminution notable de la dureté pour toutes les nuances après un recuit d'une heure à 1300°C, les microstructures de cet état métallurgique ont été analysées par EBSD dans un premier temps.

2.2.2.A Nuances fortement renforcées R0,3-R0,2-R0,1

Il est apparu que pour les 3 nuances les plus renforcées, les microstructures recuites (Annexe A.2) ne présentaient pas d'évolutions notables par rapport à l'état brut de filage. La taille moyenne des sous-grains et la fraction de sous-joints sont sensiblement les mêmes au vu des incertitudes (Tableau III.2). De même,

la densité de GND mesurée ne varie pas par rapport à l'état de réception, suggérant que même à 1300°C, il n'y a pas de phénomène de restauration dans ces nuances. On montrera par la suite que la stabilité remarquable de ces trois nuances est liée à la présence des nanoparticules qui demeurent très fines et dont la fraction volumique est significative à haute température (>1300°C).

Nuances	$D_{sous\text{-}grains}$ (µm)	Sous-joints (%)	Fibre α (%)	Densité moyenne de GND (m^{-2})
R0,3	0,63 ± 0,02	34 ± 3	75 ± 5	$6{,}7.10^{14}$
R0,3 1h 1300°C	0,68 ± 0,02	34 ± 3	69 ± 5	$6{,}3.10^{14}$
R0,2	0,78 ± 0,02	26 ± 3	73 ± 5	$4{,}7.10^{14}$
R0,2 1h 1300°C	0,82 ± 0,03	35 ± 3	68 ± 5	$5{,}1.10^{14}$
R0,1	1,08 ± 0,04	28 ± 3	68 ± 5	$3{,}4.10^{14}$
R0,1 1h 1300°C	1,25 ± 0,04	33 ± 3	66 ± 5	$3{,}4.10^{14}$

Tableau III.2 : Comparaison des caractéristiques microstructurales des nuances R0,3, R0,2 et R0,1 à l'état de réception et après 1h à 1300°C

Au contraire, les trois autres nuances, moins renforcées, présentent des évolutions microstructurales notables après 1h à 1300°C par rapport à l'état brut de filage. Ces microstructures ont donc fait l'objet d'investigations plus détaillées notamment via l'observation de leur microstructure suite à différents recuits.

2.2.2.B Nuance R0,05

Les caractéristiques microstructurales de la nuance R0,05 mesurées par EBSD après différents recuits sont présentées dans le Tableau III.3. Les cartographies IPF associées à certains des traitements thermiques sont visibles sur la Figure III.6. A 1150°C, on observe que le recuit d'une heure n'a que des conséquences mineures sur l'évolution de la microstructure (Figure III.6b) : la taille des sous-grains augmente faiblement mais la densité de dislocations reste égale à celle de l'état de réception. On remarque l'apparition de zones martensitiques également allongées dans la direction de filage et moins bien indexées de par la finesse des grains. La texture de fibre α semble s'accentuer par rapport à l'état de réception de même que la fraction de sous-joints mais à nouveau il est probable qu'il s'agisse d'un effet local. En revanche, après des temps plus longs (Figure III.6c), on observe la présence de grains et sous-grains plus gros (8,3 µm après 6h et 9,7 µm après 10h) et plus équiaxes. Les interfaces sont décorées par de gros précipités d'une taille supérieure au micromètre, correspondant aux points non indexés en EBSD. De plus, les zones martensitiques ont complétement disparu. Enfin, la densité de dislocations a chuté d'environ un ordre de grandeur et la fibre α s'est fortement accentuée atteignant une fraction d'environ 90%. Ces différentes observations, associées à la fraction de sous-joints qui reste constante et non négligeable (environ 20%), sont caractéristiques d'une restauration de la microstructure [6]. Dans la littérature [7], cette restauration avec croissance des sous-grains est souvent assimilée à une recristallisation continue, ou plus spécifiquement au terme restauration généralisée, traduit de l'anglais « *extended recovery* ».

Lorsqu'on augmente la température du recuit à 1300°C (Figure III.6d), on met en évidence l'apparition d'une population bimodale de grains due à la croissance anormale de certains grains orientés selon la fibre α ou selon une orientation de type $\{hkl\}\langle 112\rangle$ (grains roses). L'intensité élevée au niveau de l'orientation $\{111\}\langle 112\rangle$ sur l'ODF de la Figure III.6e vient du fait que le gros grain rose au centre de la Figure III.6d présente une direction <111> normale au plan d'observation (plan {111} dans le plan d'observation). La croissance préférentielle des grains orientés <112>//DF a été vérifiée à l'échelle

macroscopique par diffraction des rayons X, où la raie (211) apparaît clairement après le recuit d'1h à 1300°C sur un échantillon en coupe transverse (Annexe A.3). Les grains anormaux peuvent atteindre plusieurs centaines de micromètres tandis que les grains normaux présentent quant à eux une taille d'environ 10 µm et sont presque exclusivement orientés selon la fibre α. Sur la Figure III.6d, les précipites aux joints de grains sont toujours visibles ainsi que quelques zones martensitiques. Après 10h à 1300°C (Figure III.6f), on a pu observer par microscopie optique que la taille des grains anormaux augmente et peut atteindre plus de 500 µm parallèlement à DF et environ 300 µm dans la direction transverse tandis que celle des grains normaux semble peu varier.

Les recuits à 1150°C et 1300°C sur cette nuance laissent donc penser que la microstructure évolue par croissance normale des sous-grains dans un premier temps puis que la croissance anormale se déclenche au vu de la présence d'hétérogénéités (grosses particules) qui apparaissent durant le recuit. L'occurrence de la croissance anormale et le développement de l'orientation $\{hkl\}\langle 112\rangle$ pour les grains anormaux ont déjà été observés dans un acier ODS PM2000 par Pimentel *et al.* [8]. Les auteurs évoquent un phénomène d' « *orientation pinning* » du fait que ces grains orientés <112> // DF croissent dans une matrice très texturée où la désorientation entre les grains de la fibre α diminue au cours du temps (augmentation de la fraction de joints faiblement désorientés). Ils observent alors que les grains <112> // DF sont séparés de la matrice (*i.e.* des grains <110> // DF) par des joints de flexion (*tilt*) fortement désorientés selon l'axe <110>. A l'aide de simulations par dynamique moléculaires, les auteurs montrent que ces joints spéciaux présenteraient des mobilités particulièrement élevées. A l'inverse, les autres grains de la matrice sont séparés entre eux par des joints faiblement désorientés, moins mobiles. Dans notre cas, il est plus difficile de soutenir cette explication du fait que l'on n'observe pas une augmentation de la fraction de joints faiblement désorientés et que l'on constate également la croissance anormale de grains orientés selon la fibre α. Ainsi, on tentera d'expliquer l'occurrence de la croissance anormale dans cette nuance R0,05 via un modèle analytique adapté par la suite. Néanmoins, l'utilisation de ce modèle nécessite au préalable des caractérisations supplémentaires, notamment concernant la précipitation, qui sont présentées ci-après.

Nuances	$D_{sous\text{-}grains}$ (µm)	Sous-joints (%)	Fibre α (%)	Densité de GND (m^{-2})
Réception	$1{,}2 \pm 0{,}04$	23 ± 3	68 ± 5	$2{,}5.10^{14}$
1h 1150°C	$1{,}7 \pm 0{,}04$	40 ± 3	79 ± 5	$2{,}6.10^{14}$
6h 1150°C	$8{,}3 \pm 0{,}4$	22 ± 3	95 ± 5	$2{,}5.10^{13}$
10h 1150°C	$9{,}5 \pm 0{,}5$	17 ± 3	89 ± 5	$1{,}7.10^{13}$
1h 1300°C	$14{,}5 \pm 0{,}9$	21 ± 3	71 ± 5	$< 10^{13}$

Tableau III.3 : Caractéristiques microstructurales mesurées par EBSD de la nuance R0,05 après recuit

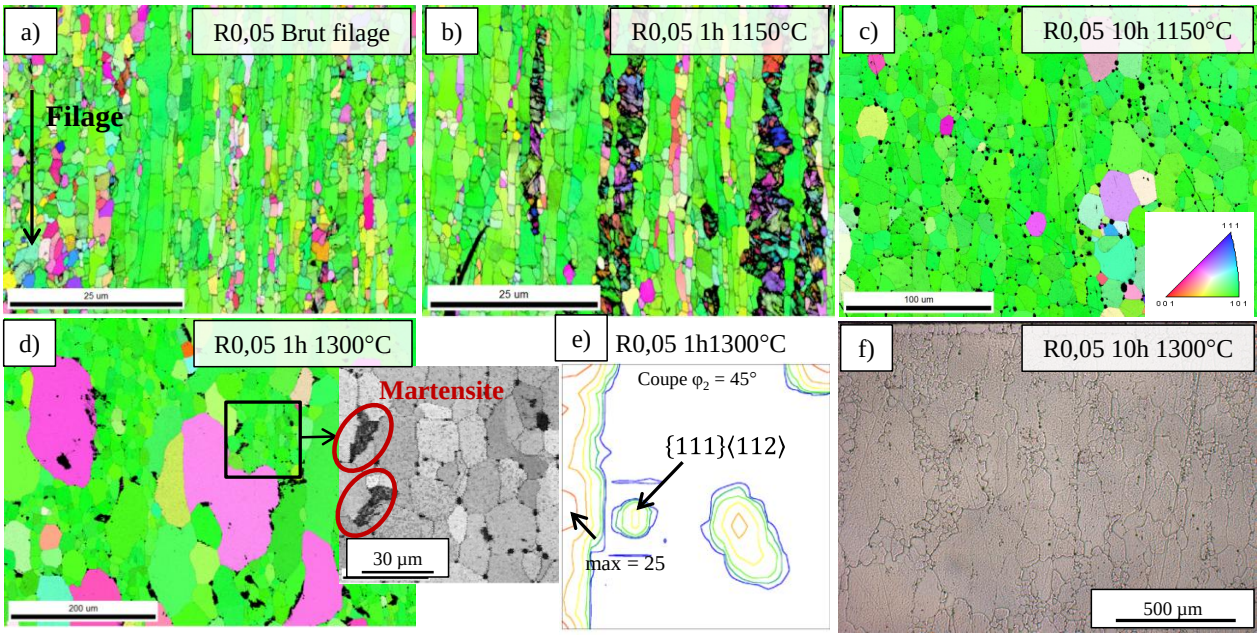


Figure III.6 : Cartographie IPF (directions cristallographiques // DF) de la nuance R0,05 après a) 1h 1150°C ; b) 10h 1150°C ; c) 1h 1300°C et d) coupe à φ_2 =45°de l'ODF associé

2.2.2.C Nuance STi

Les différentes observations faites au microscope optique et par analyses EBSD sur la nuance STi (Figure III.7) montrent que celle-ci garde une microstructure filée avec des grains fins jusqu'à 10h à 1150°C (micrographie optique en Annexe A.4). On observe aussi de nombreuses zones martensitiques après 1h à 1150°C (Figure III.7b). Il semblerait d'ailleurs que pour des raisons inconnues, ces zones se forment et croissent préférentiellement au niveau des grains orientés différemment de la fibre α, au détriment de ces derniers. Cela expliquerait alors l'augmentation de la fraction de fibre α mesurée après 1h à 1150°C (Tableau III.4) (les zones martensitiques ne sont pas prises en compte dans le calcul des fractions de fibre).

L'augmentation de la température à 1300°C provoque une importante croissance des sous-grains et une accentuation considérable de la fibre α qui atteint plus de 80% dès 6 min de recuit (Tableau III.4). Il est surprenant de voir que les grains orientés différemment de cette fibre ont presque tous une direction <114> //DF (grains roses), comme le montre la coupe de l'ODF après 1h à 1300°C (Figure III.7e). La fraction de martensite est supérieure à 30% après 6 min et diminue fortement avec l'augmentation du temps de recuit. Ce phénomène sera expliqué par la suite. Comme pour la nuance R0,05, la croissance des sous-grains est associée à une chute importante de la densité de GND. De nombreuses particules micrométriques se sont également formées et sont localisées préférentiellement aux joints de grains et au niveau des certaines jonctions triples ou quadruples (Figure III.7d). Des analyses par microsonde de Castaing présentées en Annexe A.5 ont montré que ces grosses particules visibles après recuit sont enrichies en O, Si, Y et Al et appauvries en chrome.

Il est intéressant de noter qu'à l'inverse de la nuance R0,05, la taille de grains reste homogène au cours du temps. Celle-ci semble augmenter simultanément avec la taille des particules micrométriques et il n'y a pas apparition de grains anormaux même après 10h à 1300°C comme on peut le vérifier par microscopie optique sur la Figure III.7f (sur cette figure, les contrastes topologiques observables sont dus au polissage mais ne traduisent pas la présence de martensite).

Nuances	$D_{sous\text{-}grains}$ (µm)	Sous-joints (%)	Fibre α (%)	Densité de GND (m^{-2})
Réception	1,1 ± 0,02	39± 3	74 ± 5	$3{,}5.10^{14}$
1h 1150°C	1,3 ± 0,03	52 ± 3	79 ± 5	$3{,}9.10^{14}$
6 min 1300°C	5,8 ± 0,2	41 ± 3	85 ± 5	$4{,}8.10^{13}$
1h 1300°C	9,3 ± 0,3	24 ± 3	95 ± 5	2.10^{13}

Tableau III.4 : Evolution des paramètres microstructuraux de la nuance R0,05 suite aux recuits

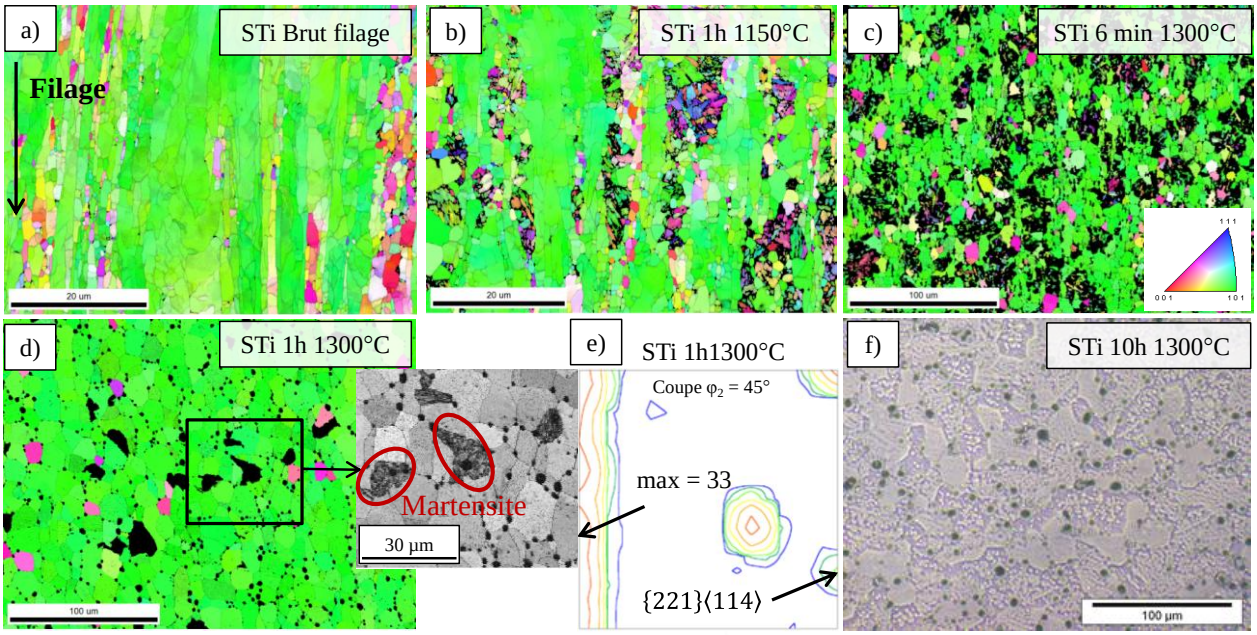


Figure III.7 : Cartographies IPF (directions cristallographiques // DF) de la nuance STi après les différents recuits

2.2.2.D Nuance NonR

Concernant la nuance NonR, l'étude des évolutions microstructurales a été effectuée suite à des recuits à température constante (1300°C) afin de pouvoir formuler une loi de croissance de grains. Les paramètres microstructuraux sont présentés dans le Tableau III.5 et les cartographies IPF sur la Figure III.8. On constate une augmentation importante de la taille de grains dès 6 min à 1300°C (Figure III.8b), croissance qui semble rapidement ralentir avec l'augmentation du temps. La fraction de zones martensitiques est beaucoup plus faible après les recuits. Malgré la faible statistique, il semble que la texture de fibre α qui présente une fraction initiale de 40% s'intensifie lors des premiers stades de croissance des grains pour se stabiliser autour de 60%. De même, la fraction de joints faiblement désorientés diminue légèrement et se stabilise autour de 10%. Ces observations suggèrent un mécanisme classique de croissance normale des grains. Sur la cartographie de l'état recuit 1h à 1300°C (Figure III.8c), c'est le gros grain orienté {112}⟨113⟩ en haut à droite qui conduit à l'émergence de cette orientation sur l'ODF ((Figure III.8d).

Nuances	D_{grains} (µm)	Sous-joints (%)	Fibre α (%)	Densité de GND (m^{-2})
Réception	19,5 ± 1,2	17± 3	41 ± 5	$9{,}4.10^{12}$
6 min 1300°C	76 ± 6	11 ± 3	75 ± 5	$\sim 10^{12}$
30 min 1300°C	93 ± 8	10 ± 3	68 ± 5	$\sim 10^{12}$
1h 1300°C	105 ± 9	9 ± 3	62 ± 5	$\sim 10^{12}$

Tableau III.5 : Evolution des paramètres microstructuraux de la nuance NonR suite aux recuits

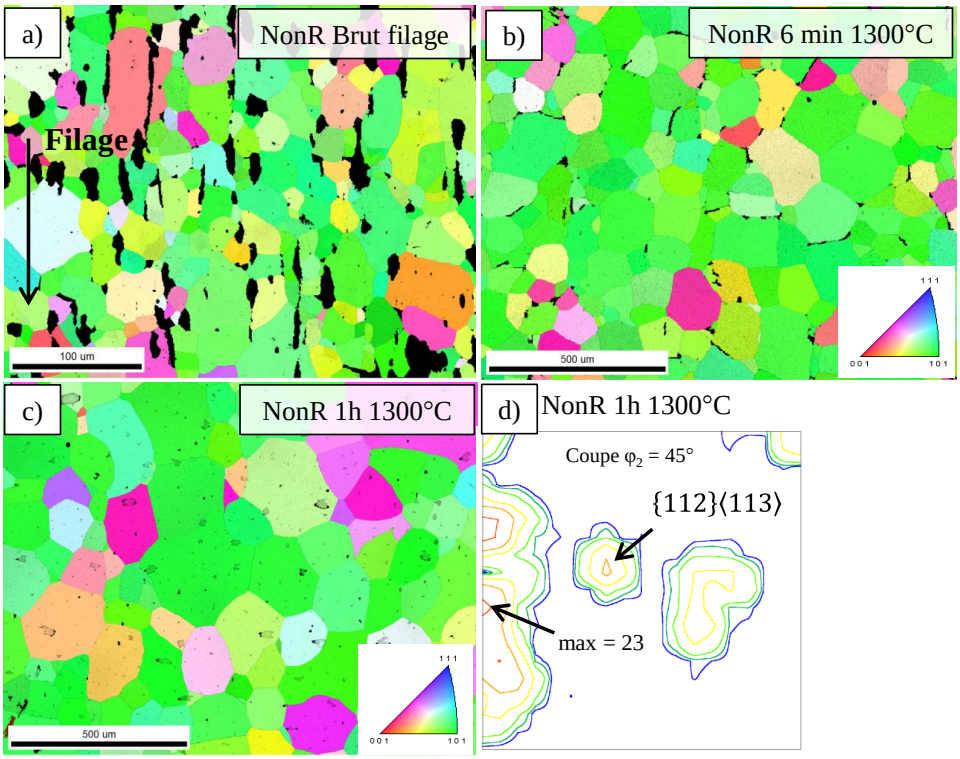


Figure III.8 : Cartographie IPF de la nuance NonR suite aux recuits à 1300°C

3. Etude de la précipitation

3.1 Caractérisation des nanoparticules

Le rôle déterminant des nano-précipités sur la stabilité des microstructures des matériaux ODS nous a conduits à caractériser leur distribution (fraction volumique, densité et taille) et à estimer leur composition chimique en utilisant la DNPA (Diffusion des Neutrons aux Petits Angles). Les distributions en taille des particules sont présentées sur la Figure III.9. Les valeurs moyennes des distributions et les autres caractéristiques (fraction volumique totale, densité, rapport A) sont présentées dans le Tableau III.6. La méthode de traitement des données est présentée dans le Chapitre II.

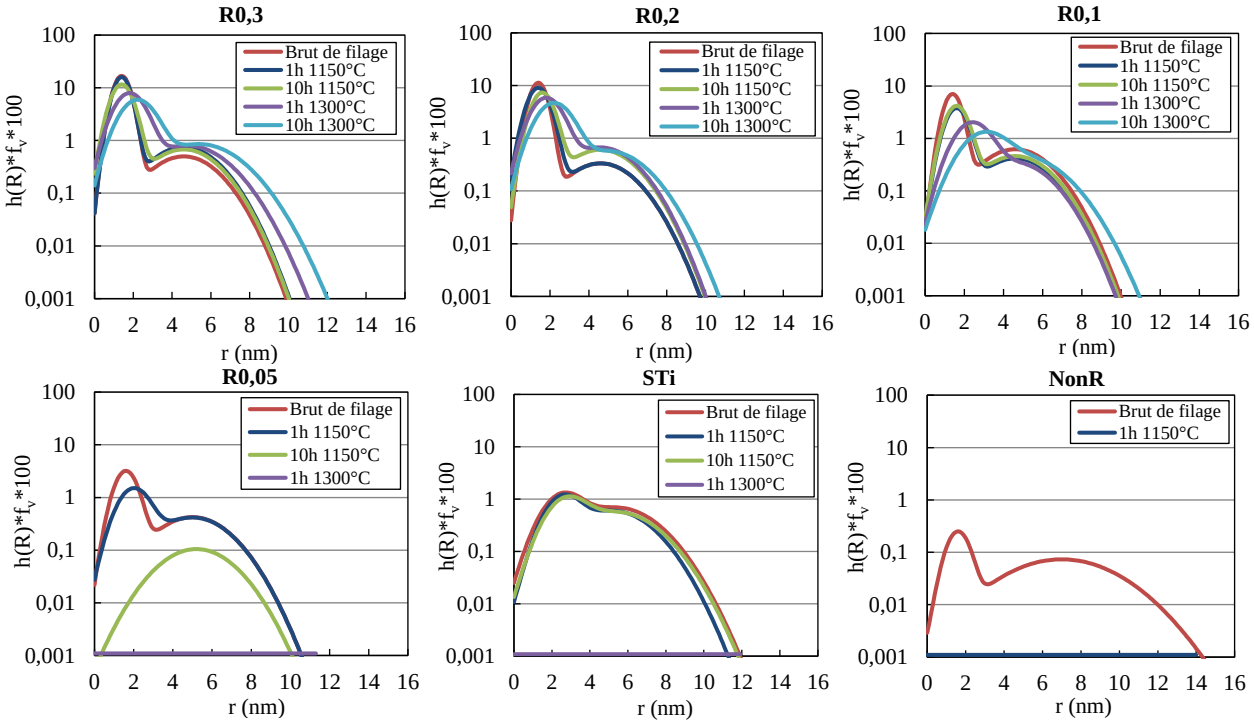


Figure III.9 : Distribution en taille des particules pour les différents états métallurgiques de chaque nuance

La Figure III.9 montre que les distributions de particules sont constituées de deux populations : l'une de très petites particules centrée sur un rayon r_1 de 1 à 2 nm et l'autre de particules plus grosses, ayant un rayon moyen r_2 compris entre 4 et 7 nm. Dans les différentes nuances, le décalage des distributions vers des rayons plus élevés dans les états recuits est directement lié à la coalescence des particules. Cette coalescence s'effectue par un mécanisme de murissement d'Ostwald [9].

Dans le Tableau III.6, on note que le rayon moyen r_m est très proche du rayon r_1 de la population des plus petites particules car celles-ci présentent une densité de 2 à 3 ordres de grandeur supérieure à celle des nanoparticules plus grosses. Dans les nuances R0,3 et R0,2 brutes de filage, les particules présentent un rayon initial moyen de 1,4 nm et des densités de l'ordre de 10^{24} m^{-3}. De plus, les distributions présentées Figure III.9 montrent une résistance impressionnante des nanoparticules à la coalescence, même après 10h à 1300°C. En effet, suite à ce recuit, les plus petites particules gardent une taille moyenne inférieure à 5 nm (r_1 = 2,2 nm pour les deux nuances) et les plus larges atteignent seulement 10 nm. On obverse une diminution de la densité (d'un facteur 5 environ) et de la fraction volumique (certaines particules initialement plus grosses coalescent au-dessus de la limite de détection comprise entre 20 et 30 nm de diamètre) mais la nature chimique des particules semble peu évoluer au vu du rapport A qui demeure constant suite aux différents recuits. La valeur moyenne du rapport A de 2,6 est très proche de la valeur théorique des précipités de type $Y_2Ti_2O_7$ (2,54). Les résultats sont donc cohérents avec la stabilité thermique remarquable de ces phases pyrochlores, fréquemment observées dans la littérature [10][11].

La taille des particules à l'état de réception dans la nuance R0,1 est similaire aux nuances R0,2 et R0,3. En revanche, la coalescence des particules durant les recuits de la nuance R0,1 est plus marquée puisqu'après 10h à 1300°C, les petits précipités atteignent en moyenne 3 nm de rayon, la densité diminue de plus d'un ordre de grandeur et la fraction volumique est divisée par 2. De même, on peut noter une variation plus importante de la valeur du rapport A qui semble indiquer un changement dans la nature chimique des particules détectées. Notons néanmoins que le signal détecté dans l'état recuit 10h à 1300°C

montre que cette nuance présente toujours une fraction volumique significative (0,5%) de particules très stables, qui sont probablement également des pyrochlores.

Les nanoparticules dans les nuances R0,05 et STi présentent des tailles initiales plus importantes ainsi qu'une cinétique de coalescence bien plus rapide. Concernant la nuance R0,05, dès le recuit de 10h à 1150°C, presque toute les particules ont grossi à une taille supérieure à la limite de détection (environ 15 nm de rayon), la fraction volumique détectée est de moins de 0,1 % et parallèlement la densité de particules a diminué de 2 ordres de grandeur. Après 1h à 1300°C, le signal suit une loi de Porod (intensité diffusée $\propto q^4$) et plus aucune particule n'est détectée. De manière surprenante, les particules dans la nuance STi coalescent peu jusqu'à 10h à 1150°C malgré l'absence de titane qui devrait diminuer la résistance à la coalescence. Comme dans la nuance R0,05, c'est après le recuit à 1300°C que toute les particules coalescent au-dessus de la limite de détection. Pour ces deux nuances, la variation des rapports A mesurés traduit également l'instabilité des nano-phases détectées. Les valeurs de 3,3 et 3,4 mesurées (R0,05 et STi respectivement) dans l'état de réception laissent penser qu'il pourrait s'agir plutôt d'oxydes de type Y_2O_3 dont le rapport A théorique est justement égal à 3,3. Ces phases sont connues pour présenter une résistance à la coalescence plus faible que les phases pyrochlores ($Y_2Ti_2O_7$) comme nous l'avons mentionné dans le Chapitre I et cela expliquerait les résultats observés.

Etat métal.	r_1 (nm)	r_2 (nm)	r_m (nm)	F_v totale (%)	Densité totale (m^{-3})	Rapport A
R0,3 Brut filage	1,4 ± 0,4	4,6 ± 1,5	1,4	1,8	$1,2.10^{24}$	2,6
R0,3 1h 1150°C	1,4 ± 0,4	4,6 ± 1,5	1,4	1,8	$1,1.10^{24}$	2,7
R0,3 10h 1150°C	1,4 ± 0,5	4,6 ± 1,5	1,4	1,7	$9,1.10^{23}$	2,5
R0,3 1h 1300°C	1,8 ± 0,7	4,8 ± 1,7	1,9	1,7	$3,9.10^{23}$	2,7
R0,3 10h 1300°C	2,2 ± 0,8	5,4 ± 1,8	2,3	1,5	$1,9.10^{23}$	2,5
R0,2 Brut filage	1,4 ± 0,4	4,6 ± 1,5	1,4	1,2	$7,9.10^{23}$	2,8
R0,2 1h 1150°C	1,4 ± 0,5	4,6 ± 1,5	1,4	1,2	$7,1.10^{23}$	2,7
R0,2 10h 1150°C	1,6 ± 0,5	4,6 ± 1,5	1,6	1,1	$4,1.10^{23}$	2,6
R0,2 1h 1300°C	1,8 ± 0,7	4,6 ± 1,5	1,9	1,2	$2,9.10^{23}$	2,7
R0,2 10h 1300°C	2,2 ± 0,8	5 ± 1,6	2,3	1,1	$1,5.10^{23}$	2,5
R0,1 Brut filage	1,4 ± 0,4	4,6 ± 1,5	1,4	0,9	$4,9.10^{23}$	3,2
R0,1 1h 1150°C	1,6 ± 0,5	4,6 ± 1,5	1,7	0,6	$2,1.10^{23}$	2,9
R0,1 10h 1150°C	1,6 ± 0,5	4,6 ± 1,5	1,7	0,7	$2,3.10^{23}$	2,7
R0,1 1h 1300°C	2,4 ± 0,8	4,6 ± 1,5	2,5	0,5	$5,2.10^{22}$	2,7
R0,1 10h 1300°C	3 ± 1	5 ± 1,7	3,3	0,5	$2,1.10^{22}$	2,0
R0,05 Brut filage	1,6 ± 0,5	5 ± 1,6	1,7	0,5	$1,8.10^{23}$	3,3
R0,05 1h 1150°C	2 ± 0,7	5 ± 1,6	2,1	0,4	$5,7.10^{22}$	2,9
R0,05 10h 1150°C	/	5,2 ± 1,6	5,2	0,05	$5,5.10^{20}$	1,8
STi Brut filage	2,6 ± 0,9	5,4 ± 1,8	2,9	0,5	$2,9.10^{22}$	3,4
STi 1h 1150°C	2,6 ± 0,8	5,2 ± 1,7	2,9	0,5	$2,5.10^{22}$	3,2
STi 10h 1150°C	2,8 ± 0,9	5,4 ± 1,8	3,2	0,5	$2,0.10^{22}$	2,5
NonR Brut filage	1,6 ± 0,5	7 ± 2,5	1,7	0,1	$1,4.10^{22}$	3,3

Tableau III.6 : Caractéristiques des populations de nanoparticules mesurées par DNPA dans les nuances filées

Dans la nuance NonR où il n'y a pas eu de titane et d'Y_2O_3 introduit, la fraction volumique de 0,1% mesurée dans l'état de réception peut traduire la présence de nano-phases (carbures ou oxydes de contamination par exemple) issues d'une légère pollution introduite soit dans la poudre initiale, soit lors

de la consolidation. Après un simple recuit d'1h à 1150°C, ces précipités ne sont plus détectés et ont probablement été dissous ou ont fortement coalescé.

Ces premières caractérisations montrent que les nuances fortement renforcées sont constituées de précipités $Y_2Ti_2O_7$ très stables thermiquement. Dans les nuances moins renforcées, la nature chimique des nano-phases formées semble être différente et leur résistance à la coalescence est réduite. Les travaux de Zhong [12] ont déjà montré l'étroite relation qu'il pouvait y avoir entre la nature chimique des nano-oxydes et leur stabilité. Notons que l'évolution des distributions de particules suite aux différents recuits est particulièrement bien corrélée aux évolutions de dureté de la Figure III.2, notamment pour les nuances R0,05 et STi où, à partir d'1h à 1300°C, les précipités qui ont fortement coalescé ne participent plus au durcissement structural et la dureté devient similaire à celle de la nuance NonR.

Comparaison des fractions volumiques expérimentales et théoriques :

Nous allons montrer ici que les fractions volumiques de nanoparticules mesurées en DNPA sont bien supérieures aux fractions théoriques que l'on aurait pu prédire. Ensuite, nous proposerons des hypothèses pour expliquer ce résultat. A partir des concentrations atomiques des éléments Y, Ti et O et en faisant des hypothèses sur la nature chimique des oxydes, on peut estimer la fraction volumique $F_{v,th}$ de nano-précipités susceptibles de se former dans nos différentes nuances. Celle-ci s'exprime telle que :

$$F_{v,th} = \frac{V_{at}^{NP}[NP]}{V_{at}^{NP}[NP] \times V_{at}^{M}[M]} \qquad \text{(III.1)}$$

Où V_{at} sont les volumes atomiques des nano-précipités (NP) et de la matrice ferritique (M). Les concentrations atomiques *[NP]* et *[M]* sont telles que $[NP] = \Sigma[X_i]$ avec $[X_i]$ la concentration atomique de l'élément *i* (dans le matériau) qui participe à la formation des nano-précipités et *[M]=1-[NP]*. A partir des paramètres de mailles issus des fiches cristallographiques et du nombre total d'atomes par maille, les volumes atomiques des nano-précipités $Y_2Ti_2O_7$ et Y_2O_3 ont été calculés et sont respectivement de $1{,}17.10^{-29}$ m^{-3} et $1{,}49.10^{-29}$ m^{-3}. Le volume atomique de la matrice ferritique est de $1{,}20.10^{-29}$ m^{-3} [13]. Les concentrations atomiques découlent des concentrations massiques présentées dans le Chapitre II. En s'appuyant sur les résultats de DNPA, on fait l'approximation que tout l'yttrium, qui est l'élément limitant, précipite sous forme d'$Y_2Ti_2O_7$ dans les nuances R0,3, R0,2 et R0,1. Dans les nuances STi et R0,05, on considère que l'yttrium précipite sous forme d'Y_2O_3. On rappelle qu'il s'agit bien là d'approximations.

Le Tableau III.7 compare les fractions volumiques calculées à celles mesurées par DNPA dans l'état de réception (présentées dans le Tableau III.6). Il est clair que les fractions volumiques expérimentales sont très supérieures aux valeurs théoriques. Plusieurs hypothèses peuvent expliquer cette observation. La première est que l'état de précipitation après filage est métastable et que les particules n'ont pas toutes la structure cristallographique des pyrochlores. En effet, différentes études par microscopie à transmission [11][14][15][16] ont révélé l'existence de composés mixtes Y-Ti-O non-stœchiométriques et de composés stœchiométriques Y_2TiO_5 dans des nuances ODS enrichies en titane à l'état de réception. Notamment, des nanoparticules avec des ratios Ti/Y supérieurs à 3 [17][18] ou avec un enrichissement en chrome [19] ont déjà été observées. C'est lors d'un traitement thermique ultérieur que ces particules peuvent évoluer vers une structure plus stable $Y_2Ti_2O_7$, avec une relation d'orientations cube-cube avec la matrice et qu'elles deviennent totalement cohérentes [9]. Les volumes atomiques différents de ces phases non

stœchiométriques associés à une concentration plus importante d'yttrium en solution solide pour former des précipités peuvent alors expliquer la fraction volumique mesurée plus importante.

De plus, le titane en excès, en s'associant avec des éléments légers forme des oxydes, des carbures ou des nitrures. Ces précipités peuvent présenter des tailles nanométriques et contribuer au signal mesuré en DNPA, comme cela est régulièrement observé dans des aciers austénitiques de type 15/15 Ti [20]. Néanmoins, la nature nanométrique de ces précipités n'a pas été observée en MET dans les nuances ODS dans la littérature, rendant cette hypothèse moins probable.

Nuance	R0,3	R0,2	R0,1	R0,05	STi
$F_{v,th}$ (%)	0,55 ($Y_2Ti_2O_7$)	0,43 ($Y_2Ti_2O_7$)	0,23 ($Y_2Ti_2O_7$)	0,08 (Y_2O_3)	0,27 (Y_2O_3)
$F_{v,exp}$ (DNPA) (%)	1,8	1,2	0,9	0,5	0,5

Tableau III.7 : Comparaison des fractions volumiques théoriques avec celles mesurées expérimentalement par DNPA après filage dans les 5 nuances renforcées

Ainsi, l'hypothèse la plus probable pour expliquer les écarts importants observés entre les fractions volumiques théoriques et mesurées est l'existence d'oxydes non-stœchiométriques Y-Ti-O qui permettraient une plus grande disponibilité des éléments limitants (principalement l'yttrium) en solution solide pour former d'autres particules.

3.2 Caractérisation de la précipitation intermédiaire

La DNPA étant un outil permettant de caractériser uniquement les nano-précipités (taille inférieure à 30 nm dans nos conditions expérimentales), des expériences de dissolution sélective ont été réalisées afin de pouvoir extraire les précipités les plus grossiers et de les caractériser. Le filtre utilisé présente des pores de 100 nm. Néanmoins, suite aux filtrages successifs effectués et à l'accumulation de matière au niveau des pores, le diamètre minimum des particules récupérées peut-être d'une dizaine de nanomètres. La caractérisation des précipités récupérés a été effectuée par diffraction des rayons X avec un diffractomètre Brucker D-8-Advance utilisé en configuration Bragg-Brentano θ-θ. Trois des nuances modèles élaborées ont été analysées : la nuance conventionnelle R0,2, la nuance faiblement renforcée R0,05 et la nuance sans titane STi. Les diffractogrammes de poudre mesurés sur ces trois nuances sont présentés respectivement sur les Figure III.10, Figure III.11 et Figure III.12. Un récapitulatif semi-quantitatif des phases détectées est présenté dans le Tableau III.8.

Les trois nuances montrent plusieurs pics indiquant la présence plus ou moins importante de carbures de type $M_{23}C_6$ et M_7C_3. Les premiers sont régulièrement observés dans les ODS [21][22] dès lors qu'une légère pollution en carbone est introduite durant le broyage. Ces carbures peuvent présenter une composition mixte en fer et en chrome de type $Fe_{23-x}Cr_xC_6$ et sont généralement localisés aux joints de grains. Leur taille est d'une centaine de nanomètres. La présence de M_7C_3 dans ces matériaux est moins référencée dans la littérature et ceux-ci sont normalement stables pour des concentrations en carbone beaucoup plus importantes que dans les aciers Fe-14Cr-1W comme l'a montré Dadé à l'aide de calculs Thermo-Calc [23]. Néanmoins, il est possible que ceux-ci soient dans un état métastable suite au refroidissement rapide à l'air après le filage.

La nuance R0,2 montre un pic marqué à 30,7° associé aux pyrochlores ainsi que quatres pics à 37°, 43°, 62° et 74° correspondant à la présence de carbonitrures Ti(C,N) déjà détectés par Olier *et al.* par spectroscopie dispersive aux électrons (EDS) [24] dans des nuances similaires. Les auteurs observent que ces derniers ont une taille inférieure à 500 nm et sont préférentiellement alignés aux joints de grains. Dans

les deux autres nuances, ces pics n'apparaissent pas mais on constate en revanche la présence de plusieurs types d'oxydes, dont des précipités d'Y_2O_3. Dans la nuance STi, les raies de diffraction d'oxydes $(Fe,Cr)_2O_3$ et d'oxydes mixtes $Fe_2Cr_2O_5$ sont particulièrement intenses probablement en relation avec la pollution importante dans cette nuance (O ≈ 0,2%). Dans la nuance R0,05, les raies des oxydes $(Fe,Cr)_2O_3$ sont également visibles et on détecte la présence d'oxyde de titane Ti_3O. Compte tenu des résultats de l'analyse par microsonde (Annexe A.5) sur la nuance STi recuite à 1300°C, on peut aussi envisager que des pics correspondant à des oxydes à base d'aluminium et de silicium soient présents (au moins dans la nuance STi) mais n'aient pas été indexés car trop proches (ou confondus) des pics des autres oxydes.

Il est intéressant de noter la corrélation entre les particules détectées par DRX et les résultats de DNPA. Les nuances les plus renforcées ont montré une stabilité thermique remarquable de la nano-précipitation et un rapport A correspondant à des particules d'$Y_2Ti_2O_7$, particules également détectées en DRX. De même, l'observation de particules d'Y_2O_3 sur les diffractogrammes dans les nuances moins renforcées (R0,05 et STi) est cohérente avec le rapport A (3,3) et la résistance à la coalescence plus faible mesurée en DNPA, puisque ces particules sont moins stables que les pyrochlores du fait de leur énergie d'interface plus élevée (Chapitre I). Ces caractérisations soutiennent donc l'absence de nanoparticules enrichies en titane dans la nuance R0,05 bien que celle-ci contienne du titane (0,05%). Les raisons de telles observations peuvent être multiples. Une hypothèse serait que les concentrations atomiques faibles en yttrium et en titane dans cette nuance entraînent une distance interatomique moyenne particulièrement élevée entre ces deux éléments. Parallèlement, la concentration atomique bien plus élevée en éléments légers, notamment en oxygène, pourrait entraîner la formation d'une part d'Y_2O_3 et d'autre part d'oxydes variés de type Ti_xO_y (ici Ti_3O visiblement) malgré l'énergie d'interface plus élevée de ces particules comparée à celle des pyrochlores. Ce phénomène pourrait également s'observer dans une moindre mesure dans la nuance R0,1 (non analysée en DRX) et pourrait expliquer qu'une certaine fraction des nano-précipités, plutôt de type Y_2O_3, coalescent lors des recuits à 1300°C tandis que d'autres, des oxydes mixtes Y-Ti-O, restent stables et nanométriques.

Nuance	$Y_2Ti_2O_7$	Y_2O_3	$M_{23}C_6$	M_7C_3	Ti(C,N)	$(Fe,Cr)_2O_3$	Ti_3O
R0,2	++	/	+	++	++	/	/
R0,05	/	+	++	++	/	+	+
STi	/	++	++	++	/	++	/

Tableau III.8 : Récapitulatif semi-quantitatif des phases détectées par DRX après dissolution sélective, ++ signifie une présence marquée de l'espèce chimique, + la présence de trace et / que l'espèce chimique n'a pas été détectée

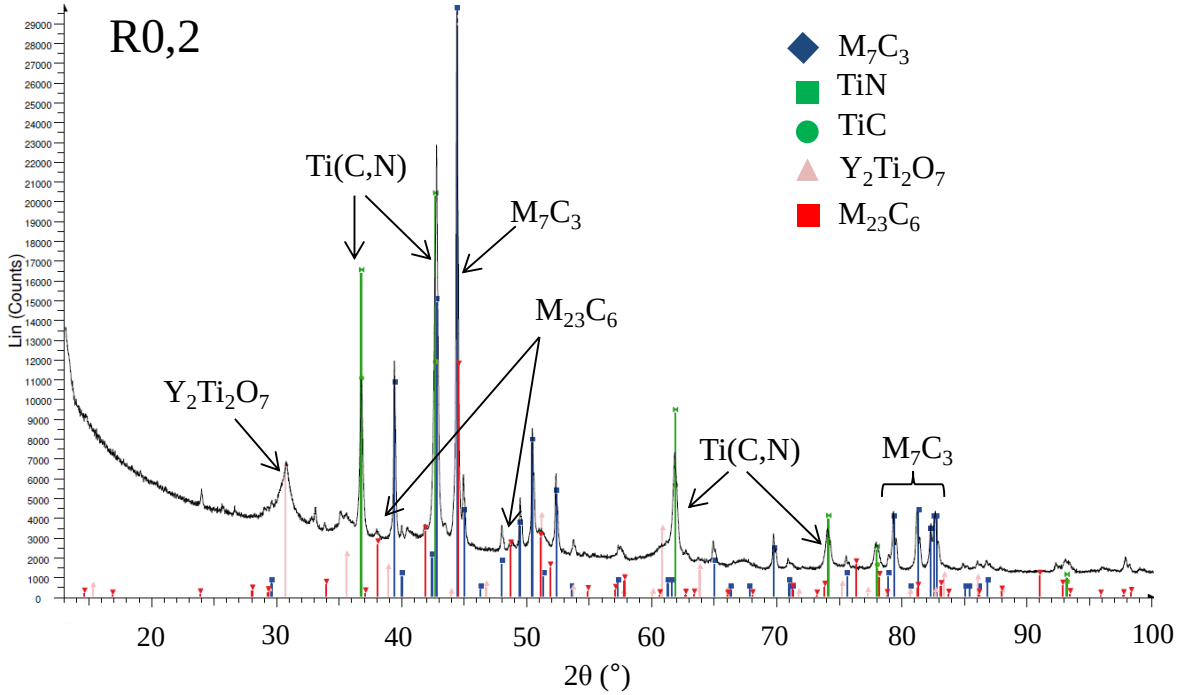


Figure III.10 : Diffractogramme de la poudre récupérée par dissolution sélective de la nuance R0,2

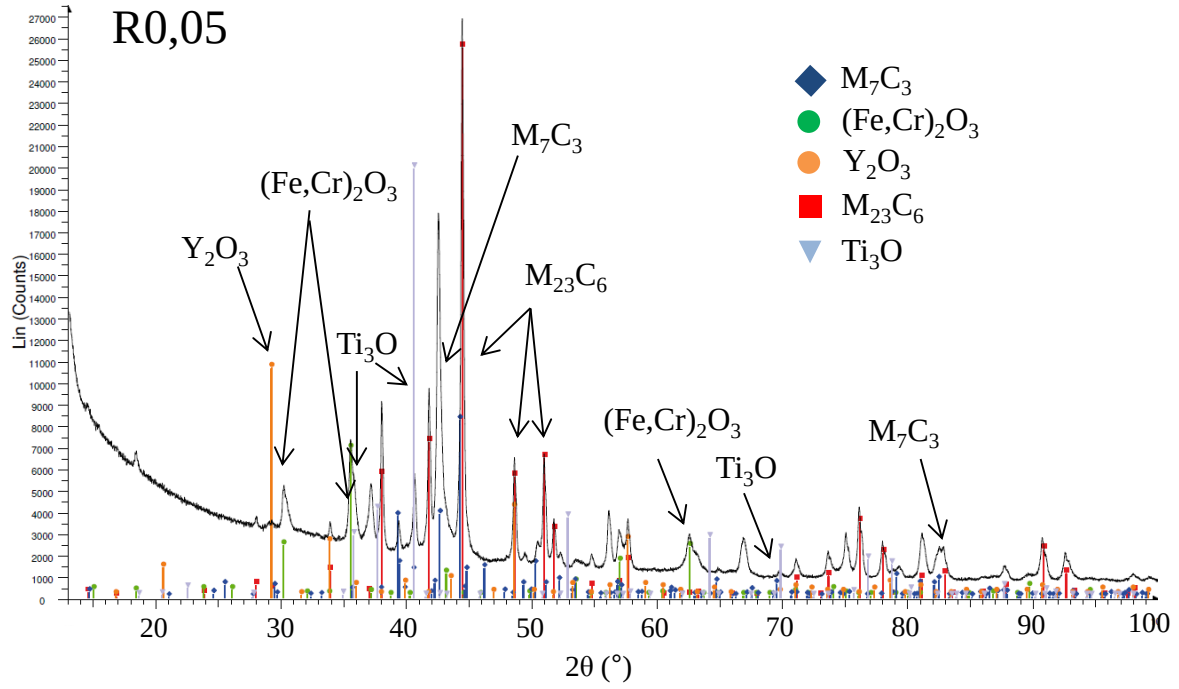


Figure III.11 : Diffractogramme de la poudre récupérée par dissolution sélective de la nuance R0,05

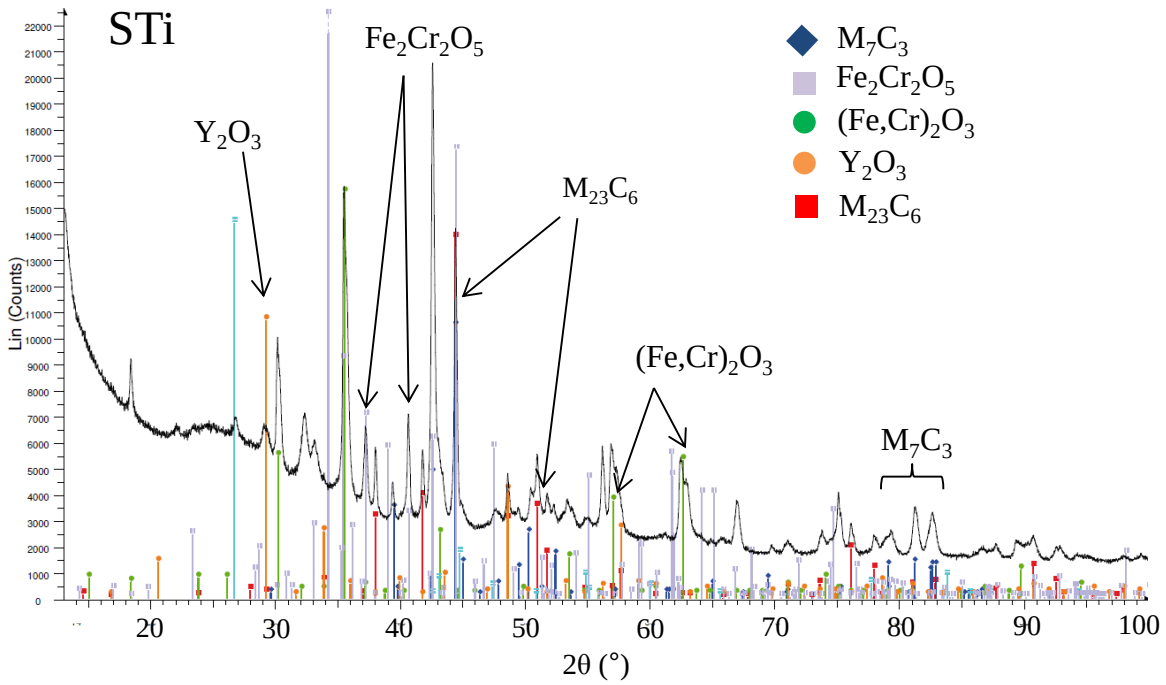


Figure III.12 : Diffractogramme de la poudre récupérée par dissolution sélective de la nuance STi

4. Stabilité des phases et influence de la composition chimique

4.1 Analyse thermique par calorimétrie différentielle

Dans l'objectif de confirmer et d'identifier plus précisément la signature des phénomènes de transformation de phases, de recristallisation et éventuellement de dissolution et de précipitation des particules, on se propose d'effectuer une analyse thermique des matériaux par calorimétrie différentielle à balayage. Les 6 nuances ont été analysées et ont subi 2 cycles thermiques, de la température ambiante jusqu'à 1400°C, avec une vitesse de chauffe de 10°C.min^{-1} et un refroidissement four coupé. Les résultats du flux de chaleur mesuré en fonction de la température sont présentés sur la Figure III.13. Les graphiques présentent les courbes obtenues lors du 1er cycle thermique entre 400°C et 1400°C lors de la montée en température et entre 1400°C et 200°C lors du refroidissement. Nous avons choisi de ne présenter que le 1er cycle car les phénomènes thermiques y sont plus facilement identifiables.

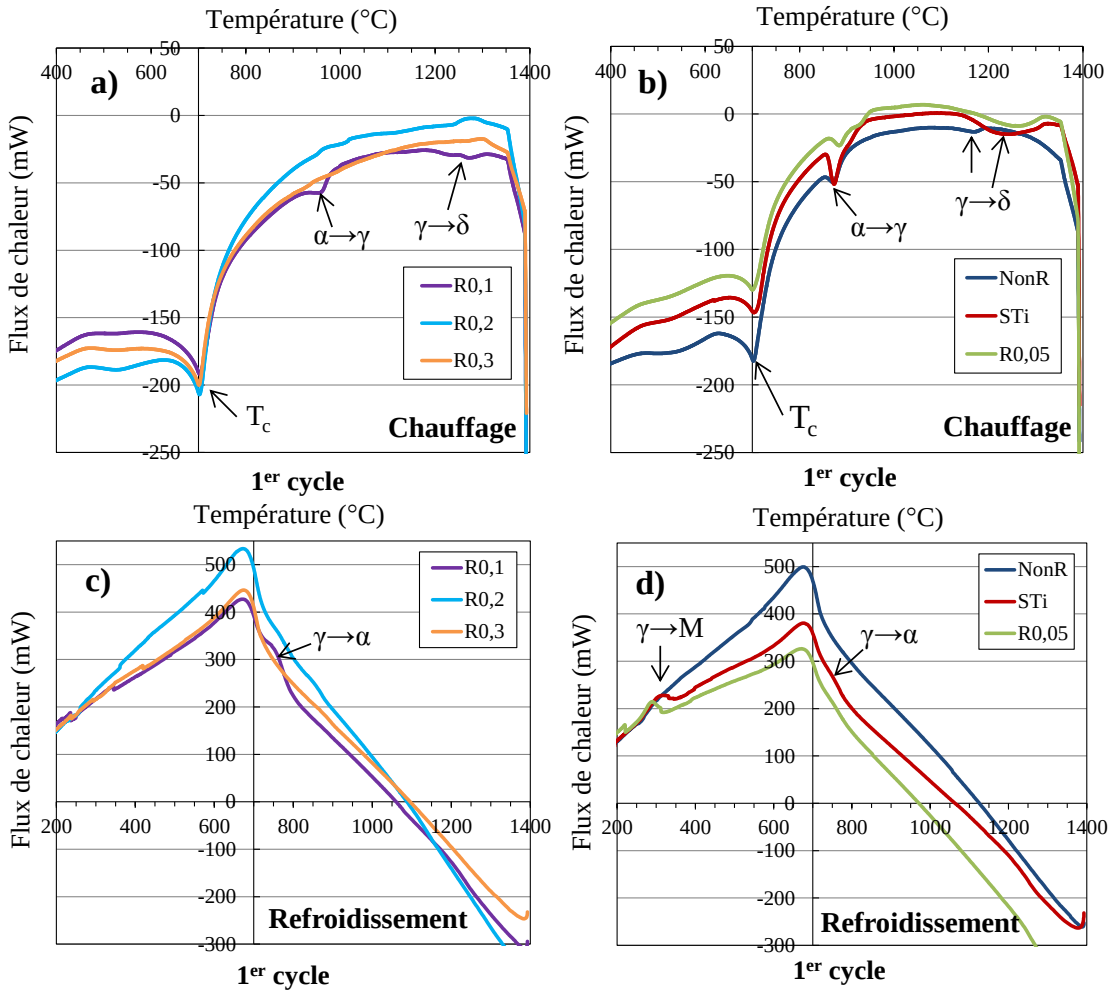


Figure III.13 : Courbes de calorimétrie obtenues sur les nuances filées a)-b) au chauffage entre 400°C et 1400°C et c)-d) au refroidissement entre 1400°C et 200°C

Toutes les nuances présentent une température de Curie T_c égale à 700°C, signe de la perte de l'aimantation permanent de la ferrite α (état ferromagnétique) au profit d'un état paramagnétique. Notons que cette valeur est sensiblement inférieure à la température de Curie du fer pur, égale à environ 800°C [25], de par la présence d'éléments d'alliages (Cr, Ni…) qui sont connus pour abaisser cette température. Concernant les nuances R0,2 et R0,3 (Figure III.13a), aucun phénomène thermique n'est identifié jusqu'à 1300°C, température à laquelle on distingue un léger pic exothermique pour les deux nuances. Néanmoins, l'origine de ce pic n'a pas pu être identifiée puisque les microstructures après l'essai ne montrent ni croissance de grains, ni recristallisation (Figure III.14a pour la nuance R0,3). On pourrait éventuellement envisager une modification de l'état de précipitation. A cette température, seul un éventuel réarrangement de la structure des nano-précipités peut être envisagé mais il apparait peu probable que le dégagement de chaleur associé à ce phénomène soit détectable par calorimétrie.

On note la présence d'un pic endothermique à 870°C pour les nuances NonR et STi que l'on retrouve à 880°C et à 940°C respectivement pour les nuances R0,05 et R0,1. Ce pic est associé à la transformation de phase ferrite-austénite et est observé communément à des températures similaires dans les aciers à 9%Cr [26][27][28]. Bien que cette hypothèse reste à prouver, on peut supposer que l'augmentation de la température de transformation de phases dans la nuance R0,1 est due au taux de renforts plus important

qui retarde la croissance des germes d'austénite. Danon *et al.* [29] proposent l'existence d'un mécanisme similaire dans l'Eurofer 97 où des particules enrichies en tantale ralentissent la croissance des grains d'austénitique.

A partir des énergies mesurées $E_{\alpha\rightarrow\gamma}$ et de l'enthalpie de 13 $J.g^{-1}$ pour une transformation complète (100%) [26][27], on peut estimer la fraction de ferrite transformée en austénite au cours du 1er cycle et du 2ème cycle (Tableau III.9). On note que c'est la nuance STi qui présente la fraction d'austénite la plus élevée à haute température avec presque 30% lors du 1er cycle. La fraction d'austénite est plus faible dans les autres nuances, environ 15% pour les nuances R0,05 et R0,1 et inférieure à 10% dans la nuance NonR. Ces fractions diminuent significativement lors du 2ème cycle (valeurs entre parenthèses), probablement à cause d'un effet de décarburation comme nous le verrons par la suite.

	R0,1	**R0,05**	**STi**	**NonR**
$E_{\alpha\rightarrow\gamma}$ ($J.g^{-1}$)	1,8 (1,2)	2,2 (1,1)	3,7 (1,4)	1,1 (0,2)
Fraction d'austénite	14% (9%)	17% (8%)	28% (11%)	8% (2%)

Tableau III.9 : Enthalpies de transformation α→γ mesurées au chauffage et fraction d'austénite associée : 1er cycle (2ème cycle)

Dans les nuances STi et R0,05 (Figure III.13b), il est intéressant de noter la présence d'une « bosse » endothermique entre 1200°C et 1300°C qui peut être le signe d'une transformation γ→δ et d'un retour du matériau dans un état ferritique. L'apparition d'un pic associé à la ferrite δ a déjà été évoquée par Raju *et al.* [30] sur un acier 9%Cr-1%Mo. Ce phénomène thermique est également visible dans une moindre mesure pour la nuance NonR à 1150°C et dans la nuance R0,1 à environ 1250°C.

Lors du refroidissement, on peut signaler sur la Figure III.13d la présence d'un pic exothermique à environ 300°C pour les nuances STi et R0,05, signe de la transformation γ→M (Martensite). Ceci souligne la vitesse critique de trempe très faible de ces 2 nuances où même avec le four coupé ($V_{ref} \approx 0{,}5°C.s^{-1}$), on constate la formation de martensite. Pour les nuances NonR et R0,1, ce pic n'est pas clairement visible bien que de la martensite ait également été observée dans ces nuances. En revanche, la nuance R0,1 montre une bosse exothermique à 750°C (Figure III.13c), signature de la transformation inverse γ→α. Cette bosse est difficile à observer dans le cas de la nuance NonR, probablement à cause de la faible fraction d'austénite transformée.

Les micrographies optiques des nuances après les essais de calorimétrie concordent avec les caractérisations EBSD sur les échantillons recuits de façon isothermes à 1300°C. Concernant la nuance R0,1, la microstructure fine et étirée sur la Figure III.14b est très similaire à l'état de réception. Dans cette dernière, on remarque néanmoins la présence de quelques grains recristallisés, qui peuvent être issus d'une recristallisation très locale au vu de la température plus élevée atteinte en calorimétrie (1400°C) que lors des recuits isothermes. De même, on retrouve une population bimodale avec des grains anormaux pour la nuance R0,05 (Figure III.14c) et une distribution homogène de grains équiaxes dans le cas de la nuance STi (Figure III.14d). Il est d'ailleurs intéressant de mentionner qu'aucun pic exothermique n'a pu être associé à ces évolutions microstructurales pendant le chauffage, laissant penser qu'elles se sont effectuées de manière progressive au cours du cycle thermique et non subitement à une température donnée. Ceci est cohérent avec le phénomène de restauration évoqué précédemment.

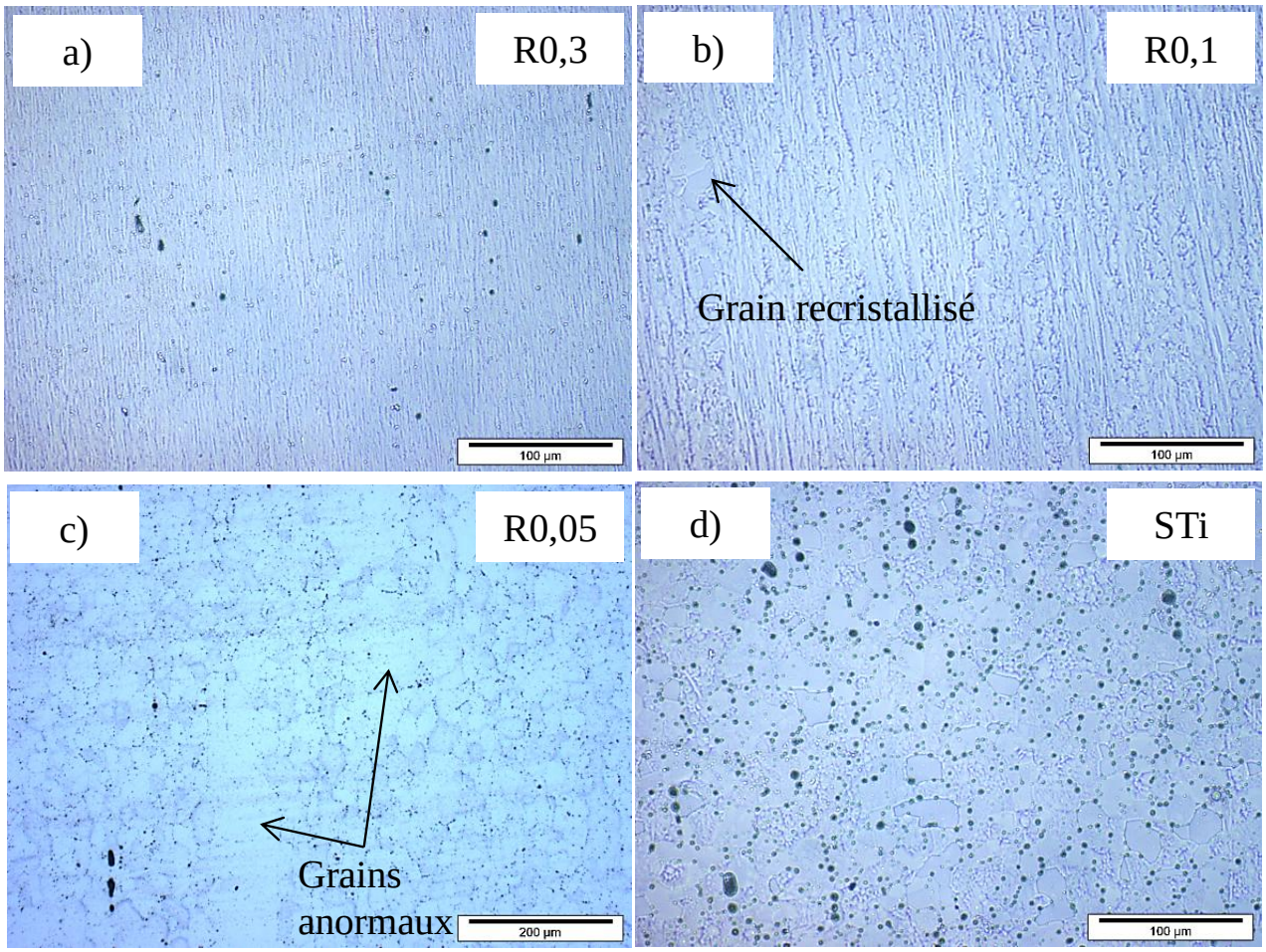


Figure III.14 : Micrographie optique des échantillons a) R0,3, b) R0,1, c) R0,05 et d) STi après l'essai de calorimétrie

4.2 Transformation de phases partielle dans les ODS ferritiques

En fonction de la composition chimique, plusieurs raisons peuvent expliquer la présence d'un domaine biphasé α+γ dans les aciers ODS ferritiques. La teneur de 14% en chrome dans ces aciers assure en théorie, selon le diagramme de phases fer-chrome, l'existence d'un domaine totalement ferritique. Néanmoins, l'ajout d'éléments d'alliages gammagènes peut modifier cet équilibre. Dans notre cas, l'augmentation des concentrations en carbone et en azote (environ 300 et 400 ppm respectivement) due à la pollution introduite pendant le broyage est susceptible de jouer un rôle majeur. En effet, le taux de carbone dans les aciers ODS est en théorie plus faible, autour de 0,01% (100 ppm) [31][32] et la concentration en azote est très faible. Dans les aciers, ces 2 éléments chimiques sont connus pour être fortement gammagènes et promouvoir l'occurrence de la transformation austénitique [33]. Ainsi, Tanno et al. [34] montrent qu'une concentration en carbone de 0,13% (bien supérieure à notre cas) peut conduire à l'apparition d'une transformation de phases partielle pour des teneurs en chrome supérieures à 18% comme on peut le voir sur la Figure III.15.

On peut montrer que la formation de l'austénite est en réalité directement liée à la concentration en titane. Dans la majorité des études sur les ODS ferritiques, une pollution aux éléments légers est observée après broyage et ne conduit pas nécessairement à l'apparition d'un domaine biphasé. La raison à cela est que l'influence du carbone et de l'azote sur la stabilité de la phase austénitique est fortement dépendante

de la concentration en titane dans le matériau, comme l'a déjà observé Dadé dans des nuances consolidées par CIC [23]. Dans les nuances conventionnelles (R0,3 et R0,2), la concentration de titane en excès qui ne participe pas à la formation des pyrochlores (environ 60% de la concentration initiale) est suffisante pour former des précipités avec les éléments légers (l'oxygène en excès, le carbone et l'azote) qui sont en concentration plus faible. En revanche, pour les nuances moins renforcées, la concentration de titane en excès est moins importante tandis que celles des éléments légers reste globalement constante. L'affinité préférentielle du titane avec l'oxygène conduit alors à la formation d'oxydes variés Ti_xO_y et le carbone et l'azote demeurent majoritairement en solution solide faute de titane disponible. La boucle d'austénitisation γ est alors décalée vers des concentrations en chrome plus importantes, expliquant la transformation austénitique observée dans les nuances moins renforcées, ainsi que les zones martensitiques après refroidissement. Le Tableau III.9 confirme ce raisonnement et montre bien l'augmentation de la fraction d'austénite avec la diminution de la concentration en titane. La fraction d'austénite plus faible dans la nuance NonR bien que celle-ci ne contiennent pas de titane peut s'expliquer par le fait qu'elle n'a pas été broyée et présente ainsi une pollution en éléments légers très faible.

On peut également, sur la base de ce raisonnement, expliquer de manière qualitative pourquoi les fractions de martensite observées par EBSD diminuent lors de l'augmentation du temps de recuit à une température donnée (Figure III.6 et Figure III.7). A cause d'une pression partielle en carbone P_C et en azote P_N plus faible dans l'atmosphère sous balayage d'hélium (où P_C et P_N sont supposées nulles) que dans le matériau, la diffusion de ces deux éléments s'effectue du cœur du matériau vers l'interface. En considérant que les coefficients de diffusion du carbone et de l'azote dans le fer α à 1150°C sont respectivement de $3{,}3.10^{-9}$ $m^{-2}.s^{-1}$ et de $9{,}7.10^{-10}$ $m^{-2}.s^{-1}$ [35], il faut environ 20 min au carbone et 30 min à l'azote pour parcourir une distance de 1mm, soit l'épaisseur moyenne de nos échantillons. On assiste donc à une diminution de la concentration de ces deux éléments dans le matériau au cours du temps, et donc à une disparition progressive de l'austénite, rendue plus instable. Il en découle une disparation des zones martensitiques après trempe avec l'augmentation du temps de recuit.

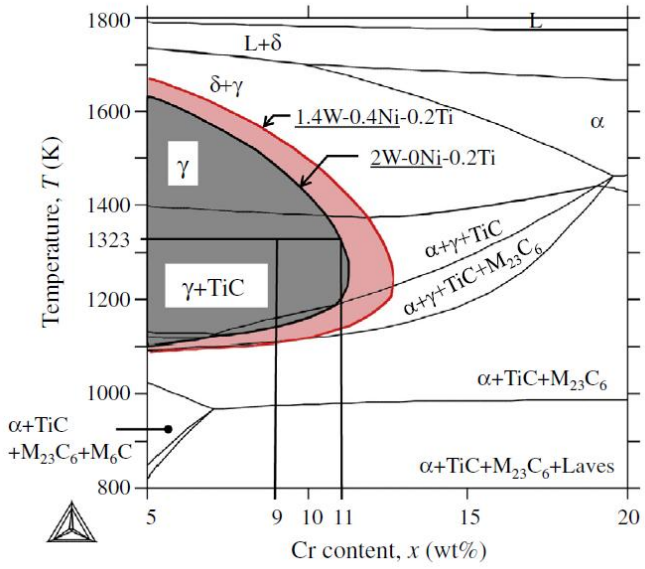


Figure III.15 : Diagramme fer-chrome avec la boucle γ pour une nuance Fe-0,13C-xCr enrichie 2W-0Ni-0,2Ti (gris) et 1,4W-0,4Ni-0,2Ti (rouge) [34]

On peut donc rappeler les principaux résultats obtenus grâce aux analyses thermiques :

- Aucune recristallisation n'est observée dans les nuances R0,1, R0,2 et R0,3 entre 20°C et 1400°C.
- La diminution de la concentration en titane dans les nuances moins renforcées associée à la pollution en carbone et en azote conduit à l'apparition d'un domaine biphasé α→γ entre 850°C et 1250°C.
- Dans ces nuances moins renforcées, un retour du matériau à l'état 100% ferritique est observé à des températures supérieures à 1250°C.
- Dans les nuances conventionnelles R0,2 et R0,3, la concentration plus élevée en titane permet de piéger le carbone et l'azote par la formation de phase TiC et TiN et d'empêcher la transformation austénitique.

5. Mécanismes d'évolutions microstructurales

5.1 Croissance des grains dans la nuance NonR

Les recuits à 1300°C sur la nuance NonR nous ont permis de mesurer l'évolution de la taille des grains pour différents temps (Tableau III.5) dans le cas d'une croissance sans particules et sans énergie stockée (densité de dislocations faible < 10^{13} m^{-2}). A partir de ces résultats, on peut proposer une loi de croissance de grains dont les paramètres principaux seront réutilisés par la suite pour les autres nuances. Comme mentionné dans le Chapitre 1, la croissance d'un ensemble de grains de rayon moyen $\overline{R}$ peut-être décrit selon l'Eq. (III.2) :

$$\frac{d\bar{R}}{dt} = \bar{M} \times \frac{\bar{\gamma}}{\beta \bar{R}} \qquad \text{(III.2)}$$

Avec $\bar{M}$ la mobilité moyenne dépendant de la température et de l'énergie d'activation (Q = 174 $kJ.mol^{-1}$ dans le fer α), $\bar{\gamma}$ l'énergie d'interface moyenne (0,79 $J.m^{-2}$ si on considère uniquement des joints de grains fortement désorientés) et β un coefficient géométrique dépendant de l'environnement des grains (Chapitre I). La valeur de β est fixée à 4 et correspond à celle proposée initialement par Hillert [36] et reprise par Humphreys [37], Razzak *et al.* [38] et Agnoli *et al* [39] pour décrire la croissance d'un ensemble de grains. Pour rappel, dans le cas de l'approximation du grain sphérique individuel de Burke et Turnbull, on a β = ½. Sur la Figure III.16, on montre que les premiers stades de la croissance peuvent être décrits par une loi comme celle de l'Eq. (III.2) avec M = 1.10^{-11} $m^4.J^{-1}.s^{-1}$. Cette valeur a été ajustée à partir des résultats expérimentaux puisqu'il n'existe pas à notre connaissance de valeurs disponibles dans la littérature pour nos nuances. Néanmoins, des valeurs du même ordre de grandeur ont été trouvées dans des aciers ferritiques ODS à 20%Cr [40] et bainitiques à 2,25%Cr [41]. Après 6 min (360 sec), il apparaît clairement que les points expérimentaux divergent de la courbe théorique (en pointillé) et que la vitesse de croissance ne suit plus la loi de l'Eq. (III.2). Il a alors été nécessaire d'ajouter une pression d'épinglage $P_{épin}$ de $3{,}4.10^{-3}$ MPa pour pouvoir décrire l'évolution de la taille des grains aux temps longs. Cette pression d'épinglage est très faible comparée à celle exercée par les nanoparticules dans les nuances ODS (> 2MPa), néanmoins elle suffit à freiner la croissance des grains lorsque ceux-ci atteignent des tailles importantes et que la pression motrice capillaire diminue fortement. La nouvelle loi qui prend en compte ce phénomène d'épinglage s'exprime alors par :

$$\frac{d\bar{R}}{dt} = \bar{M} \times \left(\frac{\bar{\gamma}}{\beta \bar{R}} - P_{éping} \right) \qquad \text{(III.3)}$$

Plusieurs hypothèses peuvent expliquer l'existence de cette pression qui retarde la croissance des grains. La première est que malgré la faible pollution présente dans cette nuance, notre matériau n'est pas pur et il est possible que des inclusions interagissent avec les joints de grains et les épinglent. En fonction de l'emplacement et de la densité de ces inclusions, cette pression peut s'exprimer soit par la conventionnelle pression de Zener soit par des termes plus spécifiques si les inclusions sont localisées sur les points triples et quadruples (voir les travaux de Bréchet et Militzer [42]). La seconde hypothèse est que certains éléments en solution solide (principalement le tungstène) sont drainés par les joints de grains et ralentissent le mouvement de ces derniers. Dans ce cas, il est alors plutôt d'usage de considérer une mobilité apparente M' inférieure à la mobilité M (paragraphe 2.1.4 du Chapitre I) plutôt qu'une pression d'épinglage. Cependant, ce phénomène est moins probable puisque la mobilité des joints de grains à haute température est telle que les atomes en solution se désolidarisent de l'interface [41].

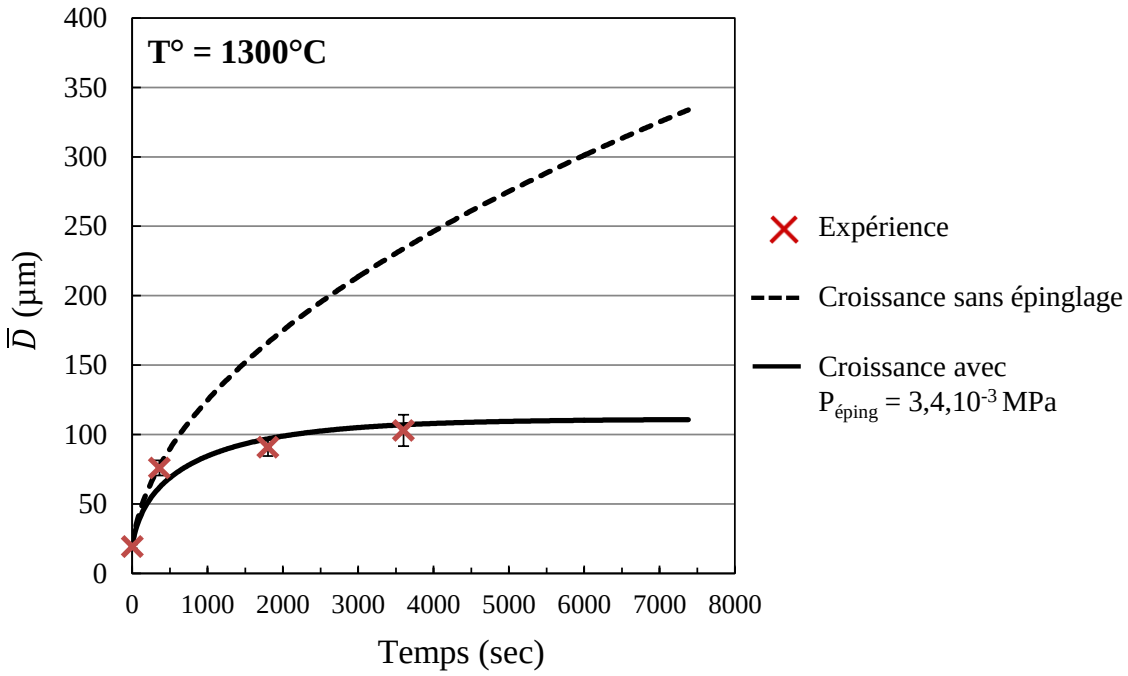


Figure III.16 : Modélisation en champ moyen de la croissance normale dans la nuance NonR à 1300°C

Il est donc possible de décrire l'évolution de la taille moyenne des grains dans la nuance NonR à l'aide d'une équation analytique et nous avons pu estimer la valeur de la mobilité des joints de grains, qui s'avère être dans les ordres de grandeur de celles trouvées dans la littérature. Néanmoins, pour pouvoir décrire correctement la croissance des grains pour les temps longs, il est nécessaire d'introduire un terme d'épinglage des joints de grains, dont l'origine est attribuée à la présence d'impuretés dans le matériau.

5.2 Compétition entre pressions motrice et retardatrice dans les nuances ODS

Comme nous l'avons évoqué dans le Chapitre I, les évolutions microstructurales dans les nuances ODS sont intiment liées à la compétition entre l'énergie stockée introduite par déformation plastique, la courbure des joints de grains et l'épinglage par les nanoparticules. Ainsi, les pressions associées à ces 3

phénomènes ont été quantifiées pour chacune des nuances à l'état de réception et dans l'état recuit 1h à 1300°C et sont présentées sur la Figure III.17. La pression motrice est calculée à partir de la densité de GND et la pression capillaire à partir de la taille de grains (en prenant β = 4, Eq. III.2), toutes deux mesurées par EBSD (paragraphe 2.2). La pression de Zener est calculée à partir du rayon moyen et de la fraction volumique de nanoparticules mesurée par DNPA.

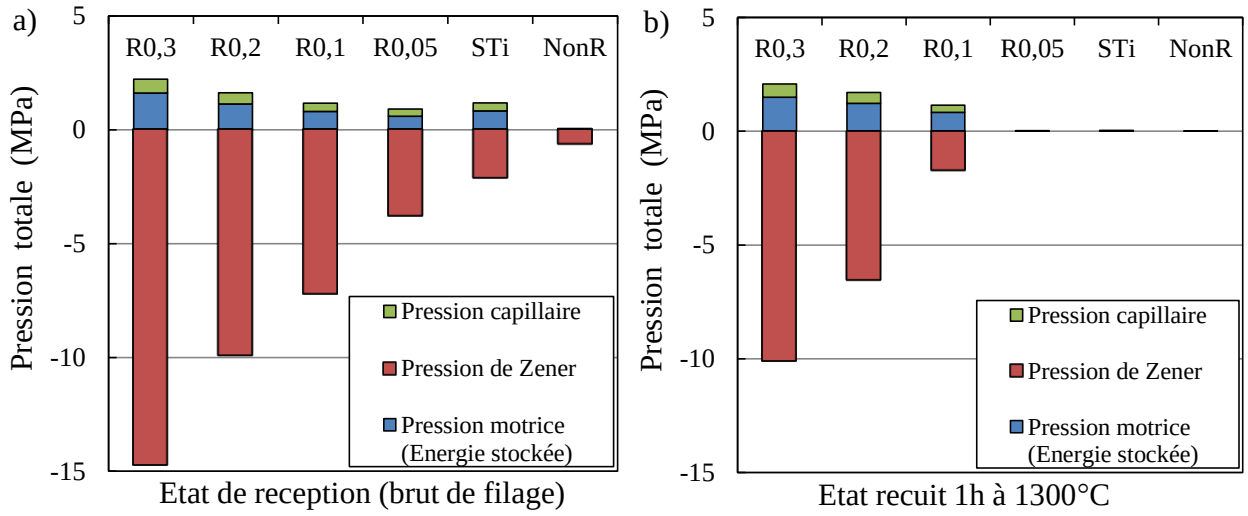


Figure III.17 : Bilan des pressions dans les différentes nuances a) à l'état de réception et b) après un recuit d'1h à 1300°C

Il apparaît ici clairement que dans l'état de réception, toutes les nuances renforcées montrent une force d'épinglage bien supérieure aux forces motrices. Néanmoins, à 1300°C, la coalescence des nano-phases dans les nuances STi et R0,05 (qui commence même à 1150°C dans la nuance R0,05 comme la DNPA a pu le montrer) réduit considérablement la pression de Zener qui devient négligeable ce qui conduit à la croissance des sous-grains et à la restauration des microstructures. A l'inverse, les 3 nuances les plus renforcées présentent toujours une pression de Zener supérieure aux forces motrices à 1300°C compte tenu de la présence des phases pyrochlores ($Y_2Ti_2O_7$), ce qui explique leur stabilité thermique.

5.3 Restauration dans la nuance STi

Comme nous l'avons montré, la nuance STi ne présente pas d'évolution microstructurale à 1150°C (hormis l'apparition de quelques zones martensitiques) mais montre une croissance des sous-grains et une chute de la densité de GND à 1300°C (Figure III.7d rappelée en Figure III.18a), signe d'une restauration. Cette restauration s'effectue de manière particulièrement homogène avec une faible dispersion de la taille des sous-grains autour de la valeur moyenne (Figure III.18b). La DNPA nous a permis d'associer cette croissance à une coalescence importante des nanoparticules, qui ne sont plus détectées après 1h à 1300°C (Figure III.9). La cartographie EBSD nous permet d'identifier la présence de grosses particules micrométriques qui, majoritairement, épinglent les joints de grains. On s'est proposé de modéliser la croissance des sous-grains dans cette nuance à 1300°C afin de voir si le modèle de croissance utilisé pour la nuance non renforcée était valide. Cependant, on ne connaît pas les évolutions de la fraction volumique, du rayon et de la nature chimique des particules au cours du recuit. On peut donc vérifier la validité du modèle uniquement en calculant la taille de grains critique à un temps donné. En supposant que

l'épinglage par les grosses particules s'exprime par la pression de Zener, le rayon critique (à l'équilibre) moyen des grains est défini tel que :

$$\frac{\bar{\gamma}}{\beta \bar{R}_{cr}} = \frac{3\bar{\gamma}F_v}{2r} \qquad \text{(III.4)}$$

Avec β = 4, on obtient :

$$\bar{R}_{cr} = \frac{r}{6F_v} \qquad \text{(III.5)}$$

Comme nous l'avons mentionné dans le paragraphe 5.1, dans le cas où tous les points triples et quadruples sont épinglés par des particules, on peut décrire la pression d'épinglage par un formalisme plus adapté que celui de Zener [42][6]. La pression d'épinglage s'en trouve alors plus élevée. Néanmoins, dans le cas présent, cette condition n'est pas respectée comme on peut le voir sur la Figure III.18a. C'est pourquoi on se conforme à la relation de Zener.

Sur la cartographie EBSD de l'état recuit 1h à 1300°C (Figure III.18a), les particules présentent un rayon moyen d'environ 1µm et une fraction surfacique F_s de 3,4%. En supposant que la distribution des particules est homogène et que la coupe 2D constitue une « tranche » représentative du volume, on peut supposer que la fraction surfacique est égale à la fraction volumique. On obtient alors un rayon critique des grains de 4,9 µm, soit un diamètre critique de 9,8 µm. Cette valeur est remarquablement proche de la valeur mesurée expérimentalement qui est de 9,3 µm (Figure III.18b).

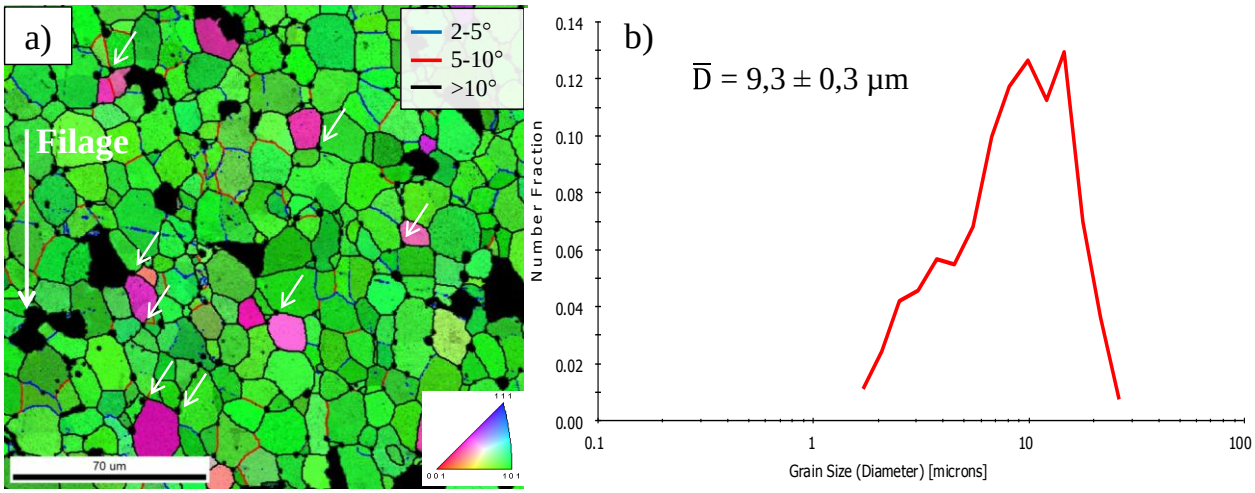


Figure III.18 : a) Cartographie IPF et des joints de grains et b) distribution de la taille des sous-grains dans la nuance STi après 1h à 1300°C

L'accentuation de la fibre α peut s'expliquer par la croissance des plus gros grains ou sous-grains de la microstructure filée (orientés selon la fibre α) aux dépens des plus petits orientés différemment. La présence des grains d'orientation <114>//DF (grains roses) est plus difficile à expliquer. Il est possible que les grains de cette orientation présentent une énergie stockée légèrement plus faible après filage et que lors de la restauration, la pression motrice induite par cette différence d'énergie leurs permette de croître sans être consommés par les grains de la fibre α. Cependant, la fraction de grains d'orientation <114>//DF dans la microstructure filée est trop faible pour que nous puissions tirer une valeur fiable de l'énergie stockée.

Pour obtenir une valeur fiable, des mesures d'énergie stockée selon cette composante par diffraction des rayons X ou des neutrons pourraient être à envisager.

On pourrait également envisager l'existence de joints spéciaux entre ces grains roses et les grains de la fibre α qui présenteraient soit une mobilité plus élevée soit une énergie d'interface faible qui engendrerait un épinglage moins important, la pression d'épinglage étant proportionnelle à γ. L'analyse EBSD a permis de mesurer qu'il s'agit de HAGB avec des désorientations comprises entre 35° et 65° mais aucun axe de désorientation spécifique n'a pu être identifié.

Enfin, une autre hypothèse serait un épinglage plus faible des interfaces de ces grains du fait d'une absence de particules. Néanmoins, on observe sur la Figure III.18a la présence de particules au niveau des joints des grains d'orientation <114>//DF (flèches blanches), ce qui rend cette hypothèse peu probable. Il ne ressort donc pas à ce stade d'explications claires pour comprendre la présence de ces grains après restauration de la microstructure.

