Vieillissement thermomécanique d'un acier inoxydable martensitique à durcissement structural

Jonathan Hugues

▶ **To cite this version:**

Jonathan Hugues. Vieillissement thermomécanique d'un acier inoxydable martensitique à durcissement structural. Mécanique des matériaux [physics.class-ph]. Institut National Polytechnique de Toulouse - INPT, 2014. Français. NNT : 2014INPT0068 . tel-04261828

HAL Id: tel-04261828

https://theses.hal.science/tel-04261828

Submitted on 27 Oct 2023

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

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

THÈSE

En vue de l'obtention du

DOCTORAT DE L'UNIVERSITÉ DE TOULOUSE

Délivré par :

Institut National Polytechnique de Toulouse (INP Toulouse)

Discipline ou spécialité :

Science et Génie des Matériaux

Présentée et soutenue par :

M. JONATHAN HUGUES

le mercredi 16 juillet 2014

Titre :

VIEILLISSEMENT THERMOMECANIQUE D'UN ACIER INOXYDABLE MARTENSITIQUE A DURCISSEMENT STRUCTURAL

Ecole doctorale :

Sciences de la Matière (SDM)

Unité de recherche :

Centre Interuniversitaire de Recherche et d'Ingénierie des Matériaux (C.I.R.I.M.A.T.)

Directeur(s) de Thèse :

M. ERIC ANDRIEU

Rapporteurs :

M. GILBERT HENAFF, ENSMA POITIERS

M. JÉROME CREPIN, MINESPARISTECH

Membre(s) du jury :

M. ANDRÉ PINEAU, MINESPARISTECH, Président

M. BERTRAND JOURNET, EADS FRANCE, Membre

M. ERIC ANDRIEU, INP TOULOUSE, Membre

M. FRÉDÉRIC DANOIX, UNIVERSITE DE ROUEN, Membre

M. JOËL ALEXIS, ECOLE NATIONALE D'INGENIEUR DE TARBES, Membre

M. SYLVAIN PUECH, AUBERT ET DUVAL, Membre

Je remercie sincèrement Monsieur André Pineau, Professeur à l'Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris, ENSMP, pour avoir accepté de participer et présider le jury de cette thèse. Je tiens aussi à remercier Monsieur Jérôme Crépin, Maître de Recherche à l'ENSMP et Monsieur Gilbert Hénaff, Professeur à l'Ecole Nationale Supérieure de Mécanique et d'Aérotechnique, ENSMA, d'avoir pris de leur temps pour rapporter ces travaux.

Je suis reconnaissant envers Monsieur Frédéric Danoix, Chargé de Recherche à l'Université de Rouen, d'avoir accepté de faire partie du jury de ces travaux et d'y avoir apporté son expertise dans ce domaine.

Je remercie également Monsieur Sylvain Puech, Docteur-Ingénieur chez Aubert & Duval, et Monsieur Bertrand Journet, Senior Expert Airbus Group Innovations, que j'ai côtoyés pendant tous ces travaux de thèse, pour leur aide et leur participation à ce jury.

Je tiens à exprimer ma profonde reconnaissance envers Monsieur Joël Alexis, Professeur à l'Ecole Nationale d'Ingénieurs de Tarbes, d'avoir assisté à ces travaux, mais aussi d'y avoir participé lors de mes séjours réguliers au sein du Laboratoire de Génie de Production. Merci de ta disponibilité et de ta gentillesse.

Je remercie aussi très vivement Monsieur Jean-Marc Cloué, Senior Expert chez Areva et consultant scientifique à l'Institut National Polytechnique de Toulouse, pour ces différentes années passées à travailler sur ce sujet et quelques autres aussi. Avec souvent des remarques pertinentes et déstabilisantes, j'ai dû souvent remettre en question mes résultats, ce qui m'a permis de beaucoup progresser. J'espère que l'avenir va nous permettre de continuer à travailler ensemble.

J'éprouve une immense gratitude envers Monsieur Éric Andrieu, Professeur à l'Institut National Polytechnique de Toulouse. Après l'avoir côtoyé comme professeur, j'ai eu la chance (et c'est peu dire…) de pouvoir réaliser ma thèse sous sa direction. Je le remercie de sa confiance durant toutes ces années. Ces dernières années furent une immense joie et très instructives, le tout agrémenté de discussion sur le niveau de notre XV de France ou du Stade Toulousain. Côtoyer Éric, aussi bien au laboratoire qu'en dehors, a été et est toujours un immense bonheur. Comme avec Jean Marc, j'espère que l'avenir va nous permettre de continuer à travailler ensemble.

Enfin, je ne peux manquer d'évoquer dans ces remerciements Madame Christine Blanc, Professeur à l'Institut National Polytechnique de Toulouse. J'ai eu l'occasion de faire mes premières armes de chercheurs sous sa direction, et ces premières années m'ont beaucoup apportées. Je la remercie profondément pour sa disponibilité, son aide lors de la conclusion de cette thèse mais aussi pour nos conversations qui dépassent très souvent le cadre du travail pour celui de l'amical.

Je remercie tous les permanents du CIRIMAT qui sont quasiment tous intervenus durant ces travaux. Je tiens à remercier particulièrement Marie-Christine Lafont pour son aide sur la microscopie en transmission, Dominique Poquillon pour son aide en calcul par éléments finis, Jacques Lacaze pour son expertise en transformation de phases, Benoit Malard pour ses compétences dans le domaine des rayons X (et des bonnes soirées grenobloises…), Alexandre Freulon pour ses compétences en métallographie et sa bonne humeur, et bien évidemment Ronan Mainguy, pour son apport technique, sa disponibilité et aussi sa bonne humeur, sans qui un grand nombre de problèmes n'aurait pas trouvé de solutions aussi facilement.

Je tiens à remercier aussi Jeanne-Marie Alcaraz, Aline Peries, Katia Dautry et enfin Katia Reliquet, pour leur gentillesse et leur disponibilité lorsque j'allais les voir au secrétariat.

Je remercie également Clément Guénin qui a participé activement à ces travaux. Durant ses 18 mois de contrat, il a réalisé un grand nombre d'essais mécaniques. Sans lui, une bonne partie des résultats exposés n'aurait jamais existé. Je tiens à le remercier pour le travail effectué.

Je tiens aussi à vivement remercier les différents doctorants et stagiaires que j'ai pu croiser durant ces quelques années passées au laboratoire CIRIMAT. Je tiens à remercier plus particulièrement Florian, Adrien et Vincent avec qui j'ai partagé mon bureau au tout début de cette aventure et, également la nouvelle génération Carole et Alexandra pour m'avoir supporté, Pauline pour nos discussions diverses et variées, Bertrand pour son aide précieuse, et ainsi que l'ensemble des doctorants que j'ai pu côtoyer durant ces dernières années. Je remercie aussi le personnel du LGP, et notamment Jade, Jérémy, Loïc et Thibault, avec qui j'ai pu travailler, qui m'ont accordé du temps, m'ont accueilli les bras ouverts à chaque fois que je venais passer quelques jours à Tarbes et avec qui les parties de tarots étaient souvent endiablées.

Je tiens à remercier profondément ici mes parents qui m'ont toujours soutenu, à tous points de vue, lors de mes études supérieures et chez qui, j'ai toujours pu trouver du réconfort. Ma sœur pour son soutien. Mon frère également pour son soutien qui a pris beaucoup de formes et envers qui je suis redevable de beaucoup de choses…Je remercie aussi Laurent et Audrey, Nadège, Léa et j'en oublie surement quelques-uns pour leur soutien.

Enfin, je remercie celle qui se reconnaîtra à la lecture de ces quelques mots, pour son soutien et sa présence au bon moment.

« Seul l'arbre qui a subi les assauts du vent est vraiment vigoureux,
car c'est dans cette lutte que ses racines, mises à l'épreuve, se fortifient. »

Sénèque

Table des figures 10
Table des tableaux ..... **Erreur ! Signet non défini.**
Contexte et introduction du sujet 18
Chapitre I : Les aciers martensitiques inoxydables et leur vieillissement 23
1. Métallurgie des aciers martensitiques 24
1.1. Transformation martensitique : microstructure et propriétés mécaniques 24
1.2. Traitement de revenu 26
1.3. Influence de la microstructure sur les propriétés mécaniques 28
2. Vieillissement des aciers 29
2.1. Origine du vieillissement 30
2.2. Conséquences du vieillissement 32
2.2.1. Sur la microstructure 32
2.2.2. Sur le comportement mécanique de l'alliage 33
2.3. Vieillissement sous contrainte 34
Références 36
Chapitre II : Techniques expérimentales et matériaux de l'étude 38
1. Techniques de caractérisation utilisées 39
1.1. Techniques d'observation et d'analyse 39
1.1.1. Microscopie optique 39
1.1.2. Microscopie électronique à balayage 39
1.1.3. Microscopie électronique en transmission 40
1.1.4. Diffraction des rayons X 40
1.2. Techniques de caractérisation des propriétés mécaniques 41
1.2.1. Essai de dureté 41
1.2.2. Essais de traction 43
1.2.3. Essais Charpy 45
2. Présentation du matériau à l'état de réception 46
2.1. Composition de l'alliage 46
2.2. Traitements thermiques 46
2.3. Microstructure de l'alliage 15 5 PH 1200 MPa à l'état revenu 47
2.4. Comportement mécanique à l'état de réception 53
2.4.1. Dureté 53
2.4.2. Comportement en traction 63
2.4.2.1. Sens de prélèvement des éprouvettes 64
2.4.2.2. Influence de la température d'essai sur le comportement mécanique 64
2.4.2.3. Effet de la position de l'éprouvette et du sens de prélèvement 69
2.4.3. Essais de résilience 71
2.4.4. Essai de ténacité 76
Références 78
Chapitre III : Etude du vieillissement de l'acier 15-5 PH sans et sous contrainte appliquée 80
1. Vieillissement sans contrainte appliquée 81
1.1. Matrice de vieillissement 81
1.2. Suivi du vieillissement 82
1.2.1. Vieillissement à 290°C 82
1.2.2. Vieillissement à 350°C 84

1.2.3. Vieillissement à 370°C *87*
1.2.4. Effets de température, coulée et de l'état métallurgique initial sur la cinétique de vieillissement *89*
1.2.4.1. Effet de la température *89*
1.2.4.2. Effet de coulée *92*
1.2.4.3. Effet de l'état métallurgique initial *93*
1.3. Evolution des propriétés mécaniques après vieillissement 96
1.3.1. Evolution du comportement en traction *96*
1.3.1.1. Comparaison entre état de réception et états vieillis *96*
1.3.1.2. Evolution des propriétés mécaniques avec la température d'essai sur matériau vieilli 99
1.3.2. Evolution de la température de transition ductile fragile (TTDF) *102*
1.3.3. Evolution de la ténacité *107*
2. Vieillissement avec contrainte externe appliquée 110
2.1. Présentation des différents essais de vieillissement sous contrainte 110
2.1.1. Vieillissement d'éprouvettes en traction *110*
2.1.2. Vieillissement d'éprouvettes entaillées en traction *111*
2.1.3. Vieillissement de poutres en flexion 4 points *112*
2.2. Vieillissement d'éprouvettes en traction 113
2.2.1. Eprouvettes vieillies en traction à 290°C *114*
2.2.2. Eprouvettes vieillies en traction à 350°C *117*
2.2.3. Eprouvettes vieillis en traction à 370°C *119*
2.2.4. Validation des essais de vieillissement effectués sur machine de traction embarquée *120*
2.2.5. Comportement en vieillissement sous contrainte du 15 5 PH 1070 MPa *122*
2.3. Vieillissement d'éprouvettes entaillées en traction 123
2.3.1. Eprouvettes entaillées en 15 5 PH 1200 MPa *123*
2.3.2. Eprouvette entaillée en 15 5 PH 1070 MPa *125*
2.4. Vieillissement de poutres en flexion 4 points 126
Références 127
Chapitre IV : Contribution à la compréhension du vieillissement des aciers 128
1. Hétérogénéité dans le matériau à l'état de réception 129
1.1. Etude de la trempe : Essai Jominy 129
1.1.1. Description de l'essai Jominy *129*
1.1.2. Dureté sur l'éprouvette *130*
1.1.3. Application au méplat *131*
1.2. Etude du traitement de revenu 132
1.2.1. Traitement de revenu sans contrainte *133*
1.2.2. Traitement de revenu sous contrainte *134*
1.3. Relation dureté/TTDF à l'échelle locale 135
2. Vieillissement sans contrainte appliquée 137
2.1. Localisation du durcissement 137
2.2. Etude de la microstructure 137
2.2.1. Evolution de la décomposition spinodale *138*
2.2.2. Evolution des précipités de cuivre *140*
2.2.3. Interaction décomposition spinodale et précipitation de cuivre *142*
2.2.4. Austénite de réversion *144*
2.3. Relation entre évolution de la microstructure et comportement en dureté 146
2.4. Relation dureté, comportement en traction, TTDF 148
2.5. Traitement de régénération 150

3. Effet de la contrainte sur la cinétique de vieillissement.....154
3.1. Vieillissement en traction.....154
3.2. Vieillissement sur éprouvette entaillée en traction.....156
3.3. Vieillissement sur poutre en flexion 4 points.....158
Références.....160
Conclusion générale et perspectives d'étude.....162

Table des figures

Introduction

Figure 1 : Image d'illustration d'un A320 NEO produit par Airbus 19
Figure 2 : Mat réacteur sur chaine de montage à l'usine de Saint Eloi de Toulouse (31). La partie porteuse du mât correspond au caisson fermé. 20

Chapitre I

Figure 3 : Microstructure de la martensite dans un grain austénitique pour les aciers bas carbone [3] 26
Figure 4 : Dureté en fonction de la température de revenu pour 2 h de traitement [9] 27
Figure 5 : Diagramme de Yoffee [15] 28
Figure 6 : Effet de la température de revenu sur la quantité d'austénite de réversion et sur la résilience à température ambiante pour un alliage de type Fe-16%-Cr-7%-Ni [13] 29
Figure 7 : Effet de l'austénite de réversion sur les propriétés mécaniques d'un alliage Fe-13%Cr-4%Ni-Mo après traitement de revenu d'une heure [14] 29
Figure 8 : Diagramme d'équilibre Fe-Cr 30
Figure 9 : Lacune de miscibilité dans le diagramme Fe-Cr 30
Figure 10 : Observation en microscopie électronique en transmission de la décomposition spinodale dans la ferrite sur un acier duplex 2205 d'après [25] 32
Figure 11 : Distribution des atomes de chrome dans un alliage Fe-15Cr-5Ni vieilli à 425°C pendant 1 000 h d'après [29]. Chaque point vert représente un atome de chrome 32
Figure 12 : Evolution de la limite d'élasticité après vieillissement d'après [22] 33
Figure 13 : Effet du vieillissement sur la résilience de l'alliage PH 13 8 Mo, d'après [19] 34

Chapitre II

Figure 14 : Géométrie de l'indenteur de type Berkovich 41
Figure 15 : Schéma d'un pénétrateur en contact avec l'échantillon 42
Figure 16 : Exemple de courbe chargement-déchargement 42
Figure 17 : Géométrie du pénétrateur de type Vickers 43
Figure 18 : Géométrie des éprouvettes de traction 44
Figure 19 : Effet de l'épaisseur de l'éprouvette sur la réponse mécanique de l'alliage 44
Figure 20 : Dispositif d'essais Charpy Quasi Statique 45
Figure 21 : Eprouvettes Charpy entaillées 46
Figure 22 : Traitements thermiques réalisés sur le 15 5 PH 47
Figure 23 : Observation de la microstructure du 15 5 PH suivant le plan L-TC à l'état revenu après attaque électrochimique HF 15% 48
Figure 24 : Observation de la microstructure du 15 5 PH à l'état revenu après attaque chimique avec le réactif Vilella 48
Figure 25 : Observation au MET et analyse EDX d'un carbure de niobium 49
Figure 26 : Observation en EBSD du plan L TC de l'alliage 50

Figure 27 : Observation en EBSD du plan L TC de l'alliage avec analyse des désorientations des joints de grains/lattes : en noir les désorientations supérieures à 2°, en vert les désorientations supérieures à 10° 50
Figure 28 : Lattes de martensite observées en MET 51
Figure 29 : Précipités de cuivre observés en MET-HR 51
Figure 30 : ATD effectuée sur l'alliage 15 5 PH après trempe et traitement de revenu pour une vitesse de chauffe de 5 K/min 52
Figure 31 : Austénite de réversion observée en MET, avec le cliché de diffraction correspondant à la zone indiquée 52
Figure 32 : Résultats obtenus en DRX en utilisant le faisceau synchrotron sur le matériau à l'état de réception 53
Figure 33 : Schéma de la microstructure de l'alliage 15 5 PH, montrant les différents échelles de microstructure 53
Figure 34 : Evolution de la de dureté en fonction de la charge appliquée 54
Figure 35 : Distribution des valeurs de dureté pour 180 essais de dureté $HV_{1\ 10s}$. L'erreur observée en HV_{30} est indiquée par les pointillés verts. 55
Figure 36 : Effet de la charge sur la réponse en dureté du matériau 57
Figure 37 : Représentation des valeurs de dureté selon la relation proposée par Nix et Gao 58
Figure 38 : Schématisation de l'écoulement plastique lors d'un essai de dureté 59
Figure 39 : Exemple de mesure de pile up effectué sur une empreinte de dureté faite avec une charge de 10 kg. Les droites en pointillés montrent l'orientation des mesures. 60
Figure 40 : Evolution de la dureté et de l'aire du disque zone plastique en fonction de la charge, comparaison avec l'aire d'un grain et l'aire d'une famille de lattes 61
Figure 41 : Superposition d'une cartographie faite en EBSD et en nanodureté, avec un repérage fait en dureté HV_5 62
Figure 42 : Effet d'orientation sur la réponse mécanique des familles de lattes. Les valeurs indiquées sont des valeurs de dureté Martens exprimées en GPa 63
Figure 43 : Différents sens de prélèvement effectués sur le méplat 64
Figure 44 : Essais de traction réalisés à l'ambiante sur le matériau à l'état de réception 65
Figure 45 : Observation au MEB des faciès de rupture après essais de traction de l'alliage à l'état de réception à l'ambiante 66
Figure 46 : Effet de la température d'essai sur le comportement mécanique du 15 5 PH 66
Figure 47 : Représentation selon l'équation proposée par Zener et Hollomon de la variation de la limite d'élasticité du 15-5 PH 1200 MPa avec la température. 67
Figure 48 : Evolution des faciès de rupture avec la température d'essai pour des essais de traction réalisés sur le matériau à l'état de réception 68
Figure 49 : Exemple de clivage observé sur un faciès d'éprouvette de traction testée à -30°C 69
Figure 50 : Courbes de traction correspondant à des essais de traction réalisés à -50°C sur le 15 5 PH à l'état de réception 69
Figure 51 : Courbes de traction correspondant à des essais de tractions réalisés à 250°C 70
Figure 52 : Effet de la vitesse de sollicitation sur la résilience de l'alliage 15 5 PH 1070 MPa 72
Figure 53 : Essais Charpy quasi statique effectués sur l'alliage 15 5 PH 1200 MPa 72
Figure 54 : Faciès de rupture observés en MEB après essais de Charpy quasi-statique (QS) sur le 15 5 PH 1200 MPa à l'état de réception 74
Figure 55 : Faciès de rupture d'une éprouvette rompue à -10°C 75
Figure 56 : Faciès de rupture d'une éprouvette rompue à 100°C 76
Figure 57 : Courbes force-déplacement obtenues sur l'alliage à l'état de réception pour trois températures d'essais 76

Figure 58 : Faciès de rupture après essai de ténacité sur une éprouvette CT 25 à température ambiante 77

Chapitre III

Figure 59 : Evolution de la dureté en fonction du temps de vieillissement à 290°C 82
Figure 60 : Evolution de l'écart type des valeurs de dureté en fonction du temps de vieillissement à 290°C 83
Figure 61 : ATD réalisée sur un échantillon vieilli 3 350 h à 290°C. Le trait pointillé bleu représente la courbe obtenue en l'absence de pic 84
Figure 62 : Evolution de la dureté avec la durée de vieillissement à 350°C 85
Figure 63 : Evolution de l'écart type des valeurs de dureté en fonction du temps de vieillissement à 350°C 86
Figure 64 : ATD réalisée sur des échantillons vieillis à 350°C 87
Figure 65 : Evolution de la dureté avec la durée de vieillissement à 370°C 87
Figure 66 : Evolution de l'écart type des valeurs de dureté en fonction du temps de vieillissement à 370°C 88
Figure 67 : ATD réalisée sur des échantillons vieillis à 370°C 89
Figure 68 : Comparaison des cinétiques de durcissement du 15 5 PH pour les trois températures de vieillissement étudiées 90
Figure 69 : Fuseau des valeurs de dureté 91
Figure 70 : Dureté représentée en fonction du paramètre défini par Hollomon Jaffe 92
Figure 71 : Effet de coulée sur la cinétique de durcissement à 290°C 92
Figure 72 : Effet de coulée sur la cinétique de durcissement à 350°C 93
Figure 73 : Effet de coulée sur la cinétique de durcissement à 370°C 93
Figure 74 : Augmentation de la dureté par rapport à l'état de réception en fonction de la durée de vieillissement pour les alliages 15 5 PH 1200 MPa et 15 5 PH 1070 MPa 94
Figure 75 : Evolution de la dureté en fonction du temps de vieillissement aux différentes températures étudiées pour les alliages 15 5 PH 1200 MPa et 15 5 PH 1070 MPa 95
Figure 76 : Evolution du comportement en traction de l'alliage après vieillissement à 290°C 96
Figure 77 : Evolution du comportement en traction de l'alliage après vieillissement à 350°C 97
Figure 78 : Evolution du comportement en traction de l'alliage après vieillissement à 370°C 97
Figure 79 : Evolution du faciès de rupture après traction à température ambiante sur une éprouvette a) l'état de réception, b) vieillie 1 000 h et c) vieillie 5 000 h à 350°C 98
Figure 80 : Résistance maximale à la traction représentée en fonction du facteur de Hollomon Jaffe pour les trois températures de vieillissement 98
Figure 81 : Evolution de la limite d'élasticité Re avec la température d'essai pour un matériau vieilli à 290°C 99
Figure 82 : Evolution de la résistance maximale à la traction Rm, avec la température d'essai pour un matériau vieilli à 290°C 99
Figure 83 : Evolution de la limite d'élasticité Re, avec la température d'essai après vieillissement pour un matériau vieilli à 350°C 100
Figure 84 : Evolution de la résistance maximale à la traction Rm, avec la température d'essai pour un matériau vieilli à 350°C 100
Figure 85 : Evolution de la limite d'élasticité Re, avec la température d'essai pour un matériau vieilli à 370°C 101
Figure 86 : Evolution de la résistance maximale à la traction Rm, avec la température d'essai pour un matériau vieilli à 370°C 101