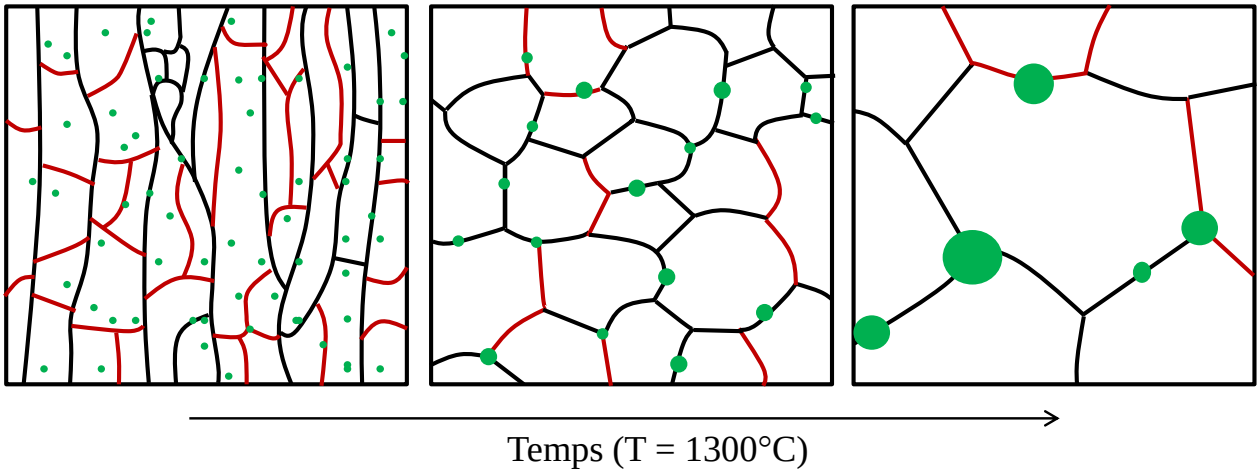


Figure III.19 : Schéma de l'évolution de la microstructure au cours du temps dans la nuance STi à 1300°C (HAGB en noir et LAGB en rouge et particules en vert)

Ainsi, il a été confirmé par une loi analytique que le mécanisme dans la nuance STi est une croissance des sous-grains régit par la coalescence des particules. La pression motrice principale est essentiellement capillaire puisqu'on observe la disparition des petits grains au profit des plus gros mais la contribution de gradients d'énergie stockée entre les grains peut également être envisagée. L'évolution de la microstructure est présentée de manière schématique sur la Figure III.19. La taille critique des grains (ou sous-grains) n'est pas constante et augmente au fur et à mesure que les particules, initialement nanométriques, coalescent. Cela explique la taille plus grosse des grains après plusieurs heures de recuit à 1300°C (Figure III.7f). L'utilisation de la relation de Zener pour modéliser l'ancrage exercé par ces grosses particules apparaît adaptée.

5.4 Restauration et croissance anormale dans la nuance R0,05

Dès 1150°C, après plusieurs heures de recuit, la nuance R0,05 montre une coalescence rapide des nanoparticules et la formation de particules micrométriques aux joints de grains (Figure III.20a). Cela permet une restauration de la microstructure par un mécanisme de croissance normale des sous-grains, similaire à ce qui est observé à 1300°C dans la nuance STi. De même, la taille moyenne des grains de 9,5 µm est très proche de la nuance STi (9,3 µm) mais la dispersion σ autour de la valeur moyenne est

plus importante (6,4 µm au lieu de 5,2 µm sur la Figure III.18b). Cependant, lorsque qu'on augmente la température à 1300°C, la nuance R0,05 montre le développement de grains anormaux orientés selon la fibre α et également selon la direction <112>//DF, ce qui n'est pas observé dans la nuance STi qui montre une croissance normale des sous-grains. La microstructure après croissance anormale (distribution des sous-joints et des joints), déjà présentée au début de ce chapitre sous forme de cartographie IPF (Figure III.6d), est visible sur la Figure III.21.

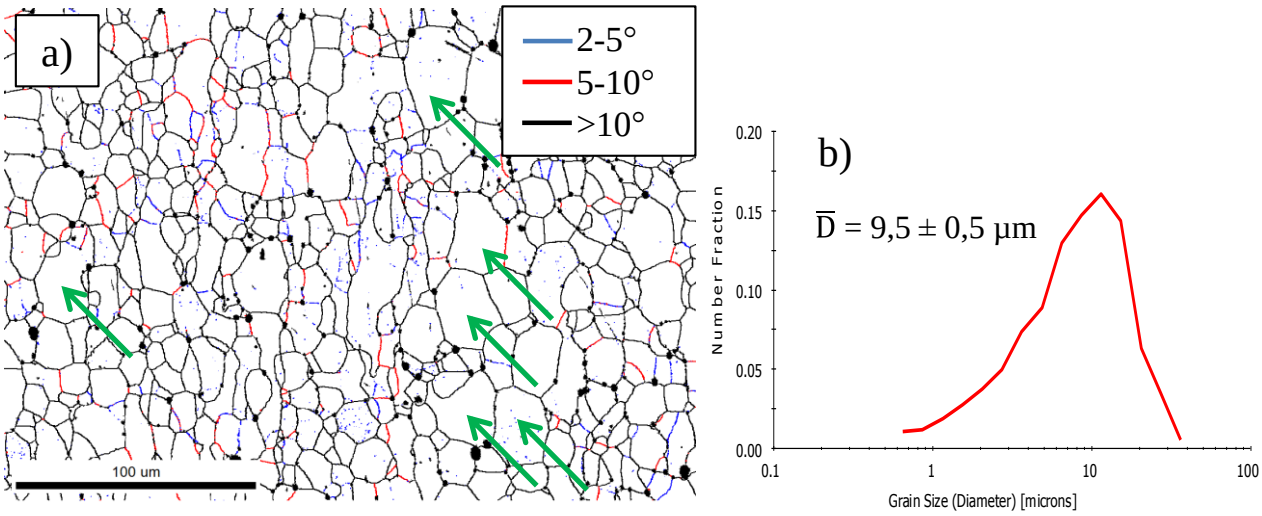


Figure III.20 : a) Cartographie des joints de grains suite au recuit de 10h à 1150°C et b) distribution en nombre de la taille des sous-grains associée, les flèches montrent les grains de diamètre équivalent supérieur à 25 µm ($R > 2{,}5\overline{R}$ paragraphe 5.4.3)

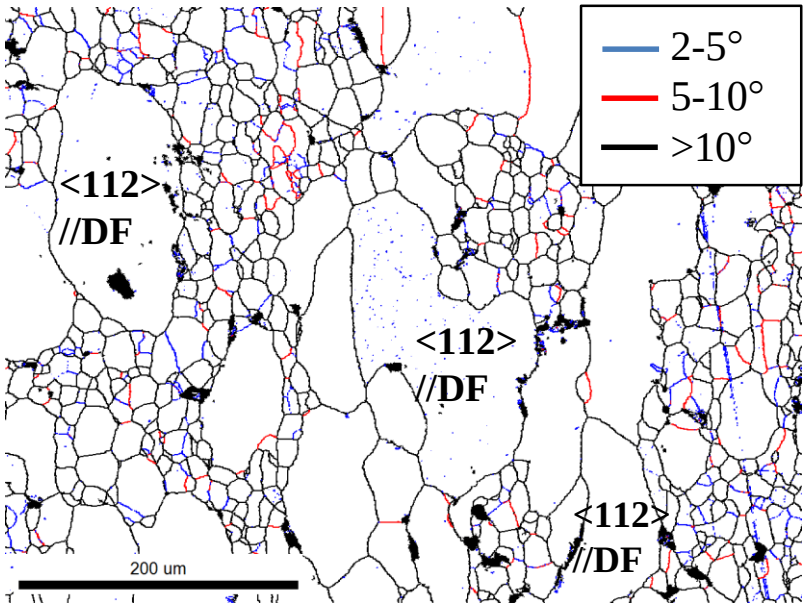


Figure III.21 : Cartographie des joints de grains suite au recuit d'1h à 1300°C

5.4.1 Modèle de croissance anormale utilisé

Pour comprendre le déclenchement de la croissance anormale, le modèle de croissance d'un ensemble de grains utilisé précédemment (pour la nuance NonR et STi) n'est pas suffisant et il est nécessaire de prendre en compte, en parallèle de la distribution de particules, l'existence d'hétérogénéités dans la

microstructure en terme de taille de grains, d'énergie d'interface et de mobilité des joints de grains. Ici encore, le peu d'information dont nous disposons concernant l'évolution des nanoparticules vers une population de particules micrométriques limite notre capacité à modéliser ce phénomène.

Néanmoins, sur la base du modèle de Humphreys [43] qui décrit les conditions de stabilité et de croissance d'une microstructure cellulaire restaurée (constituée de sous-grains) à haute énergie de fautes d'empilement (ordre de grandeur $\gamma_{SFE} \approx 100$ mJ.m^{-2} [6]) et en présence de particules, on peut émettre des hypothèses pour expliquer la présence de ces grains anormaux. Précisons néanmoins que le nombre de grains anormaux doit être faible devant le nombre de grains total pour assurer la validité de ce modèle. On peut considérer ici que c'est le cas puisque les grains anormaux sont majoritairement entourés de petits grains (Figure III.21a). De plus, ce modèle nécessite que les sous-grains soient restaurés et donc sans énergie stockée. L'évolution du système est alors uniquement dictée par les interfaces. Cette approximation apparaît raisonnable dans le cas de la nuance R0,05 qui a déjà fortement restauré pendant la consolidation à chaud et lors de la croissance normale des sous-grains, avant le déclenchement de la croissance anormale. En revanche, une microstructure déformée à froid comme nous en verrons dans le Chapitre IV et qui présente une énergie stockée importante à l'intérieur des cellules de dislocations ne répond pas aux critères d'utilisation de ce modèle. Notons que le modèle de Humphreys a été repris par Feppon et Hutchinson [44] pour prendre en compte les hétérogénéités d'environnement de différents grains anormaux à une échelle plus locale. Par la suite, on appellera « grain individuel », un grain de la microstructure initiale (avant croissance anormale) qui grossira ou non de façon anormale pendant un recuit. La vitesse de croissance d'un grain ou d'un sous-grain individuel de rayon R au sein d'un ensemble de grains de rayon moyen $\bar{R}$ en présence de particules de seconde phase est telle que [43]:

$$\frac{dR}{dt} = M.\left(\frac{\bar{\gamma}}{\bar{R}} - \frac{\gamma}{R} - \frac{3F_v\gamma}{2r}\right) \quad \text{(III.6)}$$

Avec M la mobilité du grain individuel et γ son énergie d'interface. De plus la condition pour le déclenchement de la croissance anormale est que :

$$\bar{R}\frac{dR}{dt} - R\frac{d\bar{R}}{dt} > 0 \quad \text{(III.7)}$$

En reprenant les Eq.(III.3) et (III.6), on obtient alors l'inégalité :

$$\bar{R}M\left(\frac{\bar{\gamma}}{\bar{R}} - \frac{\gamma}{R} - \frac{3F_v\gamma}{2r}\right) - R\bar{M}\bar{\gamma} \times \left(\frac{1}{4\bar{R}} - \frac{3F_v}{2r}\right) > 0 \quad \text{(III.8)}$$

En ré-exprimant cette inégalité, Humphreys montre qu'on obtient une équation du second degré :

$$Y = (4Z - 1)X^2 + 4Q(1 - GZ)X - 4QG \quad \text{(III.9)}$$

Ou Z est une variable qui dépend du ratio F_v/r, X est une variable et Q et G sont des constantes telles que :

$$X = \frac{R}{\bar{R}} \; ; \; Q = \frac{M}{\bar{M}} \; ; \; G = \frac{\gamma}{\bar{\gamma}} \quad \text{(III.10)}$$

Les solutions de l'équation Y = 0 sont X_{min} et X_{max} qui définissent respectivement les ratios de tailles minimum et maximum qu'un grain doit avoir pour croître anormalement dans la microstructure. Puisque dans notre cas, on s'intéresse à comprendre le déclenchement de la croissance anormale, notre intérêt se portera donc sur la valeur de X_{min}.

5.4.2 Etude de 3 configurations modèles

Sur la Figure III.21a, on remarque que les grains anormaux sont en grande partie séparés du reste de la microstructure par des joints de grains fortement désorientés. On peut alors considérer trois environnements locaux différents pour initier la croissance anormale d'un grain individuel :

i. Le grain individuel est fortement désorienté avec ses premiers voisins qui sont eux-mêmes fortement désorientés avec la matrice. *Q* et *G* sont alors égaux à 1 et la condition de croissance anormale dépend uniquement de *X* et de *Z*.
ii. Le grain individuel est fortement désorienté avec ses premiers voisins mais tous les sous-grains de la matrice sont faiblement désorientés entre eux (5° à 10°). Les valeurs moyennes de Q et G sont présentées dans le Tableau III.10.
iii. Le grain individuel est fortement désorienté avec ses premiers voisins mais tous les sous-grains de la matrice sont faiblement désorientés entre eux (2° à 5°). Les valeurs moyennes de Q et G sont présentées dans le Tableau III.10.

Ces trois environnements sont représentés schématiquement sur la Figure III.22. En ce qui concerne les particules, on les considère incohérentes et réparties de façon homogène dans la microstructure (condition d'utilisation de la relation de Zener). Précisons que les environnements ci-dessus sont théoriques et sont définis afin de comprendre plus aisément l'influence des différentes hétérogénéités microstructurales. En ce qui concerne la configuration *iii* notamment, il est peu probable de trouver un cas aussi extrême dans une microstructure cellulaire réelle.

Environnement	i. Joints de grains (>10°)	ii. Sous-joints (5°-10°)	iii. Sous-joints (2°-5°)
M ($m^4.J^{-1}.s^{-1}$)	1.10^{-11}	8.10^{-12}	1.10^{-12}
γ ($J.m^{-2}$)	0,79	0,75	0,55
Q	1	1,3	10
G	1	1,1	1,5

Tableau III.10 : Valeurs des constantes du modèle en fonction de l'environnement du grain individuel

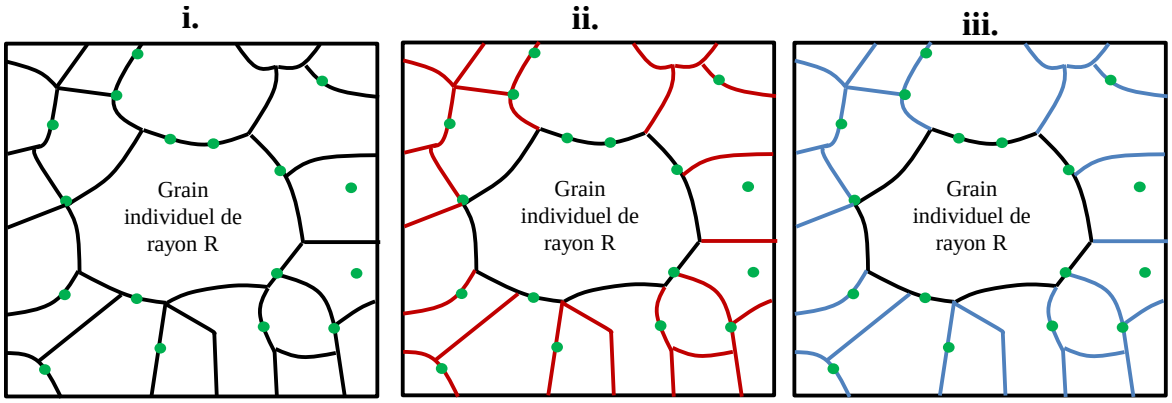


Figure III.22 : Représentation schématique des environnements *i*, *ii* et *iii*. HAGB en noir, LAGB 5°< θ < 10° en rouge, LAGB 2°< θ < 5° en bleu

Afin de connaître le rayon moyen $\bar{R}$ initial des grains ainsi que le ratio F_v/r de la distribution de particules, il faut connaître la microstructure avant le déclenchement de la croissance anormale. Comme nous l'avons dit précédemment, on fait l'approximation que cette microstructure est similaire à celle obtenue après un recuit de 10h à 1150°C sur cette même nuance (Figure III.20a) où l'on observe une croissance normale des sous-grains. L'histogramme de taille de grains (Figure III.20b) montre une taille moyenne des grains de 9,5 µm soit $\bar{R} = 4{,}75\ \mu m$. Par ailleurs, la population de particules micrométriques mesurées est telle que F_v/r = 0,04 µm^{-1} (F_v = 3% et r = 0,75 µm).

Considérons donc un grain individuel de rayon R dans la microstructure de la Figure III.20a. Les cinétiques de croissance anormale de ce grain individuel en fonction de X ($R/\bar{R}$) dans les 3 configurations du Tableau III.10 sont présentées sur la Figure III.23. Dans tous les cas, on considère que les grains normaux sont épinglés par les particules et ne subissent pas de croissance ($\bar{R}$ constant). Dans les cas des graphiques a), b) et c), on considère le ratio F_v/r de 0,04 µm^{-1} mesurée expérimentalement et dans le cas des graphiques d), e) et f), on considère une valeur légèrement plus importante de 0,06 µm^{-1} afin de visualiser l'influence de la population de particules sur la croissance anormale. Les différents cas de figure nous permettent d'identifier les paramètres qui favorisent la croissance anormale.

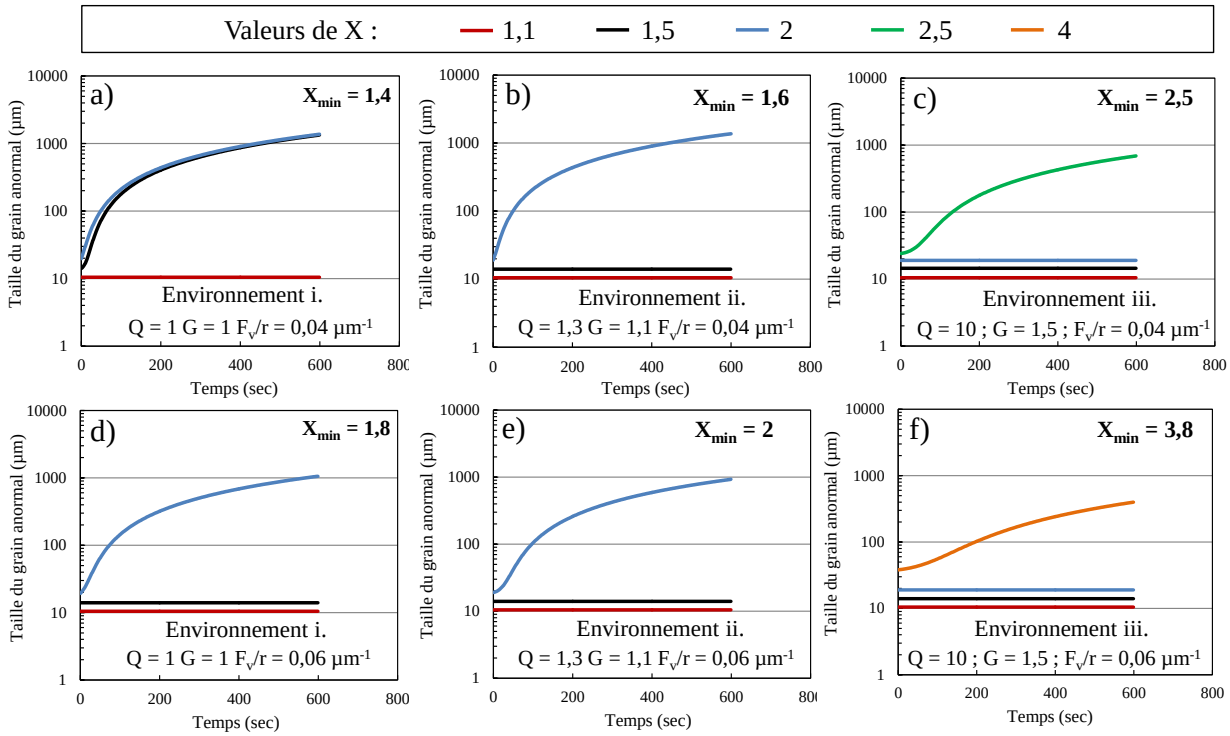


Figure III.23: Cinétique de croissance anormale d'un grain pour différente valeur de X dans les environnements a) i, b) ii, c) iii. pour une population de particules telle que F_v/r =0,04 µm^{-1} et dans les environnements d) i, e) ii, f) iii, pour une population de particules telle que F_v/r = 0,06µm^{-1}

On remarque tout d'abord que la taille initiale du grain individuel est déterminante : lorsque celle-ci est similaire à celle des grains qui l'entourent (cas où $R = 1{,}1\bar{R}$), il ne peut pas y avoir de croissance anormale dans aucune configuration (courbe rouge). Pour des valeurs supérieures de R, la taille initiale minimale dépend de l'environnement du grain. Plus celui-ci est entouré de joints de grains faiblement désorientés avec la matrice, plus la taille critique pour déclencher la croissance anormale augmente. En effet, on voit que dans l'environnement i. (Figure III.23a) il y aura croissance anormale dès que $R = 1{,}4\bar{R}$

tandis que dans l'environnement iii. (Figure III.23c), le grain doit avoir un rayon plus élevé de $R = 2{,}5$ pour croitre de manière anormale. Cela s'explique par le fait qu'il est plus couteux en énergie de faire croître une interface fortement désorientée (HAGB) aux dépens d'interfaces faiblement désorientées (LAGB). Ce phénomène est accentué par l'augmentation du ratio F_v/r qui traduit une augmentation de la pression d'épinglage. Dans le cas de l'environnement iii, la taille critique du grain individuel est alors égale à presque 4 fois la taille moyenne des grains environnants.

Il est important de mentionner que ce sont les populations de particules considérées (via le ratio F_v/r) qui dictent déclenchement de la croissance anormale. En effet, lorsque la pression d'épinglage est nulle, le déclenchement de la croissance anormale est impossible car les grains normaux peuvent croître librement et leur vitesse de croissance est plus élevée que celle d'éventuels grains isolés initialement plus gros (la condition de l'équation (III.7) n'est pas validée). A l'inverse lorsque la pression d'épinglage est élevée, la taille minimale initiale d'un grain pour qu'il puisse croître de façon anormale augmente considérablement, et tend vers l'infini si on considère les populations de nanoparticules présentent dans les cinq nuances ODS à l'état de réception.

5.4.3 Application du modèle aux microstructures expérimentales

Si l'on applique ces constats à nos microstructures expérimentales, on voit qu'un certain nombre de grains dans la microstructure initiale ont une taille supérieure à 25 µm (flèche verte sur la Figure III.20a) ce qui correspond à une valeur de X ($R/\bar{R}$) supérieur à 2,5, puisque la taille moyenne est uniquement de 9,5 µm. Selon le modèle et les résultats de la Figure III.23, ces grains peuvent tout à fait être sujet à de la croissance anormale quel que soit leur environnement. De plus, sur la microstructure expérimentale après croissance anormale (Figure III.21a), on peut remarquer que les zones à petits grains présentent de nombreux sous-joints désorientés de 2° à 10°. On peut soulever l'hypothèse que dans ces zones, la taille critique à atteindre pour qu'un grain puisse croître anormalement est plus élevée. Cela serait cohérent avec les prédictions du modèle et l'explication donnée dans le paragraphe ci-dessus où il est plus difficile pour un grain individuel de croître lorsqu'il est entouré de sous-grains faiblement désorientés avec la matrice (environnements ii et iii).

On peut tout de même relever que la taille des grains anormaux comprise entre 100 µm et 200 µm après 1h à 1300°C est bien inférieure à celle prédite par le modèle qui peut atteindre 1 mm après 600 secondes à 1300°C. Plusieurs raisons peuvent expliquer la taille plus faible des grains anormaux dans la microstructure expérimentale : (i) le recouvrement des grains anormaux entre eux, ce qui ralenti fortement leur croissance et fait que l'hypothèse selon laquelle le nombre de grains anormaux est petit devant le nombre de grains total devient fausse, (ii) une mauvaise estimation de la pression d'épinglage puisque celle-ci a été mesurée à partir de la microstructure initiale recuite 10h à 1150°C et (iii) un épinglage par les zones martensitiques (ou austénitiques à 1300°C) résiduelles.

Ce modèle ne permet néanmoins pas d'expliquer la croissance anormale préférentielle des grains d'orientation <112>//DF (grains roses) observée en EBSD et confirmée en DRX. L'explication proposée par Pimentel *et al*. [8] qui repose sur le principe d' « *orientation pinning* », bien que cohérente, n'est à notre sens pas suffisante dans le cas présent. En effet, on observe sur la microstructure de la Figure III.21 des grains (appartenant majoritairement à la fibre α) fortement désorientés avec leurs voisins dans les zones à petits grains. Il y a donc certains grains fortement désorientés qui croissent de manière anormale et d'autre non. Ce constat montre que la mobilité n'apparait pas comme étant le paramètre le plus influant sur la croissance anormale.

Une hypothèse possible serait une contribution de l'énergie stockée, que nous avons jugé négligeable jusqu'à maintenant, de par la forte restauration observée. Si les grains et sous-grains orientés <112>//DF dans la microstructure filée ont stocké moins d'énergie durant le filage, ils vont pouvoir croître préférentiellement par un mécanisme de type SIBM. Agnoli *et al.* [39] montrent qu'un tel mécanisme peut expliquer la présence d'une population de grains bimodale dans des alliages base nickel comme l'Inconel 718 en présence de particules δ (Ni_3Nb). Les grains anormaux sont alors considérés comme étant originaires d'une recristallisation primaire « sélective ».

Dans le cadre de cette hypothèse, les énergies stockées dans les grains de différentes composantes de textures ont été calculées par EBSD et sont présentées sur la Figure III.24. Il ressort que les grains orientés selon la fibre α ont stocké plus d'énergie pendant le filage, ce qui est cohérent puisque comme nous l'avons vu au début de ce chapitre (paragraphe 2.2.1, Figure III.5), ils présentent un nombre important de murs de dislocations (sous-joints) qui contribuent à l'énergie stockée. De plus, il apparaît en effet que les grains d'orientation <112>//DF ont une énergie stockée plus faible que la moyenne et environ deux fois plus faible que celle des grains de la fibre α. Cette différence d'énergie stockée donne lieu à une pression motrice d'environ 0,3 MPa (0,6 MPa - 0,3 MPa sur la Figure III.24) entre les grains <112>//DF et les grains de la fibre α. Cette différence de pression est bien trop faible devant la pression d'épinglage de 4MPa dans l'état brut de filage (Figure III.17a) pour permettre une recristallisation avant la coalescence des particules. En revanche lorsque les particules coalescent, il n'est pas exclu que cette faible pression motrice contribue à favoriser la croissance de ces grains <112>//DF (si la restauration des grains α n'a pas déjà eu lieu).

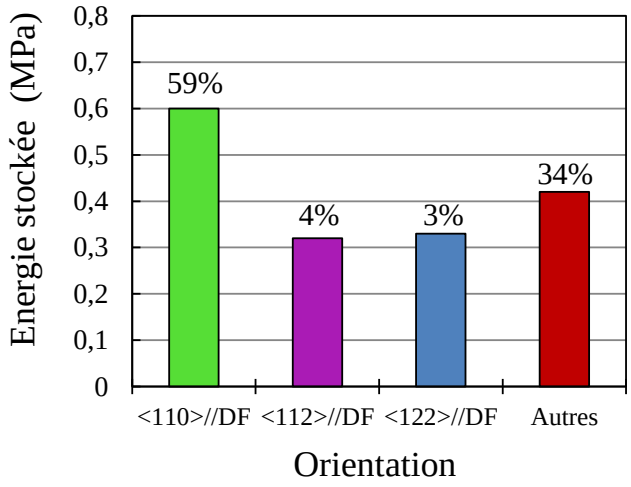


Figure III.24 : Energie stockée dans différentes composantes de texture (avec leur fraction correspondante) de la nuance R0,05 brute de filage

Notons tout de même que d'autres composantes de texture, comme la <122>//DF (grains en bleu clair), montrent également une énergie stockée plus faible que la moyenne et il n'en résulte pas pour autant une croissance de ces grains durant la restauration.

5.4.4 Conclusion sur la croissance anormale et comparaison avec la nuance STi

On peut conclure que le développement de la croissance anormale dans une microstructure cellulaire n'a pas une cause unique, mais peut dépendre de plusieurs paramètres parfois difficile à identifier. Au vu du modèle analytique présenté et des microstructures expérimentales, l'hétérogénéité de la taille des sous-grains couplée à la précipitation grossière aux joints de grains sont les deux facteurs les plus influant. Les

raisons qui gouvernent la croissance anormale de grains <112>//DF restent en revanche peu claires et plusieurs hypothèses peuvent être évoquées incluant des hétérogénéités de mobilités, d'énergies d'interfaces et/ou de l'énergie stockée. Des mécanismes complémentaires, non mentionnés ici, pourraient aussi être à envisager. Pour répondre à ces questions, une caractérisation multi-échelles pour évaluer l'évolution de la précipitation au cours du temps serait nécessaire. Le modèle thermodynamique développé par Razzak pour les aciers austénitiques [38] et repris par Sallez [45] dans les cas des ODS ferritiques permettrait notamment d'évaluer les conditions de déclenchement de la croissance anormale en prenant en compte l'évolution de la population de particules (précipitation et coalescence) et le type d'épinglage (Zener ou jonctions quadruples). Des modèles en champ complet pourraient aussi être utilisés pour considérer indépendamment l'environnement de chaque grain.

Par ailleurs, on peut s'interroger sur les raisons pour lesquelles la nuance STi ne montre pas de croissance anormale bien qu'elle restaure également. En effet, il apparaît que la taille des grains dans cette nuance reste particulièrement homogène avec une faible dispersion comme nous avons pu le montrer. Cela est probablement dû à la population de particules qui épingle les joints de grains de manière plus homogène que dans la nuance R0,05. Ainsi, dans la nuance STi, aucun grain n'atteint la taille critique nécessaire pour croître de façon anormale.

Conclusion sur l'influence du taux de renforts sur la stabilité des microstructures filées

Ce chapitre a permis d'étudier l'influence du taux de renforts sur la stabilité de nuances ODS après filage, sans déformation à froid. La caractérisation des microstructures et des états de précipitation suite à différents traitements thermiques nous a permis d'identifier l'existence d'un taux de renfort seuil. Les nuances les plus renforcées R0,3 ; R0,2 et R0,1 gardent la microstructure issue du filage même suite à des recuits à haute température (1300°C) et ne montrent ni restauration, ni recristallisation. Ceci est attribué à la présence de nanoparticules de type pyrochlore ($Y_2Ti_2O_7$) qui sont connues pour leur stabilité thermique remarquable. Ces observations ne sont pas surprenantes pour les nuances R0,3 et R0,2 qui présentent des taux de renforts conventionnels. Concernant la nuance R0,1, ce résultat était moins prévisible et il montre que même en diminuant sensiblement le taux de renforts, les microstructures restent figées du fait que les forces motrices et notamment l'énergie stockée après filage, sont trop faibles devant la pression d'épinglage exercée par les nanoparticules. Les 3 nuances R0,05 ; STi et NonR montrent quant à elles des comportements sensiblement différents, qui sont directement liés à la résistance à la coalescence plus faible des nanoparticules qui présentent des natures chimiques différentes (ou tout simplement à leur absence dans la nuance NonR). Ainsi, lors de recuit, les nuances STi et R0,05 montrent un restauration de la microstructure filée qui se traduit par une croissance des sous-grains et une accentuation de la texture de fibre α. La nuance R0,05 montre par ailleurs un phénomène de croissance anormale à haute température liée aux hétérogénéités microstructurales qui apparaissent au cours du recuit.

Il est également apparu que la composition chimique et notamment les teneurs en éléments légers (carbone, oxygène et azote) et en titane régissent les équilibres thermodynamiques dans le matériau. Lorsque la concentration en titane devient inférieure à un certain seuil, une transformation austénitique partielle est observée dans le matériau.

Bien que les nuances STi et R0,05 après restauration présentent une microstructure intéressante de par la morphologie équiaxe des grains, leurs propriétés mécaniques et leur résistance mécanique notamment (dureté < 150 HV) sont faibles pour les applications industrielles envisagées. Il est donc nécessaire de pouvoir faire recristalliser les nuances plus renforcées. Cela nécessite d'augmenter l'énergie stockée et donc la densité de dislocations dans le matériau, ce qu'on propose de faire dans le Chapitre IV en écrouissant les matériaux à froid selon différents chemins de déformation.

Bibliographie

[1] A. Karch, "Etudes des évolutions microstructurales lors de la déformation à chaud d'aciers ODS ferritiques," Thèse de doctorat, Mines Paris-Tech, 2015.

[2] L. Toualbi, "Optimisation de la gamme de fabrication de tubes en aciers renforcés par une dispersion d'oxydes (ODS) : compréhension des relations microstructure/propriétés mécaniques," Thèse de Doctorat, Mines ParisTech, 2012.

[3] N. Herve, "Fluage d 'aciers renforcés par dispersion nanométrique : caractérisation , modélisation et optimisation de la microstructure," Thèse de doctorat, Université Grenoble Alpes, 2015.

[4] M. Praud, F. Mompiou, J. Malaplate, D. Caillard, J. Garnier, A. Steckmeyer, and B. Fournier, "Study of the deformation mechanisms in a Fe-14% Cr ODS alloy," *J. Nucl. Mater.*, vol. 428, no. 1–3, pp. 90–97, 2012.

[5] M. Dadé, J. Malaplate, J. Garnier, F. De Geuser, N. Lochet, and A. Deschamps, "Influence of consolidation methods on the recrystallization kinetics of a Fe-14Cr based ODS steel," *J. Nucl. Mater.*, vol. 472, pp. 143–152, 2016.

[6] F. J. Humphreys and M. Hatherly, *Recrystallisation and Related Annealing Phenomena, Second Edition*, Elsevier. 2004.

[7] R. D. Doherty, D. A. Hughes, F. J. Humphreys, J. J. Jonas, D. Juul Jensen, M. E. Kassner, W. E. King, T. R. McNelley, H. J. McQueen, and A. D. Rollett, "Current issues in recrystallization: A review," *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 238, pp. 219–274, 1997.

[8] G. Pimentel, I. Toda-Caraballo, and C. Capdevila, "Experimental and Computational Analysis of Abnormal Grain Growth," *Mater. Sci. Technol.*, vol. 31, no. September, pp. 1618–1626, 2015.

[9] J. Ribis, M. Lescoat, S. Y. Zhong, M. Mathon, and Y. De Carlan, "Influence of the low interfacial density energy on the coarsening resistivity of the nano-oxide particles in Ti-added ODS material," *J. Nucl. Mater.*, vol. 442, pp. 101–105, 2013.

[10] S. Y. Zhong, J. Ribis, T. Baudin, N. Lochet, Y. de Carlan, V. Klosek, and M. H. Mathon, "The effect of Ti/Y ratio on the recrystallisation behaviour of Fe–14%Cr oxide dispersion-strengthened alloys," *J. Nucl. Mater.*, vol. 452, no. 1–3, pp. 359–363, Sep. 2014.

[11] M. Lescoat, J. Ribis, Y. Chen, E. A. Marquis, E. Bordas, and P. Trocellier, "Radiation-induced Ostwald ripening in oxide dispersion strengthened ferritic steels irradiated at high ion dose," *Acta Mater.*, vol. 78, pp. 328–340, 2014.

[12] S.-Y. Zong, "Etude des évolutions microstructurales à haute température en fonction des teneurs initiales en Y, Ti et O et de leur incidence sur les hétérogénités de déformation dans les aciers ODS Fe-14Cr-1W," Thèse de doctorat, Université Paris-Sud, 2012.

[13] X. Boulnat, "Fast high-temperature consolidation of ODS (ODS) steels : process, microstructure, precipitation, properties," Thèse de Doctorat, INSA de Lyon, 2014.

[14] H. Sakasegawa, L. Chaffron, F. Legendre, L. Boulanger, T. Cozzika, M. Brocq, and Y. de Carlan, "Correlation between chemical composition and size of very small oxide particles in the MA957 ODS ferritic alloy," *J. Nucl. Mater.*, vol. 384, no. 2, pp. 115–118, 2009.

[15] S. Ukai, T. Okuda, M. Fujiwara, S. Mizuta, H. Nakashima, O. D. S. Ferritic, and S. Claddings, "Characterization of High Temperature Creep Properties in Recrystallized 12Cr-ODS Ferritic Steel Claddings," *J. Nucl. Sci. Technol.*, vol. 3131, no. April 2017, 2012.

[16] M. L. Lescoat, "Etude du comportement des nano-renforts des matériaux ODS sous irradiation : approche analytique par des irradiations aux ions," Thèse de Doctorat, Université Lille I, 2013.

[17] M. K. Miller, D. T. Hoelzer, E. A. Kenik, and K. F. Russell, "Nanometer scale precipitation in ferritic MA/ODS alloy MA957," *J. Nucl. Mater.*, vol. 329–333, no. 2004, pp. 338–341, 2004.

[18] M. J. Alinger, G. R. Odette, and D. T. Hoelzer, "On the role of alloy composition and processing parameters in nanocluster formation and dispersion strengthening in nanostuctured ferritic alloys," *Acta Mater.*, vol. 57, pp. 392–406, 2009.

[19] J. Ribis, M. A. Thual, T. Guilbert, Y. de Carlan, and A. Legris, "Relaxation path of metastable nanoclusters in oxide dispersion strengthened materials," *J. Nucl. Mater.*, vol. 484, pp. 183–192, 2017.

[20] B. Rouxel, "Developpement d'aciers austénitiques avancés résistant au gonflement sous irradiation," Thèse de doctorat, Université de Lille, 2016.

[21] M. Klimiankou, R. Lindau, and a. Möslang, "Direct correlation between morphology of (Fe,Cr)23C6 precipitates and impact behavior of ODS steels," *J. Nucl. Mater.*, vol. 367–370 A, pp. 173–178, 2007.

[22] P. Olier, J. Malaplate, M. H. Mathon, D. Nunes, D. Hamon, L. Toualbi, Y. de Carlan, and L. Chaffron, "Chemical and microstructurale evolution on ODS Fe-14CrWTi steel during manufacturing stages," *J. Nucl. Mater.*, vol. 428, pp. 40–46, 2015.

[23] M. Dadé, "Plasticité d'alliages nanorenforcés pour le gainage combustible des réacteurs de 4ème génération : Compréhension et modélisation de l'influence des différents paramètres microstructuraux sur le comportement d'alliages modèles," Thèse de Doctorat, Université Grenoble-Alpes, 2015.

[24] P. Olier, M. Couvrat, C. Cayron, N. Lochet, and L. Chaffron, "Incidence of Mechanical Alloying Contamination on Oxide and Carbide Formation in ODS Ferritic Steels," *J. Nucl. Mater.*, vol. 442, p. 2011, 2011.

[25] Y. Murata and M. Morinaga, "Recrystallization behaviour of pure iron at curie temperature," *Scr. Mater.*, vol. 43, pp. 509–513, 2000.

[26] P. R. Peitsch and C. A. Danón, "Comparative Study of 9% Cr Martensitic-ferritic Steels Using Differential Scanning Calorimetry," *Procedia Mater. Sci.*, vol. 9, pp. 514–522, 2015.

[27] B. Jeya Ganesh, S. Raju, A. Kumar Rai, E. Mohandas, M. Vijayalakshmi, K. B. S. Rao, and B. Raj, "Differential scanning calorimetry study of diffusional and martensitic phase transformations in some 9 wt-%Cr low carbon ferritic steels," *Mater. Sci. Technol.*, vol. 27, no. 0, pp. 500–512, 2011.

[28] J.-H. Yoon, Y. Lee, S.-H. Kang, T. S. Byun, and D. T. Hoelzer, "Effects of partial phase transformation on characteristics of 9Cr nanostructured ferritic alloy," *Curr. Nanosci.*, vol. 10, pp. 47–50, 2014.

[29] A. Danon, C. Ser, A. Alamo, and J. C. Brachet, "Heterogeneous austenite grain growth in 9Cr martensitic steels : influence of the heating rate and the austenitization temperature," *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 348, pp. 122–132, 2003.

[30] S. Raju, B. J. Ganesh, A. Banerjee, and E. Mohandas, "Characterisation of thermal stability and phase transformation energetics in tempered 9Cr-1Mo steel using drop and differential scanning calorimetry," *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 465, pp. 29–37, 2007.

[31] T. S. Chou and H. K. D. H. Bhadeshia, "Recrystallization temperatures in mechanically alloyed ODS MA956 and MA957 steels," *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 189, pp. 229–233, 1994.

[32] Y. Kimura, S. Takaki, S. Suejima, R. Uemori, and H. Tamehiro, "Ultra Grain Refining and Decomposition of Oxide during Super-heavy Deformation in Oxide Dispersion Ferritic Stainless Steel Powder," *ISIJ Int.*, vol. 39, no. 1 999, pp. 176–182, 1999.

[33] S. D. Catteau, H. P. Van Landeghem, J. Teixeira, J. Dulcy, M. Dehmas, S. Denis, A. Redja??mia, and M. Courteaux, "Carbon and nitrogen effects on microstructure and kinetics associated with bainitic transformation in a low-alloyed steel," *J. Alloys Compd.*, vol. 658, pp. 832–838, 2016.

[34] T. Tanno, S. Ohtsuka, Y. Yano, T. Kaito, Y. Oba, and M. Ohnuma, "Evaluation of mechanical properties and nano-meso structures of 9 – 11 % Cr ODS steels," *J. Nucl. Mater.*, vol. 440, no. 1–

3, pp. 568–574, 2013.

[35] H. Merher, Ed., *Landolt-Börnstein, Volume 26, Diffusion in solid metals and alloys*. 1990.

[36] M. Hillert, "On the theory of normal and abnormal grain growth," *Acta Metall.*, vol. 13, pp. 227–238, 1965.

[37] F. J. Humphreys, "A unified theory of recovery, recrystallization and grain growth, based on the stability and growth of cellular microstructures - I. The basic model," *Acta Mater.*, vol. 45, no. 10, pp. 4231–4240, 1997.

[38] M. A. Razzak, M. Perez, T. Sourmail, S. Cazottes, and M. Frotey, "A Simple Model for Abnormal Grain Growth," *ISIJ Int.*, vol. 52, no. 12, pp. 2278–2282, 2012.

[39] A. Agnoli, M. Bernacki, R. Logé, J. M. Franchet, J. Laigo, and N. Bozzolo, "Selective Growth of Low Stored Energy Grains During δ Sub-solvus Annealing in the Inconel 718 Nickel-Based Superalloy," *Metall. Mater. Trans. A*, vol. 46, pp. 4405–4421, 2015.

[40] I. Toda-caraballo, C. Capdevila, G. Pimentel, and C. G. De Andrés, "Drag effects on grain growth dynamics," *Comput. Mater. Sci.*, vol. 68, pp. 95–106, 2013.

[41] S. Dépinoy, B. Marini, C. Toffolon-Masclet, F. Roch, and A. Gourgues, "Austenite Grain Growth in a 2 . 25Cr-1Mo Vanadium- Free Steel Accounting for Zener Pinning and Solute Drag : Experimental Study and Modeling," *Metall. Mater. Trans. A*, pp. 12–17, 2017.

[42] Y. Bréchet and M. Militzer, "A note on grain size dependent pinning," *Scr. Mater.*, vol. 52, pp. 1299–1303, 2005.

[43] F. J. Humphreys, "A unified theory of recovery, recrystallization and grain growth, based on the stability and growth of cellular microstructures - II. The effect of second phase particles," *Acta mater.*, vol. 45, no. 12, pp. 5031–5039, 1997.

[44] J. . Feppon and W. B. Hutchinson, "On the growth of grains," *Acta Mater.*, vol. 50, pp. 3293–3300, 2002.

[45] N. Sallez, "Recrystallization, abnormal grain growth and ultrafine micrsotructure of ODS ferritic steels," Thèse de Doctorat, Université de Grenoble, 2014.

Chapitre IV. Influence de la déformation plastique à froid sur la recristallisation des ODS

Introduction.....114
1. Déformation par compression uniaxiale.....114
1.1 Compression dans la direction de filage.....114
1.1.1 Etats déformés.....114
1.1.2 Etats recuits.....120
1.1.2.A Recuits à 1150°C.....120
1.1.2.B Recuits à 1300°C.....125
1.1.3 Influence du taux de déformation.....127
1.1.3.A Etats déformés.....127
1.1.3.B Etats recuits.....128
1.1.4 Etude de la nano-précipitation dans les états recuits.....131
1.1.4.A Caractérisation des distributions de nanoparticules par DNPA.....131
1.1.4.B Analyse de la cohérence des particules après recristallisation.....133
1.1.5 Mesure des températures de recristallisation.....135
1.1.6 Discussion des mécanismes de germination.....136
1.2 Influence du chemin de déformation.....143
1.2.1 Etats déformés.....143
1.2.1 Etats recuits.....146
1.2.1.A Nuance R0,2.....146
1.2.1.A Nuance STi.....149
2. Compression multi-axiale alternée.....151
2.1 Comportement mécanique.....152
2.2 Caractérisation des microstructures.....155
2.3 Dissolution des nano-oxydes par déformation plastique.....159
2.3.1 Résultats.....159
2.3.2 Discussion.....162
Conclusion sur l'influence de la déformation à froid sur la recristallisation des ODS.....164
Bibliographie.....165

Introduction

Le précèdent chapitre a confirmé l'extrême stabilité des nuances ODS conventionnelles et la difficulté à les recristalliser après consolidation. Il est bien connu (Chapitre I) que l'introduction de dislocations par le biais d'un écrouissage à froid favorise le déclenchement de la recristallisation dans les métaux. Néanmoins, en fonction du mode et du taux de déformation appliqués, les microstructures recristallisées après recuit sont plus ou moins hétérogènes et texturées. Afin de mieux comprendre l'influence de la déformation à froid sur le déclenchement de la recristallisation dans les ODS, les nuances modèles ont subi différents traitements thermomécaniques. On rappelle que l'on s'intéresse ici à l'étude de la recristallisation statique et par conséquent les recuits sont effectués après la déformation à froid.

1. Déformation par compression uniaxiale

1.1 Compression dans la direction de filage

Ce mode de déformation a déjà montré son intérêt pour favoriser l'occurrence de la recristallisation dans les aciers ODS [1][2][3]. Grosdidier *et al.* [2] montrent d'ailleurs clairement l'influence du taux de déformation et suspectent l'effet d'un alignement de particules sur la morphologie des grains recristallisés. Néanmoins, certains points, notamment concernant les mécanismes de germination et l'influence du taux de renforts sur la recristallisation primaire restent à éclaircir. Dans ce but, on propose de réaliser ici une étude paramétrique à partir de nos 6 nuances modèles où l'on fera également varier le taux de déformation et la température de recuit. On tentera ainsi d'améliorer notre compréhension des mécanismes mis en jeu.

1.1.1 Etats déformés

Des pions sont prélevés dans les barres filées de réception comme le montre la Figure IV.1 et sont ensuite compressés entre 2 mors de carbure de tungstène (WC) à une vitesse de 0,01 s^{-1}. La direction de compression (DC) est donc la direction de filage (DF). Dans un premier temps, le taux de déformation macroscopique appliqué est de 0,7, puisque dans le cadre de l'étude menée par Dadé *et al*. [1], cette valeur a permis de recristalliser presque entièrement (lors d'un recuit à 1150°C) une nuance conventionnelle CEA similaire à notre nuance R0,3. On étudiera ensuite l'effet d'un taux de déformation plus faible, ε = 0,4 (paragraphe 1.1.3). Par la suite, la compression uniaxiale (CU) parallèle à la direction de filage sera notée CU//DF.

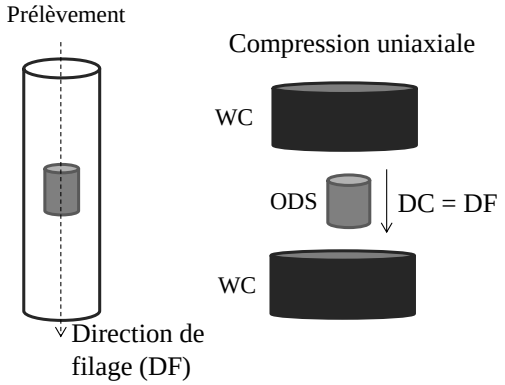


Figure IV.1 : Prélèvement et compression des pions parallèlement à la direction de filage

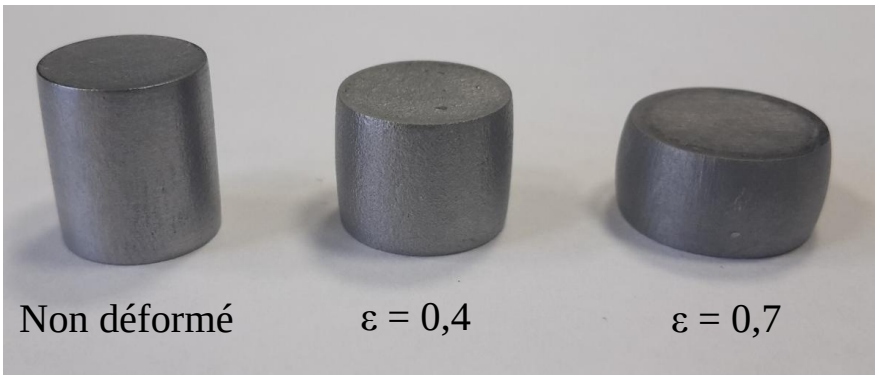


Figure IV.2 : Pions non déformé et après compression

Comme le montre la Figure IV.2, les pions déformés présentent un bombé dû à l'effet tonneau, caractéristique de la compression uniaxiale, qui s'accentue avec l'augmentation de la déformation. Le graissage des outils qui permet la réduction des frottements tend à limiter ce phénomène. Néanmoins, on peut se poser la question de l'homogénéité de la déformation au sein du pion après compression. En effet, plusieurs études [4][5][6] ont déjà montré la forte corrélation entre la distribution de la déformation plastique et les hétérogénéités microstructurales après recristallisation. Des profils de nano-indentation selon la direction de compression et la direction radiale ont donc été réalisés (dans le plan d'une coupe parallèle à la direction de filage/compression) sur un pion compressé à une déformation de 0,7 afin d'évaluer ces hétérogénéités. Les résultats sont présentés sur la Figure IV.3.

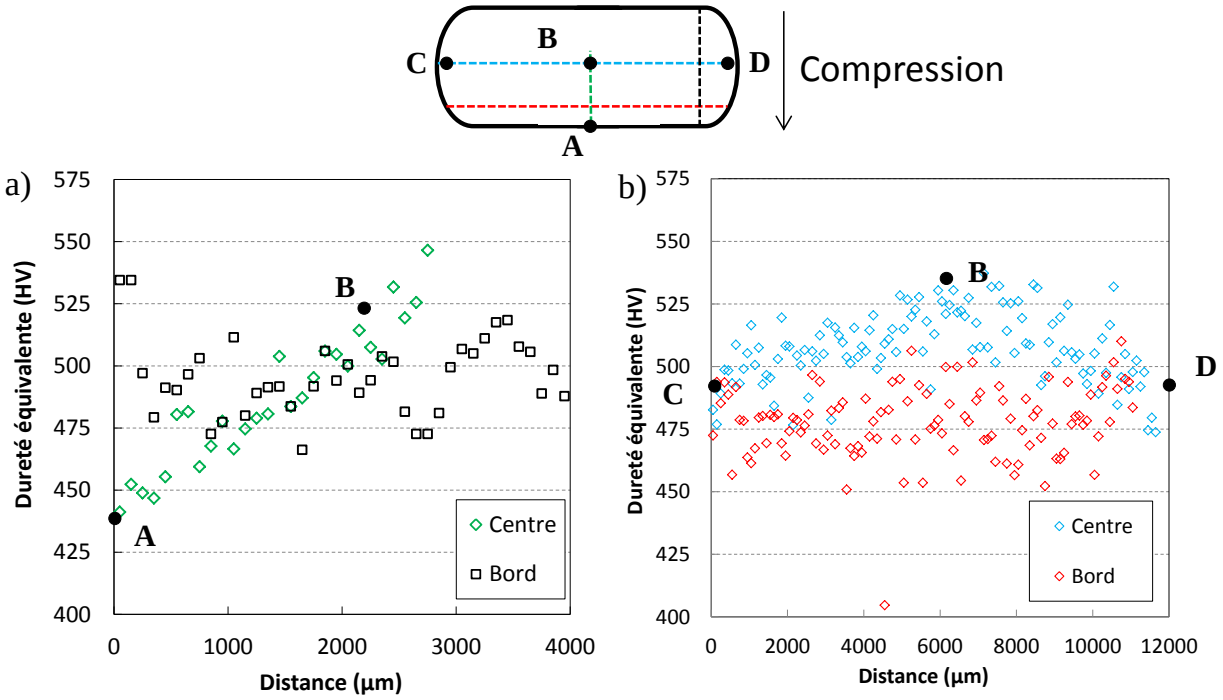


Figure IV.3 : Mesures de nano-indentation sur un pion compressé (ε = 0,7) de la nuance R0,3

La dureté Vickers équivalente (calculée à partir de la dureté d'indentation H_{IT}) atteint une valeur maximale d'environ 540 HV au centre de l'échantillon (point B). Les zones où la dureté est la plus faible, autour de 475 HV sont situées sur les bords du pion perpendiculaires à la direction de compression (ligne rouge et point A de la ligne verte). Le long du bord parallèle à la direction de compression, les valeurs

restent comprises entre 475 et 525 Hv (ligne noire). L'axe qui présente le plus important gradient de déformation plastique est l'axe central parallèle à la direction de filage (ligne verte, entre A et B) : la dureté varie d'environ 100 Hv entre le bord et le centre de l'échantillon. De telles hétérogénéités ne sont pas surprenantes et ont déjà été prédites dans la littérature par des simulations par éléments finis principalement lors de déformation à chaud dans le cas de compressions uniaxiales à chaud [7][8] et également dans le cas de la compression plane encastrée (déformation nulle dans une direction macroscopique) [4]. Plus les frottements sont grands lors de l'essai et plus le bombé est important et la déformation hétérogène. Ainsi, Karch [7] montre par simulation, présentée sur la Figure IV.4, que la déformation locale au centre du pion peut atteindre 2 fois la déformation macroscopique appliquée (ici $\varepsilon = 0{,}87$). La distribution de la déformation simulée est particulièrement bien corrélée à nos essais de nano-indentation, montrant le maximum de dureté au centre de l'échantillon et les minimas au bord. Fort de ce constat, les analyses EBSD seront réalisées par la suite au centre des échantillons afin d'être soumises le moins possible aux hétérogénéités de déformation.

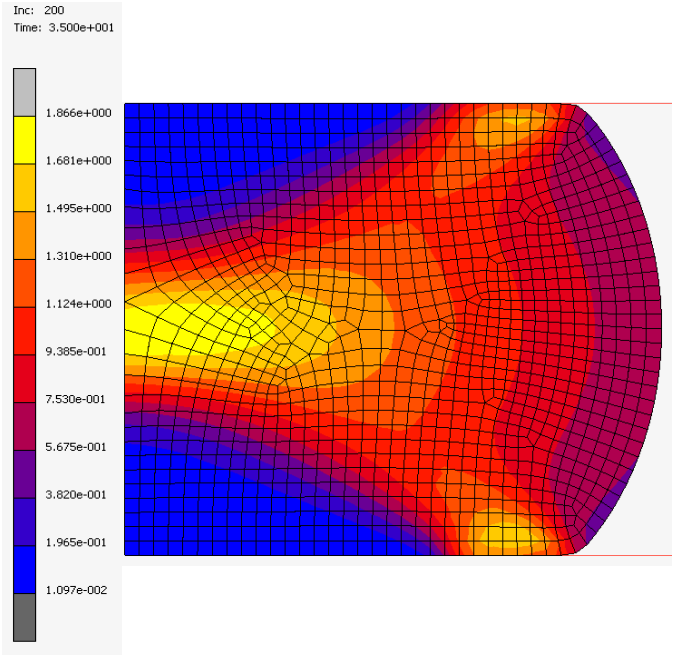


Figure IV.4: Simulation par éléments finis (logiciel MSC-Marc®) d'un essai de compression uniaxiale à chaud ($\varepsilon = 0{,}87$) sur un acier ODS, l'échelle représente les isovaleurs de déformation équivalente [7]

Les cartographies IPF des 6 nuances après compression sont présentées sur la Figure IV.5 et leur coupe de l'ODF à $\varphi_2 = 45°$ sur la Figure IV.6. Les caractéristiques microstructurales sont présentées dans le Tableau IV.1. Les nuances ODS présentent des microstructures et des textures très similaires avec une fibre <111> parallèle à DC très marquée où deux familles d'orientations majoritaires se distinguent comme le montrent les ODF sur la Figure IV.6 : {112}⟨111⟩ et {110}⟨111⟩. On peut assimiler cette texture à une texture cyclique, définie entre autre par Réglé [9], où les grains alignent une direction préférentielle avec l'axe de pion (ici la <111>) et une direction préférentielle avec le rayon du pion (ici il y en a deux : la <112> et la <110>). Sur les cartographies IPF, on note également la présence d'un certain nombre de grains ayant la direction <100> parallèle à DC (grains rouges). Leur fraction reste faible et atteint au maximum 10% (tolérance 12°) dans la nuance STi. Là aussi, deux familles différentes peuvent être identifiées, {001}⟨100⟩ et {110}⟨100⟩. Néanmoins, les fractions d'orientations de ces deux familles

sont trop faibles pour apparaitre clairement sur les coupes des ODF. Il semble également persister quelques petits grains verts orientés selon la fibre α en particulier dans la nuance R0,05 (Figure IV.5d) mais là encore leur fraction reste très faible, inférieur à 2%. Concernant la nuance NonR, on distingue seulement l'émergence de l'orientation {110}⟨111⟩ sur l'ODF avec une intensité élevée mais le nombre faible de gros grains (seulement 50 grains mesurent plus de 1 µm) sur cette cartographie induit un manque de statistique qui ne permet pas de décrire correctement la texture. En effet, les grains avant déformation étant beaucoup plus gros (20 µm contre environ 1 µm dans les nuances ODS), leur taille après déformation est également plus élevée et on peut d'ailleurs aisément identifier les grains originaux sur la microstructure après déformation (par exemple le grain rouge sur la droite de la cartographie en Figure IV.5f).

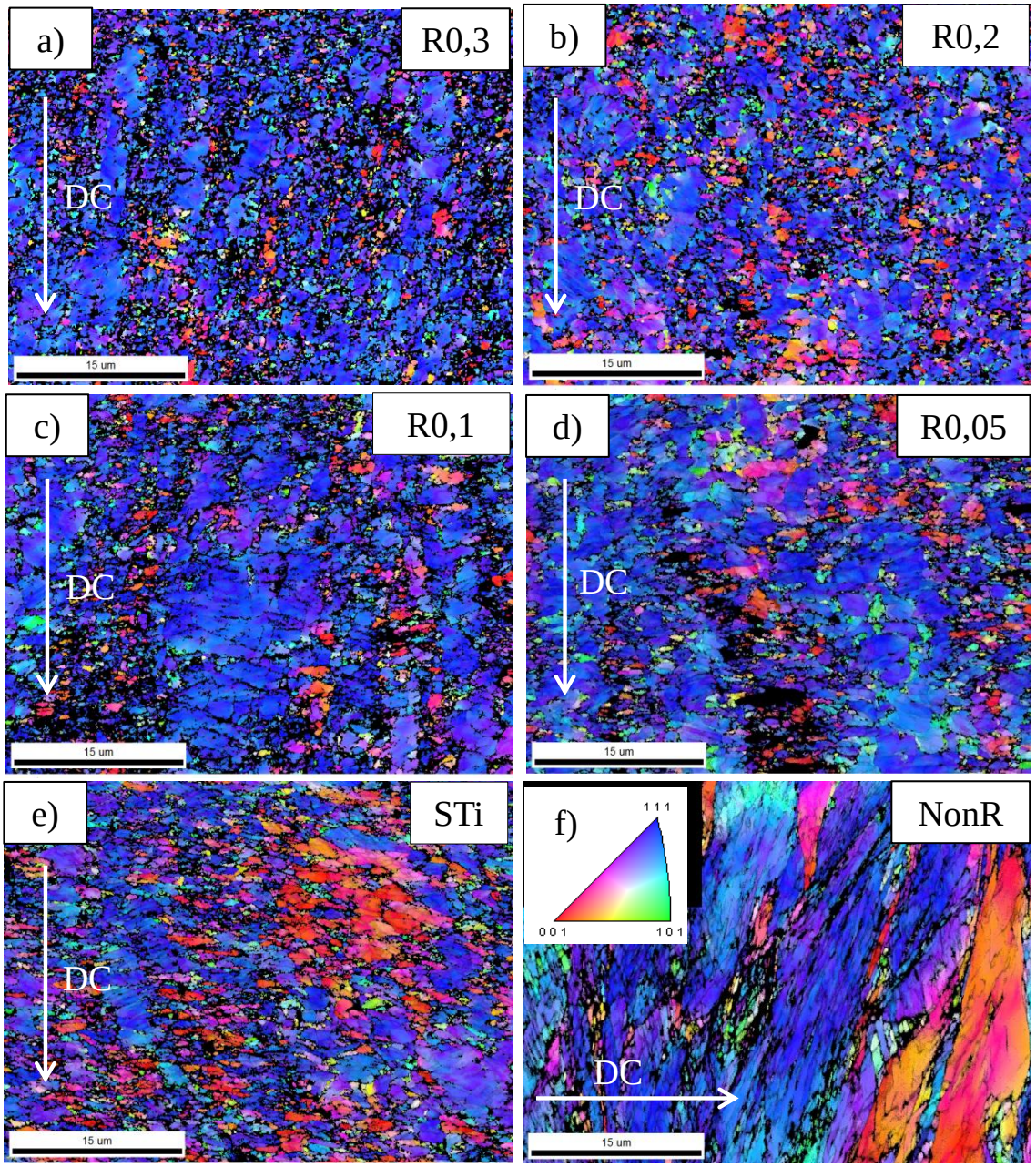


Figure IV.5 : Cartographies IPF (direction cristallographique // DC) des 6 nuances modèles après compression uniaxiale (ε = 0,7)

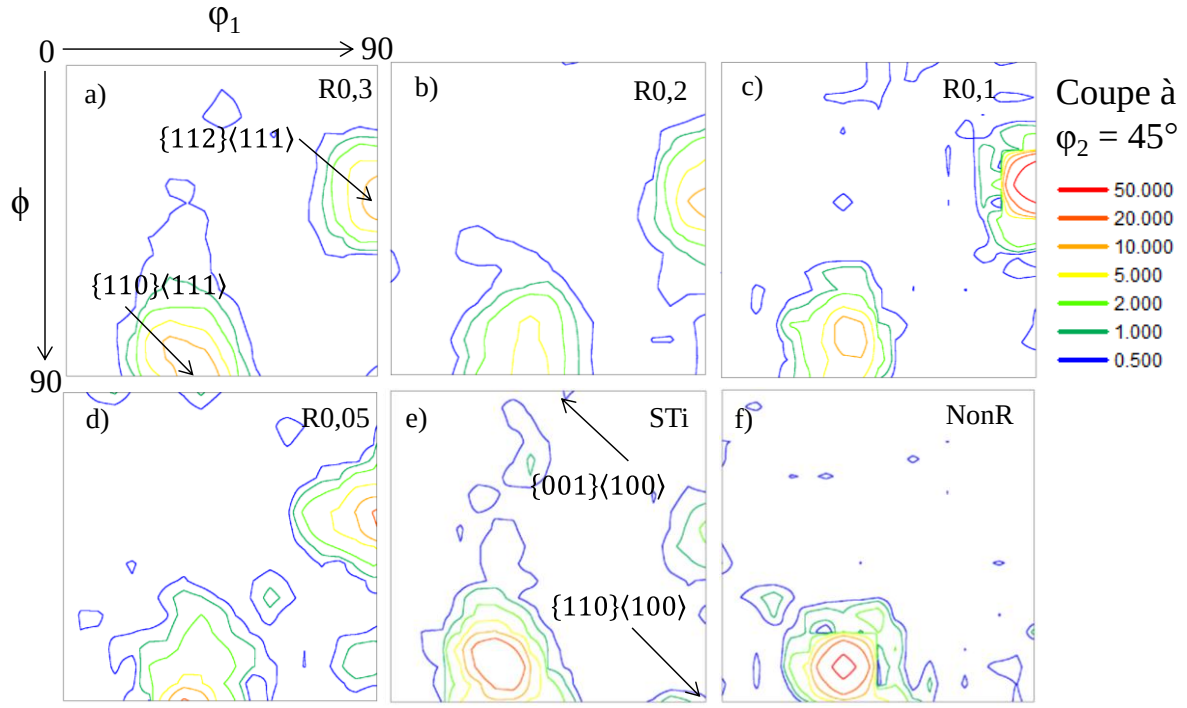


Figure IV.6 : Coupe à φ_2=45° de l'ODF des nuances après compression

Dans les nuances ODS, on peut assez facilement supposer que les gros « blocs » orientés selon la fibre <111> sont issus des gros grains allongés (vingtaine de µm) orientés selon la fibre α dans la microstructure filée. En effet, on rappelle que les microstructures filées étaient constituées d'une population bimodale de grains : des petits grains équiaxes orientés plutôt aléatoirement et des gros grains allongés fracturés en sous-grains et orientés selon la fibre α. Un zoom de la Figure IV.5b (nuance R0,2) est présenté sur la Figure IV.7a. On constate que les grains sont très morcelés et sont divisés en de nombreuses cellules de dislocations plus ou moins désorientées entre elles. Leur taille moyenne proche de 0,3 µm est similaire pour les différentes nuances (voirTableau IV.1) mais il est possible que cette valeur soit sous-estimée compte tenu de la présence de zones non indexées qui peuvent séparer une cellule en plusieurs. Sur la Figure IV.7a, les cellules sont séparées les unes des autres par des sous-joints (blanc), assimilables à des murs de dislocations mais aussi par des HAGB (noir), mieux visibles sur la Figure IV.7b.

Nuance	Taille des grains (µm)	Taille des cellules (µm)	Fibre <111> // DC (%)	Sous-joints 2°< θ <10° (%)	ρ_{gnd} (m^{-2})
R0,3	0,33	0,28	59 ± 5	80 ± 3	$2{,}2.10^{15}$
R0,2	0,49	0,31	59 ± 5	75 ± 3	$2{,}0.10^{15}$
R0,1	0,37	0,30	69 ± 5	90 ± 3	$1{,}6.10^{15}$
R0,05	0,52	0,35	62 ± 5	75 ± 3	$1{,}7.10^{15}$
STi	0,43	0,33	43 ± 5	78 ± 3	$1{,}8.10^{15}$
NonR	0,64	0,51	48 ± 5	88 ± 3	$1{,}2.10^{15}$

Tableau IV.1 : Caractéristiques microstructurales des 6 nuances modèles après CU//DF (ε = 0,7)

La densité de GND moyenne après déformation (Tableau IV.1) est bien plus importante qu'après filage dans les nuances ODS (3 à 6 fois plus en fonction de la nuance). Pour rappel, elle était au maximum de $6{,}7.10^{14}$ m^{-2} dans la nuance R0,3 et au minimum de $2{,}5.10^{14}$ m^{-2} dans la nuance R0,05. On observe ici

toujours une densité de GND significativement plus élevée dans les nuances R0,2 et R0,3. Pour les autres nuances ODS, moins renforcées (R0,1 ; R0,05 et STi), les écarts entre les nuances sont faibles et de l'ordre de grandeur de l'incertitude. Cette incertitude s'explique principalement par la présence d'une fraction non négligeable de zone non-indexées dues à la forte distorsion du réseau cristallin et à l'hétérogénéité de la déformation dans les pions.

La distribution des densités de GND (calculée à partir du gradient d'orientations local) associée à la zone zoomée de la nuance R0,2 est présentée sur la Figure IV.7b. Une grande partie des pixels (44%) a une densité comprise entre 1.10^{15} et 3.10^{15} m^{-2} (pixels oranges), proche de la valeur moyenne (2.10^{15} m^{-2}) pour cette nuance. La densité de GND est plus élevée (pixels rouges, supérieure à 3.10^{15}) à proximité des joints de grains (en noir) et des zones non-indéxées (en blanc). A l'inverse, dans certaines cellules et dans certaines zones situées à l'intérieur des gros grains orientés <111> // DC, la densité de GND est plus faible et est comprise entre 1.10^{14} m^{-2} et 1.10^{15} m^{-2} (pixels jaunes et verts).

La nuance NonR présente quant à elle une densité de GND significativement plus faible. Cela peut s'expliquer principalement par l'absence de nanoparticules comme points d'ancrages pour les dislocations qui peuvent alors s'annihiler plus facilement mais peut-être aussi par la morphologie différente des grains avant déformation, qui sont équiaxes. En effet, dans les nuances ODS, la compression des grains étirés dans leur longueur induit probablement des effets de micro-flambage entrainant la localisation de la déformation en certains points, le long des joints de grains et donc une densité de GND localement plus élevée. Ce phénomène n'aurait donc pas lieu dans la nuance NonR.

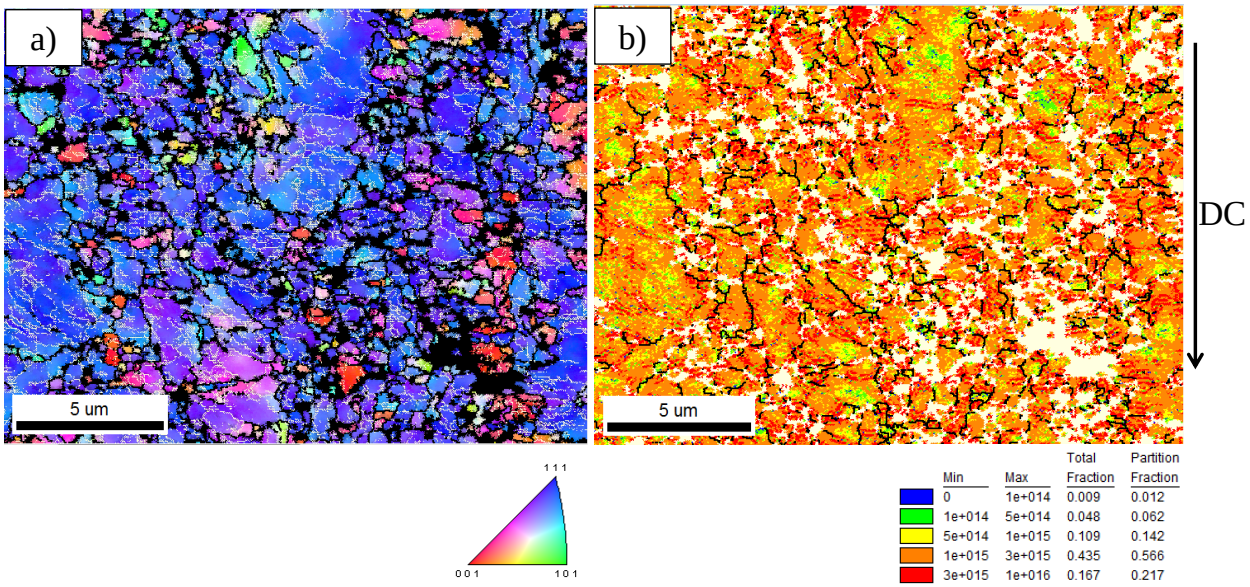


Figure IV.7 : a) Cartographie IPF de la nuance R0,2 (zoom de la Figure IV.5b) compressée et b) cartographie des densités de GND associées (zones non indexées en blanc). Les joints de grains ($\theta > 10°$) sont en noir sur les deux cartes et les sous-joints ($2° > \theta > 10°$) sont visibles sur l'IPF en blanc.

Nous nous sommes également intéressés à la distribution de la densité de GND en fonction de l'orientation des grains. Ainsi, la densité de GND a été mesurée au sein des grains appartenant à la fibre <111> et a été comparée avec celle mesurée dans les grains d'orientations plus aléatoires (qui n'appartiennent pas à la fibre <111>). Les résultats présentés sur la Figure IV.8 montrent clairement que dans les nuances ODS, les grains appartenant à la fibre <111> // DC (grains bleus) ont stocké en moyenne moins de dislocations que les autres grains orientés plus aléatoirement. Ce résultat est particulièrement

intéressant puisqu'il va nous permettre d'expliquer au moins en partie les textures de recristallisation obtenues par la suite. Notons que dans la nuance NonR, le résultat inverse est observé, à savoir que les grains d'orientation <111>//DC montrent une densité de GND plus élevée. Cela peut s'expliquer soit par un effet statistique du fait que le nombre de grains est faible soit du fait de la morphologie initiale (avant compression) différente des grains dans cette nuance qui conduirait à stocker les dislocations différemment lors de la déformation plastique.

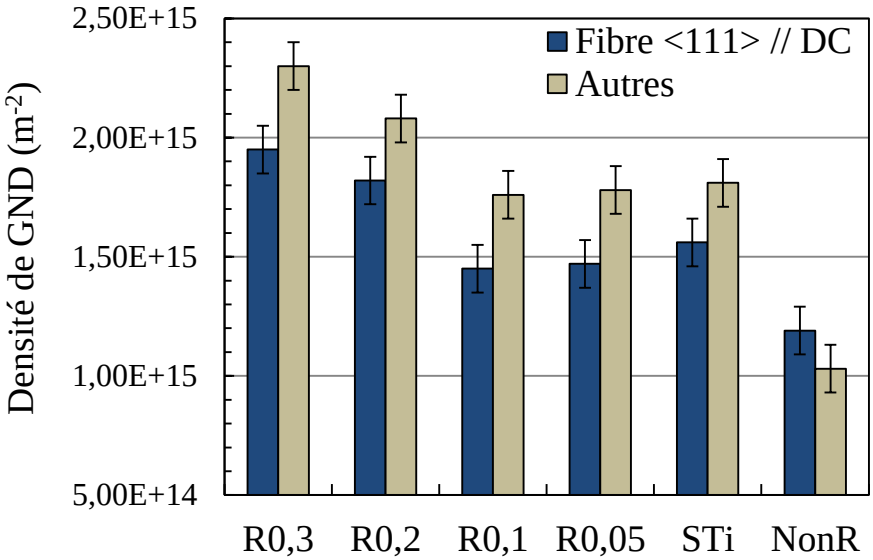


Figure IV.8 : Densité de GND mesurée dans les grains appartenant à la fibre <111>//DC et dans ceux appartenant à d'autres orientations

Rappelons ici les principales observations faites sur les nuances déformées par CU//DF avec ε = 0,7 :

- La déformation est hétérogène au sein des pions avec des minima au niveau des extrémités hautes et basses et un maximum au centre.
- La CU//DF modifie complètement la texture cristallographique et la fibre α issue du filage est effacée au profit d'une fibre <111> parallèle à la direction de compression.
- La texture de déformation semble indépendante du taux de renforts.
- La déformation plastique permet d'augmenter fortement la densité de GND dans le matériau par rapport aux états filés, d'un facteur 3 à 6 selon la nuance. Dans les nuances ODS, le flambage des grains lors de la déformation est en partie responsable de ces densités élevées
- La densité de GND après CU//DF est plus élevée dans les nuances les plus renforcées.
- Dans les 5 nuances ODS, la densité de GND est plus élevée dans les grains orientés différemment de la fibre <111>.

1.1.2 Etats recuits

1.1.2.A Recuits à 1150°C

Dans l'éventualité d'une transposition de cette étude à une gamme de mise en forme industrielle, la recristallisation a d'abord été étudiée suite à un recuit isotherme à une température intermédiaire de 1150°C pendant 1h. Par la suite, des recuits d'1h à 1300°C ont été effectués pour évaluer l'influence de la température. Pour la nuance NonR, afin de ne pas obtenir des grains trop gros et de conserver une bonne statistique, nous avons réalisé un traitement « *flash* », c'est-à-dire que l'échantillon a été chauffé à 1150°C

en une dizaine de secondes (l'échantillon est inséré dans le four déjà en température) et trempé aussitôt à l'hélium. Les cartographies IPF des microstructures recuites à 1150°C sont présentées sur la Figure IV.9. Pour chaque nuance, la texture des grains recristallisés a été analysée à partir des coupes de l'ODF à φ_2 = 45° visibles sur la Figure IV.10. Pour les nuances ODS, la taille moyenne (en nombre) des grains de ferrite recristallisés et leur fraction sont présentées respectivement sur les Figure IV.11a et b. Pour qu'un grain soit considéré comme recristallisé, il doit présenter une valeur de GOS (Grain Orientation Spread) inférieur à 1°. Ce paramètre représente la dispersion des orientations au sein d'un grain par rapport à son orientation moyenne. Plus un grain est déformé plus cette valeur est élevée. Il a également été nécessaire d'introduire une condition sur la taille des grains recristallisés afin de pas sélectionner des lattes de martensites qui peuvent avoir un GOS inférieur à 1°. En fixant une taille de grains minimale de 2 µm pour les grains recristallisés, on s'affranchit des lattes de martensite. Les quelques petits grains recristallisés ayant une taille inférieure à 2 µm ne sont alors pas comptabilisés ce qui induit une incertitude d'environ ± 5% sur la fraction recristallisée.

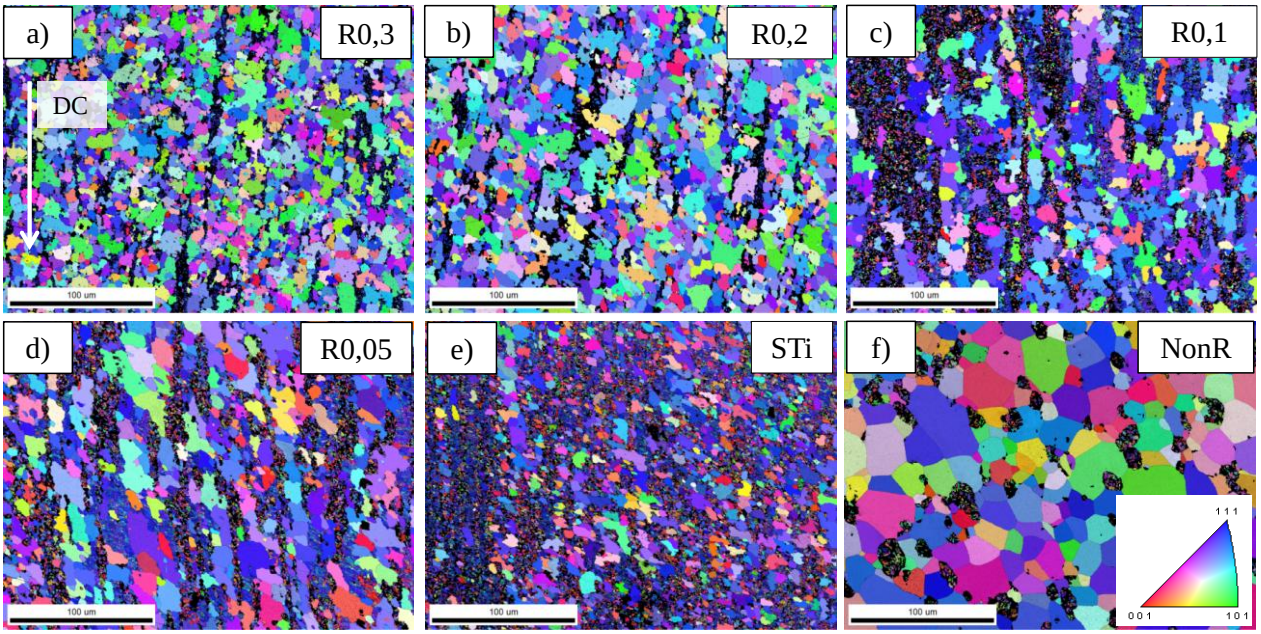


Figure IV.9 : Cartographies IPF (référence DC) des 6 nuances modèles compressées (ε = 0,7) après un recuit d'1h à 1150°C (traitement « flash » pour la nuance NonR)

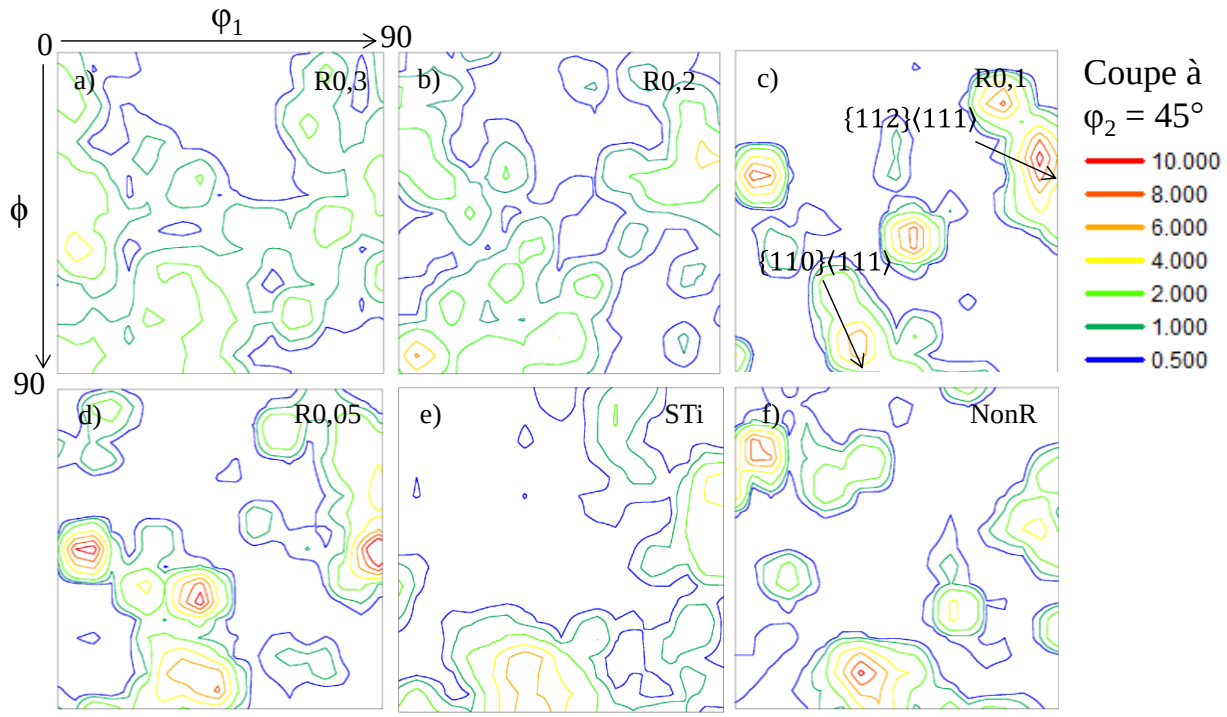


Figure IV.10 : Coupes de l'ODF à φ_2=45° des nuances compressées (ε = 0,7) après un recuit d'1h à 1150°C (traitement flash pour la nuance NonR)

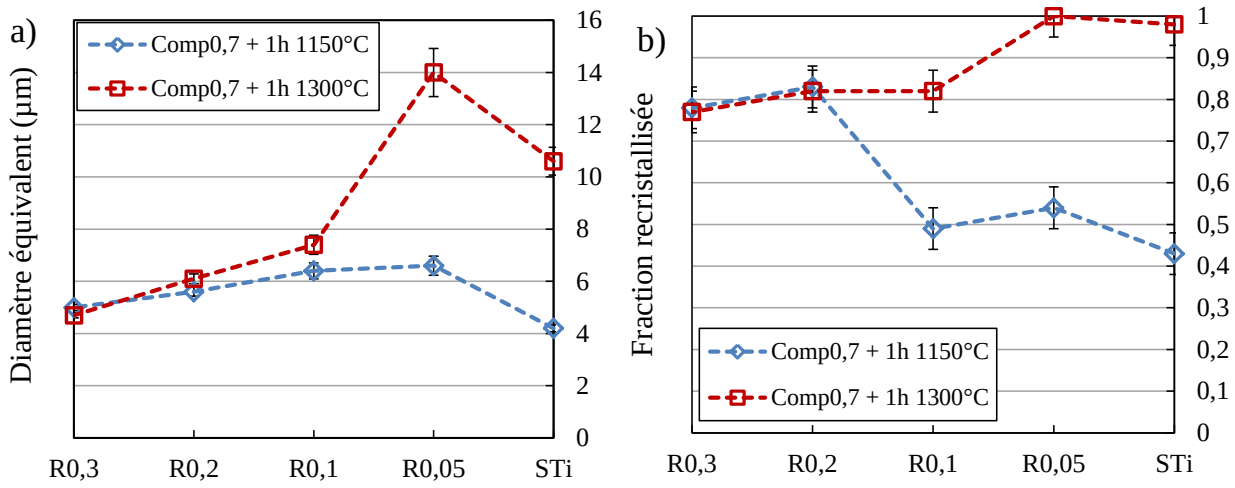


Figure IV.11 : a) Diamètre équivalent des grains recristallisés et b) fraction recristallisée dans les nuances ODS compressées (ε = 0,7) après des recuits d'1h à 1150°C et à 1300°C

Les résultats montrent des différences notables dans le comportement des microstructures en fonction de la nuance. Dans les nuances ODS, suite aux recuits à 1150°C, la fraction recristallisée tend à augmenter avec l'augmentation du taux de renforts tandis que la taille des grains recristallisés diminue (mise à part la nuance STi où les grains recristallisés sont aussi de plus faible taille). Cette taille de grains atteint une valeur maximale de 7,7 µm pour la nuance R0,05. Quant à la fraction recristallisée, elle est comprise entre 75% et 85% dans les nuances R0,3 et R0,2 tandis qu'elle atteint à peine 45% dans la nuance STi. Concernant la morphologie, les grains sont majoritairement équiaxes dans les nuances R0,3, R0,2 et STi tandis qu'ils semblent légèrement s'allonger dans la direction de compression pour les nuances R0,1 et

R0,05. Par ailleurs, les nuances R0,1, R0,05 et STi présentent des zones non recristallisées à grains très fins (zone mal indexées) qui correspondent à de la martensite, plus clairement visible sur la Figure IV.12 dans le cas de la nuance R0,05. La présence de martensite dans ces 3 nuances était attendue du fait que le recuit a été effectué dans le domaine biphasé α-γ dont l'existence a été montrée et expliquée dans le chapitre précédent. Cela explique la faible fraction de ferrite recristallisée dans ces nuances comparée aux nuances R0,2 et R0,3. En effet, les zones martensitiques observées suite à la trempe sont issues de la transformation des grains d'austénites présents dans la microstructure à 1150°C. Ces grains d'austénite sont exempts de dislocations. Durant le recuit, cette austénite va d'une part, limiter le nombre de germes susceptibles de se former (volume de ferrite déformée moins important) et d'autre part, bloquer le développement des grains de ferrite recristallisés dû à l'absence de force motrice pour la croissance de ces derniers. Il apparaît donc ici la possibilité de contrôler la taille et la fraction des grains de ferrite recristallisée par une transformation austénitique partielle à haute température. Notons qu'à notre sens, en l'absence d'austénite à 1150°C dans ces nuances faiblement renforcées, il est très probable que l'on obtiendrait des fractions recristallisées au moins aussi élevées que dans les nuances R0,2 et R0,3, c'est-à-dire supérieures à 80%, du fait de la pression d'épinglage bien plus faible dans ces nuances.

En ce qui concerne la texture des grains recristallisés, celle-ci est très peu marquée dans les nuances R0,2 et R0,3 comme le montre les Figure IV.10a et b. Les grains recristallisés dans les autres nuances et en particulier dans la nuance STi semblent d'avantage retenir la texture de déformation avec une persistance plus marquée des familles d'orientations $\{112\}\langle 111\rangle$ et $\{110\}\langle 111\rangle$ sur les coupes de l'ODF. Notons tout de même la différence d'échelle avec la Figure IV.6, qui montre que les textures de recristallisation restent globalement peu marquées avec des intensités maximales inférieures à 20 tandis que celles-ci pouvaient être très supérieures à 50 dans les états déformés et les états de réception. A première vue, il ne semble donc pas exister une orientation privilégiée pour la germination et/ou la croissance des grains recristallisés. En revanche, l'atténuation de la fibre <111> après recristallisation peut signifier deux choses : soit que les zones orientées selon cette fibre dans la microstructure déformée sont moins favorables à la germination, soit que la croissance des grains recristallisés appartenant à la fibre <111> est plus lente que celle des autres grains. Ici, la première hypothèse est la plus probable du fait que nous avons mesuré une densité de GND plus faible dans les grains déformés orientés selon la fibre <111> par rapport aux grains orientés plus aléatoirement. Ces derniers, qui présentent donc une énergie stockée plus élevée, vont être des sites de germination privilégiés pour la recristallisation.

Dans toutes les nuances ODS, on peut également noter l'aspect très sinueux des joints de grains et la présence d'un front de recristallisation entre les grains recristallisés et les zones déformées résiduelles (facilement observables sur la Figure IV.12 dans le cas de la nuance R0,05). De plus, les grains recristallisés sont séparés de la matrice et entre eux presque exclusivement par des HAGB, comme le montre la Figure IV.13a dans le cas de la nuance R0,2. La fréquence relative maximale correspond à un angle de 45° ce qui est en accord la distribution angulaire associée à la désorientation aléatoire entre 2 cubes prédite par Mackenzie [10]. Ces différentes observations sont caractéristiques d'une recristallisation discontinue incomplète. Ce mécanisme diffère de la recristallisation continue (ou restauration généralisée) observée dans les états filés pour les nuances R0,05 et STi dans le précédent chapitre. On peut néanmoins s'interroger sur les raisons pour lesquelles, même dans les nuances conventionnelles où il n'y a pas d'austénite, les grains recristallisés ne consomment pas totalement la matrice écrouie. Les trois hypothèses les plus envisageables sont : (i) un gradient d'énergie stockée localement plus faible, (ii) une densité de nanoparticules localement plus élevée ou (iii) une diminution de l'énergie stockée au cours du temps

durant le recuit par un phénomène de restauration. Cette dernière hypothèse est cependant moins probable du fait que les nuances ODS restaurent très peu, comme nous l'avons montré dans le Chapitre III.

Concernant la nuance NonR, la cartographie IPF de la Figure IV.9f montre une microstructure recristallisée avec la présence de zones martensitiques. La texture de déformation est également fortement atténuée. La morphologie des grains est équiaxe et les joints de grains sont également majoritairement des HAGB (Figure IV.13b). En revanche, à l'inverse des nuances ODS, la plupart des joints de grains sont plans. Ce dernier point est la signature d'un mécanisme de croissance de grains ayant eu lieu après la recristallisation, dont la force motrice est la minimisation des énergies d'interfaces due à la pression capillaire.

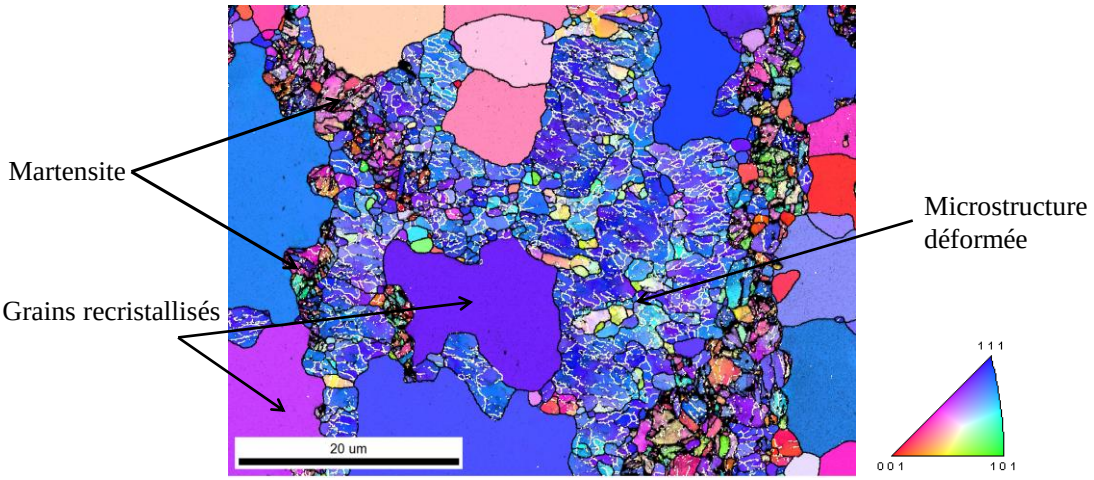


Figure IV.12 : Cartographie IPF (zoom de la Figure IV.9d) de la nuance R0,05 compressée (ε = 0,7) après un recuit d'1h à 1150°C avec des joints de grains (en noir) et les sous-joints (en blanc)

La comparaison entre la nuance NonR et les nuances ODS montre l'influence notable de la population de nano-renforts sur les mécanismes de recristallisation : lorsque deux grains recristallisés se rencontrent dans les nuances ODS, la force motrice due à l'énergie stockée sous forme de dislocations devient nulle et les joints de grains sont de nouveaux fortement épinglés par les nano-renforts. Il n'y a alors pas de croissance des grains recristallisés car les pressions capillaires sont trop faibles devant les pressions d'épinglages. Dans ce cas, on peut alors considérer que le nombre de grains après recristallisation est égal au nombre de germes qui parviennent à se développer dans les premiers stades de la recristallisation. Puisque le nombre de grains N en 2D est inversement proportionnel au carré de leur diamètre moyen D ($N \propto 1/\sqrt{D}$), on en déduit aisément que le nombre de germes est plus important dans les nuances les plus renforcées. Ce constat peut paraître contre-intuitif puisque la présence d'une population de particules de seconde phase est connue pour retarder le déclenchement de la recristallisation [11]. Néanmoins, les nuances les plus renforcées présentent une densité de GND plus importante (Tableau IV.1) et donc plus d'énergie stockée pour déclencher la recristallisation. De plus, on peut envisager que la germination s'effectue préférentiellement aux joints de grains, et donc une taille des grains déformés plus faible dans les nuances plus renforcées conduirait à plus de sites de germination. Néanmoins, il n'a pas été possible d'observer une telle évolution de la taille de grains déformés avec le taux de renforts (Tableau IV.1), en partie du fait que les joints de grains sont des zones ou le réseau cristallin est très distordu après déformation et où l'indexation lors de l'EBSD est difficile. Les valeurs mesurées sont donc particulièrement dépendantes du taux d'indexation qui varie d'un échantillon à l'autre.

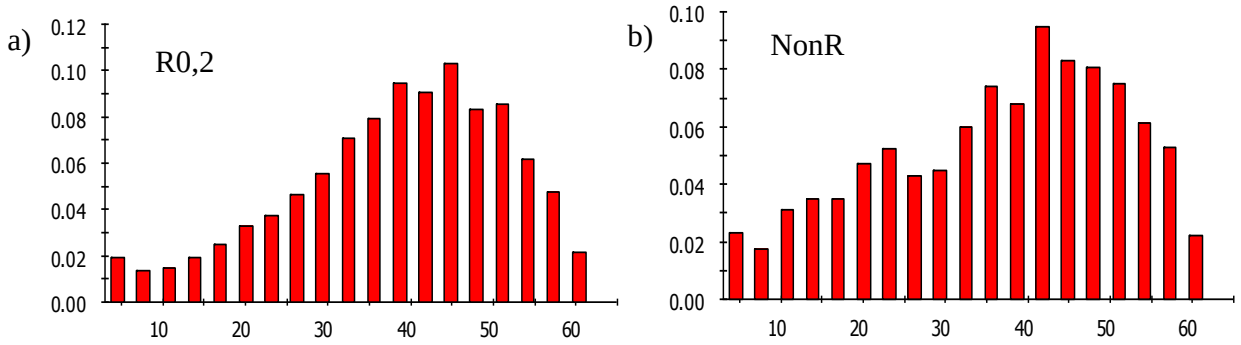


Figure IV.13 : Distributions de la désorientation des joints de grains recristallisés après 1h à 1150°C dans la nuance a) R0,2 et b) NonR

Il est également important de préciser que l'effet des hétérogénéités de déformation sur la recristallisation est visible mais reste faible. En effet, on observe sur la Figure IV.14 une cartographie IPF faite sur le bord de l'échantillon (où la déformation est minimale) recristallisé de la nuance R0,3. La microstructure est similaire à celle du centre de l'échantillon, sur la Figure IV.9a. La fraction recristallisée est de 67% (78% au centre) et la taille de grains est de 6,3 µm (5 µm au centre). Cette faible augmentation de la taille de grains et la diminution de la fraction recristallisée peuvent être directement reliées à une énergie stockée légèrement inférieure aux bords de l'échantillon après déformation. En effet, il y aura moins de germes susceptibles de se former et ceux-ci vont pouvoir atteindre une taille plus importante avant de rencontrer d'autres grains recristallisés.

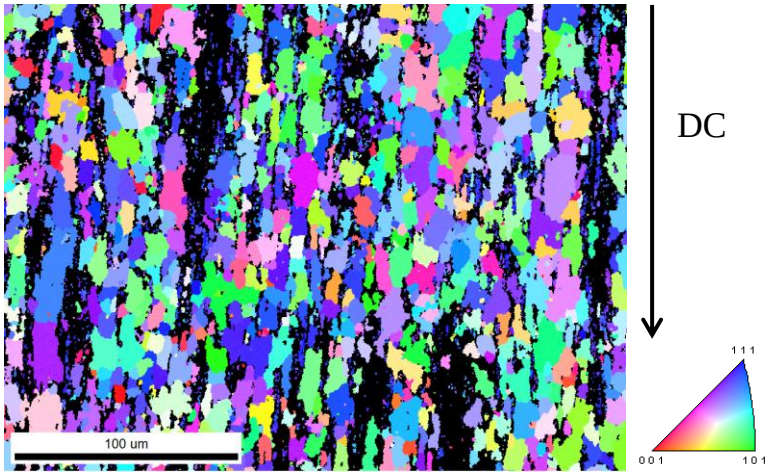


Figure IV.14 : Cartographie IPF (référence DC) du bord de l'échantillon de la nuance R0,3 déformée (ε = 0,7) par CU//DF et recuite 1h à 1150°C

1.1.2.B Recuits à 1300°C

L'augmentation de la température du recuit à 1300°C conduit à des résultats intéressants. En effet, la Figure IV.11 montre que cette augmentation n'a aucun effet, aux incertitudes près, ni sur la taille des grains ni sur la fraction recristallisée dans les deux nuances conventionnelles R0,3 et R0,2. A l'inverse, l'effet de la température est de plus en plus marqué au fur et à mesure que le taux de renforts diminue. Pour la nuance R0,1, la taille de grains augmente légèrement et la fraction recristallisée augmente sensiblement jusqu'à une valeur similaire à celle des deux nuances les plus renforcées. Les nuances STi et R0,05 montrent désormais un état totalement recristallisé et une taille de grains moyenne environ deux

fois plus importante qu'après le recuit à 1150°C. De plus, on observe sur les Figure IV.15d et e un aplanissement marqué des joints de grains, caractéristique d'une étape de croissance de grains après la recristallisation primaire, comme dans le cas de la nuance NonR à 1150°C. En effet, nous savons que dans ces deux nuances la résistance des nano-oxydes à la coalescence à 1300°C est faible et que ceux-ci coalescent donc fortement, comme en témoignent les nombreux points noirs sur la Figure IV.15e. La pression d'épinglage beaucoup plus faible à cette température permet donc le mouvement des joints de grains jusqu'à l'équilibre des pressions capillaires. Notons que l'augmentation de la température n'a pas d'effets notables sur la texture de recristallisation.

L'augmentation importante des fractions recristallisées dans les nuances R0,1, R0,05 et STi s'explique par le fait que l'austénite n'est plus stable à cette température. Les grains de ferrite peuvent donc croître plus librement. Dans la nuance R0,1, la croissance de ces derniers reste cependant limitée du fait que les oxydes d'$Y_2Ti_2O_7$ restent de taille nanométrique, comme nous allons le montrer par la suite.

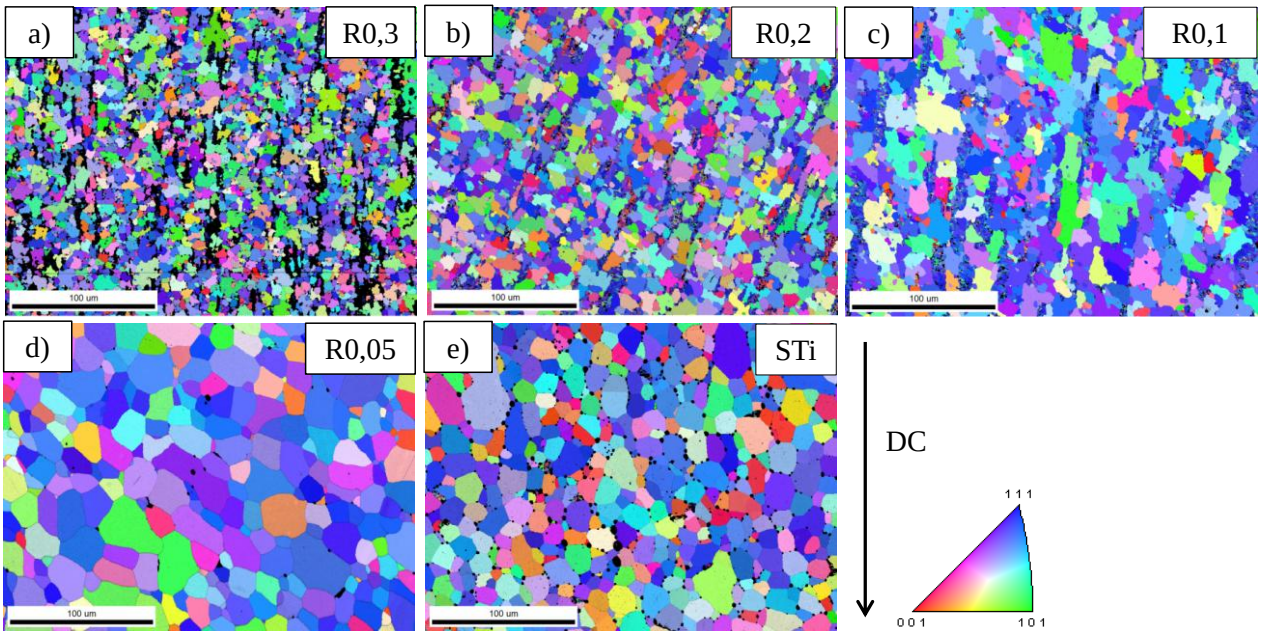


Figure IV.15 : Cartographies IPF des nuances ODS déformées par CU//DF (ε = 0,7) et recuites 1h à 1300°C

Les principaux résultats obtenus sur les microstructures déformées par CU//DF (ε=0,7) et recuites peuvent être résumés ainsi :

- Dans toutes les nuances ODS, une recristallisation primaire partielle est observée à 1150°C sans étape de croissance de grains.
- La recristallisation est relativement homogène à l'échelle des échantillons.
- La texture des grains recristallisés est plus aléatoire que la texture de déformation. Cela peut s'expliquer par le fait que la germination s'effectue préférentiellement dans les zones où l'énergie stockée est la plus importante. Ces zones correspondent aux grains orientés plus aléatoirement dans la microstructure écrouie.
- Dans les nuances R0,1, R0,05 et STi, la présence d'austénite à 1150°C limite la recristallisation (germination et croissance des grains).

- Une recristallisation complète suivie d'une croissance des grains peut-être observée dans les nuances R0,05 et STi à 1300°C due à la disparition de l'austénite et à la forte coalescence des nanoparticules .
- L'augmentation de la température de recuit n'a aucun effet sur les nuances R0,2 et R0,3 : suite à la recristallisation primaire partielle, les microstructures retrouvent leur stabilité remarquable comme dans l'état de réception.

1.1.3 Influence du taux de déformation

1.1.3.A Etats déformés

L'effet d'un taux de déformation plus faible a été étudié suite à des essais de CU//DF avec ε = 0,4. Comme pour les compressions avec un taux de déformation de 0,7, on a tout d'abord caractérisé les états déformés principalement pour mesurer les densités de dislocations et la texture, puis les échantillons ont été recuits à 1150°C et à 1300°C pendant 1h pour étudier leur recristallisation. Trois nuances ont été caractérisées par EBSD dans l'état brut de déformation (R0,2 ; R0,1 et STi). Les cartographies IPF et les coupes de l'ODF à φ_2 = 45° sont visibles sur la Figure IV.16. Les caractéristiques microstructurales sont données dans le Tableau IV.2.

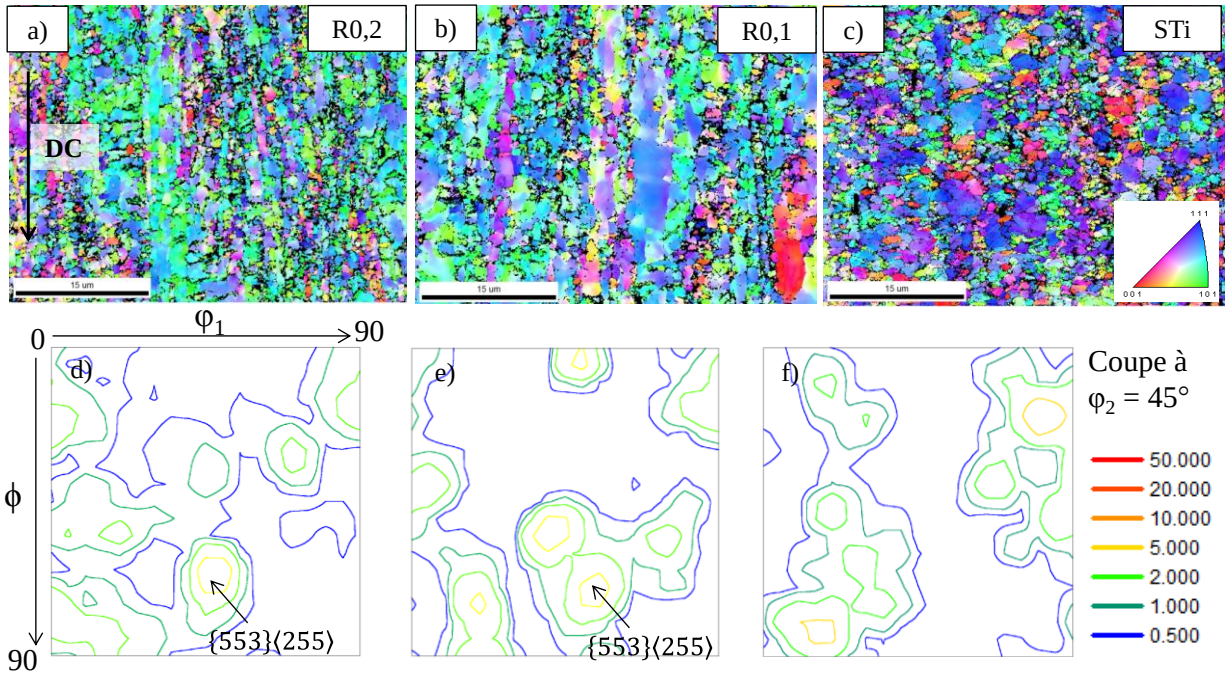


Figure IV.16 : Cartographies IPF des nuances a) R0,2 ; b) R0,1 et c) STi déformées par CU//DF (ε= 0,4) et coupes de l'ODF à φ_2 = 45° associées : d) R0,2, e) R0,1 et f) STi

Comme attendu, les microstructures déformées (Figure IV.16) présentent une fraction de fibre <111>//DC bien plus faible que dans le cas des compressions à ε = 0,7. La taille des cellules de dislocations est également légèrement plus élevée. On distingue encore sur les coupes de l'ODF des échantillons R0,2 et R0,1 une fibre α (φ_1 = 0° ; 0 < ϕ < 90° ; φ_2 = 45°) peu intense, issue du filage. L'orientation {553}⟨225⟩ est la plus intense (grains bleu clair) et peut correspondre à une orientation intermédiaire, qui évolue vers l'orientation finale {110}⟨111⟩ (grains bleus foncés) visible après un taux

de compression de 0,7. La fraction de sous-joints mesurée est importante mais varie peu par rapport aux compressions de ε = 0,7. Néanmoins, ceux-ci sont légèrement moins désorientés comme le montre l'histogramme de la Figure IV.17 pour la nuance R0,2. En effet, on observe que la fraction de sous-joints désorientés de moins 3° (très faiblement désorientés) est plus importante suite à un taux de déformation de 0,4 tandis que celle des sous-joints désorientés de plus de 3° est plus élevée après une déformation de 0,7. On note des valeurs de densités de GND moyennes plus faibles par rapport aux compressions de 0,7 qui étaient de $2{,}0.10^{15}$ m^{-2} pour la nuance R0,2 et de $1{,}8.10^{15}$ pour la nuance STi. Cependant, les écarts entre les deux taux de compression sont faibles (de l'ordre de l'incertitude dans le cas de la nuance R0,1) et montrent qu'en déformant par CU // DF, un taux de déformation de 0,4 contribue déjà à augmenter fortement l'énergie stockée dans les matériaux ODS par rapport aux états filés (ρ_{gnd} comprise entre $2{,}5.10^{14}$ pour la nuance R0,05 et $6{,}7.10^{14}$ m^{-2} pour la nuance R0,3 dans le Chapitre III).

Nuance	**Taille cellules (µm)**	**Fibre <111> // DC (%)**	**Sous-joints 2°< θ <10° (%)**	**ρ_{gnd} (m^{-2}) ε = 0,4**	**ρ_{gnd} (m^{-2}) ε = 0,7**
R0,2	0,38	6 ± 5	72 ± 3	$1{,}8.10^{15}$	$2{,}0.10^{15}$
R0,1	0,44	8 ± 5	75 ± 3	$1{,}5.10^{15}$	$1{,}6.10^{15}$
STi	0,41	18 ± 5	70 ± 3	$1{,}5.10^{15}$	$1{,}8.10^{15}$

Tableau IV.2 : Caractéristiques microstructurales des nuances déformées par CU//DF avec ε = 0,4

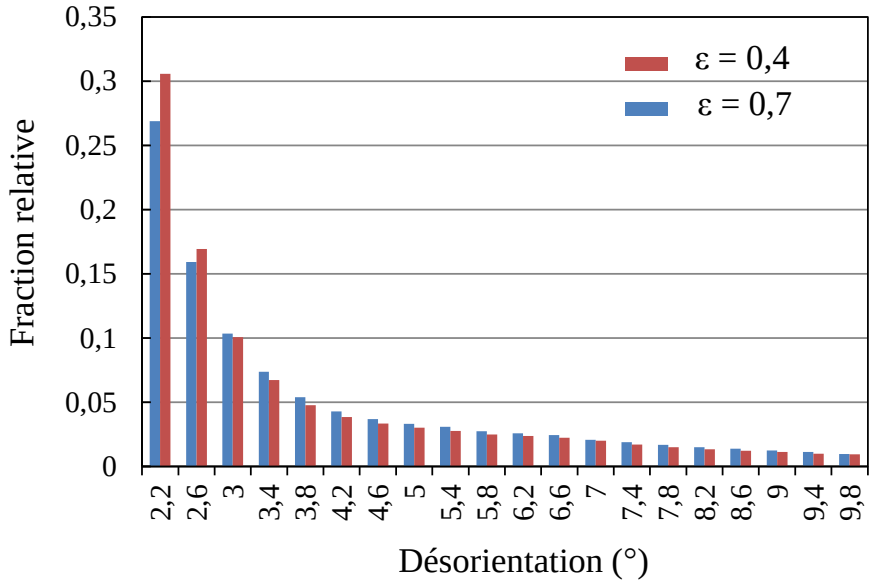


Figure IV.17 : Histogramme de désorientation des sous-joints pour la nuance R0,2 déformée à ε = 0,4 et ε = 0,7

1.1.3.B Etats recuits

Les cartographies IPF des états recuits 1h à 1150°C sont visibles sur la Figure IV.18. La taille moyenne des grains recristallisés et la fraction recristallisée sont présentées sur la Figure IV.19. Sur cette figure, les valeurs obtenues précédemment pour un taux de compression de 0,7 sont rappelées afin de faciliter la comparaison. La conséquence du taux de déformation plus faible est directement visible dans le cas de la nuance R0,3 où la fraction recristallisée est seulement de 18% alors qu'elle était de 75% lors du même recuit après une compression de 0,7. La morphologie des grains est également différente puisqu'ils sont ici particulièrement allongés dans la direction de compression. A l'inverse, la nuance R0,2 montre une fraction recristallisée de 70%, seulement faiblement inférieur à celle après une déformation de 0,7.

Il est intéressant de noter que c'est la première fois que nous observons des différences marquées entre les microstructures des nuances R0,2 et R0,3 (les zones déformées sur la Figure IV.18a ont été exclues de la cartographie car trop mal indexées). Cela montre l'existence d'un taux de déformation seuil, dépendant du taux de renforts, en dessous duquel l'énergie stockée est trop faible devant l'épinglage exercé par les nanoparticules. La germination et la croissance des grains recristallisés sont alors inhibées. Ici pour la nuance R0,3, ce seuil (du taux de déformation) est probablement très proche de ε = 0,4 et c'est pourquoi on observe cette faible fraction recristallisée. Pour une déformation de ε = 0,7, l'énergie stockée légèrement plus importante fait que ce seuil est décalé vers des taux de renforts plus élevés, et donc nous n'observons pas de différence entre les nuance R0,2 et R0,3. Ce propos est schématisé sur la Figure IV.20. Nous avons volontairement représenté une évolution non linéaire du taux de déformation seuil du fait de l'existence d'un taux d'écrouissage critique au-delà duquel la densité de dislocations sature et l'augmentation du taux de déformation ne génère plus d'augmentation de l'énergie stockée. Ce point est discuté plus en détail dans la suite de ce chapitre dans la partie dédiée à l'hyperdéformation.

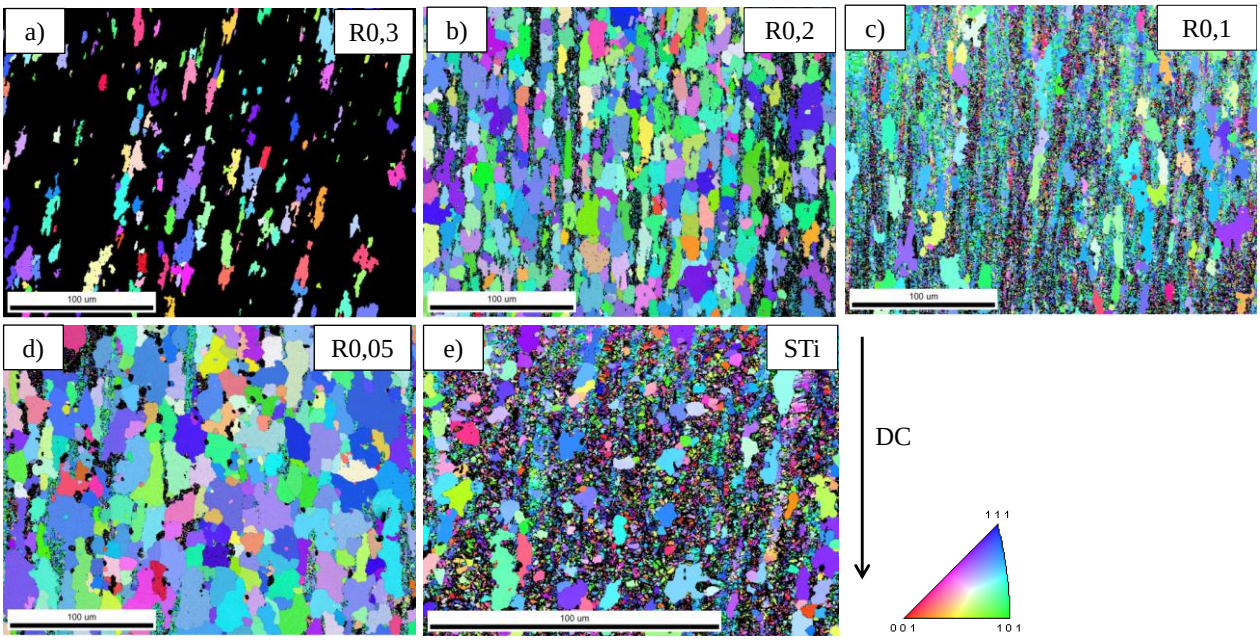


Figure IV.18 : Cartographies IPF des nuances ODS compressées (ε = 0,4) après un recuit d'1h à 1150°C

Dans la nuance R0,1 (Figure IV.18c), la fraction recristallisée est également particulièrement faible (environ 20%), le reste de la microstructure étant constitué de zones déformées non recristallisées et de zones martensitiques. Deux raisons peuvent expliquer cette faible fraction recristallisée : (i) une énergie stockée trop faible devant la pression d'épinglage, comme dans le cas de la nuance R0,3 ou (ii) la présence d'austénite à haute température. A notre sens, la deuxième raison est la plus probable puisque la première est contredite par la nuance R0,2 qui recristallise à plus de 70%.

La nuance R0,05 montre une fraction recristallisée particulièrement élevée et une très faible fraction de zones martensitiques. Nous n'avons pas d'éléments pour expliquer ce résultat surprenant car cette nuance montre habituellement une fraction de martensite élevée après un recuit d'une heure à 1150°C. Les grains sont aussi plus gros que dans le cas de la compression à ε = 0,7 et atteignent environ 10 µm. Pour la nuance STi, hormis la texture, la microstructure (Figure IV.18e) est similaire à celle de la microstructure (Figure IV.9e) recristallisée après une déformation de 0,7 (échelles différentes) : les grains ont une taille

de 4µm et la fraction de ferrite recristallisée est faible compte tenu d'une importante fraction d'austénite à haute température.

Les textures des grains de ferrites recristallisés ne sont pas présentées en détail ici puisqu'elles sont globalement proches des textures de déformation et peu intenses.

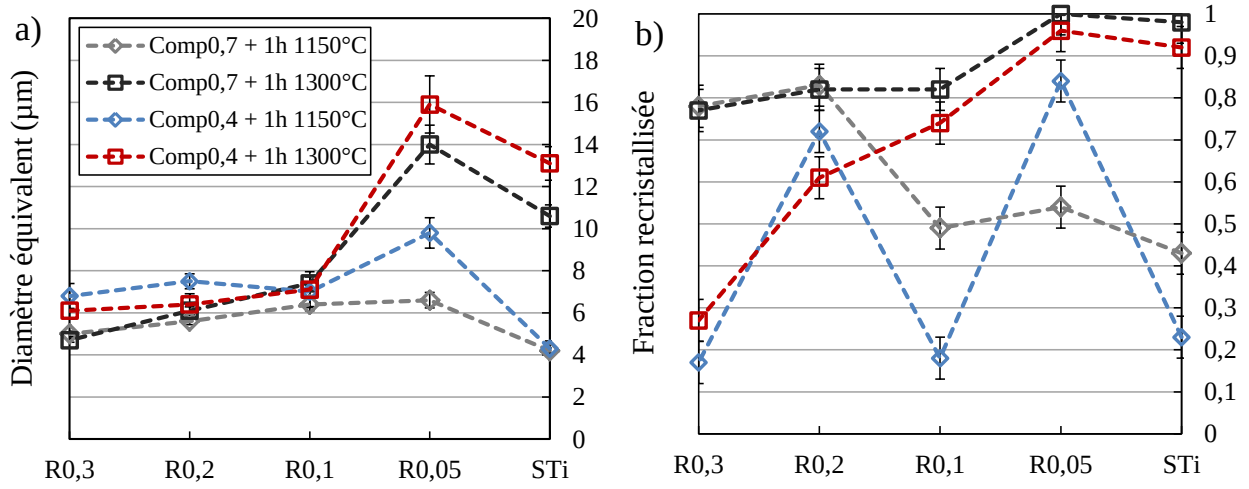


Figure IV.19: a) Diamètre équivalent des grains recristallisés et b) fraction recristallisée dans les nuances ODS compressées (ε = 0,4 et ε = 0,7) après des recuits d'1h à 1150°C et à 1300°C

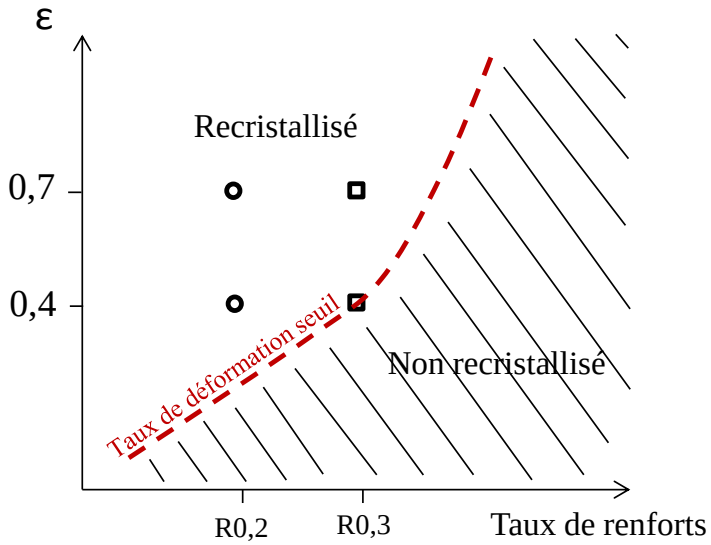


Figure IV.20 : Représentation schématique de l'influence du taux de renforts et du taux de déformation en CU//DF sur la recristallisation des nuances R0,2 et R0,3

L'augmentation de la température à 1300°C n'a que très peu d'effets sur les microstructures des nuances R0,3 et R0,2 (Figure IV.21a et b) quelle que soit la déformation. Cela souligne une nouvelle fois la stabilité thermique remarquable de ces deux nuances. Pour les 3 autres nuances ODS, moins renforcées, les microstructures (ε = 0,4) après recuit à 1300°C sont proches de celles obtenues avec ε = 0,7 (recuites à 1300°C également) comme le montre la Figure IV.19. Ainsi, la fraction recristallisée dans la nuance R0,1 augmente fortement de 20% à 1150°C jusqu'à plus de 70% à 1300°C mais la taille des grains reste similaire. L'effet de la température est de nouveaux particulièrement visible dans les nuances R0,05 et STi dont les microstructures sont recristallisées à plus de 90% à 1300°C et la taille des grains devient

supérieure à 13 µm. On constate de nouveau l'existence d'un régime de croissance de grains après recristallisation au vu des joints plans et on retrouve les nombreuses particules micrométriques aux joints de grains dans la nuance STi.

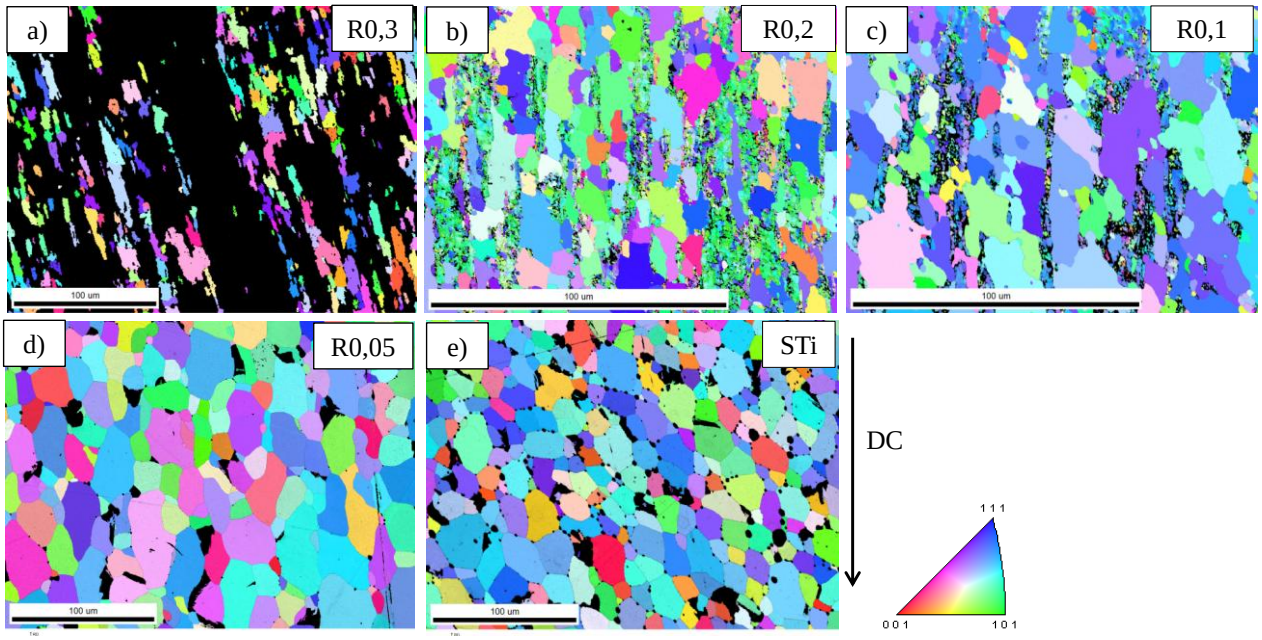


Figure IV.21 : Cartographies IPF des nuances ODS compressées (ε = 0,4) après un recuit d'1h à 1300°C

Les résultats obtenus sur l'influence du taux de déformation dans les nuances déformées et recristallisées sont les suivants :

- En CU//DF, la diminution du taux de déformation contribue à diminuer légèrement la densité de GND introduites dans le matériau.
- Les textures de déformation sont peu intenses, de même pour les textures de recristallisation.
- Dans la nuance R0,3, le taux de renforts est trop élevé pour que la microstructure recristallise significativement. Cela montre l'existence d'un taux de déformation seuil, dépendant du taux de renforts, en dessous duquel les microstructures ne recristallisent pas.
- Dans les autres nuances, le comportement des microstructures à 1150°C et à 1300°C est similaire à celui observé pour un taux de déformation de 0,7.

1.1.4 Etude de la nano-précipitation dans les états recuits

1.1.4.A Caractérisation des distributions de nanoparticules par DNPA

Les distributions des fractions volumiques de nanoparticules dans les états déformés par CU//DF de ε = 0,7 et recuits ont été mesurées par DNPA et comparées aux états filés recuits aux mêmes températures. Ces distributions sont présentées sur la Figure IV.22. Un tableau récapitulatif des valeurs est présenté en Annexe B.1.

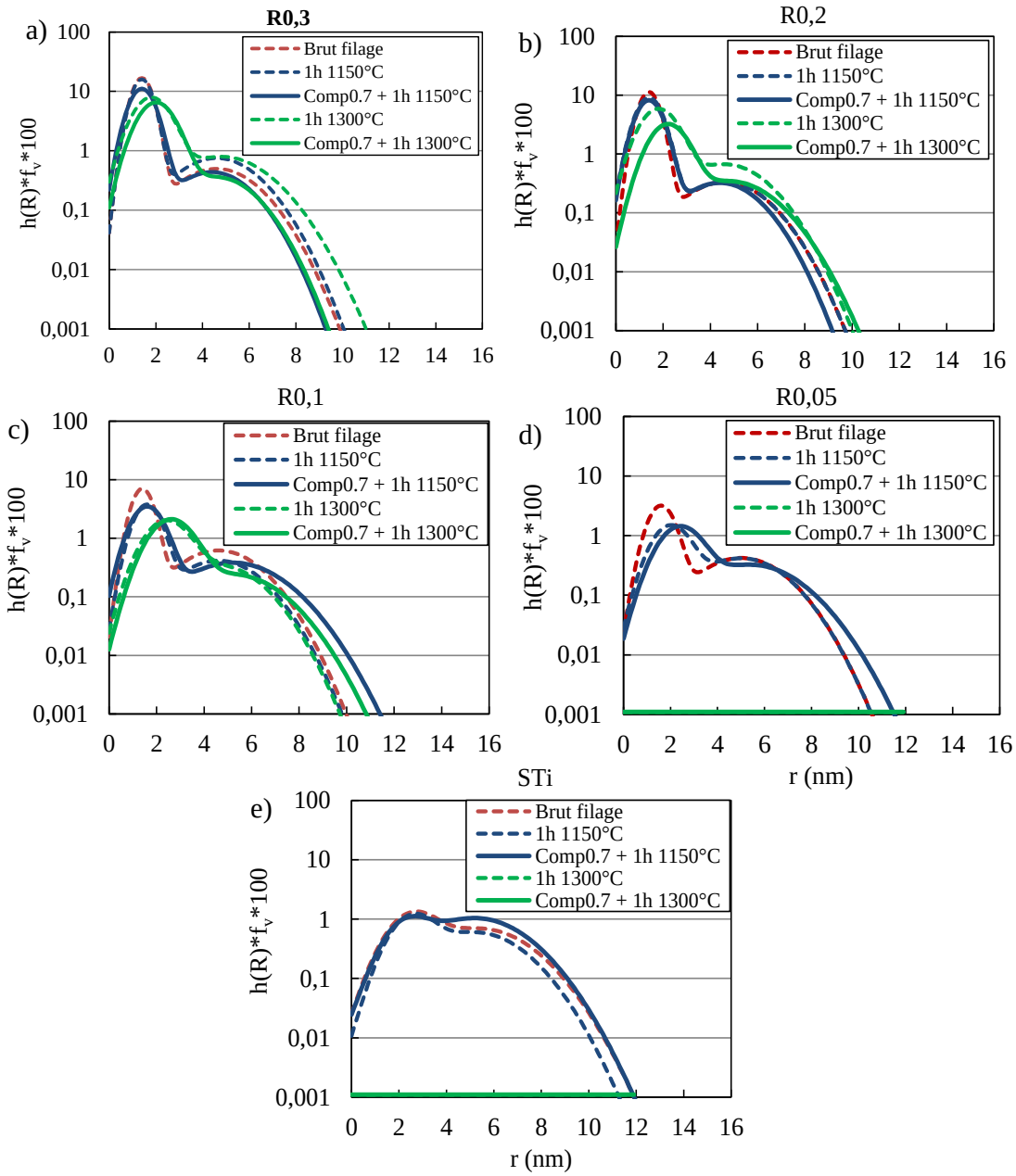


Figure IV.22 : Distributions de la fraction volumique de particules en fonction du rayon mesuré par DNPA après déformation et recuit dans les nuances ODS (les distributions sur les états non-déformés ont été ajouté pour comparaison)

De manière générale, les distributions de nanoparticules sont peu affectées par la recristallisation. En effet, on observe que pour chaque nuance, les distributions après compression et recuit à 1150°C et à 1300°C sont similaires à celles mesurées sur les états filées et recuits aux mêmes températures (courbes bleues et vertes pleines similaires à celles en pointillés). On retrouve ainsi la forte coalescence des nanoparticules dans les nuances R0,05 et STi après un recuit à 1300°C, qui permet une recristallisation complète suivie d'une croissance des grains comme nous avons pu le montrer précédemment.

Dans les nuances R0,1, R0,2 et R0,3, ces distributions sont particulièrement intéressantes puisqu'elles montrent que lors de la recristallisation, le franchissement des précipités de type $Y_2Ti_2O_7$ par des HAGB n'affectent pas (ou peu) leur résistance remarquable à la coalescence, du moins jusqu'à des recuits d'1h à

1300°C. Ce résultat n'en reste pas moins surprenant. En effet, le balayage des particules par des HAGB devrait normalement les rendre incohérentes en désorganisant leur interface. Des particules incohérentes présentent une énergie d'interface plus importante ce qui conduit soit à leur dissolution (si elles sont très petites) soit à les faire coalescer par murissement d'Ostwald. Or, ce n'est pas le cas ici, ce qui laisse penser que les nanoparticules pourraient toujours présenter une cohérence au moins partielle avec la matrice après recristallisation. Des analyses par microscopie à transmission en haute résolution (HRTEM) ont donc été menées pour vérifier l'existence de relations d'orientations entre les nanoparticules et la matrice après recristallisation.

1.1.4.B Analyse de la cohérence des particules après recristallisation

Cette analyse a été effectuée sur l'échantillon de la nuance R0,2 compressée de 0,7 et recuite 1h à 1150°C. Les observations ont été réalisées en mode haute résolution (HRTEM) sur le MET JEOL 2010 FEG du SRMA et sont visibles sur la Figure IV.23.

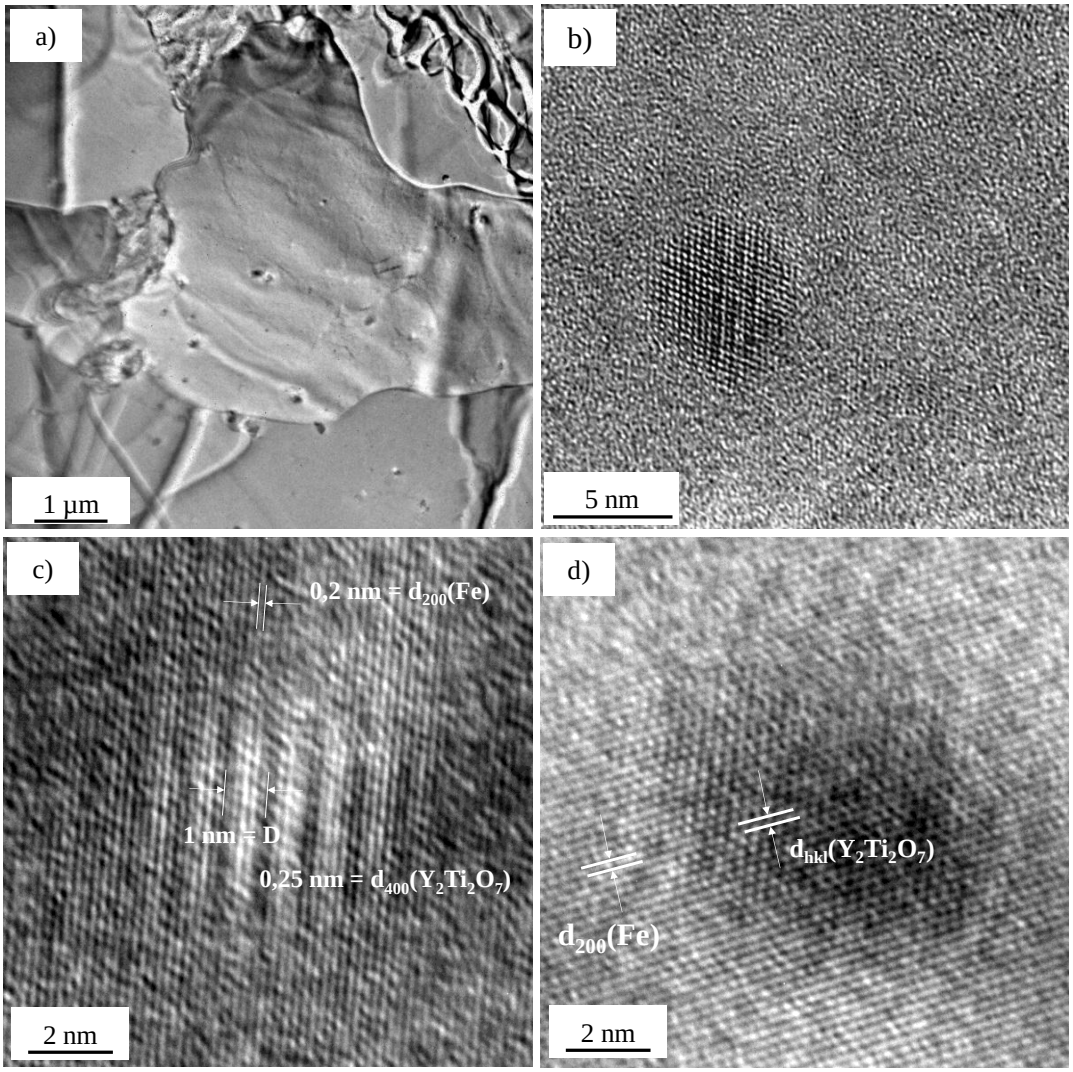


Figure IV.23 : Clichés MET en haute résolution de la nuance R0,2 compressée (ε = 0,7) et recuite 1h à 1150°C montrant a) les grains recristallisés, b) une particule semi-cohérente ou incohérente, c) des franges de Moiré indiquant une nano-particule d'$Y_2Ti_2O_7$ semi-cohérente avec la matrice et d) une nano-particule en cohérence partielle avec la matrice

Sur la Figure IV.23a, les grains recristallisés de la microstructure sont visibles et permettent de vérifier que les observations à plus fort grandissement sont bien faites sur un état recristallisé. La Figure IV.23b montre une particule de 5 nm où sont visibles les colonnes atomiques. Cette particule est en axe de zone ce qui n'est pas le cas de la matrice environnante, laissant penser que cette particule est incohérente ou seulement partiellement cohérente.

La Figure IV.23c est particulièrement intéressante puisqu'elle montre l'existence de franges de Moiré représentées par l'alternance de bandes claires et sombres. Ces franges sont issues de l'interférence spatiale du faisceau d'électrons avec deux réseaux (ici celui de la matrice et du précipité) superposés entre eux. Elles suggèrent notamment la présence de dislocations de misfit à l'interface. La distance D (1 nm) entre deux franges dépend des $d_{\{hkl\}}$ de la matrice et du précipité (respectivement d_1 et d_2) qui sont en relation d'orientation. On a la relation [12]:

$$D = \frac{d_1 \times d_2}{|d_2 - d_1|} \qquad \text{(IV.1)}$$

La distance d_1 entre les plans {200} de la matrice est égale à 0,2 nm. A partir de la valeur de D, on en déduit la valeur de d_2 que l'on trouve égale à 0,25 nm. Cette distance correspond à la $d_{\{400\}}$ des pyrochlores. Dans ce cas, on obtient que $\{400\}_{(Y2Ti2O7)}$ // $\{200\}_{(matrice)}$ ce qui correspond à la relation d'orientation cube-sur-cube déjà observée dans la littérature (Chapitre I). La particule est donc très probablement en relation semi-cohérente avec la matrice.

Enfin, sur la Figure IV.23d, on observe clairement le prolongement des colonnes atomiques de la matrice dans le précipité (en sombre) traduisant une cohérence partielle de ce précipité. Plus précisément, ce sont les plans {200} de la matrice qui sont en relation d'orientation avec une famille de plans du précipité (probablement la {110} au vu de la FFT, non présentée ici).

La cohérence au moins partielle des particules après recristallisation et balayage par un joint de grains est difficile à expliquer. On peut envisager un phénomène de dissolution au passage du joint de grains suivi d'une reprécipitation comme le propose Sallez *et al.* [13] mais cela parait ici peu envisageable au vu de la vitesse élevée du joint de grains. En effet, les mesures de calorimétrie présentées ci-après permettent de déduire que la vitesse minimale d'un joint de grains est d'environ 0,5 $\mu m.min^{-1}$ (recristallisation achevée en 6 min avec une taille des grains recristallisés égale à 5,6 µm). Dans ces conditions, une nanoparticule de 3 nm est balayée en environ 0,4 sec par un HAGB. Ce temps apparait court pour pouvoir envisager la remise en solution complète des atomes constituant la particule. De plus, les alignements de précipités observés par Sallez *et al.* [13] après passage du joint de grains n'ont pas été observés dans le cas présent. Ici, les nano-précipités sont plutôt répartis de manière homogène après recristallisation (Annexe B.2).

Dans les matériaux ODS bruts de consolidation, il a été noté que les nanoparticules les plus petites adoptaient quasiment systématiquement des relations d'orientations avec la matrice [12]. Le système présente alors un état stable avec des nanoparticules cohérentes (*i.e.* une faible énergie d'interface mais une certaine énergie élastique) plutôt que des nanoparticules incohérentes avec une énergie d'interface importante sans énergie élastique. Dans le cas présent, le passage d'un joint de grains fortement désorienté va nécessairement rompre cette cohérence mais le système va toujours chercher à minimiser son énergie avec des nano-phases cohérentes. Il existe de nombreuses relations d'orientations possibles entre deux phases de structures cubiques (*cfc* pour les nano-oxydes et *cc* pour la matrice). Ainsi, il est envisageable que lors du passage du joint de grains, l'interface de la particule est désorganisée et perd sa cohérence

mais à la fin du passage du joint (ou juste après), la particule se réorganise à l'interface (on peut aussi envisager qu'elle pivote légèrement) et retrouve une relation d'orientation avec le nouveau grain. Parmi ces relations d'orientations, il est envisageable que certaines soient caractérisées par une désorientation angulaire entre la matrice et le précipité autour d'un axe conduisant à une interface avec des atomes en regards les uns des autres (symétrie axiale analogue au maclage). Ces relations de cohérences perturbent peu l'environnement local des atomes et permettent donc à la particule de conserver une énergie d'interface faible.

Pour aller plus loin dans l'analyse de ces phénomènes, différentes propositions d'études peuvent être avancées :

- Une étude statistique sur les orientations avant et après recristallisation entre nano-phases et matrice. Des recuits à plus haute température seraient sans doute nécessaires pour faire murir les phases et faciliter les observations.
- Des examens *in-situ* dans un MET avec un porte objet chauffant dans lequel on parviendrait à suivre l'avancée d'un joint de grain lors de la recristallisation et son interaction avec les nano-phases.

Ces résultats sont intéressants pour le développement des ODS puisqu'ils montrent que dans certaines conditions, les différentes évolutions microstructurales que le matériau peut subir pendant la mise en forme n'affectent que très peu la distribution de nanoparticules ce qui permet de conserver des propriétés mécaniques élevées.

1.1.5 Mesure des températures de recristallisation

Afin de déterminer plus précisément les températures de recristallisation, des essais de calorimétrie différentielle à balayage (DSC) ont été réalisés sur les échantillons compressés à $\varepsilon = 0,4$ et 0,7. Il a été particulièrement difficile de repérer la signature thermique de la recristallisation pour plusieurs raisons. Tout d'abord, l'énergie libérée pour une recristallisation complète (enthalpie de recristallisation) est limitée (de l'ordre de 1 $J.g^{-1}$ [14][15]) et dans notre cas, la recristallisation n'est souvent que partielle, ce qui rend cette valeur encore plus faible. De plus, les pics de recristallisation peuvent apparaître dans des gammes de températures similaires à celles des transformations des phases $\alpha \rightarrow \gamma$ et $\gamma \rightarrow \delta$ ou même au pic de Curie.

Ainsi, le pic exothermique associé à la recristallisation a pu être observé uniquement dans la nuance R0,2 pour les deux taux de déformation et dans la nuance R0,3 pour $\varepsilon = 0,7$. Les courbes sont présentées sur la Figure IV.24 et les températures associées aux pics ainsi que les énergies libérées sont visibles dans le Tableau IV.3. On précise que les valeurs d'énergie libérée sont particulièrement soumises aux incertitudes, à cause de la faible taille des pics.

Sur la Figure IV.24, on remarque aisément la présence de pics pour les états compressés là où aucun phénomène thermique n'était visible dans les états filés. Les résultats obtenus sur ces trois échantillons déformés permettent d'identifier à la fois l'effet du taux de renforts et celui du taux de déformation sur le déclenchement de la recristallisation. Dans le cas de la nuance R0,2, le pic de recristallisation se situe à 1050°C pour l'état compressé de 0,7, ce qui est inférieure d'environ 40°C à l'échantillon compressé de 0,4 (T_{pic} = 1090°C). L'augmentation du taux de déformation et donc de la densité de dislocations permet de diminuer la température de recristallisation, comme a pu l'observer Réglé [9] après des déformations par étirage et martelage d'un acier ODS MA957. L'énergie libérée par la recristallisation (partielle) E_{Rx} est plus faible pour $\varepsilon = 0,4$ que pour $\varepsilon = 0,7$. Cela pourrait évoquer une fraction recristallisée moins

importante, bien que les analyses EBSD ne montrent pas d'écart significatif (72% pour ε = 0,4 et 82% pour ε = 0,7 sur la Figure IV.19b).

Il est également intéressant de noter que l'augmentation du taux de renforts retarde le déclenchement de la recristallisation. Pour une déformation de 0,7, T_{pic} est égale à 1080°C dans la nuance R0,3, au lieu de 1050°C dans la nuance R0,2. Ce résultat montre ici l'influence du taux de renforts sur la germination : plus il est élevé, plus l'énergie thermique à apporter pour former des germes de recristallisation est importante.

A partir de la vitesse de chauffage (10°C/min) et de la largeur des pics de recristallisation (T_{offset}-T_{onset}), on peut estimer le temps mis par les échantillons pour recristalliser. La largeur des pics est d'environ 60°C pour les échantillons R0,2 Comp0,4 et R0,3 Comp0,7 et de 90°C pour la nuance R0,2 Comp0,7. Cela donne donc lieu à une recristallisation des matériaux en 6 et 9 min, respectivement. Ces temps sont particulièrement courts du fait de la température élevée.

Etat	T_{pic} (°C)	T_{onset} (°C)	T_{offset} (°C)	E_{Rx} (J.g^{-1})
R0,2 Comp0,4	1090	1065	1115	0,36
R0,2 Comp0,7	1050	1015	1100	1,05
R0,3 Comp0,7	1080	1050	1110	0,83

Tableau IV.3 : Températures et énergies libérées par la recristallisation des nuances R0,2 et R0,3 compressées à froid

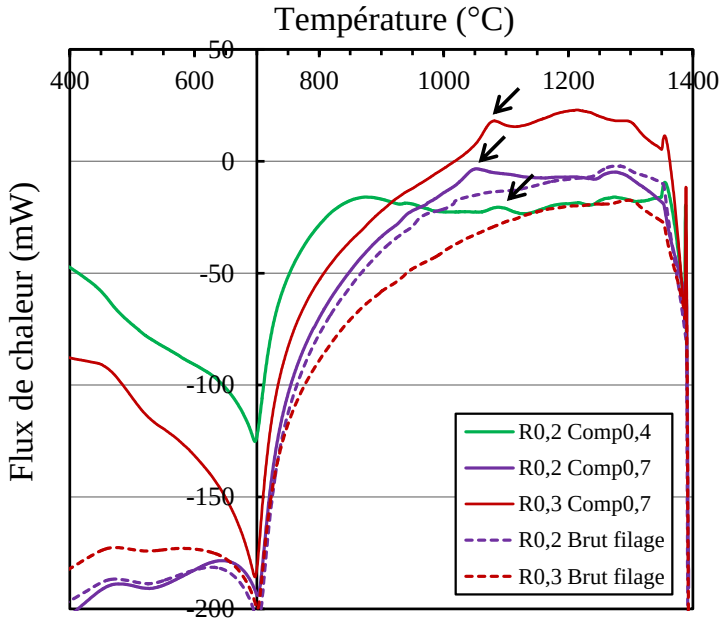


Figure IV.24 : Courbes de calorimétrie des nuances R0,2 et R0,3 brutes de filage et après déformation par CU//DF

1.1.6 Discussion des mécanismes de germination

Il ne fait aucun doute que la recristallisation observée ici est une recristallisation statique discontinue puisque comme nous l'avons vu précédemment, on distingue aisément les grains recristallisés séparés de la matrice écrouie par des HAGB. Néanmoins, la manière dont se forment les germes qui aboutissent ensuite aux nouveaux grains recristallisés reste ambigüe. Deux mécanismes sont régulièrement évoqués dans la littérature mais il est difficile d'en mettre clairement un en avant au détriment de l'autre, cela principalement pour des raisons d'échelles car les germes peuvent être particulièrement fins (~ 0,1 µm [16]). Des analyses par microscopie à transmission peuvent alors s'avérer judicieuses pour tenter d'apporter des réponses plus précises à ces questions [17][18]. Les deux mécanismes évoqués sont [11] :

- Une germination par restauration et coalescence de cellules de dislocations qui conduit à la formation d'un sous-grain exempt de défaut qui croît et se désoriente progressivement par rapport à la matrice. Il en résulte un germe de recristallisation fortement désorienté avec la matrice. Ce mécanisme s'effectue dans les zones les plus déformées avec un important gradient d'orientations (voisinage des HAGB, grosses particules, bandes de transition ou de déformation), puisque ces zones sont les plus instables [11]. C'est ce mécanisme qui, ayant lieu préférentiellement dans les zones orientées différemment de la fibre <111>//DC dans nos échantillons compressés, expliquerait l'atténuation de la texture de déformation après recristallisation.
- Germination par le mécanisme de *strain induced boundary migration* (SIBM) où certains sous-grains au voisinage de HAGB déjà existant présentent une faible énergie stockée après déformation et vont croître dans le grain déformé adjacent par « *bulging* » lors du recuit. Il n'y a donc pas d'étape de restauration ou de coalescence de cellules dans ce cas. Progressivement, ces sous-grains vont devenir des grains à part entière, avec l'orientation cristallographique du grain parent. Ce dernier peut encore être observable dans la microstructure lorsque la recristallisation n'est pas terminée.

Les résultats présentés ci-dessous et la discussion associée ont pour but d'identifier le mécanisme qui est mis en jeu. Cette analyse a été effectuée sur la nuance conventionnelle R0,2 déformée à un taux de 0,7. On verra qu'à notre échelle d'analyse, on se doit de rester prudent sur les interprétations mais il est très probable que les 2 mécanismes aient lieu.

L'investigation des mécanismes de germination a nécessité d'effectuer un traitement thermique très court (quelques secondes) à la température de recristallisation mesurée par calorimétrie (ici 1100°C) suivi d'une trempe pour pouvoir observer l'apparition des premiers germes recristallisés. La cartographie IPF et la carte d'énergie stockée associée sont présentées sur la Figure IV.25. Pour la cartographie IPF, on représente volontairement les directions cristallographiques des grains parallèles à DT (habituellement on considère DC = DF comme référence) pour que les désorientations entre les germes et la matrice soient mieux visibles (selon DF, la fibre <111> fait que beaucoup de grains apparaissent en bleu). On distingue aisément la présence de zones recristallisées qui correspondent aux zones bleues sur la carte de densité de dislocations, où celle-ci est comprise entre 10^{13} et 10^{14} m^{-2}. Notons qu'aucune zone avec une densité de dislocations inférieures à 10^{14} m^{-2} n'étaient observées avant recuit dans la microstructure déformée (Figure IV.7b). Certaines de ces zones sont inférieures à 0,5 µm de diamètre et peuvent encore être considérées comme des germes. D'autres, à l'inverse, mesurent déjà plusieurs micromètres et peuvent être considérées comme des grains recristallisés. La densité de GND (entre 10^{13} et 10^{14} m^{-2}) paraît importante pour des grains recristallisés et elle est vraisemblablement surestimée. Ceci est dû au fait que le pas d'analyse de 100 nm utilisé ici devient trop faible pour mesurer de manière représentative la désorientation dans les grains recristallisés (qui est pratiquement nulle). En d'autres termes, la contribution du bruit de fond devient significative dans la valeur mesurée du gradient d'orientation [19].

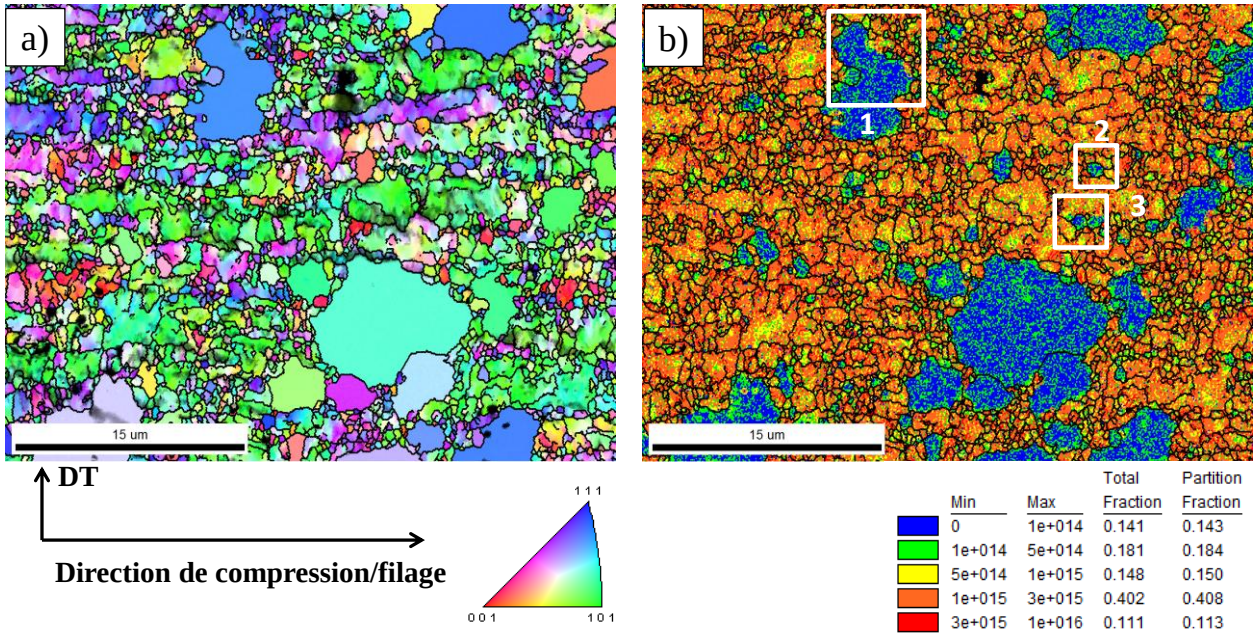


Figure IV.25: a) Cartographie IPF (directions cristallographiques // DT) de la nuance R0,2 recuite à 1100°C et trempée et b) carte des densités de dislocations associée

Nous avons pu identifier 3 zones d'intérêt dans cette microstructure dont les zooms sont présentés sur la Figure IV.26. Les joints de grains fortement désorientés (HAGB) sont représentés en noir.

- Zone 1 : Cette zone montre clairement le développement d'un grain qui recristallise par le mécanisme de SIBM. En effet, on distingue aisément la partie déformée du grain (entourée en rouge) et la partie recristallisée. Cette dernière est séparée de la matrice écrouie par un front de recristallisation découpé suivant les pressions locales motrices et d'ancrages. Il s'agit là d'un stade déjà avancé du mécanisme SIBM puisque que la partie recristallisée est beaucoup plus grosse que la partie déformée. La partie recristallisée du grain est faiblement désorientée de 4° par rapport à la partie déformée.
- Zone 2 : Contrairement à la zone 1, on observe ici la présence d'un grain (ou germe compte tenu de sa faible taille) recristallisé en violet fortement désorienté par rapport à tous les grains voisins et on n'identifie pas la présence d'un grain parent avec une orientation similaire. A priori, ce grain pourrait être issu de la restauration et croissance et/ou coalescence de cellules de dislocations. Cependant, on ne peut pas exclure la possibilité que ce grain ait germé par un mécanisme SIBM et que la partie déformée du grain soit située en dessous (dans l'épaisseur) et donc invisible sur une coupe 2D (effet topologique).
- Zone 3 : Cette zone est particulièrement intéressante du fait qu'elle présente les deux mécanismes évoqués précédemment pratiquement côte à côte. D'une part, on observe la formation d'un germe par le mécanisme SIBM où le sous-grain recristallisé est désorienté de 9° par rapport au grain parent. Le stade de croissance de ce germe est beaucoup moins avancé que dans la zone 1. Une partie du grain rouge sur la droite de la carte montre également un début de « *bulging* ». D'autre part, comme dans la zone 2, un grain recristallisé fortement désorienté par rapport à la matrice déformée est observé, signe plutôt d'un mécanisme impliquant une restauration et un réarrangement de cellules de dislocations.

L'analyse fine de ces différentes zones permet de montrer que les deux mécanismes de germination évoqués précédemment pourraient entrer en jeu, même si il faut rester prudent au regard des effets topologiques. Les observations montrant les premiers stades de la recristallisation sont en accord avec celles faites suite aux recuits isothermes d'une heure, à savoir qu'il ne semble pas exister d'orientations cristallographiques préférentielles pour la formation des germes. Ce résultat diffère du comportement des métaux *cc* plus conventionnels (aciers IF et bas carbone notamment) dans la littérature (Chapitre I) ou la plupart des études montrent, après déformation par laminage, l'émergence de grains recristallisés appartenant à la fibre γ (direction <111> parallèle à ND). On peut aussi s'intéresser aux conditions qui permettent la croissance d'un germe (formé par SIBM ou par restauration). Cela implique une analyse des forces motrices et des forces d'épinglages en présence.

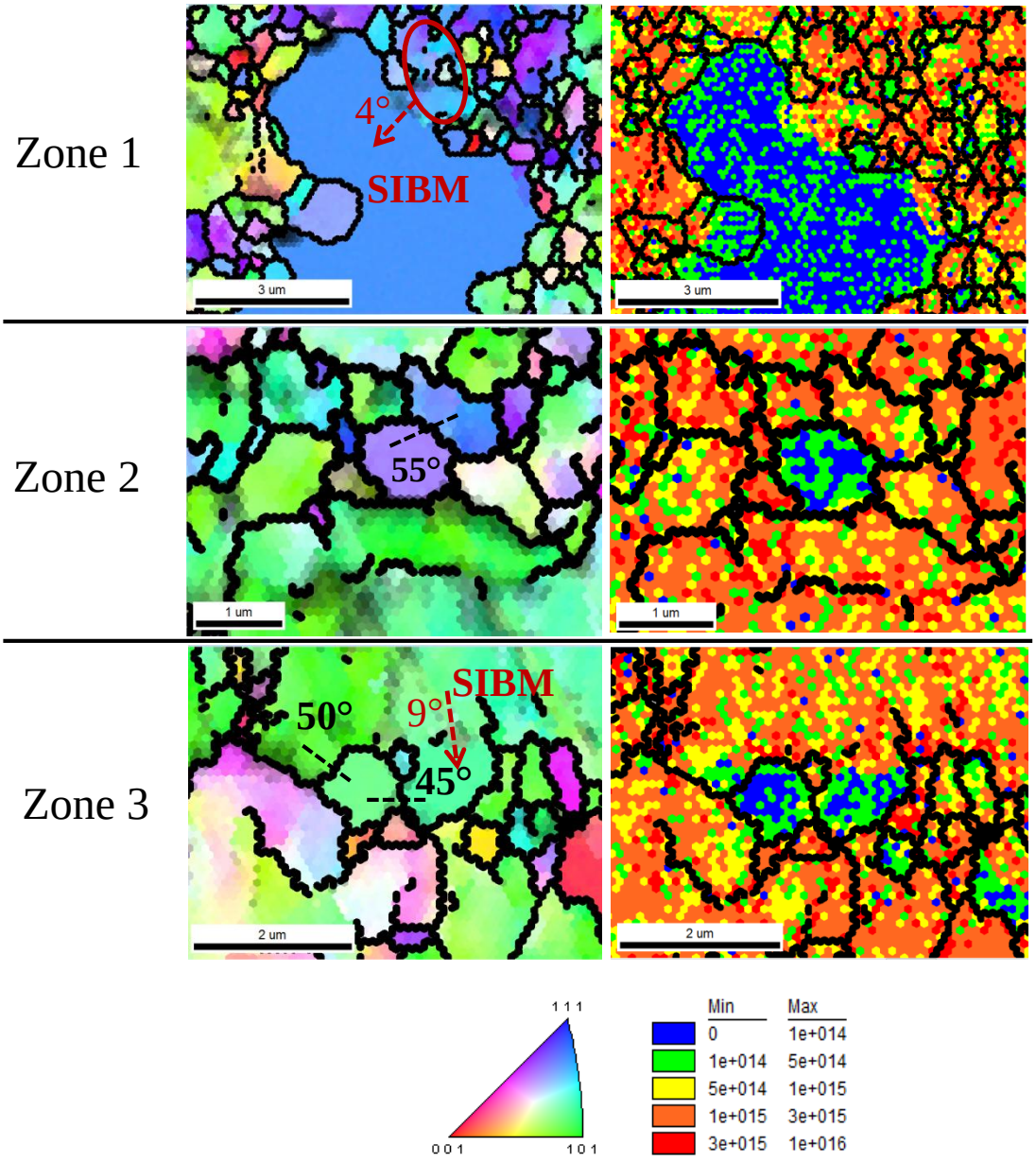


Figure IV.26 : Germination des grains recristallisés dans 3 zones différentes et cartes des densités de dislocations associées

Dans les premiers stades de la germination, la pression totale qui s'exerce sur les interfaces du germe recristallisé s'exprime telle que :

$$P_{tot} = E_s - P_c - P_z \quad \text{(IV.2)}$$

Où E_S est la pression motrice due à l'énergie stockée ($E_s = 0{,}5Gb^2\rho_{GND}$), P_c est la pression capillaire aux joints de grains et P_z est la pression d'épinglage, définie par la relation de Zener. Si P_{tot} est positive le germe peut croître. Autrement, selon les pressions qui interviennent, le germe peut soit disparaître soit ne pas se développer et rester à l'état de germe. La pression capilllaire P_c est ici considérée négativement puisque la faible taille des germes recristallisés fait que ceux-ci vont présenter des interfaces convexes (bombées vers l'extérieur), et donc des rayons de courbure positifs. La seule force motrice pour la croissance des germes est donc celle générée par le gradient d'énergie stockée. L'expression analytique de la pression capillaire qui s'exerce sur un grain et plus particulièrement la relation entre sa forme et son rayon de courbure ont fait l'objet de nombreuses études, synthétisées par Manohar et al. [20]. Dans les approches analytiques, les grains sont régulièrement considérés comme étant sphériques et on approxime le rayon de courbure d'un grain ρ à son rayon R (relation de Burke et Turnbull), ce qui conduit à la relation $P_c = 2\gamma/R$, avec γ l'énergie d'interface. Néanmoins, cette approximation des grains sphériques conduit à surestimer la pression capillaire. Afin de décrire plus précisément le rayon de courbure ρ et de prendre en compte l'environnement locale des grains, Feltham [21] propose de décrire, via des approximations géométriques, la relation entre ρ et le rayon du grain R en fonction du nombre de voisins *n* que présente le grain (en 2D) :

$$\frac{R}{\rho} = sin\left[\frac{\pi}{6}\left(1 - \frac{6}{n}\right)\right] / sin\left[\frac{\pi}{6} \times \frac{6}{n}\right] \quad \text{(IV.3)}$$

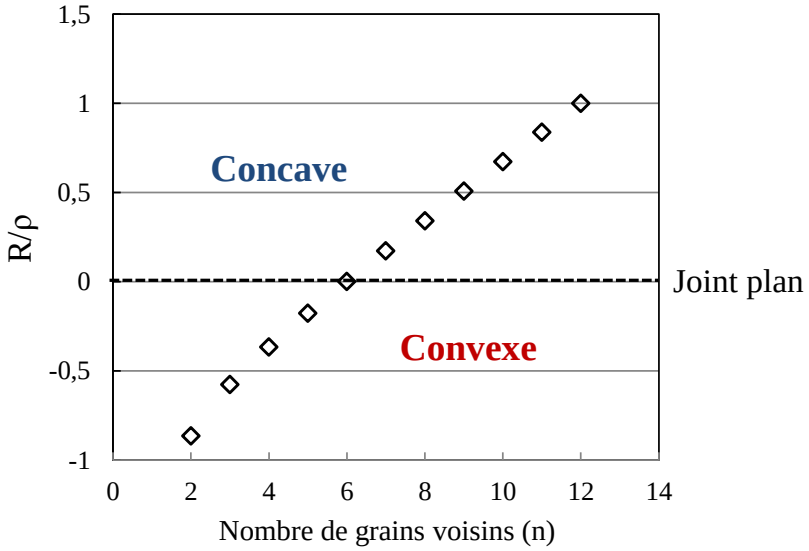


Figure IV.27 : Evolution du rapport entre le rayon de courbure et le rayon du grain en fonction du nombre de grains voisins basée sur l'équation de Feltham

La valeur de n = 6 est considérée comme la valeur la plus probable dans un ensemble de grains à l'équilibre en 2D. Elle correspond à des joints plans et donc à une pression capillaire nulle. On voit que plus le nombre de grains voisins diminue, plus le germe peut être assimilé à une sphère (ρ = R), où le signe négatif traduit la force motrice négative du fait de la nature convexe des joints. A l'inverse, lorsque

le nombre de voisins devient supérieur à 6, les interfaces sont concaves (bombées vers l'intérieur du grain) et pour un nombre de voisins égale à 12 en 2D, la courbure peut de nouveau être assimilée au rayon du grain, mais cette fois avec un signe positif traduisant la nature motrice de la pression capillaire. Cependant, on rappelle que dans le cas des germes, la faible taille conduit en général à un nombre de voisins limité (inférieur à 6) et donc à des interfaces convexes.

On propose ici d'étudier 4 configurations de germes dont les paramètres sont présentés dans le Tableau IV.4. Celles-ci sont définies par 2 environnements représentés schématiquement sur la Figure IV.28 (2 grains ou 5 grains déformés voisins) et deux rayons de germe : 0,05 nm et 0,5 µm. Ainsi, les configurations I et II correspondent à un germe dans l'environnement de la Figure IV.28a tandis que les configurations III et IV correspondent à un germe dans l'environnement montré sur la Figure IV.28b. Conformément aux observations expérimentales, on considère que les germes sont fortement désorientés (formation du germe terminé dans le cas du SIBM) par rapport à la matrice (γ = 0,79 J.m^{-2}). On propose ici de s'intéresser à la condition sur l'énergie stockée (via la valeur de la densité de GND) dans les grains déformés voisins pour permettre la croissance de ces germes. La pression de Zener est fixe et est calculée à partir de la fraction volumique et du rayon des particules mesurés en DNPA dans la nuance R0,2 avant recristallisation. Elle est égale à 9,3 MPa. Il est possible d'appliquer cette étude à une autre nuance, simplement en changeant la valeur de la pression de Zener.

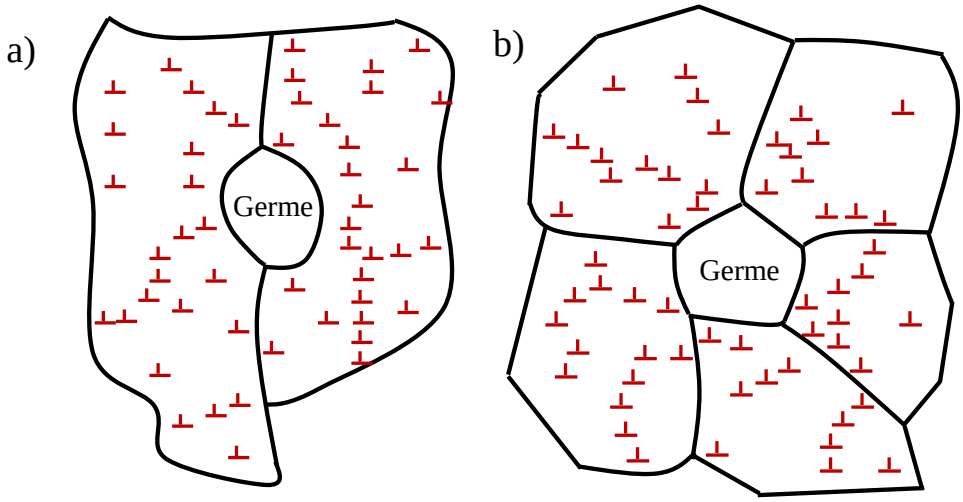


Figure IV.28 : Schéma d'un germe recristallisé dans la microstructure déformée dans deux configuration : a) 2 grains voisins et b) 5 grains voisins. Les ⊥ représentent les dislocations dans les grains déformés voisins du germe.

Configuration	I	II	III	IV
Nb grains voisins	2	2	5	5
R (µm)	0,05	0,5	0,05	0,5
R/ρ	-0,9	-0,9	-0,2	-0,2

Tableau IV.4 : Paramètres des 4 configurations de germes étudiées

Sur la Figure IV.29, on peut voir l'évolution de la pression totale P_{tot} qui s'applique sur le germe en fonction de la densité moyenne de GND dans les grains déformés environnants. On rappelle que P_{tot} doit être positive pour que le germe recristallisé puisse croître. Il apparaît clairement que la configuration I (courbe bleue) est la plus défavorable du fait de la très petite taille du germe (diamètre de 0,1 µm) et d'un nombre de grains voisins faible qui conduit à une morphologie presque sphérique du grain. La pression capillaire qui s'applique sur le germe est considérable (27 MPa). Cela conduit à une densité de GND critique pour la croissance d'un tel germe supérieure à 10^{16} m^{-2}, ce qui est une valeur très élevée et

difficilement atteignable en moyenne, même suite à des procédés d'hyperdéformation comme le broyage. Inversement, la configuration IV est la plus favorable du fait de la faible courbure des interfaces et de la taille plus élevée du germe ce qui conduit à une pression capillaire (négative) de seulement 0,5 MPa. La valeur de ρ_{GND} critique dans cette configuration est d'environ 4.10^{15} m^{-2}. Les configurations II et III constituent des cas intermédiaires où les densités de GND critiques sont respectivement de 5.10^{15} et 6.10^{15} m^{-2}.

Si on compare ces valeurs à la relation de Bailey et Hirsch [22] qui prédit le rayon critique R_{crit} minimum qu'un germe doit avoir pour qu'il puisse croître, les résultats obtenus sont très différents. Cette relation est définie telle que pour un grain sphérique (équivalent à 2 voisins sur la Figure IV.27), on a :

$$R_{crit} = \frac{2\gamma}{E_s} \qquad \text{(IV.4)}$$

En considérant la densité de dislocation moyenne de 2.10^{15} m^{-2}, le rayon critique serait alors de 0,33 µm. De même, il serait de 0,13 µm pour une densité de dislocation moyenne de 5.10^{15} m^{-2}. Dans notre cas, les rayons critiques sont très supérieurs à ces valeurs puisque pour un grain sphérique (2 voisins) et une densité de 5.10^{15} m^{-2}, le rayon critique est de 0,5 µm, soit environ 4 fois plus important que la valeur de 0,13 µm prédite par la relation de Bailey et Hirsch. Cela est dû au fait que dans le cas des ODS, la présence de particules fait que le rayon initial du germe doit être beaucoup plus élevé pour que celui-ci puisse croître.

Suite à l'étude de ces différentes configurations, on peut noter que si l'on considère uniquement la valeur moyenne de densité de GND mesurée dans l'état déformé (2.10^{15} m^{-2} dans la nuance R0,2 après CU//DF de ε = 0,7), les germes ne peuvent croître dans aucune des configurations du Tableau IV.4. Cependant, comme la distribution de l'énergie stockée dans les polycristaux est hétérogène, ce qu'on observe facilement au vu des cartes de densité de dislocations, la croissance de germes dans des configurations optimales (type configuration IV) va pouvoir se faire dans les zones de plus hautes énergies stockées.

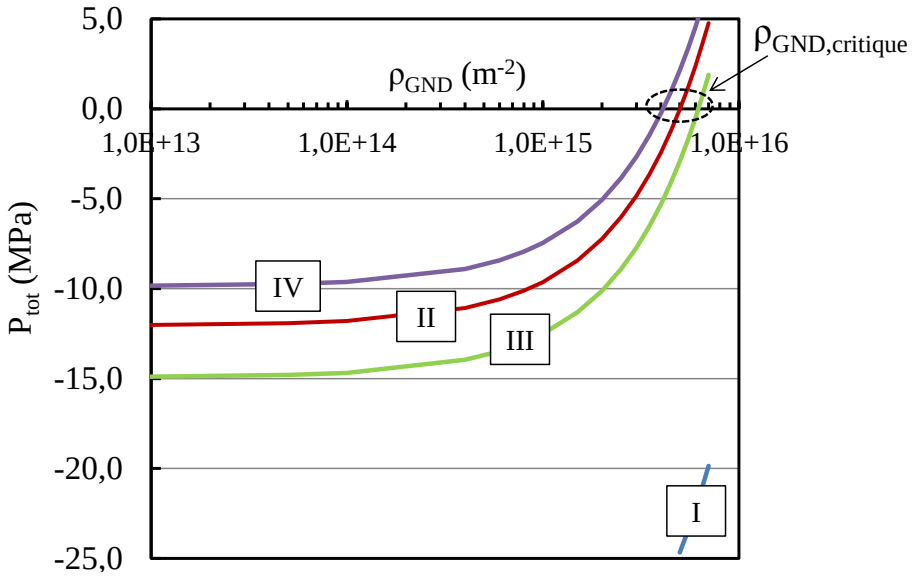


Figure IV.29 : Evolution de la pression totale P_{tot} en fonction de la densité de dislocations dans les grains déformés pour les 4 configurations de germes dans la nuance R0,2

Cependant, il est vrai qu'au regard des cartes de densités de dislocations de la Figure IV.26, les grains déformés autour des germes ne présentent pas une densité de GND supérieure à la valeur critique énoncée précédemment de 4.10^{15} m^{-2} (les pixels oranges indiquent une densité ρ_{GND} de 3.10^{15} m^{-2} au maximum). En réalité, dans la microstructure déformée, seuls 8% des pixels ont une densité de GND supérieure à 4.10^{15} m^{-2} et il est donc difficile d'expliquer la croissance des germes qui conduit à une fraction recristallisée de plus de 80% suite aux recuits isothermes à 1150°C et 1300°C dans la nuance R0,2. Plusieurs explications peuvent être proposées pour expliquer cela :

- Une sous-estimation de l'énergie stockée dans le matériau puisque l'on mesure uniquement la densité de dislocations géométriquement nécessaires (qui induisent un gradient d'orientations dans la microstructure) avec les analyses EBSD. On ne connaît pas la densité de SSD (dislocations statistiquement stockées) après déformation. Si celle-ci est significative, l'énergie stockée pourrait alors être suffisante pour expliquer cette fraction recristallisée élevée. Cependant, suite à une déformation plastique importante comme c'est la cas ici, la majorité des dislocations permettent l'accommodation de la déformation [23]. Cela est d'autant plus vrai dans notre matériau qui présente une densité élevée de nano-précipités sur lesquels les dislocations vont rapidement s'ancrer [24]. Ces dernières seront majoritairement géométriquement nécessaires (GND) bien qu'il puisse également subsister des dislocations de signe opposé qui ne s'annihilent pas (SSD). Il serait donc intéressant de vérifier la contribution des SSD à l'énergie stockée par diffraction des neutrons comme l'ont fait Ateba-Betanda et al. [25] dans le cas d'un alliage Fe-48%Ni laminé à froid à 99%. Les auteurs avaient alors trouvé une faible contribution (environ 8%) des SSD dans ce matériau de structure *cfc*.

- Une surestimation de la pression d'épinglage (ici pression de Zener). Nous avons montré dans le Chapitre III que les fractions volumiques mesurées par DNPA étaient supérieures aux valeurs théoriques et nous avions expliqué cela par des écarts à la stœchiométrie dans les nano-oxydes de type $Y_2Ti_2O_7$. Il est néanmoins possibles que la DNPA conduise à surestimer légèrement les fractions volumiques dans ce type de matériaux où les précipités sont supposés totalement amagnétiques. Une autre éventualité est que le formalisme de Zener utilisé ici ne soit pas adapté pour décrire l'épinglage des interfaces par des nanoparticules cohérentes ou semi-cohérentes dont la taille est seulement de quelques nanomètres, comparables à l'épaisseur d'un joint de grains. Néanmoins, à l'heure actuelle, il n'y a pas eu à notre connaissance de travaux portés sur le développement d'un formalisme spécifiquement dédié à ce cas de figure.

On a donc montré ici que la capacité d'un germe formé à croître dans la microstructure déformée dépend fortement de son environnement local, en particulier dans les aciers ODS, où les forces d'épinglages sont très importantes. Même si la présente étude a été effectuée sur la base de cas modèles qui peuvent s'écarter de la réalité, l'analyse globale reste pertinente.

1.2 Influence du chemin de déformation

1.2.1 Etats déformés

Afin d'étudier l'influence du chemin de déformation sur la recristallisation des ODS, les nuances ont également été déformées par compression uniaxiale dans une direction perpendiculaire à la direction filage (parallèle à la direction transverse DT de la barre), selon le schéma présenté sur la Figure IV.30. La

déformation appliquée ε est de 0,7. On présente ici sur les résultats obtenus sur les nuances R0,2 et STi. Par la suite, ce mode de déformation sera noté CU//DT.