Figure 87 : Evolution de l'énergie de rupture avec la température d'essai après vieillissement à 290°C 102
Figure 88 : Evolution de l'énergie de rupture avec la température d'essai après vieillissement à 350°C 103
Figure 89 : Evolution de l'énergie de rupture avec la température d'essai après vieillissement à 370°C 103
Figure 90 : Evolution de la TTDF en fonction de la durée de vieillissement 104
Figure 91 : Evolution des faciès de rupture d'éprouvettes Charpy QS avec la température d'essai après vieillissement à 290°C pendant 15 000 h 105
Figure 92 : Evolution des faciès de rupture d'éprouvettes Charpy QS avec la température d'essai après vieillissement à 350°C pendant 10 000 h 106
Figure 93 : Evolution de l'énergie de propagation de fissure entre un état vieilli et l'état de réception. Les deux éprouvettes sont testées dans le domaine ductile. 107
Figure 94 : Evolution de la ténacité en fonction du temps et de la température de vieillissement 108
Figure 95 : Faciès de rupture des éprouvettes de ténacité après essai à l'ambiante pour le matériau vieilli a) à 290°C, b) à 350°C et c) à 370°C pendant 1 000 h 108
Figure 96 : Faciès de rupture des éprouvettes de ténacité après essai à l'ambiante pour le matériau vieilli a) à 290°C, b) à 350°C et c) à 370°C pendant 5 000 h 109
Figure 97 : Machine de traction embarquée et géométrie des éprouvettes multi-sections 110
Figure 98 : Géométrie des éprouvettes entaillées vieillies en traction 111
Figure 99 : Contraintes de Von Misès calculées par éléments finis sur une éprouvette entaillée sous charge. Les contraintes sont exprimées en Pa. 111
Figure 100 : Contrainte principale suivant l'axe z, σ_{zz}. Les contraintes sont exprimées en Pa 111
Figure 101 : Evolution du taux de triaxialité et de la contrainte de Von Misès entre les entailles 112
Figure 102 : Position des essais de dureté effectués sur les éprouvettes entaillées 112
Figure 103 : Machine de flexion 4 points sur poutres 113
Figure 104 : Contrainte de Von Misès sur une poutre en flexion 4 points calculée par éléments finis. Les contraintes sont exprimées en Pa 113
Figure 105 : Influence de la contrainte sur la cinétique de vieillissement après 1 000 h à 290°C 114
Figure 106 : Influence de la contrainte sur la cinétique de vieillissement après 5 000 h à 290°C 115
Figure 107 : Influence de la contrainte sur la cinétique de vieillissement après 10 000 h à 290°C 115
Figure 108 : Influence de la contrainte sur la cinétique de vieillissement après 15 000 h à 290°C 116
Figure 109 : Evolution de la dureté en fonction de l'état de contrainte et de la durée de vieillissement à 290°C 116
Figure 110 : Influence de la contrainte sur la cinétique de vieillissement après 1 000 h à 350°C 117
Figure 111 : Influence de la contrainte sur la cinétique de vieillissement après 5 000 h à 350°C 117
Figure 112 : Influence de la contrainte sur la cinétique de vieillissement après 10 000 h à 350°C 118
Figure 113 : Influence de la contrainte sur la cinétique de vieillissement après 15 000 h à 350°C 118
Figure 114 : Evolution de la dureté en fonction de l'état de contrainte et de la durée de vieillissement à 350°C 119
Figure 115 : Influence de la contrainte sur la cinétique de durcissement à 370°C 120
Figure 116 : Suivi de l'allongement au cours de l'essai de fluage à 350-370°C 121
Figure 117 : Comparaison des valeurs de dureté obtenues sur éprouvette vieillie sur machine de fluage avec les éprouvettes vieillies sur machines de traction embarquées 121

Figure 118 : Comparaison des valeurs de dureté obtenues sur éprouvette vieillie sur machine de fluage avec les éprouvettes vieillies sur machines de traction embarquée 122
Figure 119 : Influence de la contrainte sur la cinétique de durcissement du 15 5 PH 1070 MPa 122
Figure 120 : Résultats des essais de dureté effectués sur une éprouvette entaillée vieillie 5 000 h à 290°C 123
Figure 121 : Résultats des essais de dureté effectués sur des éprouvettes vieillies 1 000 et 5 000 h à 350°C 124
Figure 122 : Résultats des essais de dureté effectués sur des éprouvettes vieillies 1 000 et 5 000 h à 370°C 124
Figure 123 : Résultats des essais de dureté effectués sur une éprouvette vieillie 5 000 h à 290°C et évolution du taux de triaxialité 125
Figure 124 : Résultats des essais de dureté effectués sur une éprouvette vieillie 1 semaine à 400°C 125
Figure 125 : Résultats des essais de dureté effectués dans l'épaisseur d'une poutre vieillie en flexion 4 points pendant 1 000 h à 350°C 126

Chapitre IV

Figure 126 : Eprouvette Jominy 129
Figure 127 : Résultats de dureté HV_{30} sur éprouvette après essai Jominy 130
Figure 128 : Résultats de dureté $HV_{1\ 10s}$ et écart type obtenus après essai Jominy 131
Figure 129 : Résultats des essais de dureté effectués sur l'épaisseur du méplat 132
Figure 130 : Relation entre la dureté et la TTDF appliquée sur le matériau à l'état de réception 135
Figure 131 : Evolution du comportement en nano dureté du 15 5 PH après vieillissement 137
Figure 132 : Représentation du modèle proposé par Saunderson 139
Figure 133 : Evolution des précipités de cuivre au cours du vieillissement à 290°C 140
Figure 134 : Evolution des précipités de cuivre au cours du vieillissement à 350°C 140
Figure 135 : Evolution des précipités de cuivre au cours du vieillissement à 370°C 141
Figure 136 : Courbes ATD obtenues pour une vitesse de chauffe de 5°C/min pour les matériaux vieillis 1 000 h aux trois températures de l'étude directement après trempe. Les courbes obtenues pour le matériau trempé et le matériau revenu sont aussi représentées 143
Figure 137 : Evolution de la fraction volumique d'austénite de réversion au cours du vieillissement 144
Figure 138 : Evolution de la dureté et de la fraction volumique d'austénite de réversion au cours du vieillissement à 350°C 145
Figure 139 : Part de chaque phénomène dans l'évolution du comportement en dureté du matériau 146
Figure 140 : Evolution de la dureté en fonction des différents stades de vieillissement 147
Figure 141 : Relation entre l'augmentation de dureté et l'augmentation de la limite d'élasticité et de la température de transition ductile fragile après vieillissement à 290°C jusqu'à 10 000 h 148
Figure 142 : Relation entre l'augmentation de dureté et l'augmentation de la limite d'élasticité et de la température de transition ductile fragile après vieillissement à 350°C jusqu'à 10 000 148
Figure 143 : Distribution des valeurs de dureté obtenues sur un échantillon vieilli 10 000 h à 350°C 149
Figure 144 : Distribution des valeurs de dureté obtenues sur un échantillon vieilli 15 000 h à 350°C 150
Figure 145 : Comportement en traction à 20°C après traitement de régénération sur éprouvettes vieillies à 290°C 151

Figure 146 : Comportement en traction à 20°C après traitement de régénération sur éprouvettes vieillies à 350°C 151
Figure 147 : Comportement en traction à 20°C après traitement de régénération sur éprouvettes vieillies à 370°C 152
Figure 148 : Evolution de la dureté en fonction de l'état de contrainte pour des vieillissements effectués à 350°C..... 155
Figure 149 : Résultats de dureté sur une éprouvette entaillée vieillie en traction 1 000 h à 370°C et calculs par éléments finis de l'état de contrainte de l'éprouvette 157
Figure 150 : Essais de dureté sur poutre vieilli en flexion 4 points 1 000 h à 350°C..... 158

Table des tableaux

Chapitre I

Tableau 1 : Les différents variants de martensite issus des relations d'orientation de type Kurdjunov – Sachs, d'après [6] 25
Tableau 2 : Composition nominale de l'acier 15-5 PH 26

Chapitre II

Tableau 3 : Liste des attaques chimiques et électrochimiques utilisées 39
Tableau 4: Composition en pourcentage massique des deux coulées de 15 5 PH 1200 MPa étudiées 46
Tableau 5 : Résultats de dureté Vickers 30 kg 10s effectués sur les deux états métallurgiques. 53
Tableau 6 : Dureté Martens de l'alliage à l'état de réception 54
Tableau 7 : Paramètres calculés par régression linéaire suivant la relation de Nix et Gao 59
Tableau 8 : Comparaison entre les rayons de zone de déformation plastique calculés et ceux mesurés 60
Tableau 9 : Evolution des propriétés mécaniques avec la température 67
Tableau 10 : Evolution des propriétés mécaniques avec la température suivant le sens de prélèvement des éprouvettes 71

Chapitre III

Tableau 11 : Matrice de vieillissement 81
Tableau 12 : Evolution de la dureté et de l'écart type pour des vieillissements effectués à 290°C jusqu'à 15 000h 83
Tableau 13 : Evolution de la dureté et de l'écart type pour les vieillissements effectués à 350°C jusqu'à 15 000 h 85
Tableau 14 : Evolution de la dureté et de l'écart type pour des vieillissements effectués à 370°C jusqu'à 5 000h 88
Tableau 15 : Coefficients directeurs calculés sur les stades de vieillissement linéaires aux différentes conditions de vieillissement 95
Tableau 16 : Evolution des paramètres de régression linéaire de la relation de Zener Hollomon appliquée aux différents matériaux vieillis 102
Tableau 17 : Evolution de la TTDF après les différents vieillissements 104

Chapitre IV

Tableau 18 : Résultats de dureté obtenus sur échantillons traités en laboratoire 133
Tableau 19 : Résultats de dureté pour des échantillons trempés à l'eau 133
Tableau 20 : Résultats des essais de dureté effectués sur le matériau revenu sous contrainte 134
Tableau 21 : Différentes phases dans le vieillissement d'alliage type Cu-Ni-Cr d'après Saunderson et. Al 138
Tableau 22 : Evolution de la dureté sur matériau trempé et vieilli à 290, 350 et 370°C 142

Tableau 23 : Variation de la dureté en fonction de la teneur en austénite de réversion selon la loi de mélange proposée 145
Tableau 24 : Cinétique de vieillissement d'un échantillon vieilli après un premier vieillissement et un traitement de régénération 153
Tableau 25 : Evolution du seuil de contrainte à partir duquel celle-ci a un effet sur la cinétique de vieillissement de l'alliage..... 154

Contexte et introduction du sujet

Depuis ses débuts, l'aviation a été motrice de défis et d'innovation. Les ingénieurs n'ont cessé d'améliorer les performances en vol des avions, que ce soit en autonomie, on peut citer la traversée de l'Atlantique par Charles Lindbergh en 1927, en vitesse, le franchissement du mur du son en 1947, en capacités d'emport, par exemple. A partir des années 1950, l'aviation commerciale commença sa révolution par l'introduction progressive des turboréacteurs. Technologie ignorée dans un premier temps, son développement militaire montre toutes ses capacités. Peu à peu, les constructeurs délaissent la propulsion à hélice et se tourne vers les turboréacteurs qui permettent, en plus d'une meilleure autonomie et vitesse de vol, de transporter plus de passagers et dans de meilleures conditions. Le transport aérien de masse commence alors. Une course aux performances pures des appareils est lancée, au niveau de l'autonomie et de la capacité de transport.

Néanmoins, depuis quelques années, la vision des ingénieurs a changé. En effet, depuis les chocs pétroliers des années 1970, le prix du pétrole ne cesse d'augmenter pour atteindre les 100 dollars le baril en janvier 2008 à la bourse de New York. De nouvelles contraintes économiques sont venues s'ajouter aux contraintes techniques. La chasse au poids déjà existante, qui a poussé au développement des alliages d'aluminium par exemple, s'est renforcée. De plus, récemment, la conscience écologique pousse les constructeurs et motoristes à trouver des solutions pour développer un transport aérien plus propre, toujours en allégeant les avions, mais aussi en développant des moteurs plus propres. On peut citer par exemple, l'introduction massive de composites comme matériau de structure pour l'A350 de Airbus ou encore le développement de nouveaux moteurs moins gourmands en carburant comme le réacteur LEAP développé par Snecma et General Electrics.

Dans cette optique de réduction de la consommation de carburant et d'allègement des structures, Airbus a décidé de rénover son « best-seller » qu'est l'A320. Cet appareil court-courrier d'une capacité allant de cent à deux cents passagers selon les versions, est à l'heure actuelle le deuxième avion le plus vendu au monde avec un peu plus de 6 000 unités. Ce nouvel avion, baptisé A320 NEO, pour New Engine Option, permettra des économies substantielles de carburant, environ 15 %, par l'utilisation de moteurs de dernière génération, comme le LEAP. Ce moteur se distingue aussi par un encombrement moins important. C'est ainsi, qu'Airbus a aussi décidé de changer le design et les matériaux constituant le mât réacteur.

Figure 1 : Image d'illustration d'un A320 NEO produit par Airbus

Le mât réacteur est une pièce cruciale au niveau de l'avion, puisque c'est elle qui maintient le réacteur à l'aile et transmet la poussée. De plus, à l'intérieur de celle-ci circulent un nombre important de câbles et autres tuyaux permettant l'apport en carburant mais aussi l'approvisionnement de l'avion en air frais. Cette pièce est soumise à des contraintes mécaniques et thermiques variées. En effet, elle doit supporter à la fois, le poids du réacteur, sa poussée, les

rafales de vents latérales, les éventuels chocs pendant le vol et autres atterrissages successifs pouvant être brusques, les basses températures en vol en haute altitude et les températures plus élevées en phase de roulage. La durée d'utilisation journalière d'un A320 est estimée à 8 h.

Sur les A320 actuels, un des matériaux de structure utilisé est le 15 5 PH, acier martensitique inoxydable à durcissement structural traité pour avoir une résistance maximale à la traction de 1070 MPa minimum. Du fait du changement de moteur et d'une volonté d'alléger la structure, Airbus a réfléchi à différentes options. Dans un premier temps, l'introduction d'alliages de titane, déjà utilisée sur les mâts réacteurs de l'A380, a été décidée sur un certain nombre d'éléments. Du fait de sa densité, environ 4,4 pour le TA6V contre 7,8 pour le 15 5 PH et de bonnes propriétés mécaniques, son utilisation est de plus en plus répandue. D'autre part, le traitement thermique du 15 5 PH a été changé pour atteindre des niveaux de résistance de l'ordre de 1200 MPa. Cette solution permet donc un gain de poids.

Figure 2 : Mat réacteur sur chaine de montage à l'usine de Saint Eloi de Toulouse (31). La partie porteuse du mât correspond au caisson fermé.

Lors des phases d'utilisation aux températures moyennes, l'acier constituant les mâts réacteurs n'est pas stable métallurgiquement et évolue au cours du temps. Ce vieillissement, observé dans un premier temps à 475°C puis au fur et à mesure à des températures de plus en plus basses, autour de 300°C, induit des changements microstructuraux allant jusqu'à l'échelle atomique. Ces changements influent sur le comportement mécanique macroscopique de l'alliage, rendant l'alliage de plus en plus fragile.

Cette problématique est le sujet du projet PREVISIA, acronyme pour apPRoche multiphysiquE du VIeillissement sous contrainte des aciers inoxydables martenSitiques et de ses conséquences sur la propagation des fIssures en fAtigue, financé par l'Agence Nationale de la Recherche. Ce projet est porté par Airbus Group Innovations et possède comme partenaires industriels Airbus et Aubert et Duval, élaborateur du 15 5 PH 1200 MPa. Quatre partenaires académiques s'organisent autour de trois thèses portant sur trois facettes de la problématique, à trois échelles différentes. Ainsi, le laboratoire SIMAP de Grenoble, via la thèse de Laurent Couturier, s'intéresse au vieillissement des aciers à l'échelle atomique, en utilisant, entre autres, les grands instruments. Le laboratoire P' de Poitiers ainsi que le LMT de Cachan, via la thèse de Loïc Dimithe Aboumou, se focalise sur l'influence du vieillissement sur la propagation de fissures. Enfin, l'étude de l'influence du vieillissement sur le comportement mécanique et aussi de

l'influence des contraintes sur le vieillissement de ces aciers ont été confiées au CIRIMAT de Toulouse, sujet de la présente thèse.

Le but de l'étude présentée dans ce manuscrit était de suivre la cinétique de vieillissement de l'alliage 15 5 PH 1200 MPa pour trois températures de vieillissement, censées aussi bien simuler les températures de fonctionnement, autour de 290°C, mais aussi des températures accidentelles, 350 et 370°C. Des vieillissements jusqu'à une durée de 15 000 h ont ainsi été effectués durant ces travaux. De plus, afin de se rapprocher au plus près des pièces en fonctionnement réel, l'effet de la contrainte sur la cinétique de vieillissement a été étudié. Cet effet a fait déjà l'objet d'études précédentes, qui ont montré un effet accélérateur sur le vieillissement. Tout au long de l'étude, aussi bien sur le matériau non vieilli que sur le matériau vieilli, une démarche intégrant différentes échelles s'est imposée au vu de la complexité de la microstructure de ce type d'acier.

Ce manuscrit s'organise en quatre parties. Dans un premier temps, une partie bibliographie permet de se familiariser avec les aciers inoxydables martensitiques et leur vieillissement. Ensuite, après avoir décrit les différentes techniques expérimentales utilisées durant cette étude, la caractérisation du matériau à l'état de réception, c'est-à-dire trempé et revenu, sera présentée, aussi bien d'un point de vue microstructural que mécanique. Le troisième chapitre sera consacré aux résultats des caractérisations du matériau après vieillissement effectués aussi bien sans contrainte appliquée qu'avec une contrainte appliquée tout au long du vieillissement. Enfin, le dernier chapitre engagera une discussion sur les différents résultats obtenus tout au long de cette thèse.

Chapitre I : Les aciers martensitiques inoxydables et leur vieillissement

1. Métallurgie des aciers martensitiques

L'acier X5CrNiCu15-5 ou 15 5 PH est issu de l'évolution de différentes générations d'acier visant à obtenir le meilleur compromis entre résistance mécanique, ductilité et résistance à la corrosion. Au fur et à mesure de cette évolution, la teneur en carbone a été graduellement diminuée. En effet, même si les aciers à hautes teneurs en carbone présentent une forte résistance mécanique, comme par exemple l'acier X15CrNi17-03 qui possède une résistance mécanique proche de 1400 MPa, ceux-ci possèdent une résistance à la corrosion plus faible. Le carbone favorise la formation de carbures de chrome, ce qui a pour conséquence de diminuer localement la résistance à la corrosion de l'alliage. La teneur en carbone des aciers développés par la suite a ainsi été réduite afin de répondre à ces exigences.

Néanmoins, en diminuant la teneur en carbone dans ces aciers, le durcissement par solution solide apporté par le carbone diminuait. Afin de compenser cette diminution des propriétés mécaniques, les aciers inoxydables à durcissement structural ont été développés. La précipitation de particules durcissantes, permettait ainsi d'atteindre des caractéristiques mécaniques élevées tout en gardant une résistance à la corrosion satisfaisante. Ces aciers portent la dénomination PH, pour Precipitation Hardening. La formation de ferrite pouvant aussi amener une diminution des propriétés mécaniques, une augmentation de la teneur en nickel de ces aciers permet d'étendre le domaine austénitique. C'est dans ce contexte scientifique, qu'est née la nuance X5CrNiCu15-5, ou 15 5 PH.

1.1. Transformation martensitique : microstructure et propriétés mécaniques

Cette nuance est élaborée sous air, en utilisant les techniques AOD et ESR. Même si des techniques de fusion sous vide permettant d'éviter la contamination inclusionnaire existent, par souci d'économie, celles-ci ne sont pas ou très peu utilisées dans ce cas. C'est pourquoi du niobium est rajouté dans la composition de l'alliage, afin de piéger le carbone sous la forme de carbures de niobium pour réduire la formation de carbures de chrome.

Comme mentionné auparavant, la présence de nickel dans ces alliages permet d'augmenter le domaine de stabilité de l'austénite, et par conséquent de diminuer la température de début de transformation martensitique Ms. Celle-ci peut être calculée d'après des formules empiriques. Kung et Rayment proposent un certain nombre de ces relations [1]. Nous retiendrons ici celle développée par Steven et Haynes (en % massique):

$$Ms(°C) = 561 - 474\ (\%C) - 33\ (\%Mn) - 17\ (\%Cr) - 17\ (\%Ni) - 21\ (\%Mo) + 10\ (\%Co) - 7.5\ (\%Si)$$

Cette relation rend compte de la forte influence du carbone sur la température de début de transformation. Cette transformation a lieu lors du refroidissement après une remise en solution de l'alliage en le chauffant dans le domaine austénitique.

La transformation martensitique est une transformation displacive, c'est-à-dire sans diffusion d'atomes à longue distance dans l'austénite. La morphologie finale de la martensite est ainsi fortement influencée par la phase mère, à savoir l'austénite. Des relations d'orientation existent ainsi entre ces deux phases, qui définissent la morphologie de la martensite. Pour la martensite en lattes, il existe trois niveaux de microstructure : les lattes, les blocs et les paquets. Depuis le développement de la technique d'analyse utilisant la diffraction des électrons rétrodiffusés (EBSD), l'accessibilité à ces différents niveaux de microstructure a été grandement facilitée. Ainsi, Morito [2] [3] [4], Morris [5] et Kitahara [6], entre autres [7] [8], se sont intéressés aux aspects cristallographiques liés à la transformation martensitique.

Différentes relations d'orientations sont proposées : les relations de type Kurdjunov – Sachs (K - S) et les relations de type Nishiyama – Wasserman (N – W). Dans les aciers bas carbone, les

relations d'orientation entre l'austénite et la martensite se rapprochent des relations d'orientation de type K-S [2] [5]. Nous allons donc nous intéresser à ce type d'orientation cristallographique.

Les relations d'orientation K – S peuvent s'exprimer de la façon suivante, entre l'austénite (γ) et la martensite (α) : $(111)_\gamma$ //$(011)_\alpha$ $[101]_\gamma$//$[111]_\alpha$. Un plan dense {111} de l'austénite est donc parallèle à un plan de type {110} de la martensite et une direction de type <101> de l'austénite est parallèle à une direction de type <111> dans la martensite.

Sachant qu'il y a quatre plans équivalents de type {111} dans l'austénite, 3 possibilités de direction dense <110> dans le plan dense de l'austénite choisi et 2 possibilités de direction dense dans la martensite, il y a 24 relations d'orientation possibles soit 24 variants possibles. Kitahara [6] a compilé ces différents variants, que l'on peut regrouper par 6 pour chaque plan dense de l'austénite, Tableau 1.

Variant	Plane parallel	Direction parallel
V1	$(111)_\gamma$//$(011)_{\alpha'}$	$[\bar{1}01]_\gamma$//$[\bar{1}\bar{1}1]_{\alpha'}$
V2		$[\bar{1}01]_\gamma$//$[\bar{1}11]_{\alpha'}$
V3		$[01\bar{1}]_\gamma$//$[\bar{1}\bar{1}1]_{\alpha'}$
V4		$[01\bar{1}]_\gamma$//$[\bar{1}11]_{\alpha'}$
V5		$[1\bar{1}0]_\gamma$//$[\bar{1}\bar{1}1]_{\alpha'}$
V6		$[1\bar{1}0]_\gamma$//$[\bar{1}11]_{\alpha'}$
V7	$(1\bar{1}1)_\gamma$//$(011)_{\alpha'}$	$[10\bar{1}]_\gamma$//$[\bar{1}\bar{1}1]_{\alpha'}$
V8		$[10\bar{1}]_\gamma$//$[\bar{1}11]_{\alpha'}$
V9		$[\bar{1}\bar{1}0]_\gamma$//$[\bar{1}\bar{1}1]_{\alpha'}$
V10		$[\bar{1}\bar{1}0]_\gamma$//$[\bar{1}11]_{\alpha'}$
V11		$[011]_\gamma$//$[\bar{1}\bar{1}1]_{\alpha'}$
V12		$[011]_\gamma$//$[\bar{1}11]_{\alpha'}$
V13	$(\bar{1}11)_\gamma$//$(011)_{\alpha'}$	$[0\bar{1}1]_\gamma$//$[\bar{1}\bar{1}1]_{\alpha'}$
V14		$[0\bar{1}1]_\gamma$//$[\bar{1}11]_{\alpha'}$
V15		$[\bar{1}0\bar{1}]_\gamma$//$[\bar{1}\bar{1}1]_{\alpha'}$
V16		$[\bar{1}0\bar{1}]_\gamma$//$[\bar{1}11]_{\alpha'}$
V17		$[110]_\gamma$//$[\bar{1}\bar{1}1]_{\alpha'}$
V18		$[110]_\gamma$//$[\bar{1}11]_{\alpha'}$
V19	$(11\bar{1})_\gamma$//$(011)_{\alpha'}$	$[\bar{1}10]_\gamma$//$[\bar{1}\bar{1}1]_{\alpha'}$
V20		$[\bar{1}10]_\gamma$//$[\bar{1}11]_{\alpha'}$
V21		$[0\bar{1}\bar{1}]_\gamma$//$[\bar{1}\bar{1}1]_{\alpha'}$
V22		$[0\bar{1}\bar{1}]_\gamma$//$[\bar{1}11]_{\alpha'}$
V23		$[101]_\gamma$//$[\bar{1}\bar{1}1]_{\alpha'}$
V24		$[101]_\gamma$//$[\bar{1}11]_{\alpha'}$

Tableau 1 : Les différents variants de martensite issus des relations d'orientation de type Kurdjunov – Sachs, d'après [6]

Ces différentes relations cristallographiques vont influencer la morphologie de la martensite. Comme mentionné auparavant, trois niveaux d'échelle apparaissent dans la martensite : la latte, les blocs et les paquets de lattes.

On peut décrire la structure de la martensite comme ceci :

- Un ancien grain austénitique est divisé en paquets de lattes qui partagent la même famille de plan de type {111} de l'austénite. Il y a donc 4 types de paquets de lattes.
- Ces paquets sont ensuite divisés en blocs, puisqu'il existe 6 variants différents au sein d'un même paquet.
- Les blocs sont enfin une agrégation de lattes, cristaux de martensite.

La Figure 3, issue de [3], montre les différentes échelles de microstructure de la martensite.

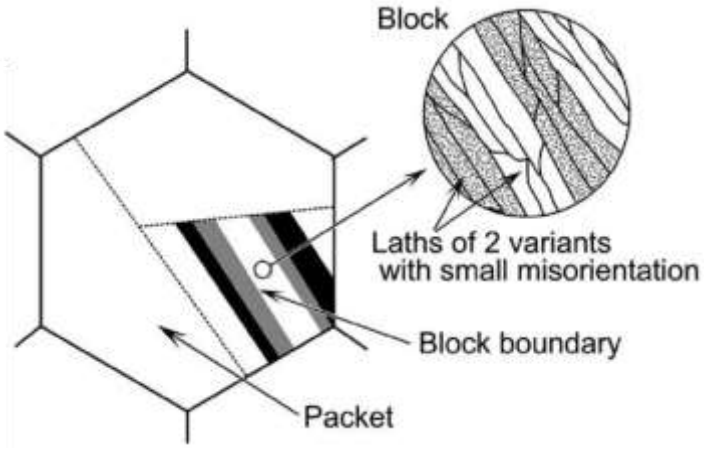


Figure 3 : Microstructure de la martensite dans un grain austénitique pour les aciers bas carbone [3]

1.2. Traitement de revenu

L'alliage 15 5 PH est un alliage à durcissement structural. La composition nominale de l'acier est reportée dans le Tableau 2.

	Carbone	Chrome	Nickel	Cuivre	Niobium
% massique	< 0.07	15.00	5.00	3.00	0.30

Tableau 2 : Composition nominale de l'acier 15-5 PH

Après la trempe, du fait de sa faible teneur en carbone, la martensite de l'alliage est douce. Les propriétés mécaniques ne sont donc pas très élevées. La matrice sursaturée en cuivre subit alors un traitement de revenu afin de faire précipiter la phase durcissante. Dans ce cas, celle-ci est constituée de cuivre. Néanmoins, le traitement de revenu présente aussi un autre intérêt, puisqu'il va permettre d'adoucir le matériau en éliminant en partie des dislocations générées par la trempe. La précipitation et l'adoucissement du matériau étant des phénomènes antagonistes, il est important de bien choisir les conditions dans lesquelles sont faits les traitements thermiques, notamment en ce qui concerne la phase de montée en température de la pièce. L'avantage de ce type d'alliage réside dans le fait qu'en ajustant le traitement thermique de revenu, les propriétés mécaniques de l'alliage peuvent être ajustées au plus près des besoins.

Dans ses travaux, Habibi [9] s'est intéressé à la précipitation de cuivre dans cet alliage, en traçant l'évolution de la dureté, pour un temps de traitement de revenu de 2 h à différentes températures, Figure 4.

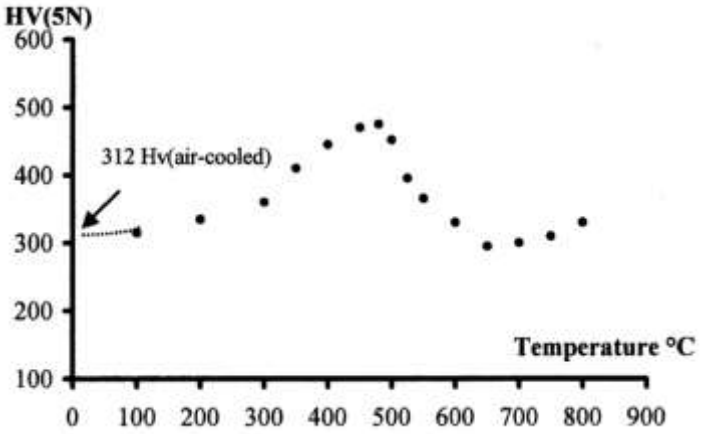


Figure 4 : Dureté en fonction de la température de revenu pour 2 h de traitement [9]

Les précipités de cuivre jouent une part importante dans le durcissement de l'alliage. Après trempe, la dureté est de 312 HV. Jusqu'à des températures de revenu allant jusqu'à 200 degrés, la dureté n'évolue que très peu. Par la suite, elle augmente au fur et à mesure que la température de revenu augmente pour atteindre un maximum autour de 475°C. Ensuite, jusqu'à environ 650°C, la dureté diminue, puis augmente à nouveau pour des températures de traitement plus élevées. Cette évolution de dureté est directement reliée à l'évolution des précipités de cuivre. Ceux-ci forment dans un premier temps des amas d'atomes de cuivre cohérent avec la matrice, qui croissent en fonction du temps et/ou de la température de traitement jusqu'à former une nouvelle phase cubique face centrée et semi-cohérente avec la matrice. Ces précipités sont presque exclusivement composés de cuivre, à hauteur de 96 % dans ces travaux. A noter que les précipités de cuivre en précipitant rejettent les atomes de chrome et de nickel, qui forment une couronne autour des précipités [10]. La présence d'un pic de dureté relié à la précipitation du cuivre a aussi été observée par Hsiao [11] sur un acier 17 4 PH.

Lors du traitement de revenu, une autre phase fait son apparition. En effet, lorsqu'on réchauffe un acier martensitique, à partir de la température As, soit Austenite Start, la matrice martensitique se transforme en austénite. Cette température n'est pas atteinte bien évidemment lors du traitement de revenu. Néanmoins, de l'austénite est observée après ce traitement. Ce phénomène a été observé par Viswanathan [12] et Hsiao [11] sur un acier de type 17 4 PH mais aussi par Nakagawa [13] et Song [14] sur d'autres aciers martensitiques. Cette austénite, que l'on appelle austénite de réversion, puisque venant de la réversion de la martensite en austénite lors du chauffage de l'alliage, est rendue thermodynamiquement stable à ces températures du fait de son enrichissement en éléments d'alliages gammagènes (nickel et cuivre), qui va abaisser sa température Ms en dessous de la température ambiante. L'austénite de réversion se forme après les précipités de cuivre, dans des zones où la concentration locale en cuivre et nickel est importante, typiquement, des précipités très fins autour des joints de lattes. Ces précipités de cuivre sont ainsi des sites préférentiels pour la germination de l'austénite de réversion, du fait aussi de la compatibilité des structures de type cubique faces centrées. La diffusion des éléments gammagènes va ainsi gouverner la précipitation de cette austénite de réversion [13]. L'austénite de réversion se présente sous forme de rubans localisés préférentiellement aux joints de lattes.

Malgré l'addition de niobium dans la composition de l'alliage afin de piéger le carbone, Habibi [9] a pu observer un certain nombre de carbures de chrome, de type Cr_7C_3 après traitement de revenu.

1.3. Influence de la microstructure sur les propriétés mécaniques

Examinons maintenant la contribution de chaque élément de la microstructure après trempe sur le comportement mécanique de l'alliage. Sur des aciers martensitiques, différents auteurs se sont ainsi intéressés à l'influence de la taille des anciens grains austénitiques [7], des paquets et des blocs de lattes [4] [5] [15] [16]. Bien évidemment, ces différentes échelles de microstructure sont liées. Néanmoins, il est possible de déterminer l'élément gouvernant le comportement global de l'alliage. Ainsi, les différents auteurs ont montré que la taille des blocs ou des paquets était l'élément le plus important pour caractériser d'un point de vue mécanique l'alliage. En se basant sur cet élément de microstructure, il est possible, en utilisant la relation de Hall-Petch, de modifier les propriétés mécaniques de l'alliage, en traction [4] par exemple. Krauss [17] propose ainsi une relation permettant de distinguer les différentes sources de durcissement au sein d'une structure martensitique :

$$\sigma_y = \sigma_0 + \sigma_p + \sigma_s + \sigma_\varrho + k_{HP}d^{-1/2}$$

où σ_y est la limite d'élasticité du matériau, σ_0 est contrainte de friction dans le fer pur, σ_p est l'effet du durcissement par précipitation, σ_s le durcissement par solution solide, σ_ϱ le durcissement induit par les dislocations à l'intérieur des lattes et $k_{HP}d^{-1/2}$ est le durcissement induit par les joints de grains, avec d la taille de l'élément représentatif de la microstructure et k_{HP} constante définie dans la loi de Hall et Petch. Cette relation montre qu'une diminution de la taille des blocs ou paquets induit une augmentation de la limite d'élasticité.

Cette méthode pour augmenter les propriétés mécaniques a aussi été utilisée pour augmenter la résilience de ces alliages, et plus particulièrement, contrôler la Température de Transition Ductile Fragile (TTDF). Ce changement brutal de comportement a couramment été illustré par la rupture de plusieurs coques de bateaux naviguant en eaux froides durant la deuxième guerre mondiale [16] : en dessous de la TTDF, le matériau présente un comportement fragile, alors qu'au dessus, celui-ci présente un comportement ductile. Le contrôle de cette température demeure primordial pour un certain nombre d'applications, telles les applications industrielles en grand froid et le stockage de produits à l'état liquide. L'origine de ces différents domaines peut être expliquée à l'aide du diagramme de Yoffee [15], Figure 5. Celui-ci représente la limite élastique effective en pointe de fissure σ_Y en fonction de la température. Celle-ci, diminue lorsque la température augmente. Sur ce même diagramme, la contrainte de rupture fragile σ_F est aussi représentée. Dans le cas des aciers martensitiques, celle-ci correspond à la contrainte de clivage. Celle-ci est supposée, comme suggérée sur le diagramme, indépendante de la température. Lorsque σ_Y et σ_F ont la même valeur, la rupture se fait alors de manière fragile, la TTDF est alors atteinte, notée T_B sur le diagramme. Deux approches sont alors possibles pour diminuer la TTDF : diminuer la limite d'élasticité effective en pointe de fissures ou augmenter la contrainte de rupture fragile. Une diminution de la taille des blocs va augmenter la contrainte de clivage et donc va permettre de diminuer la TTDF. A noter, comme en traction, lorsque la rupture se fait par clivage, celle-ci se fait selon des directions privilégiées aux joints de blocs [5] [18].

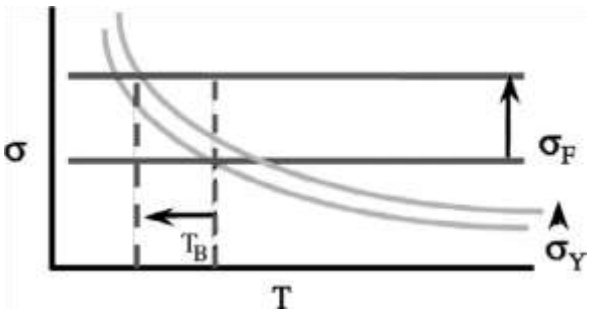


Figure 5 : Diagramme de Yoffee [15]

Dans ses travaux, Habibi [9] s'est aussi intéressé, en plus de la dureté, au comportement en traction de l'alliage. Le rôle de la précipitation de cuivre a été mis en lumière sur l'augmentation des propriétés mécaniques. Celles-ci évoluent de la même façon que la dureté, les propriétés mécaniques les plus hautes étant atteintes pour des traitements réalisés à 500°C. Si la précipitation de cuivre augmente les propriétés mécaniques, la formation d'austénite de réversion quant à elle va avoir tendance à adoucir le matériau, augmenter la ductilité, diminuer la résistance du matériau, abaisser sa TTDF, ou encore augmenter la résilience à température ambiante. Ces effets ont été observés par J.M. Cloué lors de ses travaux sur le PH 13 8 Mo [19], mais aussi par Nakagawa [13] et par Song [14]. Les résultats de ces deux dernières études sont présentés sur la Figure 6 et Figure 7.

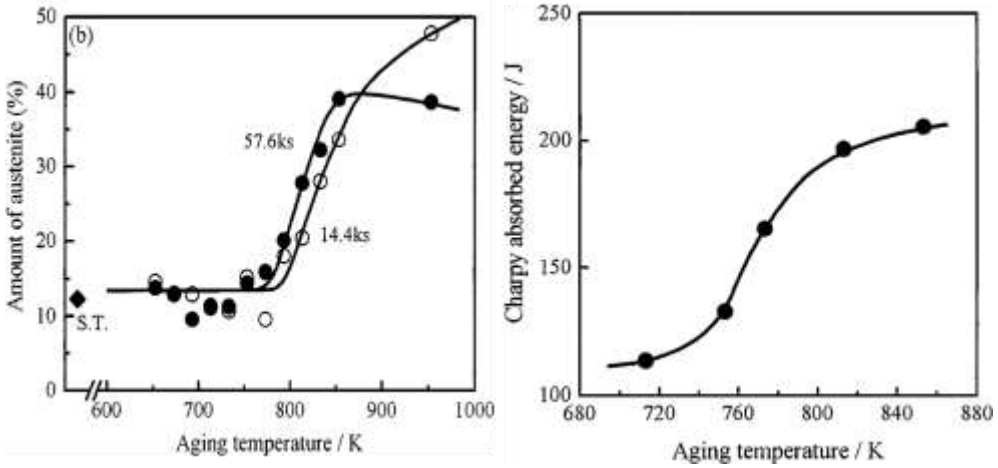


Figure 6 : Effet de la température de revenu sur la quantité d'austénite de réversion et sur la résilience à température ambiante pour un alliage de type Fe-16%-Cr-7%-Ni [13]

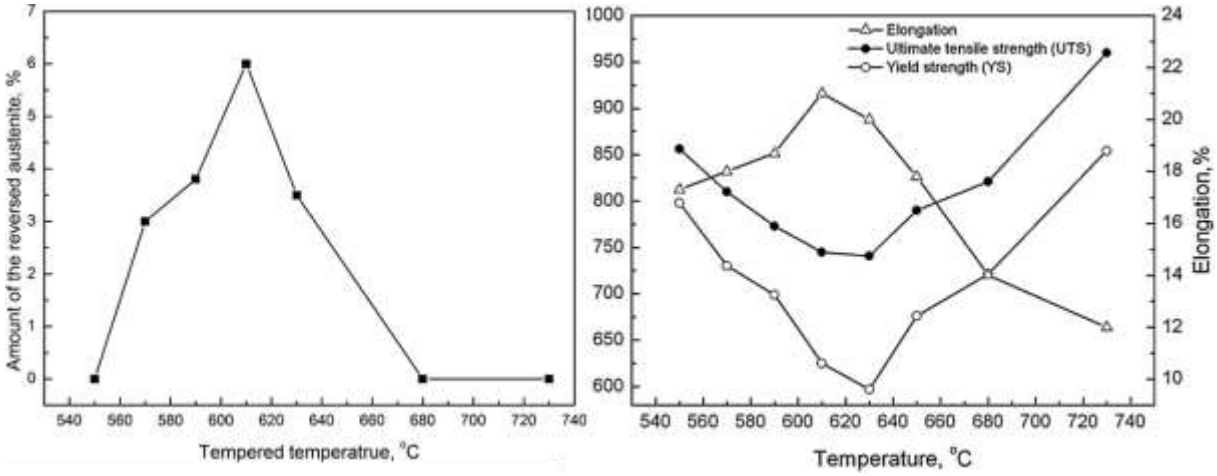


Figure 7 : Effet de l'austénite de réversion sur les propriétés mécaniques d'un alliage Fe-13%Cr-4%Ni-Mo après traitement de revenu d'une heure [14]

2. Vieillissement des aciers

Le vieillissement des aciers est un problème industriel connu depuis plusieurs décennies. Appelé endommagement à 475°C dans un premier temps, puisqu'observé après maintien d'alliages Fe-Cr à cette température, les études menées par la suite ont montré qu'en fait ce vieillissement pouvait se produire à des températures inférieures.

2.1. Origine du vieillissement

Afin d'expliquer le vieillissement des aciers, il faut s'intéresser à un système simple, le binaire Fe-Cr. La Figure 8 présente un diagramme de phase Fe-Cr. Celui montre la présence d'une lacune de miscibilité entre le fer et le chrome pour une température inférieure à 550°C. Dans la lacune de miscibilité, l'alliage se démixe pour former deux phases :

- la phase α', phase riche en chrome
- la phase α, phase riche en fer

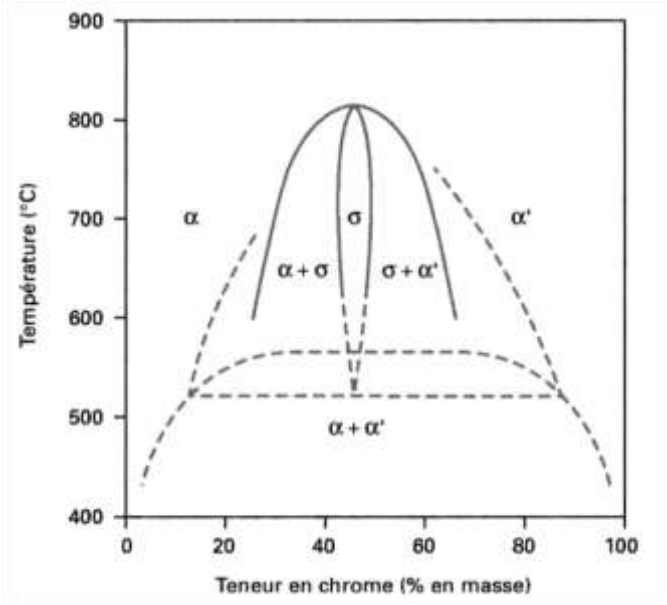


Figure 8 : Diagramme d'équilibre Fe-Cr

Toutefois, en s'intéressant de plus près à la lacune de miscibilité, on remarque qu'à l'intérieur de celle-ci deux domaines sont définis, séparés par la ligne spinodale, Figure 9.

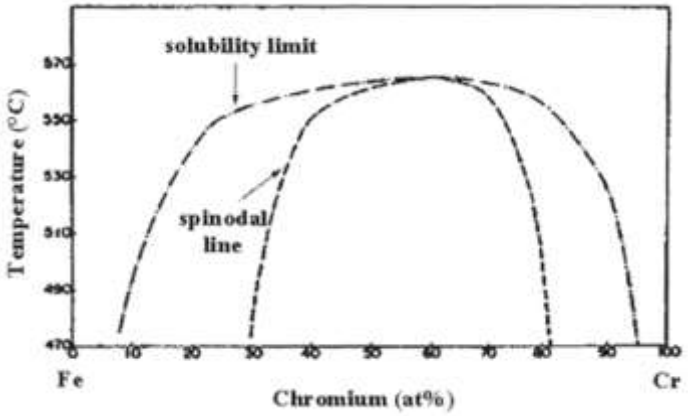


Figure 9 : Lacune de miscibilité dans le diagramme Fe-Cr

Ces deux domaines sont révélateurs de deux mécanismes de démixtion possible :

- la décomposition spinodale du matériau à l'intérieur du domaine défini par la ligne spinodale
- la germination croissance de la phase α', à l'extérieur de la ligne spinodale

Afin d'expliquer l'origine de ces deux modes de démixtion, il faut s'intéresser à la dérivée seconde de l'énergie libre du système [20]. La ligne spinodale représente le domaine où la dérivée

seconde de l'énergie libre est nulle. Lorsque celle-ci est négative, ceci implique que la moindre fluctuation de composition du système considéré va amener une diminution de l'énergie de celui-ci. C'est ce qui se passe dans le cas de la décomposition spinodale. Ceci a pour conséquence directe que la décomposition spinodale ne possède pas de temps d'incubation. Les atomes remontent les gradients de composition chimique, au lieu de les descendre comme attendu dans un processus classique de diffusion.

La décomposition spinodale peut être visualisée, en deux dimensions, par une variation sinusoïdale de la concentration de chrome dans ce cas là, possédant une longueur d'onde dépendant uniquement de la température de vieillissement. Communément, la longueur d'onde est estimée à une dizaine de nanomètres. Cette variation va affecter toute la matrice sujette à la décomposition spinodale. Au cours du vieillissement, l'amplitude des variations de concentration augmente jusqu'à atteindre la concentration d'équilibre. De plus, le réseau de zones riches en atomes de chrome par exemple, reste percolé et ne présente pas d'interface franche, mais une interface diffuse avec la matrice. L'intensité de la décomposition spinodale dépend du chrome présent dans l'alliage mais aussi du molybdène et du carbone. Une notion de chrome équivalent a été développée par Meyzaud et Cozard [21], par la suite reprise par Yrieix et Guttman [22] :

$$Cr^* = \%Cr + \% Mo - A(\%C)$$

Dans cette relation, les compositions sont exprimées en pourcentage massique, et A est un coefficient dépendant de la nature des carbures présents dans la solution solide, 16 pour uniquement des carbures de type $M_{23}C_6$, 12 pour des carbures $M_{23}C_6$ et $M_2(C,N)$ dans des proportions ¾ - 1/4 et enfin 8 pour des carbures $M_{23}C_6$ et Nb(C,N) en proportion égale.

Lorsque la dérivée seconde de l'énergie du système est positive, le mécanisme de démixtion est alors la précipitation de α'. Pour atteindre l'état d'équilibre, le système doit passer une barrière énergétique, ce qui nécessite un temps d'incubation. De plus lors de la précipitation de α', un germe ayant la concentration d'équilibre est créé puis grossit en développant une interface franche avec la matrice environnante. Ces caractéristiques marquent une différence prononcée avec le phénomène de décomposition spinodale.

Vu les échelles auxquelles se déroulent la décomposition spinodale, l'observation de la décomposition spinodale nécessite des moyens expérimentaux spécifiques. En effet, la différence de paramètre de maille étant faible entre α et α', de l'ordre de 0.002 nm d'après [23], la diffraction des rayons X ne permet pas l'observation d'une évolution des pics de diffraction. La microscopie électronique en transmission permet de la visualiser, notamment grâce à l'apparition d'un contraste moucheté probablement dû au protocole de préparation des échantillons i.e à l'effet de la composition chimique sur la cinétique de dissolution des oxydes. La résolution de l'attaque est de l'ordre de la taille des molécules de sorte qu'elle permet de révéler des écarts de cinétique à très petite échelle. Wang [24] et Weng [25] ont pu observer ce contraste moucheté sur des aciers 17 4 PH après vieillissement à 350°C et un acier duplex 2205 après vieillissement à 475°C, Figure 10, respectivement. Néanmoins, sur les aciers, l'observation en microscopie électronique en transmission de la décomposition spinodale est relativement rare. Dans ses travaux, Cloué [19] a pu observer la décomposition spinodale en microcopie électronique à balayage. Les moyens d'observation privilégiés pour observer cette derrière restent la spectroscopie Mössbauer, la diffusion centrale aux petits angles des rayons X et des neutrons [26] et surtout la sonde atomique tomographique. Cette dernière technique a d'ailleurs été largement utilisée [23] [27] [28] [29] [30] [31] [32]. La Figure 11 présente un résultat de sonde atomique tomographique obtenu par Danoix *et. al.* [29].