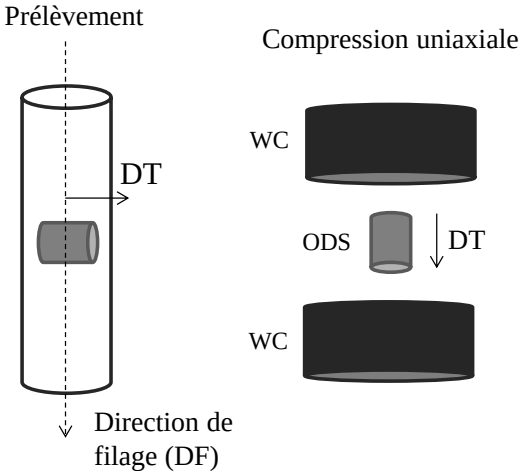


Figure IV.30 : Schéma du prélèvement du pion et de la déformation par CU//DT

La géométrie des pions étant identique à celle pour la CU//DF, on considère que la distribution de la déformation après compression est similaire et donc maximale le long de la ligne médiane (ou du plan médian en 3D) et minimale proche des deux faces. Les observations sont donc effectuées à proximité de la ligne médiane sur la coupe du pion.

Les états déformés ont été analysés par EBSD. Les cartographies IPF et les textures obtenues sont présentées sur la Figure IV.31. Après compression, les grains et/ou cellules présentent des morphologies très fines et étirées dans la direction de filage, à l'inverse des états bruts de filage où une partie des grains (les petits majoritairement) étaient encore relativement équiaxes. Ici, le diamètre équivalent moyen des cellules dans les nuances R0,2 et STi est respectivement de 0,34 µm et 0,41 µm, ce qui est légèrement supérieur aux tailles obtenues pour la CU//DF avec le même taux de déformation de 0,7 (Tableau IV.5). En revanche la fraction totale de sous-joints, égale à 65% pour les deux nuances, est inférieure à celles après CU//DF. Dans ces deux microstructures, les densité de GND mesurées au centre des échantillons sont de $1{,}5.10^{15}$ m^{-2} (R0,2) et $1{,}3.10^{15}$ m^{-2} (STi). On précise que dans la nuance R0,2, la densité de GND sur les bords est seulement de 1.10^{15} m^{-2}. Ces valeurs sont sensiblement plus faibles que celles obtenues dans le cas de la CU//DF pour les deux taux de déformation de 0,7 et 0,4 (Tableau IV.5). Cela peut s'expliquer en partie par le fait qu'il n'y a pas ici de flambage des grains lors de la déformation qui permettrait l'existence de zones localement très déformées. Néanmoins, elles restent bien supérieures aux densités de dislocations dans les états filés comprises entre 2.10^{14} m^{-2} et 7.10^{14} m^{-2}.

Nuance	Déformation	Taille cellule (µm)	Fraction sous-joints 2<θ<10 (%)	ρ_{GND} moyenne (m^{-2})
R0,2	CU//DT (ε = 0,7)	0,34	65	$1{,}5.10^{15}$
	CU//DF (ε = 0,7)	0,31	75	$2{,}0.10^{15}$
	CU//DF (ε = 0,4)	0,38	72	$1{,}8.10^{15}$
STi	CU//DT (ε = 0,7)	0,41	65	$1{,}3.10^{15}$
	CU//DF (ε = 0,7)	0,33	78	$1{,}8.10^{15}$
	CU//DF (ε = 0,4)	0,41	70	$1{,}5.10^{15}$

Tableau IV.5 : Récapitulatif des caractéristiques microstructurales des nuances R0,2 et STi suite aux différentes déformations par compression

De même, la texture de déformation est très différente de ce qui a pu être observé jusqu'à maintenant. Sur les Figure IV.31c et d, on constate la disparation de la nature fibreuse de la texture observée après filage puisque les grains s'orientent ici exclusivement selon deux orientations de la fibre α : {111}⟨110⟩ et {001}⟨110⟩. Exceptionnellement, on précise qu'ici la description des textures est faite différemment : la direction ⟨110⟩ est parallèle à DF (comme dans le reste du manuscrit) mais les plans $\{hkl\}$ mentionnés sont ici dans le plan (DF, DN), ce qui veut dire que la direction normale à ces plans est perpendiculaire à la direction de compression DT (dans le reste du manuscrit, les plans $\{hkl\}$ sont dans le plan (DF,DT) et les directions normales aux plans sont parallèles à DN). Cette description de la texture permet dans le cas présent de visualiser directement les directions cristallographiques alignées avec la direction de compression via le plan $\{hkl\}$. Ainsi, une partie des grains aligne leur direction <111> parallèlement à la direction de compression, tandis pour l'autre partie des grains, c'est la direction <001> qui est alignée avec la direction de compression.

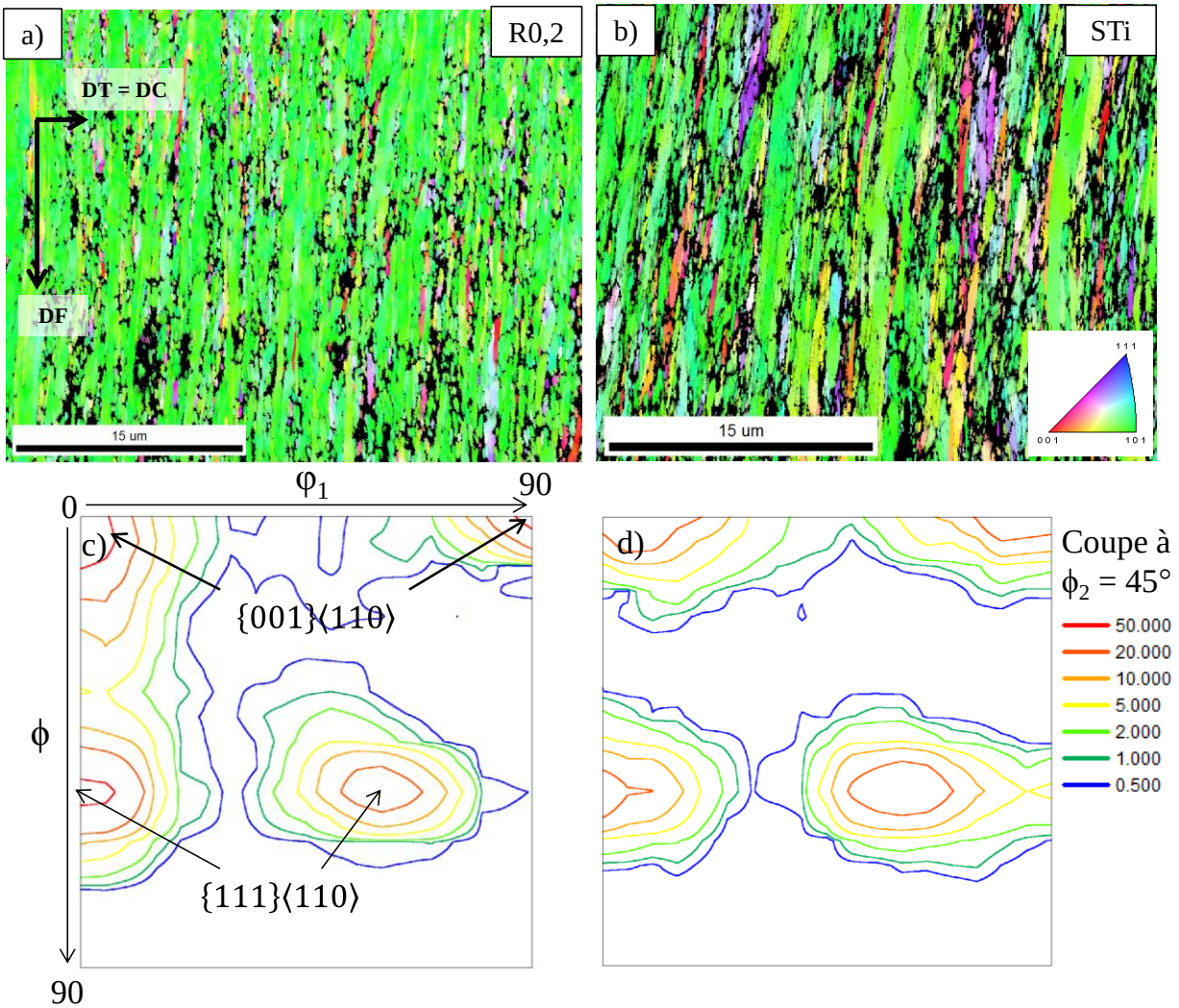


Figure IV.31 : Cartographie IPF (directions cristallographiques // DF) des nuances a) R0,2 et b) STi après CU//DT avec ε = 0,7 et coupes de l'ODF à φ_2 = 45° associées : c) R0,2 et d) STi

Les différences notables de ces microstructures obtenues par CU//DT avec celles de l'état de réception et celles obtenues par CU//DF laissent présager des mécanismes de recristallisation tout autres.

1.2.1 Etats recuits

Comme pour les autres modes de déformation, les microstructures ont subi des traitements isothermes d'une heure à 1150°C et à 1300°C.

1.2.1.A Nuance R0,2

Les cartographies IPF issues des analyses EBSD sur les états recuits de la nuance R0,2 sont présentées sur la Figure IV.32. Les échantillons recristallisent de manière très hétérogène. La Figure IV.32a est une représentation schématique de l'échantillon où l'on a indiqué la zone recristallisée en rouge. Celle-ci adopte la forme de la « croix du forgeron » où la déformation est localisée. La forme de ces zones recristallisées est similaire après les 2 traitements thermiques. La cartographie de l'état recuit à 1150°C a été faite au centre de l'échantillon. On observe de gros grains recristallisés et très allongés dans la direction de filage. Leur taille est de plusieurs dizaines de µm selon DT et plusieurs centaines de µm selon DF. La texture de recristallisation est très marquée puisque la plupart de ces gros grains présentent une orientation{112}⟨111⟩ (DT normale au plan {hkl} et direction <111> // DF).

Cette orientation cristallographique particulière n'était pas clairement visible dans la microstructure déformée sur la Figure IV.31a. Deux hypothèses sont donc envisageables (si on considère qu'un germe recristallisé est nécessairement issu d'une zone préexistante dans la matrice déformée [16]) : soit cette orientation existait sous la forme de très petites cellules de dislocations réparties de manière très ponctuelle dans la microstructure écrouie, une énergie stockée plus faible dans ces cellules et leur forte désorientation avec la matrice leur permettraient alors une croissance rapide, de manière analogue au développement de la texture Cube dans l'invar (Fe-36% Ni) [26]. La deuxième hypothèse est que cette orientation soit issue d'une rotation, lors de l'étape de germination, de cellules initialement orientées différemment. Cette deuxième hypothèse est néanmoins peu probable puisque pour aligner la direction <111> avec DF, une cellule initialement orientée <110>//DF (orientation majoritaire dans la microstructure déformée) devrait effectuer une rotation de 35° ce qui est considérable. Dans l'état recuit à 1300°C, les grains recristallisés sont plus petits et la texture plus aléatoire mais cela est simplement lié à un effet de zone, du fait que la cartographie IPF a été réalisée plus proche des extrémités de l'échantillon.

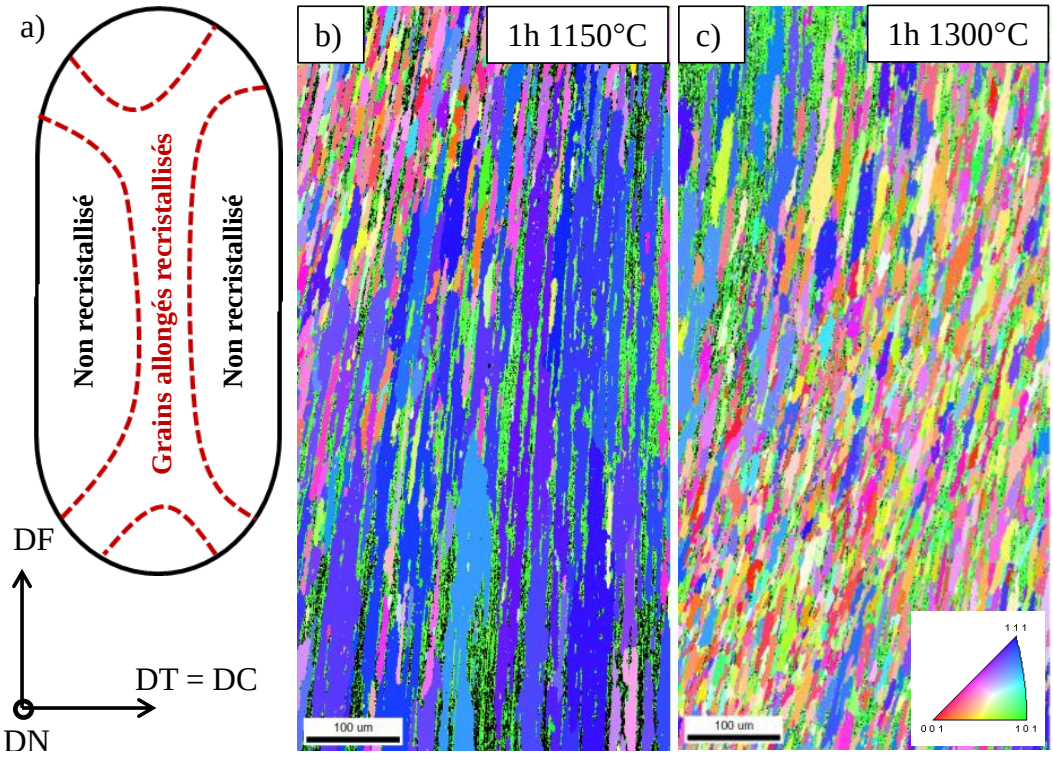


Figure IV.32 : Nuance R0,2 déformée par CU//DT (ε = 0,7) : a) Schéma du pion compressé et de la zone recristallisée et cartographies IPF (référence DF) des états recuits b) 1h à 1150°C et c) 1h à 1300°C

Suite aux deux recuits, la taille importante des grains et leur morphologie allongée est nécessairement associé à un nombre de germes faible [27] et à une microstructure hétérogène. Ce faible nombre de germes est dû à l'énergie stockée en moyenne moins importante qu'après la CU//DF et à la pression d'épinglage qui reste considérable. Les raisons qui aboutissent à une telle morphologie des grains recristallisés peuvent être diverses et ne sont pas toujours totalement comprises. Ainsi, Guessama *et al.* [28], dans un ODS Fe-Al, évoquent un alignement des particules de 50-100 nm dans la direction de filage, qui empêchent les grains de croître dans la direction transverse. Cependant, dans les nuances ODS CEA, des observations au MET menées par Praud [29] sur des barres après filage ne montre pas spécialement d'alignement des nanoparticules dans la direction de filage et celles-ci sont plutôt réparties de manière homogène.

Un autre mécanisme, proposé par Samet-Meziou *et al.* [17] dans un acier IF laminé, consiste à dire que des sous-grains restaurés (*i.e.* germes) vont croître au sein du grain lamellaire parent auquel ils appartiennent mais ne vont pas se propager dans les grains lamellaires voisins du fait de la courbure infinie des joints de grains et donc de la pression capillaire nulle. Ce mécanisme donne effectivement lieu à des grains recristallisés allongés. Néanmoins, on pourrait évoquer ce mécanisme uniquement si les gros grains recristallisés présentaient la même orientation que les grains étirés de la microstructure déformée à savoir l'orientation {111}⟨110⟩ ou {001}⟨110⟩, ce qui n'est pas le cas. De plus, ici, un joint de grains avec une courbure infinie entre un grain recristallisé et un grain déformé est soumis à la pression générée par le gradient d'énergie stockée et peut donc être mobile même si la pression capillaire est quant à elle nulle. Pour être valide, le mécanisme proposé par Samet-Meziou *et al.* requiert donc que l'énergie stockée soit similaire de part et d'autre du joint, ce qui conduit à une pression motrice volumique nulle.

Ici, le mécanisme le plus probable s'appuie sur une distribution hétérogène de l'énergie stockée. La Figure IV.33 montre la distribution de la densité de GND dans la nuance R0,2 (dans une zone zoomée de la Figure IV.31a) après CU//DT. Dans l'ensemble, on remarque que la densité est maximale selon des bandes parallèles à la direction de filage. Ces bandes sont corrélées à la présence des sous-joints, en majorité parallèles à la direction de filage. A l'inverse, la densité de GND reste relativement faible à l'intérieur des cellules de dislocations où elle est inférieure à 1.10^{15} m^{-2} (pixels jaunes et verts).

Considérons un germe équiaxe issu d'une zone initialement peu déformée (SIBM) ou bien d'une ou plusieurs cellules restaurées. Ce germe est fortement désorienté par rapport à des grains étirés de la matrice écrouie, schématisé sur la Figure IV.34. Selon la direction de compression (DT), le germe a une forte probabilité de ne pas « voir » les zones de haute énergie stockée (bandes rouges) au niveau des sous-joints et d'être voisin de cellules peu déformées. La force motrice est donc faible ($\Delta E \approx 0$) devant la pression d'épinglage (constante dans toutes les directions) et le germe recristallisé ne peut donc pas croître selon DT. On peut considérer les cellules peu déformées comme des « obstacles » à la croissance d'un grain recristallisé selon DT. A l'inverse, selon la direction DF, le germe est en contact avec les zones de hautes énergies stockées (dislocations accumulées aux sous-joints). La force motrice est donc importante et si elle est supérieure aux forces d'épinglages, le germe va croître selon DF en se propageant dans les zones de hautes énergies stockées, conduisant aux morphologies très allongées observées. Ce mécanisme est proche de celui observé par Sandim *et al.* [30] dans un ODS base Nickel où les grains recristallisés adoptent des formes d'aiguilles en croissant le long des sous-joints.

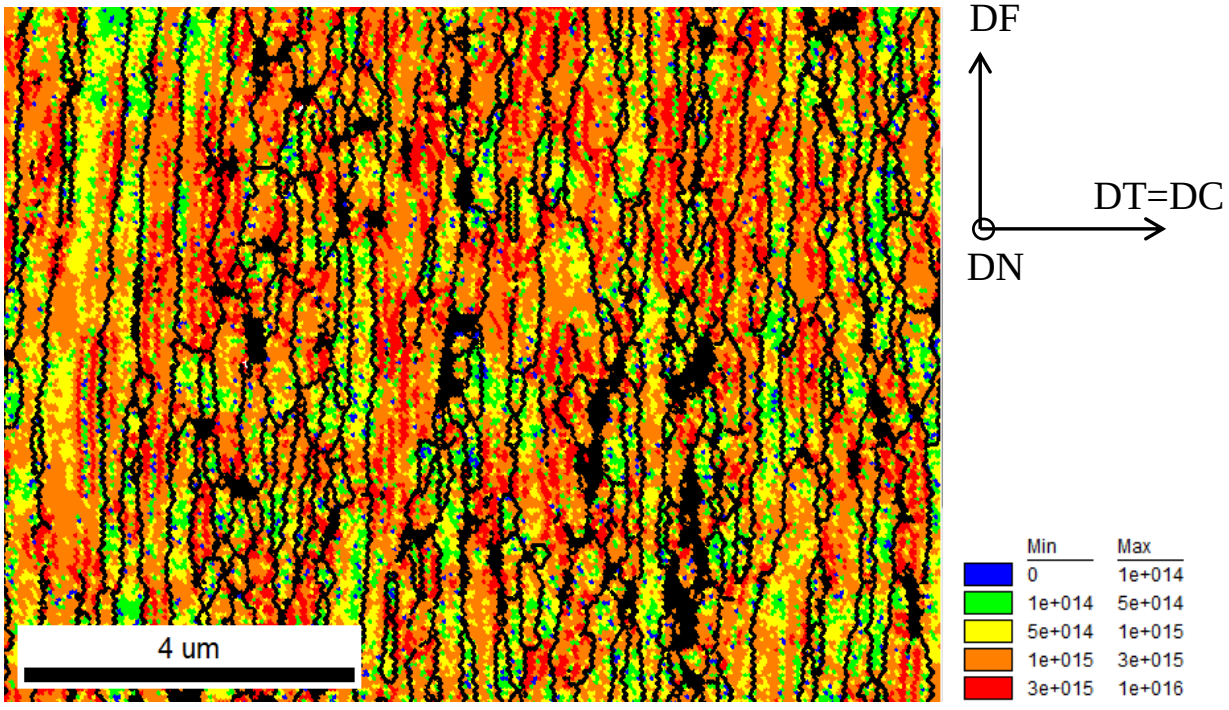


Figure IV.33 : Carte de densité de GND dans la nuance R0,2 déformée par CU//DT ($\varepsilon = 0,7$)

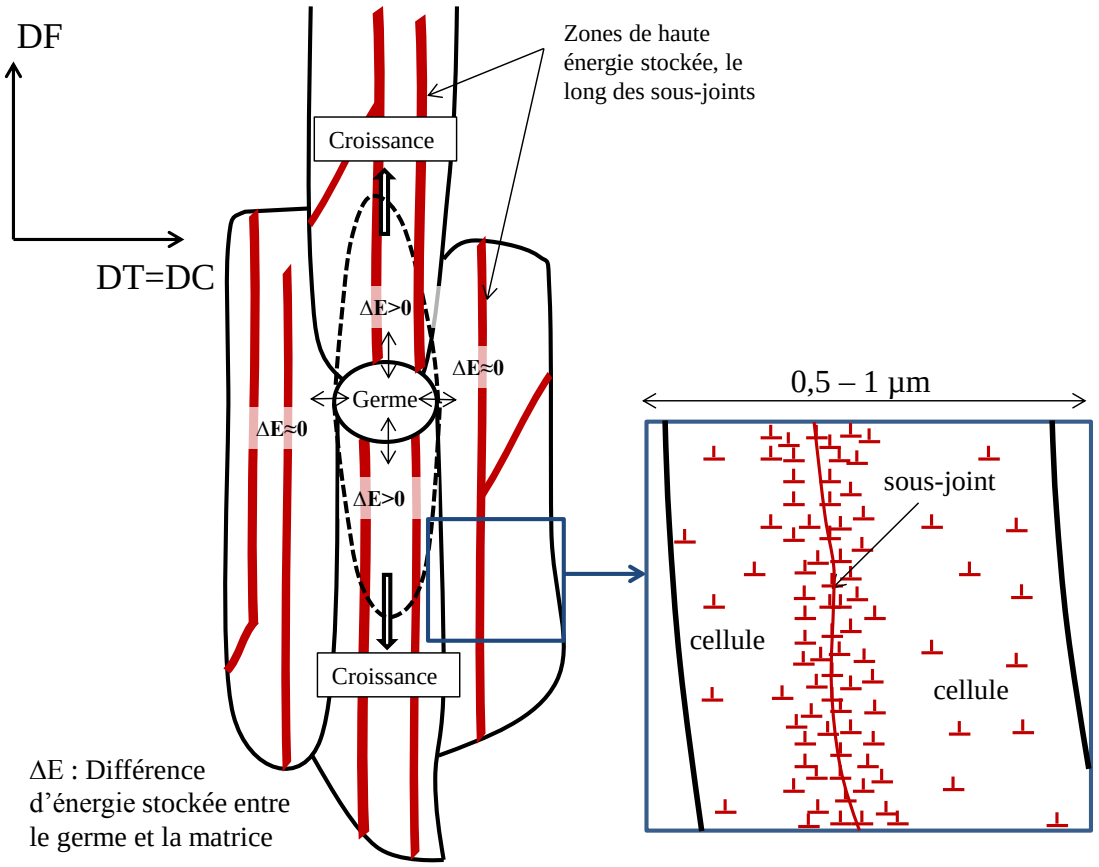


Figure IV.34 : Représentation schématique de la recristallisation primaire dans la nuance R0,2 déformée par CU//DT (ε = 0,7). Sur le zoom, les ⊥ représentent les GND, leur densité est élevée au niveau du sous-joint et faible à l'intérieur des cellules de part et d'autre du sous-joint

1.2.1.B Nuance STi

En ce qui concerne la nuance STi, suite au recuit d'une heure à 1150°C, la microstructure, visible en Annexe A.6, montre une recristallisation discontinue partielle (40%). Les grains recristallisés sont beaucoup plus petits (diamètre équivalent de 3,7 µm), plus équiaxes et leur texture est plus proche de celle de la microstructure déformée que dans la nuance R0,2. Nous ne détaillerons pas ici les mécanismes qui conduisent à une telle microstructure. Ils sont probablement similaires à ceux décrits pour la nuance R0,2 mais avec un équilibre différent entre les pressions. Cependant, la faible fraction recristallisée dans cette microstructure est intéressante puisqu'elle montre que même après déformation à froid, la diminution du taux de renforts ne permet pas de recristalliser plus facilement.

On propose de s'attarder ici sur la microstructure obtenue après le recuit d'une heure à 1300°C dont les cartographies IPF et de désorientation des joints de grains sont présentées sur la Figure IV.35. La texture est visible sur la coupe de l'ODF sur la Figure IV.36. La microstructure est similaire à celle obtenue après restauration généralisée dans l'état filé non déformé (Chapitre III). En effet, on observe des grains équiaxes de taille homogène, une fraction importante de joints de grains faiblement désorientés (34%) et une texture très proche de la texture de déformation (Figure IV.31d) avec une intensification des orientations {001}⟨110⟩ et {111}⟨110⟩. La taille moyenne des sous-grains après 1h à 1300°C est ici de 12 µm ce qui est relativement proche de la valeur obtenue après le même recuit sur l'état filé (Chapitre III), qui était de 9,5 µm. Les particules micrométriques aux joints de grains sont aussi visibles.

On a donc ici aussi un mécanisme de restauration généralisée caractérisé par une croissance des sous-grains et un maintien de la texture de déformation. On rappelle que ce mécanisme peut être assimilé à une recristallisation continue. Il est donc intéressant de noter que la coalescence des particules associée à une énergie stockée limitée induit un changement du mécanisme de recristallisation. En effet, dans le cas de la CU//DF, l'atténuation de la texture de déformation et la disparition de tous les sous-joints au profit de HAGB après recristallisation était caractéristique d'une recristallisation discontinue, même après coalescence des particules à 1300°C.

Ce changement de mécanisme peut s'expliquer par le fait que dans les métaux à haute énergie de fautes d'empilement (aciers ferritiques, aluminiums), les dislocations peuvent facilement bouger et s'annihiler entre elles lors d'un recuit, donnant lieu à de la restauration. Cependant, lorsque le matériau est suffisamment déformé, la répartition hétérogène de l'énergie stockée va conduire localement à la formation de germes pendant un recuit et à leur croissance de manière discontinue dans la microstructure. De la même manière, la présence de nanoparticules, qui vont bloquer le mouvement des dislocations, conduit à inhiber ce mécanisme de restauration généralisée. Il semblerait donc que c'est en l'absence de nanoparticules et lorsque l'énergie stockée est trop faible pour permettre la formation et la croissance de germes que le mécanisme de restauration généralisée a lieu. Dans le cas des compressions parallèlement à DF, cette restauration généralisée n'est pas observée même après coalescence des particules dans les nuances R0,05 et STi probablement car des micro-flambages des grains permettent la création d'hétérogénéités d'énergie stockée suffisantes pour déclencher une recristallisation discontinue.

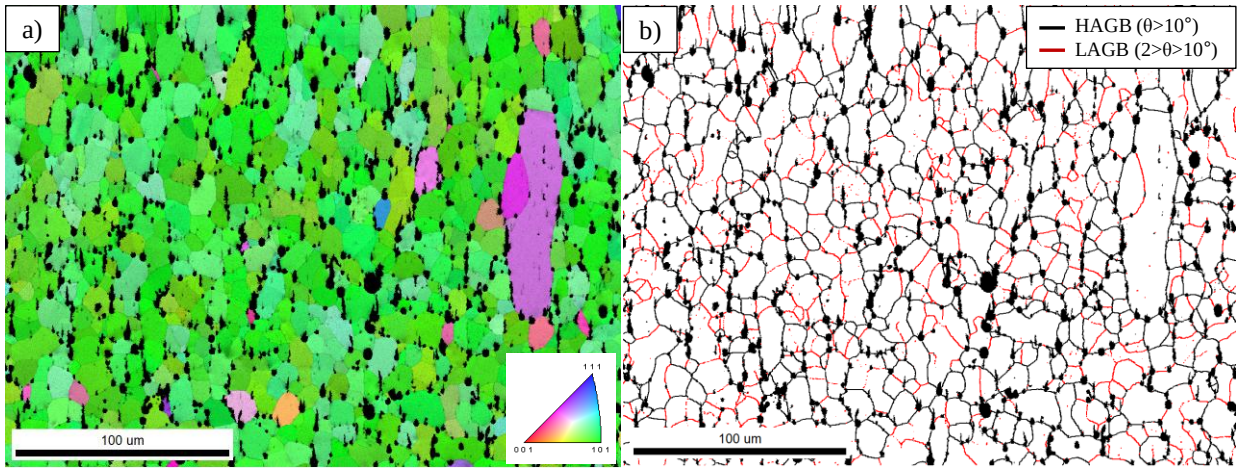


Figure IV.35 : a) Cartographie IPF (référence DF) et b) désorientation des joints de grains dans la nuance STi déformée par CU//DF (ε = 0,7) et recuite 1h à 1300°C

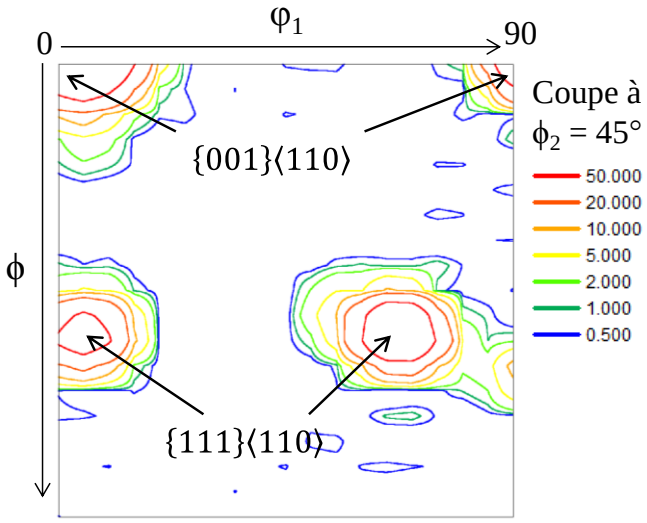


Figure IV.36 : Coupe de l'ODF à φ_2 = 45° de la nuance R0,2 déformée par CU//DT (ε = 0,7) et recuite 1h à 1300°C

Concernant les microstructures déformées par CU//DT et les mécanismes de recristallisation associés, les principaux résultats obtenus sont :

- La CU//DT induit une texture marquée caractérisée par les 2 orientations {001}⟨110⟩ et {111}⟨110⟩ .
- Pour un même taux de déformation (0,7), l'énergie stockée introduite par CU//DT est plus faible que par CU//DF du fait qu'il n'y a pas de flambage des grains lors de la déformation
- Dans l'état déformé, l'énergie stockée est répartie de manière hétérogène : elle est maximale le long des sous-joints de grains parallèlement à la direction de filage et reste faible à l'intérieur des cellules de dislocations.
- Dans la nuance conventionnelle R0,2, une recristallisation discontinue partielle est observée uniquement selon la « croix de forgeron » à 1150°C et à 1300°C : les grains sont alors très allongés dans la direction filage (plusieurs centaines de µm) à cause de la distribution hétérogène de l'énergie stockée. La texture de recristallisation est très différente de la texture de déformation.
- Lorsque l'énergie stockée après déformation est faible, la diminution du taux de renforts ne facilite pas particulièrement la recristallisation.
- Dans la nuance STi, une restauration généralisée est observée à 1300°C due à la coalescence des nanoparticules qui favorise le mouvement des dislocations et le réarrangement des sous-joints, et ne permet pas la création de germes de recristallisation par un mécanisme discontinu.

2. Compression multi-axiale alternée

Comme nous l'avons mentionné dans le Chapitre 2, la compression multi-axiale alternée (CMAA) est un procédé d'hyper-déformation permettant de compresser le matériau de manière alternative dans deux directions tandis que la troisième, ici la direction de filage, est contrainte. La déformation selon cette direction macroscopique est alors nulle. Dans ce cas, l'hypothèse de la déformation plane dans les deux autres directions peut être considérée. L'avantage de ce mode de déformation est qu'il est plus proche des procédés utilisés pour la mise en forme des tubes de gainage (type laminage à pas de pélerin) que la

CU//DF, ou même que la CU//DT. L'utilisation de l'hyper-déformation comme procédé de mise en forme (*e.g.* broyage, écrouissage, affinage des grains) ou plus généralement pour étudier le comportement plastique des matériaux métalliques a fait l'objet de nombreux travaux (liste non exhaustive : [31][32][33][34]). Ici l'intérêt est d'étudier l'influence d'un taux de déformation particulièrement important sur la capacité des ODS à recristalliser. De plus, des études sur différents matériaux ont déjà montré que l'hyper-déformation pouvait entrainer l'amorphisation [34] et même la dissolution [35][36][37] des précipités due au balayage successif des dislocations créées par la déformation plastique. Un tel phénomène n'a encore jamais été mis en évidence concernant les nano-phases de type $Y_2Ti_2O_7$ dans les aciers ODS et nous allons donc nous y intéresser. On s'est donc proposé de mener cette étude sur la nuance conventionnelle R0,2. La compression multi-axiale alternée (qui sera abrégée CMAA par la suite) est réalisée avec le module *MaxStrain* de la Gleeble 3800 installée au LMTM à l'EPFL.

2.1 Comportement mécanique

L'éprouvette (schéma de la Figure IV.37) a subi 30 compressions alternées selon les directions DT et DN (15 selon chaque direction), perpendiculairement à la direction de filage DF. La largeur initiale l_0 de la partie utile est de 6 mm et la longueur initiale L_0 est de 12 mm. L'évolution de la contrainte équivalente (définie dans le Chapitre II) en fonction de la déformation ainsi que celle de la déformation équivalente à chaque frappe *i* sont présentées sur la Figure IV.38. Les calculs de la contrainte et de la déformation équivalente sont présentés dans le Chapitre II.

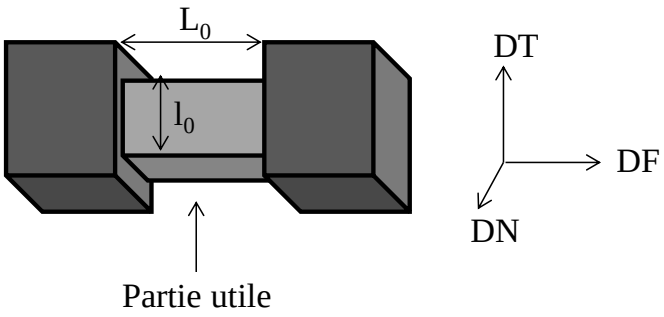


Figure IV.37: Schéma de l'éprouvette initiale et des directions macroscopiques considérées

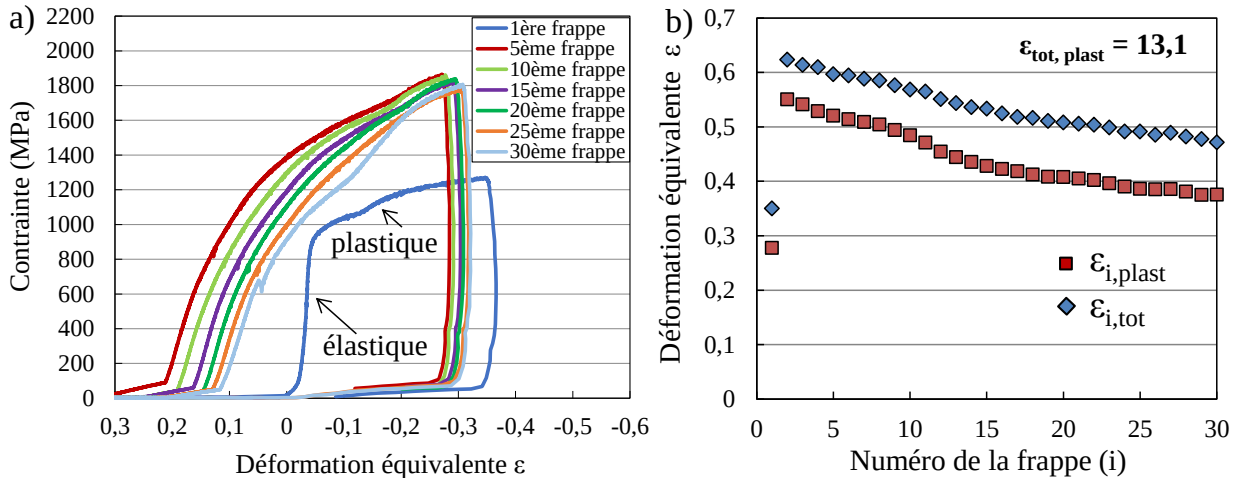


Figure IV.38 : a) Contrainte en fonction de la déformation équivalente et b) déformation équivalente appliquée à chaque frappe i

Pour la 1ère frappe (courbe bleue foncée sur la Figure IV.38a), la courbe est caractéristique d'un essai de compression uniaxiale où l'on peut identifier aisément le domaine élastique, la limite d'élasticité (située à environ 900 MPa) et le domaine plastique sans régime d'endommagement, ce qui est caractéristique des essais de compression. Lors de la 1ère frappe, la valeur de déformation $\varepsilon = 0$ est liée à la position à laquelle les mors entrent en contact avec les deux faces de l'échantillon. La distance entre les deux mors est alors égale à la largeur initiale de l'éprouvette l_0. Lorsque l'essai de compression commence, la distance entre les mors diminue et la déformation augmente alors en valeur négative (norme pour la compression). La déformation plastique équivalente appliquée à la fin de la 1ère compression est de 0,27 comme le montre la Figure IV.38b.

Au-delà de la 1ère frappe, les domaines élastiques et plastiques sur les courbes de la Figure IV.38a ne sont plus identifiables puisque la surface de l'échantillon n'est plus constante au cours des compressions à cause du bombé généré par les frappes précédentes. On note néanmoins l'effet de l'écrouissage avec une nette augmentation de la contrainte maximale atteinte par rapport à la première frappe. Il ne semble plus y avoir d'effet d'écrouissage au-delà de la 5ème frappe, puisque la contrainte maximale reste à environ 1800 MPa jusqu'à la fin de l'essai. On mesure une forte augmentation de la déformation plastique appliquée à partir de la 2ème frappe due au changement de géométrie de l'éprouvette qui adopte une section plutôt rectangulaire. Sur la Figure IV.38a, la déformation au début des essais est supérieure à 0 car la distance entre les mors lors du contact avec les faces de l'échantillon est supérieure à la largeur initiale l_0 du fait du bombement généré par la frappe précédente (Figure IV.39). Sur la première partie des courbes contrainte-déformation, la contrainte augmente faiblement avec la déformation puisqu'après la rotation, le système n'est pas totalement symétrique et les deux mors n'entrent pas en contact exactement en même temps avec l'échantillon. Cela vient aussi du fait que l'aire de contact est mal-estimée car la surface est bombée. La Figure IV.38b montre que la déformation appliquée par frappe diminue progressivement au cours de l'essai, ce qui est dû au refoulement de matière progressif vers les extrémités de l'éprouvette (Figure IV.40). Ce refoulement correspond à un mouvement de matière non nul suivant la direction de filage rendant l'hypothèse de déformation plane imparfaite. Cet artefact fait qu'il n'y a pas en réalité conservation du volume de matière déformée au cours de l'essai et l'amplitude de déplacement des mors choisi mène à une amplitude de déformation légèrement décroissante.

A l'issue des 30 frappes, la déformation plastique équivalente $\varepsilon_{tot,plast}$ appliquée à l'échantillon est d'environ 13. Des fissures sont visibles lors de la découpe de l'échantillon comme on peut le voir sur la Figure IV.40. Cela montre les limites de la déformation que peuvent subir ces matériaux, du moins avec cette géométrie d'éprouvette. En effet, l'existence de ces fissures est probablement due à la section carrée de l'éprouvette, où les contraintes sont susceptibles de se concentrer dans les arrêtes. De plus, on mesure un allongement de la partie utile d'environ 1,5 mm qui traduit le fait que bien que la direction de filage soit contrainte par les glissières, la déformation selon celle-ci n'est pas totalement nulle. Cette déformation plastique dans la direction de filage ($\varepsilon_{DF} = 0,12$) est négligeable devant la déformation plastique appliquées selon les directions transverses.

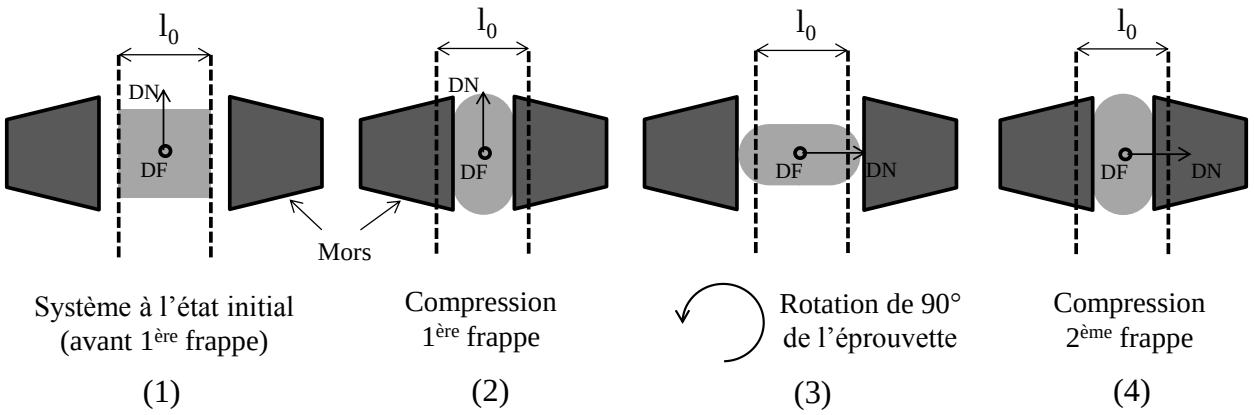


Figure IV.39 : Schéma de l'essai de compression multi-axiale alternée (CMAA)

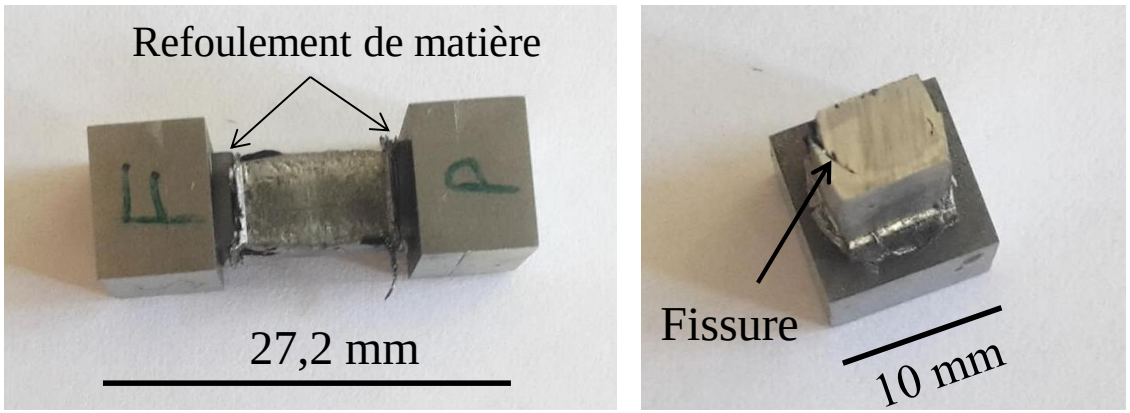


Figure IV.40 : Eprouvette déformée par CMAA (30 frappes), avant et après découpe

Ici encore, dans la nécessité d'évaluer les hétérogénéités de déformation dans l'éprouvette, des profils de nano-indentation ont été réalisés sur une coupe longitudinale de l'échantillon. Les résultats présentés sur la Figure IV.41 montrent clairement que sur le profil réalisé au milieu de la partie utile (ligne pointillée noire), il existe 3 minima de dureté situés sur les bords (points A et C) et au centre (point B) de l'échantillon et 2 maxima au niveau des demi-épaisseurs (entre A et B et entre B et C). Au niveau de ces maximas, la dureté est supérieure à 650 Hv. Aux extrémités de la partie utile (ligne rouge pointillée), les hétérogénéités semblent s'atténuer avec notamment l'absence du minimum de dureté au niveau de l'axe central de l'éprouvette. Cette distribution de la dureté est différente de la compression uniaxiale puisque ici, le centre de l'éprouvette présente un minimum de dureté tandis qu'il s'agissait d'un maximum en compression uniaxiale (Figure IV.3). Cela laisse présager une distribution de la déformation également différente. On verra par la suite qu'une sollicitation du matériau en cisaillement dans les demi-épaisseurs de l'éprouvette peut expliquer ces hétérogénéités.

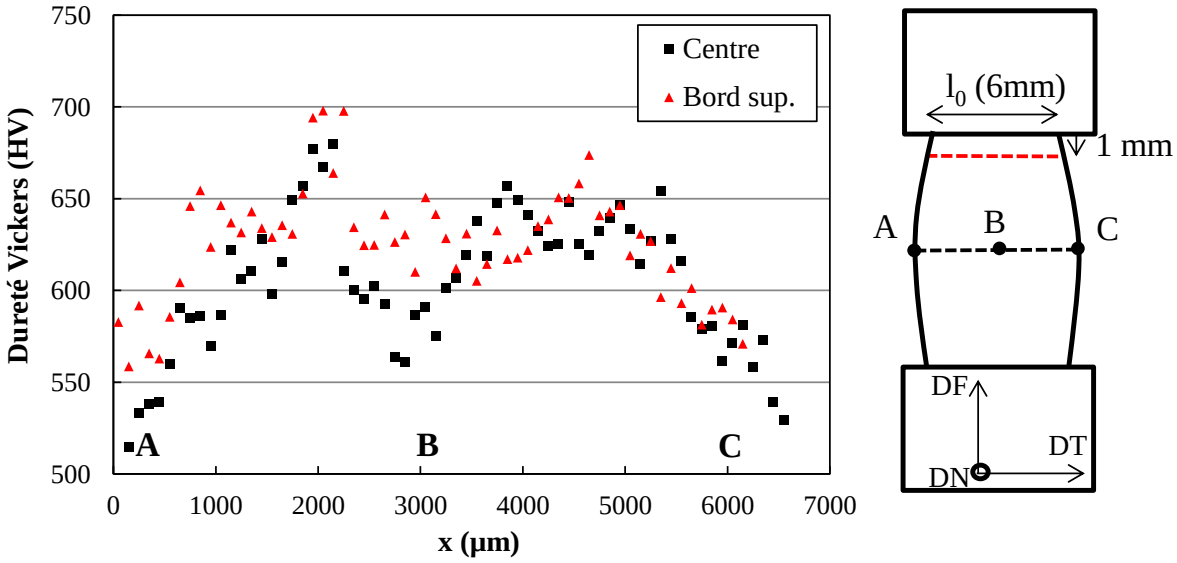


Figure IV.41 : Profil de nano-indentation dans l'échantillon (nuance R0,2) après déformation par CMAA

2.2 Caractérisation des microstructures

Afin d'étudier la recristallisation dans cette éprouvette hyper-déformée et de confirmer l'existence des hétérogénéités de déformation, un échantillon prélevé dans le plan (DF, DT) de l'éprouvette a été recuit 1h à 1150°C. La Figure IV.42 montre l'image captée à très faible grandissement (x 25) par les diodes FSD (Forward Scattered Detector) placées sous la caméra EBSD. La microstructure obtenue est très hétérogène à l'échelle macroscopique avec pas moins de 4 zones différentes. La barre d'échelle de 3000 µm correspond à la demi-largeur de l'éprouvette (l_0 = 6000 µm). Les points A et B sont ceux de la Figure IV.41. On remarque la très bonne corrélation entre cette microstructure partiellement recristallisée et les profils de nano-indentation sur l'éprouvette déformée : la zone 2 totalement recristallisée avec des petits grains équiaxes située à environ 1500 µm du bord correspond au maximum de dureté avant recuit. De même, les zones non recristallisées 1 et 4 sur la Figure IV.42, à savoir le centre et les bords de l'échantillon correspondent aux minima de dureté sur la Figure IV.41. La zone 3 avec les grains recristallisés allongés semble être un état intermédiaire où la déformation plastique moins importante que dans la zone 2 conduit à un nombre de germes recristallisés plus faible et à une taille de grains après recristallisation plus élevée. Ces grains recristallisés allongés sont similaires à ceux obtenus après CU//DT. Le gradient de microstructure observé sur la Figure IV.42 met en évidence l'étroite relation entre l'énergie stockée par déformation plastique et la morphologie et la taille des grains recristallisés.

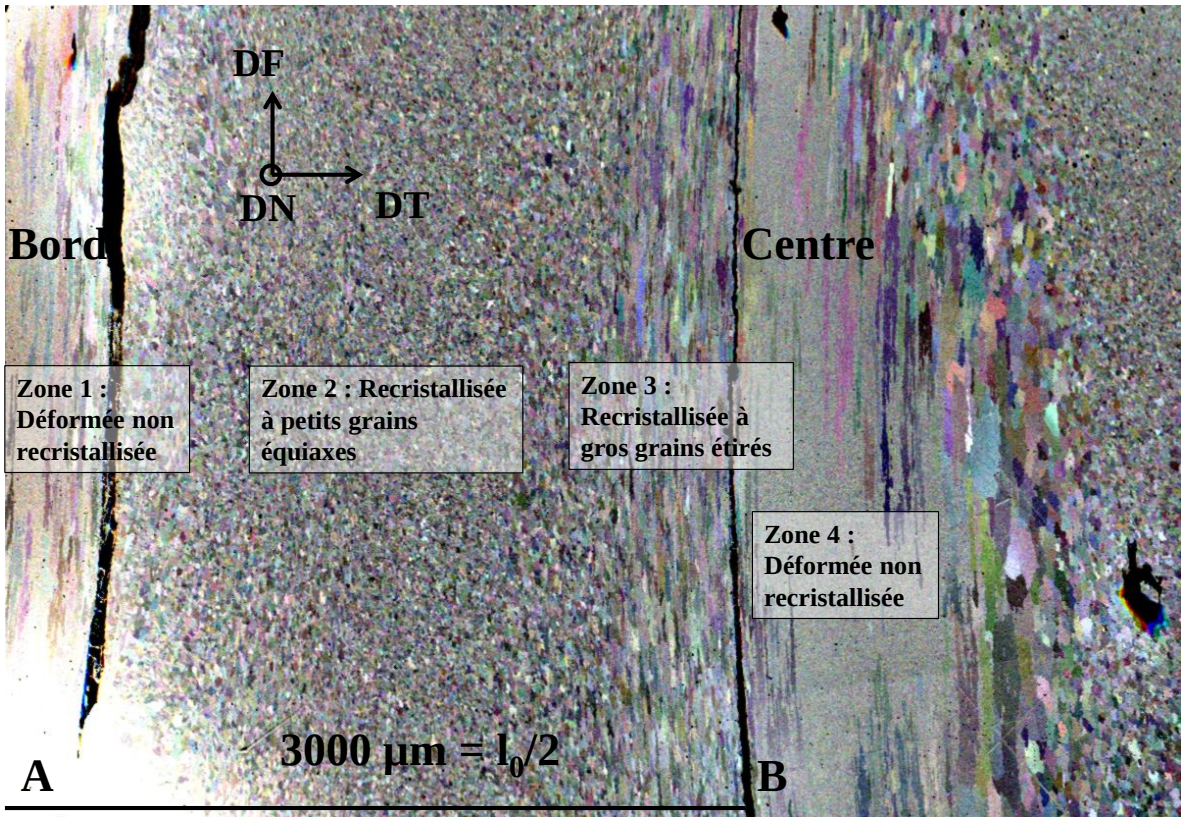


Figure IV.42: Image FSD de la nuance R0,2 déformée par compression alternée (30 frappes) et recuite 1h à 1150°C

Des analyses EBSD (cartographies IPF sur la Figure IV.43) ont été réalisées dans la zone 2 (recristallisée à petits grains) dans l'état déformé avant recuit et dans l'état recristallisé visible à faible grandissement sur la Figure IV.42. Les textures associées à ces microstructures sont représentées par les coupes de l'ODF sur la Figure IV.44. La microstructure déformée est constituée de grains et sous-grains de très faible taille (0,27 µm), qui montre une importante fracturation des grains due à la déformation. La fraction de HAGB est de 38% et est légèrement plus élevée que pour les autres modes de déformation étudiés précédemment.

La texture de déformation présente des similitudes avec celle obtenue dans le cas de la CU//DT où les familles d'orientations $\{001\}\langle 110\rangle$ et $\{111\}\langle 110\rangle$ prédominent, bien que la fibre α soit encore visible sur l'ODF (Figure IV.44a). La différence est qu'ici la normale au plan $\{hkl\}$ est la direction DN, qui est la direction de compression de la dernière frappe. Par rapport au plan d'observation (DF,DT), il y a donc une rotation de 90° autour de DF entre la texture après CMAA et celle après CU//DT. De plus, on observe ici des grains qui présentent une direction <111> alignée avec DF (grains bleus sur la Figure IV.43a). L'apparition de grains avec cette orientation n'était pas attendue puisque habituellement dans les métaux *bcc*, les grains alignent leur direction <111> et/ou <100> avec la direction de compression (ici DN et DT), comme on a pu le vérifier précédemment. Or, ici la direction de filage DF n'est en théorie pas soumise à une déformation en compression. Cependant, au fur et à mesure des frappes, les compressions produisent des dissymétries dans la géométrie de l'éprouvette, qui conduisent très probablement à des sollicitations différentes du matériau (en cisaillement notamment). Ces sollicitations sont susceptibles de générer des changements d'orientations des grains déformés, ici en l'occurrence l'apparition de grains avec une orientation $\{hkl\}\langle 111\rangle$. Cette hypothèse est confirmée par le fait que dans certaines zones (zoom sur la

Figure IV.43a) les grains ne présentent plus une morphologie étirée dans la direction de filage et semblent avoir été soumis à des déformations plus aléatoire, comme dans le cas du broyage.

La densité de dislocations moyenne mesurée dans la zone 2 est de $1{,}9.10^{15}$ m^{-2}. Cette valeur est proche de celle obtenue pour la CU//DF (2.10^{15} m^{-2}) et supérieure à celle obtenue dans le cas de la CU//DT ($1{,}4.10^{15}$ m^{-2}). Ce résultat montre l'influence beaucoup plus importante du chemin de déformation plutôt que du taux de déformation appliqué dans la capacité du matériau à stocker de l'énergie. Dans cette zone 2, c'est très probablement les sollicitations en cisaillement qui favorise le stockage d'énergie.

L'hyperdéformation par CMAA ne permet pas d'augmenter significativement l'énergie stockée dans le matériau comparée à celle de la CU//DF. Ceci est probablement dû à l'existence d'un taux d'écrouissage critique qui est atteint dès les premières frappes. Dans un acier renforcé par des particules de cuivre, Tsuchiyama *et al.* [37] montrent d'ailleurs que la densité de dislocations n'augmente que très faiblement au-delà d'une déformation équivalente (par laminage) de 2. De même, Čížek et al. [38] mesurent une saturation de la densité de dislocations suite à une déformation équivalente comprise entre 2 et 3 en torsion sous haute pression (HPT).

Suite au recuit d'une heure à 1150°C, la microstructure recristallise entièrement. Les grains sur la Figure IV.43b ont une morphologie relativement équiaxe et une taille moyenne de 4,6 µm. Ils sont séparés les uns des autres par des HAGB. La texture est diffèrente de celle après déformation et c'est maintenant une fibre <111>, avec les 2 orientations majoritaires {112}⟨111⟩ et {110}⟨111⟩, qui prédomine sur la coupe de l'ODF (Figure IV.44b). Cependant, il s'agit plutôt là d'un effet de taille des grains qu'un effet de fréquence : il y a plus de grains recristallisés qui gardent une orientation appartenant à la texture de déformation avec la direction <110> parallèle à DF (640 grains verts), que de grains appartenant à la fibre <111> (520 grains bleus). C'est le fait que les grains appartenant à la fibre <111> soient beaucoup plus gros qui génère cette texture. Cela suggère qu'il existe une influence de l'orientation cristallographique sur la croissance des germes recristallisés. On peut ici évoquer un phénomène de *texture pinning* introduit initialement par Juul Jensen [39] dans des alliages d'aluminium et de cuivre. Lorsqu'un germe d'orientation <110> parallèle à DF se forme et croît, il est très probable qu'il rencontre rapidement des zones d'orientations similaires à la sienne (car il n'y a que deux orientations majoritaires différentes) et donc qu'il soit faiblement désorienté (LAGB) par rapport à la matrice écrouie. La mobilité réduite des LAGB fait que la vitesse de croissance de ce grain est lente. A l'inverse, un germe orienté selon la fibre <111> sera fortement désorienté par rapport à la matrice. La mobilité élevée des HAGB permet alors à ce germe de croître bien plus rapidement. Il en résulte ainsi la forte texture de fibre <111> observée à la fin de la recristallisation.

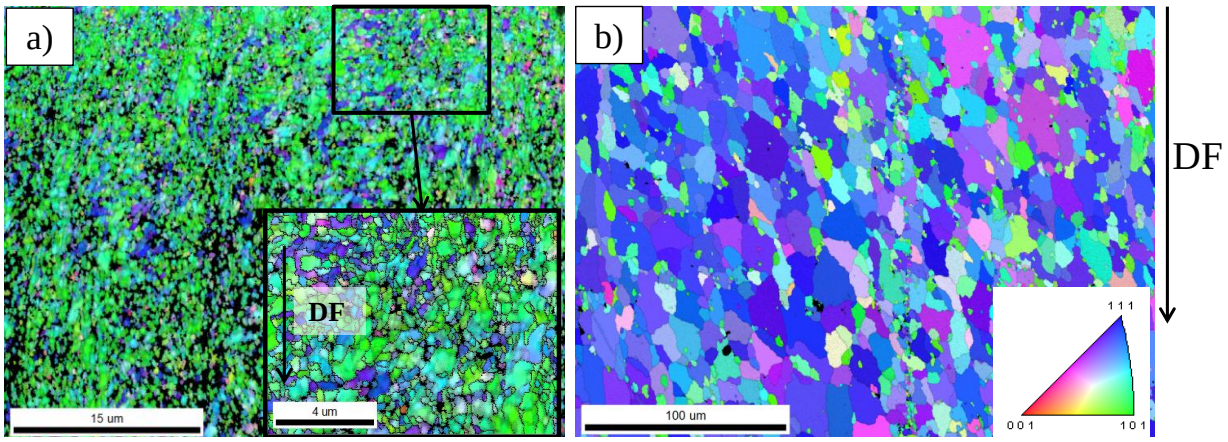


Figure IV.43 : Cartographie IPF (Référence DF) de la zone 2 a) après déformation et b) après recristallisation

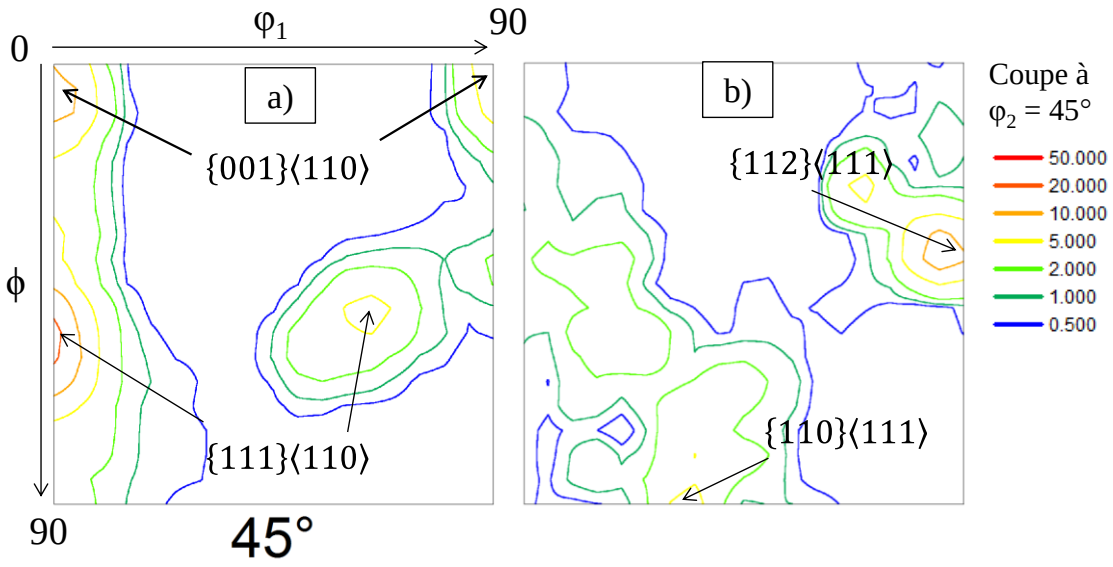


Figure IV.44 : Coupe de l'ODF à $\varphi_2 = 45°$ de la zone 2 a) déformée et b) recristallisée

Une analyse ESBD de la zone 4 (déformée non recristallisée) a également été réalisée. La cartographie IPF et la coupe de l'ODF associée sont présentées sur la Figure IV.45. On remarque que la morphologie des grains déformés et leur texture sont beaucoup plus proches de celles après CU//DT que dans la zone 2. De même, la densité de GND mesurée est de $1{,}3.10^{15}$ m^{-2}. Elle est significativement plus faible que dans la zone 2 ($1{,}9.10^{15}$ m^{-2}) probablement du fait de l'absence de cisaillement et légèrement inférieure à la valeur obtenue après CU//DT ($1{,}5.10^{15}$ m^{-2}). Cette densité de GND trop faible explique pourquoi la zone 4 n'est pas recristallisée.

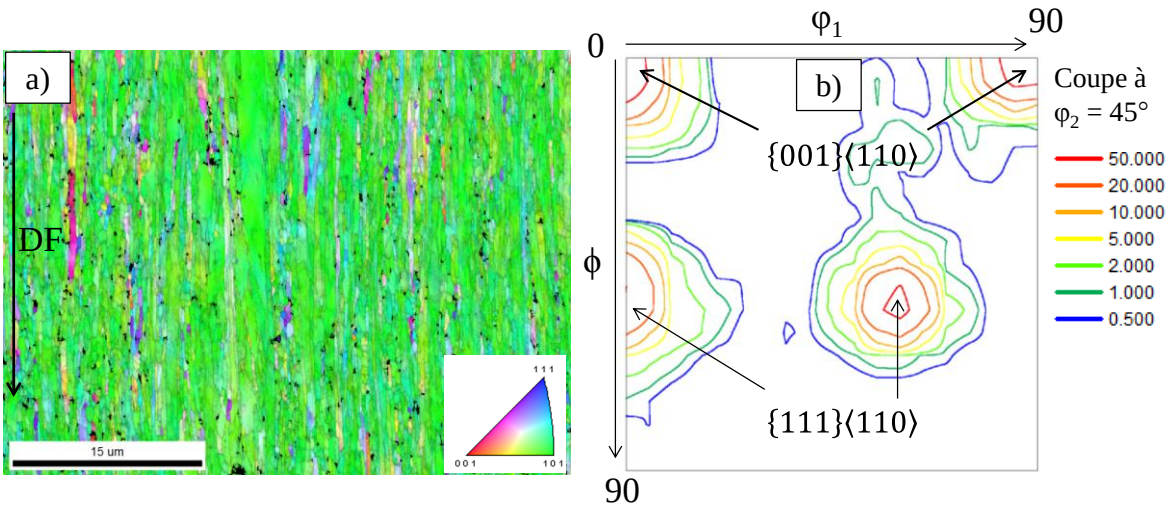


Figure IV.45 : a) Cartographie IPF (Référence DF) de la zone 4 après recuit à 1150°C et coupe de l'ODF associée

Les effets de l'hyperdéformation par CMAA sur la microstructure et la recristallisation de la nuance R0,2 peuvent être résumés comme tels :

- La CMAA est un mode de déformation très hétérogène : l'écrouissage est maximale dans la mi-largeur et minimale sur les bords et au centre de l'éprouvette.

- Dans la mi-largeur, la microstructure écrouie est très perturbée (et cisaillée) et la taille des grains fortement réduite. Au bord et au centre, la microstructure reste proche de l'état brut de filage.
- Même dans la mi-largeur ou la déformation est maximale, l'hyperdéformation par CMAA permet de stocker autant de GND que la CU//DF mais pas d'avantage. Ceci est probablement lié à l'existence d'un taux d'écrouissage critique atteint dès les premières frappes ($\varepsilon < 2$). Il n'y a donc pas nécessité d'appliquer des taux de déformation si important ($\varepsilon = 13$) pour recristalliser.
- Après recuit à 1150°C, on observe une recristallisation discontinue complète dans la mi-largeur avec une texture de fibre <111>//DF. Un mécanisme de *texture pinning* a été évoqué pour expliquer la formation de cette texture de recristallisation.
- Aux extrémités et au centre de l'éprouvette, l'énergie stockée est trop faible et il n'y a pas recristallisation du matériau.

Les nuances R0,3, R0,05 et STi ont également été déformées par CMAA. Les déformations appliquées par frappes sont visibles en Annexe C.1 et les microstructures après déformation et après recuit 1h à1150°C sont visibles respectivement en Annexe C.2 et C.3. Les microstructures dans ces trois autres nuances sont également très hétérogènes, avant et après recuit.

2.3 Dissolution des nano-oxydes par déformation plastique

Dans le but de détecter une éventuelle dissolution des nano-phases suite à l'hyperdéformation, la DNPA et la microscopie en transmission par énergie filtrée (EFTEM) ont été utilisées pour caractériser la nuance R0,2. L'état hyperdéformé et l'état recuit ont été analysés et comparés à l'état de réception, brut de filage (les courbes DNPA pour les nuances R0,3, R0,05 et STi sont présentées en Annexe C.4).

2.3.1 Résultats

La Figure IV.46a montre la distribution de la fraction volumique des particules dans les différents états et la Figure IV.46b la fraction volumique totale mesurée par DNPA. Sur la Figure IV.46a, on note tout d'abord que la fraction volumique de la distribution de particules diminue sensiblement suite à l'hyperdéformation. Ensuite, le traitement thermique réalisé à 1150°C semble permettre de retrouver un état de précipitation proche de l'état brut de filage. On constate de nouveau l'effet de l'augmentation de la température à 1300°C (courbe verte) sur la distribution des nanoparticules. Celles-ci coalescent légèrement (rayon moyen de 2,2 nm) mais restent néanmoins très stables, comme dans le cas des nuances non-déformées dans le Chapitre 3 et des nuances déformées par compression uniaxiale. La Figure IV.45b montre clairement la diminution de la fraction volumique de particules suite à l'hyperdéformation (0,2%), qui est divisée par 6 par rapport à l'état de brut de filage où elle était d'environ 1,2%. Suite aux recuits à 1150°C et à 1300°C, la fraction volumique retrouve une valeur significative (entre 0,8 et 1%) mais néanmoins inférieure à la valeur de l'état filée. La taille des particules après re-précipitation reste très fine puisque celles-ci présentent un rayon moyen de 1,6 nm et de 2,2 nm respectivement pour les traitements thermiques à 1150°C et à 1300°C.

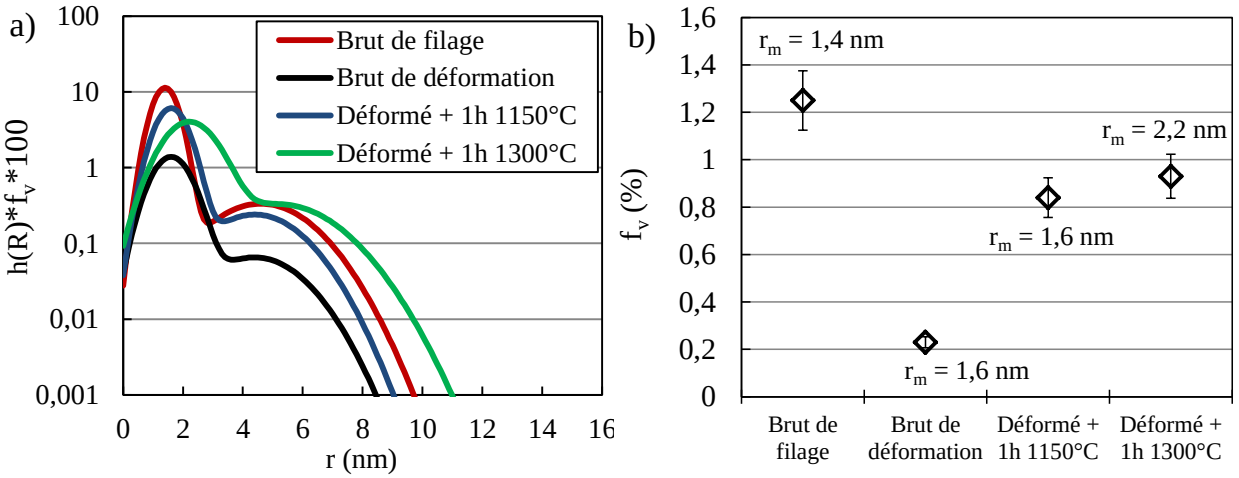


Figure IV.46 : a) Distribution de la fraction volumique en fonction du rayon des particules détectées en DNPA et b) fraction volumique totale mesurée dans la nuance R0,2

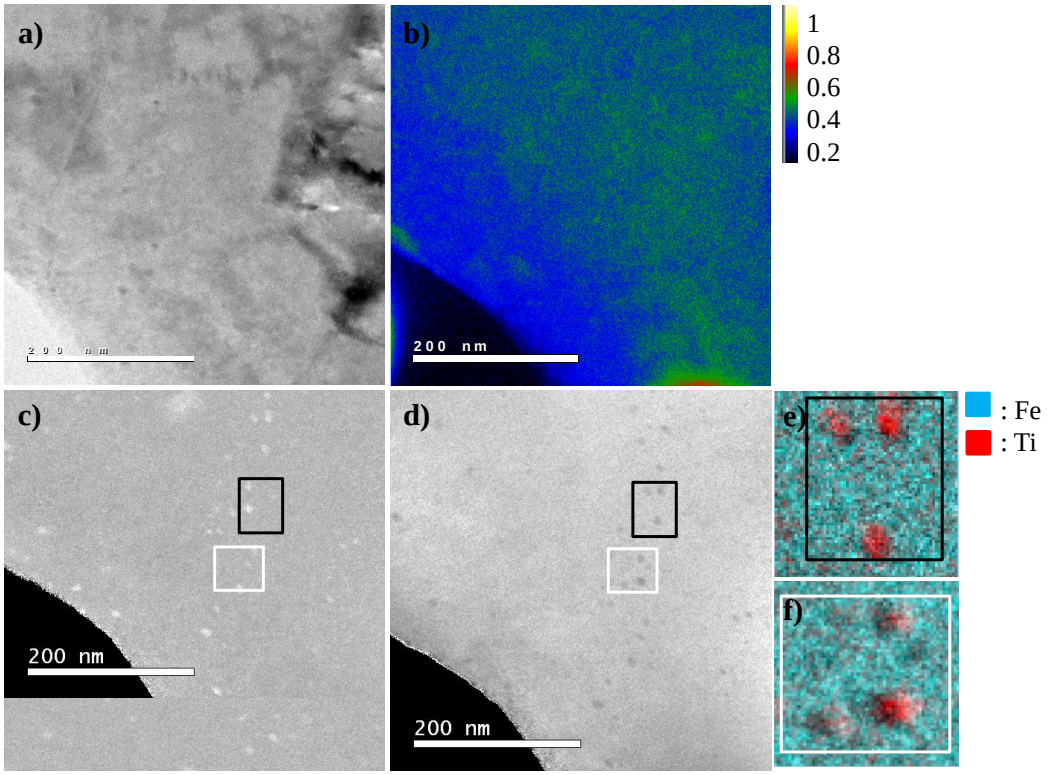


Figure IV.47 : Microscopie par énergie filtrée de l'état brut de filage : a) image conventionnelle, b) carte d'épaisseur, c) carte chimique du titane, d) du fer, et e) f) superposition des cartes du fer et du titane dans deux zones distinctes

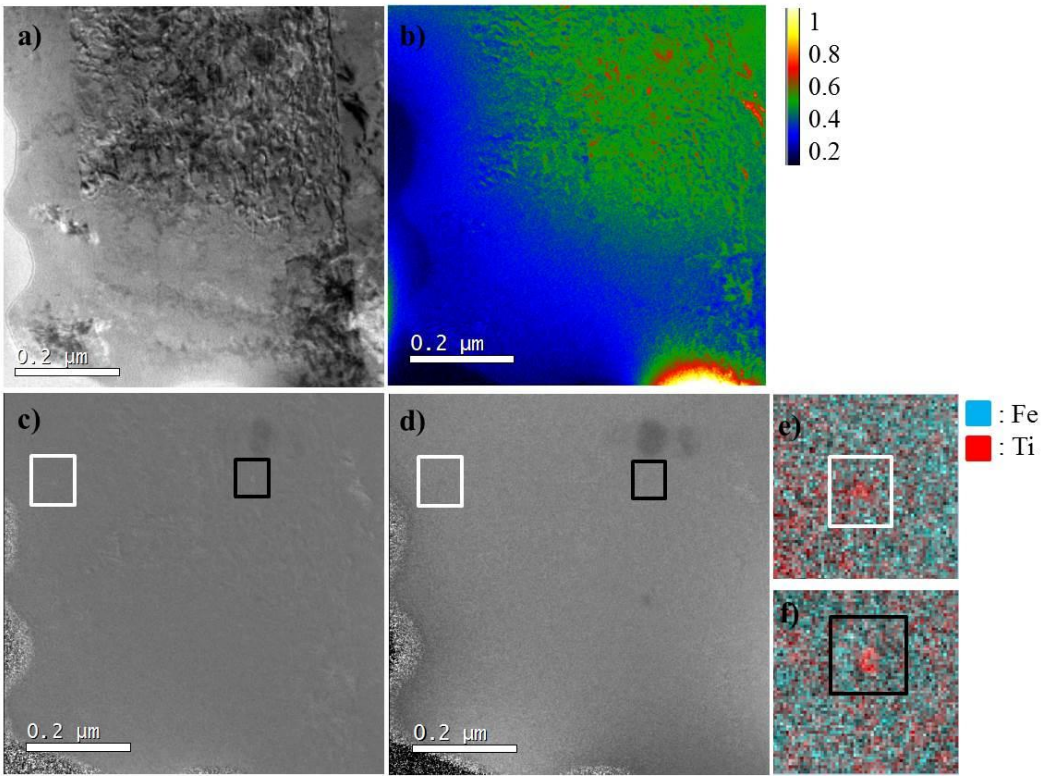


Figure IV.48 : Microscopie par énergie filtrée de l'état déformé : a) image conventionnelle, b) carte d'épaisseur, c) carte chimique du titane, d) du fer, et e) f) superposition des cartes du fer et du titane dans deux zones distinctes

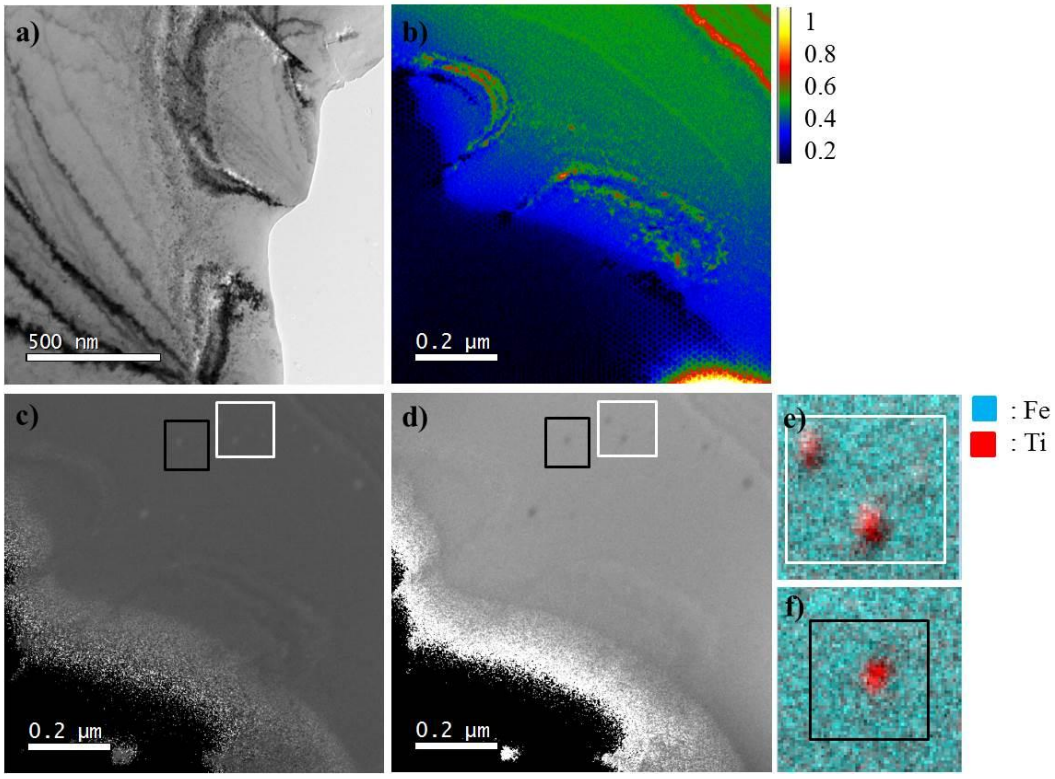


Figure IV.49 : Microscopie par énergie filtrée de l'état recuit 1h à 1150°C : a) image conventionnelle, b) carte d'épaisseur, c) carte chimique du titane, d) du fer, et e) f) superposition des cartes du fer et du titane dans deux zones

Les analyses EFTEM confirment clairement ces résultats. Dans les zones d'analyses, l'épaisseur *e* des lames est comprise entre 20 et 50 nm (zones bleues et vertes) et est déduite de la relation $z = e/\lambda$ où *z* est l'unité d'échelle des cartes d'épaisseur et λ est le libre parcours moyen des électrons dans le plasmon, égal à 100 nm. Cette épaisseur est similaire dans les différents états observés et nous permet d'effectuer une étude comparative fiable. Dans l'état brut de filage sur la Figure IV.47, on observe un nombre important de nanoparticules qui se caractérisent par des enrichissements locaux en titane (points blancs sur la Figure IV.47c) et des appauvrissements en fer (points sombres sur la Figure IV.47d). La superposition des cartes du titane et du fer permet de mettre clairement en évidence ces enrichissements et appauvrissements respectifs. Il est difficile avec l'EFTEM de détecter les très petites particules de 2-3 nm, c'est pourquoi la taille des particules visibles ici est plutôt comprise entre 5 et 10 nm.

Les analyses faites sur l'échantillon déformé sont présentées sur la Figure IV.48. L'image conventionnelle montre la présence de nombreuses dislocations introduites lors de la déformation. En revanche, il est beaucoup plus difficile d'observer des particules et seulement 2 ont pu être détectées. Plusieurs autres zones analysées dans cet échantillon déformé n'ont montré aucune particule. Ces résultats concordent avec la faible fraction volumique de particules mesurée en DPNA suite à l'hyperdéformation. Après recuit à 1150°C (Figure IV.49), on observe de nouveau aisément les enrichissements en titane et les appauvrissements en fer caractéristiques de la présence des nanoparticules. Leur nombre reste néanmoins moins important que dans l'état brut de filage, en accord avec les résultats de DNPA.

2.3.2 Discussion

Les résultats obtenus mettent donc en évidence la dissolution des nano-oxydes de type $Y_2Ti_2O_7$ par déformation plastique et leur re-précipitation dans la matrice de manière fine lors d'un traitement thermique ultérieur. Ce phénomène, très analogue à la dissolution des oxydes d'Y_2O_3 lors de la mécano-synthèse [40][41], n'a jamais été observé dans ces matériaux sur des états consolidés. Une comparaison avec d'autres études de la littérature s'impose pour mieux comprendre les mécanismes mis en jeu.

De manière générale, un précipité se dissout lorsque l'énergie qu'il apporte au système devient supérieure à celle que les atomes qui le composent apporteraient en étant séparés les uns des autres (en solution solide ou ségrégés aux joints de grains). La différence d'énergie ΔE entre ces deux états (précipité intègre ou atomes séparés) est directement représentative de la force motrice pour la dissolution ; plus ΔE est importante et plus la force motrice est élevée (analogie avec la force motrice pour la recristallisation). Lors du broyage, Kimura *et al.* [31] propose que l'augmentation de la déformation conduise à la création de plus en plus de joints de grains qui constituent des zones amorphes et des puits pour les atomes d'oxygène et d'yttrium éjectés des particules d'Y_2O_3 lors de le fracturation par la déformation. Plus la taille du précipité diminue et plus son énergie d'interface augmente jusqu'à ce que celui-ci atteigne une taille critique où il se dissout complètement. Ce mécanisme nécessite néanmoins une quantité importante de joints de grains et donc des grains nanométriques.

La dissolution de précipités par déformation plastique sur des matériaux consolidés a été observée à plusieurs reprises dans des alliages Al-Cu notamment [36][35][42] mais aussi dans des aciers [37]. Comme il est d'usage, les auteurs distinguent 2 types d'interactions dislocations-précipités : (i) l'interaction des dislocations avec des particules déformables (type θ' et θ'' dans les alliages Al-Cu) souvent cohérentes avec la matrice et (ii) l'interaction des dislocations avec des particules indéformables, plutôt incohérentes et plus grossières, comme les phases θ (Al_2Cu) ou des phases intermétalliques. Dans le premiers cas, les particules sont cisaillées à répétition par les dislocations et les atomes qui constituent les particules sont progressivement remis en solution [42]. Cela va conduire à une perte de périodicité du

réseau cristallin et de l'interface matrice-précipité. Il en découle alors une augmentation de l'énergie d'interface qui va rendre le précipité de plus en plus instable. Celui-ci va finir par se dissoudre lorsqu'il atteint une taille critique. Dans le deuxième cas, les particules sont rigides et ne sont pas cisaillées par des dislocations, qui vont plutôt avoir tendance à les contourner (mécanisme d'Orowan). Ces particules montrent une résistance plus importante à la dissolution et c'est uniquement par concassage et fracturation qu'il est possible d'atteindre le rayon critique de dissolution.

Dans les aciers ODS, la nature cohérente des particules et leur taille nanométrique pourraient plutôt conduire à évoquer un mécanisme de cisaillement lors de la déformation comme nous l'avons vu ci-dessus. Cependant, dans la littérature, le cisaillement des nano-oxydes dans les ODS n'a jamais été observé et les contraintes requises seraient en théorie de plusieurs GPa. Les différentes études ont plutôt tendance à évoquer un mécanisme de contournement d'Orowan, bien que l'observation de boucles de dislocations résiduelles autour des précipités, caractéristiques de ce phénomène, n'ait pas été faite non plus [43]. A l'heure actuelle, il n'est donc pas possible d'affirmer si la dissolution des nano-oxydes $Y_2Ti_2O_7$ lors de la déformation plastique se fait par un cisaillement successif ou par fracturation. Néanmoins, le deuxième mécanisme paraît peu probable au vu de la très petite taille des particules. Ce résultat soulève donc un réel questionnement sur les mécanismes d'interaction dislocations-précipités lors de l'hyperdéformation.

De manière analogue avec ce que nous observons par DNPA et EFTEM à 1150°C, la re-précipitation des phases après dissolution par déformation plastique a pu être observée par analyse DSC par Huang et al. [35] sur un alliage Al-Cu. La température de re-précipitation est alors inférieure à la température de précipitation à l'équilibre compte tenu de la forte concentration de lacunes et de joints de grains dans le matériau déformé, ce qui permet l'accélération des processus de diffusion. Dans notre cas, une étude plus approfondie avec la réalisation de traitements thermiques intermédiaires serait nécessaire pour mettre en évidence ce phénomène. Après le co-broyage, qui s'apparente à de l'hyperdéformation, les nano-oxydes précipitent à des températures proches de 800°C. C'est donc proche de ces températures qu'il faudrait étudier la reprécipitation des nano-phases après hyperdéformation par CMAA.

En conclusion sur ces résultats, la possibilité de dissoudre les nano-précipités dans les ODS à l'état consolidé offre évidemment des perspectives très intéressantes pour l'optimisation des gammes de mise en forme de composants, notamment en ce qui concerne les problématiques de recristallisation. Néanmoins, dans le cas présent, le mode de déformation (CMAA) utilisé pour dissoudre les précipités conduit à des microstructures très hétérogènes et ne permet pas de stocker plus d'énergie que des procédés plus classiques comme la compression uniaxiale. Ainsi, cette solution n'apparaît pas à l'heure actuelle comme étant la plus optimale.

Conclusion sur l'influence de la déformation à froid sur la recristallisation des ODS

Ce chapitre a permis d'étudier l'influence de la déformation à froid après filage sur la recristallisation des aciers ODS. Plusieurs chemins de déformation par compression ont été étudiés. Les résultats montrent une forte dépendance des mécanismes de recristallisation au chemin de déformation. A l'inverse, le taux de déformation, au-delà d'une certaine valeur, influe peu sur la recristallisation. La quantité d'énergie stockée lors de la déformation plastique et sa répartition dans la microstructure apparaissent comme des paramètres déterminants. Dans les nuances conventionnelles, une densité moyenne de GND proche de 2.10^{15} m^{-2} semble nécessaire pour assurer une recristallisation quasi-compléte et homogène. Par ailleurs, il est essentiel d'avoir une distribution homogène de la déformation plastique suite au procédé de mise en forme afin d'obtenir une recristallisation uniforme à l'échelle macroscopique.

Une sollicitation en compression parallèlement à la direction de filage permet de stocker suffisamment d'énergie pour permettre une recristallisation avancée (>80%) même dans les nuances les plus renforcées. La microstructure après recristallisation est alors homogène, elle présente des grains équiaxes et est peu texturée. De plus, après recristallisation primaire dans les nuances conventionnelles, les microstructures retrouvent leur extrême stabilité du fait que la population de nanoparticules n'est pas affectée par la recristallisation. Il n'y a donc pas croissance des grains après recristallisation. Dans les nuances ODS plus faiblement renforcée, la présence du domaine austénitique limite la recristallisation à des températures intermédiaires. Il est nécessaire d'augmenter la température à 1300°C pour obtenir une microstructure ferritique totalement recristallisée mais les particules coalescent alors fortement.

A l'inverse, les compressions perpendiculaires à la direction de filage conduisent à une énergie stockée plus limitée et répartie de manière hétérogène, le long des sous-joints de grains. Cela conduit à l'apparition de gros grains allongés dans la direction de filage après recristallisation. La recristallisation suite à ce mode de déformation est très hétérogène puisqu'elle a lieu uniquement au centre de l'échantillon, là où la déformation est maximale. Ailleurs, l'énergie stockée est trop faible devant la pression d'épinglage pour que la microstructure puisse recristalliser, même dans les nuances moins renforcées. Comme dans les nuances filées, une forte coalescence des particules est nécessaire pour recristalliser la microstructure. A travers ces observations, il apparait donc que la diminution du taux de renforts ne permet pas clairement de favoriser la recristallisation dans les ODS.

Par ailleurs, il a pu être montré que l'hyperdéformation par CMAA ne permettait pas de stocker plus d'énergie que la compression parallèlement à la direction de filage. De plus, cette énergie est répartie de manière très hétérogène et conduit à des microstructures recristallisées différentes en fonction de la localisation de la zone dans l'éprouvette. En revanche, suite à ce mode de déformation, nous avons mis en évidence un phénomène de dissolution des nano-précipités par déformation plastique, analogue au broyage lors de la mécanosynthèse. Le mécanisme conduisant à cette dissolution nécessite des études complémentaires.