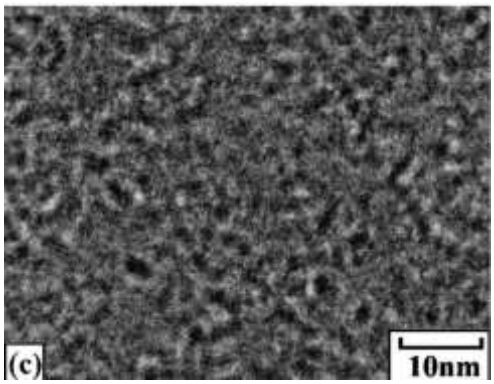


Figure 10 : Observation en microscopie électronique en transmission de la décomposition spinodale dans la ferrite sur un acier duplex 2205 d'après [25]

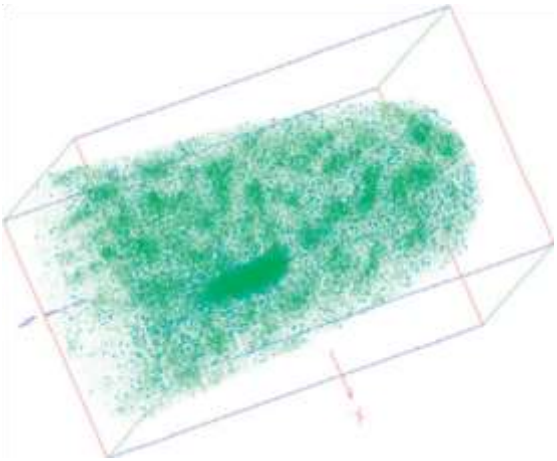


Figure 11 : Distribution des atomes de chrome dans un alliage Fe-15Cr-5Ni vieilli à 425°C pendant 1 000 h d'après [29]. Chaque point vert représente un atome de chrome

L'analyse thermique différentielle (ATD) permet également de mettre en évidence l'existence d'une démixtion par décomposition spinodale. En effet, lors du chauffage d'un échantillon vieilli, l'apparition d'un pic endothermique caractéristique de la remise en solution des atomes de chrome et de fer permet d'attester à la fois de la présence et de l'état d'avancement de la décomposition spinodale. Cette technique a été utilisée pour suivre l'évolution de la décomposition spinodale sur la nuance 15 5 PH dans les travaux de Herny [28] [33].

2.2. Conséquences du vieillissement

2.2.1. Sur la microstructure

En plus de la décomposition spinodale présentée précédemment, le vieillissement des aciers dans le domaine de la lacune de miscibilité amène d'autres changements au niveau de la microstructure de l'alliage. En effet, la décomposition spinodale engendre la diffusion d'un certain nombre d'éléments. Ainsi, il a été montré que le nickel et le manganèse sont rejetés par les zones riches en chrome alors que les zones riches en fer rejettent le silicium et le molybdène [23] [32] [34]. Ainsi, les domaines jouxtant ces deux types de zones sont thermodynamiquement stables pour la précipitation d'une phase de composition $Ni_{16}Ti_6Si_7$, appelée phase G. A noter que le chrome, le fer, le molybdène et le manganèse peuvent se substituer au titane et au nickel.

De plus, une précipitation de carbures de chrome peut être observée, essentiellement aux joints de lattes. Ces carbures de chrome sont essentiellement de la forme $Cr_{23}C_6$ [24] [30].

Il a aussi été observé une augmentation de la fraction volumique d'austénite de réversion. Cette austénite de réversion, déjà présente à l'état revenu peut croître et également précipiter aux joints de lattes [28].

Enfin, un complément de précipitation de phase durcissante a pu être mis en évidence par Herny dans ses travaux [28].

2.2.2. Sur le comportement mécanique de l'alliage

Ces évolutions au niveau de la microstructure au cours du vieillissement ont des répercussions importantes sur le comportement mécanique. Yrieix et Guttmann [22] proposent une revue détaillée des effets du vieillissement sur le comportement mécanique de différents aciers martensitiques avec des teneurs en chrome différentes. L'effet du vieillissement sur le comportement mécanique des aciers a fait l'objet d'un nombre important d'études. Nous pouvons citer en plus, entre autres, Cloué [19], Weng [25], Herny [28], Chandra [34], Mathew [35], Yamada [36] et Wang [37]. Un durcissement important du matériau est tout d'abord observé. Meyzaud et Cozard [21] proposent une relation permettant de calculer le durcissement maximal des aciers après vieillissement à 450°C. Yrieix et Guttmann [22] ont repris cette relation et ont ajusté les différents paramètres, et proposent ainsi :

$$\Delta HV_{max} = [23.8 - 0.34\ (\%\gamma)](Cr^{*}-10.2)$$

où γ représente la fraction volumique d'austénite de réversion et Cr* le chrome équivalent défini précédemment.. L'amplitude de durcissement est directement reliée à l'amplitude des variations de chrome. Une augmentation de la température augmente, pour un temps de vieillissement, l'amplitude de durcissement.

Logiquement, la limite d'élasticité ainsi que la résistance maximale à la traction augmentent également, Figure 12. Par contre, le matériau est fragilisé puisque sa ductilité diminue au fur et à mesure du vieillissement.

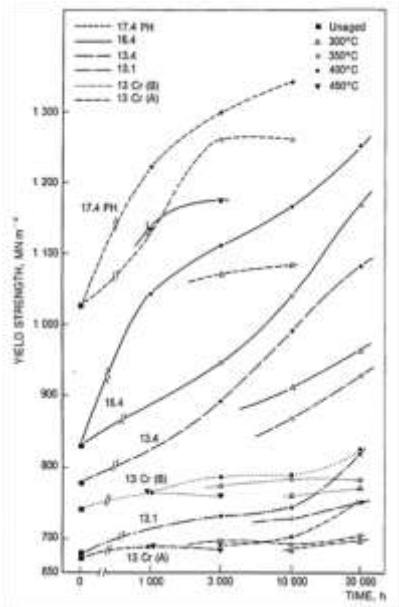


Figure 12 : Evolution de la limite d'élasticité après vieillissement d'après [22]

De plus, la température de transition ductile fragile augmente aussi. Ou, en d'autres termes, la résilience de l'alliage à température ambiante diminue au fur et à mesure du vieillissement, jusqu'à obtenir un matériau pouvant être fragile, Figure 13.

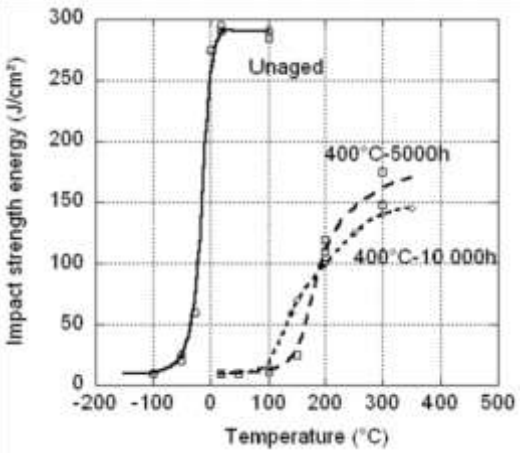


Figure 13 : Effet du vieillissement sur la résilience de l'alliage PH 13 8 Mo, d'après [19]

Les différents auteurs s'accordent sur le fait que la décomposition spinodale soit directement responsable de l'évolution des propriétés mécaniques. En effet, il existe un traitement thermique, appelé traitement de régénération, qui permet de remettre en solution le chrome et le fer. Après un passage à 550°C pendant au moins 20 min [28] [32] [36], les auteurs mesurent ensuite sur l'alliage des propriétés mécaniques similaires à celles mesurées avant le vieillissement. Néanmoins, ils observent toujours la présence de phase G et de carbures de chrome après ce traitement de régénération, montrant ainsi leur faible influence sur les propriétés mécaniques après vieillissement. De plus, certains auteurs ont pu relier directement l'évolution des propriétés mécaniques avec l'amplitude de la décomposition spinodale [38].

2.3. Vieillissement sous contrainte

Si l'effet du vieillissement sur les propriétés mécaniques a été largement étudié, ce n'est pas le cas du vieillissement sous contrainte, qui pourtant semble beaucoup plus proche des conditions d'utilisation de ces matériaux. Cet effet a néanmoins été mis en évidence par Cloué [19] sur le PH 13 8 Mo, puis observé aussi par Herny [28] et Danoix et.al. [29] sur le 15 5 PH et un alliage modèle Fe-15Cr-5Ni. Ces différents travaux, au cours desquels des éprouvettes ont été vieillies sous contrainte uni axiale de type traction, ont mis en évidence un effet de la contrainte sur la cinétique de vieillissement. En effet, pour des contraintes suffisamment élevées, la cinétique de durcissement est significativement augmentée. De plus, les analyses en sonde atomique tomographique réalisées par Danoix [29] ont permis de révéler une orientation des zones enrichies en chrome parallèlement à l'axe de sollicitation, lors de ces vieillissements. Néanmoins, cet effet n'a pas été observé dans toutes les zones analysées. La théorie développée par Cahn [20] prévoit que dans des solides anisotropes, les zones riches en chrome se développent préférentiellement selon les directions de faible raideur, c'est-à-dire dans les directions de type <100> dans une maille cubique centrée. En privilégiant ainsi des directions, la décomposition spinodale va ainsi être influencée par l'orientation d'une famille de lattes relativement à l'axe de traction. Des considérations plus avancées mettraient en avant une approche intégrant la mécanique du polycristal. Ce type d'approche ne fait pas pour l'instant, à notre connaissance, l'objet de travaux.

Synthèse

La microstructure des aciers martensitiques présente un nombre important d'éléments de différentes tailles, directement issus de la phase mère. Le comportement mécanique global de ces aciers est gouverné par la taille des blocs ou de paquets de lattes.

Le vieillissement thermique des aciers a été le sujet de nombreuses études. Deux mécanismes sont possibles lors du vieillissement :

- la précipitation de α', phase riche en chrome
- la décomposition spinodale de la matrice en zones riches en chrome et riches en fer

La composition de l'alliage ainsi que la température de vieillissement vont sélectionner la nature du mécanisme de vieillissement. Pour les aciers industriels, une augmentation de la température de vieillissement fait ainsi passer du mécanisme de décomposition spinodale à celui de précipitation.

La décomposition spinodale présente des caractéristiques microstructurales à l'échelle de l'atome et de la dizaine d'atomes.

Néanmoins, les conséquences à l'échelle macroscopique sont importantes. L'alliage se fragilise : la dureté ainsi que la résistance à la traction augmentent alors que la ductilité ainsi que la résilience à température ambiance diminuent.

Peu d'études se sont intéressées à l'influence de la contrainte sur la cinétique de vieillissement. L'étude de ce phénomène reste essentielle, puisque se rapprochant de conditions de vieillissement de pièces réelles.

Références

[1] C.Y. Kung et J.J. Rayment : An examination of the validity of existing empirical formulae for the calculation of ms temperature. 13(2):328–331–, 1982.

[2] S. Morito, X. Huang, T. Furuhara, T. Maki et N. Hansen : The morphology and crystallography of lath martensite in alloy steels. *Acta Materialia*, 54(19):5323–5331, novembre 2006.

[3] S. Morito, H. Tanaka, R. Konishi, T. Furuhara et T. Maki : The morphology and crystallography of lath martensite in fe-c alloys. *Acta Materialia*, 51(6):1789–1799, avril 2003.

[4] S. Morito, H. Yoshida, T. Maki et X. Huang : Effect of block size on the strength of lath martensite in low carbon steels. *Materials Science and Engineering: A*, 438-440(0):237–240, novembre 2006.

[5] John W Morris, Chris Kinney, Ken Pytlewski et Y Adachi : Microstructure and cleavage in lath martensitic steels. *Science and Technology of Advanced Materials*, 14(1):014208–, 2013.

[6] Hiromoto Kitahara, Rintaro Ueji, Nobuhiro Tsuji et Yoritoshi Minamino : Crystallographic features of lath martensite in low-carbon steel. *Acta Materialia*, 54(5):1279–1288, mars 2006.

[7] Y. Prawoto, N. Jasmawati et K. Sumeru : Effect of prior austenite grain size on the morphology and mechanical properties of martensite in medium carbon steel. *Journal of Materials Science & Technology*, 28(5):461–466, mai 2012.

[8] Goro Miyamoto, Naomichi Iwata, Naoki Takayama et Tadashi Furuhara : Mapping the parent austenite orientation reconstructed from the orientation of martensite by ebsd and its application to ausformed martensite. *Acta Materialia*, 58(19):6393–6403, novembre 2010.

[9] H. R. Habibi Bajguirani : The effect of ageing upon the microstructure and mechanical properties of type 15-5 ph stainless steel. *Materials Science and Engineering A*, 338(1-2):142–159, décembre 2002.

[10] M. Murayama, K. Hono et Y. Katayama : Microstructural evolution in a 17-4 ph stainless steel after aging at 400 Â°c. *Metallurgical and Materials Transactions A*, 30(2):345–353, 1999-02-01.

[11] C. N. Hsiao, C. S. Chiou et J. R. Yang : Aging reactions in a 17-4 ph stainless steel. *Materials Chemistry and Physics*, 74(2):134–142, mars 2002.

[12] U. K. Viswanathan, P. K. K. Nayar et R. Krishnan : Kinetics of precipitation in 17-4 ph stainless steel. *Materials Science and Technology*, 5(4):346–349, 1989-04-01T00:00:00.

[13] H. Nakagawa, T. Miyazaki et H. Yokota : Effects of aging temperature on the microstructure and mechanical properties of 1.8cu-7.3ni-15.9cr-1.2mo-low c, n martensitic precipitation hardening stainless steel. *Journal of Materials Science*, 35(9):2245–2253, 2000-05-01.

[14] Yuanyuan Song, Xiuyan Li, Lijian Rong et Yiyi Li : The influence of tempering temperature on the reversed austenite formation and tensile properties in fe-13%c-4%ni-mo low carbon martensite stainless steels. *Materials Science and Engineering: A*, 528(12):4075–4079, mai 2011.

[15] John William Morris, Jr. : On the ductile-brittle transition in lath martensitic steel:. *ISIJ International*, 51(10):1569–1575, 2011.

[16] J. W. Morris : Stronger, tougher steels. *Science*, 320(5879):1022–1023, mai 2008.

[17] George Krauss : Martensite in steel: strength and structure. *Materials Science and Engineering: A*, 273-275(0):40–57, décembre 1999.

[18] Jun Wang, Hong Zou, Cong Li, Shaoyu Qiu et Baoluo Shen : The spinodal decomposition in 17-4ph stainless steel subjected to long-term aging at 350 °c. *Materials Characterization*, 59(5):587–591, mai 2008.

[19] Jean-Marc Cloué : *Justification de la tenue en service en milieu primaire REP d'un acier martensitique à durcissement structural*. Thèse de doctorat, Ecole des Mines de Paris, 1998.

[20] John W. Cahn : Phase separation by spinodal decomposition in isotropic systems. *The Journal of Chemical Physics*, 42(1):93–99, 1965.

[21] Y.Meyzaud et R.Cozar : Ferritic alloys for use in nuclear energy technologies. *In AIME Conference*, June 1983.

[22] B. Yrieix et M. Guttmann : Aging between 300 and 450°c of wrought martensitic 13-17 wt-%cr stainless steels. *Materials Science and Technology*, 9(2):125–137, 1993-02-01T00:00:00.

[23] P. Auger, F. Danoix, A. Menand, S. Bonnet, J. Bourgoin et M. Guttmann : Atom probe and transmission electron microscopy study of aging of cast duplex stainless steels. *Materials Science and Technology*, 6(3):301–313, 1990-03-01T00:00:00.

[24] Jun Wang, Hong Zou, Cong Li, Yanhua Peng, Shaoyu Qiu et Baoluo Shen : The microstructure evolution of type 17-4ph stainless steel during long-term aging at 350°c. *Nuclear Engineering and Design*, 236(24):2531–2536, décembre 2006.

[25] K.L Weng, H.R Chen et J.R Yang : The low-temperature aging embrittlement in a 2205 duplex stainless steel. *Materials Science and Engineering: A*, 379(1-2):119–132, août 2004.

[26] T. Ujihara et K. Osamura : Kinetic analysis of spinodal decomposition process in fe-cr alloys by small angle neutron scattering. *Acta Materialia*, 48(7):1629–1637, avril 2000.

[27] T. Leax, S. Brenner et J. Spitznagel : Atom probe examination of thermally ages cf8m cast stainless steel. *Metallurgical and Materials Transactions A*, 23(10):2725–2736, octobre 1992.

[28] Emilie Herny : *Caractérisation mécanique et étude des mécanismes de vieillissement thermique et thermomécanique de l'acier inoxydable martensitique 15 5 PH, soudé par faisceau d'électrons*. Thèse de doctorat, INP Toulouse, 2006.

[29] F. Danoix, J. Lacaze, A. Gibert, D. Mangelinck, K. Hoummada et E. Andrieu : Effect of external stress on the fe-cr phase separation in 15-5 ph and fe-15cr-5ni alloys. *Ultramicroscopy*, 132(0):193–198, septembre 2013.

[30] J.E. Brown et G.D.W. Smith : Atom probe studies of spinodal processes in duplex stainless steels and single- and dual-phase fe-cr-ni alloys. *Surface Science*, 246(1â€“3):285–291, avril 1991.

[31] Z. Guo, W. Sha et D. Vaumousse : Microstructural evolution in a ph13-8 stainless steel after ageing. *Acta Materialia*, 51(1):101–116, janvier 2003.

[32] H. M. Chung et T. R. Leax : Embrittlement of laboratory and reactor aged cf3,cf8, and cf8m duplex stainless steels, 1990-03-01T00:00:00.

[33] Andrieu E. Lacaze J. Danoix F. Lecoq N. Herny, E. : Study by differential thermal analysis of reverse spinodal transformation in 15-5 ph alloy. *Solid State Phenomena*, 172-174:338–343, 2011.

[34] K. Chandra, Vivekanand Kain, Vikas Bhutani, V.S. Raja, R. Tewari, G.K. Dey et J.K. Chakravartty : Low temperature thermal aging of austenitic stainless steel welds: Kinetics and effects on mechanical properties. *Materials Science and Engineering: A*, 534(0):163–175, février 2012.

[35] M.D. Mathew, L.M. Lietzan, K.L. Murty et V.N. Shah : Low temperature aging embrittlement of cf-8 stainless steel. *Materials Science and Engineering: A*, 269(1â€“2):186–196, août 1999.

[36] Takuyo Yamada, Satoshi Okano et Hisashi Kuwano : Mechanical property and microstructural change by thermal aging of scs14a cast duplex stainless steel. *Journal of Nuclear Materials*, 350(1):47–55, mars 2006.

[37] Jun Wang, Hong Zou, Cong Li, Shao-yu Qiu et Bao-luo Shen : The effect of microstructural evolution on hardening behavior of type 17-4ph stainless steel in long-term aging at 350°c. *Materials Characterization*, 57(4-5):274–280, décembre 2006.

[38] P. H. Pumphrey et K. N. Akhurst : Aging kinetics of cf3 cast stainless steel in temperature range 300-400°c, 1990-03-01T00:00:00.

Chapitre II : Techniques expérimentales et matériaux de l'étude

Comme précisé dans le chapitre précédent, les matériaux de l'étude présentent une telle diversité d'échelles de microstructure qu'il est relativement impératif d'utiliser des moyens d'étude et d'observation disponibles pour la communauté des métallurgistes mais cependant assez éloignés du laboratoire. Dans ce contexte, la mise en œuvre d'une démarche s'efforçant de valider des corrélations entre les résultats obtenus avec des outils de mesure aisément accessibles au sein du laboratoire et ceux obtenus sporadiquement avec les grands instruments ou la SAT par exemple est justifiée. Ces corrélations permettent également de mesurer la difficulté et le poids des effets d'échelle dans ce domaine des sciences mais aussi permettent dans certains cas d'établir des relations claires entre les mécanismes élémentaires et le comportement macroscopique. .

Dans un premier temps, nous présentons les différents moyens de caractérisation utilisés lors de cette étude puis, dans un deuxième temps, nous présentons les matériaux de l'étude.

1. Techniques de caractérisation utilisées

1.1. Techniques d'observation et d'analyse

La microstructure relativement complexe de l'alliage nécessite l'utilisation de divers moyens d'observation afin de pouvoir accéder à toutes les échelles de microstructure.

1.1.1. Microscopie optique

Une préparation métallographique utilisant des attaques chimiques ou électrochimiques permet d'observer par microscopie optique quelques éléments de la microstructure de ces aciers. Les échantillons sont polis mécaniquement en utilisant des papiers de polissage revêtus de carbures de silicium. Ensuite, ils sont polis sur des draps imprégnés de suspensions diamantées, jusqu'à atteindre un polissage dit « miroir ». Il existe différentes attaques qui permettent d'observer des éléments de la microstructure de l'alliage. Une liste non exhaustive est présentée dans le Tableau 3. Ces attaques utilisées dans le cadre de ce travail ont été éprouvées et validées.

Nom de l'attaque	Composition	Conditions d'utilisation	Eléments révélés
Kalling	5 gr de $CuSO_4$ 100 mL HCl 100 mL Ethanol 100 mL eau distillée	Immersion de l'échantillon	Anciens joint de grains Lattes de martensites
Acide fluorhydrique	85 mL eau distillée 15 mL HF	15 V / 10 s	Anciens joints de grains Lattes de martensite
Vilella	100 mL éthanol 5 mL HCl 1 g Acide picrique	Immersion de l'échantillon	Carbures Austénite de réversion Lattes de martensite Anciens joints de grains

Tableau 3 : Liste des attaques chimiques et électrochimiques utilisées

1.1.2. Microscopie électronique à balayage

Deux microscopes électroniques à balayage (MEB) ont été utilisés au cours de l'étude :

Un appareil conventionnel de type LEO 435 VP, couplé à un analyseur EDX, localisé au CIRIMAT/ENSIACET a été utilisé pour observer les faciès de rupture d'éprouvettes de traction, d'éprouvettes de ténacité et d'éprouvettes Charpy.

La microstructure a également été caractérisée en utilisant une caméra EBSD couplée au logiciel de traitement de données Channel 5 de Oxford Instruments, l'EBSD étant implantée sur un microscope électronique pourvu d'un canon à effet de champ (MEB-FEG) JEOL JSM 7000F localisé au laboratoire Génie de Production, le LGP, de l'ENI de Tarbes. Les observations ont été réalisées avec l'aide de Joël Alexis.

L'observation d'un échantillon en EBSD nécessite une préparation de surface particulièrement soignée. En effet, le but est de retirer la couche superficielle écrouie durant les différentes étapes de polissages, qui pourrait empêcher l'indexation des grains. Pour cela, dans le cas de l'alliage 15 5 PH, deux protocoles ont été testés. Dans un premier temps, un polissage mécanique réalisé sur une polisseuse automatique. Ceci permet de contrôler la force appliquée sur l'échantillon mais aussi de s'affranchir d'éventuels problèmes liés au polissage lorsque celui-ci est opéré manuellement (facettage, écrouissage, impatience). La gamme de polissage est la même que celle expliquée auparavant pour les préparations métallographiques. Une étape de polissage en utilisant une solution d'OPS est néanmoins rajoutée dans le but de relaxer les éventuelles contraintes résiduelles induites par le polissage.

La deuxième méthode permettant de préparer les échantillons est un polissage électrochimique. Celui-ci permet aussi de relaxer les contraintes résiduelles. Toutefois, il présente l'inconvénient d'un possible déchaussement de carbures (quelque fois observé). Dans notre cas, cet effet n'est pas constaté. Des polissages électrolytiques ont donc été réalisés en utilisant la solution A2 de chez Buelher.

Les deux méthodes, bien que différentes, ont été utilisées avec succès. Elles permettent en effet d'avoir un taux d'indexation supérieur à 80%.

1.1.3. Microscopie électronique en transmission

Le microscope électronique en transmission (MET) permet une observation des plus petits éléments de la microstructure de l'alliage. Afin de réaliser les observations, des lames minces ont été réalisées par polissage successif jusqu'à une épaisseur d'environ 100 µm. Ces lames sont ensuite amincies de manière électrolytique jusqu'à obtenir un échantillon transparent aux électrons. Cette dernière étape est réalisée dans une solution d'acide acétique avec 5 % en volume d'acide perchlorique, sous une tension de 70 volts à 15°C.

L'appareil utilisé est un MET équipé d'un canon à effet de champ, le JEOL JSM 2100 situé au service TEMSCAN de l'Université Paul Sabatier. Cet appareil permet de réaliser des images en haute résolution (MET-HR). Un analyseur EDS est couplé à l'appareil permettant de faire des analyses semi-quantitatives. Les observations ont été réalisées par Marie-Christine Lafont.

1.1.4. Diffraction des rayons X

L'analyse par diffraction des rayons X (DRX) permet l'identification des phases en présence dans les matériaux. En utilisant la méthode de Rietveld avec le logiciel TOPAS, une analyse quantitative des phases présentes dans l'alliage est possible. L'analyse par DRX a été utilisée dans cette étude pour quantifier l'austénite de réversion. Dans un premier temps, des appareils conventionnels, dits de laboratoire, ont été utilisés. Ces appareils, pourvus d'anodes au cuivre et au cobalt, n'ont toutefois pas permis d'accéder avec précision à la quantité d'austénite de réversion. Les problèmes de fluorescence du fer ainsi que de texture et de volume analysé trop faible ont été rencontrés. Afin de résoudre ces problèmes, nous avons utilisé le rayonnement synchrotron. En effet dans ces conditions d'analyse, le faisceau de rayons X de haute énergie, permet d'exploiter aussi bien le faisceau diffracté que transmis et également d'avoir un volume analysé beaucoup plus important et de s'affranchir des problèmes de texture.

Les mesures ont été effectuées à l'European Synchrotron Radiation Facility (ESRF) à Grenoble, sur la ligne ID11 sous une énergie de 45 keV. Les échantillons utilisés ont une épaisseur de 1 mm avec un état de surface correspondant à un poli papier grade 1200 et sont montés sur un porte échantillon afin de procéder à des analyses en routine. Les mesures ont été réalisées par Jonathan Wright de l'ESRF et les analyses avec l'aide de Benoit Malard.

1.2. Techniques de caractérisation des propriétés mécaniques

1.2.1. Essai de dureté

Il existe différents types d'essais de dureté, dépendant de la valeur de la charge appliquée lors de l'essai et du type d'indenteur. Au cours de l'étude, des essais de nano, micro et macro dureté ont été effectués avec des pointes diamant de type Vickers et Berkovich. . Il existe une corrélation très robuste entre la dureté Vickers et la résistance à la traction qui indique qu'il suffit de multiplier par trois la dureté pour connaître la résistance à la traction. Cependant pour être applicable sans trop de risques, le volume de matière impliqué dans la formation de l'empreinte doit comprendre l'ensemble des éléments de la microstructure dans les proportions représentatives du matériau étudié. On peut évoquer ici la notion de volume élémentaire représentatif. Dans ces conditions, la mesure de la dureté utilisant ces pointes permet de remonter facilement à la résistance en traction du matériau puisqu'il existe un rapport 3 entre la dureté est la résistance maximale à la traction [1].

Les essais de nano dureté ont été réalisés à l'aide d'un appareil MTS XP nano situé au LGP à l'ENI de Tarbes. Il était équipé d'une pointe de type Berkovich modifiée, qui n'est autre qu'une pyramide à base triangulaire avec un angle au sommet de 65.27°.

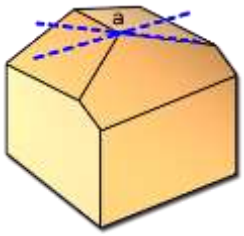


Figure 14 : Géométrie de l'indenteur de type Berkovich

Les essais de nanodureté sont des essais instrumentés, c'est-à-dire que la charge appliquée et le déplacement de l'indenteur sont enregistrés simultanément. La dureté est alors définie comme le rapport entre la charge appliquée F_{max} et l'aire de contact projetée A_p à la profondeur correspondant au déplacement de contact h_c, soit :

$$H=F_{max}/A_p(h_c)$$

La profondeur de contact h_c dépend de la profondeur de pénétration maximale de l'indenteur h_t, de la rigidité S du contact et d'un facteur ε valant 0.75 dans le cas d'un indenteur de type Berkovich :

$$h_c = h_t - \varepsilon P_{max}/S$$

La Figure 15 permet la visualisation des notions de profondeur de contact h_c et de profondeur de pénétration de l'indenteur h_t.

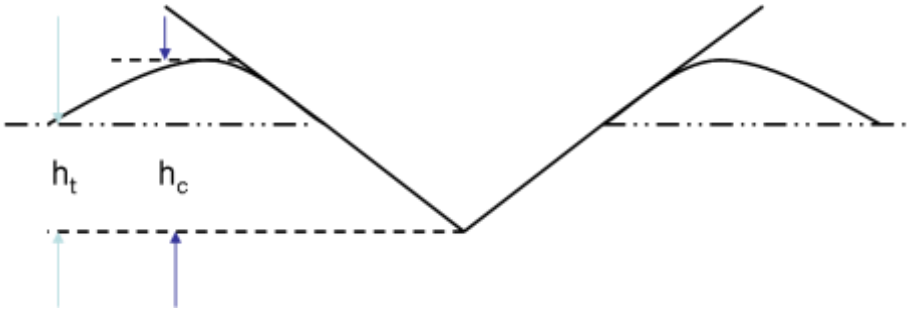


Figure 15 : Schéma d'un pénétrateur en contact avec l'échantillon

La Figure 16 montre un exemple de courbe chargement-déchargement obtenu lors d'un essai de nano indentation.

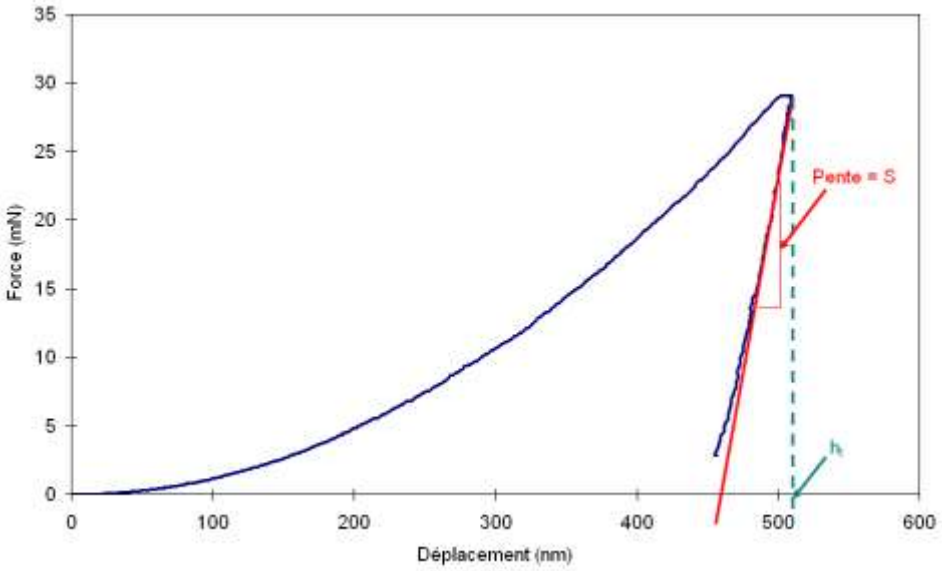


Figure 16 : Exemple de courbe chargement-déchargement

Afin de s'affranchir au maximum des problèmes d'écrouissage de surface, les échantillons utilisés en nanodureté ont été polis avec des papiers de polissage puis polis sur des draps à la pâte diamantée en finissant avec une granulométrie de 0.25 µm. Les essais ont été pilotés en profondeur de pénétration, ce qui diffère des autres essais de dureté qui sont pilotés en charge.

Les essais de micro dureté et de dureté sous charge réduite ont été réalisés sur un appareil Omnimet 2100 Serie de chez Buehler, installé au CIRIMAT à Toulouse. Il était équipé d'une pointe de type Vickers, soit une pyramide à base carré avec un angle de 136° entre les deux faces opposées (Figure 17). Cet appareil permet de faire des essais de dureté avec des charges entre 25 g et 1 kg.

Les essais de macro dureté ont été réalisés sur un appareil de marque Zwick et Roell situé au LGP à l'ENI de Tarbes. Il était aussi équipé d'une pointe de type Vickers. Cet appareil permet de pratiquer des essais de dureté instrumentés avec des charges allant de 25 g jusqu'à 50 kg.

Lors d'un essai Vickers, la détermination de la dureté Vickers repose sur la mesure de l'empreinte résiduelle laissée par l'indent après application de la charge et maintien pendant un temps donné. La dureté est obtenue par le rapport entre la charge P (en newton) et l'aire de l'empreinte moyenne d, soit:

$$HV = 0.102*2*P*\sin(136/2)*d^2=0.1891\ P/d^2$$

Le symbole HV est suivi de la charge utilisée ainsi que du temps de maintien, soit par exemple $HV_{1\ 10s}$. Pour réaliser les essais de dureté Vickers, les échantillons ont été polis mécaniquement jusqu'àu grade 2400.

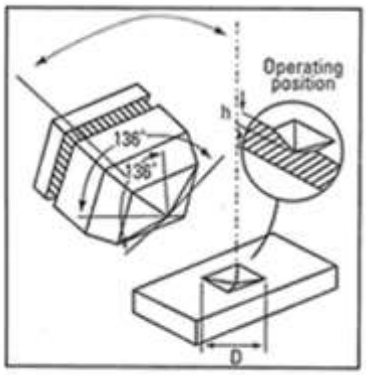


Figure 17 : Géométrie du pénétrateur de type Vickers

Afin de comparer les essais réalisés en nano dureté et en micro/macro dureté, nous introduisons ici la dureté Martens. Elle est définie par le rapport entre la force et l'aire de contact entre l'indenteur et le matériau As(h) à une profondeur donnée. La pointe de type Berkovich modifiée ayant été définie comme la même aire de contact As avec la profondeur d'indentation h que la pointe de type Vickers, la dureté Martens se définit par :

$$HM = F/As(h)*h^2 = F/26.43*h^2$$

Avec $As(h) = 4*\sin(\alpha/2)/(\cos^2(\alpha/2))*h^2$ dans le cas d'un pénétrateur de type Vickers et $As(h) = 3\sqrt{3}\tan\alpha/\cos(\alpha)*h^2$ dans le cas d'un pénétrateur de type Berkovich.

De par sa définition, la dureté Martens permet de s'affranchir des problèmes de retour élastique.

1.2.2. Essais de traction

Les essais de traction ont été réalisés sur une machine de traction servo-hydraulique MTS 810 présente au CIRIMAT. Cette machine est équipée d'un capteur de force de 100 kN et le suivi de déformation se fait à l'aide de LVDT reliés par des plaquettes à l'éprouvette de traction.

Au cours de l'étude, des essais en température, aussi bien à chaud qu'à froid, devant être réalisés, la machine de traction a été équipée d'une enceinte climatique MTS qui permet de faire varier la température entre -150 °C et 530 °C de manière homogène dans l'enceinte grâce à un brassage important de l'atmosphère dans l'enceinte.

Les éprouvettes utilisées ont la géométrie définie sur la Figure 18. Elles sont issues de profils ayant la forme de l'éprouvette. Par la suite, les éprouvettes sont découpées dans le profil avec une micro tronçonneuse.

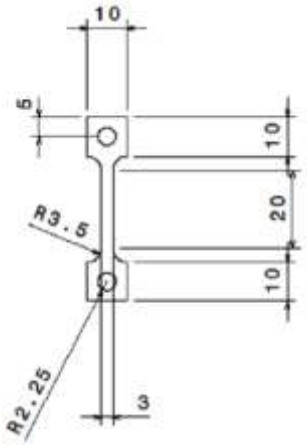


Figure 18 : Géométrie des éprouvettes de traction

Une fois les éprouvettes découpées, celles-ci sont polies de manière automatique afin de retirer une centaine de microns de chaque côté de l'éprouvette. Suite à cette opération, l'épaisseur de l'éprouvette est contrôlée en trois points le long de la zone utile. Une étape de finition réalisée par polissage au papier grade 1200 des deux faces de l'éprouvette vient compléter la préparation. Des essais de traction ont été réalisés à la température l'ambiante sur des éprouvettes de différentes épaisseurs afin de définir l'épaisseur minimale nécessaire pour accéder au comportement mécanique intrinsèque au matériau. Les résultats sont présentés sur la Figure 19. La principale remarque est que pour une épaisseur inférieure à 0.5 mm, l'allongement à rupture du matériau est fortement diminué. Il est noté également que ni le module de Young, ni la limite d'élasticité ne sont affectés. Par conséquent, pour le reste de l'étude, l'épaisseur minimale des éprouvettes de traction a été fixée à 0.8 mm.

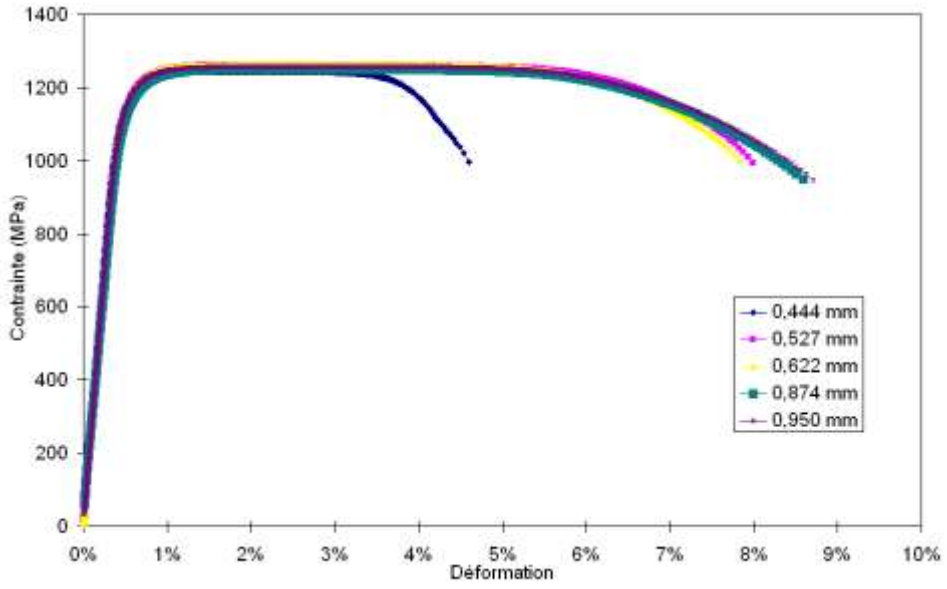


Figure 19 : Effet de l'épaisseur de l'éprouvette sur la réponse mécanique de l'alliage

1.2.3. Essais Charpy

Afin de déterminer la résistance au choc de l'alliage, des essais de résilience Charpy ont été réalisés. Le principe de l'essai est assez simple : un pendule avec un couteau vient impacter une éprouvette entaillée. L'essai est assimilable à un essai de flexion 3 points dynamique. Au moment de l'impact du couteau avec l'éprouvette, l'énergie du pendule est connue. L'énergie nécessaire à la rupture de l'éprouvette est calculable en mesurant la hauteur à laquelle le pendule remonte après rupture de l'éprouvette. Il existe différents modèles de pendules, couvrant une large gamme d'énergie allant de quelques joules à quelques kilojoules. Des pendules de 300 J sont couramment utilisés. Des essais effectués à différentes températures amènent à la détermination de la température de transition ductile fragile (TTDF).

De nos jours, le pendule instrumenté devient de plus en plus courant. Ce type de pendule permet d'enregistrer en continu la force et le déplacement du marteau, amenant plus d'information au niveau de l'initiation et de la propagation de la fissure.

Il a été montré sur plusieurs types d'alliages qu'il n'y avait pas d'effet de la vitesse de déformation sur la résilience [2]. Dans leurs travaux, Tanguy et ses collaborateurs ont montré que sur un acier de type 16MND5, une baisse de la vitesse d'avance du couteau engendrée une baisse du niveau du palier ductile. Par contre, la TTDF n'était que faiblement influencé par ce changement de vitesse. Dans cette étude, nous avons donc développé un banc d'essai Charpy quasi statique. L'essai Charpy étant un essai de flexion 3 points, des appuis ayant la même géométrie que ceux utilisés lors d'un essai Charpy conventionnel ont été réalisés. Ceux-ci ont été adaptés sur un banc de flexion 3 & 4 points de MTS et le tout a été monté sur la machine de d'essai MTS 810. Inséré dans l'enceinte climatique, ce dispositif permet d'effectuer des essais Charpy quasi statique entre -150 °C et 530 °C, Figure 20.

Figure 20 : Dispositif d'essais Charpy Quasi Statique

Les éprouvettes utilisées sont des éprouvettes de 55 mm de long, de section de 6x10 mm², avec une entaille centrale en V (angle de 45°, profondeur de 2 mm et rayon de fond d'entaille de 0.25 mm) et des entailles latérales (0,5 mm de profondeur et rayon de fond d'entaille de 0,25 mm). Cette géométrie ne correspond pas au standard, selon lequel des éprouvettes à section carrée 10x10 mm² sans entailles latérales sont utilisées. Les entailles latérales permettent à la fois

de limiter voire supprimer la zone en contrainte plane et de mieux définir le plan de rupture. L'effet d'épaisseur a été étudié sur différents matériaux [19]. La réduction d'épaisseur comme la présence d'entailles latérales diminuent l'énergie de rupture intrinsèque du matériau [28].

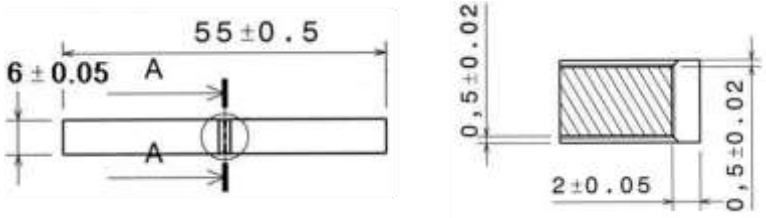


Figure 21 : Eprouvettes Charpy entaillées

2. Présentation du matériau à l'état de réception

2.1. Composition de l'alliage

L'acier 15 5 PH a été élaboré par la société Aubert et Duval. La coulée est obtenue par refusion d'électrode consommable sous laitier. Par la suite, un méplat de dimensions 140x60 mm a été obtenu par forgeage. Lors de cette étude, deux coulées (nommées A et B) ont été utilisées. Les compositions sont reportées dans le Tableau 4.

Coulée	C	Si	Mn	S	P	Ni	Cr	Mo	Cu	Nb	Fe
A	0.025	0.38	0.80	<0.002	0.019	4.93	14.87	0.27	2.99	0.21	Base
B	0.024	0.32	0.94	<0.002	0.014	4.84	14.78	0.25	2.95	0.20	Base

Tableau 4: Composition en pourcentage massique des deux coulées de 15 5 PH 1200 MPa étudiées

L'acier 15 5 PH se caractérise par une faible teneur en carbone et une concentration en chrome lui permettant d'être qualifié d'inoxydable. Les compositions des deux coulées diffèrent peu (Tableau 2).

2.2. Traitements thermiques

Une fois le méplat obtenu, celui-ci subit un traitement d'austénitisation (remise en solution) à 1040°C pendant 1 heure suivi d'un refroidissement à l'air (Trempe). Lors de ce refroidissement, la matrice totalement austénitique se transforme en martensite. Cette transformation de phase débute à partir d'une température donnée, Ms, qui correspond à l'apparition des premières lattes de martensite et se termine à plus basse température M_F. La température de début de transformation peut être estimée par des relations empiriques. La relation établie par Steven et Haynes [1] pour un acier ayant une composition proche, permet d'avoir une bonne évaluation de cette température :

$$Ms= 561 – 474\ (\%C) – 17\ (\%Cr) – 17(\%Ni) – 33\ (\%Mn) – 21\ (\%Mo) + 10\ (\%Co) – 7.5\ (\%Si)$$

Cette relation appliquée à l'alliage de l'étude donne une température Ms d'environ 180°C pour les deux coulées.

Ces aciers sont des aciers PH, nécessitant un traitement thermique après la trempe, pour les amener au niveau de performance requis. Ce traitement thermique a pour objectif de faire précipiter le cuivre, sous forme de particules à l'intérieur de la martensite et par là même,

d'engendrer un complément de durcissement. Ce traitement va modifier profondément la microstructure de l'alliage et déterminer son comportement mécanique. Des études préliminaires réalisées par Aubert et Duval ont montré que, pour une durée de traitement de 4 heures suivie d'un refroidissement à l'air, le maximum de résistance mécanique est obtenu pour une température de traitement de 490°C et qu'une résistance à la traction de 1200 MPa était atteinte pour un traitement réalisé à 515°C. Pour garder une certaine marge, il a été décidé d'appliquer au méplat un traitement de 4 heures à 505°C, avec un enfournement des pièces dit à « four chaud ». Cet état métallurgique correspond à l'état de réception des méplats. Par comparaison, l'état 1070 MPa est obtenu par un vieillissement de 4 heures à 550°C, avec une rampe contrôlée de montée en température (2,2°C/min). La Figure 22 schématise les traitements thermiques effectués sur le 15 5 PH.

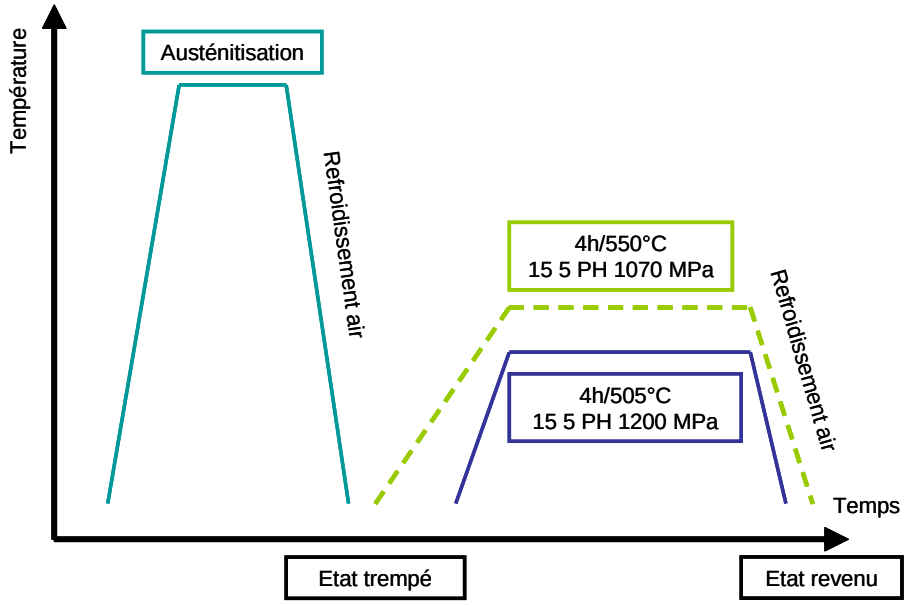


Figure 22 : Traitements thermiques réalisés sur le 15 5 PH

2.3. Microstructure de l'alliage 15 5 PH 1200 MPa à l'état revenu

L'alliage 15 5 PH présente une microstructure relativement complexe qui peut être déclinée à différentes échelles. Comme évoqué dans la section précédente, la première partie du traitement thermique correspond à une austénitisation de l'alliage suivi d'un refroidissement à l'air, déclenchant la transformation de l'austénite en martensite. Après trempe, il n'a pas été mis en évidence d'austénite résiduelle. On retrouve, après attaque électrochimique et observation au microscope optique, les anciens joints austénitiques ainsi que les lattes de martensite (Figure 23). La taille des anciens grains austénitiques a été déterminée dans les trois plans du méplat, par la méthode des intercepts. Il n'y a pas de texture morphologique dans le méplat, on observe donc des grains équiaxes dont la taille moyenne est de 25 µm. Une attaque chimique utilisant le réactif Vilella a aussi été effectuée sur l'alliage. Celle-ci permet de mettre en évidence les carbures de niobium (NbC), issus de la coulée (Figure 24). Ceux-ci sont globulaires de diamètre d'environ 200 nm. Des analyses EDS faites en MET confirment la nature de ces précipités (Figure 25). Bien évidemment le traitement de revenu n'affecte pas la morphologie des anciens grains austénitiques, comme la distribution et la taille des carbures de niobium.