D'une manière plus générale, ce chapitre montre la grande variété et la complexité des mécanismes de recristallisation observés dans les ODS. Il en découle une grande diversité des microstructures obtenues après recristallisation. Il apparaît que la distribution de la déformation à l'échelle macroscopique, le lien entre chemin de déformation et orientation morphologique de la microstructure et la quantité d'énergie stockée sont les paramètres essentiels à contrôler pour obtenir des microstructures homogènes après recristallisation.

Bibliographie

[1] M. Dadé, J. Malaplate, J. Garnier, F. De Geuser, N. Lochet, and A. Deschamps, "Influence of consolidation methods on the recrystallization kinetics of a Fe-14Cr based ODS steel," *J. Nucl. Mater.*, vol. 472, pp. 143–152, 2016.

[2] T. Grosdidier, E. Suzon, and F. Wagner, "Primary recrystallization in an ODS FeAl alloy: An effective way to modify texture and microstructure," *Intermetallics*, vol. 12, pp. 645–654, 2004.

[3] Z. Oksiuta, P. Hosemann, S. C. Vogel, and N. Baluc, "Microstructure examination of Fe–14Cr ODS ferritic steels produced through different processing routes," *J. Nucl. Mater.*, vol. 451, no. 1–3, pp. 320–327, Aug. 2014.

[4] P. Uranga, I. Gutiérrez, and B. López, "Determination of recrystallization kinetics from plane strain compression tests," *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 578, pp. 174–180, 2013.

[5] C. Capdevila, Y. L. Chen, A. R. Jones, and H. K. D. H. Bhadeshia, "Effect of strain heterogeneity on recrystallisation of PM2000," *Proc. 21st Riso Int. Symp. Mater. Sci.*, 2000.

[6] C. Capdevila, I. Toda-Caraballo, G. Pimentel, and J. Chao, "Influence of plastic deformation on recrystallized microstructure of Fe-base ODS alloy," *Met. Mater. Int.*, vol. 18, pp. 799–804, 2012.

[7] A. Karch, "Etudes des évolutions microstructurales lors de la déformation à chaud d'aciers ODS ferritiques," Thèse de doctorat, Mines Paris-Tech, 2015.

[8] Z. Oksiuta, P. Mueller, P. Spätig, and N. Baluc, "Effect of thermo-mechanical treatments on the microstructure and mechanical properties of an ODS ferritic steel," *J. Nucl. Mater.*, vol. 412, no. 2, pp. 221–226, May 2011.

[9] H. Réglé, "Alliages ferritiques 14/20% de chrome renforcés par dispersion d'oxydes : Effets des procédés de mise en forme sur les textures de déformation, la recristallisation et les propriétés de traction," Thèse de Doctorat, Université Paris-Sud, 1994.

[10] J. K. Mackenzie, "Second paper on statistics associated with the random disorientation of cubes," *Biometrica*, vol. 45, pp. 229–240, 1958.

[11] F. J. Humphreys and M. Hatherly, *Recrystallisation and Related Annealing Phenomena, Second Edition*, Elsevier. 2004.

[12] J. Ribis and Y. de Carlan, "Interfacial strained structure and orientation relationships of the nanosized oxide particles deduced from elasticity-driven morphology in oxide dispersion strengthened materials," *Acta Mater.*, vol. 60, pp. 238–252, 2012.

[13] N. Sallez, C. Hatzoglou, F. Delabrouille, D. Sornin, L. Chaffron, M. Blat-Yrieix, B. Radiguet, P. Pareige, P. Donnadieu, and Y. Bréchet, "Precipitates and boundaries interaction in ferritic ODS steels," *J. Nucl. Mater.*, vol. 472, pp. 118–126, 2016.

[14] K. Mino, H. Harada, H. K. D. H. Bhadeshia, and M. Yamazaki, "Mechanically Alloyed Ods Steel & Ni-Base Superalloys - A Study of Directional Recrystallisatin Using DSC -," *Mater. Sci. Forum*, vol. 88–90, pp. 213–220, 1992.

[15] T. S. Chou and H. K. D. H. Bhadeshia, "Recrystallization temperatures in mechanically alloyed ODS MA956 and MA957 steels," *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 189, pp. 229–233, 1994.

[16] R. D. Doherty, D. A. Hughes, F. J. Humphreys, J. J. Jonas, D. Juul Jensen, M. E. Kassner, W. E. King, T. R. McNelley, H. J. McQueen, and A. D. Rollett, "Current issues in recrystallization: A review," *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 238, pp. 219–274, 1997.

[17] A. Samet-Meziou, A. L. Etter, T. Baudin, and R. Penelle, "TEM study of recovery and recrystallization mechanisms after 40% cold rolling in an IF-Ti steel," *Scr. Mater.*, vol. 53, pp. 1001–1006, 2005.

[18] A. Samet-Meziou, A. L. Etter, T. Baudin, and R. Penelle, "Relation between the deformation sub-

structure after rolling or tension and the recrystallization mechanisms of an IF steel," *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 473, pp. 342–354, 2008.

[19] J. Jiang, T. B. Britton, and a. J. Wilkinson, "Measurement of geometrically necessary dislocation density with high resolution electron backscatter diffraction: Effects of detector binning and step size," *Ultramicroscopy*, vol. 125, pp. 1–9, 2013.

[20] P. A. Manohar, M. Ferry, and T. Chandra, "Five Decades of the Zener Equation.," *ISIJ Int.*, vol. 38, no. 1 998, pp. 913–924, 1998.

[21] P. Feltham, "Grain growth in metals," *Acta Metall.*, vol. 5, no. February, pp. 97–105, 1957.

[22] J. E. Bailey and P. B. Hirsch, "The recrystallization process in some polycrystalline metals," *Proc. Roy. Soc. A*, vol. 267, pp. 11–30, 1961.

[23] L. P. Kubin and A. Mortensen, "Geometrically Necessary Dislocations and Strain-Gradient plasticity-a few critical issues," *Scr. Mater.*, vol. 48, pp. 119–125, 2003.

[24] M. F. Ashby, "The deformation of plastically non-homogeneous materials," *Philos. Mag.*, vol. 21, no. 170, pp. 399–424, 1970.

[25] Y. Ateba Betanda, A. L. Helbert, F. Brisset, M. H. Mathon, T. Waeckerlé, and T. Baudin, "Measurement of stored energy in Fe-48%Ni alloys strongly cold-rolled using three approaches: Neutron diffraction, Dillamore and KAM approaches," *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 614, pp. 193–198, 2014.

[26] R. Penelle and T. Baudin, "Primary Recrystallization of Invar , Fe-36 % Ni Alloy : Origin and Development of the Cubic Texture," *Adv. Eng. Mater.*, no. 10, pp. 1047–1052, 2010.

[27] K. Okuda and A. D. Rollett, "Monte Carlo simulation of elongated recrystallized grains in steels," *Comput. Mater. Sci.*, vol. 34, no. 3, pp. 264–273, 2005.

[28] S. Guessasma, E. Suzon, T. Grosdidier, and F. Wagner, "Static recrystallisation in an ODS FeAl alloy: The effect of particles on texture and anisotropic grain growth developments," *Intermetallics*, vol. 16, no. 8, pp. 1013–1025, Aug. 2008.

[29] M. Praud, "Plasticité d'alliages renforcés par nano-précipitation," Thèse de Doctorat, Université de Toulouse, 2013.

[30] H. R. Z. Sandim, A. O. F. Hayama, and D. Raabe, "Recrystallization of the ODS superalloy PM-1000," *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 430, no. 1–2, pp. 172–178, 2006.

[31] Y. Kimura, S. Takaki, S. Suejima, R. Uemori, and H. Tamehiro, "Ultra Grain Refining and Decomposition of Oxide during Super-heavy Deformation in Oxide Dispersion Ferritic Stainless Steel Powder," *ISIJ Int.*, vol. 39, no. 1 999, pp. 176–182, 1999.

[32] X. Sauvage, M. Y. Murashkin, B. B. Straumal, E. V. Bobruk, and R. Z. Valiev, "Ultrafine Grained Structures Resulting from SPD-Induced Phase Transformation in Al-Zn Alloys," *Adv. Eng. Mater.*, vol. 17, pp. 1821–1827, 2015.

[33] B. B. Straumal, A. R. Kilmametov, Y. Ivanisenko, A. S. Gornakova, A. A. Mazilkin, M. . J. Kriegel, O. B. Fabrichnaya, B. Baretzky, and H. Hahn, "Phase Transformations in Ti-Fe Alloys Induced by High-Pressure Torsion," *Adv. Eng. Mater.*, vol. 17, pp. 1835–1841, 2015.

[34] B. B. Straumal, A. A. Mazilkin, S. G. Protasova, D. V. Gunderov, G. A. Lopez, and B. Baretzky, "Amorphization of crystalline phases in the Nd-Fe-B alloy driven by the high-pressure torsion," *Mater. Lett.*, vol. 161, pp. 735–739, 2015.

[35] W. Huang, Z. Liu, L. Xia, P. Xia, and S. Zeng, "A Severe plastic deformation-induced dissolution of θ'' particles in Al – Cu binary alloy and subsequent nature aging behavior," *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 556, pp. 801–806, 2012.

[36] Z. Liu, S. Bai, X. Zhou, and Y. Gu, "On strain-induced dissolution of θ' and θ particles in Al-Cu binary alloy during equal channel angular pressing," *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 528, pp. 2217–2222, 2011.

[37] T. Tsuchiyama, S. Yamamoto, S. Hata, M. Murayama, S. Morooka, D. Akama, and S. Takaki, "Plastic deformation and dissolution of ε-Cu particles by cold rolling in an over-aged particle dispersion strengthening Fe-2mass%Cu alloy," *Acta Mater.*, vol. 113, pp. 48–55, 2016.

[38] J. Čížek, M. Janeček, T. Krajňák, J. Stráská, P. Hruška, J. Gubicza, and H. S. Kim, "Structural characterization of ultra fi ne-grained interstitial-free steel prepared by severe plastic deformation," *Acta Mater.*, vol. 105, no. February, pp. 258–272, 2016.

[39] D. J. Jensen, "Growth rates and misorientation relationships between growing nuclei/grains and the surrounding deformed matrix during recrystallization," *Acta Met. Mater.*, vol. 43, no. 11, pp. 4117–4129, 1995.

[40] C. L. Chen and Y. M. Dong, "Effect of mechanical alloying and consolidation process on microstructure and hardness of nanostructured Fe-Cr-Al ODS alloys," *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 528, no. 29–30, pp. 8374–8380, 2011.

[41] L. Toualbi, M. Ratti, G. André, F. Onimus, and Y. De Carlan, "Use of neutron and X-ray diffraction to study the precipitation mechanisms of oxides in ODS materials," *J. Nucl. Mater.*, vol. 417, no. 1–3, pp. 225–228, 2011.

[42] C. R. Hutchinson, P. T. Loo, T. J. Bastow, A. J. Hill, and J. da Costa Teixeira, "Quantifying the strain-induced dissolution of precipitates in Al alloy microstructures using nuclear magnetic resonance," *Acta Mater.*, vol. 57, pp. 5645–5653, 2009.

[43] M. Dadé, "Plasticité d'alliages nanorenforcés pour le gainage combustible des réacteurs de 4ème génération : Compréhension et modélisation de l'influence des différents paramètres microstructuraux sur le comportement d'alliages modèles," Thèse de Doctorat, Université Grenoble-Alpes, 2015.

Chapitre V. Modélisation de la croissance de grains et de la recristallisation statique dans les ODS

Introduction 170
1. Modélisation par méthode Monte Carlo 170
1.1 Etat de l'art 170
1.2 Description du modèle 173
1.2.1 Energie d'interface 174
1.2.2 Energie stockée 175
1.2.3 Epinglage par les nanoparticules 176
1.2.4 Traitement des pixels non-indexés 177
1.3 Mécanismes considérés : 177
1.3.1 Croissance de grains : 177
1.3.2 Recristallisation discontinue par germination saturée (SSN) : 177
1.3.3 Introduction d'une population de nanoparticules : 178
1.3.4 Exemples 178
1.4 Résultats obtenus 180
1.4.1 Microstructure filée 180
1.4.1.A Croissance de sous-grains sans particules 181
1.4.1.B Croissance des sous-grains avec particules 183
1.4.1.C Recristallisation discontinue SSN 185
1.4.2 Microstructure déformée par compression simple 188
1.4.2.A Recristallisation discontinue SSN sans particules 189
1.4.2.B Recristallisation discontinue SSN avec particules 192
1.4.3 Conclusion sur la méthode Monte Carlo 194
2. Comparaison avec la méthode déterministe LevelSet 195
2.1 Croissance de grains sans particules 196
2.2 Croissance de grains avec des nanoparticules 198
2.3 Croissance de grains avec des particules micrométriques 200
Conclusion sur la modélisation 202
Bibliographie 204

Introduction

L'objectif de la modélisation est d'acquérir une meilleure compréhension des mécanismes observés expérimentalement dans les Chapitres III et IV. La méthode Monte Carlo a été choisie car elle est relativement simple à implémenter et peu couteuse en temps de calcul. En ce qui concerne la simulation d'évolutions microstructurales dans les métaux, cette méthode ne peut pas être utilisée comme un outil totalement prédictif et ne doit donc pas être considérée comme telle dans la suite de ce chapitre. Nous nous sommes attachés à modéliser les mécanismes de croissance de grains et de recristallisation en l'absence et en présence de particules de seconde phase dans les microstructures expérimentales, caractérisées par EBSD. Par la suite, une comparaison de certains résultats avec la méthode déterministe LevelSet a été effectuée.

1. Modélisation par méthode Monte Carlo

1.1 Etat de l'art

L'utilisation des méthodes Monte Carlo pour modéliser la recristallisation et la croissance de grains date du début des années 1980. Grest *et al.* [1] s'étaient alors intéressés à modéliser le phénomène de croissance anormale tandis que Srolovitz *et al*. ont proposé une approche pour simuler la germination homogène [2] et hétérogène [3] lors de la recristallisation. Srolovitz *et al*. [2][3] considèrent des microstructures modèles en 2D qui sont divisées en N sites et où chaque grain est constitué d'un certain nombre de sites (voir Figure V.1). Chaque site présente un nombre *n* de sites voisins (6 dans une grille hexagonale), une orientation cristallographique *S* et une énergie stockée. Les auteurs utilisent les constantes adimensionnelles J et H pour définir les ordres de grandeurs respectivement de l'énergie d'interface et de l'énergie stockée. Au sein d'un grain, l'orientation cristallographique est considérée comme uniforme comme sur la Figure V.1. L'énergie stockée est considérée comme étant constante et uniforme dans toute la microstructure déformée.

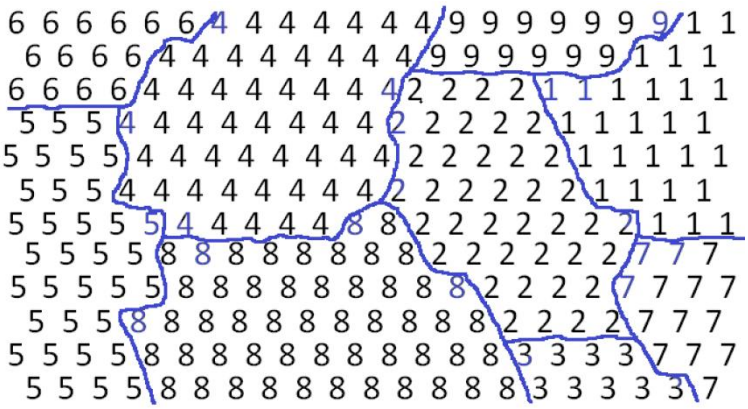


Figure V.1 : Schéma d'une microstructure discrétisée en sites comme celle utilisée par Srolovitz *et al.*, les nombres correspondent à l'orientation cristallographique S (couleur arbitraire) et les joints de grains sont représentés en bleu [4]

Pour chaque site i, l'énergie capillaire (*i.e.* énergie d'interface) E_i^c est définie de manière discrète telle que :

$$E_i^c = \mathrm{J}\sum_{j=1}^{n}(1-\delta_{S_iS_j}) \quad \text{(V.1)}$$

Où $\delta_{S_iS_j}$ est le symbole de Kronecker, égal à 1 si $S_i = S_j$ et 0 sinon. De même, sur chaque site i, l'énergie stockée E^s est définie telle que :

$$E_i^s = \mathrm{H} \times \mathrm{f}(S_i) \quad \text{(V.2)}$$

Où $\mathrm{f}(S_i)$ est une fonction égale à 1 pour un site dans un grain déformé et 0 dans un grain recristallisé. Ainsi, on a donc E_i^s égale à 0 pour un site recristallisé et H pour un site déformé. L'énergie totale d'un site i est donc définie comme :

$$E_i^{tot} = E_i^c + E_i^s = \mathrm{J}\sum_{j=1}^{n}(1-\delta_{S_iS_j}) + \mathrm{H} \times \mathrm{f}(S_i) \quad \text{(V.3)}$$

Notons que ce modèle est tout à fait adapté à la simulation d'un mécanisme de croissance de grains, il suffit alors de ne pas considérer le terme d'énergie stockée. L'Hamiltonien *Ham* du système (énergie totale) est calculé à partir de la somme des énergies sur les *N* pixels soit :

$$Ham = \frac{1}{2}\sum_{i=1}^{N} J\sum_{j=1}^{n}(1-\delta_{S_iS_j}) + \sum_{i=1}^{N} H \times f(S_i) \quad \text{(V.4)}$$

Le facteur 1/2 est introduit pour que chaque interface séparant 2 sites ne soit comptée qu'une fois. Lors de la simulation, les sites sont tirés aléatoirement dans la microstructure. Pour chacun des voisins j d'un site tiré i, on mesure la variation d'énergie totale induite par la réorientation de i par j. Sur le principe de la minimisation de l'Hamiltonien du système, on attribue une probabilité d'occurrence à chaque réorientation telle que :

$$\left\{\begin{array}{c} si\ \Delta E_i^{tot} > 0 : P_{i\to j} = exp(-\frac{\Delta E}{kT}) \\ si\ \Delta E_i^{tot} \leq 0 : P_{i\to j} = 1 \end{array}\right\} \quad \text{(V.5)}$$

La réorientation avec la probabilité la plus élevée est acceptée. Dans l'exemple de la Figure V.2, la réorientation du pixel i par le 1er voisin est la plus probable. Lorsque plusieurs réorientations présentent une probabilité égale (et qui est la plus élevée), l'une de ces réorientations est choisie aléatoirement et est acceptée. On peut noter que lorsque la variation d'énergie ΔE est positive, la probabilité de réorientation est beaucoup plus faible mais n'est pas nulle pour autant. Le terme *exp*(-ΔE/kT) est utilisé afin de considérer un effet d'agitation thermique, qui ajoute de l'entropie au système. Sans ce terme, le système tend rapidement vers un état d'équilibre et la microstructure se fige, comme le montre Sieradski *et al*. [5]. En Monte Carlo, la valeur de kT n'a aucune signification physique et celle-ci est calibrée en fonction des ordres de grandeur des énergies considérées [5][6][7]. Classiquement, kT est compris entre 0,2 et 0,6 du fait que les auteurs utilisent des valeurs arbitraires et sans unités, comprises entre 1 et 10, pour définir H et J. On verra par la suite que dans notre cas, les valeurs de kT considérées seront plus faibles. Notons que lorsque la valeur de kT est trop importante, le système devient complètement désordonné et les réorientations sont aléatoires.

A partir de ce modèle, Srolovitz *et al.* [2][3] se sont intéressés principalement à l'influence du ratio H/J sur la cinétique de recristallisation et la morphologie des grains recristallisés. Ce ratio traduit la contribution de l'énergie stockée par rapport à l'énergie d'interface. Ils montrent ainsi que plus H/J est élevé, plus les germes de recristallisation sont susceptibles de croître et plus la cinétique de recristallisation est rapide puisque le gradient d'énergie stockée entre les grains recristallisés (énergie stockée nulle) et la matrice est important. A l'inverse, plus H/J est faible, plus la contribution de l'énergie d'interface est élevée et les germes recristallisés ont tendance à garder une morphologie équiaxe durant leur croissance.

Il est important de mentionner que dans la méthode Monte Carlo, le temps ne représente pas non plus un paramètre physique puisqu'il est défini en Pas Monte Carlo (PMC). Un PMC est atteint lorsque le nombre de pixels tiré correspond au nombre de pixels de la cartographie. Au cours d'un PMC, certains pixels peuvent avoir été tirés plusieurs fois tandis que d'autres n'ont pas été tirés. Une correspondance PMC-temps, initialement proposé par Saito *et al.* [8] et reprise dans d'autres études [9][10] revient à considérer la relation suivante :

$$1\ \mathrm{PMC} = \frac{d^2}{6D_{JdG}Q} \tag{V.6}$$

Où selon les auteurs, d est « la distance caractéristique de la microstructure », Q est « le nombre d'orientations différentes dans la microstructure » et D_{JdG} est le coefficient de diffusion aux joints de grains à une température donnée. Néanmoins, la signification physique exacte de d (pas d'analyse ou taille de grains ?) et de Q (nombre de pixel ou nombre de grains d'orientation différente ?) apparait peu claire ce qui nous a conduits à ne pas utiliser cette relation.

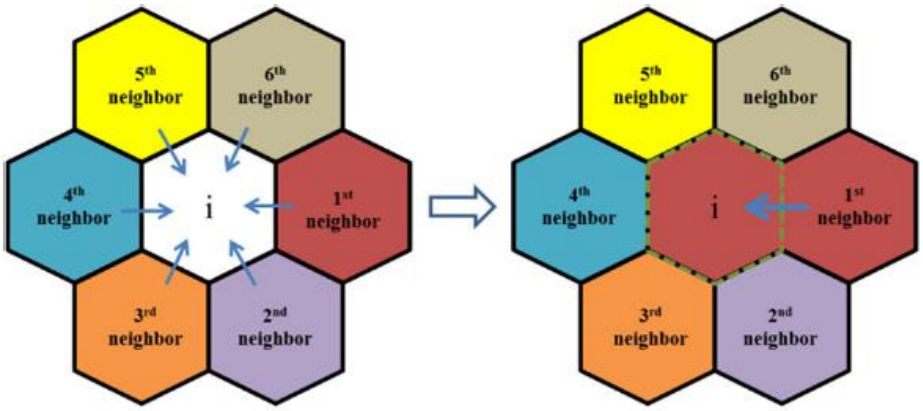


Figure V.2 : Principe du modèle Monte Carlo utilisé dans le cas d'une grille hexagonale [11]

Le modèle Monte Carlo présenté jusqu'à maintenant constitue le formalisme de base pour modéliser la recristallisation dans les polycristaux. Par la suite, différentes études [7][12][13] ont repris ce formalisme et ont cherché à décrire plus précisément les microstructures expérimentales, notamment en prenant en compte une distribution hétérogène de l'énergie stockée et l'anisotropie des joints de grains (énergie et mobilité) dans les calculs.

Par ailleurs, Rollet *et al.* [14] se sont intéressés à l'intégration d'une population de particules de seconde phase au modèle de Srolovitz *et al.* [2][3]. Les particules sont représentées par des sites avec une orientation particulière qui ne peut pas être changée. Une telle description de l'épinglage des joints de grains, où une particule correspond à un ou plusieurs sites, est la plus communément utilisée en Monte

Carlo [15][16][17]. Néanmoins, dans le cas de particules très fines, comme dans les aciers ODS, ce formalisme n'est pas adapté puisque la taille des sites (égale au pas d'analyse EBSD) est bien plus grande que la taille des particules. Pour remédier à ce problème, Eivani *et al.* [9] proposent de décrire la population de particules de manière analytique où sur chaque site i, une constante $E_{z,i}$ traduit l'énergie d'épinglage (de Zener) due à la présence des dispersoïdes. Dans notre cas, on utilisera une méthode similaire pour décrire l'épinglage par les nano-oxydes.

L'utilisation d'un fichier EBSD comme données d'entrée pour la modélisation Monte Carlo est en revanche plus récent avec notamment les travaux de Baudin *et al.* [18][19] sur la croissance normale et anormale dans un acier Fe-3%Si. Baudin *et al.* ont également simulé par Monte Carlo la recristallisation primaire dans un acier austénitique Fe-36%Ni à partir de données MET [20]. Le principal avantage est évidemment que la microstructure est réelle, et non modèle, et que les paramètres comme l'orientation cristallographique des sites, l'énergie stockée et la nature des interfaces peuvent être obtenus à partir des cartographies. A partir de ces données, Wang *et al.* [11] ont pu modéliser un phénomène plus complexe : le maclage lors de la recristallisation primaire dans les métaux cubiques à faces centrées.

Afin de prendre en compte les différences de mobilité entre LAGB, HAGB et aussi d'éventuels joints CSL, il est de plus en plus courant [4][19][21] d'intégrer la mobilité $M(\theta_{ij})$ de l'interface entre les sites i et j dans le calcul des probabilités de réorientation:

$$\left\{\begin{array}{c} si\ \Delta E_i^{tot} > 0 : P_{i\to j} = M(\theta_{ij}) exp(-\frac{\Delta E_i^{tot}}{kT}) \\ si\ \Delta E_i^{tot} \leq 0 : P_{i\to j} = M(\theta_{ij}) \end{array}\right\} \quad \text{(V.7)}$$

La mobilité $M(\theta_{ij})$ est calculée à partir de la relation donnée dans le Tableau V.1. Il en découle donc que la réorientation est favorisée lorsque l'interface est plus mobile, ce qui permet de prendre en compte la vitesse de migration plus élevée pour les HAGB et plus faible pour les LAGB.

Paramètre de maille matrice (fer α) (nm)	0,287
Vecteur de burger b (nm)	0,248
Module de Cisaillement G (GPa)	78
Densité de dislocations ρ_{GND} (GND uniquement) (m^{-2})	Définie localement pour chaque pixel
Energie stockée E_s (MPa)	$Es = 0{,}5Gb^2\rho_{GND}$
Energie d'interface γ_m ($\theta > 10°$) ($J.m^{-2}$)	0,79
Energie d'interface $\gamma(\theta)$ ($2° < \theta < 10°$) ($J.m^{-2}$)	$\gamma(\theta) = \gamma_m \times \frac{\theta}{10}(1 - ln\frac{\theta}{10})$
Mobilité M_0 ($m^4.J^{-1}.s^{-1}$)	$4{,}7.10^{-6}$
Mobilité M_m ($\theta > 10°$) ($m^4.J^{-1}.s^{-1}$)	$M_m = M_0 exp\left(-\frac{Q}{kT}\right)$
Mobilité $M(\theta)$ ($2° < \theta < 10°$) ($m^4.J^{-1}.s^{-1}$)	$M(\theta) = M_m\left[1 - exp(-5\left(\frac{\theta}{10}\right)^4\right]$
Energie d'activation Q ($kJ.mol^{-1}$)	174

Tableau V.1 : Définition des variables et des constantes utilisées dans le modèle

1.2 Description du modèle

On décrit ici le modèle utilisé dans la présente étude pour simuler la recristallisation et la croissance de grains dans les ODS. Ce modèle est similaire en plusieurs points à celui présenté dans l'état de l'art. La différence principale est que les valeurs d'énergie stockée, d'énergie d'interface et de mobilité sont issues de mesures expérimentales (EBSD) alors qu'il s'agit régulièrement de valeurs arbitraires et

adimensionnelles dans l'état de l'art. Le code de simulation est séquentiel et utilise un processeur Intel Core i7-4600U (2 cœurs) de fréquence de base 2,1 GHz. La mémoire vive est de 8 Go. La sous-routine permettant de calculer la désorientation entre deux pixels à partir des angles d'Euler est reprise du code de Wang *et al.* [11].

1.2.1 Energie d'interface

Un site i (pixel de la cartographie EBSD) est tiré aléatoirement dans la microstructure. L'énergie d'interface (ou capillaire (c)) totale de ce site i avant réorientation est définie par :

$$E_{i,av}^{c} = \sum_{j=1}^{6} \gamma(\theta_{ij}^{av}) \tag{V.8}$$

Où l'énergie d'interface $\gamma(\theta_{ij}^{av})$ est définie par la relation de Read-Shockley (Tableau V.1) et est égale à 0,79 J.m^{-2} [22] pour θ_{ij} supérieur à 10° (*i.e.* pour un HAGB). Comme on utilise une grille hexagonale pour la modélisation, chaque site présente donc 6 premiers voisins (Figure V.2). De même, l'énergie d'interface du site i après réorientation selon un de ses voisins j est définie par :

$$E_{i,ap}^{c} = \sum_{j=i}^{6} \gamma(\theta_{ij}^{ap}) \tag{V.9}$$

Ce pixel i est réorienté tour à tour par l'un de ses 6 voisins et on mesure à chaque fois la variation d'énergie d'interface :

$$\Delta E_{ij}^{c} = (E_{i,ap}^{c} - E_{i,av}^{c}) \times \frac{1}{L} \tag{V.10}$$

Où la longueur L peut-être définie comme une longueur caractéristique de la microstructure qui permet l'homogénéité des unités (J.m^{-3} = Pa). En effet, l'énergie stockée et l'énergie d'épinglage définie ci-après sont des pressions dites « volumiques » qui s'exprime en J.m^{-3}. Il est donc nécessaire d'exprimer la pression capillaire dans cette même unité. Dans la plupart des études de la littérature, les auteurs ne procèdent pas à cette homogénéisation des unités soit parce qu'ils utilisent des niveaux d'énergies adimensionnels, soit parce que les mécanismes modélisés impliquent uniquement des forces surfaciques (croissance de grains sans particules ou avec particules mais représentées par des sites de la microstructure).

On peut envisager d'homogénéiser les énergies à partir de la taille des pixels et d'exprimer toutes les énergies en joules. Cependant, la contribution de l'énergie surfacique par rapport aux énergies volumiques (ou inversement) est dépendante de la taille des pixels : plus ceux-ci sont petits (pas d'analyse EBSD faible) plus le ratio surface/volume est élevé et plus la contribution de l'énergie d'interface est importante. Inversement lorsque la taille des pixels augmente. Le problème qui s'est posé ici est que la faible taille des pixels (0,1 µm) entrainait systématiquement une forte surestimation de la pression capillaire.

Dans l'état actuel, l'intérêt du paramètre L est donc de pouvoir calibrer sa valeur sur l'état initial de la microstructure pour que la contribution de l'énergie capillaire puisse être contrôlée dans les premiers stades de la simulation. Cela n'est pas possible à partir de la taille des pixels puisque celle-ci est fixe. Au cours de cette étude, la valeur de L est fixée à 1 µm et a été choisie pour être proche de D, la taille moyenne des grains. En réalité, cette constante influe également sur la contribution de l'énergie capillaire

par rapport aux énergies volumiques. Lorsqu'un pixel est tiré dans un grain présentant une taille inférieure à L, l'énergie capillaire sera sous-estimée par rapport aux énergies volumiques. A l'inverse, elle sera surestimée si le pixel est tiré dans un grain qui présente une taille supérieure à L. Néanmoins, dans les simulations présentées par la suite, les tailles de grains restent suffisamment proches (> 0,5 µm et < 10 µm) de la valeur de L pour que la contribution de l'énergie capillaire par rapport aux énergies volumiques reste acceptable.

On précise que ce biais sur la contribution de l'énergie capillaire n'a un impact sur les simulations que lorsque des énergies volumiques sont considérées. En effet, le Monte Carlo est une méthode qui fonctionne en relatif. Ainsi, en croissance de grains sans particules, lorsqu'un pixel est tiré, les six mesures de variation d'énergie capillaire (associées aux réorientations par les six voisins) seront surestimées (ou sous-estimées) de manière identique et la réorientation qui favorise le plus la minimisation de l'énergie du système sera toujours la même. C'est donc systématiquement cette réorientation qui sera effectuée et le résultat de la simulation n'est pas affecté.

Une fois la variation d'énergie d'interface ΔE_{ij}^{c} connue pour chaque voisins j, on peut calculer la probabilité de réorientation qui dépend de la mobilité et de l'énergie des interfaces :

$$\left\{ \begin{array}{c} si\ \Delta E_{ij}^{c} > 0 : P_{i\to j} = \dfrac{M(\theta_{ij})}{M_m}\dfrac{\gamma(\theta_{ij}^{av})}{\gamma_m}\exp(-\dfrac{\Delta E_{ij}^{c}}{kT}) \\ si\ \Delta E_{ij}^{c} \leq 0 : P_{i\to j} = \dfrac{M(\theta_{ij})}{M_m}\dfrac{\gamma(\theta_{ij}^{av})}{\gamma_m} \end{array} \right\} \quad \text{(V.11)}$$

Où γ_m est l'énergie d'interface et M_m la mobilité d'un HAGB (γ_m = 0,79 J.m^{-2}). Comme dans l'état de l'art, c'est la réorientation avec la probabilité maximale qui est acceptée. La répétition de cette étape sur N sites produit 1 PMC et permet de modéliser un mécanisme de croissance de grains sans particules.

1.2.2 Energie stockée

Afin de modéliser la recristallisation, il est nécessaire de prendre en compte l'énergie stockée dans le matériau en plus de l'énergie d'interface. Celle-ci est définie localement sur chaque site de la microstructure à partir de la densité de GND. On peut donc mesurer la différence d'énergie stockée entre un pixel i et ses voisins j à partir de la différence entre les densités de GND sur chaque pixel. Notons qu'il serait possible de prendre en compte un phénomène de restauration en diminuant la densité de GND sur chaque site à chaque pas Monte Carlo. Cependant, en pratique, l'annihilation des GND dans les aciers ODS est fortement limitée par la présence des nanoparticules et on choisira donc de ne pas considérer ce phénomène. L'énergie stockée sur le site i est définie telle que :

$$E_i^s = 0{,}5\mathrm{G}b^2\rho_{GND,i} \quad \text{(V.12)}$$

Ainsi, la variation d'énergie stockée induite par la réorientation de i par l'un de ses voisins j est :

$$\Delta E_{ij}^{s} = Es_j - Es_i = 0{,}5Gb^2(\rho_{GND,j} - \rho_{GND,i}) \quad \text{(V.13)}$$

On peut donc calculer la variation d'énergie totale ΔE_{tot} :

$$\Delta E_{ij}^{tot} = \Delta E_{ij}^{c} + \Delta E_{ij}^{s} \quad \text{(V.14)}$$

Il en découle de nouvelles lois de probabilité telles que :

$$\left\{ \begin{array}{l} si\ \Delta E_{ij}^{tot} > 0 : P_{i\to j} = \dfrac{M(\theta_{ij})}{M_m} \dfrac{\gamma(\theta_{ij}^{av}).\dfrac{1}{L} + \Delta E_{ij}^{s}}{\gamma_m.\dfrac{1}{L} + Es_i} \exp\left(-\dfrac{\Delta E_{ij}^{tot}}{kT}\right) \\ \\ si\ \Delta E_{ij}^{tot} \leq 0 : P_{i\to j} = \dfrac{M(\theta_{ij})}{M_m} \dfrac{\gamma(\theta_{ij}^{av}).\dfrac{1}{L} + \Delta E_{ij}^{s}}{\gamma_m.\dfrac{1}{L} + Es_i} \end{array} \right\} \quad (V.15)$$

L'introduction de l'énergie stockée dans le calcul des probabilités permet de privilégier la réorientation qui va le plus minimiser cette énergie.

1.2.3 Epinglage par les nanoparticules

La compréhension des mécanismes de recristallisation et de croissance de grains dans les aciers ODS nécessite de tenir compte de la fine distribution de nanoparticules qui épinglent les joints de grains et limitent leur mouvement. Comme nous l'avons mentionné précédemment, avec la méthode Monte Carlo, les particules sont souvent représentées par des sites avec une orientation particulière et ces sites ne peuvent pas être réorientés. Cependant, ce formalisme n'est pas adapté pour les particules nanométriques puisque leur taille (<20 nm) est bien inférieure à la taille des sites (100 nm).

On choisit donc ici de prendre en compte les nanoparticules de manière analytique (elles ne sont pas représentées physiquement mais seulement mathématiquement) par l'ajout d'un terme d'« énergie d'épinglage » tel que :

$$E_i^{éping} = P_{z,i} \quad (V.16)$$

Où $P_{z,i}$ est la pression de Zener qui s'exerce sur une interface qui franchit le site i. Cette pression est définie telle que :

$$P_{z,i} = \frac{3F_{v,i}}{2r_i} \times \gamma(\theta_{ij}^{av}) \quad (V.17)$$

Où $F_{v,i}$ et r_i sont respectivement la fraction volumique et le rayon moyen des particules sur le site i. On rappelle que ce formalisme nécessite de considérer des particules sphériques, incohérentes et réparties de manière homogène dans la matrice. La population de nanoparticules est insérée dans la microstructure en considérant une distribution gaussienne centrée sur r_m avec une dispersion σ et une fraction volumique F_v. En tenant compte de ces paramètres, les particules sont alors « injectées » de manière aléatoire sur les sites de la microstructure ce qui fait que le rayon et la fraction volumique diffèrent selon les sites. L'expression de la variation d'énergie totale entre le site i et l'un de ses voisins j devient :

$$\Delta E_{ij}^{tot} = \Delta E_{ij}^{c} + \Delta E_{ij}^{s} + E_i^{éping} \quad (V.18)$$

L'énergie d'épinglage est ajoutée à la variation d'énergie totale. C'est l'énergie supplémentaire à fournir pour que l'interface franchisse le site i. Plus l'énergie d'épinglage est élevée, moins ΔE_{ij}^{tot} a de chance d'être négatif et de minimiser l'énergie du système. Notons en revanche que cette manière de modéliser

les nanoparticules ne nous permet pas de considérer des particules dont la taille est supérieure à 100 nm (*i.e.* la taille des sites). Des ajustements du code seraient nécessaires pour modéliser la présence de telles particules.

1.2.4 Traitement des pixels non-indexés

Lors de l'acquisition EBSD, il arrive que des pixels ne soient pas indexés ou que l'orientation cristallographique ne soit pas correctement attribuée, même après nettoyage. Cela peut être fréquent dans le cas des microstructures déformées compte tenu de la distorsion du réseau cristallin comme nous l'avons vu dans le Chapitre IV où l'on peut observer des groupements de pixels non-indexés. Dans le cas du système d'acquisition utilisé (Esprit 1.9, Brucker), une orientation « par défaut » et un indice de confiance égal à 0 sont attribués à tous les pixels non indexés si bien que l'on peut facilement les distinguer des autres. En effet, on ne peut pas se permettre d'ignorer ces pixels lors de la modélisation car ils pourraient jouer le rôle d'épinglage lors de la recristallisation et/ou de la croissance des grains.

Ainsi, on autorise le tirage d'un pixel non indexé afin qu'il puisse être réorienté avec l'orientation correctement mesurée d'un de ses voisins. En revanche, on refusera toute réorientation d'un pixel correctement indexé par l'orientation « par défaut » d'un pixel non-indexé. Un autre problème consiste à définir une énergie stockée pour ces pixels où la densité de GND n'est pas calculée. Puisque ceux-ci sont en général localisés dans les zones très déformées, on leur donne l'énergie stockée maximale mesurée (sur un pixel correctement indexé) sur la cartographie. Dans une première approche, cette solution paraît satisfaisante même si elle conduit probablement à une surestimation de l'énergie stockée dans ces zones. Il apparaît donc primordial d'avoir une cartographie indexée le mieux possible pour que les modélisations soient représentatives de la réalité.

1.3 Mécanismes considérés :

1.3.1 Croissance de grains :

Dans ce cas, on considère uniquement les variations d'énergie d'interface pour les réorientations et l'énergie stockée sur tous les pixels est mise à zéro. C'est donc la minimisation de l'énergie d'interface du système qui dicte les évolutions microstructurales, ce qui se traduit par une croissance des grains. Dans notre cas, on considère que la désorientation minimale d'une interface (joint ou sous-joint de grains) est égale à 2°. Une interface désorientée de moins de 2° donne lieu à une énergie et une mobilité nulles. Dans cette même logique, et afin d'optimiser le temps de calcul qui peut être particulièrement long, le tirage aléatoire des pixels sera donc effectué uniquement au niveau des interfaces désorientées de plus de 2°.

1.3.2 Recristallisation discontinue par germination saturée (SSN) :

Ce mécanisme (Site Satured Nucleation) stipule qu'un certain nombre de sites dans la microstructure déformée vont être considérés comme des germes pour la recristallisation au temps t=0. Du fait des phénomènes complexes qui conduisent à la formation d'un germe recristallisé dans une microstructure déformée, cette étape est rarement modélisée [23] et il est courant de considérer les germes déjà formés au temps t = 0. Ensuite, les germes croissent si leur environnement est favorable (P_{tot} positive), autrement ils restent à l'état de germes et peuvent ensuite être consommés par d'autres grains recristallisés si les pressions en présence le permettent.

La sélection des sites de germination dans la microstructure déformée peut s'effectuer de deux manières différentes.

- Germination aléatoire : On définit un nombre de germes à injecter dans la microstructure (ce nombre peut par exemple être choisi en fonction de la taille de grains mesurée expérimentalement après recristallisation). Des sites sont alors tirés aléatoirement et leur énergie stockée est mise à zéro jusqu'à atteindre le nombre de germes défini. Ce mode de germination est régulièrement utilisé dans la littérature [2] [14] mais dans notre cas, il n'a pas été utilisé car il ne prend pas en compte la distribution de l'énergie stockée.

- Germination sur les Sites de Hautes Energies (GSHE) : En considérant que la germination s'effectue par restauration et coalescence de cellules de dislocations dans les zones les plus déformées, on définit une densité de dislocations seuil pour la germination $\rho_{GND,seuil}$. On considère également que la germination se fait au voisinage des HAGB. Tous les sites possédant une densité de dislocations supérieure à cette valeur sont définis comme des germes et leur énergie stockée est mise à 0, de manière analogue à et Choi *et al* [21] et Chun *et al.* [13]. L'orientation cristallographique attribuée au germe est la même que celle du pixel à l'état déformé, avant que son énergie soit mise à 0 (on suppose qu'il n'y a pas de rotation lors de la germination). La taille des germes est en général égale à la taille d'un pixel (ici 0,1 µm) mais ils peuvent être plus gros si plusieurs pixels adjacents présentent une densité de dislocation supérieure à $\rho_{GND,seuil}$. La valeur de $\rho_{GND,seuil}$ est choisie par l'utilisateur. En présence de nanoparticules, il peut apparaître réaliste de choisir une densité de dislocations seuil qui induit une force motrice au moins supérieure à la pression d'épinglage.

Lorsqu'un pixel passe d'un état déformé à recristallisé, sa densité de dislocation, et donc son énergie stockée, sont fixées à zéro. En réalité, la densité de dislocation après recristallisation est d'environ 10^{12} m^{-2} mais il s'agit alors de dislocations statiquement stockées SSD que l'on ne peut pas mesurer par EBSD. De plus, la différence d'énergie stockée liée à cette approximation et la différence de pression sont négligeables (2.10^{-3} MPa) et n'influencent donc pas les résultats. On précise également que les réorientations ne sont acceptées que lorsque le pixel déformé est réorienté par un pixel voisin recristallisé. Cette condition permet de simuler un mécanisme discontinu. Afin d'identifier facilement les pixels recristallisés lors du traitement des données, leur indice de confiance est fixé à 2.

1.3.3 Introduction d'une population de nanoparticules :

Chacun des mécanismes décrits ci-dessus peut être simulé en présence d'une population de nanoparticules de fraction volumique F_v, de rayon moyen r_m et avec dispersion σ (prise égale à 1/3 de r_m) autour de r_m. L'effet de cette population est le même dans les différents cas : elle freine la croissance des germes et/ou des grains.

1.3.4 Exemples

Afin de faciliter la compréhension du modèle, on décrit ici quelques cas simples dont l'occurrence est fréquente lors de la simulation des différents mécanismes.

- Cas 1 - Croissance de grains sans particules :

Le pixel choisi est le 1 sur la Figure V.3. Ce pixel a deux de ses voisins qui appartiennent au même grain que lui (5 et 6) et quatre qui appartiennent à un grain différent. On suppose ici que les grains 1 et 2 sont séparés par un HAGB. L'énergie d'interface est donc initialement de $4\gamma_m$ alors qu'elle sera de $2\gamma_m$ si le pixel 1 est réorienté avec l'orientation des pixels 2, 3, 4 ou 7. En l'absence de particules, le pixel 1 est donc réorienté par un de ces quatre pixels (par exemple le 3 sur la Figure V.3) et est intégré au grain 2. Le joint de grains est « repoussé » vers le grain 1 (ligne rouge pointillée) et il y a donc croissance du grain 2. Si c'est le pixel 3 qui est choisi, il n'y a pas réorientation car seul un de ses voisins (le pixel 1) appartient à un autre grain. L'énergie d'interface du pixel 3 est donc γ_m alors qu'elle serait égale à $5\gamma_m$ en cas de réorientation par le pixel 1, ce qui serait énergétiquement très défavorable.

- Cas 2 - Croissance de grains avec particules :

Ce cas est très similaire au cas précédent sauf que l'énergie d'épinglage $E_1^{éping}$ due aux particules présentes sur le site 1 freine la réorientation. Celle-ci aura donc lieu uniquement si la variation d'énergie d'interface ΔE^c (ici $4\gamma_m$-$2\gamma_m$ = $2\gamma_m$) est supérieure à $E_1^{éping}$.

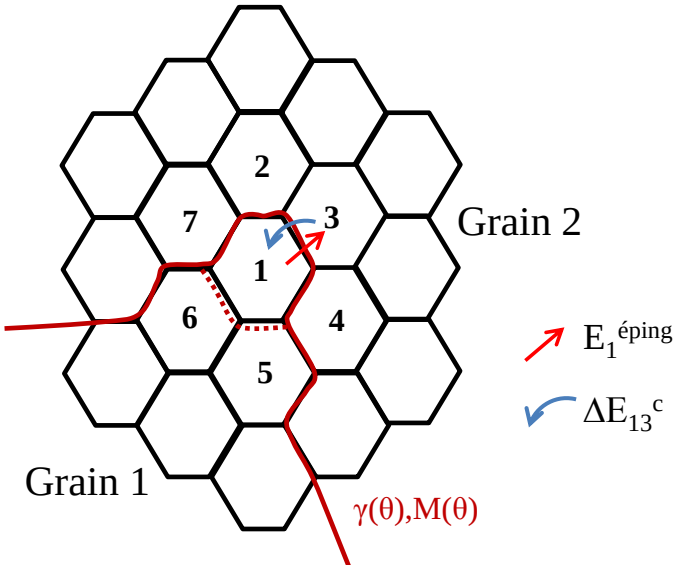


Figure V.3 : Schéma fonctionnel du modèle pour un mécanisme de croissance de grains dans le cas où le pixel 1 est choisi, la flèche bleue indique la direction de la force capillaire et la flèche rouge indique la direction de la force d'épinglage, toutes deux appliquées sur le joint de grains entre les pixels 1 et 3

- Cas 3 - Recristallisation discontinue SSN sans particules :

On considère maintenant l'énergie stockée dans la microstructure. Dans le cas de la Figure V.4, le pixel 1 est défini comme un germe (énergie stockée nulle) et les autres pixels sont à l'état déformé et présentent donc une énergie stockée non nulle. On précise que dans la plupart des cas, le germe est au moins faiblement désorienté par rapport à son grain parent. Si le pixel tiré est le 1, rien ne se passe. En revanche, si le pixel tiré est l'un des voisins du germe, appartenant au grain 2 (par exemple le pixel 3 sur la Figure V.4) la réorientation du pixel 3 va s'effectuer si ΔE_{31}^s est supérieure à ΔE_{31}^c. Plus concrètement, la réorientation est possible si la diminution de l'énergie stockée par l'intégration du pixel 3 au germe recristallisé compense l'augmentation de l'énergie d'interface. La réorientation des pixels 5 et 6

(appartenant au même grain que le germe) par le pixel 1 peut également s'effectuer si ces deux pixels sont au moins faiblement désorientés par rapport au germe. On précise que si le germe était situé sur le pixel 3, la réorientation du pixel 1 par le pixel 3 serait alors énergétiquement très favorable (et donc très probable) puisqu'à la fois l'énergie d'interface et l'énergie stockée seraient minimisées (voir Figure V.4).

- Cas 4 - Recristallisation discontinue SSN avec particules

Comme dans le cas de la croissance de grains, les nanoparticules présentes sur les sites réduisent les probabilités de réorientation par l'intégration d'une énergie d'épinglage. Ainsi dans le cas de la Figure V.4, où l'on considère le pixel 1 comme un germe, l'énergie d'épinglage vient limiter la probabilité de réorientation de 3 par 1, en plus de la variation d'énergie d'interface. Dans ce cas, la variation d'énergie stockée doit donc compenser à la fois la variation d'énergie d'interface et l'énergie d'épinglage pour que la probabilité de réorientation soit significative.

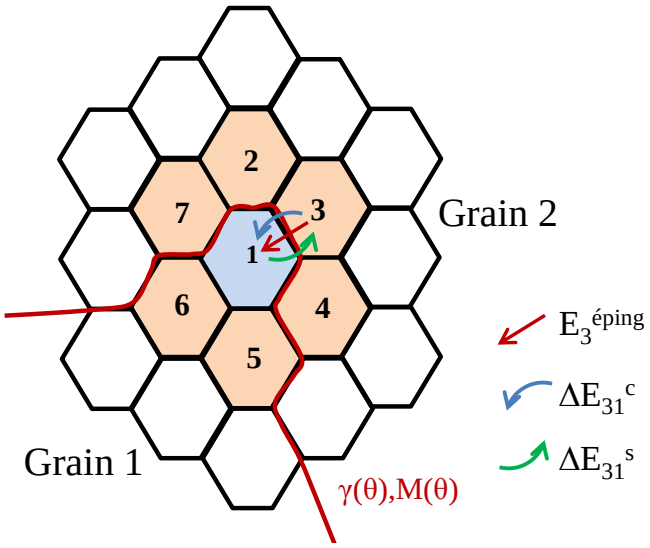


Figure V.4 : Schéma fonctionnel du modèle pour un mécanisme de recristallisation dans le cas où le pixel 1 est un germe et le pixel 3 est le pixel choisi, la flèche bleue indique la direction de la force capillaire, la flèche verte la direction de la force motrice d'énergie stockée et la flèche rouge indique la direction de la force d'épinglage, toutes trois appliquées sur le joint de grains entre les pixels 1 et 3

1.4 Résultats obtenus

1.4.1 Microstructure filée

On se propose dans un premier temps de modéliser les évolutions microstructurales dans une microstructure filée. L'objectif est de reproduire les résultats expérimentaux obtenus dans le Chapitre III, à savoir la stabilité remarquable des microstructures en présence de nanoparticules. Nous allons également simuler la restauration généralisée par croissance des sous-grains lorsque les particules coalescent fortement, comme c'est le cas dans la nuance STi recuite 1h à 1300°C (Figure V.5). Compte tenu de la microstructure cellulaire obtenue après filage (Figure V.6.a) où les sous-grains sont déjà bien restaurés, on considère dans cette partie uniquement les énergies d'interfaces des joints et des sous-joints de grains et l'énergie stockée n'est pas prise en compte. En réalité, il y a une énergie stockée résiduelle dans les microstructures brutes de filage comme nous l'avons vu dans le Chapitre III (ρ_{GND} comprise entre 2.10^{14} et 7.10^{14} m^{-2} selon la nuance). Il est possible que cette énergie ait une contribution dans le mécanisme

continu de restauration généralisée (i.e. croissance de sous-grains) observé expérimentalement. Cependant, si on prend celle-ci en compte pour simuler un mécanisme continu (croissance normale des sous-grains ou recristallisation) par la méthode Monte Carlo, l'algorithme tel qu'il est implémenté dans cette étude (le fait de mette l'énergie stockée du pixel réorienté à 0) conduit à dissiper l'énergie stockée dès les premiers PMC et la microstructure évolue alors rapidement par un simple mécanisme de croissance des grains.

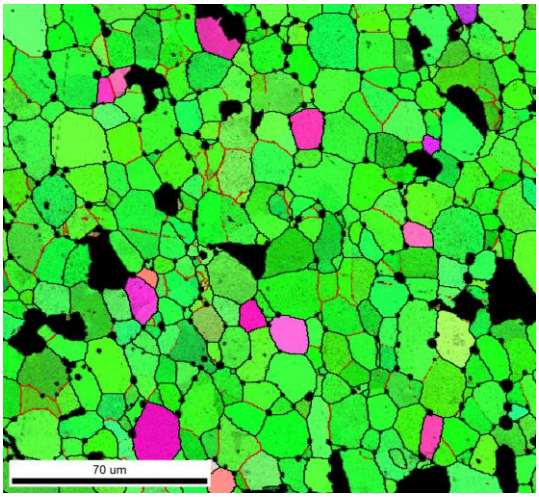


Figure V.5 : Microstructure expérimentale de la nuance STi filée après un recuit d'1h à 1300°C

1.4.1.A Croissance de sous-grains sans particules

On commence par modéliser un mécanisme de croissance de sous-grains sans particules afin de valider la cinétique de croissance de grains. La valeur critique de kT au-delà de laquelle le système se désordonne (la réorientation des pixels devient aléatoire et n'est plus dictée par la minimisation d'énergie) est de 0,2. Dans la suite, les simulations ont été faites avec kT = 0,04. Cette valeur permet de conserver une évolution physique du système (dicté par la minimisation de l'énergie et non aléatoire) sans conduire à un figeage prématuré de la microstructure. Les cartographies IPF simulées en fonction du nombre de PMC sont présentées sur la Figure V.6. L'état initial correspond à la cartographie EBSD obtenue expérimentalement. Nous nous sommes aussi intéressés à une éventuelle influence de l'anisotropie des joints de grains sur la cinétique de croissance des grains. Pour cela, les simulations ont été également effectuées avec une énergie et une mobilité des interfaces constantes telles que $\gamma(\theta) = \gamma_m$ et $M(\theta) = M_m$.

On observe bien sur la Figure V.7a une croissance des sous-grains au cours du temps, leur taille étant de 0,67 µm dans l'état initial et de 4,05 µm après 200 PMC. Sur la Figure V.7b, on peut vérifier que la croissance des sous-grains suit une loi de Burke et Turnbull [22] soit $D^n - D_0^n = kt$ où n = 2. Après 200 PMC, la valeur obtenue par la simulation s'éloigne de cette loi du fait que le nombre de grains devient trop faible (< 100) pour avoir une population représentative. Au cours de la simulation, il est intéressant de noter la disparition des petits grains d'orientations aléatoires au profit d'une accentuation de la fibre α (<110> // DF) dont les sous-grains sont initialement plus gros. De plus, les sous-grains évoluent vers une morphologie plus équiaxe lors de leur croissance. On remarque néanmoins un artefact qui est la présence d'un certain nombre de joints de grains faiblement désorientés (rouge) non fermés. Cela est dû au fait que de nombreux sous-joints dans la microstructure expérimentale initiale acquise par EBSD ne sont pas

fermés compte tenu du seuil choisi de 2° pour définir une interface. L'algorithme de minimisation de l'énergie va donc conduire à les rendre plus rectilignes mais pas à les fermer.

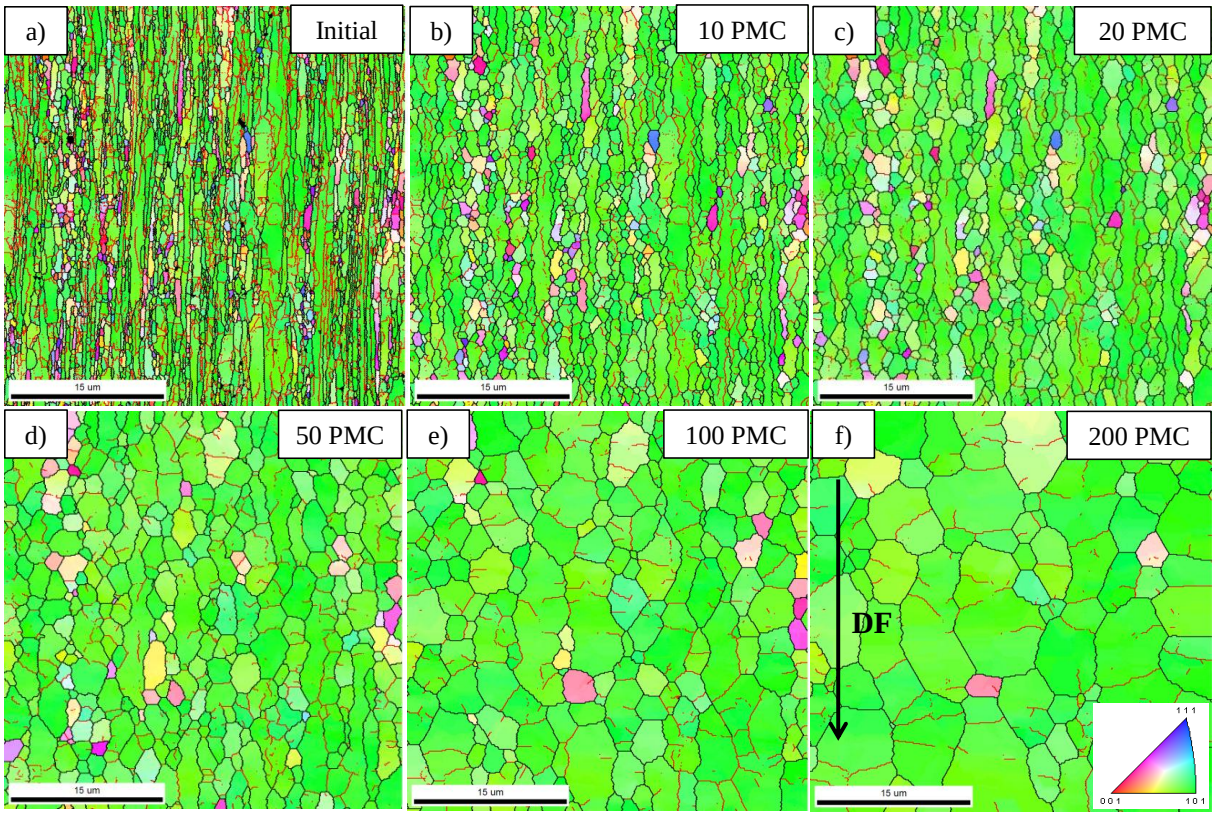


Figure V.6 : Cartographies IPF (directions cristallographiques // DF) de la modélisation de la croissance des sous-grains dans une microstructure filée pour kT = 0,04 avec les HAGB (noir) et les LAGB (rouge) : a) Etat initial ; b) 10 PMC, c) 20 PMC, d) 50 PMC, e) 100 PMC et f) 200 PMC

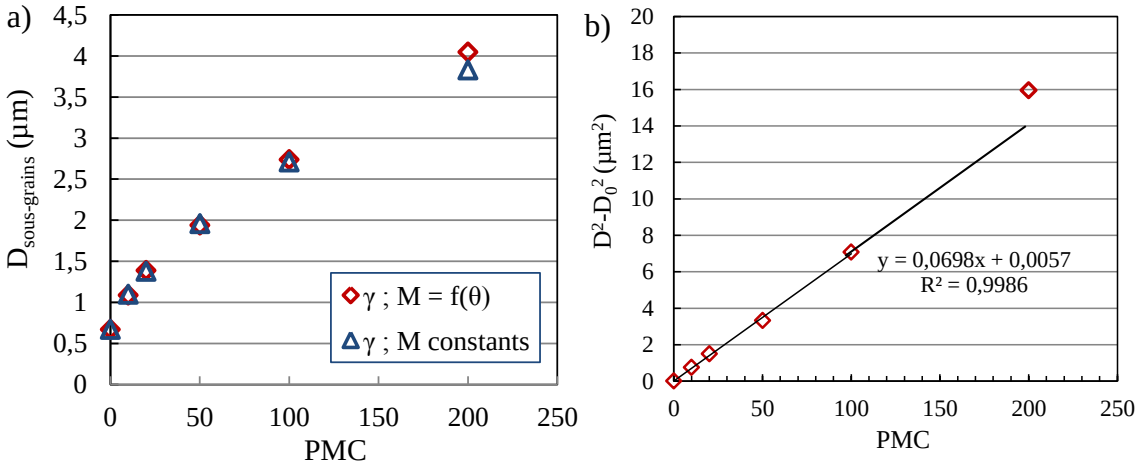


Figure V.7 : a) Evolution de la taille de grains avec le temps de simulation et b) loi de type $D^2 - D_0^2 = kt$

On remarque également qu'avec la méthode Monte Carlo, l'anisotropie des joints de grains (dépendance de M et γ à la désorientation θ) a un effet négligeable sur la croissance des grains comme le montre la Figure V.7a (l'écart à 200 PMC est attribué au manque de statistique). Cela est dû à la nature discrète et probabiliste de la méthode : lorsqu'un pixel est tiré aléatoirement à proximité d'une interface

(joint de grains faiblement ou fortement désorienté), s'il existe une ou plusieurs réorientations qui minimisent l'énergie du système, l'une de ces réorientations aura lieu (la plus probable) quelle que soit la nature de l'interface. C'est uniquement dans le cas d'un tirage sur des points triples ou quadruples où le pixel est adjacent à la fois à un joint faiblement désorienté et à un autre fortement désorienté que l'anisotropie aura un effet : la réorientation par le voisin fortement désorienté sera privilégiée comme le montre les lois de probabilité du modèle dans l'Eq. (V.15). Pour avoir un effet marqué de la nature des interfaces sur la croissance des grains, il faudrait insérer des conditions sur le tirage des pixels, par exemple on pourrait envisager de tirer à une fréquence plus élevée des pixels à proximité des HAGB dont la mobilité est plus élevée que celle des LAGB.

Dans l'ensemble, cette évolution de la microstructure filée au cours du temps de simulation est proche de ce que l'on observe expérimentalement dans le Chapitre III pour les nuances R0,05 et STi lorsque les nanoparticules coalescent (Figure V.5). Bien que le calcul n'ait pas été fait suffisamment long pour obtenir la taille expérimentale proche de 10 µm (il faudrait des cartographies initiales beaucoup plus grandes et donc des temps de simulation considérables de plusieurs mois puisqu'il faut déjà environ 6 jours pour simuler la Figure V.6f avec le processeur utilisé), il apparaît très probable qu'un mécanisme de croissance normale des sous-grains soit à l'origine des évolutions microstructurales observées expérimentalement dès 1150°C dans la nuance R0,05 et à 1300°C dans la nuance STi. La différence est qu'expérimentalement la croissance des sous-grains est dictée par la coalescence des particules aux joints de grains. La croissance des sous-grains est donc freinée par la présence des grosses particules et pourrait même être stoppée dans le cas où les particules cesseraient de coalescer. Inversement, dans la simulation, aucun épinglage n'a été intégré et la croissance de grains n'est donc pas limitée dans le temps.

1.4.1.B Croissance des sous-grains avec particules

En considérant toujours ici un mécanisme de croissance de sous-grains, des simulations ont été réalisées en prenant en compte une population de particules. L'objectif est notamment de vérifier, en présence de nanoparticules, la stabilité remarquable des microstructures filées observée expérimentalement (Chapitre III). Bien que cela soit possible, l'intégration dans le modèle de grosses particules micrométriques n'est pas implémentée pour le moment, on se limitera donc à simuler des populations de particules d'une taille moyenne maximale de 20 nm.

Quatres populations différentes de particules sphériques ont été simulées pour cette microstructure filée. Leurs caractéristiques sont présentées dans le Tableau V.2. Afin d'observer une croissance des sous-grains en présence de particules, les populations 1, 2 et 3 ne correspondent pas à celles observées dans nos nuances ODS puisqu'on considère des particules plus grosses (diamètre de 20 nm). En revanche, la population 4 est proche de ce que l'on a mesuré par DNPA à l'état de réception dans la nuance R0,05 (voir Chapitres III et IV). Dans la suite, on appellera « particules intermédiaires » celles présentant un rayon moyen de 10 nm et « nanoparticules » celles avec un rayon moyen de 1,5 nm mesuré expérimentalement dans les nuances ODS.

Population	**1**	**2**	**3**	**4**
F_v (%)	0,2	0,5	1	0,5
r_m (nm)	10	10	10	1,5
σ (nm)	3,3	3,3	3,3	0,5
$P_{z,\ moyen}$ (MPa)	0,3γ	0,75γ	1,5γ	5γ

Tableau V.2 : Caractéristiques des populations de particules simulées dans la microstructure filée

L'évolution de la taille des sous-grains au cours du temps de simulation pour les différentes populations est présentée sur la Figure V.8a. Les premiers stades de la courbe de croissance sans particules (noire) ont également été ajoutés. D'une manière générale, on remarque que l'introduction de particules limite fortement la croissance des sous-grains comme le montrent les Figure V.9a (sans particules) et V.9b (avec particules) pour un même temps de simulation de 20 PMC. En effet, les tailles de grains saturent à des valeurs inférieures à 1 µm, même pour la population 1 de particules intermédiaires ($D_{crit} \approx 0{,}90$ µm) qui induit l'épinglage le plus faible. Les populations 2 et 3 conduisent à des diamètres critiques respectivement de 0,75 et 0,7 µm. Dans le cas de la population 4 (courbe rouge), il n'y a aucune croissance des sous-grains. Il apparaît donc ici que lorsque l'on considère uniquement des forces motrices capillaires, la croissance des sous-grains est fortement limitée par les particules intermédiaires et totalement inhibée par les nanoparticules. Pour observer une croissance de sous-grains significative, il faudrait considérer soit des particules encore plus grosses, qui occuperaient un ou plusieurs pixels soit des fractions volumiques bien plus faibles.

Dans le Chapitre III, nous avons montré qu'à partir de la loi de croissance des grains en champ moyen définie par Hillert [24] et de la pression d'épinglage (définie par le formalisme de Zener), on peut définir un diamètre critique de grains critiques tel que :

$$D_{crit} = 2\frac{r}{6F_v} \tag{V.19}$$

Pour un rayon constant moyen r des particules, cette relation suppose donc une proportionnalité entre l'inverse de la fraction volumique et la taille critique des grains D_{crit}. Comme on peut le voir sur la Figure V.8b, on a bien une correspondance linéaire entre la taille des grains et $1/F_v$ avec la simulation Monte Carlo (points bleus). En revanche, la pente est bien plus faible que celle prédite par le model de Zener. Il semble donc que la relation définissant la taille critique des grains en présence de particules soit ici plus générale et de la forme [25]:

$$D_{crit} = 2\frac{Kr}{F_v^m} \tag{V.20}$$

Où *K* est un paramètre adimensionnel égal à 0,025 (égale à 0,17 dans l'Eq.(V.19)) et *m* un exposant égal à 1. Ici, la taille critique des grains est donc beaucoup moins sensible à la variation de la fraction volumique de particules. Cependant, il faut prendre en compte que les résultats obtenus dépendent de la valeur de kT choisie et de la distance L, qui doit être adaptée à la microstructure.

En effet, il est intéressant de mentionner qu'une augmentation de la valeur de kT peut conduire à des tailles limites de grains plus élevées. Une valeur de kT plus élevée rend plus probable les réorientations lorsque la variation d'énergie est légèrement positive. Ainsi, même sur des sites où l'énergie d'épinglage est supérieure à la variation d'énergie d'interface, la probabilité peut devenir suffisamment significative pour qu'on assiste à une réorientation du site par un de ses voisins. Ce phénomène est caractéristique de la méthode Monte Carlo mais est peu représentatif de la réalité puisqu'expérimentalement, la taille critique des grains pour une population de particules stables n'est pas dépendante des paramètres cinétiques (temps et température).

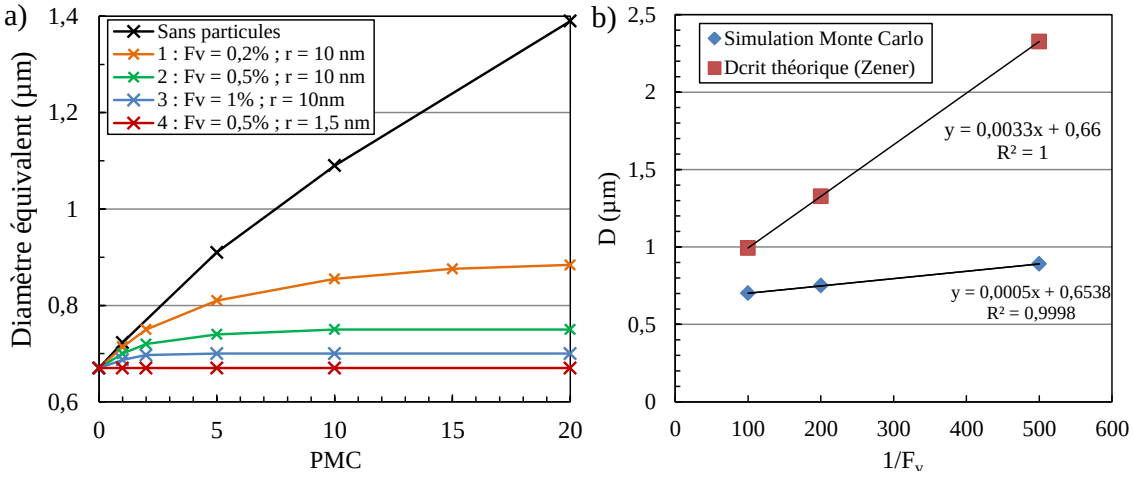


Figure V.8 : a) Evolution de la taille des sous-grains avec le temps de simulation dans la microstructure filée pour les différentes populations de particules du Tableau V.2 et b) diamètre critique des sous-grains en fonction de $1/F_v$

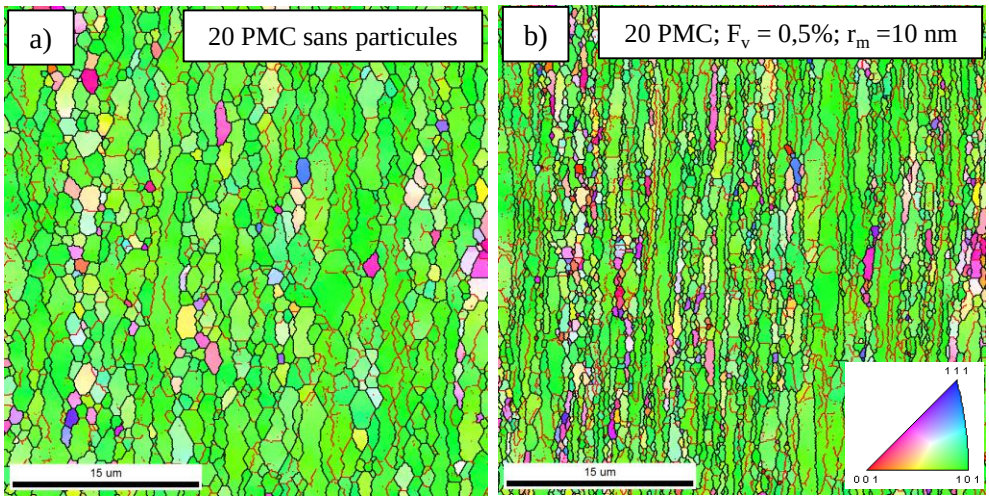


Figure V.9 : Cartographies IPF (référence DF) de la microstructure filée après 20 PMC a) sans particules et b) avec la population 2

L'intérêt du paramètre L est apparu ici puisqu'en effectuant une homogénéisation à partir de la taille des pixels, la pression capillaire était fortement surestimée.

1.4.1.C Recristallisation discontinue SSN

Bien qu'expérimentalement aucune recristallisation discontinue n'ait été observée dans les microstructures filées, on propose ici de simuler ce mécanisme sans et avec des nanoparticules. La densité de dislocations critique pour permettre la germination est arbitraire (car nous n'avons pas de référence expérimentale) et est prise égale à 5.10^{15} m^{-2} afin d'obtenir une centaine de germes recristallisés (130 plus précisément). La cartographie des densités de GND utilisée comme donnée d'entrée pour la simulation est présentée sur la Figure V.10. On conserve le paramètre kT égale à 0,04. La croissance des grains recristallisés au cours du temps est visible sur la Figure V.11. Afin de faciliter l'observation des grains recristallisés, la microstructure déformée n'est pas coloriée (zones noires).

La taille des germes (0,1 µm) régit par la taille des pixels est en théorie trop faible pour permettre leur croissance comme il a été montré dans le Chapitre IV, notamment avec la formule de Bailey et

Hirsch [26]. Le paramètre L permet de considérer une énergie capillaire moindre que celle qui s'applique en réalité sur des germes de 0,1 µm et donc de permettre la croissance des germes. On peut donc considérer les premiers PMC comme un temps d'incubation « fictif » nécessaire pour que les germes atteignent la taille critique réellement nécessaire à leur croissance dans la réalité. Selon la relation de Bailey et Hirsch, cette taille est d'environ 2 µm dans la microstructure filée qui présente une énergie stockée moyenne de 1,6 MPa.

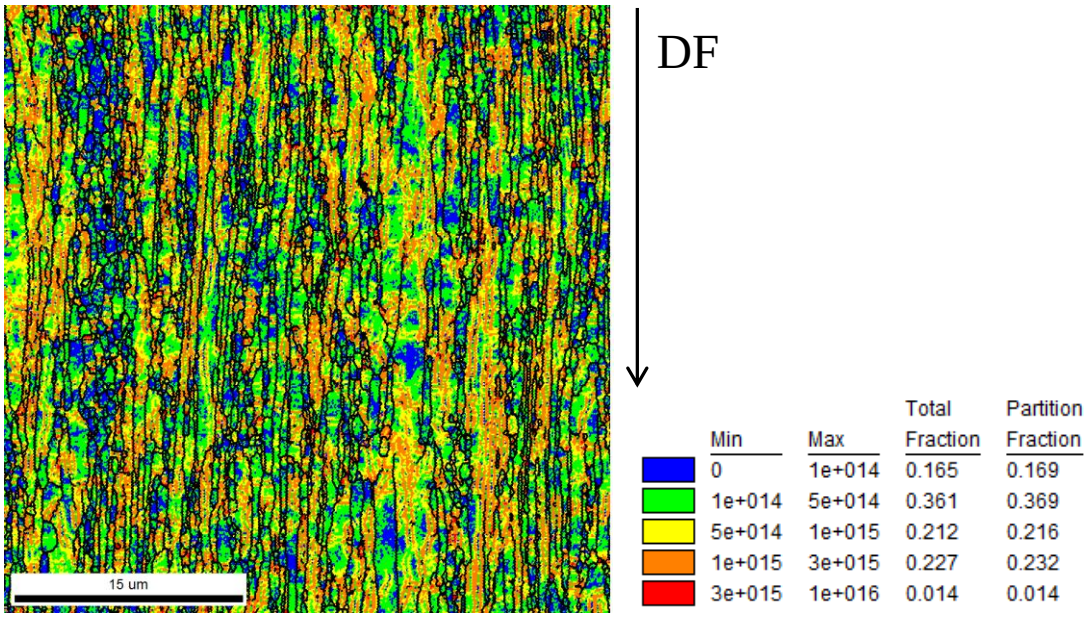


Figure V.10 : Cartographie de la densité de GND utilisée pour la simulation (HAGB en noir)

Lorsque les germes croissent dans la microstructure déformée, l'interface germe/matrice (front de recristallisation) est particulièrement tortueuse car la contribution de l'énergie d'interface est faible devant celle de l'énergie stockée. En revanche, lorsque les germes entrent en contact entre eux (bien visible à partir de 20 PMC sur la Figure V.11e) la pression motrice due au gradient d'énergie stockée devient nulle et on observe un aplanissement des joints de grains généré par la minimisation de l'énergie d'interface et la réduction de taille des petits grains (flèches noires sur la Figure V.11f). Ce mécanisme correspond à la croissance normale des grains qui suit la recristallisation primaire. Si on poursuivait la simulation (non présenté ici), on observerait alors la disparition des plus petits grains recristallisés et la croissance des plus gros.

Sur la Figure V.12, on peut vérifier que l'évolution de la fraction recristallisée sans particule suit une loi JMAK (courbe noire en pointillés) telle que :

$$f_{Rx} = 1 - \exp(-kt^n) \qquad \text{(V.21)}$$

Avec k un coefficient dépendant du nombre de germes et de la vitesse de croissance des grains recristallisés et n l'exposant JMAK [22]. Ici on a $k = 1{,}2.10^{-3}$ et $n = 2{,}5$. La valeur de n comprise entre 2 et 3 est caractéristique de mesures effectuées en 2D lors d'une recristallisation discontinue [22]. Néanmoins, comme le mentionnent Wang *et al.* [11], il n'est pas possible de donner un sens plus physique aux valeurs de k et n puisque le temps n'est pas défini physiquement en Monte Carlo. Ainsi, on peut seulement utiliser ces paramètres à titre comparatif entre différentes simulations, ce qui sera fait par la suite.

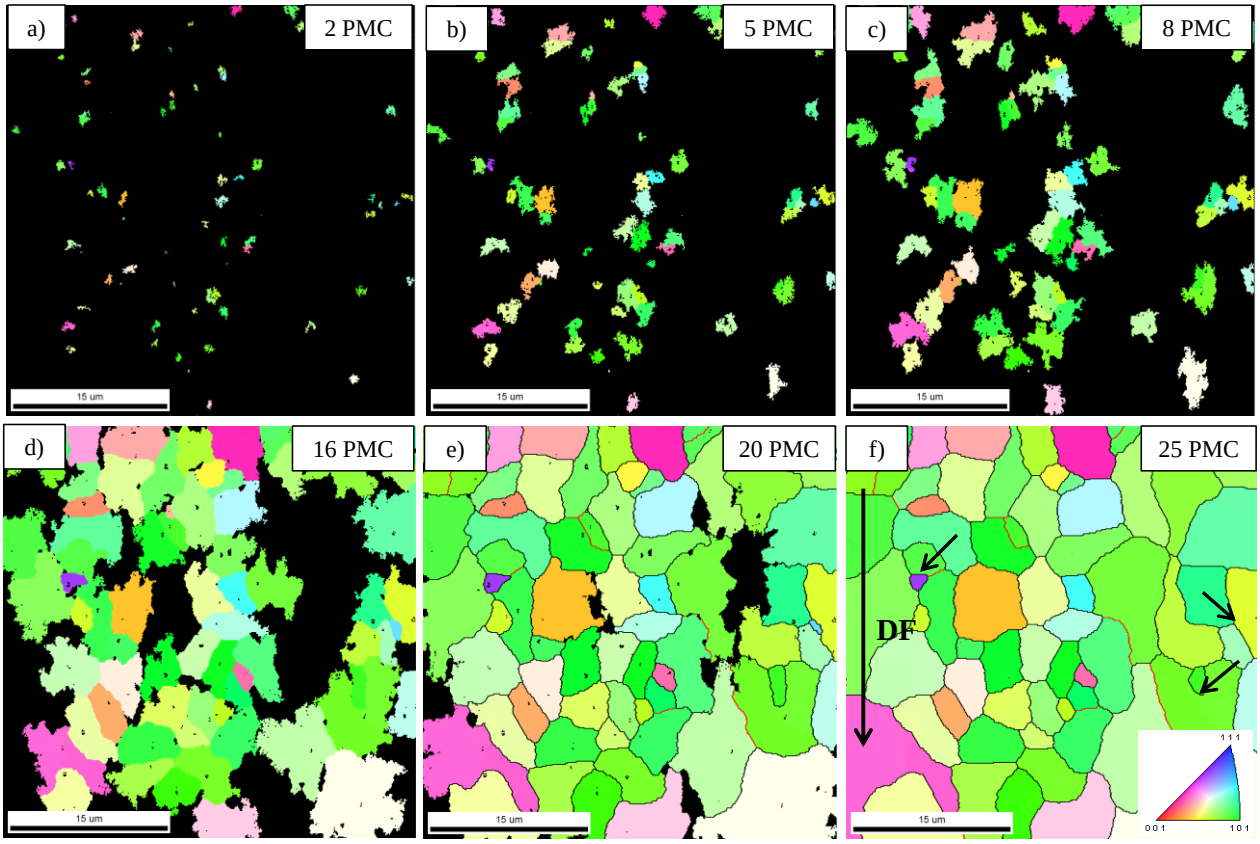


Figure V.11 : Cartographies IPF (référence DF) pour différents temps de simulation de la recristallisation discontinue dans la nuance filée sans nanoparticules pour kT = 0,04

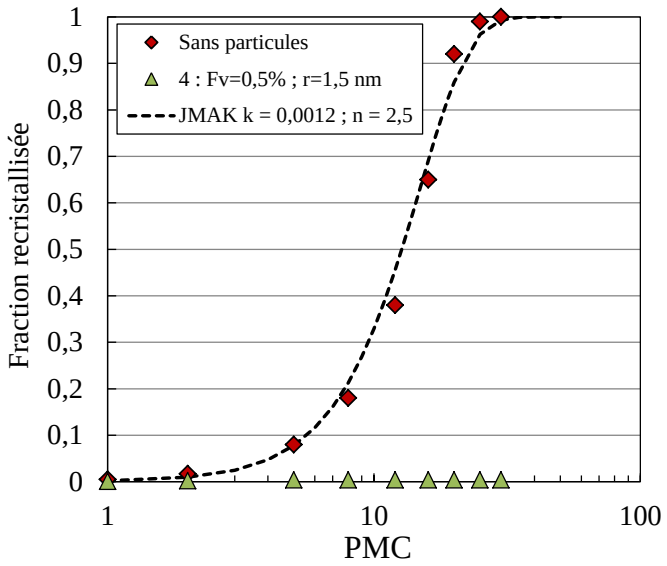


Figure V.12 : Fraction recristallisée de la microstructure filée au cours du temps de simulation sans et avec particules

Il est intéressant de noter que ce mécanisme de recristallisation avec germination dans les zones de haute énergie stockée conduit à l'apparition de grains avec des orientations plus aléatoires, différentes de la fibre α (grains verts) et de l'orientation <114>//DF (grains roses) observées expérimentalement après recuit (Figure V.5). Ainsi, en plus du fait qu'il n'avait pas été observé une recristallisation discontinue

expérimentalement (Chapitre III), cette différence de texture de recristallisation entre simulation et expérience confirme que ce n'est pas ce mécanisme qui a lieu lors des recuits à haute température sur les nuances filées faiblement renforcées (R0,05 et STi) où les particules coalescent fortement (Figure V.5).

Sur la Figure V.13, on constate que la prise en compte d'une population de particules dans la simulation avec F_v = 0,5% et r = 1,5 nm suffit à inhiber complètement la recristallisation. En effet, il n'y a aucune croissance des germes recristallisés au cours du temps : la pression motrice due à l'énergie stockée dans la microstructure est trop faible devant la pression d'épinglage. Ce résultat est en accord avec l'importante stabilité des nuances R0,1, R0,2 et R0,3 à l'état de réception.

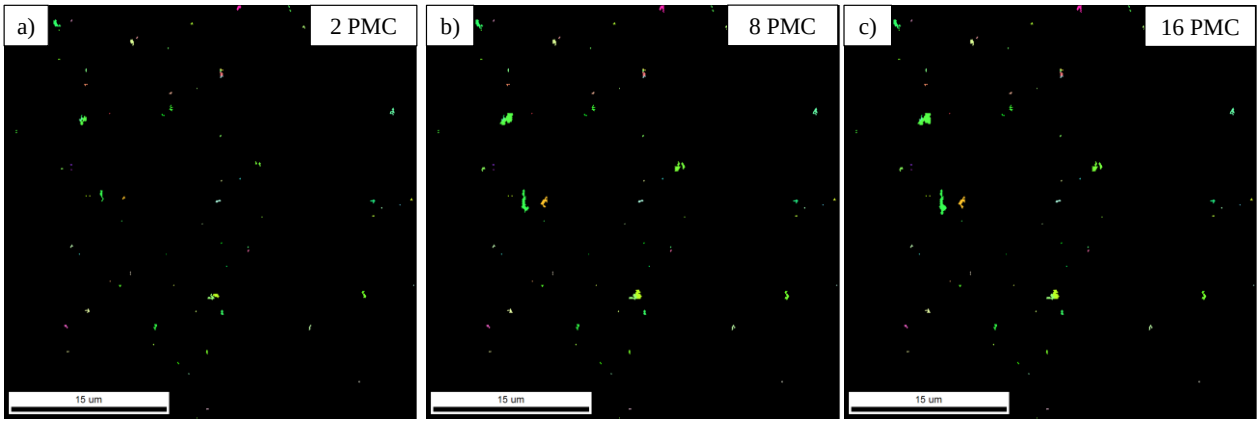


Figure V.13 : Cartographies IPF (référence DF) pour différents temps de simulation de la recristallisation discontinue de la nuance filée en présence de nanoparticules (F_v = 0,5% ; r = 1,5 nm) avec kT = 0,04

Suite à la simulation Monte Carlo des évolutions microstructurales sur l'état filé, on peut souligner les points suivants :

- La simulation du mécanisme de croissance des sous-grains conduit à une accentuation de la fibre α et à une morphologie équiaxe des sous-grains ce qui est en accord avec les observations expérimentales dans les nuances R0,05 et STi après la forte coalescence des nanoparticules.
- La prise en compte de l'anisotropie des interfaces a peu d'effet sur la cinétique de croissance des sous-grains du fait de la nature discrète et probabiliste de la méthode Monte Carlo.
- La prise en compte des particules limite fortement la croissance des sous-grains. Si on considère une population de nanoparticules (r = 1,5 nm), aucune croissance des grains n'est observée.
- La taille de grains critique présente une dépendance linéaire avec la fraction volumique de particules, comme dans le formalisme classique de Zener. En revanche, cette dépendance est moins forte (coefficient K plus faible).
- La recristallisation discontinue GSHE sans particule conduit à une texture plus aléatoire que celle observée après croissance des sous-grains.
- L'ajout d'une population de nanoparticules inhibe totalement la recristallisation, car l'énergie stockée dans la microstructure filée est trop faible pour permettre la croissance des germes.

1.4.2 Microstructure déformée par compression simple

Comme nous l'avons vu dans le Chapitre IV, dans les nuances conventionnelles R0,2 et R0,3, les microstructures après compression simple (Figure V.14a pour la nuance R0,2) sont très texturées avec une fibre <111> parallèle à la direction de compression (DC). Après recristallisation primaire à 1150°C

(Figure V.14b), la microstructure est recristallisée à 80%, la texture cristallographique est très atténuée et les grains sont fortement désorientés entre eux ce qui laisse supposer un mécanisme de recristallisation discontinu. On ne s'intéressera donc pas à modéliser un mécanisme de croissance de sous-grains dans cette microstructure qui ne serait pas représentatif des modifications microstructurales observées après un recuit.