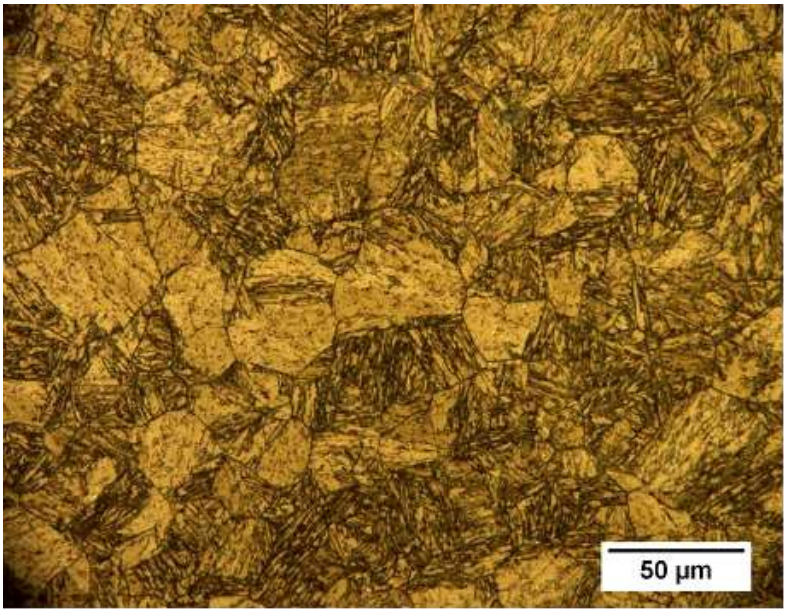


Figure 23 : Observation de la microstructure du 15 5 PH suivant le plan L-TC à l'état revenu après attaque électrochimique HF 15%

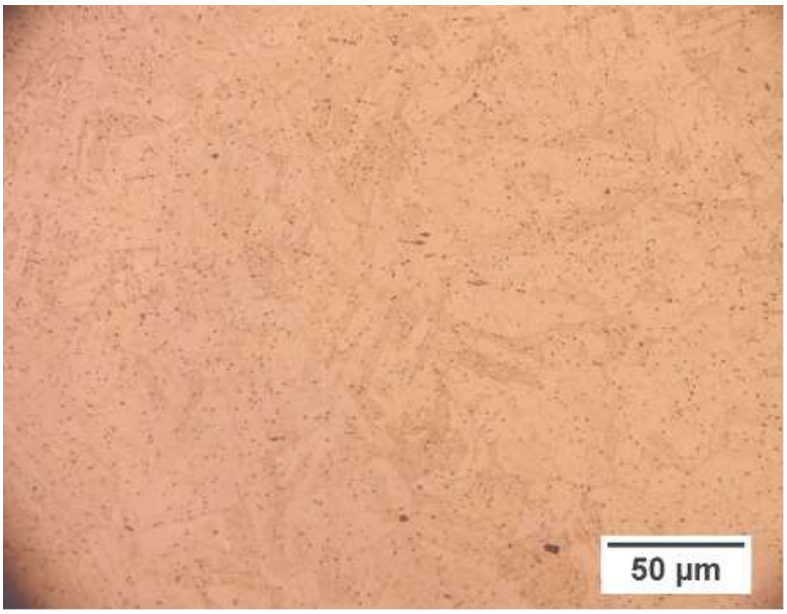
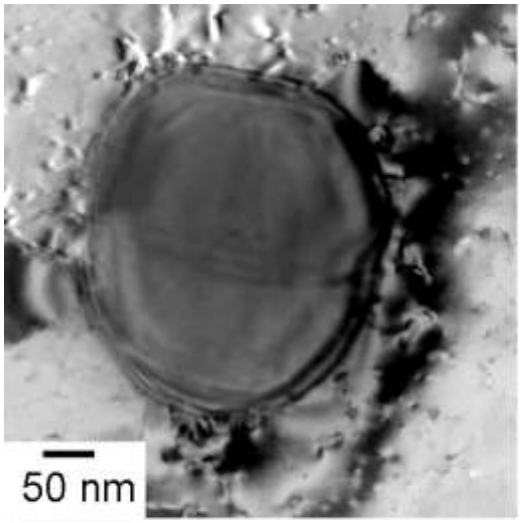


Figure 24 : Observation de la microstructure du 15 5 PH à l'état revenu après attaque chimique avec le réactif Vilella



Elément	% At.
Fer	3
Cuivre	3
Chrome	3
Niobium	91

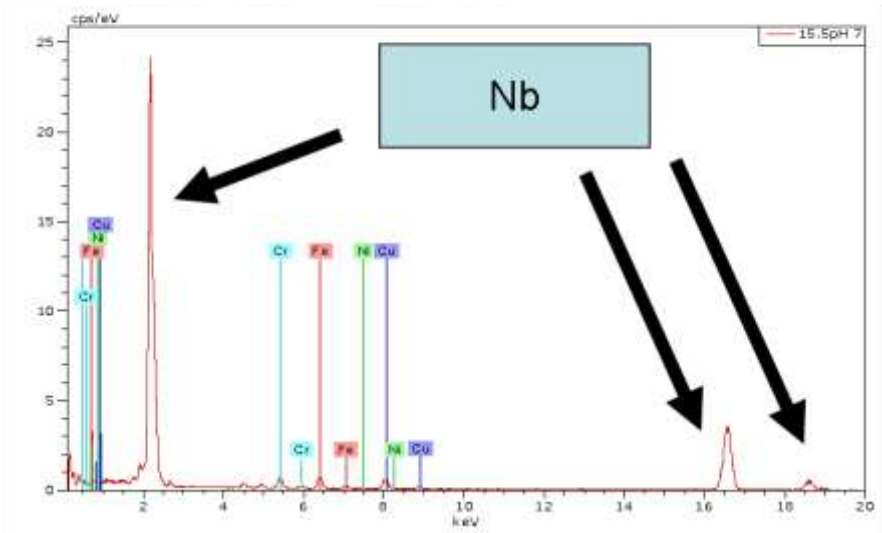


Figure 25 : Observation au MET et analyse EDX d'un carbure de niobium

Afin d'étudier plus en profondeur la microstructure des lattes de martensite, une étude utilisant l'analyse EBSD a été effectuée sur l'alliage. Celle-ci permet de mettre en évidence un sous ensemble, plus petit que les anciens grains austénitiques. Il apparaît sur la Figure 26, des zones de même orientation cristallographique. Celles-ci sont les paquets de lattes définis auparavant. Chaque ensemble de même couleur correspond à un paquet de lattes. Les paquets de lattes ayant des couleurs différentes possèdent des orientations différentes. Dans le cas du 15 5 PH -1200 MPa, leur taille a été estimée entre 5 et 20 μm.

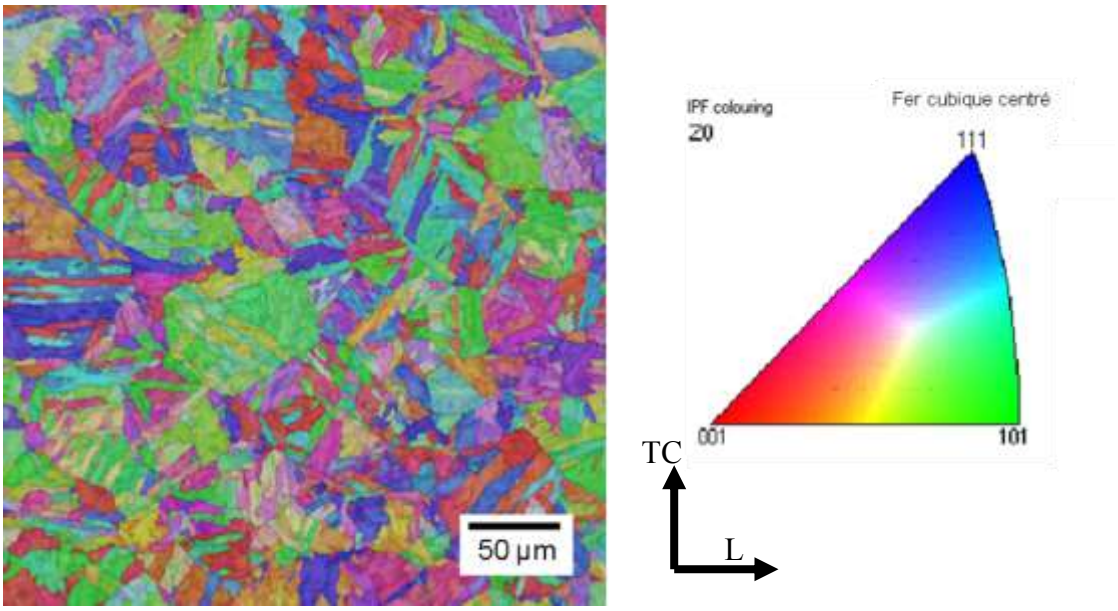


Figure 26 : Observation en EBSD du plan L TC de l'alliage

En analysant cette image, nous pouvons mettre en lumière la structure de blocs. Comme proposé par [6], une simple analyse des désorientations des joints de grains permet de révéler les paquets de lattes ainsi que les blocs. Le résultat de cette analyse est observable sur la Figure 27.

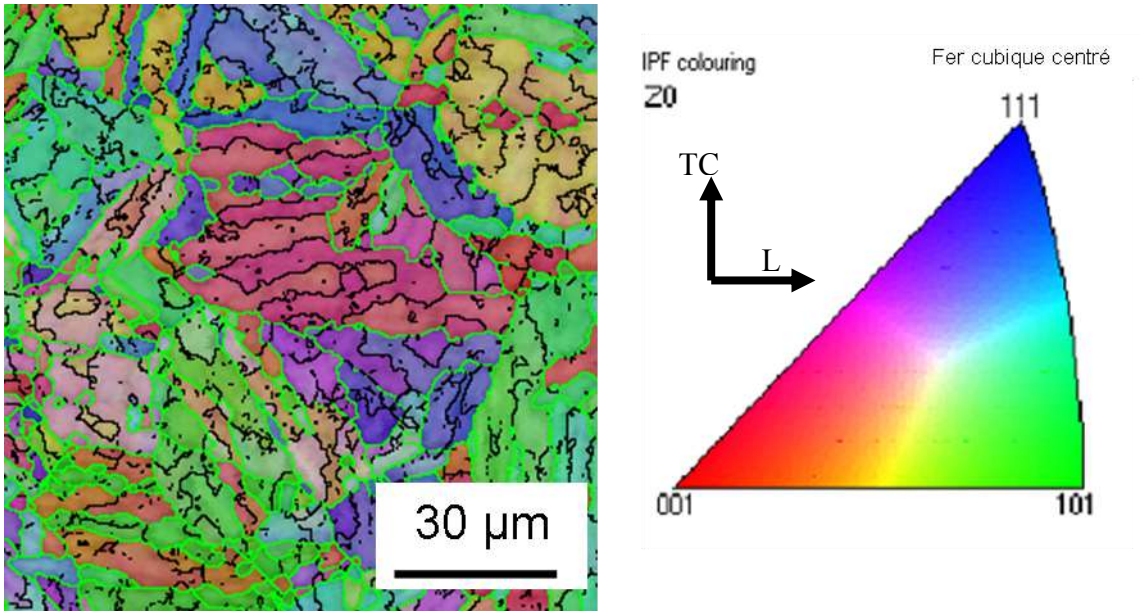


Figure 27 : Observation en EBSD du plan L TC de l'alliage avec analyse des désorientations des joints de grains/lattes : en noir les désorientations supérieures à 2°, en vert les désorientations supérieures à 10°

Des observations au MET de la martensite permettent de révéler un niveau supplémentaire de microstructure. En effet, comme le montre la Figure 28, nous accédons à la plus petite échelle concernant la martensite, soit la latte. Celles-ci font environ 100 nm de large.

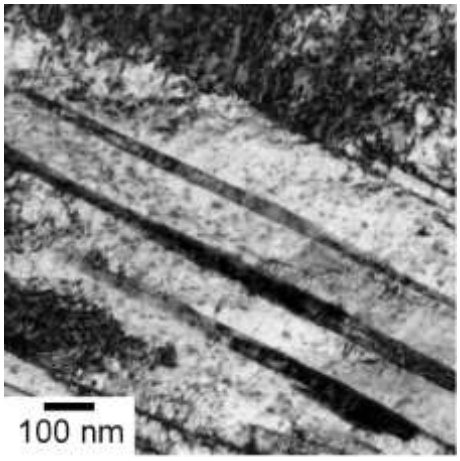


Figure 28 : Lattes de martensite observées en MET

Lors du traitement de revenu, la précipitation de cuivre a lieu. Ces précipités sont observables en MET, comme nous pouvons le voir sur la Figure 29. Ils sont majoritairement intralattes, toutefois il est possible d'en observer aux joints de lattes. De forme ellipsoïdale, leur taille est comprise entre 5 et 20 nm, selon l'axe de mesure.

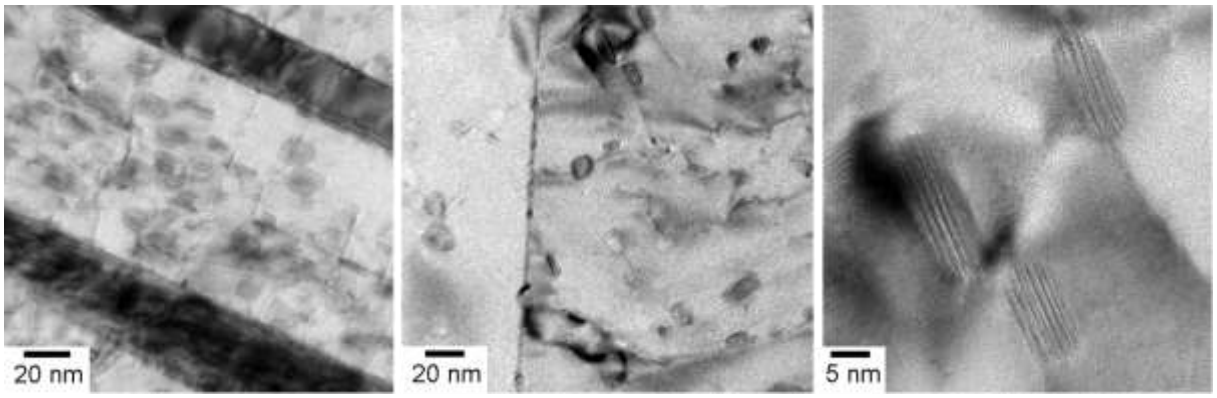


Figure 29 : Précipités de cuivre observés en MET-HR

La précipitation du cuivre a aussi été caractérisée en analyse thermique différentielle. Cette technique permet de déterminer le domaine de température de début et de fin de précipitation du cuivre, pour une vitesse de chauffage donnée. La Figure 30 montre les résultats obtenus en ATD pour le 15-5 PH sur un état trempé et sur un état revenu, à une vitesse de chauffage de 5 K/min. Cette analyse permet de mettre en évidence le pic exothermique, correspondant à la précipitation du cuivre. Le trait en pointillé symbolise une ligne de base fictive en l'absence du pic. D'après cette figure, la précipitation du cuivre s'étale sur un intervalle de température allant de 370 à 530 °C environ.

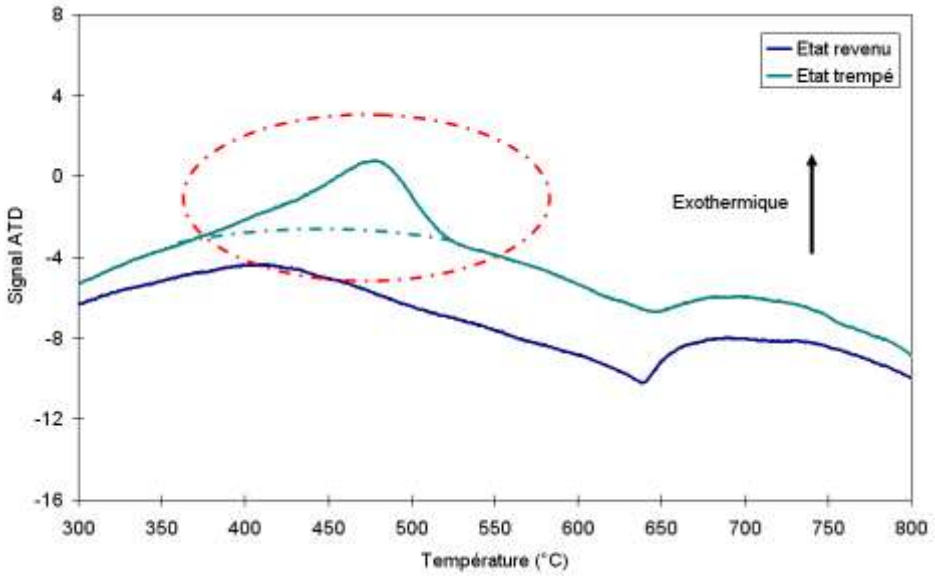


Figure 30 : ATD effectuée sur l'alliage 15 5 PH après trempe et traitement de revenu pour une vitesse de chauffe de 5 K/min

Lors de ce traitement de revenu, il y a aussi formation d'austénite de réversion. Celle-ci est observable aussi en MET et se localise préférentiellement au niveau des joints de lattes ou de familles de lattes. L'austénite de réversion a plutôt tendance à adoucir le matériau. La quantification de l'austénite de réversion peut se faire par diffraction des rayons X. Toutefois, vu les faibles taux d'austénite de réversion et la texture des plaques, les DRX de laboratoire sans correcteur de texture sont limités en terme de résolution. C'est pourquoi, la quantité d'austénite de réversion a été déterminée par DRX en utilisant un faisceau synchrotron, permettant d'avoir un volume analysé plus important et de s'affranchir des problèmes de texture. Ainsi, par des mesures DRX « classiques », la quantité d'austénite de réversion a été estimée inférieure à 3% massique, limite de détection de l'appareil, alors que des mesures DRX en utilisant le faisceau synchrotron donnent une quantité d'austénite de réversion de 1.4 % volumique. Le spectre DRX obtenu sur le matériau à l'état de réception avec l'analyse faite en utilisant le logiciel TOPAS est reportées sur la Figure 32.

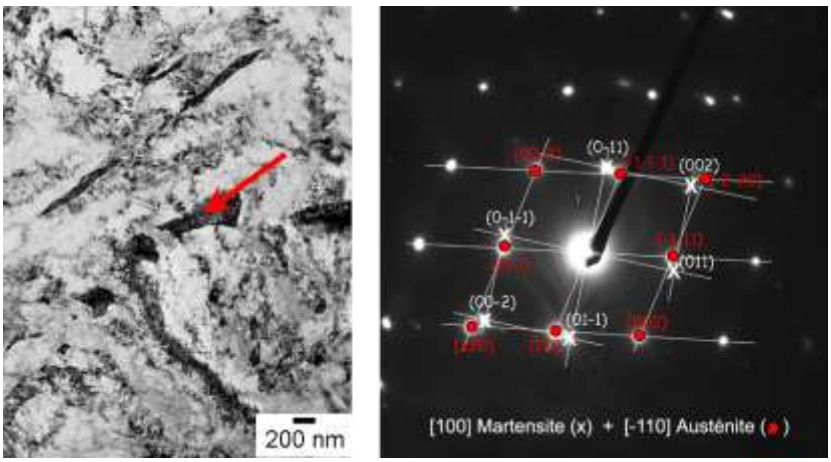


Figure 31 : Austénite de réversion observée en MET, avec le cliché de diffraction correspondant à la zone indiquée

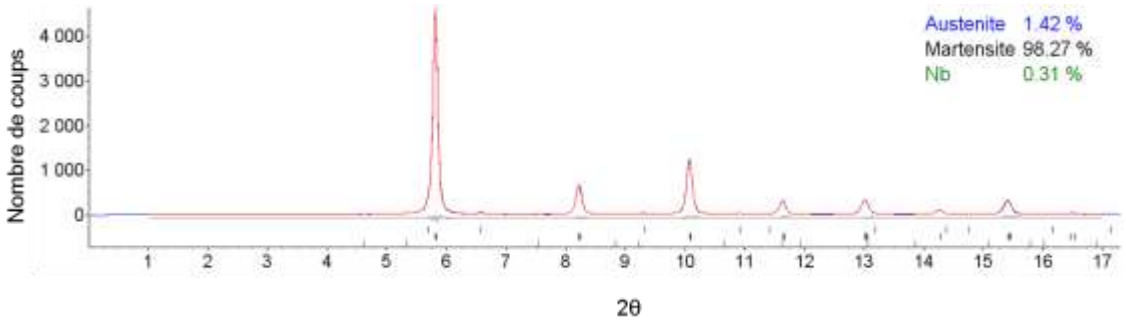


Figure 32 : Résultats obtenus en DRX en utilisant le faisceau synchrotron sur le matériau à l'état de réception

Les différentes échelles de microstructures présentées auparavant restent valables dans le cas d'un alliage traité 1070 MPa, soit 4h/550°C. Les différences au niveau de la microstructure qui expliquent le changement de propriétés mécaniques, sont au niveau des précipités de cuivre, légèrement plus gros dans le cas de l'alliage traité 1070 MPa et le taux d'austénite de réversion, estimé entre 2 et 3% massique dans le cas de l'alliage traité 1070 MPa.

La microstructure de l'alliage a été schématisée sur la Figure 33.

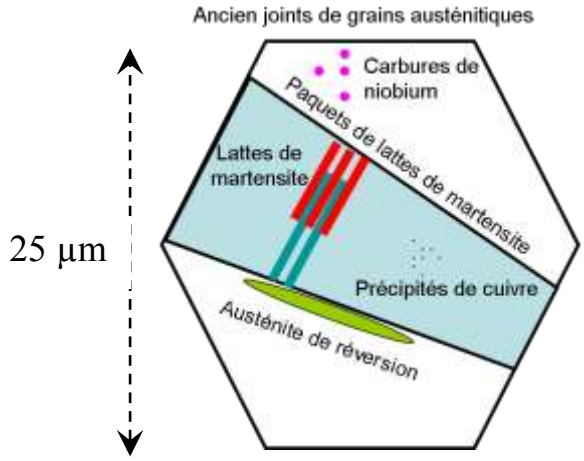


Figure 33 : Schéma de la microstructure de l'alliage 15 5 PH, montrant les différents échelles de microstructure

2.4. Comportement mécanique à l'état de réception

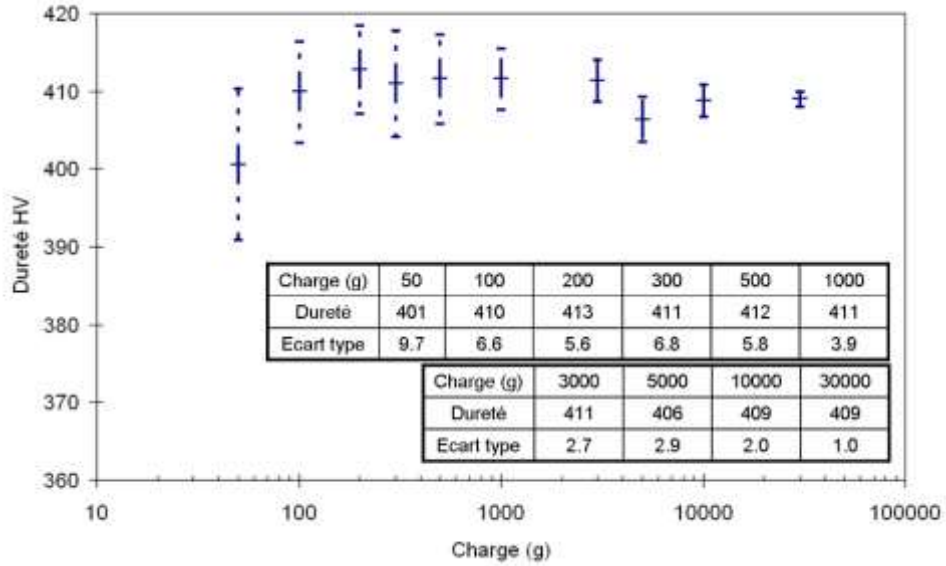
2.4.1. Dureté

L'alliage a tout d'abord été caractérisé par dureté. Dans un premier temps, des essais de dureté Vickers 30 kg avec un temps de maintien de la charge de 10 secondes ont été effectués sur les deux états métallurgiques. Ces essais permettent d'avoir une réponse globale du matériau. Les résultats de 10 de ces essais sont reportés dans le Tableau 5. Dans le cas du 15 5 PH 1200 MPa, les diagonales de l'empreinte font 370 µm. Les anciens grains austénitiques faisant 25 µm en moyenne, un essai de dureté 30 kg est réalisé sur environ 15 anciens grains austénitiques. L'erreur de mesure sur ces essais est estimé à +/- 2 HV.

	15 5 PH 1200 MPa	15 5 PH 1070 MPa
Dureté $HV_{30\ 10s}$	409	380

Tableau 5 : Résultats de dureté Vickers 30 kg 10s effectués sur les deux états métallurgiques.

Toutefois, lors de cette étude, nous avons eu la volonté de changer d'échelle, ce qui se manifeste dans ce cas précis, par une diminution de la charge appliquée lors des essais de dureté. Néanmoins, le but était aussi de pouvoir accéder au comportement global du matériau. Une étude a donc été menée afin de déterminer la charge minimale requise remplissant cette condition. Des essais de dureté ont été effectués pour des charges allant de 50g à 30 kg. Pour les charges entre 50g et 1 kg, 60 mesures par charge ont été effectuées afin de pouvoir développer une approche statistique des résultats. Pour les charges supérieures, seulement une dizaine d'essais ont été effectués. Les moyennes des différents essais sont reportées dans la Figure 34. Bien que la notion d'écart type ne soit pas applicable dans le cas des essais aux plus fortes charges par manque de résultats, cette notion est conservée pour avoir un élément de comparaison.



Charge (g)	50	100	200	300	500	1000
Dureté	401	410	413	411	412	411
Ecart type	9.7	6.6	5.6	6.8	5.8	3.9

Charge (g)	3000	5000	10000	30000
Dureté	411	406	409	409
Ecart type	2.7	2.9	2.0	1.0

Figure 34 : Evolution de la de dureté en fonction de la charge appliquée

La Figure 34 permet de statuer sur la charge minimale nécessaire afin d'avoir une valeur moyenne représentative du comportement mécanique du matériau. Ainsi, on remarque qu'à partir d'une charge de 100 g, la dureté moyenne n'évolue pas de manière significative. Toutefois, on remarque que l'écart type reste important à cette charge et diminue au fur et à mesure. C'est pourquoi, afin d'avoir un écart type assez réduit, nous avons choisi de nous placer dans le cas d'une charge appliquée de 1 kg. Cette charge donne des empreintes d'environ 66 µm de diagonale. Un essai est donc effectué sur 3-4 anciens grains austénitiques.

Des essais de dureté instrumentée ont été effectués pour les charges les plus élevées. Ceux-ci permettent d'accéder à la dureté Martens, qui servira de comparaison par la suite. Les différents résultats sont compilés dans le Tableau 6.

Charge (kg)	0.5	1	3	5	10	30
Profondeur d'indentation (µm)	7.3	10.0	17.4	23.1	31.6	54.3
Dureté Martens (GPa)	3.5	3.7	3.7	3.5	3.7	3.8

Tableau 6 : Dureté Martens de l'alliage à l'état de réception

Une étude complémentaire a été effectuée à la charge de 1kg. 180 essais de dureté ont été effectués afin d'augmenter la taille d'échantillonnage. Les résultats sont présentés sur la Figure 35. Comme exposé précédemment, on remarque dans un premier temps que la moyenne des essais réalisés avec une charge de 1 kg correspond à la moyenne des essais réalisés avec une charge de 30 kg.

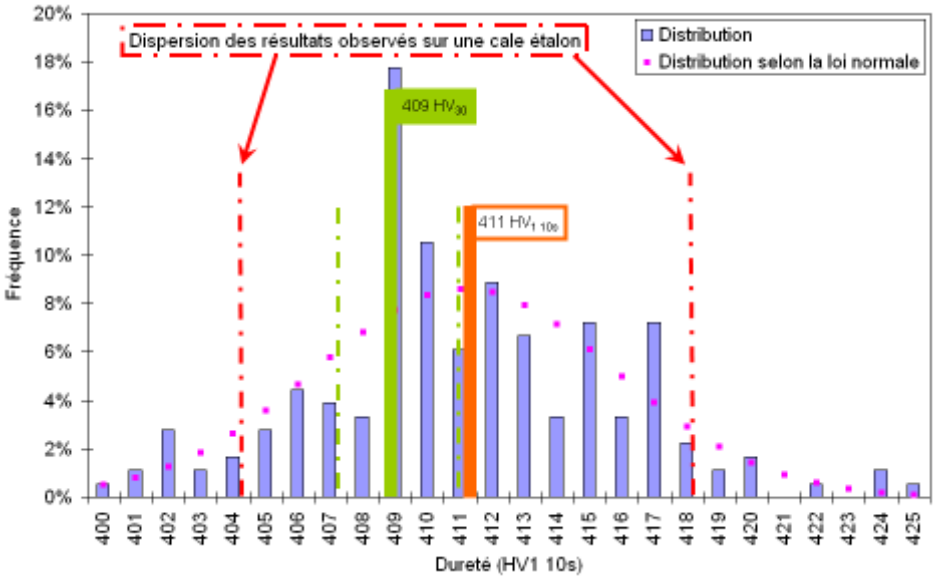


Figure 35 : Distribution des valeurs de dureté pour 180 essais de dureté $HV_{1\ 10s}$. L'erreur observée en HV_{30} est indiquée par les pointillés verts.

Par la suite, on remarque une dispersion assez importante des résultats. En effet, même si la dureté moyenne est de 411 $HV_{1\ 10s}$, les valeurs de dureté obtenues sont comprises entre 400 et 425 $HV_{1\ 10s}$. La distribution suit une loi normale, on peut donc définir un écart type, égal à 3.7. Afin de tenter de vérifier la pertinence de cette dispersion, 60 essais de dureté $HV_{1\ 10s}$ ont été réalisés sur une cale étalon 400 $HV_{1\ 10s}$. Celle-ci est définie par le fournisseur comme ayant une dureté moyenne de 393.7 HV_1, avec des valeurs de dureté minimale et maximale de 389.6 et de 395.8 HV_1, respectivement. L'écart type obtenu sur ces essais est de 3.3, inférieur à l'écart type obtenu sur le 15 5 PH 1200 MPa. Sur la Figure 35, la dispersion des résultats obtenus sur la cale étalon a été rajoutée. Elle correspond à un intervalle centré sur la valeur moyenne de longueur ± 7 HV. Cet intervalle est légèrement plus élevé que dans les spécifications du constructeur ; il peut être expliqué par la répétabilité de la machine. On remarque toutefois que dans le cas de l'alliage d'étude, des valeurs sont en dehors de l'intervalle défini auparavant.

Plusieurs raisons peuvent expliquer la dispersion des résultats observée sur la cale étalon.

Nous ne parlerons pas dans cette partie des effets dits « machine ». Vu que le micro duromètre utilisé a été régulièrement étalonné durant l'étude, nous pouvons donc considérer que la répétabilité due à la machine est identique lors de chaque série de mesures. La norme ISO 6507-2 définit l'erreur maximale admissible de la machine d'essai de dureté. Pour une dureté de 400 HV_1, cette erreur est de 4 %, soit 10 HV. Toutefois, il est bon de préciser que cet étalonnage n'est effectué qu'avec 5 indents. Dans cette étude, 60 indents ont été effectués lorsqu'une charge de 1 kg a été utilisée.

La dispersion des résultats pourrait être expliquée, dans un premier temps, par une incertitude de mesure importante. En considérant la charge appliquée lors de l'essai comme constante (machine à charge morte) et une erreur de mesure sur la diagonale de l'indent de 1 µm, sur une diagonale d'environ 66 µm, un calcul d'incertitude due à la mesure donne :

$$\Delta HV = 2*HV*\Delta d/d^2 \text{ soit } \Delta HV = 0.2$$

L'incertitude de la mesure a une influence très réduite sur la valeur de dureté et ne peut donc pas expliquer la dispersion des résultats.

Le dernier élément pouvant expliquer une dispersion des résultats de dureté est le matériau testé. Dans le cas d'une cale étalon, l'homogénéité du matériau a été testée et est définie dans le procès-verbal accompagnant la charge.

Toutefois lors d'essais effectués sur le 15-5 PH 1200 MPa, nous observons une augmentation de la dispersion des résultats et donc de l'écart type de la distribution. Comme expliqué auparavant, l'erreur restant identique entre les différentes séries d'essais, le seul élément pouvant expliquer une augmentation de la dispersion est le matériau testé en lui-même. Ainsi, en diminuant la charge lors de l'essai de dureté, nous pouvons accéder à l'homogénéité du matériau. Pour la suite de l'étude et le suivi de l'avancée du vieillissement par essai de dureté, il aurait été long et fastidieux d'effectuer 180 essais de dureté sur chaque échantillon. Nous avons donc décidé de réduire la taille d'échantillonnage à 60 indents. Comme nous pouvons le voir sur la Figure 34, ceci permet d'avoir une valeur moyenne révélatrice du comportement global du matériau et permet aussi de statuer sur l'homogénéité du matériau.

Plusieurs éléments métallurgiques peuvent expliquer la dispersion des valeurs de dureté. Nous avons pu voir précédemment que la microstructure de l'alliage présente différents niveaux d'échelles, qui peuvent expliquer une hétérogénéité de comportement mécanique. En effet, entre la latte de martensite et l'ancien grain austénitique, il existe différents éléments de tailles intermédiaires qui peuvent avoir ou engendrer des comportements mécaniques différents. Pour étudier ces effets d'échelles, des essais de nano-micro dureté ont été effectués sur l'alliage, avec des profondeurs d'indentation allant de 3 nm à 5.7 μm. Ces profondeurs de pénétration correspondent respectivement à des charges de 0.3 mg et 370 g. Compte tenu de la non idéalité de la pointe, le sommet de la pyramide n'est pas pointu, mais est assimilable à une demi sphère de diamètre 50 nm, les mesures pour des profondeurs d'indentations inférieures à 50 nm n'ont pas été reportées. Nous nous intéresserons donc à des profondeurs entre 50 nm et 5.7 μm, correspondant à des charges entre 70 mg et 370 g. Nous avons utilisé une méthode dite de dureté dynamique, ou Constant Stiffness Measurement (CSM), qui permet de mesurer, à chaque profondeur de pénétration, la réponse mécanique du matériau. En effet, en plus de l'enfoncement progressif du pénétrateur dans l'échantillon, une perturbation d'amplitude 2 nm et de fréquence 45 Hz est ajoutée, permettant cette mesure. Cette méthode garantit donc d'accéder au comportement mécanique en une seule localisation et à différentes échelles. Une cartographie de 60 indents a ainsi été réalisée sur l'alliage à l'état de réception. Les résultats sont visibles sur la Figure 36. L'écart type correspondant à la mesure de la dureté est reporté sur le graphique. On voit que celui-ci peut être important pour les faibles charges, mais diminue à mesure que la charge augmente.

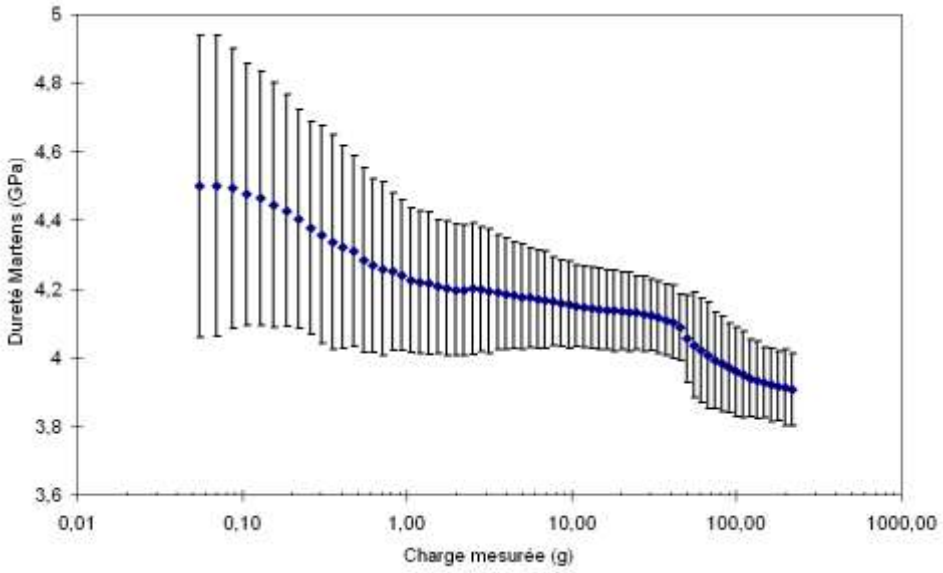


Figure 36 : Effet de la charge sur la réponse en dureté du matériau

Plusieurs remarques sont à faire concernant cette courbe. Dans un premier temps, nous remarquons pour des charges supérieures à 200 g, la valeur de dureté évolue peu (3.9 GPa). Cette valeur reste proche de la valeur obtenue pour des essais à charge plus élevée. Puis, lorsque la charge diminue, on observe que la dureté augmente pour quasiment atteindre 4.5 GPa. Cette augmentation de la dureté lorsque la charge diminue n'est pas surprenante. En effet, de manière générale, une diminution de la charge lors de l'essai de dureté est accompagnée d'une augmentation de la dureté. Ce phénomène, appelé effet de taille d'empreinte (ou ISE en anglais pour Indentation Size Effect) a fait l'objet de plusieurs études.

Nous proposons ici de faire une brève revue bibliographique afin de mieux définir ce phénomène.

Cet effet qui a été pour la première fois observé dans les années 1950, a été considéré, au vu des techniques expérimentales utilisées, comme un artefact de mesure dû aux erreurs de mesures ou à la préparation de surface [7]. Toutefois, au fil des ans et de l'amélioration des techniques expérimentales, cet effet a été spécifiquement étudié et révélé sur des monocristaux dans un premier temps, puis sur des polycristaux. Très rapidement, le rôle des dislocations dans le comportement du matériau sous les indents a été mis en lumière et tenu responsable de la hausse de dureté avec la diminution de la charge [7] [8].

Avec le développement des techniques d'analyse et de caractérisation à l'échelle nanométrique, le comportement des matériaux à cette échelle a été mieux expliqué. Plusieurs hypothèses sont ainsi proposées dans la littérature comme, par exemple, la friction entre le pénétrateur et le matériau testé [9], les effets de surface, le changement de contribution de la déformation élastique et plastique au cours de l'indentation [7], les effets de surface (formation d'oxyde et énergie de surface) [8], etc.

Les modèles se basant sur les effets de gradient de déformation plastique permettent d'expliquer avec succès le phénomène d'ISE, sur un nombre important de matériaux, aussi bien mono cristallins que poly cristallins. Ces modèles reposent sur la création de dislocations lors de l'essai de dureté. De manière générale, nous pouvons séparer les dislocations en plusieurs types : les dislocations statistiquement stockées ou SSD, pour statistically stored dislocations en anglais, et les dislocations géométriquement nécessaires ou GND, pour geometrically necessary dislocations [8] [10] . Les premières sont reliées à l'accommodation d'une déformation plastique homogène du matériau. Les secondes sont générées lors d'une déformation non homogène. Elles

sont donc reliées à un gradient de déformation [8] .Ce phénomène a été observé par MET sur des lames minces prélevées autour d'indents de dureté [11].

La bonne correspondance de ces modèles sur un grand nombre de matériau tient principalement au fait qu'une notion de longueur caractéristique du matériau est utilisée. Cette longueur dépend de la densité de dislocations statistiquement stockées Celle-ci va ainsi dépendre de la microstructure de l'alliage comme la taille de grains, mais aussi du pénétrateur en lui-même. Par exemple, il est montré qu'un joint de grains peut engendrer un durcissement du matériau, en stockant les dislocations géométriquement nécessaires [12] [13].

Nix et Gao [10] ont ainsi étudié ce phénomène et proposent une relation permettant de suivre l'évolution de la dureté en fonction de la profondeur d'indentation :

$$H/H_0 = \sqrt{(1+h^*/h)}$$

où H est la dureté à une profondeur donnée h, H_0 est la dureté pour une profondeur d'indentation infinie ou encore la dureté correspondant seulement à la contribution des dislocations statistiquement stockées et h* est une longueur caractéristique qui dépend à la fois du matériau et du pénétrateur. Ce modèle a été appliqué avec succès à des essais effectués sur du cuivre et de l'argent mono cristallin mais aussi poly cristallin [10].

Nous avons traité les résultats présentés sur la Figure 36 en utilisant la relation proposée par Nix et Gao. La courbe $(HM)^2=f(1/h)$ est visible sur la Figure 37. Cette courbe permet de mettre en évidence trois domaines linéaires :

- pour des valeurs de 1/h comprises entre 6.3 et 2.6 μm^{-1}, correspondant à des profondeurs de pénétration de 159 et 388 nm. Dans ce cas, la détermination des paramètres donne : H_0=4.1 GPa et h^*=22 nm. Nous appellerons ce domaine, le domaine A.
- pour des valeurs de 1/h comprises entre 2.0 et 0.6 μm^{-1}, correspondant à des profondeurs de pénétration de 493 nm et 1.6 µm. La détermination des paramètres donne : H_0= 4.1 GPa et h^* = 44 nm. Nous appellerons ce domaine, le domaine B.
- pour des valeurs de 1/h comprises entre 0.4 et 0.2 μm^{-1}, correspondant à des profondeurs de pénétration de 2.2 µm et de 4.3 µm. La détermination des paramètres donne : H_0= 3.8 GPa et h^* = 325 nm. Nous appellerons ce domaine, le domaine C.

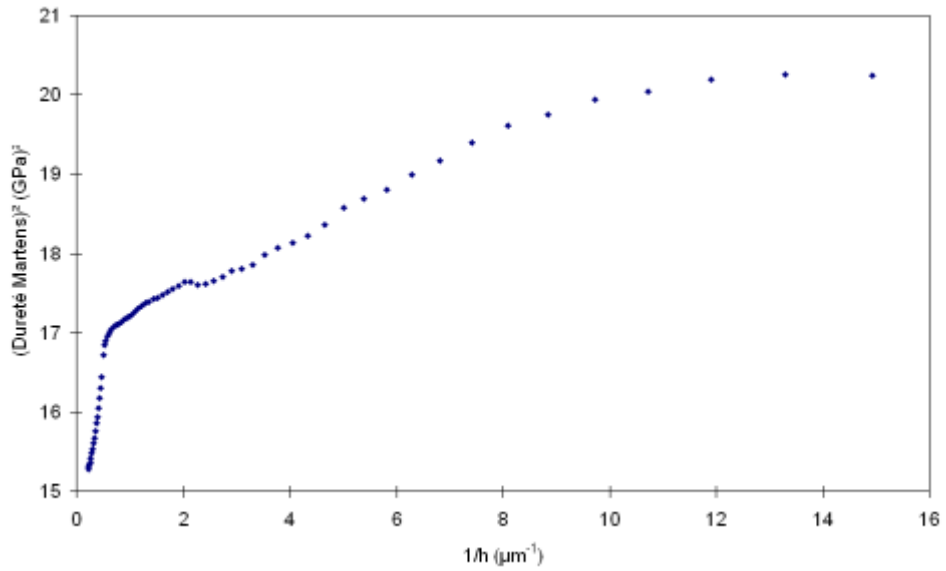


Figure 37 : Représentation des valeurs de dureté selon la relation proposée par Nix et Gao

Les différents paramètres calculés dans les trois domaines sont reportés dans le Tableau 7.

	1/h (μm^{-1})	h (μm)	Charge mesurée (g)	H_0 (GPa)	h^* (nm)
Domaine A	6.3	0.16	0.3	4.1	22
	2.6	0.39	1.7		
Domaine B	2.0	0.49	2.8	4.1	44
	0.6	1.6	30		
Domaine C	0.4	2.2	55	3.8	325
	0.2	4.3	200		

Tableau 7 : Paramètres calculés par régression linéaire suivant la relation de Nix et Gao

Cette analyse permet de mettre en évidence deux comportements mécaniques différents. Pour des profondeurs d'indentation faibles et intermédiaires, domaine A et B, nous voyons que nous avons un matériau plus dur, avec H_0 qui vaut 4.1 GPa. A l'inverse, pour des profondeurs d'indentation plus élevées, la dureté H_0 a une valeur de 3.8 GPa, valeur de dureté obtenue en HV_{30}. Cette comparaison est conforme avec la théorie, puisque H_0, par définition, correspond à la valeur de dureté obtenue dans le cas où seules les dislocations statistiquement stockées sont mises en jeu, soit dans le cas d'indentations à fortes charges.

Afin d'aller plus loin dans l'analyse de ces résultats, nous avons voulu faire un parallèle entre ces mesures et la microstructure de l'alliage. Pour cela, nous avons cherché, dans un premier temps, à calculer la taille de la zone de déformation plastique lors d'un essai de dureté. L'approche la plus utilisée est le modèle de cavité de Johnson. Une description de ce modèle est disponible dans l'article de Harvey *et. al.* [14]. La zone de déformation plastique est, dans ce modèle, considérée comme un hémisphère centré sous l'indent. Le rayon c de cet hémisphère peut se calculer grâce à la relation suivante :

$$c = \sqrt{(3P/2\pi\sigma_{ys})}$$

où P est la charge utilisée lors de l'essai de dureté et σ_{ys} est la limite d'élasticité du matériau. Différentes études ont pu montrer la validité de cette relation, soit en faisant des observations au MET autour d'indents [15] ou en mesurant la déformation autour de l'indent en AFM, en particulier l'effet pile-up [16]. Effectivement, comme expliqué par Stelmashenko [17], lors de l'essai de dureté, l'écoulement plastique peut se diviser en deux composantes :

- une composante A qui va avoir tendance à pousser la matière dans le cœur du matériau
- une composante B qui va avoir tendance à repousser la matière vers la surface libre.

Cette dernière est intéressante puisqu'elle permet d'avoir une preuve en surface de l'écoulement plastique lors de l'essai.

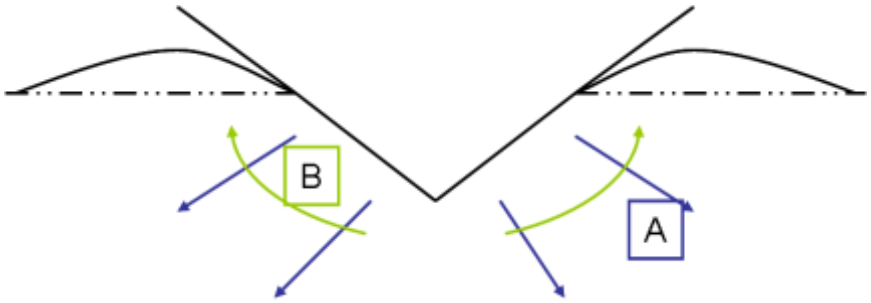


Figure 38 : Schématisation de l'écoulement plastique lors d'un essai de dureté

Pour notre étude, nous avons donc cherché à valider les calculs de rayon de zone de déformation plastique en mesurant la zone affectée par le phénomène de pile-up en profilométrie optique. Un exemple de mesure ainsi que les résultats sont présentés sur la Figure 39 et le Tableau 8. Ces résultats correspondent à des essais de dureté de type Vickers. Les calculs restent identiques dans le cas d'un essai utilisant un pénétrateur de type Berkovich.

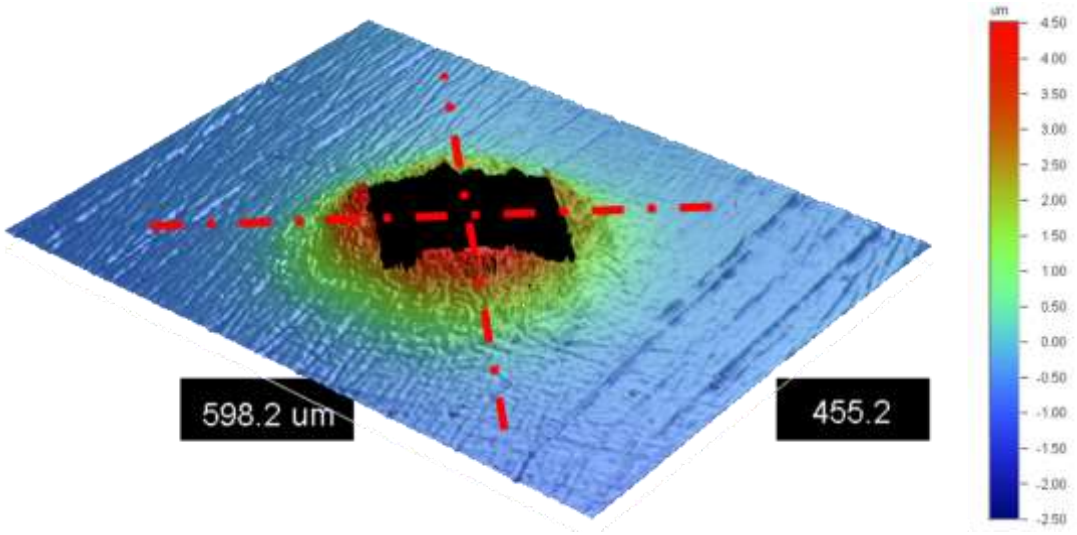


Figure 39 : Exemple de mesure de pile up effectué sur une empreinte de dureté faite avec une charge de 10 kg. Les droites en pointillés montrent l'orientation des mesures.