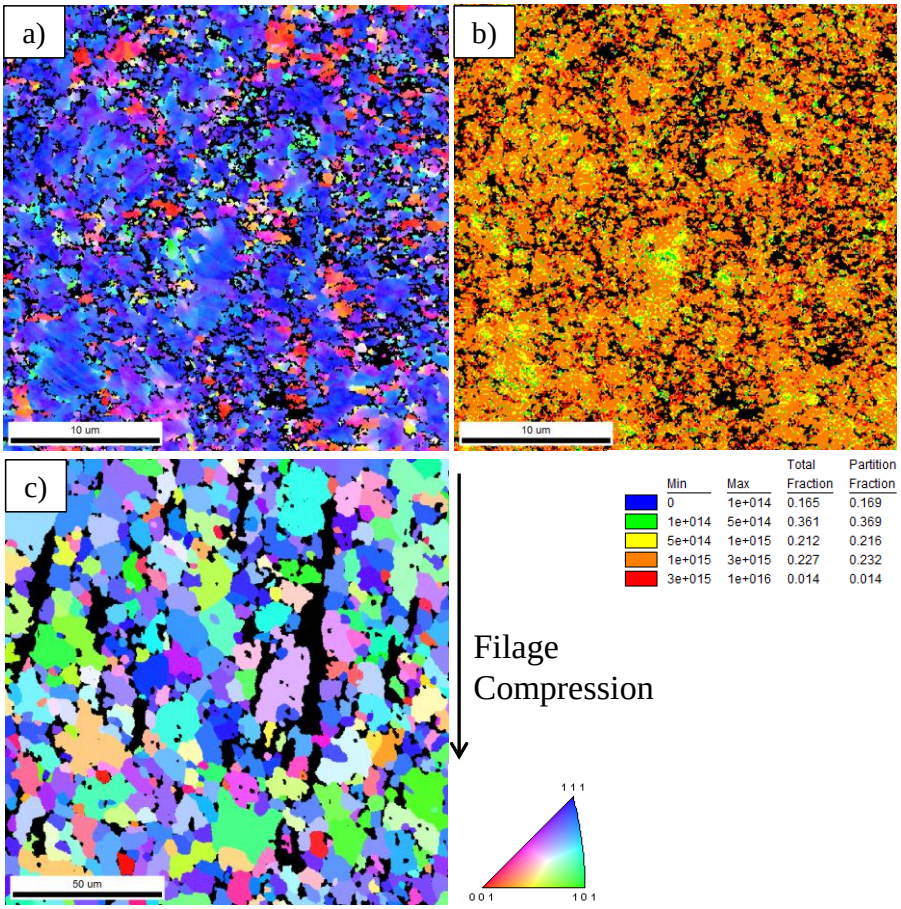


Figure V.14 : a) Cartographie IPF (référence DF) de la microstructure déformée de la nuance R0,2, b) cartographie de la densité de GND associée et c) microstructure recristallisée de la nuance R0,2 après recuit 1h à 1150°C

1.4.2.A Recristallisation discontinue SSN sans particules

On se propose dans un premier temps de simuler une recristallisation SSN par GSHE sans particules pour une valeur de densité critique de dislocations de $6{,}0.10^{15}$ m^{-2} et d'étudier l'évolution de la fraction recristallisée et de la taille des grains au cours du temps de simulation. La valeur de la densité critique de GND pour la germination a été choisie afin d'obtenir un nombre de germes et donc une taille de grains après recristallisation primaire comparable à celle obtenue expérimentalement (entre 4 µm et 8 µm dans les différentes nuances dans le Chapitre IV). Le Tableau V.3 donne le nombre de germes formés et le diamètre équivalent moyen estimé des grains recristallisés en fonction de la densité de dislocations critique pour qu'il y ait germination. Il est logique de constater que plus la densité critique est faible, plus le nombre de germes est important et la taille des grains après recristallisation petite. On remarque donc que la valeur de $6{,}0.10^{15}$ m^{-2} est la plus susceptible de conduire à des tailles de grains comparables à celles des microstructures expérimentales.

$\rho_{GND,critique}$ (m^{-2})	$6{,}5.10^{15}$	$6{,}0.10^{15}$	$5{,}5.10^{15}$	$5{,}0.10^{15}$	$4{,}5.10^{15}$	$4{,}0.10^{15}$
Nombre de germes	5	107	341	723	1435	2568
Diamètre équivalent moyen estimé (µm)	15,1	3,3	1,8	1,3	0,9	0,7

Tableau V.3 : Nombre de germes et taille moyenne estimée des grains après recristallisation primaire en fonction de la densité de GND critique

La Figure V.15 montre la croissance des grains recristallisés en fonction du temps de simulation (les zones noires correspondent aux grains déformés). Ici aussi, l'introduction du paramètre L permet de déclencher la croissance des germes qui seraient autrement trop petits. Néanmoins, l'énergie stockée moyenne plus importante (4,8 MPa) que dans la microstructure filée fait que le temps d'incubation fictif est plus faible et les germes atteignent rapidement (2 PMC) une taille d'environ 0,6 µm qui correspond à la taille critique pour leur croissance selon la relation de Bailey et Hirsch.

Bien qu'il soit difficile de discuter la texture de manière quantitative à cause de la faible taille de la cartographie, il est intéressant de voir que de nombreux germes/grains présentent des orientations variées, différentes de la fibre <111>//DC. Comme pour la microstructure filée, la GSHE conduit donc à l'apparition de grains recristallisés avec des orientations plus aléatoires. Cela tend à confirmer les hypothèses proposées dans le Chapitre IV, à savoir que les germes apparaissent préférentiellement dans les zones orientées différemment de la fibre <111>, qui ont stockées en moyenne plus d'énergie. Cela peut donc expliquer l'atténuation de la texture de recristallisation par rapport à la texture de déformation à une échelle plus grande que celle des cartographies de la Figure V.15.

L'interface germe/matrice (front de recristallisation) est plus tortueuse que dans la microstructure filée (Figure V.11) mais les grains semblent croître de manière plus équiaxe. La raison à cela est que l'énergie stockée est bien plus élevée et homogène que dans la microstructure filée et l'énergie d'interface devient donc négligeable lors de la croissance des germes. En revanche, lorsque les grains recristallisés entre en contact entre eux (à partir de 8 PMC sur la Figure V.15d) on retrouve le mécanisme de croissance de grains qui suit la recristallisation primaire avec l'aplanissement des joints de grains bien visible au niveau des flèches noires sur la Figure V.15f.

La courbe de la fraction recristallisée en fonction du nombre de PMC (Figure V.16) suit de nouveau une loi JMAK de paramètres k = 0,005 et n = 2,6. La valeur de n est proche de celle trouvée dans la microstructure filée (2,5) mais la valeur de k est très supérieure d'un facteur 4 environ (0,0012 dans l'état filé). On peut directement associer cette variation de la valeur de k à une vitesse de croissance plus rapide des grains recristallisés dans la microstructure déformée par compression. En effet, dans la microstructure filée, la contribution de l'énergie d'interface reste significative par rapport à l'énergie stockée qui est faible. Ainsi, lorsque les germes sont encore petits, la pression capillaire tend à freiner leur croissance. Inversement dans les microstructures déformées par compression, la pression capillaire est négligeable devant la pression motrice due à l'énergie stockée et les germes peuvent croître plus rapidement.

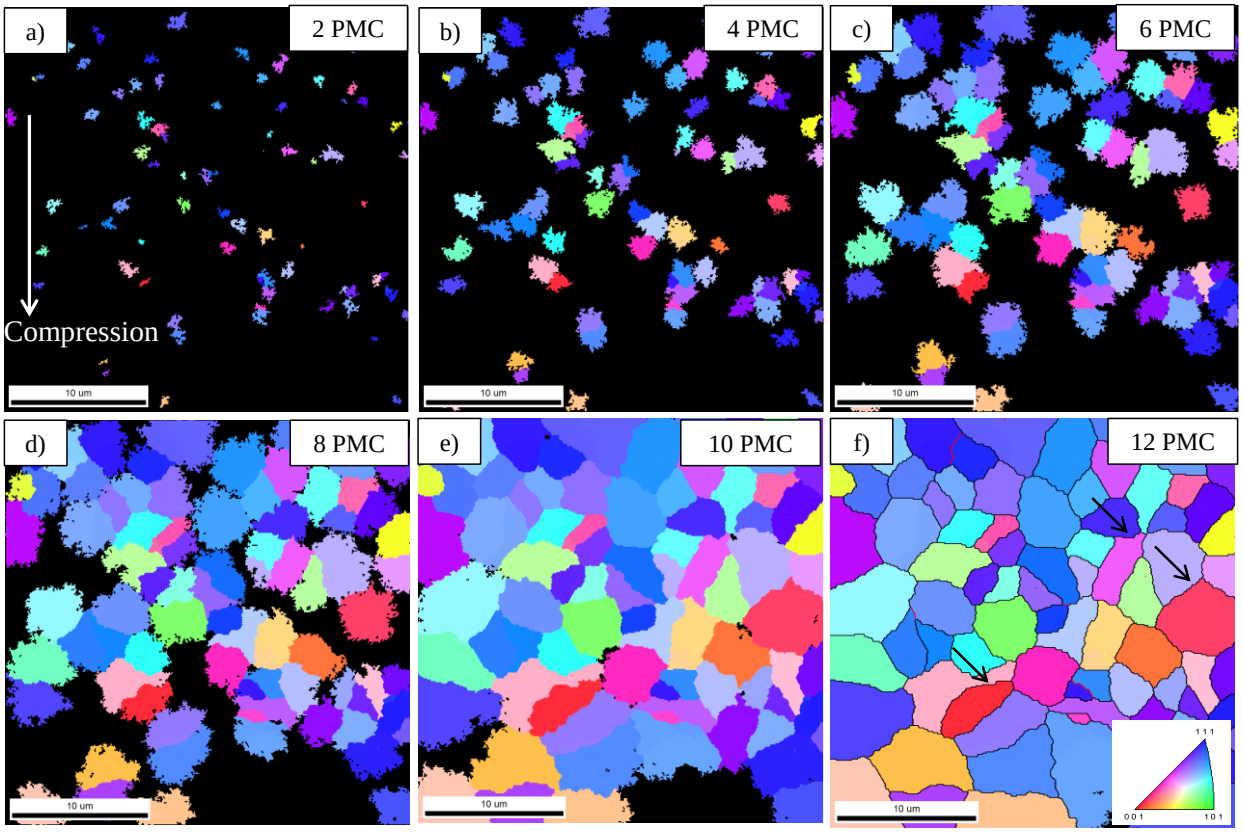


Figure V.15 : Simulation de la recristallisation sans particules dans la nuance déformée par compression pour kT = 0,04

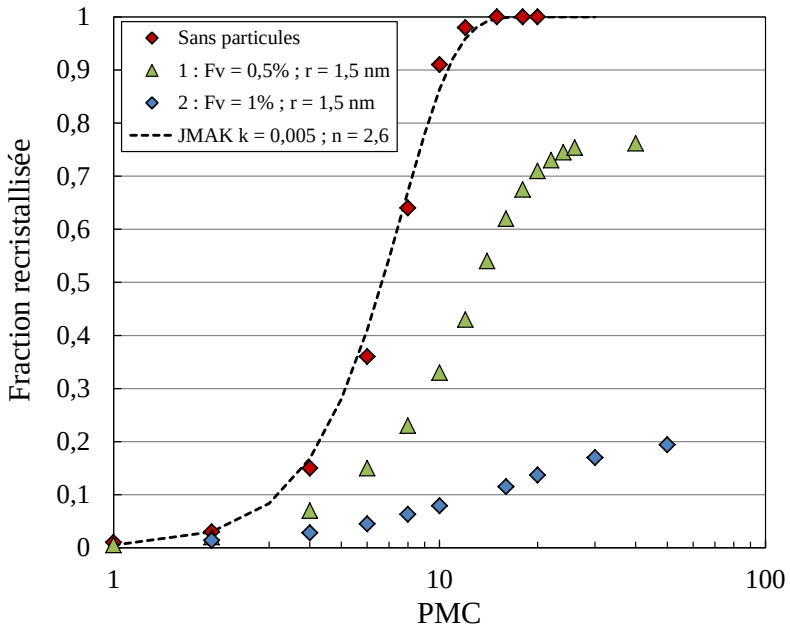


Figure V.16 : Evolution de la fraction recristallisée au cours du temps de simulation dans la microstructure déformée par compression

1.4.2.B Recristallisation discontinue SSN avec particules

La recristallisation discontinue SSN a également été simulée en présence de deux populations de nanoparticules différentes, proches de celles mesurées expérimentalement, dont les caractéristiques sont présentées dans le Tableau V.4. La population 1 est assimilable à celle de la nuance R0,05 tandis que la population 2 est proche de celle de la nuance R0,2. L'évolution de la fraction recristallisée en fonction du nombre de PMC est présentée sur la Figure V.16. Pour un temps de simulation constant de 10 PMC, les cartographies IPF avec et sans particules sont présentées sur la Figure V.17.

Population	**1**	**2**
F_v (%)	0,5	1
r_m (nm)	1,5	1,5
σ (nm)	0,5	0,5
$P_{z,\ moyen}$ (MPa)	5γ	10γ

Tableau V.4 : Caractéristiques des populations de nanoparticules simulées dans la microstructure déformée par compression

Il apparaît clairement sur la Figure V.16 que l'ajout des nanoparticules ralentit la cinétique de recristallisation et conduit à une recristallisation partielle de la microstructure. La recristallisation n'est pas totale car l'énergie stockée est initialement hétérogène et il existe alors des zones où les pressions motrices ne sont pas suffisantes devant la pression d'épinglage. Les grains recristallisés ne peuvent donc pas croitre dans ces zones. La fraction recristallisée finale est d'environ 75% avec la population 1 et de l'ordre de 20% avec la population 2. En présence de particules, les grains présentent des morphologies beaucoup moins équiaxes au cours de leur croissance comme le montre les Figure V.17b et V.17c. Ces morphologies très sinueuses sont peu représentatives de la réalité et peuvent être attribuées à la présence d'une fraction non négligeable de zones non-indexées lors de l'analyse EBSD auxquelles on a attribué l'énergie stockée maximale. Bien qu'en première approche, ce choix soit justifié puisqu'il s'agit de zones fortement déformées, les germes recristallisés vont avoir tendance à se propager dans ces zones qui sont, dans le cas de la population 2, parmi les seules où l'énergie stockée est suffisante pour permettre la croissance des grains. Autrement, l'énergie d'épinglage est trop élevée et la croissance est rapidement stoppée. On remarque ainsi un certain nombre de germes de très faible taille qui n'ont pas cru sur la Figure V.17c (flèches blanches).

Il est intéressant de comparer l'évolution de la fraction recristallisée dans les microstructures filées et déformées par compression en présence de la même population de nanoparticules (F_v = 0,5% et r = 1,5 nm). En effet, sans la déformation à froid, la fraction recristallisée reste proche de 0 et les germes ne peuvent pas croître (Figure V.13). A l'inverse, suite à la déformation à froid, on parvient à atteindre une fraction recristallisée de 76% après 40 PMC (bien que les zones non indexées puissent contribuer à légèrement surestimer cette valeur). Ces résultats confirment donc les observations faites dans les Chapitres III et IV, à savoir que les microstructures après filage sont très stables et que c'est la déformation à froid qui permet d'apporter l'énergie nécessaire à la recristallisation. En perspective, il serait également intéressant de simuler la recristallisation par Monte Carlo après d'autres modes de déformation, comme la CU//DT où le laminage à pas de pélérin.

Néanmoins, les simulations sont en désaccord avec les résultats expérimentaux du Chapitre IV concernant la fraction recristallisée dans les nuances conventionnelles R0,2 et R0,3. En effet, on voit sur la Figure V.16 qu'une population de nanoparticules avec F_v = 1% et r = 1,5 nm suffit à fortement limiter la fraction recristallisée à environ 20 %. Or, dans les nuances R0,2 et R0,3 déformées par CU//DF (ε = 0,7) qui présentent des fractions volumiques de particules supérieures à 1%, on a mesuré des fractions

recristallisées proches de 80% après les recuits à 1150°C et 1300°C. Les hypothèses pour expliquer ces écarts sont les mêmes que celles évoquées dans le Chapitre IV à savoir (i) une sous-estimation de l'énergie stockée mesurée par EBSD ou (ii) une surestimation de la pression d'épinglage exercée par les nanoparticules. Dans le cas de la seconde hypothèse, celle-ci peut être générée soit par une légère surestimation de la fraction volumique de particules, soit par l'utilisation d'un formalisme (Zener) non adapté pour décrire les pressions d'épinglages de nanoparticules.

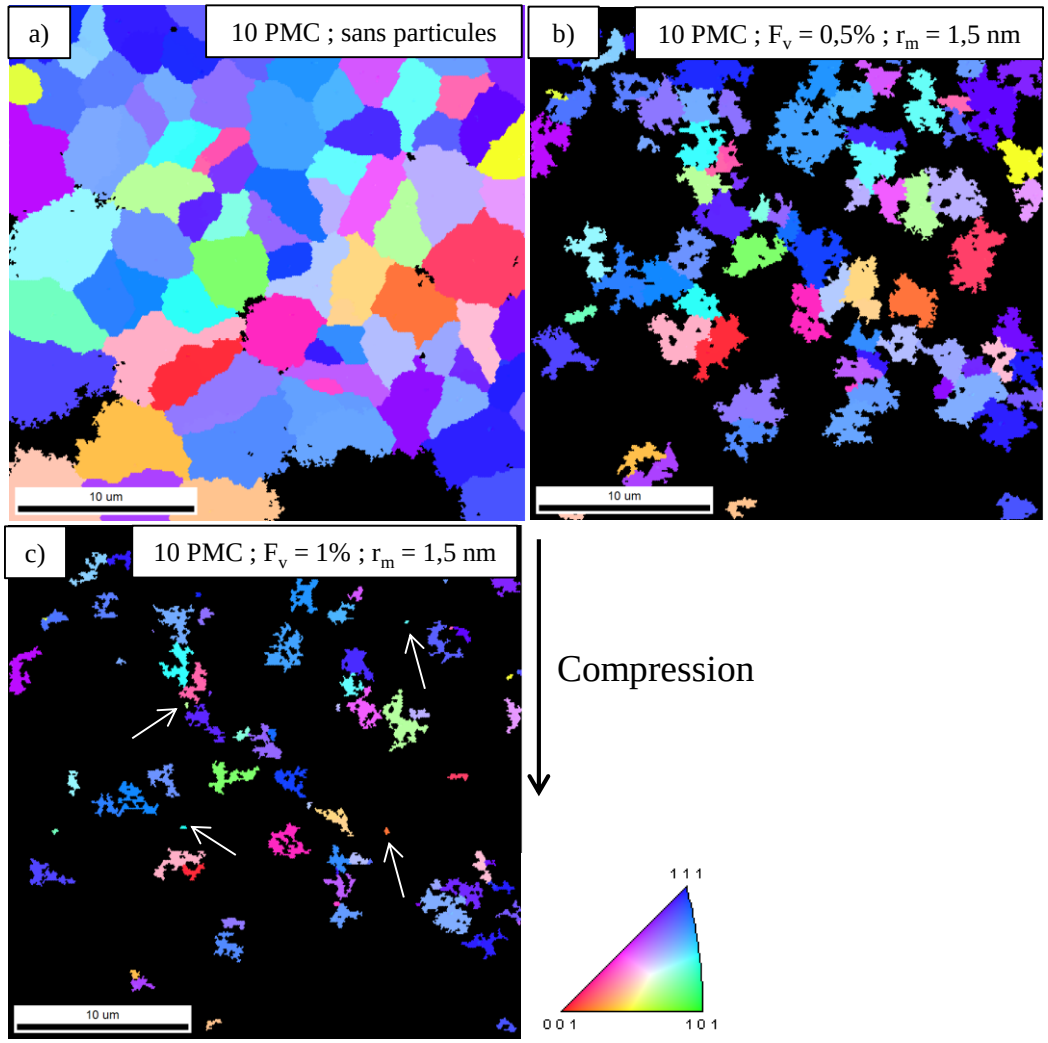


Figure V.17 : Cartographies IPF (directions cristallographiques // DC=DF) des grains recristallisés après 10 PMC a) sans particules, b) avec la population 1 et c) avec la population 2

La modélisation de la recristallisation discontinue par GSHE dans la microstructure compressée à ε = 0,7 a permis de mettre en avant les principaux résultats suivants :

- La GSHE conduit à l'apparition d'un nombre significatif de germes avec une orientation différente de la fibre <111>//DC. A une plus grande échelle, c'est probablement ce mécanisme qui conduit à la texture de recristallisation peu intense observée expérimentalement.

- La recristallisation sans particules est plus rapide que dans la microstructure filée car l'énergie stockée motrice pour la croissance des germes/grains est plus élevée.
- En présence d'une population telle que F_v = 0,5 % et r = 1,5 nm, après compression, on atteint une fraction recristallisée d'environ 75% alors que la microstructure filée ne montre aucune recristallisation.
- En revanche, l'ajout d'une population de nanoparticules dans la microstructure compréssée avec une fraction de 1% (r = 1,5 nm) limite fortement la croissance des germes et la fraction recristallisée est inférieure aux observations expérimentales sur les nuances présentant des populations similaire (R0,2) ou supérieure (R0,3).

1.4.3 Conclusion sur la méthode Monte Carlo

La simulation des mécanismes de croissance des sous-grains et de recristallisation discontinue par la méthode Monte Carlo permet d'apporter des réponses aux suppositions faites à partir des résultats expérimentaux.

Dans le cas de la microstructure filée, les simulations montrent qu'un mécanisme de croissance des sous-grains conduit à une accentuation de la texture de filage (fibre α) et à la disparation de petits grains orientés plus aléatoirement. Ceci est en accord avec les observations expérimentales dans les nuances R0,05 et STi après coalescence des nanoparticules. A l'inverse, la recristallisation discontinue conduit à une diminution de l'acuité de la fibre α qui n'est pas observée expérimentalement, ce qui exclut à priori ce mécanisme. On montre également qu'en présence de fines particules, la croissance des sous-grains est rapidement stoppée et ces derniers ne dépassent pas 1µm. Concernant la recristallisation, avec une fraction volumique de nanoparticules de 0,5%, il n'y a pas de croissance des germes car l'énergie stockée dans la microstructure après filage est trop faible par rapport à la pression d'épinglage.

La simulation de la recristallisation discontinue sans particules dans la microstructure déformée par compression montre que celle-ci a lieu plus rapidement que dans la microstructure filée puisque l'énergie stockée est bien plus importante. La germination dans les zones de haute énergie stockée permet l'apparition de nombreux grains recristallisés avec des orientations différentes de la fibre <111>//DC, ce qui est également observé expérimentalement et tend ainsi à valider ce mécanisme. L'ajout de nanoparticules montre qu'avec une fraction volumique de 0,5%, on peut atteindre une fraction recristallisée d'environ 75%. En revanche, les simulations montrent qu'il est très difficile de recristalliser avec 1% de nanoparticules, ce qui ne correspond pas aux données expérimentales.

Cependant, ce type de modèle montre aussi des limites. Tout d'abord, le fait qu'il s'agisse d'une méthode discrète où l'on traite les pixels les uns après les autres et non de façon simultanée peut être problématique, notamment pour décrire le mouvement des joints de grains qui en réalité peuvent avancer de front sur toute leur longueur. De plus, les cinétiques de recristallisation et de croissance de grains sont compliquées à étudier. En effet, l'influence de la température dans le modèle agit simplement sur les probabilités et sur le désordre. Quant au temps, celui-ci n'a pas de signification physique puisqu'il est exprimée en PMC. Enfin, l'introduction de la longueur caractéristique L pour permettre l'homogénéisation des énergies est également une source d'incertitude puisque la contribution de l'énergie d'interface peut être légèrement sous-estimée ou surestimée en fonction de la valeur de L. Idéalement, il faudrait pouvoir faire évoluer la valeur de L pendant la simulation. La méthode la plus efficace serait de pouvoir changer L à chaque tirage pour que sa valeur soit adaptée à la taille du grain auquel appartient le pixel tiré. Cependant, cette solution nécessite donc de connaitre la taille du grain pendant la simulation, ce qui n'est pas le cas. La deuxième solution consisterait à stopper la simulation à des intervalles de temps

régulier et d'actualiser la valeur de L à partir de la taille moyenne des grains mesurée dans la microstructure. Actuellement, la solution optimale pour décrire au mieux l'énergie capillaire en présence d'énergies volumiques (nanoparticules et/ou énergie stockée) tout au long d'une simulation constitue une perspective d'optimisation à court terme de ce modèle.

Ces limitations de la méthode Monte Carlo nous conduisent à comparer le modèle à une méthode déterministe pour rendre compte au mieux de l'influence de tous ces paramètres.

2. Comparaison avec la méthode déterministe LevelSet

Dans le but de mieux décrire cette cinétique et de confirmer les hypothèses avancées suite aux résultats obtenus expérimentalement et par simulation Monte Carlo, des modélisations LevelSet ont été réalisées. Ce travail a été effectué par Flore Villaret [27] dans le cadre de son stage de fin d'études d'ingénieur au laboratoire CEMEF (Sophia Antipolis) de l'Ecole des Mines de Paris.

Le formalisme LevelSet, détaillé par Bernacki *et al.* [28], est basé sur la résolution d'équations aux dérivées partielles en utilisant les éléments finis. La fonction LevelSet en un point donné correspond à une distance par rapport à une interface. L'ensemble des isovaleurs 0 de la fonction représente ainsi le réseau de joints de grains. A chaque pas de temps, des équations de convection-diffusion des fonctions LevleSet permettent de rendre compte des mouvements des joints de grains résultants des différentes forces motrices en 2D ou 3D [29]. Dans ce modèle, les particules sont représentées explicitement par des trous dans le maillage [30], visibles sur la Figure V.18. L'interaction entre les joints de grains et les particules est ainsi directement prise en compte par la courbure des joints de grains et l'énergie d'interface au voisinage des particules. A la différence des modèles en champ moyen et Monte Carlo, aucune pression supplémentaire approchée n'a besoin d'être définie dans ce formalisme. Néanmoins, le nombre de particules que l'on peut insérer dans le maillage est limité et cela conduit à l'existence d'une taille minimale critique des nanoparticules en dessous de laquelle celles-ci ne peuvent plus être modélisées si l'on souhaite garder une taille de microstructure (*i.e.* nombre total de grains) respectable. Dans la suite, cette taille critique minimale moyenne est d'environ 10 nm (rayon critique minimal de 5 nm). Afin d'obtenir des populations de particules analogues à celles utilisées en Monte Carlo, la dispersion σ est également considérée égale à $r_m/3$.

La méthode LevelSet, beaucoup plus coûteuse en ressources numériques que l'approche Monte Carlo, permet en revanche une description continue et plus précise de la microstructure. Elle permet aussi de visualiser directement les effets du temps et de la température sur les évolutions microstructurales. Ce formalisme a nécessité de nombreuses optimisations en termes de temps de calcul avant de pouvoir être utilisé dans un code industriel (DIGIMU®). L'anisotropie des joints de grains (énergie et mobilité) est en cours d'incorporation dans le code et n'est donc pas considérée ici. Ainsi, la distinction n'est pas faite entre les joints et les sous-joints de grains en LevelSet.

Cette partie sera dédiée à la comparaison des résultats obtenus en croissance de grains (sans et avec particules) par cette méthode LevelSet avec ceux simulés précédemment par Monte Carlo.

Les simulations LevelSet sont effectuées avec des processeurs Intel Xeon de fréquence 2,5 GHz et de 64 Go de RAM. Le nombre de processeur utilisés est de 8 pour les simulations de croissance de grains sans particules, 20 avec particules et peut atteindre 28 lorsque l'énergie stockée est prise en compte.

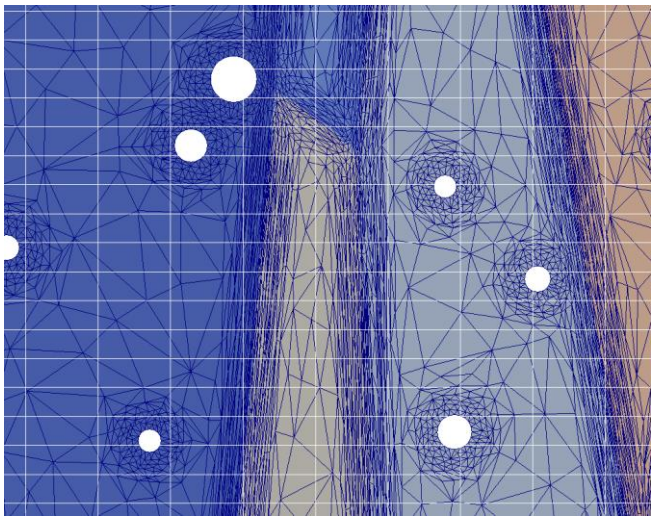


Figure V.18 : Maillage triangulaire éléments finis pour la modélisation par la méthode LevelSet [27]

2.1 Croissance de grains sans particules

Les paramètres d'entrée pour la modélisation sont la microstructure expérimentale (Figure V.6) obtenue par EBSD (comme en Monte Carlo), l'énergie d'activation Q de la diffusion aux joints de grains (174 $kJ.mol^{-1}$), le facteur pré-exponentiel M_0 de la mobilité pris égal à $6{,}5.10^{-6}$ $m^4.J^{-1}.s^{-1}$ (déterminé dans le Chapitre III sur la nuance NonR) et la température, ici 1150°C. Le choix de la mobilité et de la température reste relativement arbitraire tant que l'on souhaite utiliser la méthode LevelSet pour comparer les résultats avec ceux obtenus en Monte Carlo (indépendants de M et T), et non pour modéliser une cinétique expérimentale, qui elle dépendrait des valeurs exactes de M et T. Afin de simuler la croissance des sous-grains comme en Monte Carlo, le critère de désorientation est pris égale à 2°.

L'évolution de la taille de sous-grains en fonction du temps (courbe bleu) ainsi que la courbe D^2-D_0^2 = f(t) (courbe rouge) sont présentées sur la Figure V.19a. Le diamètre des grains pour t = 0 est légèrement inférieure à celui en Monte Carlo car certains points non-indexés sont considérés comme des grains de très petite taille dans le modèle LevelSet, ce qui contribue à diminuer la taille moyenne. Il s'agit là d'un artéfact qui disparait rapidement dès les premiers stades de croissance puisque les petits grains sont consommés par les plus gros. Sur la Figure V.19b, on s'est intéressé à corréler le nombre de PMC au temps réel utilisé dans le formalisme LevelSet, considérant les valeurs de la Figure V.7a (PMC) et celles de la Figure V.19a (temps). Sur la Figure V.19a, on observe une évolution quasi-linéaire de D^2-D_0^2 avec le temps (courbe rouge) jusqu'à environ 0,8 sec et ensuite cette courbe s'écarte de la loi de Burke et Turnbull (elle n'est plus linéaire avec le temps) à cause du nombre de grains qui devient trop faible, comme en Monte Carlo.

Il est très intéressant de constater la dépendance linéaire du nombre de PMC avec le temps. Grâce à cette courbe, on peut donc facilement convertir le nombre de PMC en un temps physique et reporter les points sur la courbe de la Figure V.19a. Ici l'équation de la droite $y = 170x$ nous permet d'en déduire la conversion suivante : **à 1150°C, 170 PMC sont équivalents à 1 sec**. Evidemment cette correspondance serait différente pour une simulation à une autre température et/ou avec une autre valeur du facteur pré-exponentielle M_0.

L'évolution de la microstructure au cours du temps est visible sur la Figure V.20. Plus les grains sont gros, plus leur couleur tend vers le rouge. Les plus petits grains sont en bleu foncé. On remarque

également que les grains deviennent plus équiaxes lors de leur croissance et que ce sont les grains déjà initialement les plus gros qui consomment les autres.

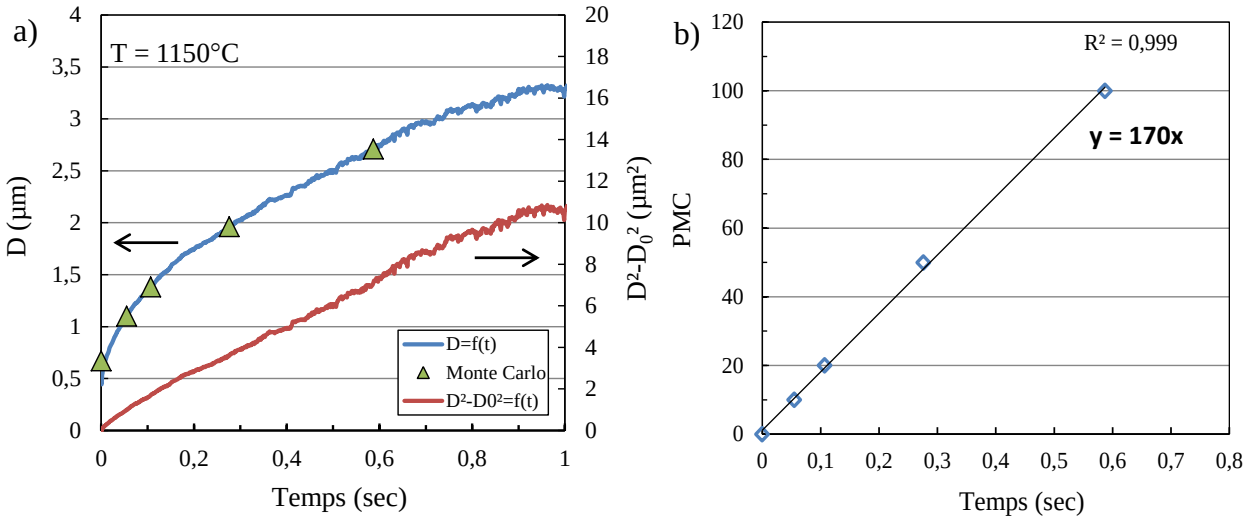


Figure V.19 : a) Evolution de la taille des grains et de D^2-D_0^2 en fonction du temps et b) corrélation PMC-temps à 1150°C

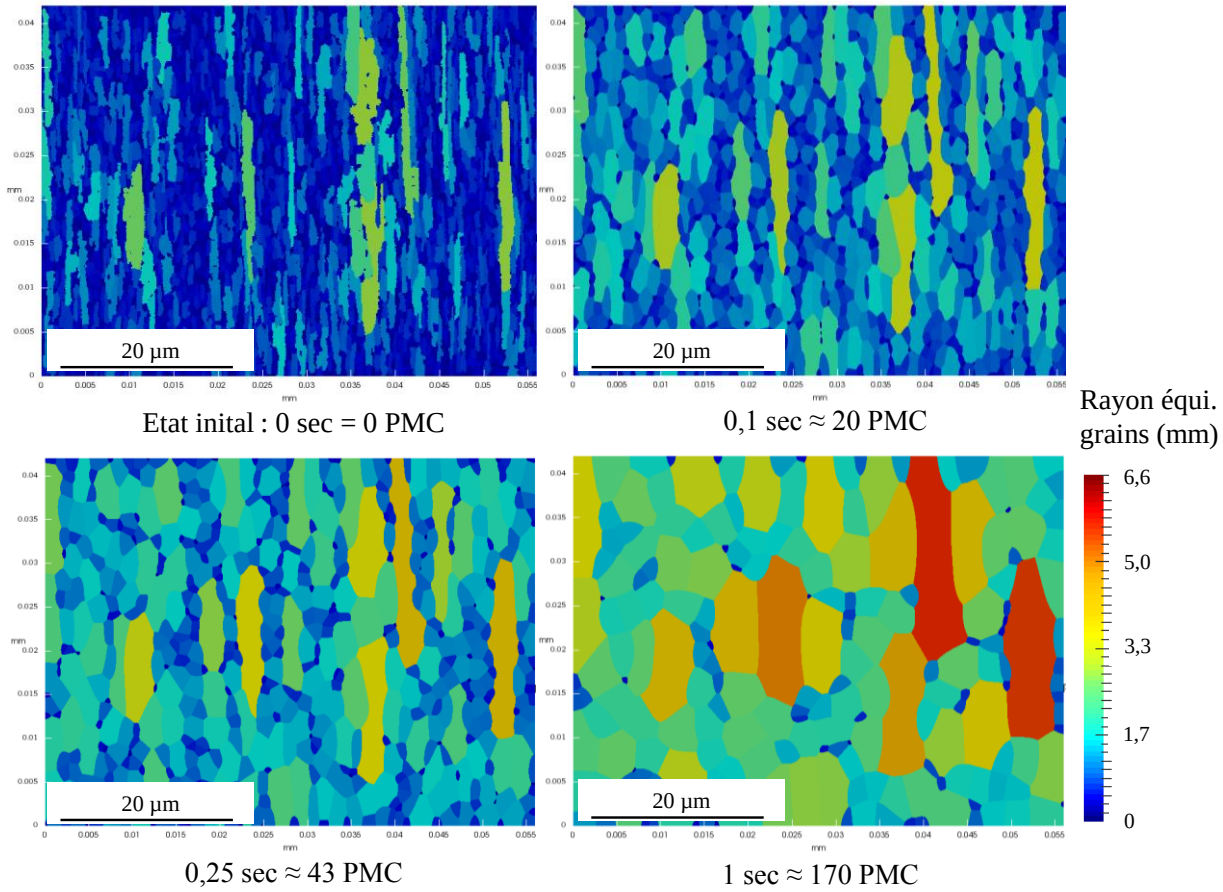


Figure V.20 : Simulation de la croissance des grains au cours du temps de la microstructure filée sans particule à 1150°C par l'approche LevelSet

Ainsi, les résultats de la croissance des sous-grains sans particules obtenus avec la méthode LevelSet sont cohérents avec les résultats en Monte Carlo puisque l'on trouve bien une cinétique de croissance identique entre les deux méthodes. On s'intéresse maintenant à effectuer cette comparaison en présence de particules.

2.2 Croissance de grains avec des nanoparticules

Afin de comparer la croissance des sous-grains en présence de particules avec les deux méthodes, une distribution de particules avec F_v = 0,5% et r = 10 nm a été introduite dans le modèle LevelSet. Pour des raisons de temps de calcul, la simulation a été réalisée sur une carte de plus petite taille (20 × 20 µm²) que celle de la Figure V.20 (40 × 40 µm²). En effet, le calcul dure environ 8 jours sur la petite carte et durerai plusieurs semaines sur la grande carte. L'évolution de la taille moyenne des sous-grains en fonction du temps est présentée sur la Figure V.21. La courbe de croissance des sous-grains simulée par Monte Carlo en présence de cette même population de particules a été ajoutée. Cette courbe Monte Carlo correspond à la courbe verte sur la Figure V.8a. Les microstructures initiales (t = 0 sec) et finale (une fois la taille critique atteinte à t = 0,15 sec) obtenues en LevelSet sont présentées sur la Figure V.22.

Sur la Figure V.21a, les tailles des grains augmente avec le temps pour les deux courbes mais les points associés à la simulation Monte Carlo se resserrent jusqu'à se superposer sur la valeur de 0,75 µm, qui correspond à la taille critique mesurée avec cette méthode. A l'inverse, la courbe de croissance en LevelSet atteint une valeur critique de 0,93 µm après environ 0,15 seconde. La taille critique des sous-grains en Monte Carlo est donc plus faible que celle en LevelSet. Il en découle une correspondance PMC-temps qui n'est plus linéaire comme le montre Figure V.21b (pour faciliter la comparaison des courbes et s'affranchir de l'artefact qui revient à considérer les pixels non-indéxés comme des grains en LevelSet, nous avons forcé la taille initiale à D = 0,67µm pour t=0).

Cette différence de cinétique de croissance peut venir de la manière dont sont décrites les particules dans la microstructure. Dans le cas du Monte Carlo, celles-ci ne sont pas représentées physiquement mais de manière analytique par une énergie d'épinglage. A l'inverse, en LevelSet, les particules sont présentes dans le maillage et interagissent physiquement avec les joints de grains. L'épinglage est directement représenté par le fait que les interfaces se courbent lorsqu'elles s'ancrent sur les particules, ce qui inhibe leur mouvement.

Une autre raison pouvant expliquer l'écart de tailles critiques entre les deux méthodes provient de la longueur caractéristique L utilisée en Monte Carlo pour permettre l'homogénéité des énergies. En effet, comme nous l'avons déjà dit, plus cette longueur est élevée et plus la contribution de l'énergie d'interface (pression capillaire) est faible devant les énergies volumiques (ici la pression d'épinglage). Ici la valeur de L choisie (1µm) est légèrement supérieur à la taille initiale des sous-grains (0,67 µm) et donc la pression capillaire (proportionnel à 1/L) est légèrement sous-estimée par rapport à la pression d'épinglage, ce qui peut également contribuer à atteindre la taille de grains critique plus rapidement qu'en LevelSet. Il apparait donc nécessaire dans les perspectives à court termes de pouvoir faire évoluer cette valeur de L au cours de la simulation pour qu'elle reste adaptée au moins à la taille moyenne des grains de la microstructure du début jusqu'à la fin de la simulation.

On peut néanmoins relever que les tailles critiques entre les deux méthodes restent tout de même proches et décrivent un comportement similaire de la microstructure, à savoir que celle-ci est très rapidement figée par l'ancrage des joints de grains sur les particules même lorsque celles-ci présentent un rayon de 10 nm, supérieur aux particules trouvées dans les ODS. Cela est particulièrement visible sur la Figure V.22 où la microstructure après croissance diffère peu de la microstructure initiale.

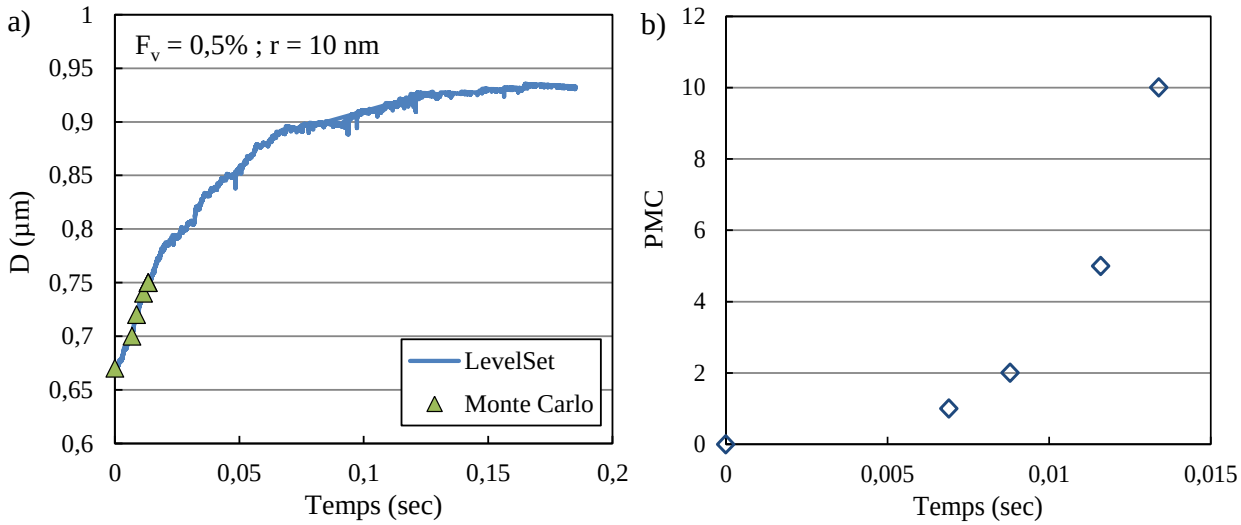


Figure V.21 : a) Evolution du diamètre moyen des sous-grains au cours du temps dans la microstructure filée en présence de particules (F_v = 0,5% et r = 10 nm) simulée par les méthodes LevelSet et Monte Carlo et b) correspondance PMC-temps associé

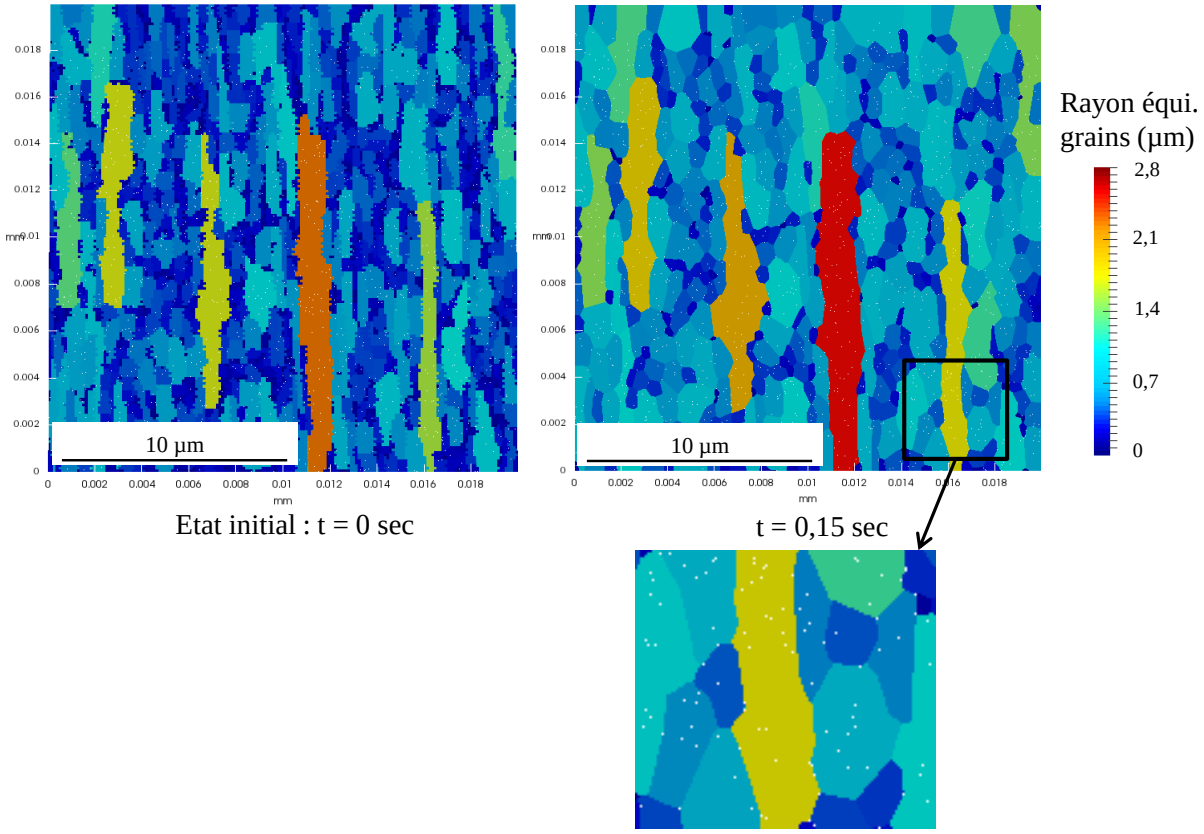


Figure V.22 : Microstructure filée initiale (t = 0 sec) et après croissance et taille critique atteinte (t = 0,15 sec) simulée par LevelSet en présence de particules (F_v = 0,5% et r = 10 nm) ; le zoom permet de visualiser les particules d'un rayon de 10 nm réparties aléatoirement dans la microstructure

2.3 Croissance de grains avec des particules micrométriques

On s'intéresse ici à modéliser la croissance des grains dans la microstructure filée en présence de « grosses » particules micrométriques. Ces simulations n'ont pas été effectuées en Monte Carlo car la prise en compte de grosses particules n'est pas encore implémentée dans le code. Pour rappel, ces particules (des oxydes) ont été observées aux joints de grains dès 6h à 1150°C dans la nuance R0,05 et à partir d'1h à 1300°C dans la nuance STi (Figure V.5). L'objectif est de voir si en intégrant dans la simulation la population mesurée par EBSD après recuit, on retrouve la taille de grains finale mesurée expérimentalement. On choisit ici de s'intéresser à la nuance STi après un recuit d'1h à 1300°C, où la taille de grains mesurée est de 9,3 µm et où les particules présentent une fraction volumique (*i.e.* surfacique) de 3,4% et un rayon moyen de 0,9 µm (Chapitre III). Puisqu'expérimentalement, on ne connaît que la taille de grains à un couple temps/température donné mais pas la cinétique de croissance totale (qui dépend de la cinétique de coalescence des particules), on peut simplement comparer les tailles critiques avec une population de particules donnée. Cette comparaison entre simulation et expérience est présentée sur la Figure V.23. L'évolution de la microstructure au cours du temps est visible sur la Figure V.24.

On remarque que la taille critique de la courbe simulée atteint une valeur de 9,0 µm à 1300°C. Cette valeur est remarquablement proche de la valeur mesurée expérimentalement de 9,3 µm. La modélisation LevelSet reproduit donc correctement l'épinglage par les « grosses » particules. L'autre point intéressant est que la mesure de la fraction volumique et du rayon moyen de ces particules par EBSD est représentative puisqu'en intégrant cette population dans la simulation LevelSet, on est proche de la taille critique expérimentale. Enfin, on rappelle que l'on a calculé analytiquement une valeur critique de taille de grains de 9,8 µm (Chapitre III, paragraphe 5.3). On constate donc une très bonne corrélation entre la valeur expérimentale, la valeur obtenue par une méthode analytique et la simulation en champ complet.

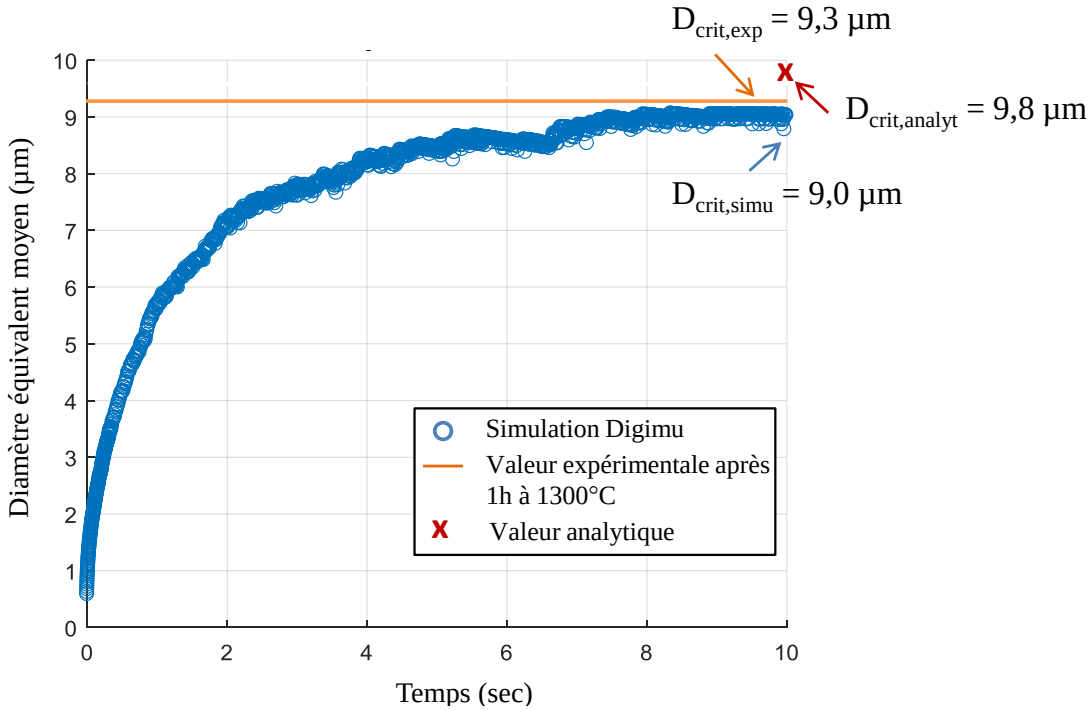


Figure V.23 : Cinétique de croissance de grains à 1300°C en LevelSet de la microstructure filée en présence de « grosses » particules (F_v = 3,4% ; r = 0,9 µm)

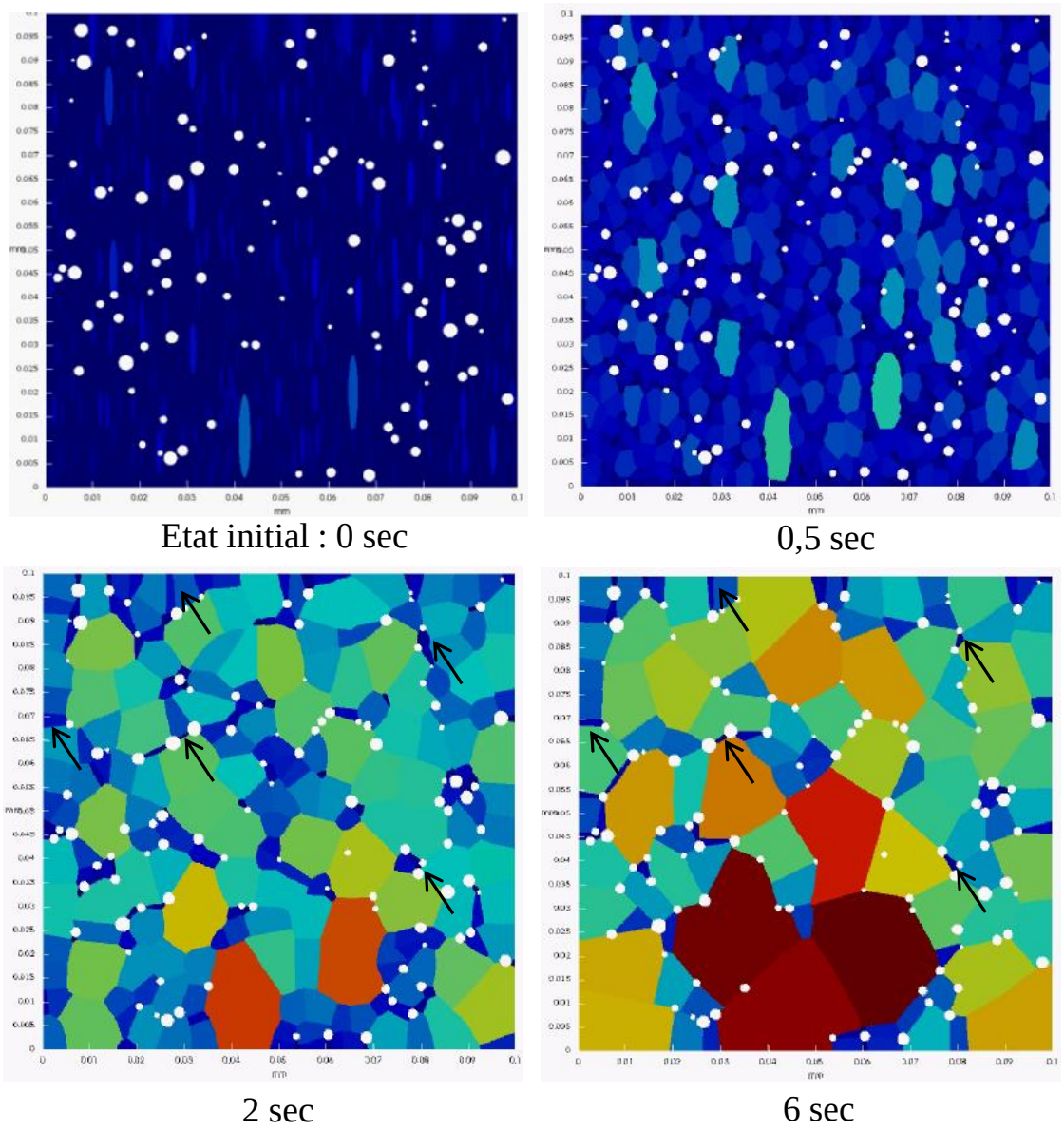


Figure V.24 : Simulation LevelSet de la croissance des grains dans la microstructure filée en présence de « grosses » particules (F_v = 3,4% ; r = 0,9 µm) à 1300°C

Sur la Figure V.24, on remarque qu'à un stade avancé de la simulation (6 sec) les particules sont quasiment toutes situées aux joints de grains ou sur des points triples, ce qui concorde avec les observations expérimentales (Figure V.5). Cela s'explique par le fait que la taille des grains initiale est inférieure à la taille de grains critique. Lors de la croissance, les joints de grains vont bouger jusqu'à s'ancrer sur les particules. Dans le cas où la taille de grains est supérieure à la taille critique associée à une population de particule donnée (après recristallisation par exemple), il est susceptible d'y avoir beaucoup plus de particules à l'intérieur des grains. De plus, il est intéressant de noter que certains petits grains fortement épinglés entre 2 particules ou plus (flèches noires) subsistent au cours de la simulation et ne sont pas consommés par les gros grains probablement du fait que la pression d'épinglage élevée dans ces zones contribue à figer le joint de grains.

En réalité, la cinétique de croissance des grains est beaucoup plus lente puisqu'à l'état initial les particules n'ont pas un rayon de 0,9 µm mais sont nanométriques. La croissance des grains est donc régie par la cinétique de coalescence des particules et il est probable qu'il n'existe pas à proprement parler une taille de grains critique, dans l'hypothèse où les particules continuent de coalescer.

Conclusion sur la modélisation

Ce travail a permis d'améliorer notre compréhension des évolutions microstructurales observées dans les aciers ODS et de valider certaines hypothèses avancées dans les chapitres précédents. Un modèle Monte Carlo prenant en compte l'énergie d'interface, l'énergie stockée, l'épinglage par des particules de seconde phase ainsi que la texture cristallographique a été implémenté. Ces simulations Monte Carlo permettent de comprendre les microstructures susceptibles d'apparaître après recristallisation et/ou croissance de grains et de consolider notre compréhension de ces mécanismes. Les simulations ont mis en évidence qu'une croissance des sous-grains sans énergie stockée pouvait être directement responsable de l'accentuation de la texture de fibre α et de la morphologie équiaxe des grains dans les nuances R0,05 et STi filées après la forte coalescence des particules. De même, ce modèle a permis de montrer que lorsque des nanoparticules sont incorporées, les microstructures filées sont complètement figées, même en considérant l'énergie stockée. Par ailleurs, nous avons pu proposer un mécanisme de germination des grains recristallisés dans les nuances déformées à froid par compression uniaxiale : ceux-ci germent dans les zones initialement de plus hautes énergies stockées. Ces zones sont orientées plus aléatoirement, ce qui conduit à l'atténuation de la texture de fibre <111>//DC après recristallisation. Ainsi, la possibilité d'utiliser directement une cartographie EBSD comme donnée d'entrée des simulations s'est avérée être un avantage considérable.

Dans certains cas (croissance de grains sans particules notamment), le modèle donne une bonne estimation des microstructures susceptibles d'être obtenues expérimentalement. Dans d'autres, la connaissance des microstructures expérimentales finales (après recuit) est nécessaire pour fixer certains paramètres, comme par exemple la densité de dislocations critique pour permettre la germination lors d'une recristallisation discontinue. Certaines limitations du modèle Monte Carlo sont à souligner :

- (i) sa nature discrète qui ne permet pas une description continue du mouvement des joints de grains.
- (ii) la difficulté à estimer correctement la contribution de l'énergie capillaire en présence de nanoparticules ou d'énergie stockée (longueur caractéristique L)
- (iii) la définition arbitraire des grandeurs cinétiques que sont le temps et la température.

La comparaison des simulations Monte Carlo avec des méthodes déterministes comme le LevelSet permet de pallier au moins partiellement à ces limitations. En effet, la méthode LevelSet est basée sur des calculs par éléments finis et permet une description continue de la microstructure. De plus, elle repose sur un temps et une température physiques. Ces résultats permettent de considérer la méthode Level Set comme un calcul de référence, plus coûteux en temps de calcul que le modèle Monte Carlo, mais pouvant permettre de calibrer en temps ce dernier.

L'utilisation de ces deux techniques de modélisation en comparatif pour étudier la croissance de grains et la recristallisation dans un matériau en présence de particules de seconde phase n'est, à notre connaissance, pas reportée dans la littérature. Les résultats obtenus sont très encourageants. Pour

modéliser ces phénomènes physiques, les deux techniques apportent chacune leur avantage puisque l'utilisation des cartographies EBSD en Monte Carlo permet de décrire la texture (orientation des grains et désorientation des interfaces) et de prendre en compte les hétérogénéités d'énergie stockée au sein des grains. La méthode LevelSet, quant à elle, décrit plus précisément les équilibres entre les différentes pressions motrices et retardatrices et permet de comparer les simulations aux expériences par une description physique des paramètres cinétiques (temps et température).

Des correspondances en temps entre les deux méthodes (calibrage en temps de la méthode Monte Carlo) ont pu être établies mais celles-ci dépendent des différentes pressions et mécanismes considérés. Ainsi, une correspondance linéaire a pu être trouvée dans le cas d'une croissance sans particules ce qui a permis de convertir directement les PMC en temps. Cela montre que l'évaluation de la pression capillaire est similaire entre les deux méthodes dans le cas de ce mécanisme. La nature linéaire de cette correspondance disparait en présence de particules sans doute du fait qu'elles sont représentées physiquement en LevelSet et seulement analytiquement en Monte Carlo. Les premières études comparatives sur la recristallisation sans particules ont également montré une correspondance PMC-temps linéaire mais avec un coefficient différent de celui déterminé lors de la croissance de grains. La différence des correspondances PMC/temps en fonction des mécanismes simulés montre que l'équation (V.6), qui fournit directement la conversion PMC/temps sans passer par une méthode déterministe conduit seulement à une estimation du temps réel.

Cette étude comparative se poursuit actuellement dans le but de décrire au mieux les mécanismes de recristallisation avec des particules de seconde phase dans les microstructures filées et déformées.

Bibliographie

[1] G. S. Grest, M. P. Anderson, D. J. Srolovitz, and A. D. Rollett, "Abnormal grain growth in three dimensions," *Scr. Metall. Mater.*, vol. 24, pp. 661–665, 1990.

[2] D. J. Srolovitz, G. S. Grest, and M. P. Anderson, "Computer Simulation of recrystallization I. : Homogeneous Nucleation and Growth," *Acta Metall.*, vol. 34, no. 9, pp. 1833–1845, 1986.

[3] D. J. Srolovitz, G. S. Grest, and M. P. Anderson, "Computer simulation of recrystallization II. : Heterogeneous nucleation and growth," *Acta Metall.*, vol. 34, no. 8, pp. 1833–1845, 1986.

[4] Y. Ateba Betanda, "Formation de l'hypertexture cube {100}<001> dans les alliages cubiques à faces centrées - Chapitre 5," Thèse de doctorat, Université Paris-Sud, 2015.

[5] L. Sieradzki and L. Madej, "A perceptive comparison of the cellular automata and Monte Carlo techniques in application to static recrystallization modeling in polycrystalline materials," *Comput. Mater. Sci.*, vol. 67, pp. 156–173, 2013.

[6] M. Miodownik, J. W. Martin, and A. Cerezo, "Mesoscale simulations of particle pinning," *Philos. Mag. A*, vol. 79, no. 1, pp. 203–222, 1999.

[7] K. Okuda and A. D. Rollett, "Monte Carlo simulation of elongated recrystallized grains in steels," *Comput. Mater. Sci.*, vol. 34, no. 3, pp. 264–273, 2005.

[8] Y. Saito and M. Enomoto, "Monte Carlo Simulation of Grain Growth," *ISIJ Int.*, vol. 32, no. 3, pp. 267–274, 1992.

[9] A. R. Eivani, J. Zhou, and J. Duszczyk, "A new approach to incorporating the effect of nano-sized dispersoids on recrystallization inhibition into Monte Carlo simulation," *Comput. Mater. Sci.*, vol. 54, pp. 370–377, 2012.

[10] M. Kazeminezhad, A. Karimi Taheri, and A. Kiet Tieu, "Utilization of the finite element and Monte Carlo model for simulating the recrystallization of inhomogeneous deformation of copper," *Comput. Mater. Sci.*, vol. 38, pp. 765–773, 2007.

[11] W. Wang, A. L. Helbert, F. Brisset, M. H. Mathon, and T. Baudin, "Monte Carlo simulation of primary recrystallization and annealing twinning," *Acta Mater.*, vol. 81, pp. 457–468, 2014.

[12] O. M. Ivasishin, S. V. Shevchenko, N. L. Vasiliev, and S. L. Semiatin, "A 3-D Monte-Carlo (Potts) model for recrystallization and grain growth in polycrystalline materials," *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 433, pp. 216–232, 2006.

[13] Y. B. Chun, S. L. Semiatin, and S. K. Hwang, "Monte Carlo modeling of microstructure evolution during the static recrystallization of cold-rolled, commercial-purity titanium," *Acta Mater.*, vol. 54, pp. 3673–3689, 2006.

[14] A. D. Rollett, D. J. Srolovitz, M. P. Anderson, and R. . Doherty, "Computer simulation of recrystallization - III. Influence of a dispersion of fine particles," *Acta Met. Mater.*, vol. 40, no. 12, 1992.

[15] J. Gao, R. G. Thompson, and B. R. Patterson, "Computer simulation of grain growth with second phase particle pinning," *Acta Mater.*, vol. 45, no. 9, pp. 3653–3658, 1997.

[16] B. K. Kad and P. M. Hazzledine, "Monte Carlo simulations of grain growth and Zener pinning," *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 238, pp. 70–77, 1997.

[17] M. Soucail, R. Messina, A. Cosnuau, and L. . Kubin, "Monte Carlo simulation of Zener pinning in two dimensions," *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 271, pp. 1–7, 1999.

[18] T. Baudin, P. Paillard, and R. Penelle, "Grain growth simulation starting from experimental data," *Scr. Mater.*, vol. 36, no. 7, pp. 789–794, 1997.

[19] A. Ayad, N. Rouag, and F. Wagner, "Grain growth simulation in an IF steel – Effect of grain boundary mobility," *IOP Conf. Ser. Mater. Sci. Eng.*, vol. 82, pp. 1–5, 2015.

[20] T. Baudin, F. Julliard, P. Paillard, and R. Penelle, "Simulation of primary recrystallization from TEM orientation data," *Scr. Mater.*, vol. 43, pp. 63–68, 2000.

[21] S. H. Choi and J. H. Cho, "Primary recrystallization modelling for interstitial free steels," *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 405, pp. 86–101, 2005.

[22] F. J. Humphreys and M. Hatherly, *Recrystallisation and Related Annealing Phenomena, Second Edition*, Elsevier. 2004.

[23] M. A. Miodownik, "A review of microstructural computer models used to simulate grain growth and recrystallisation in aluminium alloys," *J. Light Met.*, vol. 2, no. 3 SPEC., pp. 125–135, 2002.

[24] M. Hillert, "On the theory of normal and abnormal grain growth," *Acta Metall.*, vol. 13, pp. 227–238, 1965.

[25] P. A. Manohar, M. Ferry, and T. Chandra, "Five Decades of the Zener Equation.," *ISIJ Int.*, vol. 38, no. 1 998, pp. 913–924, 1998.

[26] J. E. Bailey and P. B. Hirsch, "The recrystallization process in some polycrystalline metals," *Proc. Roy. Soc. A*, vol. 267, pp. 11–30, 1961.

[27] F. Villaret, "2D grain growth modeling in ODS steel with different full field approaches," Rapport de stage ingénieur, CEMEF-Mines ParisTech, 2017.

[28] M. Bernacki, R. E. Logé, and T. Coupez, "Level set framework for the finite-element modelling of recrystallization and grain growth in polycrystalline materials," *Scr. Mater.*, vol. 64, no. 6, pp. 525–528, 2011.

[29] B. Scholtes, R. Boulais-Sinou, A. Settefrati, D. Pino Muñoz, I. Poitrault, A. Montouchet, N. Bozzolo, and M. Bernacki, "3D level set modeling of static recrystallization considering stored energy fields," *Comput. Mater. Sci.*, vol. 122, pp. 57–71, 2016.

[30] A. Agnoli, N. Bozzolo, R. Logé, J. M. Franchet, J. Laigo, and M. Bernacki, "Development of a level set methodology to simulate grain growth in the presence of real secondary phase particles and stored energy - Application to a nickel-base superalloy," *Comput. Mater. Sci.*, vol. 89, pp. 233–241, 2014.

Chapitre VI. Propriétés en traction : étude expérimentale et modélisation

Introduction 208
1. Essais de traction.....208
2. Mécanismes de durcissement structural à température ambiante 214
2.1 Durcissement par les éléments en solution solide 215
2.2 Durcissement par les joints de grains 216
2.3 Durcissement par les dislocations 216
2.4 Durcissement par les précipités.....216
2.5 Analyse des contributions.....217
Conclusion sur les propriétés en traction.....220
Bibliographie 222

Introduction

Les chapitres précédents ont permis de mieux comprendre l'influence du taux de renforts et de la déformation plastique sur les évolutions microstructurales observées dans les aciers ODS lors de traitements thermiques. On peut désormais s'intéresser aux relations entre les différentes microstructures obtenues et les propriétés mécaniques de ces matériaux. Ainsi, dans ce chapitre, des essais de traction ont été réalisés et un modèle de durcissement structural a été utilisé pour identifier les différentes contributions à la limite d'élasticité à température ambiante.

1. Essais de traction

La caractérisation des propriétés mécaniques a été réalisée via des essais de traction à température ambiante et à 700°C avec une vitesse de déformation de 7.10^{-4} s^{-1}. Ces essais ne renseignent qu'en partie sur les propriétés mécaniques et une étude complète avec des essais de fluage, ténacité, fatigue et résilience est en général nécessaire pour étudier le comportement d'un alliage métallique dans son ensemble [1][2][3]. Néanmoins, les valeurs de limite d'élasticité et d'allongement uniformément réparti (allongement à la contrainte d'écoulement maximale R_m) déduits des essais de traction fournissent déjà de bonnes indications quant au comportement mécanique du matériau.

Les essais ont été réalisés dans une direction radiale (perpendiculaire) à la direction de filage afin de se rapprocher de la direction de sollicitation principale des tubes en réacteur (pression interne). Les nuances ont été testées dans les différents états métallurgiques suivants :

1) Brut de filage
2) Recuit 1h à 1300°C après filage
3) Déformé par CU//DF de $\varepsilon = 0,7$ et recuit 1h à 1150°C (état partiellement recristallisé)
4) Déformé par CU//DF de $\varepsilon = 0,7$ et recuit 1h à 1300°C (état partiellement ou complètement recristallisé)

On rappelle que la CU//DF correspond à une compression uniaxiale parallèlement à la direction de filage. Dans le cas des états 1 et 2, les éprouvettes sont directement prélevées dans les barres tandis que dans le cas des états 3 et 4, elles sont usinées dans les pions après compression et traitement thermique. La Figure VI.1 montre l'éprouvette de traction seule et montée sur le dispositif de traction.

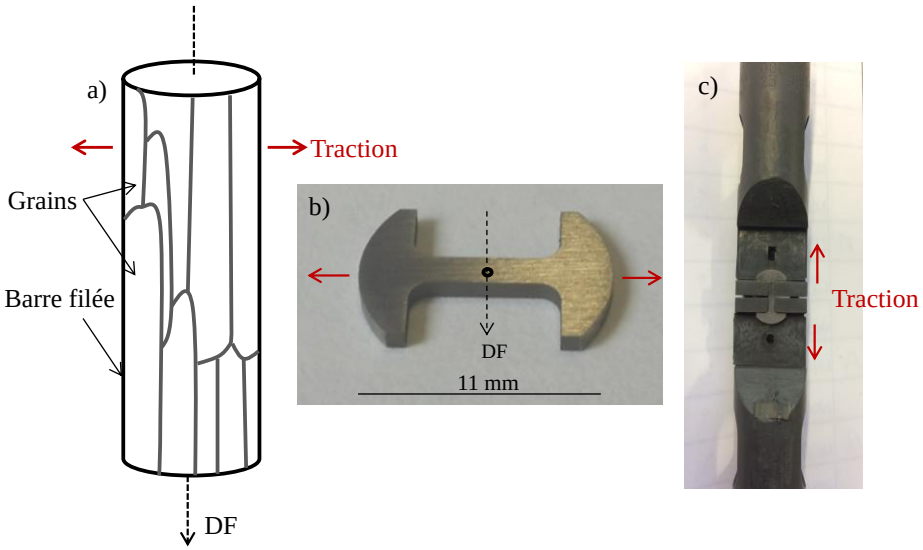


Figure VI.1: a) Schéma de la direction de traction par rapport à la direction d'allongement des grains dans la barre, b) éprouvette après usinage et c) éprouvette montée sur le dispositif de traction

Les propriétés mécaniques en traction (limite d'élasticité et allongement uniformément réparti) à 20°C des nuances de l'étude dans les différents états métallurgiques sont présentées sur la Figure VI.2. Les courbes de traction sont visibles en Annexe D.1. Afin de faciliter l'analyse des résultats et la compréhension de la discussion associée, le Tableau VI.1 rappelle de manière qualitative les microstructures des états métallurgiques testés.

Sur la Figure VI.2a, on observe une augmentation de la limite d'élasticité avec l'augmentation du taux de renforts dans presque tous les états métallurgiques. Une exception est cependant à noter dans le cas de la nuance STi déformée et recuite à 1150°C où la limite d'élasticité est particulièrement élevée (790 MPa). Il est très probable que c'est la fraction élevée de martensite à cette température dans cette nuance qui est responsable de ce phénomène. Comme attendu, dans l'état de réception (brut de filage), la nuance NonR montre une limite d'élasticité bien plus faible (278 MPa) que celles des nuances ODS du fait de l'absence de nano-oxydes et d'une microstructure recristallisée.

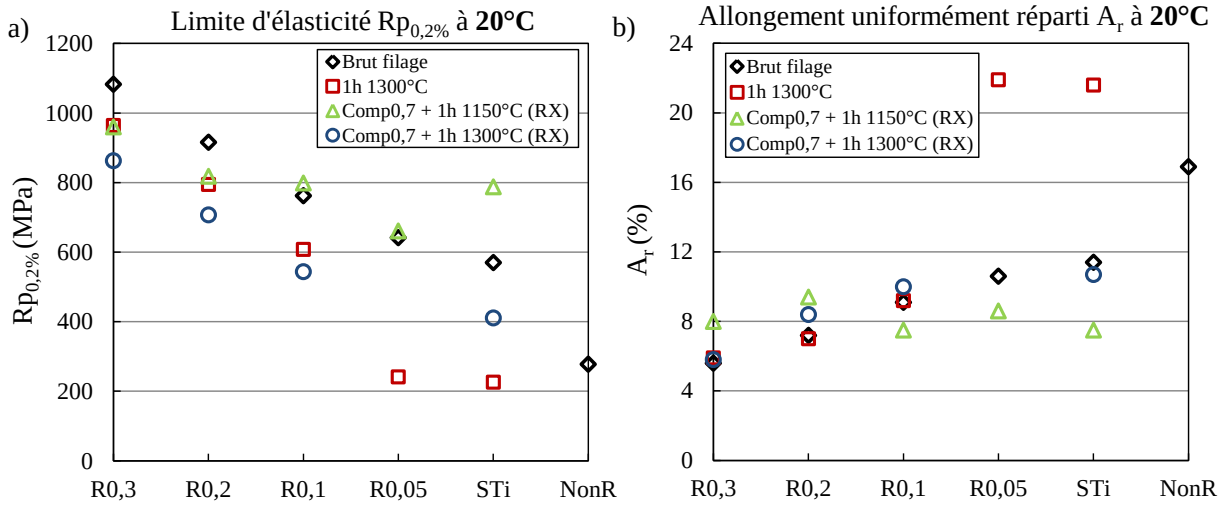


Figure VI.2 : a) Limite d'élasticité et b) allongement uniformément réparti des nuances modèles dans les différents états métallurgiques à 20°C

Nuance	Brut de filage	1h 1300°C	Comp0,7 + 1h 1150°C	Comp0,7 + 1h 1300°C
R0,3	Grains fins et étirés (F_v =1,8% r =1,4 nm)	Grains fins et étirés (F_v =1,7% r =1,8 nm)	Grains équiaxes (~ 5 µm) et recristallisés (~ 80%) (F_v =1,4% r =1,5 nm)	Grains équiaxes (~ 5 µm) et recristallisés (~ 80%) (F_v =1,2% r =2,0 nm)
R0,2	Grains fins et étirés (F_v =1,2% r =1,4 nm)	Grains fins et étirés (F_v =1,2% r =1,8 nm)	Grains équiaxes (~ 6 µm) et recristallisés (~ 80%) (F_v =1,1% r =1,4 nm)	Grains équiaxes (~ 6 µm) et recristallisés (~ 80%) (F_v =0,7% r =2,3 nm)
R0,1	Grains fins et étirés (F_v =0,9% r =1,4 nm)	Grains fins et étirés (F_v =0,5% r =2,5 nm)	Grain équiaxes (~ 7 µm) et recristallisés (50%) + Martensite (F_v =0,7% r =1,6 nm)	Grains équiaxes (~ 7 µm) et recristallisés (~ 80%) (F_v =0,5% r =2,7 nm)
R0,05	Grains fins et étirés (F_v =0,5% r =1,7 nm)	Grains équiaxes restaurés + croissance anormale Grosses particules aux joints de grains	Grain équiaxes (~ 7 µm) et recristallisés (50%) + Martensite (F_v =1,8% r =1,4 nm)	Non testé
STi	Grains fins et étirés (F_v =0,5% r =2,9 nm)	Grain équiaxes restaurés (10µm) Grosses particules aux joints de grains	Grain équiaxes (~ 4 µm) et recristallisés (40%) + Martensite (F_v =1,8% r =1,4 nm)	Grain équiaxes (~ 10 µm) et recristallisés (100%) Grosses particules aux joints de grains
NonR	Grains équiaxes recristallisés (10 µm) (F_v=0,05% r=1,7 nm)	Non testé	Non testé	Non testé

Tableau VI.1 : Description sommaire des microstructures testées mécaniquement

Dans les nuances conventionnelles R0,2 et R0,3, parmi les différents états métallurgiques, c'est le brut de filage qui présente la meilleure limite d'élasticité. La valeur de 1085 MPa obtenue pour la nuance R0,3 est proche des valeurs de la littérature mesurées sur d'autres barres ODS CEA filées présentées dans le Tableau VI.2. Elle est supérieure à celle de la nuance MA957 étudiée par Réglé [4] mais inférieure à celle de l'étude d'Oksiuta *et al.*[5], probablement à cause de la concentration plus importante en tungstène dans celle d'Oksiuta *et al.*. Cet élément est connu pour augmenter significativement la résistance mécanique mais à l'inverse diminuer la ductilité. Dans les nuances R0,2 et R0,3, le recuit d'1h à 1300°C (carré rouge) a pour effet de diminuer la limite d'élasticité d'environ 120 MPa. Cette diminution est majoritairement associée à la légère coalescence des particules du fait de ce recuit puisque la densité de dislocations et la taille des grains ne sont que très peu affectées (Chapitre III). Après déformation et recristallisation à 1150°C, les deux nuances montrent une baisse de la limite d'élasticité à 20°C qui peut être majoritairement attribuée à une augmentation de la taille des grains (4-6 µm) par rapport à l'état de réception (~ 1 µm) et à la diminution de la densité de dislocations. Après un traitement de recristallisation à 1300°C, la limite d'élasticité est plus faible qu'après le recuit à 1150°C bien que la fraction recristallisée soit la même. Comme dans le cas du recuit à 1300°C sur l'état filé, on peut évoquer ici une diminution de la contribution des précipités au durcissement structural car ceux-ci coalescent légèrement.

Dans les nuances R0,05 et STi, la limite d'élasticité chute fortement suite au recuit d'1h à 1300°C (carrés rouges) par rapport à l'état de réception. Ce phénomène peut s'expliquer aisément compte tenu de la forte coalescence des nanoparticules et de la restauration généralisée par croissance des sous-grains observées dans le Chapitre III. Il est à noter que la présence des grains « anormaux » dans la nuance R0,05 (absents dans la nuance STi) ne semble pas affecter les propriétés en traction.

Dans ces deux nuances faiblement renforcées, l'état déformé et recuit à 1150°C (vert) montre une limite d'élasticité assez haute bien qu'ils soient recristallisés à environ 50% et comme nous l'avons déjà

mentionné pour la nuance STi, la raison à cela est la présence de martensite. Après déformation et recuit à 1300°C, on observe une chute importante de $Rp_{0,2\%}$ dans la nuance STi du fait que la microstructure est constituée uniquement de ferrite recristallisée, la martensite n'est plus présente et les particules d'Y_2O_3 ont fortement coalescé (observations du Chapitre IV). Il est néanmoins intéressant de noter que dans cette nuance, la limite d'élasticité de l'état déformé et recuit à 1300°C est bien supérieure à l'état recuit à la même température mais non déformé bien que les microstructures aient de nombreuses similitudes ($\rho_{disl} \approx 10^{13}$ m^{-2}, $D_{grains} \approx 10$ µm et particules micrométriques). Seule la texture cristallographique est significativement différente entre les deux microstructures. Les valeurs d'allongement réparti sur la Figure VI.2b montrent également des écarts significatifs entre ces deux états : l'état non déformé est beaucoup plus ductile. L'origine de cet écart n'est pas clairement expliquée. On peut envisager un effet de la texture cristallographique, qui est plus isotrope dans la nuance recristallisée et conduirait à une limite d'élasticité plus élevée (facteur de Taylor défini ci-après plus important). Il se peut aussi qu'une certaine fraction de martensite soit encore présente à l'échelle macroscopique dans l'éprouvette et n'ait pas été observée à l'EBSD.

Enfin, on retrouve le comportement « intermédiaire » de la nuance R0,1 : la martensite renforce le matériau dans l'état partiellement recristallisé à 1150°C comme dans les nuances R0,05 et STi. A l'inverse, la présence de nano-oxydes stables Y-Ti-O fait que la limite d'élasticité reste proche de 550 MPa dans l'état recristallisé à 1300°C.

Auteurs	**Nuance (Composition)**	**Limite d'élasticité $Rp_{0,2\%}$ (MPa)**	**Allongement réparti/total (%)**
Réglé [4]	MA957 (12,6Cr-0,3Mo-0,9Ti-0,18Y-0,18O)	1020 (SL)	7,1 / 18
Steckmeyer *et al.* [6]	J05 CEA (14Cr-1W-0,3Ti-0,3Y_2O_3)	1080 (SL)	- / 23,5
Praud [7]	J56 CEA (14Cr-1W-0,3Ti-0,3Y_2O_3)	1170 (SL) 1120 (SR)	- / 21 - / 12
Serrano *et al.* [8]	J27 CEA (14Cr-1W-0,4Ti-0,3Y_2O_3)	1020 (SL) 1050 (SR)	12,5 / 22 9 / 10
Oksiuta *et al.* [5]	(14Cr-2W-0,3Ti-0,3Y_2O_3)	1230 (SL) 1340 (SR)	5,6/10,8 2,5/4,4
Eiselt *et al.* [9]	ZOZ GmbH (14Cr-1W-0,25Ti-0,2Y_2O_3)	1014 (SL)	- /18

Tableau VI.2 : Propriétés en traction à 20°C de différentes nuances ODS 14%Cr filées, SL correspond à une sollicitation longitudinale et SR une sollicitation radiale par rapport à la direction de filage

Concernant l'allongement uniformément réparti, de manière logique, celui-ci diminue avec l'augmentation du taux de renforts (Figure VI.2b) dans l'état de réception. De plus, les valeurs sont particulièrement faibles dans les nuances ODS (5,6% dans la R0,3) du fait que nous avons sollicité les matériaux dans le sens transverse. C'est la morphologie étirée des grains parallèlement à la direction de filage qui génère une anisotropie et rend l'élongation dans la direction radiale bien plus faible que dans la direction longitudinale. On peut noter les allongements remarquables de plus de 20% des nuances STi et R0,05 filées et recuites à 1300°C, corrélés à leur limite d'élasticité très faible. Il est d'ailleurs intéressant de mentionner que la présence des particules micrométriques aux joints de grains dans ces deux nuances ne semble pas entraîner une rupture prématurée de l'éprouvette. A l'inverse, de manière surprenante, dans les nuances R0,1, R0,2 et R0,3, le recuit d'1h à 1300°C n'induit pas d'augmentation de la ductilité bien qu'il conduise à une diminution de la limite d'élasticité.

Dans les états recristallisés, la présence de martensite après recuit à 1150°C dans les nuances R0,1, R0,05 et STi explique les valeurs d'allongement plus faibles que dans les autres états. C'est l'inverse dans les nuances R0,3 et R0,2 recristallisées à 1150°C où l'allongement réparti est supérieur d'environ 3% par rapport à l'état de réception.

Pour toutes les nuances ODS testées, on observe peu de variation entre les allongements répartis après déformation et recuit à 1300°C (points bleus) et ceux des états bruts de filage, bien que les microstructures entre ces deux états soient très différentes (texture, taille de grains, densité de dislocations). Actuellement, nous n'avons pas d'explication à ce phénomène.

Plus généralement, des études [7][10][11] menées sur l'endommagement des aciers ODS à température ambiante ont montré que les mécanismes étaient principalement de type intragranulaire avec notamment un fort ancrage des dislocations sur les précipités.

A 700°C, sur la Figure VI.3a, on constate une diminution importante de la limite d'élasticité pour tous les états métallurgiques (différence d'échelle par rapport à la Figure VI.2a). Les courbes de traction sont présentées en Annexe D.1. Praud [7] et Dadé [11] expliquent la chute importante des propriétés mécaniques à haute température dans les ODS en partie par les interactions différentes entre les précipités et les dislocations. A haute température, le mouvement des dislocations est visqueux et le franchissement des précipités serait assisté par la montée de dislocations (changement de plan de glissement des dislocations) et donc facilité [11]. La limite d'élasticité est maximale pour la nuance R0,3 à l'état de réception avec une valeur de 310 MPa. Au sein des nuances ODS R0,1, R0,2 et R0,3, il y a peu de variation entre les différents états métallurgiques comparé aux essais à 20°C à l'exception de la valeur particulièrement basse de l'état recuit 1h à 1300°C de la nuance R0,2 pour laquelle nous n'avons pas d'explication. Comme à 20°C, c'est toujours l'état brut de filage qui montre la meilleure résistance dans les nuances conventionnelles mais il est intéressant de noter que la recristallisation n'induit pas une diminution importante de la limite d'élasticité (entre 20 et 40 MPa) suite aux recuits à 1150°C.

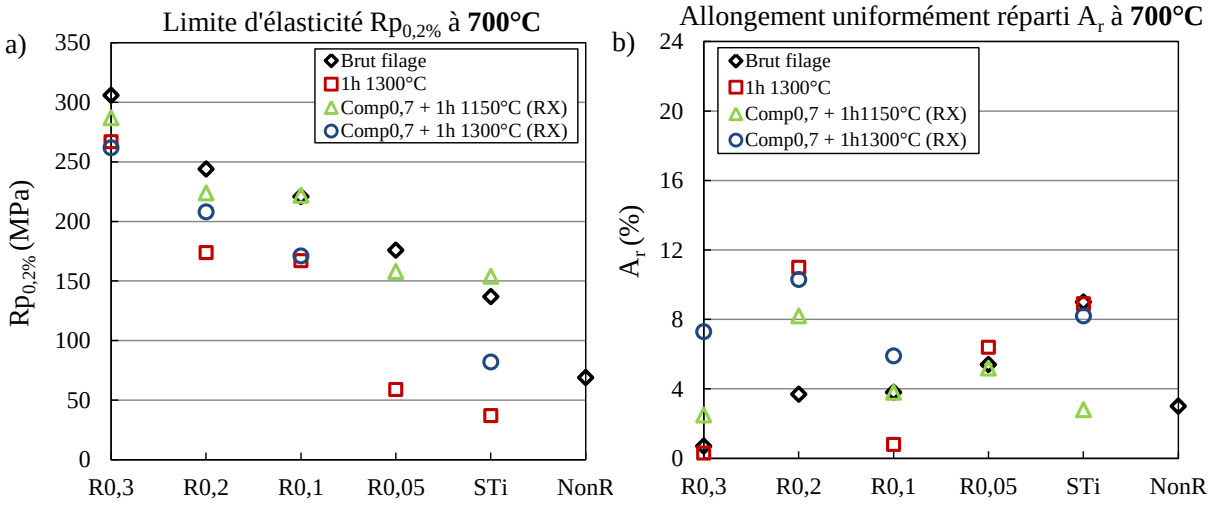


Figure VI.3 : a) Limite d'élasticité et b) allongement uniformément réparti des nuances modèles dans les différents états métallurgiques à 700°C

Dans la nuance R0,05 et surtout dans la nuance STi, la principale différence avec les essais à 20°C est une perte significative de l'effet durcissant de la martensite apparue lors de la trempe suivant le recuit à 1150°C. Ce phénomène a déjà été observé sur des aciers ODS à 9%Cr biphasés [12][13] lors d'essais de traction à plus de 600°C. Il suggère que les mécanismes de durcissement qui rendent la martensite plus

résistante que la ferrite à température ambiante (notamment l'effet Hall-Petch du fait de la faible taille des lattes et la densité de dislocation plus importante) ne sont plus effectifs à haute température.

Concernant les valeurs d'allongement lors des essais à 700°C (Figure VI.3b), plusieurs points intéressants peuvent être relevés. Tout d'abord, l'allongement uniformément réparti des états de réception chute fortement à 700°C par rapport à 20°C. Il en est de même pour l'allongement des états recuits 1h à 1300°C des nuances R0,1 et R0,3 qui est inférieure à 0,5%. Cette perte de ductilité à haute température est connue dans les aciers ODS du fait d'un changement des mécanismes d'endommagement, qui deviennent en partie intergranulaires. La formation de cavité aux joints de grains conduirait à leur décohésion et à des ruptures plus précoces [7]. L'allongement de l'état recuit 1h à 1300°C de la nuance R0,2 est exceptionnellement haut et semble corrélé à la faible limite d'élasticité évoquée au paragraphe précédent. Il est possible qu'un problème d'usinage ait conduit à inclure de l'acier doux du doigt de gant de la barre dans l'éprouvette.

Sur la Figure VI.3b, on observe également que la présence des grains recristallisés permet d'améliorer significativement la ductilité dans les nuances R0,2 et R0,3. Les allongements les plus importants sont obtenus suite au traitement de recristallisation à 1300°C, où les valeurs sont même supérieures à celles obtenues à 20°C.

Ensuite, l'important allongement observé à 20°C sur les nuances R0,05 et STi non déformées et recuites à 1300°C n'est plus visible ici et suggère également un changement de mécanisme de plasticité qui nécessiterait des études complémentaires (analyses fractographiques par exemple) pour être identifié. Enfin, l'effet fragilisant de la martensite est particulièrement visible sur la nuance STi puisque l'état recuit à 1150°C présente un allongement 3 fois inférieur à celui des autres états métallurgiques de cette nuance. Dans cette nuance, cela semble d'ailleurs être le seul effet qui influence l'allongement réparti à 700°C puisque ni la croissance des sous-grains ni la forte coalescence des particules suite au recuit à 1300°C n'induisent de modification de la valeur d'environ 9% mesurée dans l'état de réception (point rouge superposé au point noir). Afin d'éviter cette fragilisation par la martensite, il aurait pu être judicieux d'effectuer un traitement de revenu des éprouvettes (entre 700°C et 800°C) comme il est souvent fait dans les nuances à 9%Cr [12][14] afin de faire précipiter le carbone retenu en solution solide.

De même, on peut noter que la nuance NonR ne présente pas un allongement réparti significatif malgré qu'elle soit complètement recristallisée et cela peut être attribué à la martensite résiduelle présente dans cette nuance après filage et qui fragilise le matériau.

Suite à ces observations, on peut résumer les principaux résultats obtenus sur les essais de traction comme tel :

- De manière générale, on observe une augmentation de la limite d'élasticité avec l'augmentation du taux de renforts à 20°C et à 700°C dans les différents états métallurgiques.
- A 20°C, l'allongement réparti tend à diminuer avec l'augmentation du taux de renforts. A 700°C, cette tendance n'est plus visible.
- La présence de martensite a un impact sur les propriétés mécaniques : à 20°C, cette phase augmente la limite d'élasticité et diminue la ductilité. A 700°C, l'effet durcissant de la martensite est beaucoup moins marqué.
- La coalescence des particules entraîne une nette diminution de la limite d'élasticité et une augmentation de l'allongement à 20°C dans les nuance STi et R0,05 recuites à 1300°C.
- La recristallisation permet d'améliorer légèrement la ductilité à 20°C et plus significativement à 700°C dans les nuances conventionnelles R0,2 et R0,3.

- A 700°C, la recristallisation n'induit pas une baisse significative de la limite d'élasticité.

Afin de mieux comprendre la contribution des précipités, de la taille des grains, des dislocations et des éléments en solution solide à la limite d'élasticité des matériaux, un modèle de durcissement structural a été utilisé.

2. Mécanismes de durcissement structural à température ambiante

Les propriétés mécaniques d'un matériau sont fortement liées aux mouvements des dislocations à travers la microstructure et par conséquent aux obstacles à ces mouvements. A température ambiante, plus le glissement des dislocations est limité par les différents obstacles, plus la résistance du matériau s'en trouve augmentée. A partir de la composition chimique, des paramètres microstructuraux (densité de dislocations et taille des grains) et de l'état de précipitation (taille et densité des particules), on peut estimer la limite d'élasticité d'un matériau et identifier quantitativement les différentes contributions à son durcissement structural par la relation suivante [15][16][17] :

$$Rp_{0,2\%} = \sigma_0 + \sigma_{ss} + \sigma_{JdG} + \sqrt{\sigma_{disl}^2 + \sigma_{prec}^2} \qquad \text{(VI.1)}$$

Avec σ_{ss} la contribution des éléments en solution solide et σ_{JdG} celle des joints de grains. La somme quadratique de la contribution des dislocations σ_{disl} et des précipités σ_{prec} vient de la force exercée et de la densité similaire de ces deux types d'obstacles [18]. Conventionnellement, on considère également une contribution de l'écrouissage cinématique σ_{cin} due à la présence de boucles de dislocations autour des précipités mais comme le précise Ratti [17], il est probable que ce terme soit nul dans les ODS puisque ces boucles de dislocations ne sont pas observées. Le terme σ_0 représente la contrainte de friction de réseau cristallin de Peierls-Nabarro. C'est la contrainte macroscopique à appliquer pour activer le glissement des dislocations dans le matériau pur. Cette contrainte est plus importante dans les métaux cubiques centrés qui présentent des plans de glissement moins denses (les plans {110}, {112} et {123}) que les métaux cubiques à faces centrées (les plans {111}). Le mouvement des dislocations est donc moins aisé dans les métaux de structure cubique centrée.

Dans un polycristal, la contrainte macroscopique σ est reliée à la contrainte de cisaillement locale τ d'un système de glissement par la relation $\sigma = M\tau$, où M est le facteur de Taylor moyen [19]. Le facteur de Taylor M(g) d'un grain g traduit la difficulté qu'a ce grain à accommoder la déformation macroscopique. Plus M(g) est élevé, plus le grain accommode difficilement la déformation. Le calcul de M(g) est basé sur le calcul du facteur de Schmid dans le grain g en considérant 5 systèmes de glissement actifs [20]. Le facteur de Taylor moyen M est ensuite obtenu en prenant la moyenne des M(g) sur tous les grains de la microstructure. En général, la valeur de M est prise égale à 2,5 dans les matériaux fortement texturés [21][22] et égale à 3 dans les matériaux isotropes [7][17]. Le fait que le facteur de Taylor soit plus faible dans les matériaux texturés traduit le fait qu'un grain va accommoder plus facilement la déformation si les grains voisins ont une orientation similaire à la sienne. Dans notre cas, à partir des cartographies EBSD, des 5 systèmes de glissement principaux identifiés par Ratti [17] (Tableau VI.3) et du tenseur de déformation en traction uniaxiale (Eq. (VI.2)), on peut calculer plus précisément le facteur de Taylor.

Plan de glissement (hkl)	Direction de glissement [uvw]	Facteur de Schmid
$(\mathbf{112})$	$[\bar{1}\bar{1}1]$	0,47
$(\bar{\mathbf{2}}\mathbf{11})$	$[\bar{1}\bar{1}1]$	0,24
$(\mathbf{101})$	$[\bar{1}\bar{1}1]$	0,41
$(\mathbf{011})$	$[\bar{1}\bar{1}1]$	0,41
$(\bar{\mathbf{1}}\bar{\mathbf{1}}\mathbf{2})$	$[111]$	0,26

Tableau VI.3 : Systèmes de glissement principaux lors de la traction uniaxiale [17]

Le tenseur de déformation en traction uniaxiale pure dans l'hypothèse d'une déformation isotrope transverse est défini tel que :

$$\bar{\bar{\varepsilon}} = \begin{pmatrix} -0.5 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & -0.5 \end{pmatrix} \quad \text{(VI.2)}$$

En considérant que ε_{22} est la déformation selon la direction de traction, radiale à la direction de filage. A partir de ces données, on trouve que le factor de Taylor moyen M est égal à 2,75 dans les microstructures filées et à 2,85 dans les microstructures déformées et recuites. Ces valeurs seront donc considérées par la suite.

Le calcul de τ_0 (contrainte locale de cisaillement de Peierls-Nabarro) s'effectue via l'équation [7] :

$$\tau_0 = \frac{2\mu}{1-\nu}\exp\left(\frac{-2\pi a}{b(1-\nu)}\right) \quad \text{(VI.3)}$$

Avec μ le module de cisaillement (78 GPa), υ le coefficient de Poisson égale à 0,3, b la norme du vecteur de burgers (0,248 nm) et *a* le paramètre de maille égal à 0,2876 nm. Dans le cas du fer α, la contrainte locale de cisaillement τ_0 est donc égale à 9 MPa pour un acier ODS ferritique. On a donc σ_0 égale à environ 25 MPa.

2.1 Durcissement par les éléments en solution solide

Les atomes en solution solide participe au durcissement du matériau en ségrégant sur les dislocations. Cette ségrégation est due à l'existence de champs de contraintes locaux en traction et en compression au voisinage des dislocations dans lesquels les atomes en solution sont attirés afin de minimiser l'énergie potentielle du système [11]. La contribution apportée par ces atomes en solution dépend de leur concentration atomique X_i et d'une constante de durcissement k_i associée à chaque élément i. Une valeur de *k* élevée implique un fort effet durcissant de l'élément. C'est le cas des éléments en insertion comme le carbone. On précise que le facteur de Taylor M est déjà inclu dans la constante *k*. La contribution totale des éléments en solution s'exprime par la relation de Lacy et Gensamer [23]:

$$\sigma_{ss} = \sum_i k_i X_i^z \quad \text{(VI.4)}$$

Où z est un coefficient qui dépend de la nature de l'élément en solution (insertion ou substitution dans le réseau cristallin). Le Tableau VI.4 donne les valeurs tirées de la littérature utilisées pour chaque élément. Le carbone apporte un effet durcissant lorsqu'il est en solution solide d'insertion (z = 0,5) tandis que les autres éléments, plus gros, sont en solution solide de substitution (z = 0,75).

Elément i	k (MPa/at%^{z})	z
C	1722,5 [24]	0,5 [24]
Cr	9,65	0,75
W	75,79	0,75
Mn	48,23	0,75
Ni	42,03	0,75

Tableau VI.4 : Valeurs de k_i et z de la littérature pour différents éléments chimiques [10][18]

Pour les calculs, on considère une concentration massique de carbone à l'équilibre en solution dans la ferrite de 1.10^{-5} % (environ 30 ppm), ce qui est proche de la valeur estimée par Li [18] à l'aide d'un calcul thermodynamique dans un acier Fe-12Cr-2W-0,11C.

2.2 Durcissement par les joints de grains

Les joints de grains jouent également le rôle d'obstacles au mouvement des dislocations où celles-ci s'y accumulent. Ainsi, plus les grains sont petits, plus il y a de joints de grains et plus cette contribution est significative. Cet effet, connu sous le nom d'effet Hall-Petch [25], est inversement proportionnel à la racine de la taille des grains *D* dans le matériau. La contribution de Hall-Petch s'exprime par :

$$\sigma_{JdG} = \frac{k_{HP}}{\sqrt{D}} \qquad \text{(VI.5)}$$

La constante k_{HP} est dépendante du matériau et est définie telle que $k_{HP} = 0{,}2\mu\sqrt{b}$ [26]. Dans notre cas k_{HP} = 0,25. Afin de prendre en compte les hétérogénéités de taille de grains (population bimodale après croissance anormale ou après consolidation par exemple), il est en général plus représentatif d'utiliser la taille moyenne des grains pondérée par leur aire [10]. Cette taille moyenne pondérée par l'aire sera donc utilisée par la suite dans les calculs.

2.3 Durcissement par les dislocations

Lors de la déformation plastique, les dislocations interagissent également entre elles. Une dislocation qui se déplace dans un plan de glissement donné peut être épinglée par des dislocations préexistantes avant déformation qui traversent ce plan. On parle alors communément de durcissement par la « forêt » de dislocations :

$$\sigma_{disl} = M\alpha\mu b\sqrt{\rho_{disl}} \qquad \text{(VI.6)}$$

Où M est le facteur de Taylor, α est une constante égale à 0,38 dans les aciers ferritiques [18][10], μ est le module de cisaillement, b le vecteur de burgers et ρ_{disl} la densité de dislocations. On considère ici que toutes les dislocations (GND et SSD) initialement présentes dans la microstructure peuvent contribuer au durcissement par la forêt.

2.4 Durcissement par les précipités

Dans les aciers ODS, la contribution des précipités au durcissement structural est l'une des plus significatives. Comme nous l'avons mentionné dans le Chapitre IV, il existe deux mécanismes d'interaction entre une dislocation et un précipité : le contournement et le cisaillement du précipité par la dislocation. Le cisaillement est plutôt considéré dans le cas de précipités petits et cohérents avec la matrice

tandis que le contournement a lieu dans le cas de particules plus grosses et incohérentes. Les 2 mécanismes sont représentés schématiquement sur la Figure VI.4.

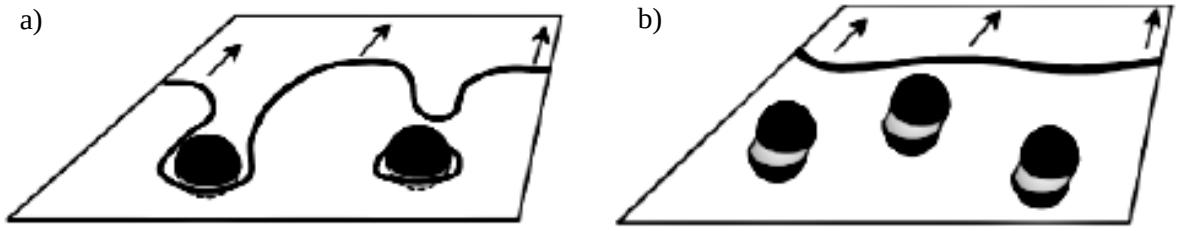


Figure VI.4 : Représentation schématique a) du contournement et b) du cisaillement de précipités par une dislocation [27]

Le cisaillement n'a jamais été observé dans les aciers ODS, et les contraintes théoriques nécessaires à ce mécanisme sont très supérieures aux contraintes appliquées expérimentalement. Il est donc d'usage de considérer un durcissement par contournement des précipités, dit contournement d'Orowan (bien que les boucles de dislocations résiduelles autour des précipités n'aient pas non plus été observées). Cependant, l'expression générale de ce mécanisme ($\sigma_{prec} = M\mu b/\lambda$ avec λ la distance inter-particules) conduit à fortement surestimer la contribution des particules au durcissement, comme l'ont montré Dadé [11] et Toualbi [28]. Nous avons pu le vérifier dans la présente étude où cette seule contribution est plus élevée que la limite d'élasticité expérimentale des matériaux. Dadé montre que le modèle de Martin [29] est le plus adapté pour décrire la contribution des particules au durcissement structural puisqu'il prend notamment en compte la nature coin ou vis des dislocations et l'existence d'une dispersion sur la distribution des particules. Sur la base de ce modèle, on a la relation :

$$\sigma_{préc} = \frac{0{,}81\ M\mu b}{2\pi(1-\upsilon)^{1/2}} \times \frac{\ln(\frac{1}{b}\sqrt{\frac{2}{3}}r)}{\left(\sqrt{\frac{2\pi}{3F_v}}r\right)} \qquad \text{(VI.7)}$$

Où υ est le coefficient de Poisson, r le rayon moyen des précipités et F_v la fraction volumique.

2.5 Analyse des contributions

Les différentes contributions au durcissement structural ont été calculées dans les 4 états métallurgiques testés ci-dessus. La contribution des éléments en solution solide est calculée à partir des analyses chimiques (Chapitre II), celles des joints de grains et des dislocations sont calculées à partir des analyses EBSD et la contribution des précipités est évaluée avec les résultats de DNPA (on ne prend donc pas en compte l'effet durcissant des gros carbures et/ou oxydes qui serait de toute façon très faible). Nous avons pu en déduire la limite d'élasticité théorique et la comparer à celle mesurée expérimentalement. Les résultats sont présentés sur la Figure VI.5. Du fait de la somme quadratique des contributions des dislocations et des précipités dans le calcul de la limite d'élasticité (Eq. (VI.1)), il n'est pas possible de les décorréler. Dans le cas des microstructures biphasées obtenues après compression et recuit (partiellement recristallisées ou présentant de la martensite), une loi des mélanges est appliquée pour calculer la contrainte moyenne associée à une contribution *x*. Ainsi, en présence de deux phases α et β, la contrainte apportée par la contribution *x* se calcule par la relation :

$$\sigma_x = f^{\alpha} \times \sigma_x^{\alpha} + (1 - f^{\alpha}) \times \sigma_x^{\beta} \quad \text{(VI.8)}$$

Où f^{α} est la fraction de la phase α et σ_x^{α} est la contrainte apportée par la contribution *x* pour 100% de phase α (de même pour σ_x^{β}). A partir des données de Chauhan *et al.* [30], la densité de dislocations dans la martensite est de 10^{14} m^{-2} et le diamètre équivalent des lattes est pris égal à 500 nm.

Dans les états bruts de filage, il apparaît sur la Figure VI.5a que la contribution des joints de grains et des éléments en solution est relativement similaire entre les différentes nuances ODS. Ce résultat était attendu puisqu'à l'état de réception, ces nuances ont des concentrations d'éléments en solution et des tailles de grains similaires. En Annexe D.2, les contributions des dislocations et des précipités ont été séparées dans les états bruts de filage en considérant des cas théoriques avec d'une part des matériaux sans précipités et d'autre part des matériaux sans dislocations. On montre que c'est majoritairement la contribution des précipités et dans une moindre mesure celle des dislocations qui sont à l'origine des différences de limite d'élasticité observées entre les nuances. De manière logique, plus la nuance est renforcée plus la contribution des précipités est élevée.

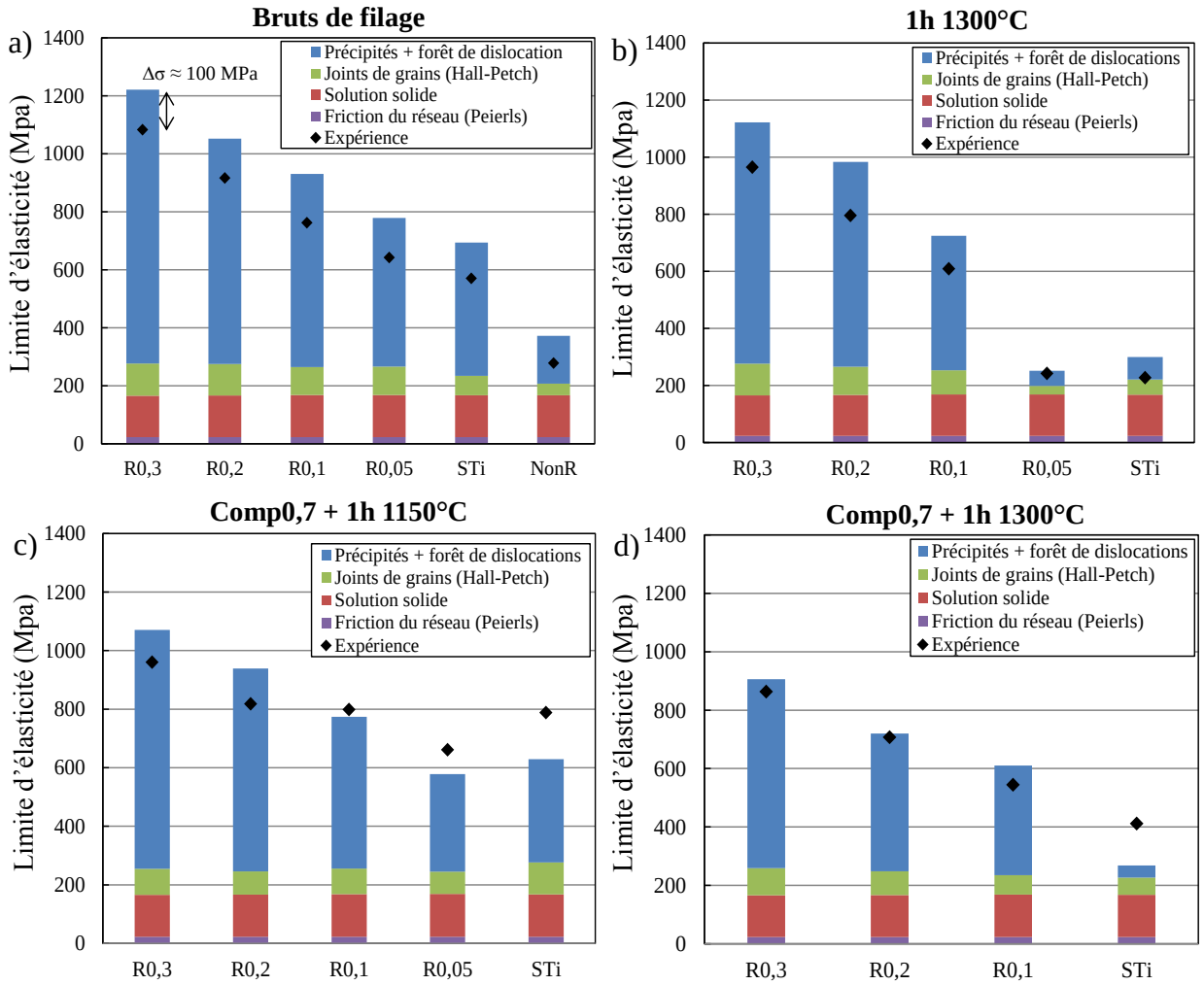


Figure VI.5 : Limite d'élasticité à 20°C estimée par le modèle de durcissement structural pour les nuances de l'étude dans les états a) bruts de filage, b) recuits 1h à 1300°C, c) compressés et recuits 1h à 1150°C et d) compressés et recuits 1h à 1300°. Les valeurs expérimentales sont représentées pas les point noirs.

Dans les nuances ODS, la contribution quadratique (en bleu) sur la Figure VI.5a atteint une valeur maximale de 944 MPa dans la nuance R0,3 tandis qu'elle est de 458 MPa dans la nuance STi. Le fait que cette contribution soit minimale pour la nuance STi s'explique à la fois par la fraction volumique plus faible et les particules plus grosses que dans les autres nuances ODS. Il faut noter que dans les 5 nuances ODS, la limite d'élasticité est surestimée par le modèle d'environ 100 MPa par rapport aux valeurs expérimentales fournies par les essais de traction (points noirs). Cet écart absolu est significatif mais semble systématique. On peut d'ailleurs noter qu'en relatif, le modèle prédit une évolution de la limite d'élasticité avec le taux de renfort relativement proche de celle mesurée expérimentalement.

Dans la nuance NonR, la valeur bien plus faible de cette nuance comparée aux nuances ODS s'explique par l'absence d'yttrium et de titane pour former des nano-oxydes, la nature recristallisée des grains (pas de forêt de dislocations) après filage et leur taille plus importante (environ 10 µm) qui diminue la contribution des joints de grains.

Dans les états recuits à 1300°C (Figure VI.5b), le modèle surestime également de manière significative la limite d'élasticité dans les nuances R0,3, R0,2 et R0,1. Dans ces trois nuances, seule la contribution quadratique associée aux dislocations et aux particules diminue sensiblement par rapport à l'état de réception. Or, comme on sait qu'il n'y a pas de restauration des GND dans ces nuances lors des recuits (Chapitre III), on en conclue donc que c'est principalement la légère coalescence des nanoparticules qui est responsable de la diminution de la limite d'élasticité suite aux recuits à 1300°C. En revanche, dans les nuances R0,05 et STi qui ont subi une restauration généralisée et une forte coalescence des particules, les valeurs expérimentales et théoriques sont plus proches ($\Delta\sigma \approx 10$ MPa pour la nuance R0,05 et 70 MPa pour la STi). Dans ces deux nuances, comme on peut le voir, c'est la contribution des éléments en solution solide qui est alors la plus importante.

Dans les états déformés à froid et partiellement recristallisés à 1150°C (Figure VI.5c), une légère diminution de la contribution des joints de grains dans les nuances R0,3 et R0,2 est observée du fait des grains de ferrite recristallisés qui sont plus gros que les grains de la microstructure filée. L'annexe D.2 montre que la contribution des dislocations au terme quadratique devient faible dans les états recristallisés. En revanche, les nano-précipités restent très stables suite à ce traitement thermomécanique, c'est pourquoi la contribution des précipités (et donc la contribution quadratique) reste significative. Il est intéressant de noter que dans la nuance STi, la contribution des dislocations et des précipités est logiquement plus faible (que dans R0,3 et R0,2) mais celle des joints de grains est plus élevée du fait de la présence d'une fraction significative de martensite (presque 60%) sous forme de fines lattes. On peut noter que pour les trois nuances R0,1, R0,05 et STi, le modèle prédit cette fois une limite d'élasticité inférieure aux essais. Une des raisons possibles est que l'effet durcissant de la martensite soit sous-estimé car nous n'avons pas considéré une concentration de carbone en solution plus importante dans cette phase (celle-ci n'est pas connue), ce qui est normalement le cas puisqu'aucun traitement de revenu n'a été effectué.

Enfin, dans les états compressés et recuits à 1300°C (Figure VI.5d), on observe une bonne corrélation entre l'expérience et le modèle dans les nuances conventionnelles R0,3 et R0,2 et dans la nuance R0,1 également. Dans la nuance STi qui montre (en EBSD) une microstructure uniquement constituée de grains de ferrite recristallisés et de grosses particules aux joints de grains, la limite d'élasticité est sous-estimée d'environ 130 MPa. On peut envisager une possible présence de martensite dans la microstructure qui n'aurait pas été observée par EBSD dans le Chapitre IV.

Ainsi, le modèle de durcissement structural fournit des estimations intéressantes des valeurs de limites d'élasticité dans les différentes nuances et états métallurgiques. Dans les nuances les plus renforcées, le modèle surestime assez fortement la limite d'élasticité dans les états non recristallisés. Ces écarts peuvent

venir d'une surévaluation de la contribution des précipités, en partie car la fraction volumique mesurée en DNPA peut être légèrement surestimée dans ces matériaux ODS.

Les prédictions du modèle sur les états restaurés et recristallisés sont mieux corrélées avec les données expérimentales. Dans tous les états métallurgiques, le modèle montre plutôt de bons résultats en ce qui concerne les variations relatives de limites d'élasticité entre les nuances. Notamment, il montre bien que les nanoparticules jouent un rôle essentiel dans les résistances mécaniques élevées des matériaux à température ambiante et à haute température.

On peut proposer des optimisations à ce modèle pour prédire plus justement la limite élastique. Premièrement, il serait intéressant de connaitre la concentration en carbone dans la martensite non revenue pour pouvoir décrire plus précisément l'effet durcissant apporté par cette phase. Par ailleurs, nous avons déjà évoqué le fait que le mécanisme de franchissement des précipités par les dislocations lors de la déformation n'était pas clairement connu. Le modèle de Martin utilisait ici suppose un mécanisme de franchissement par contournement. Néanmoins, les nanoparticules très stables dans les ODS présentent des comportements singuliers et il est possible de que ces nano-phases nécessitent de déterminer un mécanisme de franchissement qui leur soit propre.

Conclusion sur les propriétés en traction

Les essais de traction réalisés ont permis d'étudier l'influence du taux de renforts et de l'état métallurgique sur la limite d'élasticité et la ductilité des nuances ODS de l'étude. Il apparaît qu'à température ambiante, l'état de réception (brut de filage) montre les meilleures résistances mécaniques et la recristallisation contribue seulement à une légère augmentation de l'allongement dans les nuances conventionnelles. En revanche, les microstructures recristallisées montrent des comportements intéressants lors d'une sollicitation à haute température (700°C) en particulier dans les nuances conventionnelles qui peuvent être aussi ductiles, voire plus qu'à température ambiante. De plus, cette recristallisation n'induit qu'une faible diminution des résistances mécaniques. La présence de martensite dans les nuances moins renforcées suite à une trempe depuis 1150°C est intéressante à température ambiante pour augmenter la limite d'élasticité. Cependant, à haute température, cette phase perd son effet durcissant et elle n'est donc plus intéressante, du moins pour les propriétés en traction.

Un modèle de durcissement structural a permis d'analyser les contributions à la limite d'élasticité des matériaux à température ambiante dans différents états métallurgiques. Le modèle fournit des valeurs raisonnables et les écarts relatifs de limites d'élasticité entre les nuances sont bien reproduits.

Afin de déterminer précisément les nuances qui présentent les propriétés mécaniques suffisantes pour être utilisées en réacteur, il serait nécessaire d'effectuer des caractérisations mécaniques supplémentaires, incluant notamment des essais de fluage sur des produits finis (tubes). Néanmoins, un rapport d'Areva rédigé par Garnier [31] propose un premier dimensionnement des gaines en ODS pour leur utilisation dans les RNR-Na. Ces propriétés minimales sont calibrées sur celles des aciers austénitiques AIM1 15/15Ti. Une première estimation peut donc déjà être effectuée. Ce rapport [31] préconise qu'à une température de 670°C, la limite d'élasticité $Rp_{0,2\%}$ doit être supérieure à 100 MPa et que la résistance mécanique R_m doit être supérieure à 300 MPa. De plus, l'allongement uniformément réparti A_r doit être supérieur à 0,5% sur tout le domaine de température de l'application.

Hormis la nuance NonR et les états filés et compressés recuits à 1300°C des nuances STi et R0,05, la condition sur la limite d'élasticité est respectée même à 700°C (Figure VI.3a). Concernant l'allongement réparti, tous les états métallurgiques sont satisfaisants excepté l'état recuit 1h à 1300°C de la nuance R0,3 filée (Figure VI.3b). En revanche, seules les trois nuances R0,3, R0,2 et R0,1 dans certains états

métallurgiques peuvent possiblement atteindre une valeur de R_m de 300 MPa à 670°C (Annexe D.1). En considérant que les résistances mécaniques des tubes puissent être légèrement meilleures que celle des barres (taux d'écrouissage plus importants et/ou grains plus fins) et que la température de 700°C dans notre cas contribue à diminuer la valeur de R_m par rapport à des essais à 670°C, on suppose de manière arbitraire que si R_m est ici supérieure à 250 MPa à 700°C, sa valeur pourrait être au moins égale à 300 MPa à 670°C sur tubes. A partir de cette approximation, les seuls états qui valideraient tous les critères industriels en traction sont indiqués dans le Tableau VI.5.

Nuance	**R0,3**			**R0,2**		**R0,1**	
Etat	Brut filage	Comp0,7 + 1h 1150°C	Comp0,7 + 1h 1300°C	Brut filage	Comp0,7 + 1h 1150°C	Brut filage	Comp0,7 + 1h 1150°C
$R_{p0,2\%}$ (MPa)	306	287	262	244	224	221	222
R_m (MPa)	315	338	276	255	250	252	252
A_r (%)	0,7	2,5	7,3	3,7	8,2	3,8	3,8

Tableau VI.5 : Propriétés en traction à 700°C des états métallurgiques susceptibles de respecter les critères industriels

On note donc que les nuances R0,05 et STi présentent des propriétés en traction trop basses pour satisfaire le cahier des charges industriel et ce pour tous les états métallurgiques. De plus, les valeurs de R_m à 670°C des nuances R0,1 et R0,2 seront probablement à la limite des prérequis du cahier des charges. Pour remédier à ce problème, un léger écrouissage après la recristallisation finale lors de la mise en forme pourrait être envisagé afin de renforcer le matériau. Il s'agit bien là d'un dimensionnement très préliminaire qui donne simplement un premier cadre de réflexion sur le cahier des charges pour le gainage ODS.

Bibliographie

[1] B. Fournier, A. Steckmeyer, A. L. Rouffie, J. Malaplate, J. Garnier, M. Ratti, P. Wident, L. Ziolek, I. Tournie, V. Rabeau, J. M. Gentzbittel, T. Kruml, and I. Kubena, "Mechanical behaviour of ferritic ODS steels-Temperature dependancy and anisotropy," *J. Nucl. Mater.*, vol. 430, no. 1–3, pp. 142–149, 2012.

[2] S. Ukai, M. Harada, H. Okada, M. Inoue, S. Nomura, S. Shikakura, T. Nishida, M. Fujiwara, and K. Asabe, "Tube manufacturing and mechanical properties of oxide dispersion strengthened ferritic steel," *J. Nucl. Mater.*, vol. 204, pp. 74–80, 1993.

[3] S. Ukai, S. Ohtsuka, T. Kaito, Y. De Carlan, J. Ribis, and J. Malaplate, "Oxide dispersion-strengthened/ferrite-martensite steels as core materials for Generation IV nuclear reactors," in *Structural Materials for Generation IV Nuclear Reactors*, Elsevier Ltd, 2017, pp. 357–414.

[4] H. Réglé, "Alliages ferritiques 14/20% de chrome renforcés par dispersion d'oxydes : Effets des procédés de mise en forme sur les textures de déformation, la recristallisation et les propriétés de traction," Thèse de Doctorat, Université Paris-Sud, 1994.

[5] Z. Oksiuta, P. Olier, Y. de Carlan, and N. Baluc, "Development and characterisation of a new ODS ferritic steel for fusion reactor application," *J. Nucl. Mater.*, vol. 393, pp. 114–119, 2009.

[6] A. Steckmeyer, M. Praud, B. Fournier, J. Malaplate, J. Garnier, J. L. Béchade, I. Tournié, A. Tancray, A. Bougault, and P. Bonnaillie, "Tensile properties and deformation mechanisms of a 14Cr ODS ferritic steel," *J. Nucl. Mater.*, vol. 405, no. 2, pp. 95–100, Oct. 2010.

[7] M. Praud, "Plasticité d'alliages renforcés par nano-précipitation," Thèse de Doctorat, Université de Toulouse, 2013.

[8] M. Serrano, M. Hernández-Mayoral, and A. García-Junceda, "Microstructural anisotropy effect on the mechanical properties of a 14Cr ODS steel," *J. Nucl. Mater.*, vol. 428, no. 1–3, pp. 103–109, 2012.

[9] C. C. Eiselt, H. Schendzielorz, A. Seubert, B. Hary, Y. de Carlan, P. Diano, B. Perrin, and D. Cedat, "ODS-materials for high temperature applications in advanced nuclear systems," *Nucl. Mater. Energy*, vol. 9, pp. 22–28, 2016.

[10] X. Boulnat, "Fast high-temperature consolidation of ODS (ODS) steels : process, microstructure, precipitation, properties," Thèse de Doctorat, INSA de Lyon, 2014.

[11] M. Dadé, "Plasticité d'alliages nanorenforcés pour le gainage combustible des réacteurs de 4ème génération : Compréhension et modélisation de l'influence des différents paramètres microstructuraux sur le comportement d'alliages modèles," Thèse de Doctorat, Université Grenoble-Alpes, 2015.

[12] B. Hary, T. Guilbert, P. Wident, T. Baudin, R. Logé, and Y. de Carlan, "Investigation of the relationships between mechanical properties and microstructure in a Fe-9 % Cr ODS steel," *EPJ Nucl. Sci. Technol.*, vol. 2, pp. 1–7, 2016.

[13] S. Noh, B. Choi, C. Han, S. Kang, J. Jang, Y. Jeong, T. K. Kim, and N. M. Division, "Effects of Heat Treatments on Microstructures and Mechanical Properties of Dual Phase ODS Steels for High," *Nucl. Eng. Technol.*, vol. 45, no. 6, pp. 821–826, 2013.

[14] S. Ukai, S. Ohtsuka, T. Kaito, H. Sakasegawa, N. Chikata, S. Hayashi, and S. Ohnuki, "High-temperature strength characterization of advanced 9Cr-ODS ferritic steels," *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 510–511, pp. 115–120, 2009.

[15] G. Fribourg, Y. Bréchet, A. Deschamps, and A. Simar, "Microstructure-based modelling of isotropic and kinematic strain hardening in a precipitation-hardened aluminium alloy," *Acta Mater.*, vol. 59, pp. 3621–3635, 2011.

[16] A. Deschamps and Y. Brechet, "Influence of predeformation and ageing of an Al–Zn–Mg alloy—

II. Modeling of precipitation kinetics and yield stress," *Acta Mater.*, vol. 47, no. 1, pp. 293–305, 1998.

[17] M. Ratti, "Développpement de nouvelles nuances d'aciers ferritiques/martensitiques pour le gainage d'éléments combustibles des réacteurs à Neutrons Rapides au sodium," Thèse de doctorat, Université Polytechnique de Grenoble, 2008.

[18] Q. Li, "Modeling the microstructure – mechanical property relationship for a 12Cr – 2W – V – Mo – Ni power plant steel," *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 361, pp. 385–391, 2003.

[19] G. I. Taylor, *Plastic Strain in Metals*. 1938.

[20] C. de Sansal, "Plasticité et effet de taille dans les polycristaux à grains micrométriques : simulation mésoscopiques et modélisation," Thèse de doctorat, Ecole Centrale Paris, 2007.

[21] M. Bartsch, A. Wasilkowska, A. Czyrska-Filemonowicz, and U. Messerchmidt, "Dislocation dynamics in the oxide dispersion strengthened alloy INCOLOY MA956," *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 272, pp. 152–162, 1999.

[22] N. Herve, "Fluage d 'aciers renforcés par dispersion nanométrique : caractérisation , modélisation et optimisation de la microstructure," Thèse de doctorat, Université Grenoble Alpes, 2015.

[23] C. E. Lacy and M. Gensamer, "The tensile properties of alloyed ferrites," in *Transactions of the American Society of Metals*, 1944, p. 88.

[24] C. H. Young and H. K. D. H. Bhadeshia, "Strength of mixtures of bainite and martensite," *Mater. Sci. Technol.*, vol. 10, no. 3, pp. 209–2014, 1994.

[25] E. O. Hall, "The deformation and ageing of mild steel III Discussion of results," *Proc. Phys. Soc. Sect. B*, vol. 64, no. 9, p. 747, 1951.

[26] J. Friedel, *Dislocations, Volume 3*, Pergamon P. 1964.

[27] Q. Puydt, "Comportement mécanique de soudures en alliage d'aluminium de la série 7xxx : de la microstructure à la modélisation de la rupture," Thèse de doctorat, Institut Polytechnique de Grenoble, 2012.

[28] L. Toualbi, "Optimisation de la gamme de fabrication de tubes en aciers renforcés par une dispersion d'oxydes (ODS) : compréhension des relations microstructure/propriétés mécaniques," Thèse de Doctorat, Mines ParisTech, 2012.

[29] J. W. Martin, *Micromechanisms in particle-hardened alloys*, Cambridge. 1980.

[30] A. Chauhan, D. Litvinov, Y. de Carlan, and J. Aktaa, "Study of the deformation and damage mechanism of a 9Cr-ODS steel: Microstructure evolution and fracture characteristics," *Mater. Sci. Eng. A*, vol. 658, pp. 123–134, 2016.

[31] S. Garnier, "Projet ANR aXtrem, Expression d'un besoin industriel : Application aux gaines combustibles des reacteurs SFR," 2010.

Chapitre VII. Analyse des gammes de fabrication des tubes produits au CEA

Introduction 226
1. Les gammes CEA pour les tubes ferritiques 226
2. Comparaison avec les gammes japonaises 228
Conclusion 230
Bibliographie 231

Introduction

Les résultats présentés jusqu'à maintenant permettent de mieux comprendre les mécanismes de recristallisation dans les ODS. Il convient de s'intéresser plus en détails à la gamme de fabrication actuelle utilisée au CEA pour tenter de comprendre quels sont les phénomènes qui limitent la recristallisation homogène des tubes. En effet, si les gammes de fabrication CEA de tubes ODS permettent déjà d'obtenir des tubes fonctionnels, il serait beaucoup plus confortable de bien maîtriser leur recristallisation ce qui n'est pas encore le cas actuellement. Pour cela, la gamme de fabrication CEA a été analysée et comparée avec celle utilisée par les équipes de recherches japonaises de JAEA (Japan Atomic Energy Agency).

1. Les gammes CEA pour les tubes ferritiques

Comme nous l'avons mentionné dans le Chapitre I, le laminage à pas de pèlerin HPTR (High Pressure Tube Reduction) est actuellement le procédé de référence pour la mise en forme des tubes de gainage au CEA. Dans les nuances ODS martensitiques (Cr < 12%), les traitements thermiques intermédiaires entre les passes de laminage permettent de restaurer complétement la microstructure et de supprimer les contraintes internes grâce à la transformation de phase [1]. En revanche, dans les nuances ODS ferritiques, la mise en forme est plus compliquée puisqu'il est très difficile de les faire recristalliser.

Un tube d'acier ODS ferritique (T31) de composition nominale Fe-14Cr-1W-0,3Ti-0,25Y_2O_3 laminé au CEA a été analysé par EBSD. Ce tube a subi la gamme de fabrication suivante :

1- Filage à chaud à 1100°C (comme les barres de l'étude)
2- Traitement thermique post-filage de détentionnement 1h-1050°C + refroidissement lent (150°C/h)
3- Traitement thermique pré-laminage 3h-1200°C + refroidissement rapide
4- Laminage HPTR : 8 passes à froid avec 3 traitements thermiques intermédiaires de détentionnement (toutes les 2 passes) 1h-1200°C sous vide
5- Traitement thermique final : revenu 1h-750°C + refroidissement lent

Lors du laminage HPTR, le matériau est initialement sous forme d'ébauche tubulaire de diamètre interne Φ_{int} = 12,6 mm et de diamètre externe Φ_{ext} = 16,2 mm. A la fin de la gamme, les dimensions sont Φ_{int} = 9,73 mm et Φ_{ext} = 10,73 mm. La déformation plastique équivalente $\varepsilon_{eq,plast}$ associée à cette réduction de section est de 1,62.

La Figure VII.1 montre la cartographie IPF respectivement du tube brut de mise en forme (après l'étape 5) et après un recuit supplémentaire d'1 heure à 1300°C avec les coupes de l'ODF associées. Le Tableau VII.1 montre les caractéristiques microstructurales du tube après mise en forme et après recuit d'1h à 1300°C. Afin de comparer la microstructure des tubes avec celles des barres, nous avons ajouté les caractéristiques microstructurales de la barre filée R0,3 (Fe-14Cr-1W-0,3Ti-0,3Y_2O_3), qui présente la composition chimique la plus proche de celle du tube T31. Le tube après mise en forme présente des grains fins et allongés et une texture composée d'une fibre mixte α (54%) et γ (45%). L'orientation {111}⟨110⟩, qui appartient simultanément à ces deux fibres, est la plus marquée. On observe également des grains qui présentent leur direction <100> parallèle à DF (grains rouges). La taille des sous-grains de 0,64 µm est égale à celle de la barre de R0,3. En revanche, la densité de GND du tube est supérieure à celle de la barre filée et atteint 1.10^{15} m^{-2}. Néanmoins, cette valeur reste relativement faible et inférieure à celles obtenues suite aux modes de déformation à froid étudiés dans le Chapitre IV (environ

2.10^{15} m^{-2} après CU//DF et $1{,}5.10^{15}$ m^{-2} après CU//DT). On en conclue donc que la gamme de mise en forme actuelle ne permet de stocker qu'une quantité limitée de dislocations et donc d'énergie.

Le recuit d'1h à 1300°C semble n'avoir que peu d'effet sur la microstructure. On observe une légère croissance des sous-grains dont le diamètre équivalent moyen augmente de 0,64 à 0,76 µm mais les grains restent fins et étirés. De plus, la densité de GND est la même qu'avant recuit, ce qui indique qu'il n'y a eu ni restauration (du moins les GND ne participent pas à ce mécanisme) ni recristallisation de la microstructure lors de ce recuit. On peut noter une texture différente avec une fibre α plus marquée et une fibre γ fortement atténuée, et notamment la quasi-disparition des grains orientés <100>//DF (grains rouges). Cependant, il s'agit probablement d'un effet de zone puisqu'il est peu envisageable qu'un changement de texture du matériau ait eu lieu sans restauration ni recristallisation.

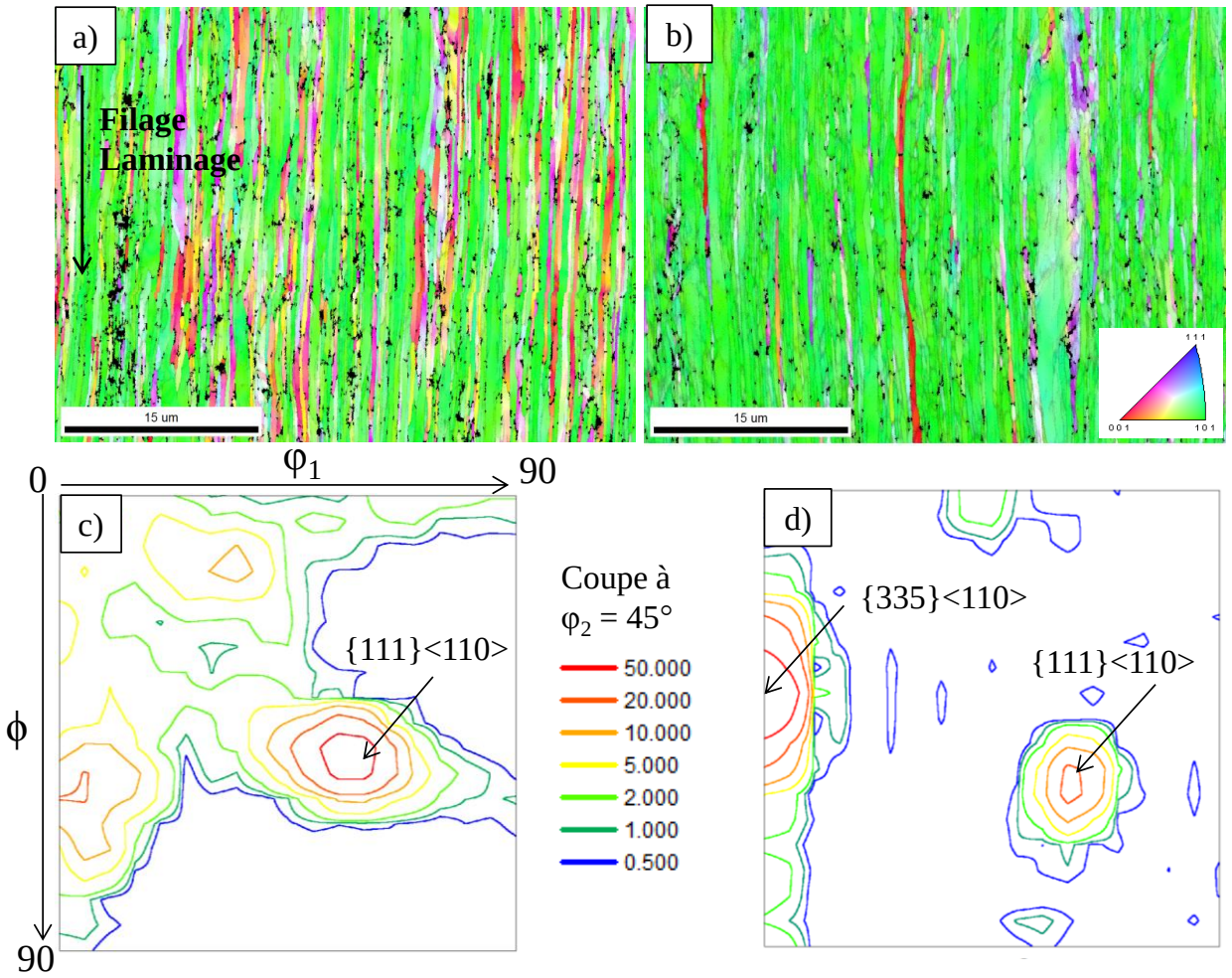


Figure VII.1 : Cartographies IPF (référence DF) du tube T31 a) brut de mise en forme (après l'étape 5) et b) recuit 1h à 1300°C avec c) et d) les coupes respectives de l'ODF à $\varphi_2 = 45°$

Echantillon	$D_{sous\text{-}grains}$ (µm)	Fraction fibre α (%)	ρ_{GND} (m^{-2})
Barre R0,3 brute de filage	0,63	75 ± 5	$6{,}7.10^{14}$
Tube T31 brut de mise en forme	0,64	54 ± 5	$1{,}0.10^{15}$
Tube T31 1h 1300°C	0,76	83 ± 5	$1{,}0.10^{15}$

Tableau VII.1 : Caractéristiques microstructurales de la barre R0,3 et du tube T31

Ainsi, il semble que la gamme actuelle de mise en forme par laminage HPTR ne permette pas de recristalliser le matériau lors d'un traitement thermique final, principalement du fait d'une énergie stockée trop faible. Cependant, l'analyse EBSD d'un autre tube CEA (K48) ayant subi la même gamme de fabrication montre des résultats différents après mise en forme. En effet, sur la Figure VII.2a, on observe la présence de plus gros grains mesurant entre 5 et 10 µm de large et plusieurs dizaines de µm de long (flèches blanches). Ces gros grains ont une densité de GND particulièrement faible, inférieure à 5.10^{14} m^{-2} (Figure VII.2b) et présente une texture cristallographique plutôt différente de la texture de déformation (fibre α). Au vue de ces observations, il est fortement envisageable que ces grains soient issus d'une recristallisation partielle lors des traitements intermédiaires de détentionnement puis qu'ils soient re-déformés lors des passes de laminage suivantes.

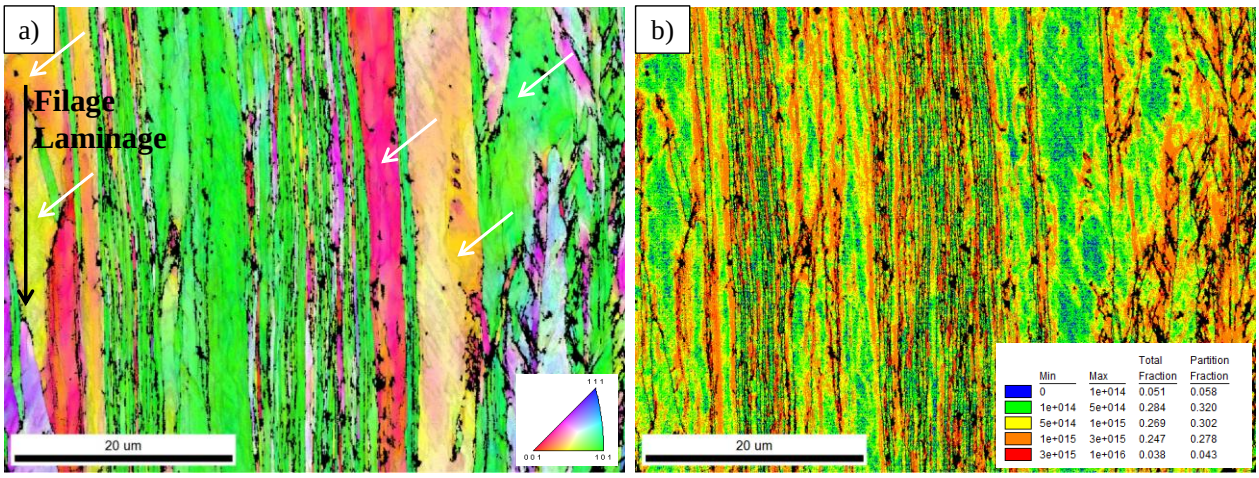


Figure VII.2 : a) Cartographie IPF (référence DF) et b) carte de la densité de GND du tube K48 brut de mise en forme

Cette recristallisation intermédiaire partielle peut être un inconvénient puisqu'elle va certes permettre de diminuer la dureté du matériau et faciliter le laminage mais elle va également dissiper l'énergie stockée (au moins partiellement) dans la microstructure. Ainsi, lors du traitement thermique final, l'énergie stockée n'est plus suffisante pour permettre une recristallisation totale de la microstructure. C'est pour ces raisons que les équipes japonaises de JAEA cherchent à éviter toute recristallisation intermédiaire dans leurs gammes de mise en forme [2][3].

2. Comparaison avec les gammes japonaises

Afin de conserver une dureté inférieure à la valeur critique de 400 HV, la gamme de mise en forme des ODS ferritiques japonais à 12%Cr comprend des recuits intermédiaires à 1100°C après chaque passe de laminage [4]. Ces recuits permettent de restaurer la microstructure et de conserver un niveau de dureté inférieur à 400 HV. C'est seulement après la dernière passe de laminage qu'un traitement thermique final, réalisé à plus haute température (1200°C), permet de recristalliser complètement le matériau. Les microstructures recristallisées sont alors constituées de gros grains de plusieurs centaines de µm de long et d'environ 50 µm de large (Figure VII.3) dont la texture est sensiblement différente de la texture de laminage (fibre α) [3]. Cette microstructure indiquerait plutôt une recristallisation discontinue avec un nombre de germes faible, comparable à ce que nous obtenons après CU//DT dans le Chapitre IV. La différence est qu'ici, les grains recristallisés consomment totalement la microstructure écrouie.

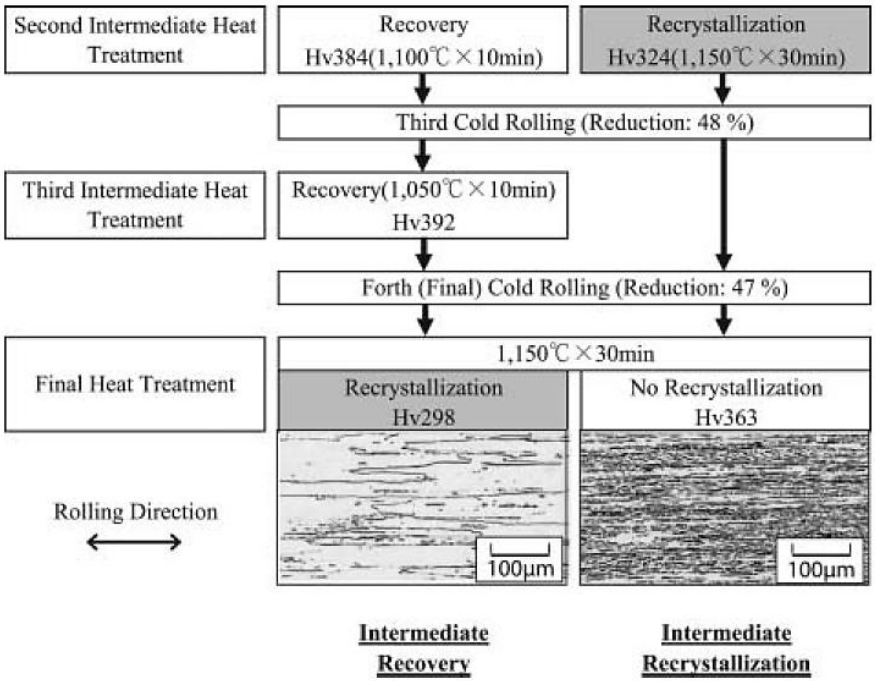


Figure VII.3 : Gamme de mise en forme de JAEA avec et sans traitement thermique intermédiaire de restauration [3]

Il apparait là une différence entre les gammes de mise en forme des deux équipes (CEA et JAEA). En effet, les nuances de JAEA semblent restaurer relativement facilement lors des traitements intermédiaires ce qui n'est pas le cas des nuances CEA, ce que nous avons d'ailleurs vérifié en mesurant l'absence de variation de la densité de GND entre avant et après recuit 1h à 1300°C.

L'équipe de Narita *et al.* [2][3] propose également une solution alternative pour éviter la recristallisation pendant la mise en forme qui présente l'avantage de réduire plus efficacement la dureté et d'effectuer seulement 4 passes de laminage (6 ou 8 dans les gammes CEA). Cette solution consiste à effectuer un traitement thermique en deux étapes : un premier recuit réalisé à une température intermédiaire permet de diminuer l'énergie stockée dans la microstructure par restauration et ainsi d'augmenter la température de recristallisation. Ensuite, un deuxième recuit est effectué à plus haute température (1200°C) et permet de réduire significativement la dureté sans provoquer la recristallisation. Néanmoins, à l'heure actuelle, il n'est pas clairement explicité si ce type de traitement thermique est utilisé de manière systématique dans leurs gammes de mise en forme.

On peut s'interroger sur les raisons pour lesquelles la recristallisation semble plus facile à maîtriser dans les nuances JAEA que dans les nuances CEA bien que les compositions chimiques et les procédés de mise en forme soient comparables. Tout d'abord, le procédé de laminage utilisé par JAEA pour la fabrication des tubes est le laminage à pas de pèlerin VMR (*Vertikaler Massenausgleigh Ringwalzei*), qui diffère entre autres du laminage HPTR par le nombre d'outils (2 en VMR et 3 en HPTR), par le déplacement du tube par rapport aux outils et par le nombre de coups de cage (incréments de déformation plastique) [5]. Bien que les 2 procédés soient similaires, il n'est pas exclu que le laminage VMR sollicite le matériau par un chemin de déformation différent du laminage HPTR qui permette de stocker plus de dislocations dans le matériau lors de la déformation et donc de faciliter le déclenchement de la recristallisation finale.

Une autre hypothèse envisageable serait une différence significative des populations de particules entre les 2 nuances. Des particules plus grosses, en fraction volumique plus faible ou de nature chimique

différente dans les nuances de JAEA conduiraient à une pression d'épinglage plus faible. Les concentrations en titane et en Y_2O_3 de la nuance 12Cr de JAEA sont respectivement de 0,26% et 0,22%, ce qui est très proche de tube T31 (0,3%Ti et 0,25%Y_2O_3) et comprises entre nos nuances R0,2 et R0,3. De plus, l'excès d'oxygène introduit par la pollution est compris entre 0,06 et 0,08% [2] ce qui est également similaire aux nuances CEA. Les concentrations en Y, Ti et O sont donc en théorie suffisantes dans la nuance 12Cr JAEA pour former une population stable de nano-oxydes de type $Y_2Ti_2O_7$.

L'explication pourrait éventuellement provenir de la concentration en azote bien moins importante dans la nuance JAEA (0,006%) que dans les nuances CEA (0,03-0,05%). Dans ces dernières, la formation de nitrures (TiN notamment) augmenterait encore la stabilité des microstructures. Cependant, cette hypothèse reste peu convaincante puisque ce sont les nano-oxydes de type Y-Ti-O qui sont très majoritairement responsables de l'épinglage des joints de grains dans les aciers ODS et il apparaît donc peu probable que la présence (ou l'absence) de nitrures viennent jouer un rôle déterminant sur la stabilité des microstructures.

A l'issue de cette discussion, il n'est donc pas ressorti de raisons claires pour expliquer la différence de comportement en recristallisation observée entre les tubes CEA et JAEA. Pour mieux comprendre ces différences, des informations supplémentaires seraient nécessaires notamment concernant la microstructure (énergie stockée, mécanismes de germination) et la distribution de nanoparticules (nature chimique, fraction volumique) dans la nuance ODS 12Cr de JAEA mais les japonais n'ont pas officiellement publié de telles données sur leur matériau.

Conclusion

Au cours de ce chapitre, la gamme de mise en forme à froid des tubes de gainage au CEA a été analysée et apparaît peu favorable pour déclencher la recristallisation des tubes. En effet, l'énergie stockée en fin de gamme est trop faible pour obtenir une microstructure totalement recristallisée. Des évolutions de la gamme sont actuellement à l'étude pour permettre de recristalliser le matériau quand cela est nécessaire. De plus, l'étude générique réalisée au cours de cette thèse a montré que la quantité d'énergie stockée mesurée (via la mesure de la densité de GND) expérimentalement était un critère déterminant pour recristalliser de manière homogène les microstructures. La connaissance de ce critère doit pouvoir permettre d'estimer plus facilement si la recristallisation peut avoir lieu ou non lors des différentes étapes de la mise en forme. On peut d'ailleurs envisager d'intégrer une loi d'évolution de la densité de dislocations dans la simulation numérique du procédé pour prédire cette dernière plus facilement.

Bibliographie

[1] L. Toualbi, C. Cayron, P. Olier, J. Malaplate, M. Praud, M.-H. Mathon, D. Bossu, E. Rouesne, A. Montani, R. Logé, and Y. de Carlan, "Assessment of a new fabrication route for Fe–9Cr–1W ODS cladding tubes," *J. Nucl. Mater.*, vol. 428, no. 1–3, pp. 47–53, 2012.

[2] T. Narita, S. Ukai, and T. Kaito, "Development of Two-Step Softening Heat Treatment for Manufacturing 12Cr – ODS Ferritic Steel Tubes," *J. Nucl. Sci. Technol.*, vol. 41, no. 10, pp. 1008–1012, 2004.

[3] T. Narita, S. Ukai, B. Leng, S. Ohtsuka, and T. Kaito, "Characterization of recrystallization of 12Cr and 15Cr ODS ferritic steels," *J. Nucl. Sci. Technol.*, vol. 50, no. 3, pp. 314–320, 2013.

[4] S. Ukai, T. Yoshitake, S. Mizuta, S. Hagi, and T. Kobayashi, "Preliminary Tube Manufacturing of Oxide Dispersion Strengthened Ferritic Steels with Recrystallized Structure," *J. Nucl. Sci. Technol.*, vol. 3131, no. 2017, pp. 710–712, 2012.

[5] K. Mocellin, E. Vanegas, J. Veysset, E. Deloye, and R. Logé, "Laminage de tubes ODS," in *20ème Congrès Français de Mécanique*, 2011.

Conclusion générale

Cette thèse traite de l'influence du taux de renforts et de la déformation à froid sur la recristallisation des aciers ODS ferritiques. Elle s'inscrit dans le cadre du programme MACNA du CEA relatif à l'optimisation des matériaux de cœur pour les réacteurs RNR-Na. L'étude a été effectuée à partir d'une base de nuances modèles dans l'objectif premier d'améliorer la compréhension des mécanismes de recristallisation dans ces matériaux. L'intérêt était également de pouvoir alimenter la réflexion sur le taux de renforts optimal pour faciliter la recristallisation lors de la mise en forme et pour assurer de bonnes propriétés mécaniques en conditions nominales ou accidentelles en réacteur. L'optimisation du traitement thermomécanique pour conduire à une recristallisation homogène a aussi été un axe de recherche.

Sur les états de réception, sans déformation plastique à froid, l'existence d'un taux de renforts seuil compris entre les nuances R0,05 (0,05%Ti-0,05%Y_2O_3) et R0,1 (0,1%Ti-0,1%Y_2O_3) a pu être identifiée. Au-dessus de ce seuil, les microstructures sont très stables et ne montrent aucune évolution lors des différents recuits. Cette stabilité est directement corrélée à la présence de nano-oxydes Y-Ti-O dont la forme stœchiométrique est la structure pyrochlores $Y_2Ti_2O_7$. Ces nanoparticules se forment dans les nuances R0,1, R0,2 et R0,3 et conservent une taille nanométrique même après des temps longs à très haute température (10h 1300°C). Le code Monte Carlo développé modélise bien ce phénomène : lorsque des nanoparticules sont incorporées dans le modèle, aucune croissance des sous-grains ni recristallisation n'est observée dans la microstructure filée, qui présente une énergie stockée insuffisante.

En dessous de ce taux de renforts seuil, la nature chimique des nanoparticules formées dans les nuances ODS est différente du fait d'un équilibre des phases modifié. Les nanoparticules formées coalescent alors rapidement lors des recuits. Il s'en suit un mécanisme de restauration généralisée de la microstructure par croissance des sous-grains avec déclenchement ou non d'une croissance anormale de certains sous-grains, selon la répartition plus ou moins hétérogène des grosses particules. De manière générale, la texture de filage, la fibre α, est fortement accentuée lors de la restauration.

De plus, la diminution du taux de renforts et notamment de la teneur en titane conduit à l'apparition d'un domaine biphasé ferrite-austénite à haute température (entre 850°C et 1250°C) du fait de la présence de carbone en solution solide à ces températures.

Des déformations à froid par compression ont été appliquées aux matériaux pour augmenter l'énergie stockée et favoriser la recristallisation. Les travaux réalisés ont montré que les microstructures après recristallisation sont très dépendantes du chemin de déformation appliqué, et plus directement de la quantité et de la répartition de l'énergie stockée dans la microstructure. Ainsi lorsque le matériau est déformé par compression parallèlement à la direction de filage et à l'allongement des grains, l'énergie stockée est importante et une recristallisation presque totale des nuances conventionnelles est observée. La microstructure est homogène et une atténuation notable de la texture de déformation est constatée. La modélisation de la recristallisation discontinue a permis de proposer que ce phénomène était dû à une germination dans les zones de plus hautes énergies stockées de la microstructure déformée, dont les orientations cristallographiques sont plus aléatoires.

De plus, l'influence de la température de recuit est très faible lorsque celle-ci est supérieure à la température de recristallisation. En effet, les microstructures après recristallisation primaire sont très stables et aucune croissance des grains n'est observée. Cela est attribué aux nanoparticules dont la résistance à la

coalescence ne semble pas affectée par la recristallisation. Celles-ci conservent leur taille nanométrique et des relations d'orientations avec la matrice.

Ces microstructures recristallisées homogènes ne sont pas observées lors des compressions perpendiculaires à la direction de filage et à l'allongement des grains. La microstructure filée est moins perturbée par la déformation à froid que lors des compressions parallèles à l'axe de filage. De plus, l'énergie stockée est plus faible et répartie de manière plus hétérogène. Dans une nuance conventionnelle, cela conduit à l'obtention d'une microstructure seulement partiellement recristallisée et très hétérogène avec des gros grains allongés qui présentent une texture marquée. La morphologie très allongée de ces grains recristallisés a pu être directement reliée à la répartition de l'énergie stockée le long des sous-joints dans la microstructure déformée.

A travers cette étude, il est également apparu que la diminution du taux de renforts ne permet pas de favoriser clairement la recristallisation. Il est vrai que les analyses conduites sur les états bruts de filage montrent que l'obtention d'une microstructure restaurée avec des grains équiaxes est possible à 1150°C (après 10h) dans la nuance R0,05 et à 1300°C dans la nuances STi. Cependant, l'obtention de cette microstructure a priori intéressante pour la mise en forme, nécessite une forte coalescence des nano-précipités conduisant à une chute importante des propriétés mécaniques. Cette solution n'est donc pas envisageable.

Nous avons montré qu'après déformation à froid, la diminution du taux de renforts n'entraîne pas une augmentation de la fraction recristallisée ou une recristallisation plus homogène. Comme dans les états filés, c'est seulement après une forte coalescence des particules qu'une recristallisation (ou restauration) totale peut être observée.

Par ailleurs, les essais de traction ont montré que les propriétés mécaniques à chaud de ces deux nuances, quel que soit leur état métallurgique, seront trop faible pour respecter le cahier des charges industriel. Ces résultats permettent de conclure qu'il n'y a pas d'intérêt majeur à diminuer le taux de renforts dans les ODS ferritiques.

L'hyperdéformation par compression multi-axiale a permis de mettre en évidence un phénomène physique nouveau qui est la dissolution des nano-oxydes par déformation plastique sur un état consolidé. Plusieurs mécanismes peuvent être à l'origine de cette dissolution et des études complémentaires seront nécessaires pour améliorer la compréhension de ce phénomène. Il est apparu que l'utilisation de l'hyperdéformation ne permettait pas de stocker plus d'énergie que la compression uniaxiale très probablement du fait de l'existence d'un taux d'écrouissage critique au-delà duquel la densité de dislocations n'augmente plus. Ce résultat montre que c'est le chemin de déformation beaucoup plus que le taux d'écrouissage qui détermine la capacité des microstructures ODS à stocker de l'énergie et donc à recristalliser.

Concernant les propriétés mécaniques des nuances conventionnelles, il a été montré que la recristallisation permettait d'augmenter la ductilité et de limiter les ruptures prématurées lors des essais à chaud. Parallèlement à cela, les résistances mécaniques des états recristallisés restent satisfaisantes. Cela confirme l'intérêt de la recristallisation à la fois pour la mise en forme mais également pour les propriétés mécaniques en fonctionnement.

Enfin, au cours de cette étude, un modèle Monte Carlo prenant en compte les différentes pressions motrices et retardatrices présentes dans les aciers ODS a été développé, notamment en incorporant les nanoparticules dans le modèle par une méthode analytique. Ce modèle a permis d'aider à la compréhension

des mécanismes observés expérimentalement, de justifier la stabilité des microstructures filées en présence de particules et d'expliquer la texture des grains recristallisés dans une nuance déformée à froid. Dans le cadre d'une collaboration, certains des résultats ont été comparés avec la méthode déterministe LevelSet intégrée dans un formalisme éléments finis. Grâce à cette méthode, une description plus physique des cinétiques d'évolution des microstructures et une calibration en temps du modèle Monte Carlo a pu être effectuée, en considérant le temps physique et les effets de la température.

Perspectives

Les perspectives de cette thèse peuvent se présenter selon trois axes principaux. Le premier concerne l'étude plus approfondie de la recristallisation dans la gamme de fabrication actuelle. Le second consiste à proposer une réflexion sur l'optimisation des nuances CEA (compositions chimiques et procédés de fabrication). Enfin, un dernier axe de perspectives regroupe des études complémentaires qui ne concernent pas directement la gamme de fabrication des ODS.

2.1 La recristallisation dans la gamme de mise en forme actuelle

Avec cette étude générique, nous avons mis en évidence la relation étroite entre le chemin de déformation et le niveau d'énergie stockée dans les microstructures des ODS. Suite aux différents modes de déformation testés, il ressort l'existence d'un critère sur la valeur de la densité de GND qui permet de déterminer si le matériau est susceptible de recristalliser lors des recuits. Une forte texture cristallographique n'est pas directement responsable de la difficulté à recristalliser ces matériaux et c'est bien la quantité d'énergie stockée qui dicte les mécanismes de recristallisation.

Sur les gammes actuelles, il est nécessaire de reconduire une expertise complète en mesurant l'énergie stockée à chaque étape notamment pour comprendre la formation des grains recristallisés qui peuvent apparaître lors des recuits intermédiaires. Une fois cette expertise conduite, on pourrait proposer des modifications pour mieux maîtriser la recristallisation. Ces modifications pourraient être minimes (ajustement des traitements thermiques et de l'intensité des passes de laminage) ou nécessiter d'avoir recours à d'autres procédés de mise en forme. Certains procédés sont déjà à l'étude pour être introduits dans la gamme afin de mieux contrôler la recristallisation des microstructures.

2.2 Réflexion sur l'optimisation des nuances CEA

2.2.1 Composition chimique

Taux de renforts

Comme il a été dit précédemment, la diminution du taux de renforts ne permet pas de favoriser la recristallisation tout en conservant une population de nanoparticules stable. De plus, les propriétés mécaniques dans les nuances peu renforcées sont trop faibles par rapport à celles requises par le cahier des charges.

Pour autant, le choix d'un taux de renforts trop important n'est pas non plus approprié puisque cela conduirait à des microstructures extrêmement stables quels que soit la déformation et le traitement thermique appliqué. Il en résulte que le risque de fissuration lors de la mise en forme et en fonctionnement

serait considérablement augmenté. A l'heure actuelle, il semble que les taux de renforts conventionnels compris entre les nuances R0,2 et R0,3 de cette étude doivent être conservés.

Composition de la matrice

Concernant l'optimisation de la composition chimique de la matrice, les nuances martensitiques (9-12%Cr) constituent évidemment le meilleur choix pour la mise en forme et l'homogénéité de la microstructure. Récemment, un fort intérêt pour les nuances martensitiques à 11%Cr est apparu. Celles-ci présentent une transformation de phases qui est utile pour supprimer les contraintes internes et effacer la texture de déformation. Ces nuances présentent une teneur en chrome plus importante que les nuances à 9%Cr et offrent une meilleure résistance à la corrosion. Le développement de ces nuances à 11%Cr est à l'étude au CEA [1] et également dans les équipes de recherches japonaises [2][3].

Tout l'intérêt est donc d'avoir une nuance relativement aisée à mettre en forme avec une teneur en chrome suffisante pour permettre une bonne résistance à la corrosion. Dans la continuité des nuances à 11%Cr qui sont à l'étude mais qui reste 100% martensitique, il serait intéressant d'envisager des nuances duplex ferrito-martensitique qui permettraient d'augmenter encore la teneur en chrome (autour de 12-13% par exemple) tout en conservant une certaine fraction du matériau qu'il serait possible de transformer (en austénite lors du chauffage et en ferrite ou martensite selon les besoins lors du refroidissement). La formabilité de ces nuances biphasées ferrito-martensitiques lors du laminage mériterait d'être étudiée pour déterminer si elles sont réellement intéressantes pour la mise en forme. Des études sur l'influence des concentrations en éléments gammagènes (C, Ni, Mn) et alphagènes (Cr, W) sur la transformation de phases (température de transformation, fraction transformée) et sur les particules formées devront alors aussi être conduites. En effet, une concentration en carbone trop importante pourrait conduire par exemple à la formation de carbures néfastes pour les propriétés mécaniques [4][5]. De même, des concentrations en nickel et en manganèse trop élevées pourraient induire une diminution de la température de transformation de phases (<800°C) qui se rapprocherait alors des températures de fonctionnement en réacteur.

Enfin, dans le cas où l'on parviendrait à maitriser la recristallisation des ODS ferritiques lors de la mise en forme et que le choix se porterait sur une nuance à 14%Cr pour la fabrication de pièces (tubes ou plaques), il est important de prendre en compte le fait que des phases α' enrichis en chrome sont susceptibles de se former sous irradiation et de conduire au durcissement et à la fragilisation du matériau [6].

Intérêt de grosses particules

Une solution, non évoquée jusqu'à présent, pour favoriser la recristallisation dans les nuances ferritiques consisterait à favoriser la formation de particules plus grossières (en plus des nano-oxydes). La déformation localement plus importantes autour de ces grosses particules pourrait permettre la germination de grains recristallisés par un mécanisme de type PSN (Particules Stimulated Nucleation) lors des recuits. Evidemment, la localisation et la nature chimique de ces particules devront être étudiées et maîtrisées pour éviter qu'elles affectent les propriétés mécaniques.

2.2.2 Procédé d'élaboration et de mise en forme

Consolidation par CIC ou SPS

Les résultats présentés dans le Chapitre IV ont montré que pour un même procédé de déformation à froid, l'énergie stockée, la texture et le comportement en recristallisation sont très dépendant de la direction de déformation car les microstructures sont initialement anisotropes après filage. Pour un même taux de déformation macroscopique appliqué, lorsque les grains sont compressés dans leur direction longitudinale, l'énergie stockée est plus importante que lorsque les grains sont sollicités dans leur largeur, du fait notamment de phénomènes de micro-flambage des grains. Le problème est qu'il n'est pas possible de compresser les grains dans la direction de filage lors du laminage. La consolidation par CIC ou SPS qui induit une microstructure bien plus isotrope pourrait donc s'avérer judicieuse pour provoquer le flambage de certains grains uniquement (ceux plutôt allongés dans la direction circonférentielle ou radiale dans les microstructures bimodales). Ainsi, il serait intéressant de laminer (par HPTR) des microstructures consolidées par ces méthodes et d'étudier leur comportement en recristallisation. Dadé *et al.* [7] montrent cependant que sur un matériau consolidé par CIC et déformé par compression uniaxiale à $\varepsilon = 0,7$, il est nécessaire d'effectuer un recuit à au moins 1300°C pour constater une diminution significative de la dureté.

Métallurgie des poudres et fabrication additive

Au cours des dernières années, la métallurgie des poudres a subi un véritable regain d'intérêt en partie grâce au développement des techniques de fabrication additive (FA). Les aciers ODS devraient pouvoir en bénéficier et il pourrait être envisagé à l'avenir de réaliser des ébauches tubulaires par des techniques de FA ou de co-fabrication in-situ. Ces techniques pourraient permettre de limiter les hétérogénéités microstructurales qui apparaissent aujourd'hui au cours des différentes étapes de la gamme. L'un des principaux défis serait de conserver des populations d'oxydes nanométriques.

2.3 Etudes complémentaires

Parmi ces études, l'une consisterait à s'intéresser en détails aux mécanismes de dissolution des nano-oxydes Y-Ti-O lors de l'hyperdéformation à froid et également à leur reprécipitation suite à des traitements thermiques. Une autre concernerait l'analyse plus poussée de la cohérence partielle des nano-phases après recristallisation, notamment grâce des techniques *in-situ*.

Par ailleurs, l'optimisation du modèle Monte Carlo développé jusqu'à maintenant pourrait être poursuivie. Ainsi, on peut envisager l'implémentation de fonctions pour prendre en compte par exemple des particules grossières, une coalescence des particules au cours du temps ou encore une meilleure description de la courbure des interfaces et donc de la pression capillaire. Des optimisations numériques du code et éventuellement une parallélisation seraient également à envisager afin de réduire au maximum les temps de calculs et de simuler des évolutions microstructurales sur une surface plus importante. De plus, la méthode Monte Carlo présente certaines limites pour simuler la croissance de grains et la recristallisation en présence de particules et il apparaît judicieux de se pencher sur des méthodes en champ complet plus appropriées. Ainsi, l'utilisation de la méthode LevelSet développée par le CEMEF et adaptée aux aciers ODS dans le cadre de cette étude montre jusqu'à maintenant des résultats probants. Ainsi, les travaux entrepris pourraient être poursuivis pour modéliser de manière plus complète les évolutions microstructurales.

Bibliographie

[1] J. Malaplate, S. Vincent, and D. Sornin, "Avancement des caractérisations sur les tubes en aciers ODS à 11%Cr," 2016.

[2] S. Ohtsuka, T. Kaito, T. Tanno, Y. Yano, S. Koyama, and K. Tanaka, "Microstructure and high-temperature strength of high Cr ODS tempered martensitic steels," *J. Nucl. Mater.*, vol. 442, pp. 89–94, 2013.

[3] T. Yamashiro, S. Ukai, N. Oono, S. Ohtsuka, and T. Kaito, "Microstructural stability of 11Cr ODS steel," *J. Nucl. Mater.*, vol. 472, pp. 2–6, 2016.

[4] F. Abe, "Precipitate design for creep strengthening of 9 % Cr tempered martensitic steel for ultra-supercritical power plants," *Sci. Technol. Adv. Mater.*, vol. 9, pp. 1–15, 2008.

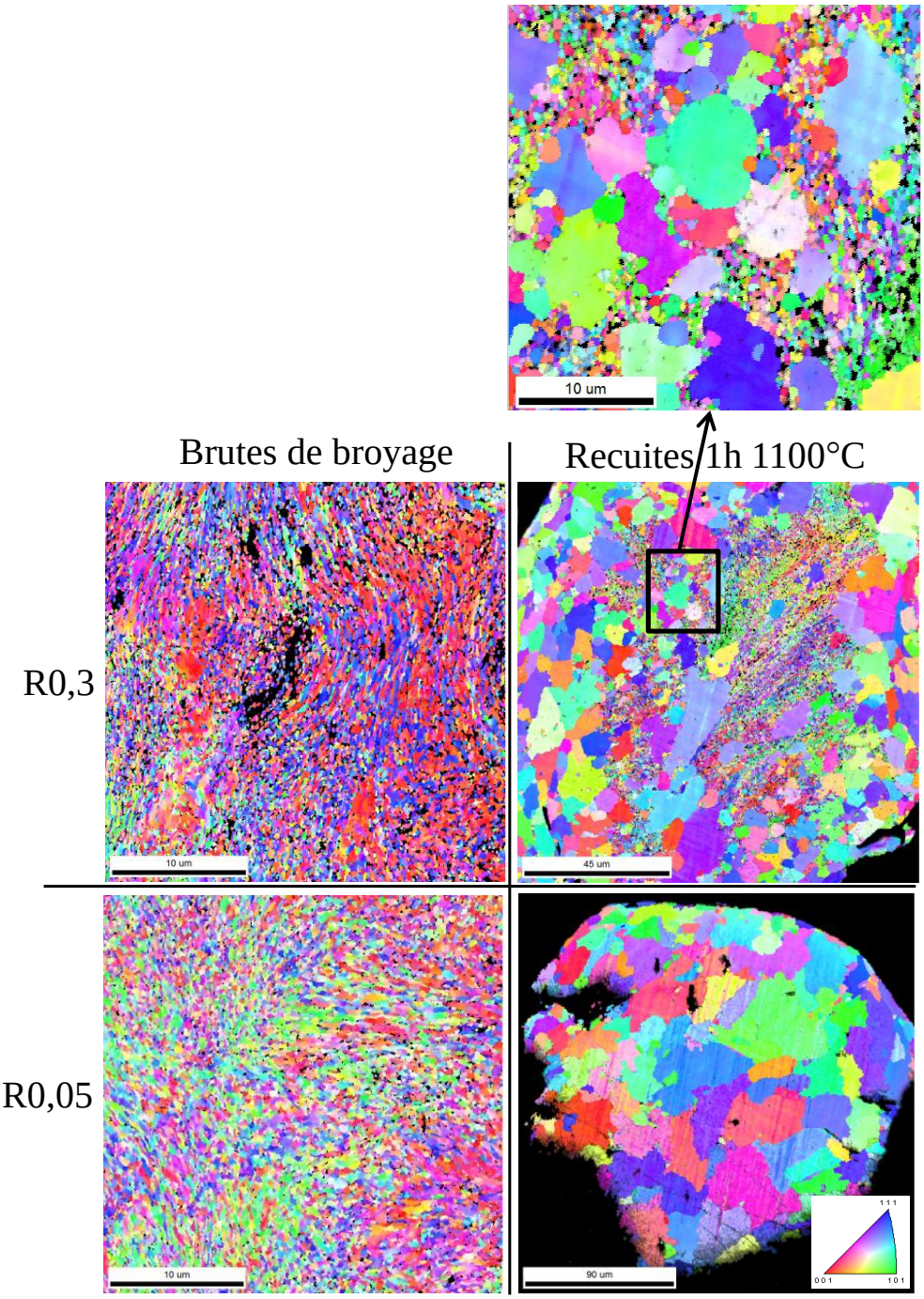
[5] Z. Oksiuta and N. Baluc, "Microstructure and Charpy impact properties of 12 – 14Cr oxide dispersion-strengthened ferritic steels," *J. Nucl. Mater.*, vol. 374, pp. 178–184, 2008.

[6] J. Ribis, "Structural and chemical matrix evolution following neutron irradiation in a MA957 oxide dispersion strengthened material," *J. Nucl. Mater.*, vol. 434, pp. 178–188, 2013.

[7] M. Dadé, J. Malaplate, J. Garnier, F. De Geuser, N. Lochet, and A. Deschamps, "Influence of consolidation methods on the recrystallization kinetics of a Fe-14Cr based ODS steel," *J. Nucl. Mater.*, vol. 472, pp. 143–152, 2016.

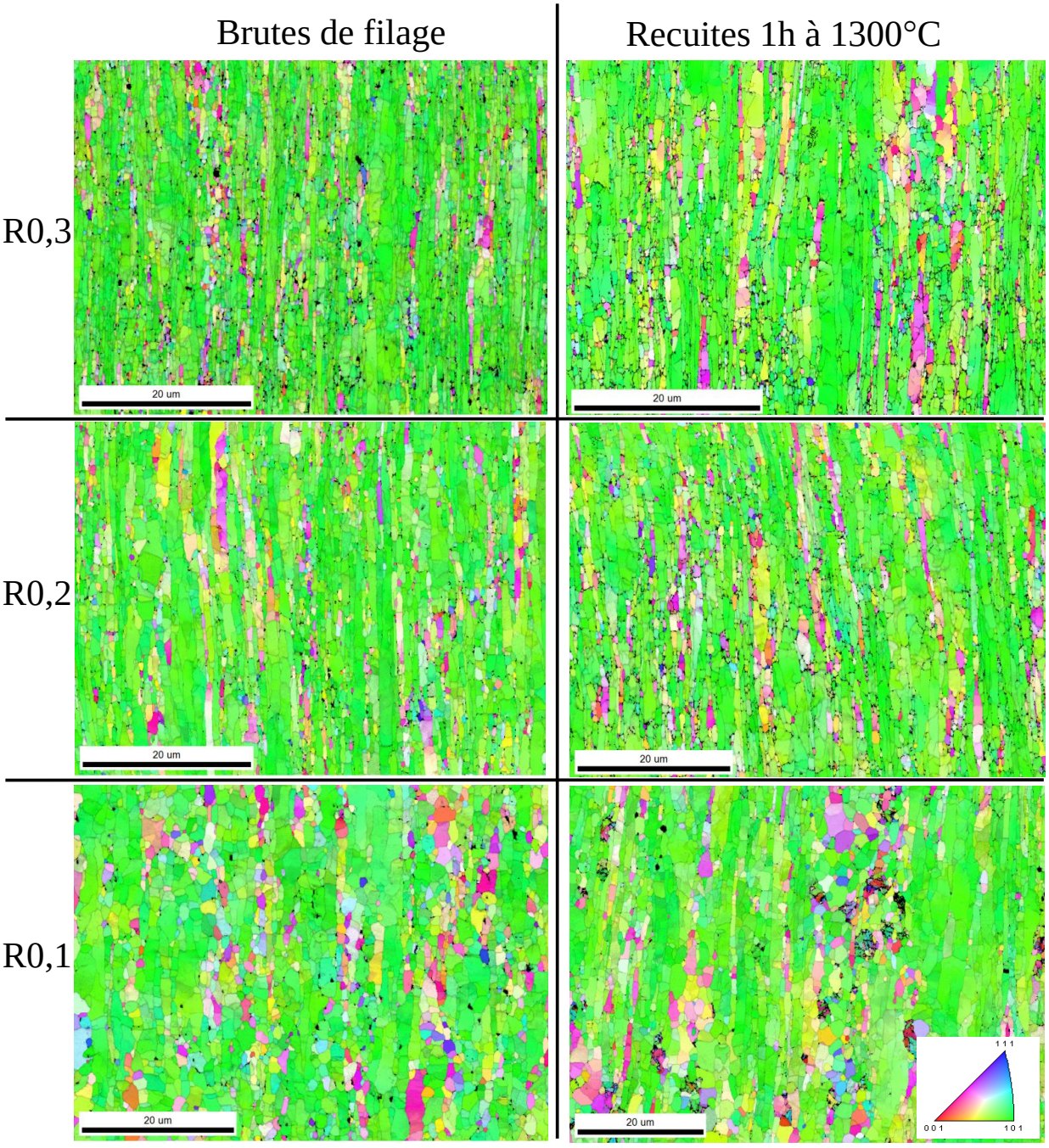
Annexe A : Compléments sur les microstructures et les textures

1. Cartographies IPF de poudres brutes de broyage et recuites 1h à 1100°C



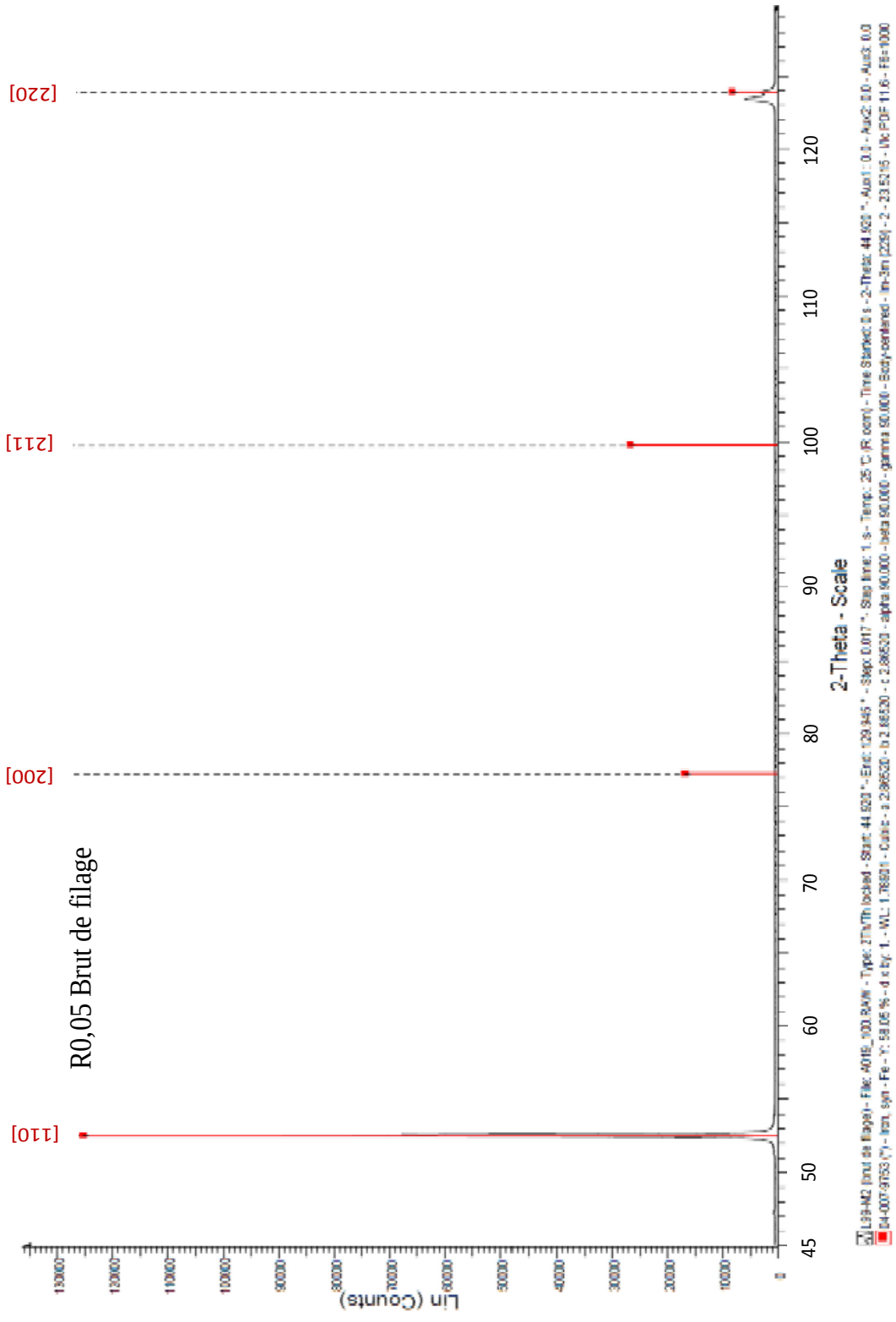
Cette annexe montre la population bimodale de grains obtenue après recuit sur les poudres broyées. La nuance R0,05 montre des grains recristallisés plus gros et moins de zones déformées à petits grains, probablement en lien avec le taux de renforts plus faible dans cette nuance.

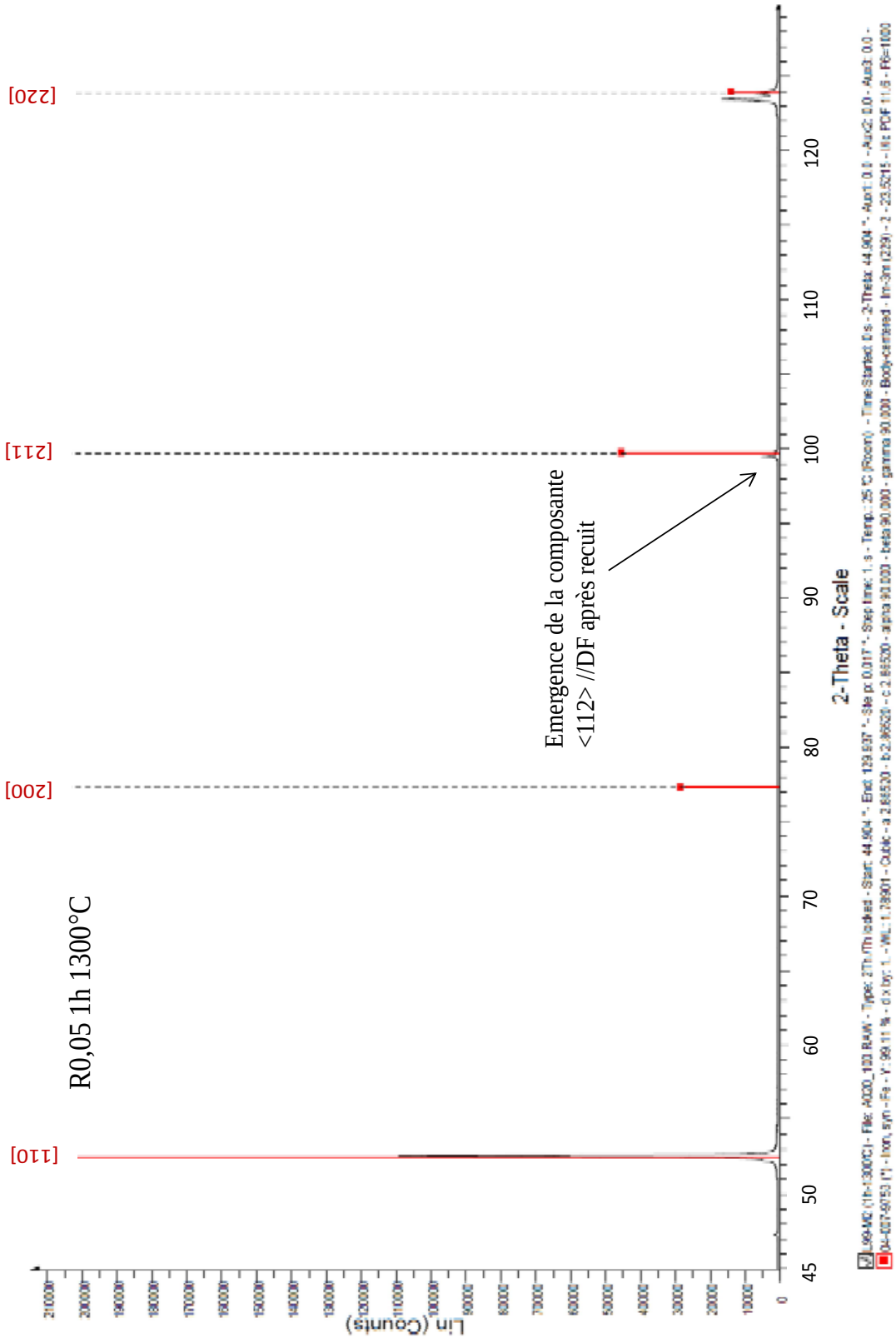
2. Cartographies IPF des nuances R0,3, R0,2 et R0,1 brutes de filage et après recuit 1h à 1300°C



L'annexe A.2 montre que le recuit d'1h à 1300°C sur les nuances R0,1, R0,2 et R0,3 n'engendre pas de modification des microstructures.

3. Mesure par DRX dans la nuance R0,05 avant et après recuit 1h à 1300°C




[220]
[211]
[200]
[110]
R0,05 1h 1300°C
Emergence de la composante
<112> //DF après recuit
2-Theta - Scale
Lin (Counts)

Raie (hkl)	Position 2θ (°)	Largeur à mi-hauteur (°)	Fraction de lorentzienne η (u.a)	$\beta_{mes.}$ (rad)	$\beta_{ins.}$ (rad)	$\beta_{mat.}$ (rad)
(110)	52,397	0,078	0,656	0,00170	0,00061	0,00109
(220)	123,465	0,238	0,798	0,00678	0,00279	0,00399

Tableau 1 : Echantillon L99-M2 brut de filage

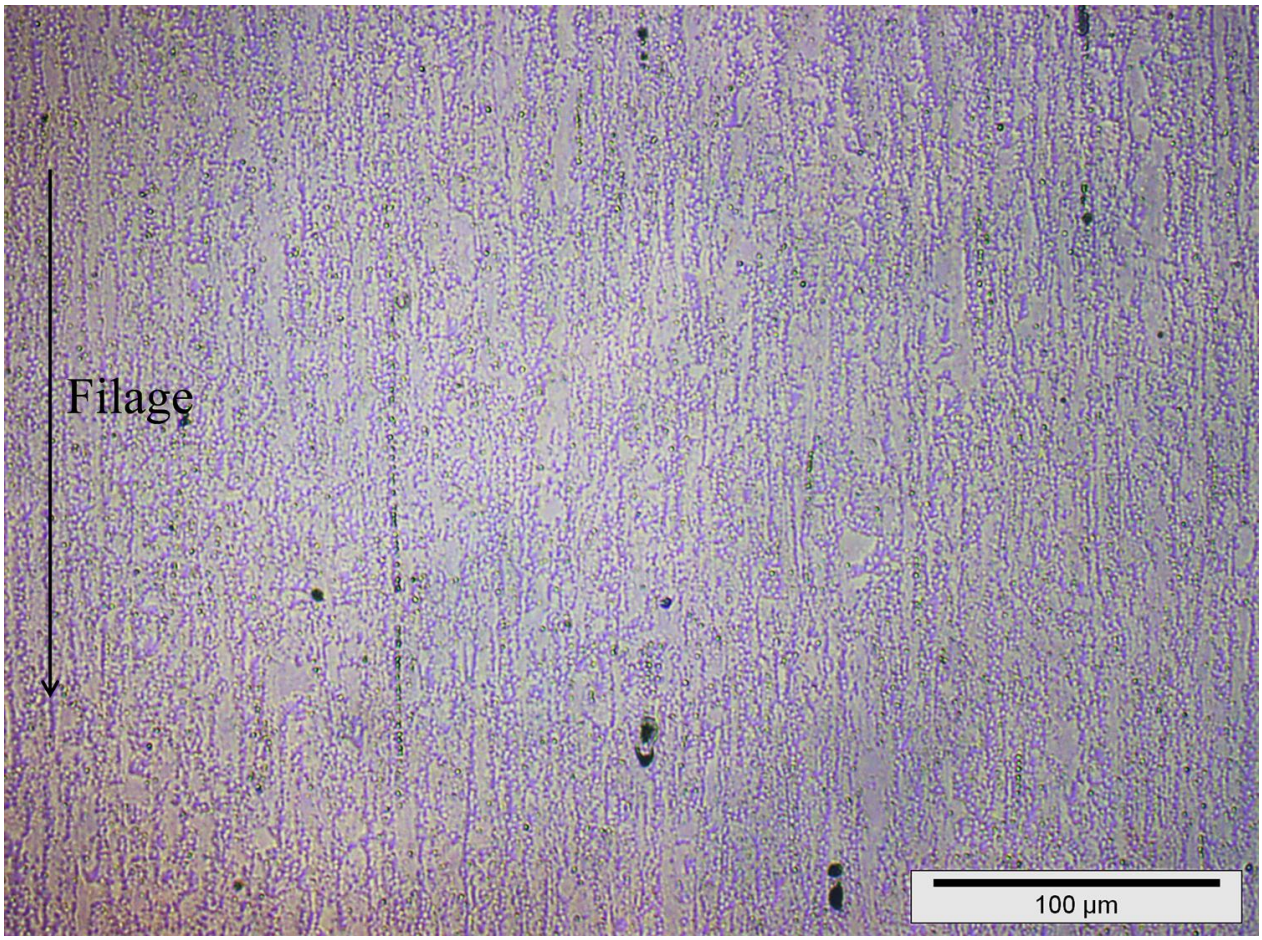
Raie (hkl)	Position 2θ (°)	Largeur à mi-hauteur (°)	Fraction de lorentzienne η (u.a)	$\beta_{mes.}$ (rad)	$\beta_{ins.}$ (rad)	$\beta_{mat.}$ (rad)
(110)	52,398	0,051	0,744	0,00111	0,00061	0,00050
(211)	99,474	0,070	0,921	0,00181	0,00163	0,00018
(220)	123,499	0,129	0,897	0,00367	0,00279	0,00087

Tableau 2 : Echantillon L99-M2 recuit 1h à 1300°C

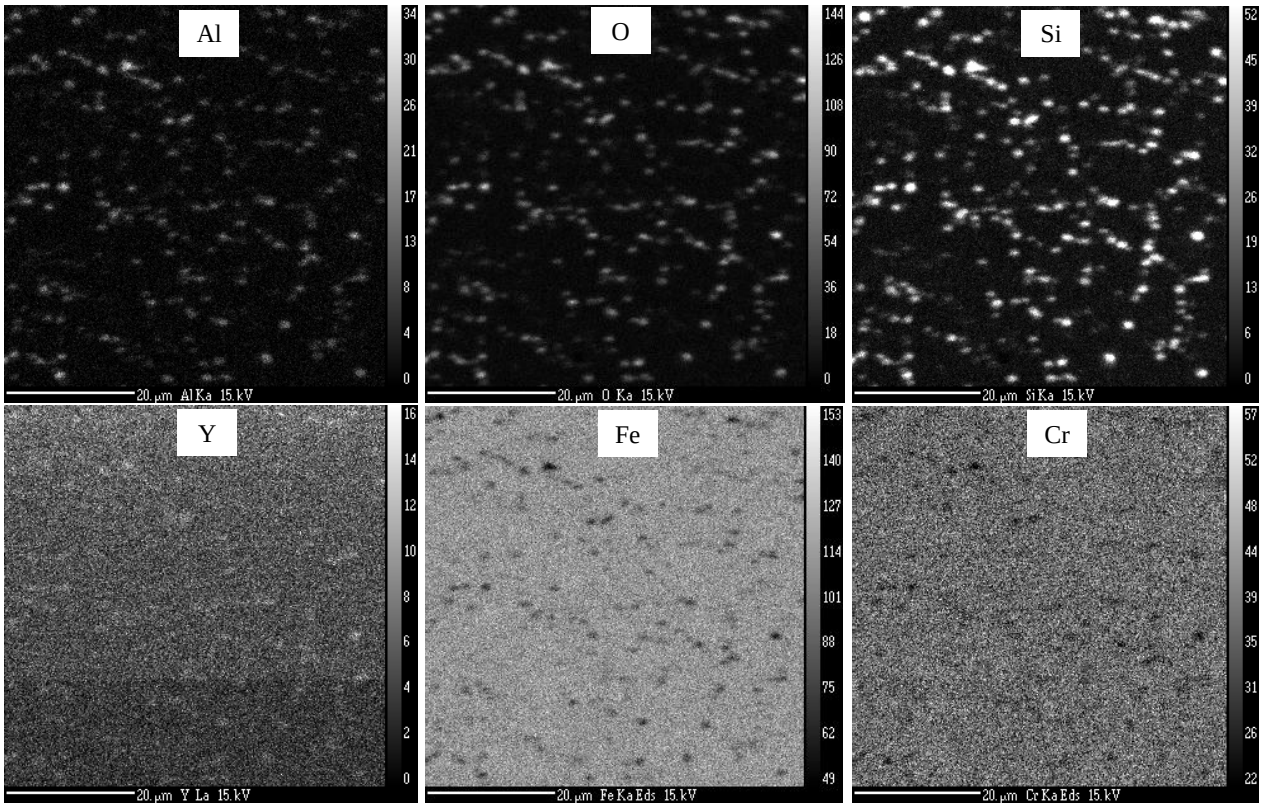
La caractérisation pas diffractions des rayons X de la nuance R0,05 avant et après recuit à 1300°C montre l'émergence de la composante de texture <112>//DF (grains roses en EBSD) suite au recuit en plus de la fibre α qui reste très marquée.

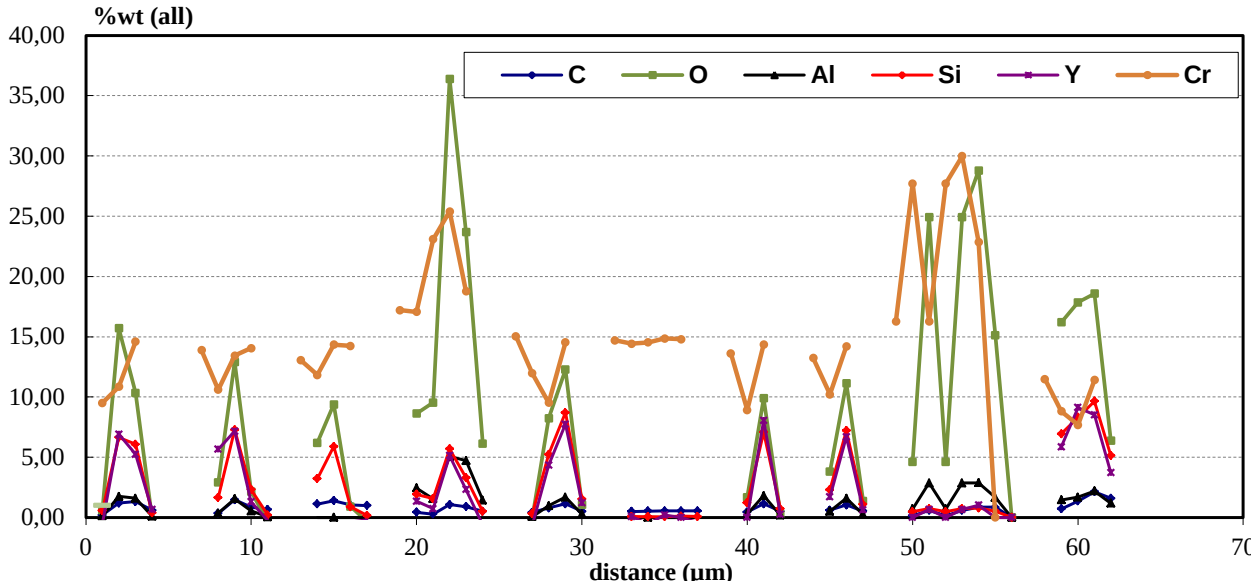
4. Micrographie optique de la nuance STi recuite 10h à 1150°C

L'annexe A.4 montre que la nuance STi présente toujours une microstructure à grains fins et étirés après un recuit de 10h à 1150°C.



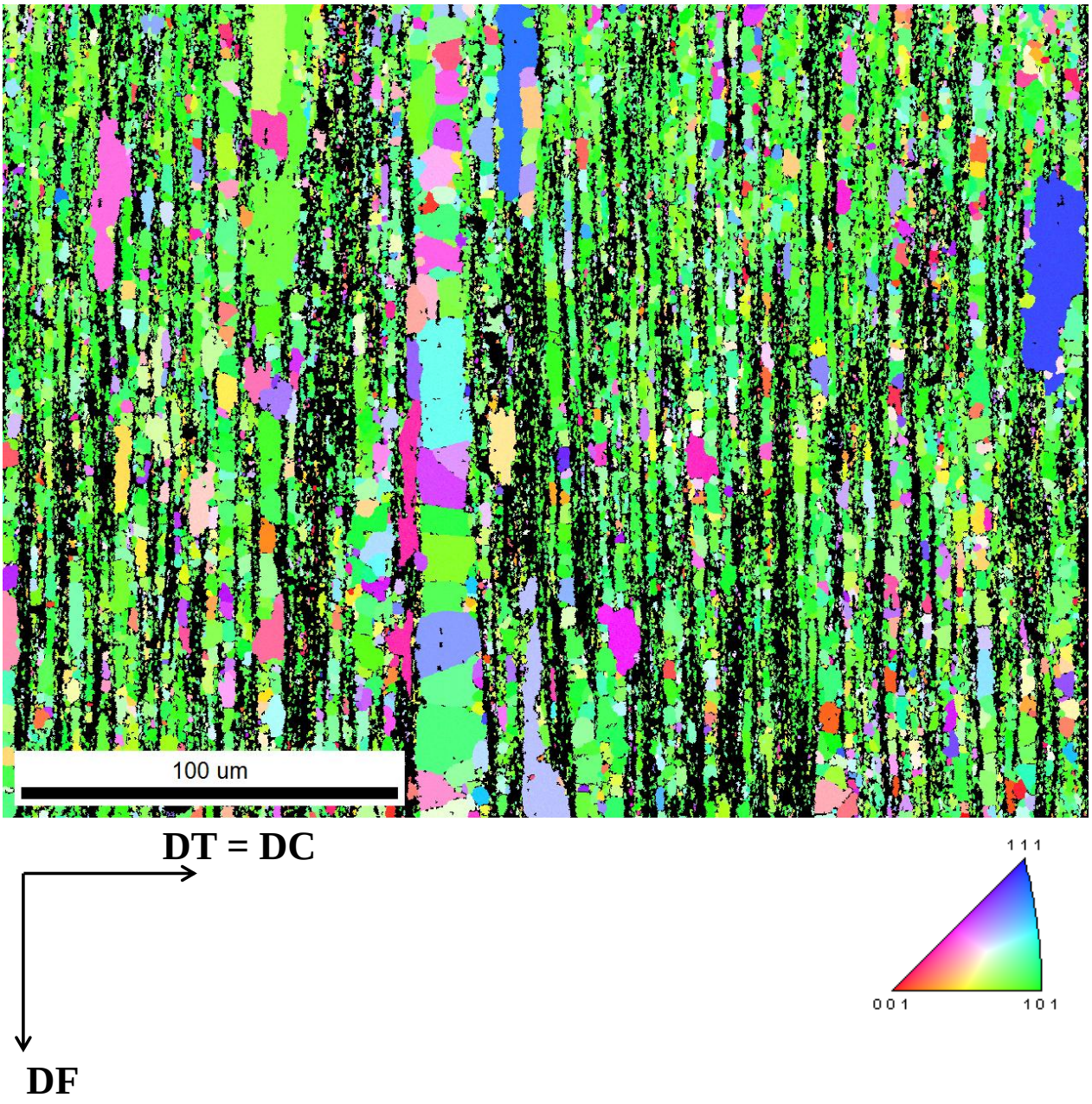
5. Analyse par microsonde de Castaing de la nuance STi recuite 6 min à 1300°C





Les analyses par microsonde montrent que les grosses particules présentent des enrichissements en O (>10%), Si (5-10%), Y (5-10%) et Al (1-2%). Ces enrichissements sont corrélés à des appauvrissements en Fe et en Cr.

6. Cartographie IPF de la nuance STi déformée par CU//DT (ε = 0,7) et recuite 1h à 1150°C



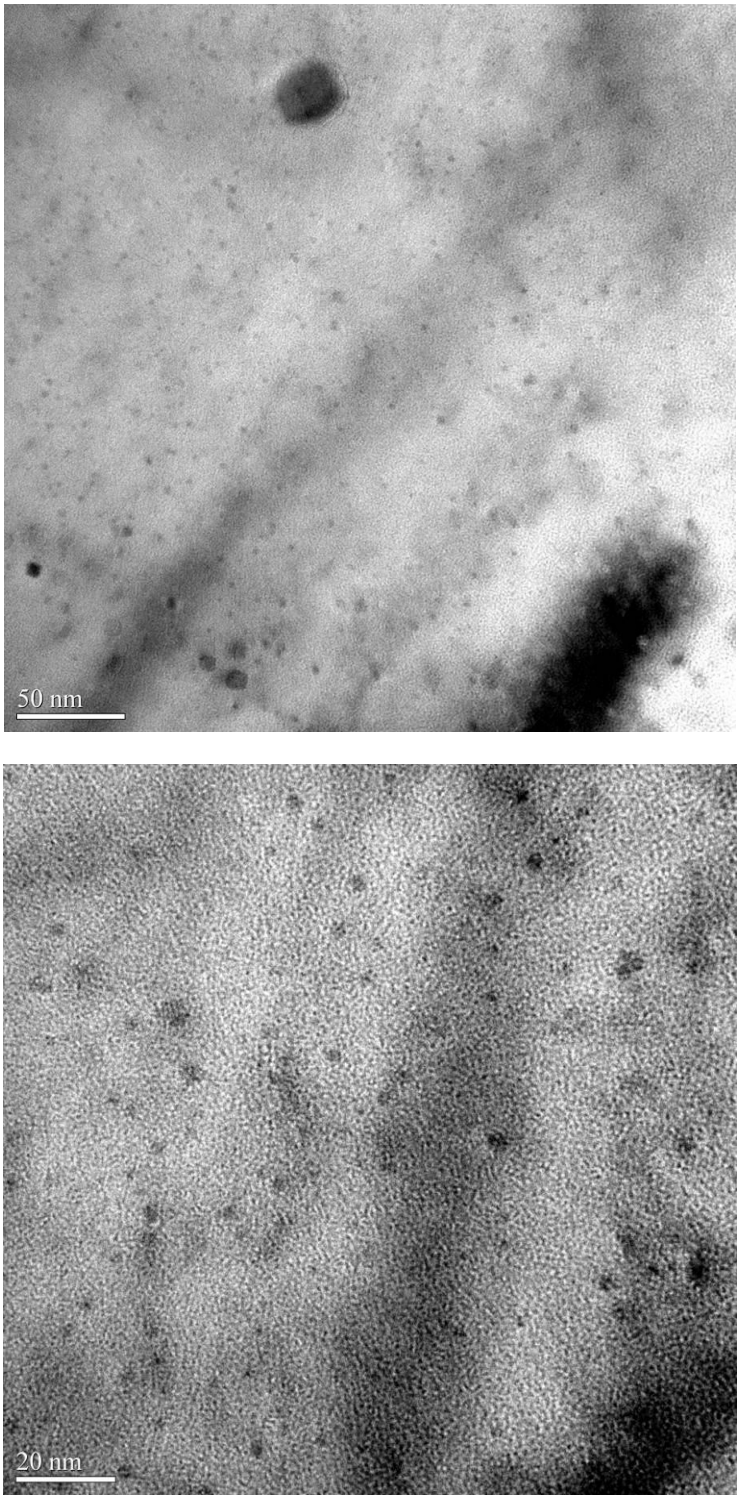
L'annexe A.6 montre que la déformation par CU//DT de ε = 0,7 ne permet pas d'obtenir une recristallisation complète et homogène de la nuance STi après un recuit d'1h à 1150°C.

Annexe B : Compléments sur la précipitation dans les états compressés à froid et recuits

1. Caractéristiques des distributions de nano-particules avant et après compression à froid et recuits

Etat métallurgique	r_1 (nm)	r_2 (nm)	r_m (nm)	F_v totale (%)	Densité totale (m^{-3})
R0,3 Brut filage	1,4 ± 0,4	4,6 ± 1,5	1,4	1,8	$1,2.10^{24}$
R0,3 1h 1150°C	1,4 ± 0,4	4,6 ± 1,5	1,4	1,8	$1,1.10^{24}$
R0,3 Comp0,7 + 1h 1150°C	1,4 ± 0,5	4,4 ± 1,5	1,4	1,5	$8,7.10^{23}$
R0,3 1h 1300°C	1,8 ± 0,7	4,8 ± 1,7	1,9	1,7	$3,9.10^{23}$
R0,3 Comp0,7+ 1h 1300°C	2,0 ± 0,7	4,6 ± 1,8	2,0	1,2	$2,5.10^{23}$
R0,2 Brut filage	1,4 ± 0,4	4,6 ± 1,5	1,4	1,2	$7,9.10^{23}$
R0,2 1h 1150°C	1,4 ± 0,5	4,6 ± 1,5	1,4	1,2	$7,1.10^{23}$
R0,2 Comp0,7+ 1h 1150°C	1,4 ± 0,5	4,4 ± 1,4	1,4	1,1	$6,5.10^{23}$
R0,2 1h 1300°C	1,8 ± 0,7	4,6 ± 1,5	1,9	1,2	$2,9.10^{23}$
R0,2 Comp0,7+1h 1300°C	2,2 ± 0,7	4,8 ± 1,6	2,3	0,7	$9,7.10^{22}$
R0,1 Brut filage	1,4 ± 0,4	4,6 ± 1,5	1,4	0,9	$4,9.10^{23}$
R0,1 1h 1150°C	1,6 ± 0,5	4,6 ± 1,5	1,7	0,6	$2,1.10^{23}$
R0,1 Comp0,7+1h 1150°C	1,6 ± 0,6	5,2 ± 1,8	1,6	0,7	$2,1.10^{23}$
R0,1 1h 1300°C	2,4 ± 0,8	4,6 ± 1,5	2,5	0,5	$5,2.10^{22}$
R0,1 Comp0,7+1h 1300°C	2,6 ± 0,8	5,2 ± 1,7	2,7	0,5	$4,5.10^{22}$
R0,05 Brut filage	1,6 ± 0,5	5 ± 1,6	1,7	0,5	$1,8.10^{23}$
R0,05 1h 1150°C	2 ± 0,7	5 ± 1,6	2,1	0,4	$5,7.10^{22}$
R0,05 Comp0,7+ 1h 1150°C	2,4 ± 0,8	5,4 ± 1,8	2,5	0,4	$3,7.10^{22}$
STi Brut filage	2,6 ± 0,9	5,4 ± 1,8	2,9	0,5	$2,9.10^{22}$
STi 1h 1150°C	2,6 ± 0,8	5,2 ± 1,7	2,9	0,5	$2,5.10^{22}$
STi Comp0,7+ 1h 1150°C	2,4 ± 0,8	5,2 ± 1,8	3,0	0,6	$2,6.10^{22}$

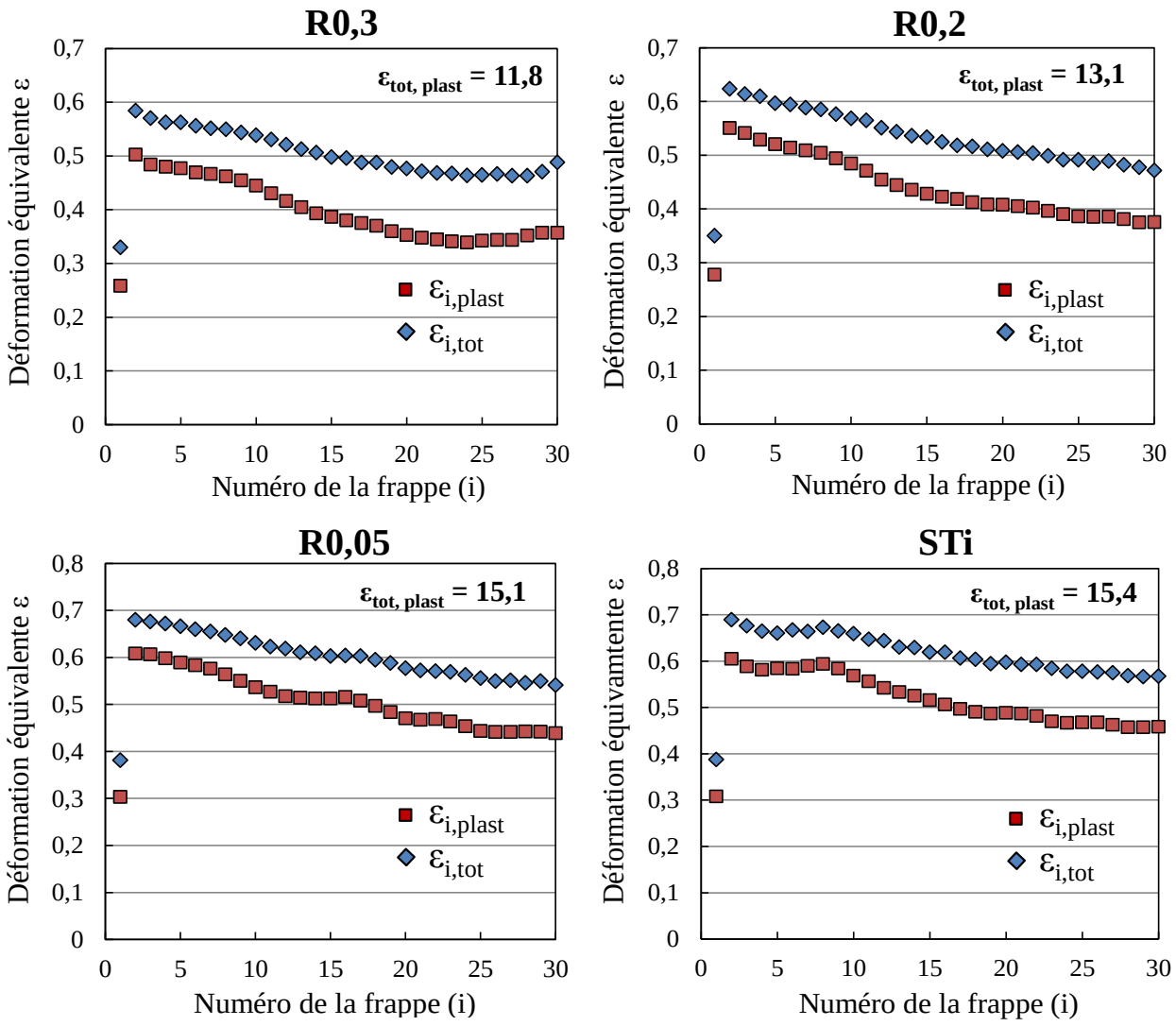
2. Clichés MET des nanoparticules après recristallisation



Les clichés MET sur la nuance R0,2 recristallisée à 1150°C montrent que la distribution spatiale des nanoparticules à l'intérieur d'un grain recristallisé apparaît comme étant homogène.

Annexe C : Nuances déformées par compression multi-axiale alternée (CMAA)

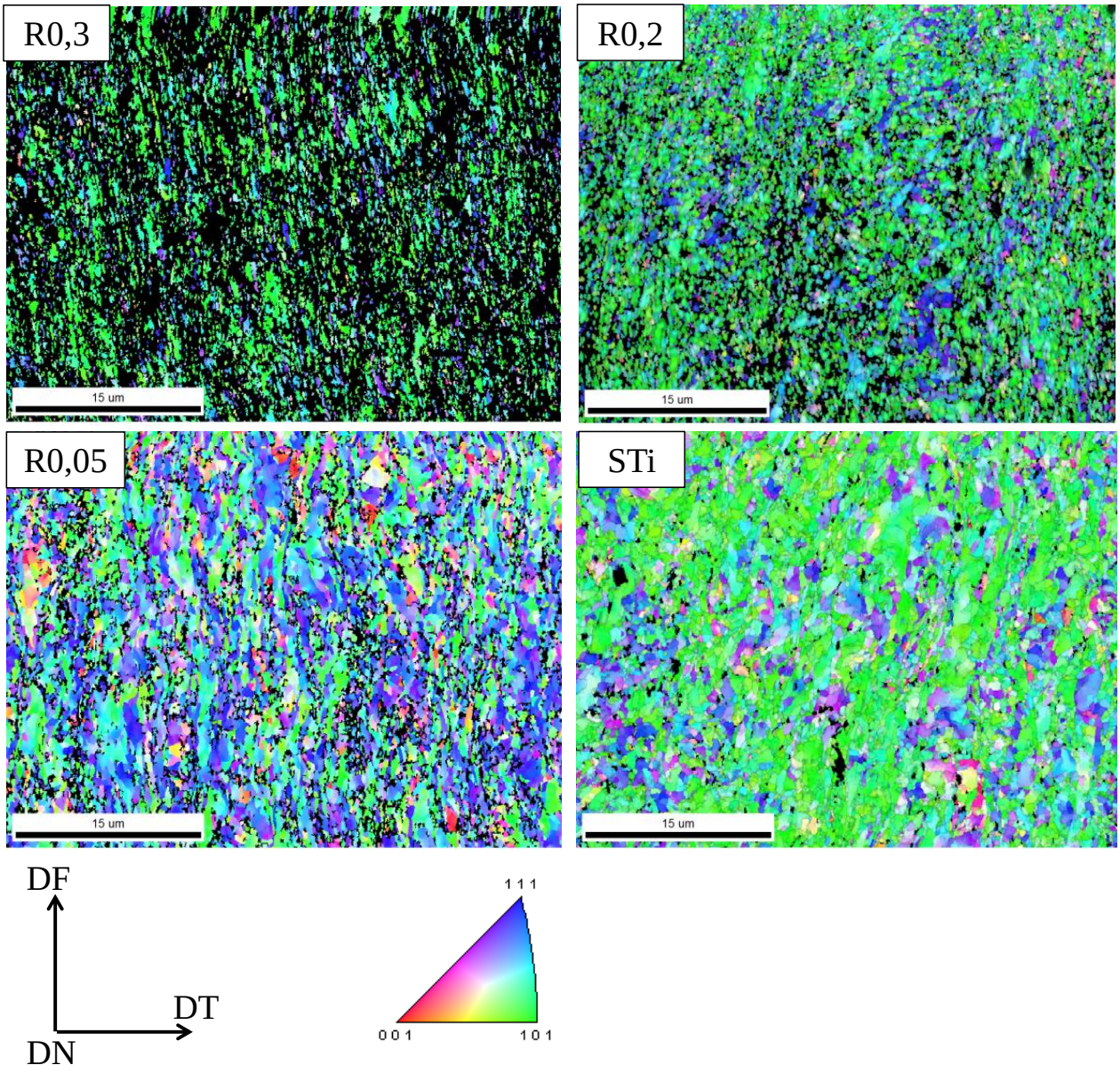
1. Courbes de la déformation plastique appliquée par frappe :



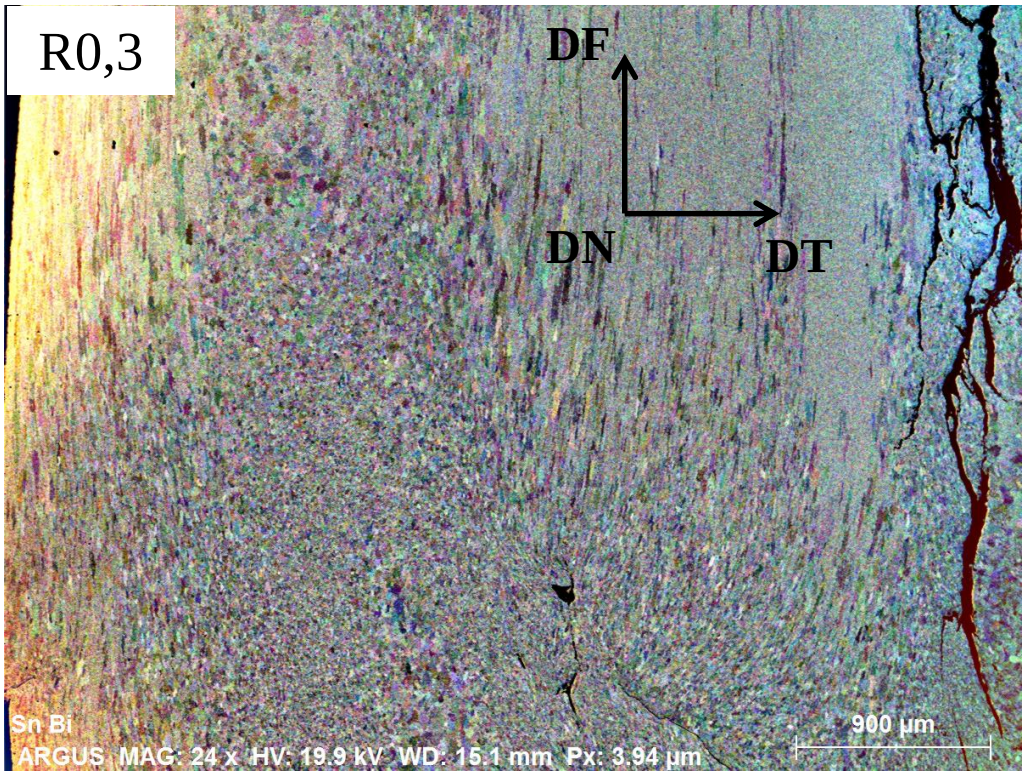
Cette annexe présente la déformation plastique équivalente et la déformation totale (élastique + plastique) à chaque frappe i lors des essais de compression multi-axiale alternée sur les 4 nuances R0,3, R0,2,R0,05 et STi. Il est intéressant de noter une augmentation de la déformation plastique totale avec la diminution du taux de renforts. En effet, les nuances moins renforcées présentent une limite d'élasticité plus faible et subissent donc une déformation plastique plus importante à chaque compression.

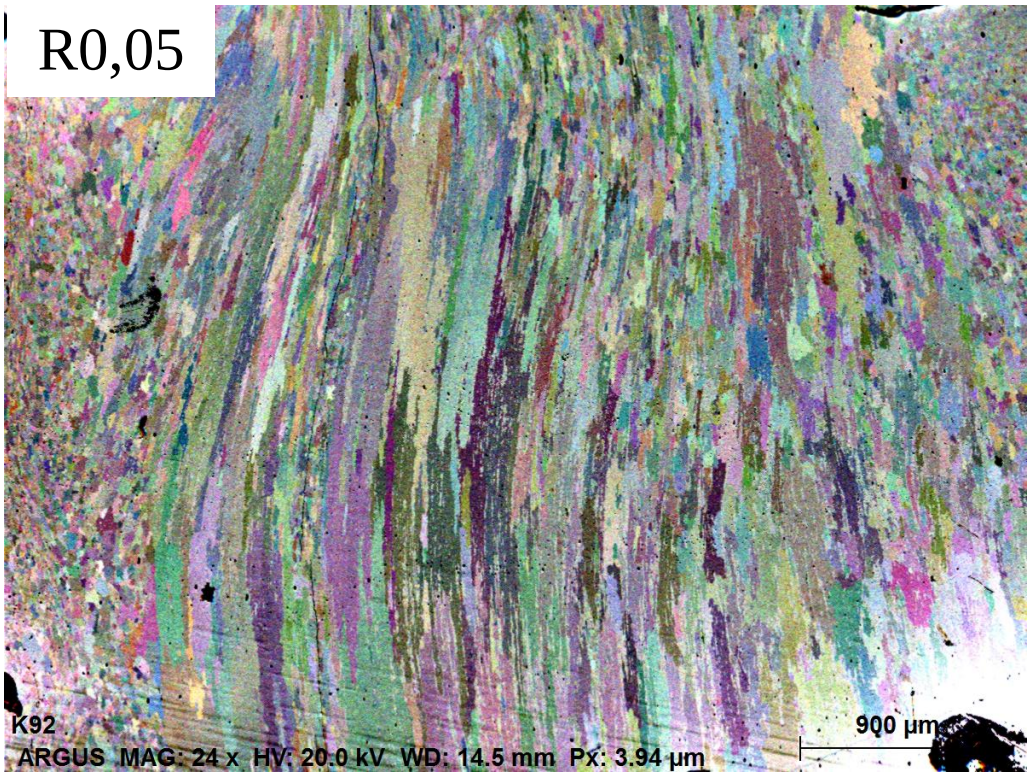
2. Cartographies IPF des nuances après déformation par CMAA

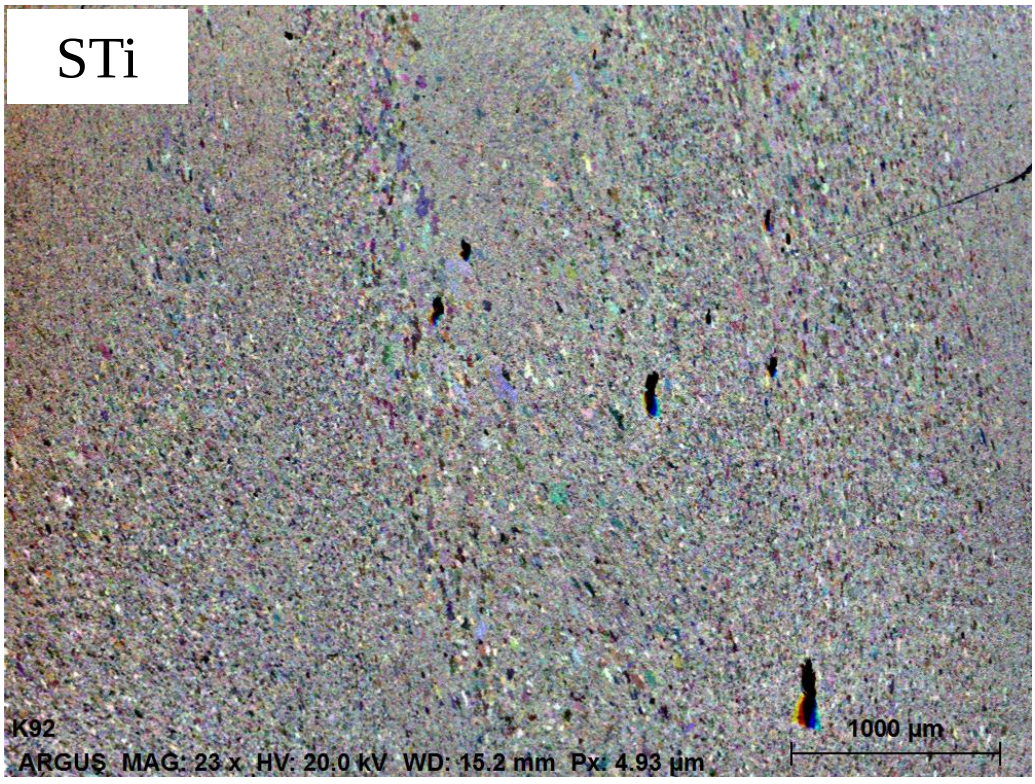
L'annexe C.2 montre les microstructures obtenues après déformation par compression multi-axiale alternée. Les grains orientés <111>//DC sont visibles dans toutes les nuances et la morphologie allongée des grains issue du filage a presque disparue. La texture varie d'une nuance à l'autre en partie du fait que les cartographies n'ont pas été faites exactement au même endroit dans chaque échantillon.



3. Image FSD des nuances déformées par CMAA et recuites 1h à 1150°C

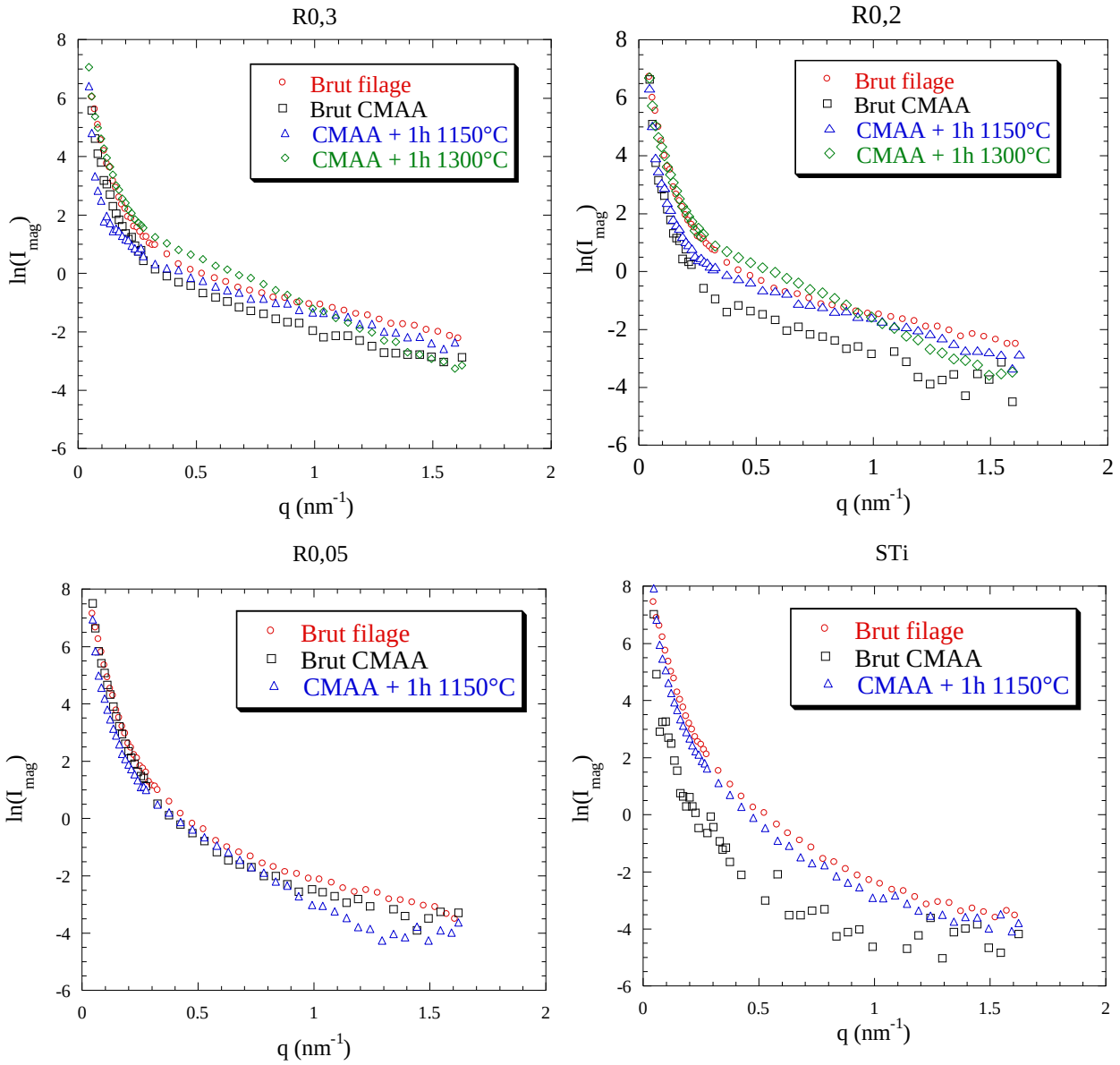






L'annexe C.3 montre les fortes hétérogénéités microstructurales après recuit à 1150°C dans les nuances hyperdéformées. Entre autre, il apparaît que les nuances moins renforcées ne recristallisent pas plus facilement et/ou de manière plus homogène.

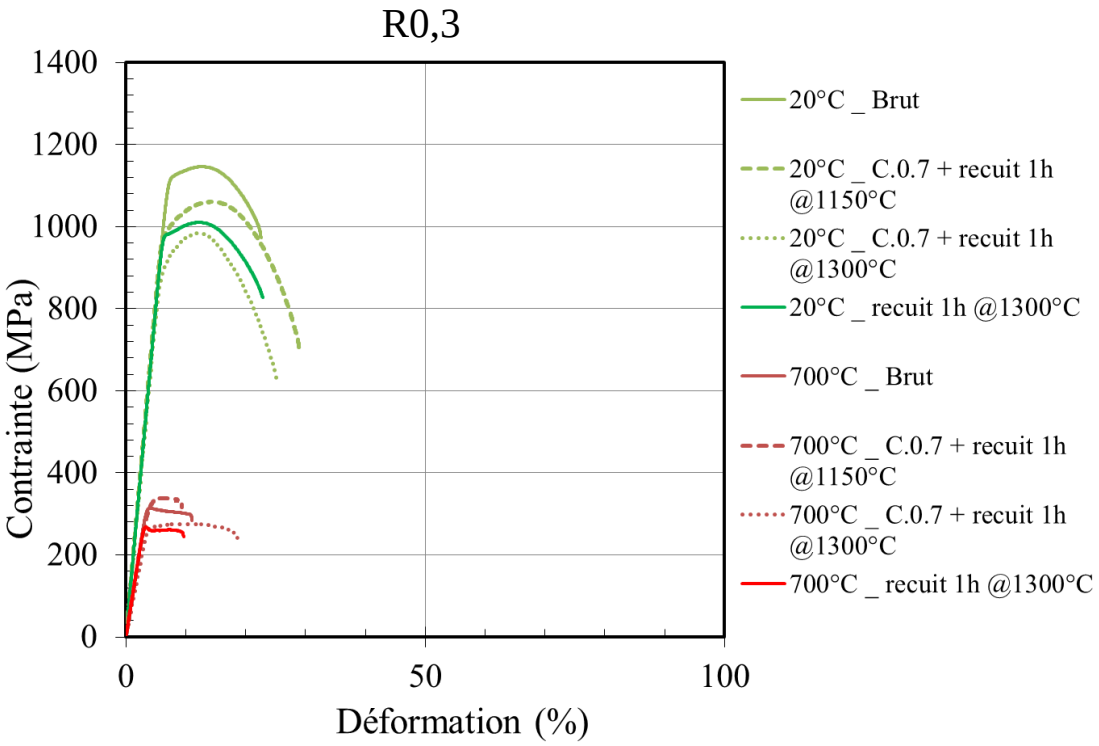
4. Courbes de DNPA des nuances déformées par CMAA :

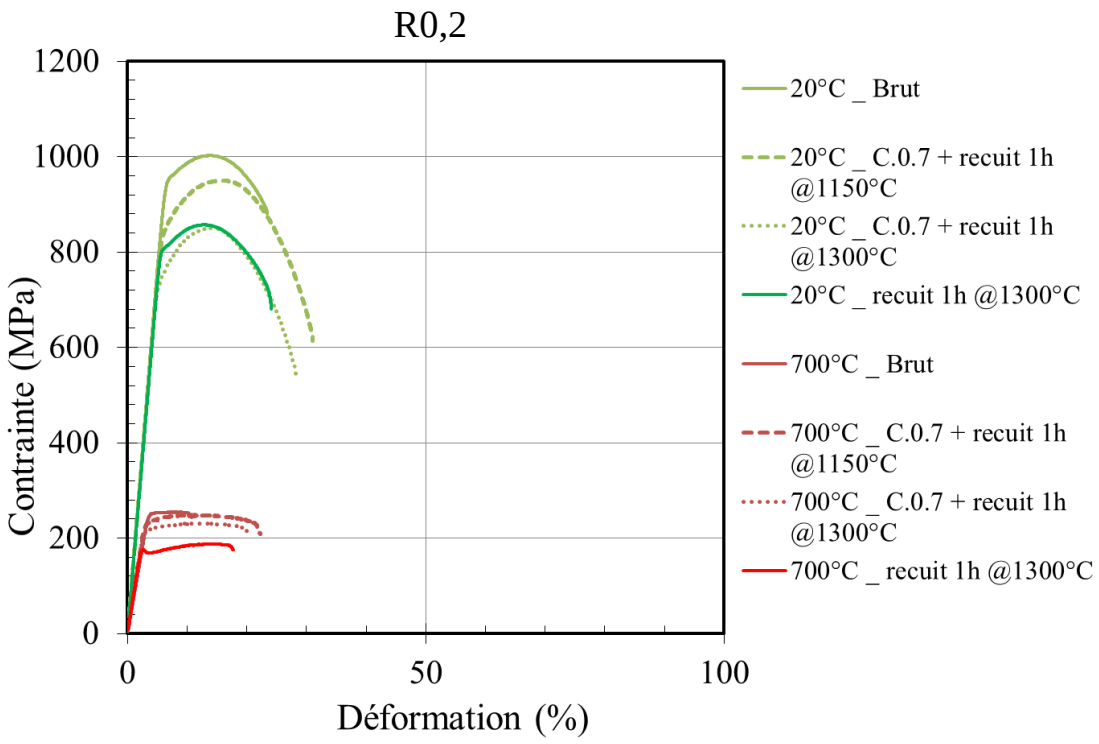


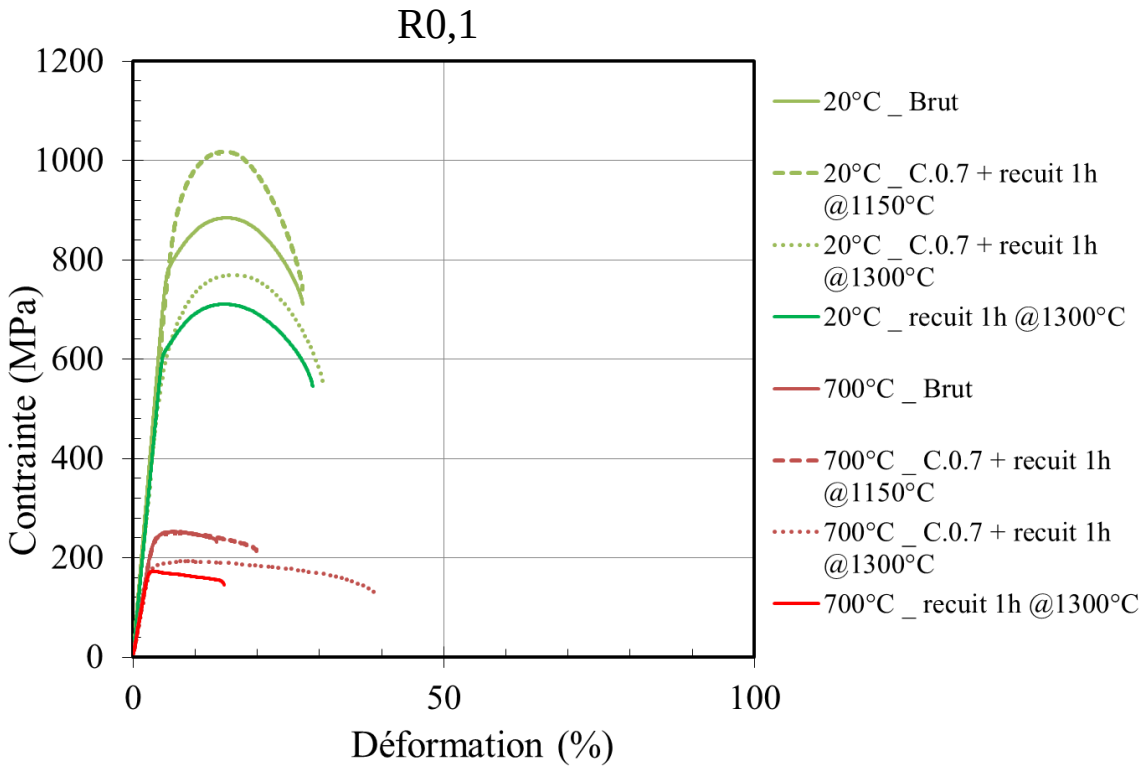
Les courbes de DNPA, représentant I_{mag} = f(q) montrent une chute de l'intensité magnétique diffusée après l'hyperdéformation par CMAA par rapport à l'état brut de filage. Cette chute peut être associée à la dissolution partielle des nano-oxydes. Suite aux recuits à 1150°C, l'intensité diffusée ré-augmente et le signal est proche de celui de l'état initial, du fait de la re-précipitation des nano-phases. Dans la nuance R0,05, ce phénomène est peu visible et probablement en lien avec la faible concentration initiale en Y et Ti.

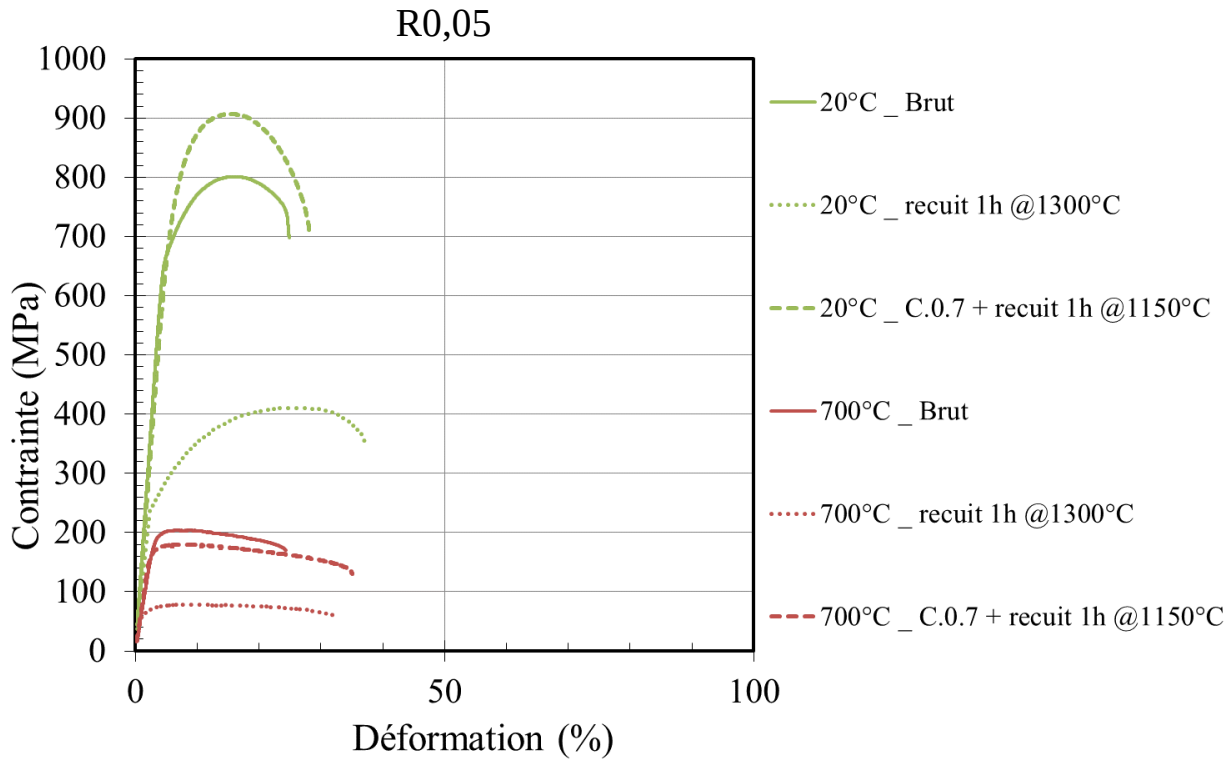
Annexe D : Essais de traction et durcissement structural

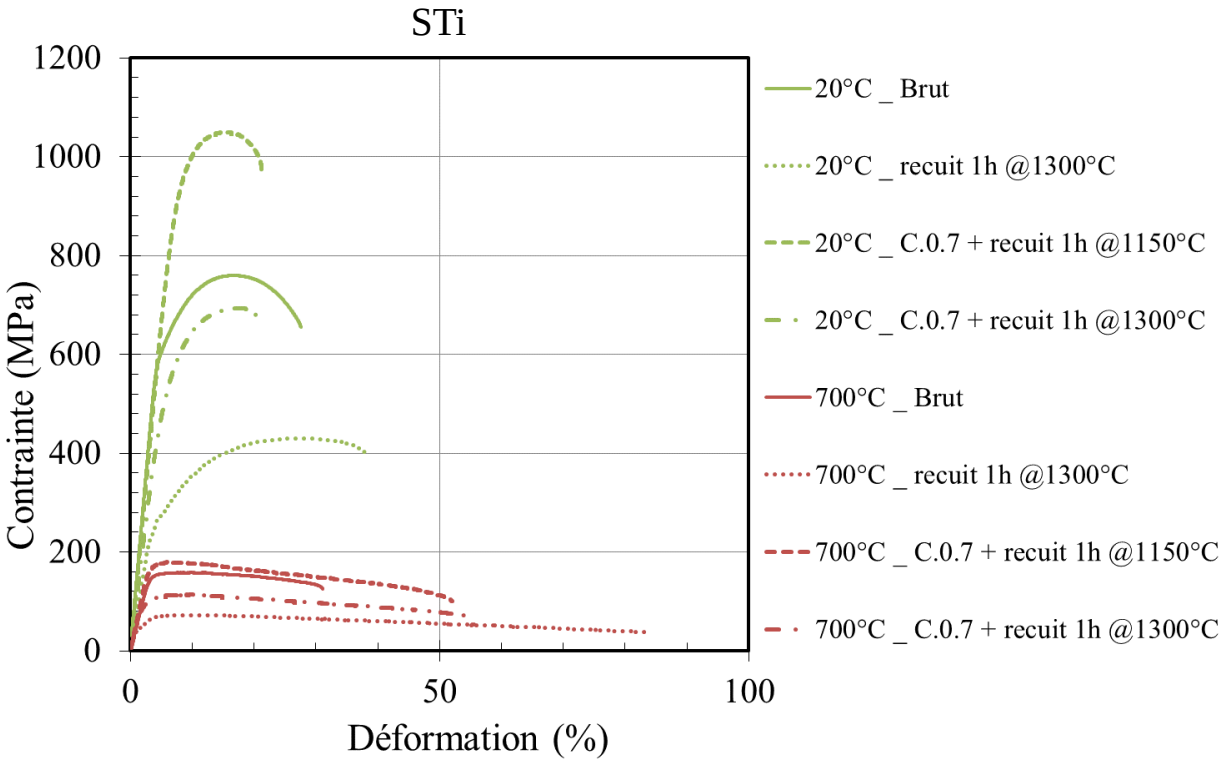
1. Courbes de traction à 20°C et 700°C

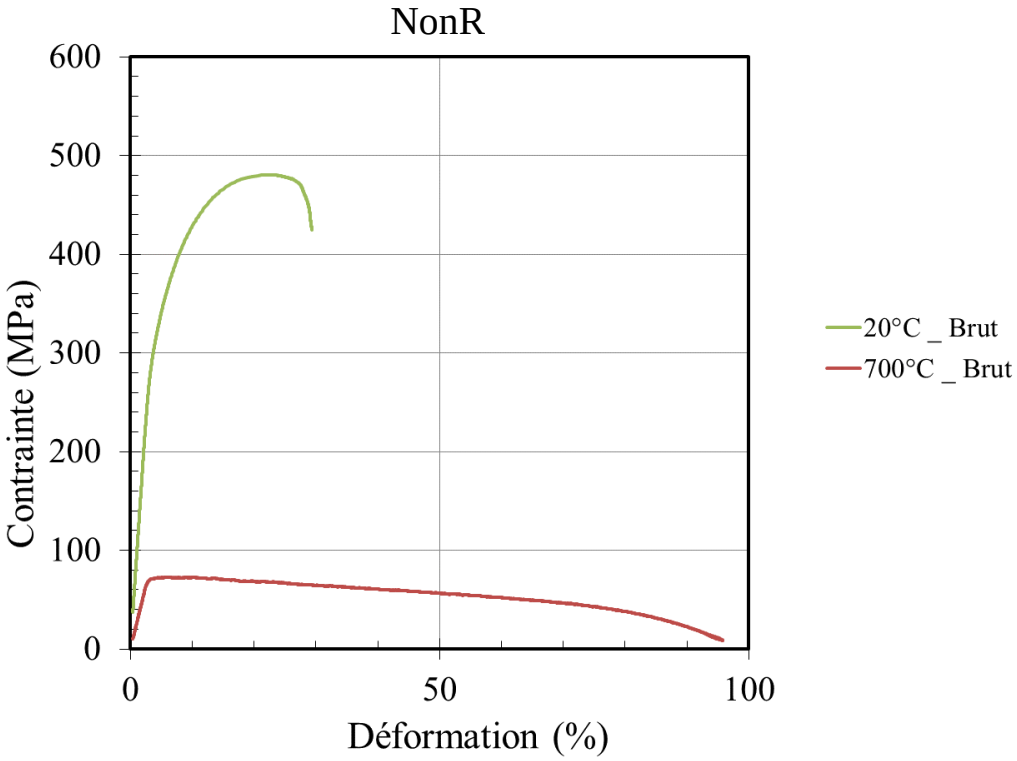





R0,1
Contrainte (MPa)
Déformation (%)
0
200
400
600
800
1000
1200
0
50
100
20°C _ Brut
20°C _ C.0.7 + recuit 1h @1150°C
20°C _ C.0.7 + recuit 1h @1300°C
20°C _ recuit 1h @1300°C
700°C _ Brut
700°C _ C.0.7 + recuit 1h @1150°C
700°C _ C.0.7 + recuit 1h @1300°C
700°C _ recuit 1h @1300°C


R0,05
Contrainte (MPa)
Déformation (%)
0
100
200
300
400
500
600
700
800
900
1000
0
50
100
20°C _ Brut
20°C _ recuit 1h @1300°C
20°C _ C.0.7 + recuit 1h @1150°C
700°C _ Brut
700°C _ recuit 1h @1300°C
700°C _ C.0.7 + recuit 1h @1150°C


STi
1200
1000
800
600
400
200
0
Contrainte (MPa)
0
50
100
Déformation (%)
20°C _ Brut
20°C _ recuit 1h @1300°C
20°C _ C.0.7 + recuit 1h @1150°C
20°C _ C.0.7 + recuit 1h @1300°C
700°C _ Brut
700°C _ recuit 1h @1300°C
700°C _ C.0.7 + recuit 1h @1150°C
700°C _ C.0.7 + recuit 1h @1300°C


NonR
600
500
400
300
200
100
0
Contrainte (MPa)
0
50
100
Déformation (%)
20°C _ Brut
700°C _ Brut

Essais à T°C ambiante					
N° essai	Etat	Rp0.2%	Rm (MPa)	A_r(%)	A_t(%)
L97M2-01	Brut	278	481	16.9	24.7
L98M2-01	Brut	570	760	11.4	22.9
L98M2-07	Recuit 1h @1300°C	226	430	21.6	32.7
L98M2-03	Comp. 0.7 + recuit 1h @1150°C	788	1050	7.5	14.0
L98M2-05	Comp. 0.7 + recuit 1h @1300°C	411	693	10.7	13.9
L99M2-01	Brut	642	801	10.6	20.2
L99M2-07	Recuit 1h @1300°C	241	411	21.9	33.9
L99M2-03	Comp. 0.7 + recuit 1h @1150°C	661	907	8.6	23.0

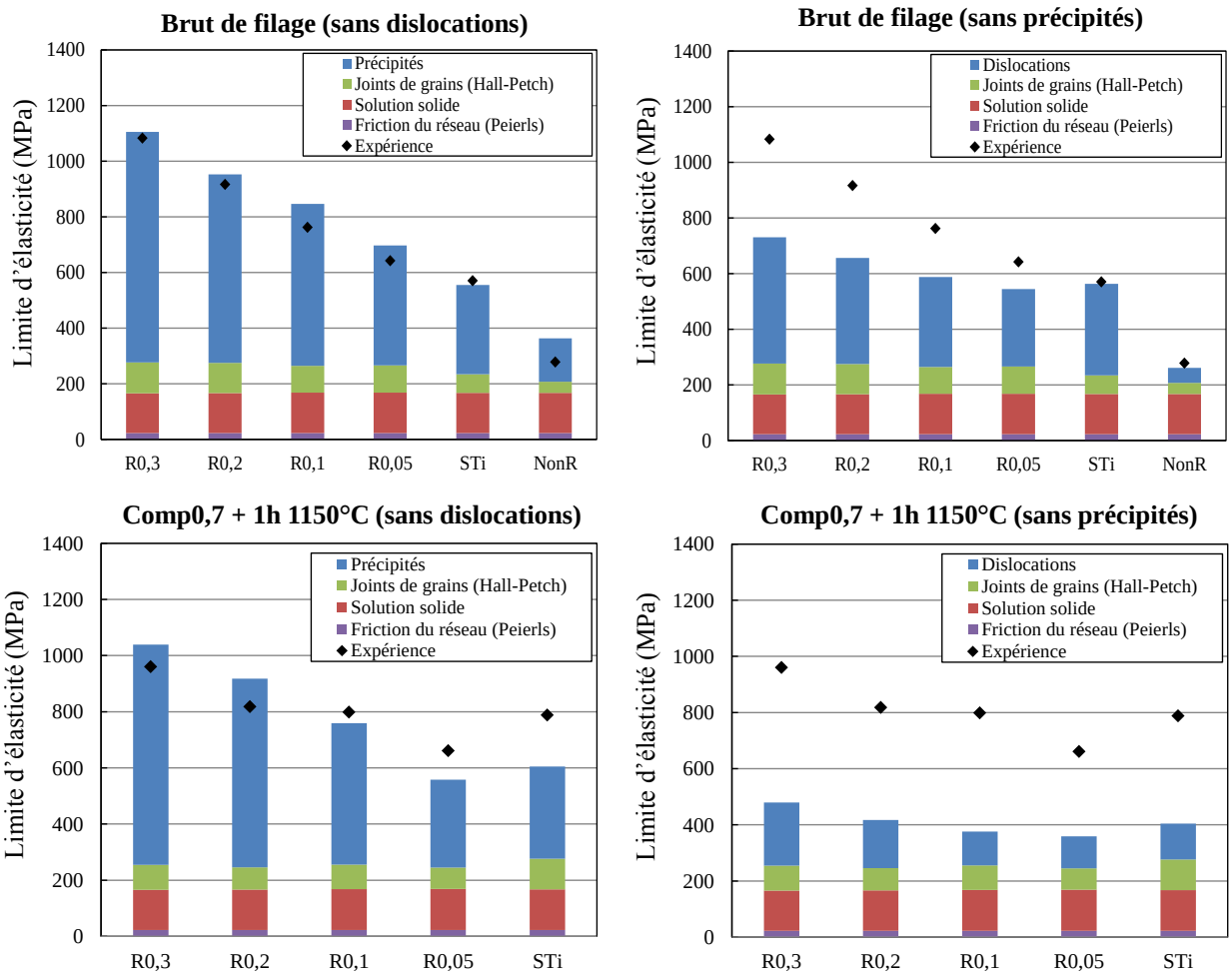
Essais à T°C ambiante					
N° essai	Etat	Rp0.2%	Rm (MPa)	A_r(%)	A_t(%)
N01M2-01	Brut	762	885	9.1	22.5
N01M2-03	Comp. 0.7 + recuit 1h @1150°C	799	1018	7.5	22.0
N01M2-05	Comp. 0.7 + recuit 1h @1300°C	544	770	10.0	26.3
N01M2-07	**recuit 1h @1300°C**	**608**	**711**	**9.2**	**24.7**
N02M2-01	Brut	916	1002	7.2	17.7
N02M2-03	Comp. 0.7 + recuit 1h @1150°C	818	950	9.4	26.9
N02M2-05	Comp. 0.7 + recuit 1h @1300°C	707	851	8.4	24.8
N02M2-07	**recuit 1h @1300°C**	**795**	**857**	**7.0**	**19.5**
N03M2-01	Brut	1083	1146	5.6	16.5
N03M2-07	Comp. 0.7 + recuit 1h @1150°C	960	1060	8.0	24.7
N03M2-05	Comp. 0.7 + recuit 1h @1300°C	863	984	5.8	21.2
N03M2-09	**recuit 1h @1300°C**	**964**	**1010**	**5.9**	**17.7**

Essais à 700°C					
N° essai	Etat	Rp0.2%	Rm (MPa)	A_r(%)	A_t(%)
L97M2-02	Brut	69	73	3.0	95.4
L98M2-02	Brut	137	158	9.0	28.6
L98M2-08	Recuit 1h @1300°C	37	73	8.9	83.6
L98M2-04	Comp. 0.7 + recuit 1h @1150°C	154	179	2.8	50.3
L98M2-06	Comp. 0.7 + recuit 1h @1300°C	82	114	8.2	54.3
L99M2-02	Brut	176	204	5.4	21.6
L99M2-08	Recuit 1h @1300°C	59	78	6.4	31.6
L99M2-04	Comp. 0.7 + recuit 1h @1150°C	158	180	5.2	33.1

Essais à 700°C					
N° essai	Etat	Rp0.2%	Rm (MPa)	A_r(%)	A_t(%)
N01M2-02	Brut	221	252	3.8	10.5
N01M2-04	Comp. 0.7 + recuit 1h @1150°C	222	252	3.8	17.4
N01M2-06	Comp. 0.7 + recuit 1h @1300°C	171	193	5.9	37.4
N01M2-08	**recuit 1h @1300°C**	**167**	**173**	**0.8**	**12.6**
N02M2-02	Brut	244	255	3.7	7.3
N02M2-04	Comp. 0.7 + recuit 1h @1150°C	224	249	8.2	19.7
N02M2-06	Comp. 0.7 + recuit 1h @1300°C	208	231	10.3	17.4
N02M2-08	**recuit 1h @1300°C**	**174**	**188**	**11.0**	**15.5**
N03M2-02	Brut	306	315	0.7	8.0
N03M2-04	Comp. 0.7 + recuit 1h @1150°C	287	338	2.5	5.9
N03M2-06	Comp. 0.7 + recuit 1h @1300°C	262	276	7.3	15.7
N03M2-08	**recuit 1h @1300°C**	**267**	**269**	**0.3**	**6.9**

2. Identification des contributions des dislocations et des précipités au durcissement structural

L'annexe D.2 permet de visualiser séparément les contributions des dislocations et des précipités dans les états bruts de filage et compressés puis recuits 1h à 1150°C.



Annexe E : Dépouillement des courbes brutes de DNPA

Les Figures E.1a et E.2a ci-dessous montrent les courbes de l'intensité diffusée perpendiculairement (rouge) et parallèlement (noir) au champ magnétique appliqué, respectivement à 5m et à 2m. L'échantillon présenté ici est la nuance de référence R0,3 à l'état brut de filage. Pour les deux distances échantillon-détecteur, on vérifie bien que I_{perp} est toujours supérieure à I_{para} sur toute la gamme de $\vec{q}$ et que le ratio I_{perp}/I_{para} reste constant (ici environ 2,5 sur les Figures E.1b et E.2b).

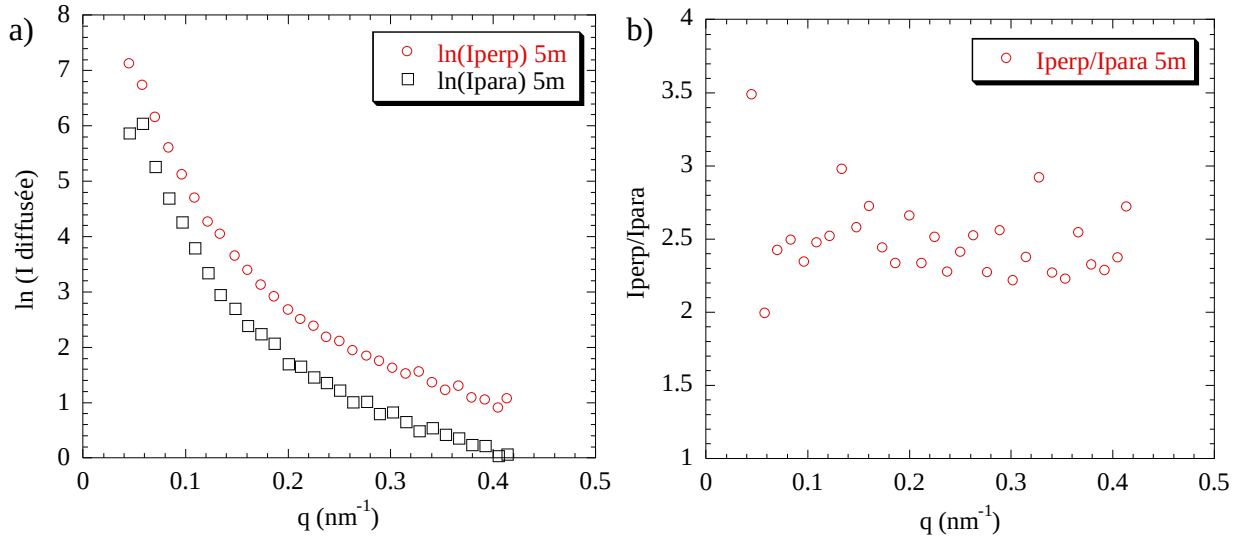


Figure E.1 : a) Courbes à 5m de l'intensité diffusée perpendiculairement et parralèlement au champ magnétique et b) ratio de Iperp/Ipara à 5m

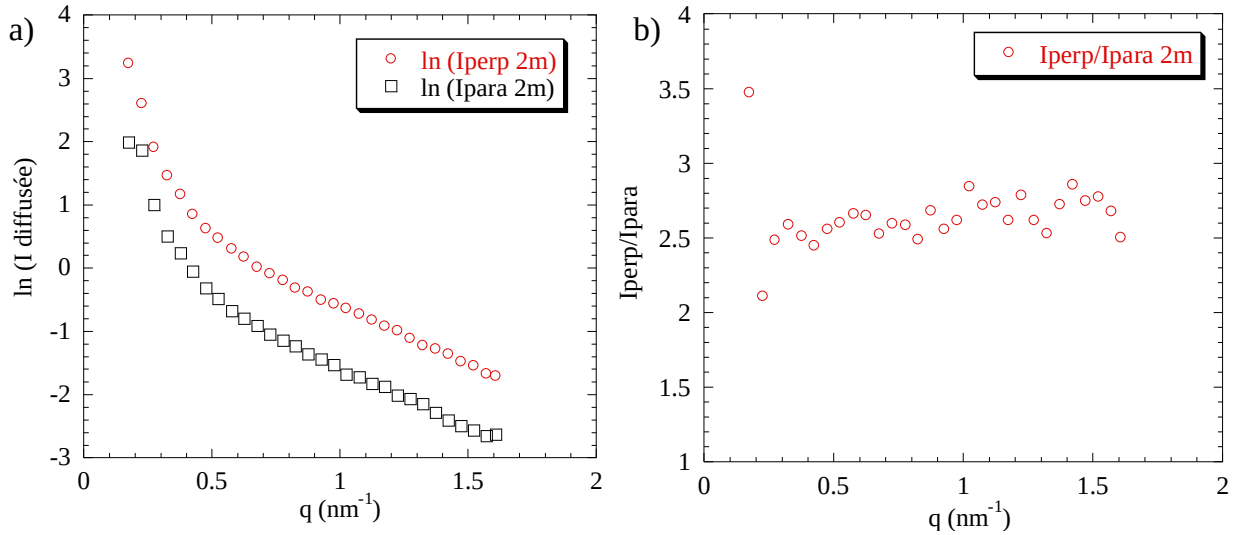


Figure E.2 : a) Courbes à 2m de l'intensité diffusée perpendiculairement et parralèlement au champ magnétique et b) ratio de Iperp/Ipara à 2m

La Figure E.3a montre le raccordement de la courbe de l'intensité magnétique (I_{perp}-I_{para}) à 5m avec celle à 2m, qui conduit à l'obtention de la courbe finale $I_{mag} = f(q)$ sur la Figure E.3b. C'est cette courbe finale,

présentée dans le Chapitre II, qui est ensuite utilisée pour déterminer la fraction volumique et la taille des nanoparticules.

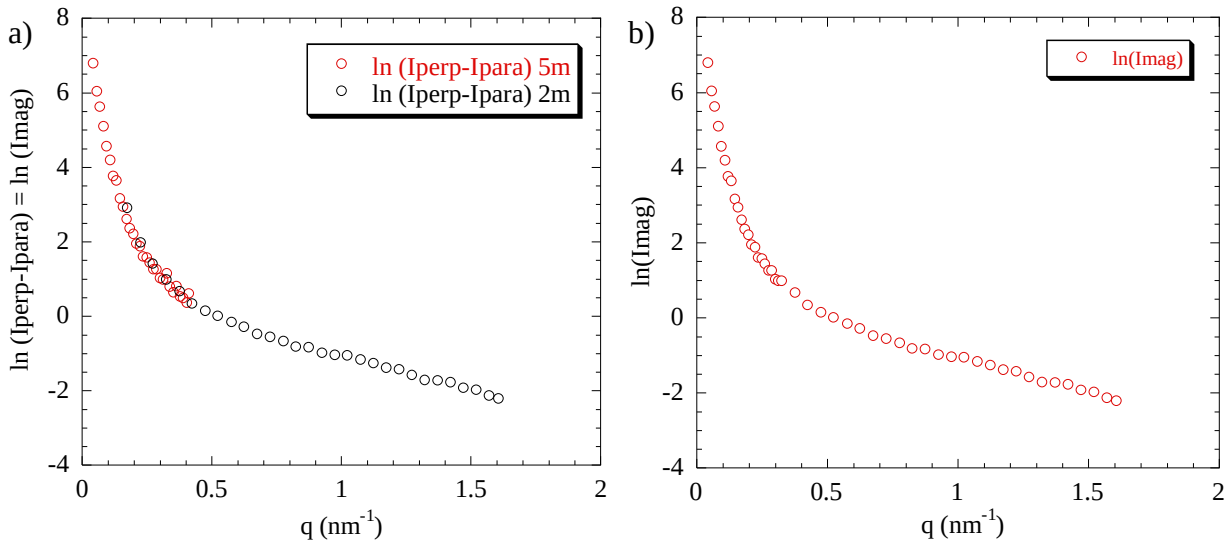


Figure E.3 : a) Intensité magnétique (I_{perp}-I_{para}) à 5m et à 2m et b) raccordement des courbes à 5m et à 2m de l'intensité magnétique diffusée

université PARIS-SACLAY
ÉCOLE DOCTORALE
Sciences chimiques : molécules, matériaux, instrumentation et biosystèmes

Titre : Compréhension et modélisation de l'influence du taux de renforts et de la texture de déformation sur la recristallisation des aciers ODS

Mots clés : ODS, recristallisation, texture, nano-précipitation, déformation à froid

Résumé : Les aciers renforcés par dispersion d'oxydes (ODS) sont envisagés comme matériaux de gainage pour les réacteurs à neutrons rapides au sodium. Ils présentent de très bonnes propriétés mécaniques, notamment en fluage, du fait de la présence des nano-renforts ainsi qu'une résistance au gonflement élevée de par leur matrice ferrito-martensitique. La gamme de fabrication des ODS ferritiques est complexe et génère une forte texture morphologique et cristallographique. Les microstructures doivent donc être recristallisées mais cette recristallisation est très souvent hétérogène et difficile à maîtriser.

Cette étude vise à améliorer la compréhension des mécanismes de recristallisation qui dépend fortement du taux de renforts incorporé et de la déformation appliquée. Dans ce but, l'élaboration de nuances modèles avec différents taux de renforts a été réalisée et des caractérisations multi-échelles (EBSD, DNPA, DSC) ont été effectuées. Il est apparu que la nature chimique des nano-oxydes influence fortement la stabilité des microstructures et leur capacité à restaurer après consolidation.

Ces travaux ont également permis de mettre en évidence l'étroite relation entre le chemin de déformation à froid, la distribution de l'énergie stockée et la microstructure après recristallisation. Lorsque le traitement thermomécanique est optimal, des microstructures recristallisées homogènes et peu texturées peuvent être obtenues. Il est aussi apparu que la diminution du taux de renforts ne permettait pas de faciliter clairement la recristallisation des ODS. Le développement d'un modèle numérique Monte Carlo pour simuler la croissance de grains et la recristallisation en présence de particules a permis de consolider la compréhension des mécanismes. De plus, une analyse des propriétés en traction des différents états métallurgiques a montré que la recristallisation pouvait nettement améliorer la ductilité à chaud sans diminuer significativement les résistances mécaniques.

Les résultats obtenus sur matériaux modèles ont permis de mieux comprendre les mécanismes mis en jeu lors de la recristallisation des ODS et d'analyser les gammes de fabrication actuelles des tubes ODS. Diverses optimisations possibles sont discutées à la lumière des résultats obtenus.

Title : Investigation and modelling of the influence of nano-oxides concentration and deformation texture on the recrystallization of ferritic ODS steels

Keywords : ODS, recrystallization, texture, nano-precipitates, deformation

Abstract: Oxide dispersion strengthened steels are considered as cladding materials for Sodium Fast Reactor. Due to the nano-precipitates incorporated within the microstructure, their mechanical properties are very high, especially under creep loading. Moreover, the ferritic-martensitic lattice gives ODS steels a remarkable swelling resistance under radiation. The manufacturing route of ferritic ODS steels is complex and induces a strong morphologic and crystallographic texture. The microstructure needs to be recrystallized but this recrystallization is often heterogeneous and difficult to control.

In this framework, this investigation aims at achieving a better understanding of the recrystallization mechanisms in ODS steels that strongly rely both on the nano-oxides concentration and the applied deformation. Thereby, several model grades with various concentrations of oxides were elaborated and characterized at different scales (EBSD, SANS, DSC). It appears that the chemical composition of the nano-oxides strongly influence the microstructure stability and its ability to recover after consolidation.

Throughout this study, the strong relationship between the cold-deformation path, the stored energy distribution and the recrystallized microstructure has been highlighted. When the thermo-mechanical treatment is optimal, homogeneous recrystallized microstructures weakly textured can be achieved. Experiments also showed that decreasing the nano-oxides concentration does not clearly favor recrystallization. Monte Carlo modelling was performed to simulate grain growth and recrystallization in the presence particles and the simulations helped to identify the mechanisms that occur experimentally. Furthermore, the tensile properties of different metallurgical states were investigated and it came out that the recrystallization notably increases the ductility at high temperature without significantly affecting the yield strength.

The results obtained on model materials allowed to better understand the mechanisms implied in the recrystallization process of ODS steels. Several possible optimizations to the current manufacturing route are discussed from the conclusions of this study.

Université Paris-Saclay
Espace Technologique / Immeuble Discovery
Route de l'Orme aux Merisiers RD 128 / 91190 Saint-Aubin, France