Type d'essai	$HV_{0.5}$	HV_1	HV_5	HV_{10}
Rayon zone de déformation plastique calculé (µm)	44	63	140	198
Rayon zone de déformation plastique mesuré (µm)	45	70	158	195

Tableau 8 : Comparaison entre les rayons de zone de déformation plastique calculés et ceux mesurés

On observe ainsi une bonne correspondance entre les mesures et le calcul selon le modèle de Johnson. Cette formule sera donc utilisée pour définir la taille de zone plastique. Toutefois, l'utilisation de ce rayon dans le cas d'une hémisphère n'est pas forcément trivial pour comparer avec des éléments microstructuraux, souvent déterminés en deux dimensions. Effectivement, la détermination de la taille de grains par exemple se fait essentiellement à la suite d'une coupe suivant un plan donné, et est donc en deux dimensions. C'est pourquoi, afin de représenter la zone déformée plastiquement sous l'indent, nous prendrons en compte un disque ayant comme rayon, le rayon calculé selon le modèle de Johnson. Ce disque sera appelé par la suite « disque zone plastique ». Nous rappelons ici que la dureté consiste en la division d'une charge par une surface. Ceci montre ainsi la pertinence de ce disque zone plastique.

Pour nous rapprocher de la microstructure de l'alliage, nous allons dans un premier temps comparer le disque zone plastique à un ancien grain austénitique. Par souci de simplification, nous considérons que les grains sont des disques de diamètre la taille de grains déterminée, soit ici 25 µm ce qui donne une aire de 491 μm^2. L'autre échelle de microstructure qui nous servira de point de comparaison est la famille de lattes de martensite. La taille moyenne de ces familles a été déterminée par ESBD à 58 μm^2.

Les différentes grandeurs ainsi définies ont été ajoutées à la Figure 36 pour donner la Figure 40. Les trois domaines définis auparavant sont aussi représentés sur ce graphique.

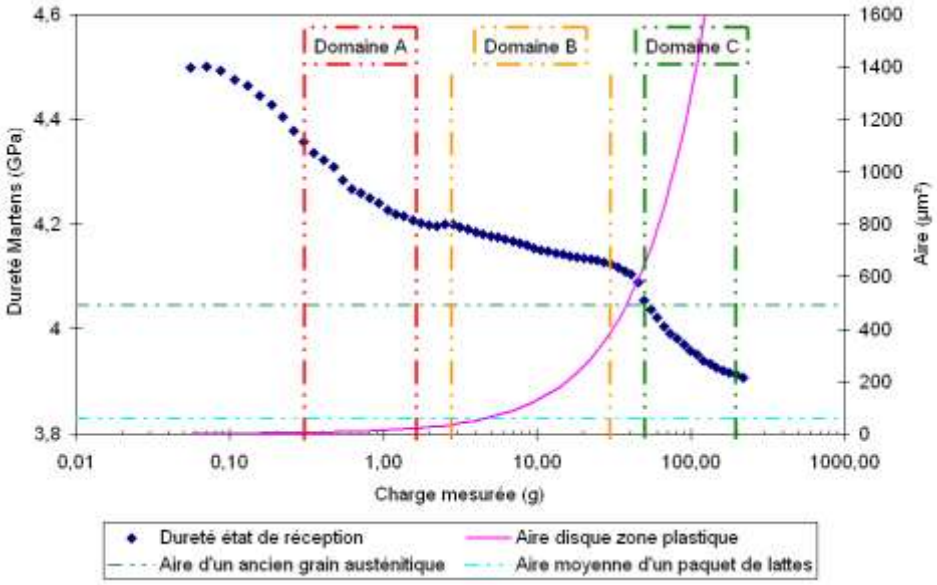


Figure 40 : Evolution de la dureté et de l'aire du disque zone plastique en fonction de la charge, comparaison avec l'aire d'un grain et l'aire d'une famille de lattes

Ainsi, nous pouvons maintenant corréler les valeurs de dureté mesurées, les paramètres déterminés grâce au modèle de Nix et Gao et les éléments de la microstructure.

Dans un premier temps, intéressons nous au domaine A. Nous rappelons qu'il a été défini pour des charges allant de 0.3 à 1.7 g. Les valeurs de dureté Martens mesurées à ces charges sont élevées, entre 4.2 et 4.3 GPa. Les paramètres H_0 et h^* ont des valeurs de 4.1 GPa et 22 nm. En comparant la taille du disque zone plastique aux différents éléments microstructuraux, on observe que l'on se situe en dessous de la taille moyenne d'une famille de lattes. Nous mesurons donc la dureté relative aux lattes de martensite et aux précipités de cuivre.

Dans un second temps, si l'on considère le domaine B. Il est défini pour des charges allant de 2.8 à 30 g. Les paramètres H_0 et h^* ont des valeurs de 4.1 GPa et 44 nm. Nous pouvons voir, d'après la Figure 40 que le diamètre du disque zone plastique est inférieur à la taille moyenne d'un paquet de lattes pour les charges les plus faibles de ce domaine, puis est quasiment égal à la taille de grain. Dans ce domaine, l'élément de la microstructure sollicité pendant l'essai de dureté est le paquet de lattes. Le paramètre H_0 donne une valeur identique à celle obtenue pour le domaine A.

Enfin, pour le domaine C, pour des charges allant de 55 à 200 g, les paramètres H_0 et h* ont des valeurs de 3.8 GPa et de 325 nm. La taille de la zone plastique est dans ce cas supérieure à la surface d'un ancien grain austénitique. Dans ce domaine, on observe ainsi le comportement global du matériau, comme en atteste la valeur de H_0, identique à celle obtenue pour un essai de dureté HV_{30}. Ces essais montrent ainsi, que dans le cas d'un essai de dureté, le paramètre microstructural important est l'ancien joint de grain austénitique. L'écrouissage inter granulaire semble gouverner le comportement en dureté. Cette analyse va à l'encontre de celle exposée dans le chapitre précédent, qui montrait que le comportement mécanique d'un acier martensitique était gouverné par sa taille de blocs ou de paquets de lattes. Néanmoins, ces différentes études s'intéressaient au comportement en traction ou en ténacité, et non pas à celui en dureté. La différence de mode de sollicitation peut expliquer cette différence.

Nous venons de voir que la réponse mécanique de l'alliage à un essai de dureté dépend fortement de la charge utilisée lors de l'essai. Cet effet peut expliquer la dispersion des résultats. Toutefois, un autre élément peut expliquer la dispersion des valeurs de dureté aux différentes charges. En effet, le matériau utilisé est un alliage martensitique, de structure quadratique. Or, dans ce cas, l'acier ne contient que très peu de carbone. On peut donc approximer la maille

élémentaire de la structure comme étant une maille cubique centrée. Cette structure est connue pour son anisotropie de comportement mécanique.

Différents auteurs ont ainsi étudié l'effet de la température sur les constantes d'élasticité dans une maille cubique centrée de fer pur monocristallin [18] [19] [20]. D'après ces données, les valeurs de module d'élasticité peuvent être recalculées dans toutes les orientations du cristal [18] [19]. Ils montrent une anisotropie importante du module d'élasticité selon l'axe de chargement. En effet, le module obtenu dans la direction <100> vaut 141.3 GPa alors que celui obtenu dans la direction <111> vaut 293.0 GPa, correspondant à la direction dense dans une maille cubique centrée. Il y a quasiment un facteur 2 entre les deux modules. Ces résultats peuvent expliquer une forte dispersion des résultats.

Afin d'étudier cet éventuel effet, nous avons effectués des essais de nano dureté couplés avec une cartographie EBSD. Dans un premier temps, un repérage à l'indent d'essais de micro dureté a été effectué sur l'échantillon. Par la suite, une cartographie EBSD a été faite au niveau de ce repérage. Enfin, une cartographie en nano dureté a été réalisée sur la même zone. Nous avons choisi un déplacement maximum imposé à 500 nm, correspondant à une charge de 3 g. En se reportant à la Figure 40, nous pouvons voir que dans ce cas de figure, la taille de la zone plastique est légèrement inférieure à celle d'une famille de lattes. Ainsi, en superposant les deux cartographies, nous avons accès à l'orientation des familles de lattes au niveau de l'indent, et donc nous pouvons corréler l'orientation d'une famille de lattes avec la valeur de dureté.

La superposition des deux cartographies est observable sur la Figure 41. Afin d'étudier l'effet d'orientation, nous avons sélectionné les indents qui sont contenus dans une seule famille de lattes. L'orientation de ces familles de lattes a été déterminée et reportée sur une figure de pôle inverse selon l'axe Z correspondant à la direction d'indentation. L'orientation des familles de lattes ainsi que les valeurs de dureté correspondantes sont reportées sur la Figure 42.

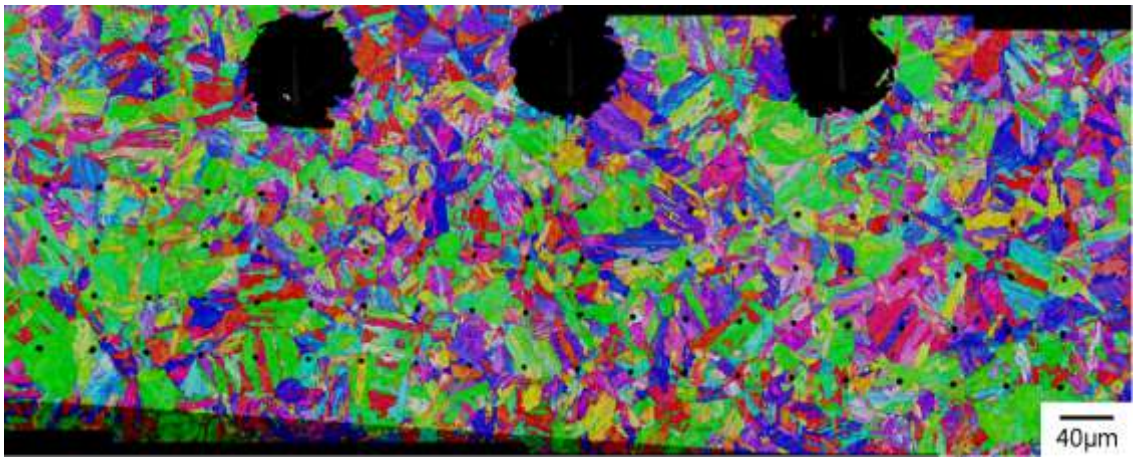


Figure 41 : Superposition d'une cartographie faite en EBSD et en nanodureté, avec un repérage fait en dureté HV_5

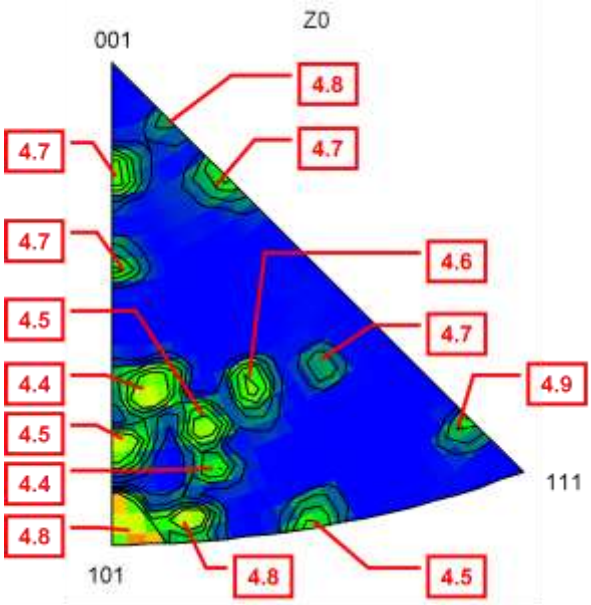


Figure 42 : Effet d'orientation sur la réponse mécanique des familles de lattes. Les valeurs indiquées sont des valeurs de dureté Martens exprimées en GPa

Comme nous pouvions-nous y attendre, il existe une différence de comportement en dureté en fonction de l'orientation des paquets de lattes. Même si nous n'avons pas de point correspondant directement à la direction <111>, nous pouvons voir que près de cette direction, il semble que nous ayons la dureté la plus importante. Néanmoins les valeurs de dureté restent relativement proches, écart entre la valeur maximale et minimale est de 0.4 GPa. Plusieurs raisons peuvent expliquer ces différences relativement faibles. Dans un premier temps, l'essai de dureté n'est pas un essai uni axial. Le paquet de lattes est sollicité dans les différentes directions. Il est alors possible que le comportement soit moyenné sur celles-ci. De plus, les lattes ne se forment surement pas au même moment, lors de la trempe. Ainsi, le niveau d'écrouissage n'est pas le même entre les lattes, pouvant amener à des cinétiques de précipitation de cuivre différentes. La précipitation peut en quelque sorte niveler les différences de comportement suivant l'orientation.

La Figure 42 permet de mettre en lumière le rôle de l'orientation des familles de lattes dans la réponse mécanique de l'alliage.

En conclusion de cette partie sur le comportement en dureté, nous pouvons dire que malgré l'apparente simplicité de cet essai, il permet d'accéder à un certain nombre d'informations concernant le matériau. Dans cette étude, la volonté a été de diminuer l'échelle de l'analyse. Nous avons montré que faire des essais de dureté avec une charge de 1 kg et un nombre important d'essais permettait d'une part, de retrouver la dureté obtenue avec une charge de 30 kg et d'autre part, de caractériser la dispersion de dureté au sein du matériau. Ce dernier aspect revêt une importance particulière lorsque l'on s'intéresse à l'endommagement qui, pour se développer, recherche systématiquement les points faibles de la microstructure.

2.4.2. Comportement en traction

Dans cette partie, nous allons présenter les résultats des essais de traction menés pour caractériser le 15-5 PH 1200 MPa. Dans un premier temps, nous allons définir les différents sens de prélèvement étudiés. Puis, nous présenterons les résultats des essais concernant le comportement de l'alliage à différentes températures. Enfin, les effets du sens de prélèvement et de la position de l'éprouvette seront exposés.

2.4.2.1. Sens de prélèvement des éprouvettes

La matière fournie par Aubert et Duval se présentait sous la forme de lopins de 140 x 60 x 350 mm^3 issus d'un méplat forgé. Afin d'étudier l'homogénéité du produit, des essais de traction ont été réalisés sur des éprouvettes prélevées dans différentes directions. Avant d'exposer les résultats, nous présentons ici les différents sens de prélèvement étudiés. Ceux-ci sont précisés dans la

Figure 43. Nous définissons un sens long, travers long et travers court. Nous rappelons ici que les éprouvettes dont la géométrie est présentée sur la Figure 18, sont découpées dans des blocs faisant office d'ébauche.

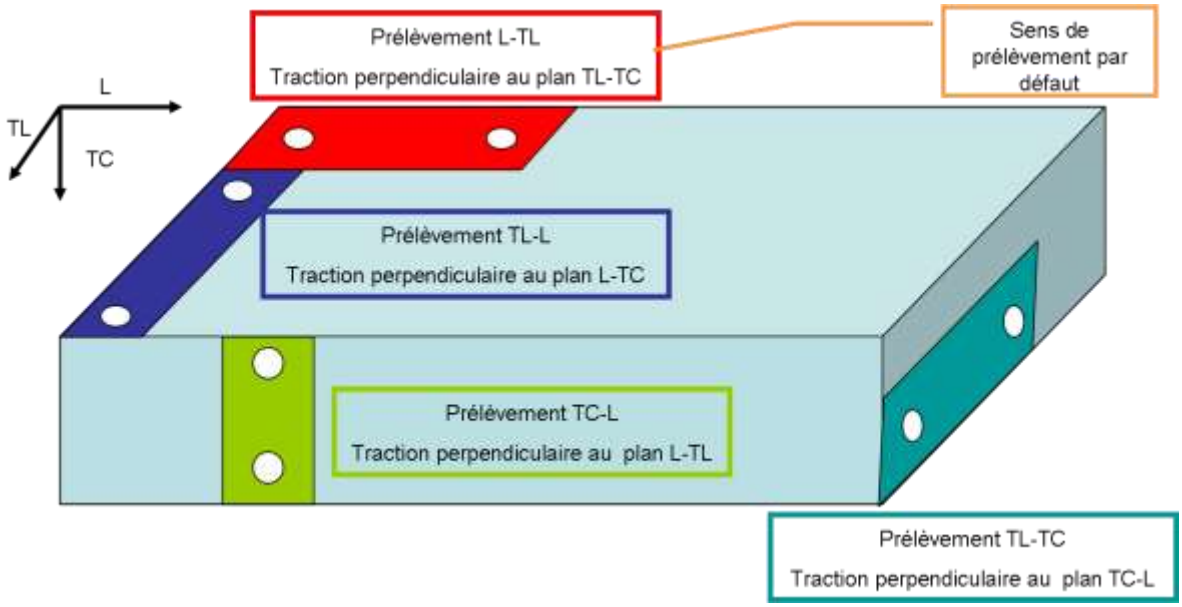


Figure 43 : Différents sens de prélèvement effectués sur le méplat

Il a été défini, dans un premier temps, un sens de prélèvement par défaut, correspondant à un prélèvement selon les directions L-TL. La première direction nommée correspondra toujours à la longueur de l'éprouvette et la seconde direction à la largeur de l'éprouvette. Ce sens de prélèvement amène à effectuer des essais de traction perpendiculairement le plan TL-TC. Dans la suite du manuscrit, lorsqu'aucune précision ne sera faite, les éprouvettes auront été prélevées selon ce sens. Par la suite, nous avons étudié le lopin suivant trois autres sens de prélèvement :

- le sens de prélèvement selon les directions TL-L correspondant à une traction perpendiculairement au plan L-TC
- le sens de prélèvement selon les directions TC-L correspondant à une traction perpendiculairement au plan L-TL
- le sens de prélèvement selon les directions TL-TC correspondant à une traction perpendiculairement au plan TC-L

Nous allons tout d'abord présenter les résultats obtenus pour les prélèvements dans le sens L-TL, sens par défaut, qui serviront de référence pour la comparaison avec des éprouvettes ayant subi des vieillissements.

2.4.2.2. Influence de la température d'essai sur le comportement mécanique

Lors de cette étude, deux coulées de 15-5 PH 1200 MPa ont été reçues. Ces deux coulées ont des compositions et des comportements en dureté et en traction très proches. Nous ne

différencierons donc pas les deux coulées dans ce qui suit. De plus, nous travaillons ici avec des notions de contrainte et de déformation ingénieur, soit $\sigma = F/ S_0$ et $\varepsilon = dl/l_0$.

Nous présentons sur la Figure 44 les résultats de 3 essais de traction réalisés à la température ambiante à une vitesse de déformation 10^{-3} s^{-1}.

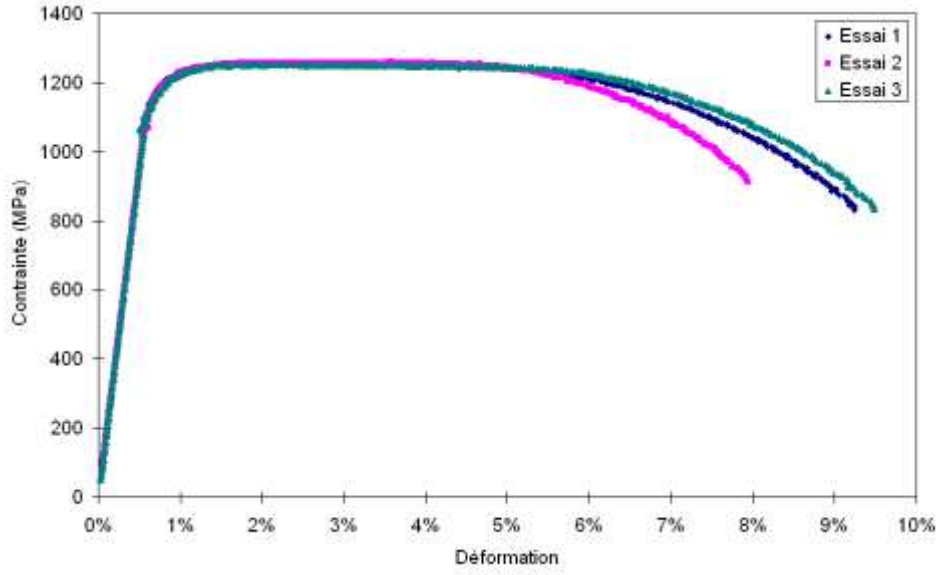


Figure 44 : Essais de traction réalisés à l'ambiante sur le matériau à l'état de réception

Le matériau possède bien les caractéristiques mécaniques souhaitées, c'est-à-dire une résistance à la traction au moins égale à 1200 MPa. L'allongement à rupture est d'environ 9 % et la limite d'élasticité de 1050 MPa. On note toutefois une légère différence pour un essai au niveau de l'allongement à rupture, légèrement plus faible. On remarque que le matériau s'écrouit très peu. Le matériau a un comportement élastique-plastique quasi parfait.

Les faciès de rupture ont ensuite été observés en MEB, Figure 45. Le taux de striction moyen pour les trois éprouvettes a été déterminé égal à 56 %. L'observation détaillée du faciès de rupture révèle l'existence d'une striction suivant l'épaisseur et suivant la largeur de l'éprouvette. Nous avons calculé des taux de striction locaux, en considérant que la réduction de l'épaisseur se faisait de manière homogène sur toute la section. Nous observons, que localement, au centre de l'éprouvette, la réduction de section était de l'ordre de 65 % alors que sur les bords, elle n'est que de 50 %. Il est étonnant de constater que la couronne correspondant à l'instabilité finale en cisaillement entoure toute la partie centrale qui, quant à elle, présente des fissures de délaminage dans le plan L/TL. Nous reviendrons sur leur signification par la suite. Nous pouvons remarquer que ces fissures sont en lien avec un phénomène de clivage. Toutefois, de manière générale, la rupture reste ductile.

Nous allons maintenant étudier l'effet de la température sur le comportement mécanique en traction du matériau. Comme cela est expliqué dans le paragraphe 1.2.2, des essais à froid et à chaud ont été effectués dans une enceinte climatique. Des essais ont été conduits pour des températures comprises entre – 50°C et 350 °C.

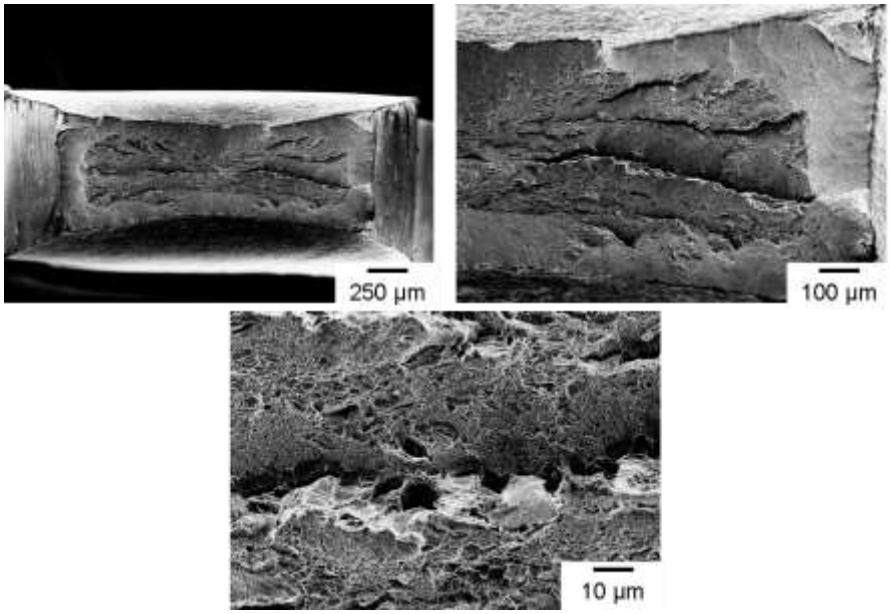


Figure 45 : Observation au MEB des faciès de rupture après essais de traction de l'alliage à l'état de réception à l'ambiante

La Figure 46 présente des résultats des essais de traction effectués dans ce domaine de température.

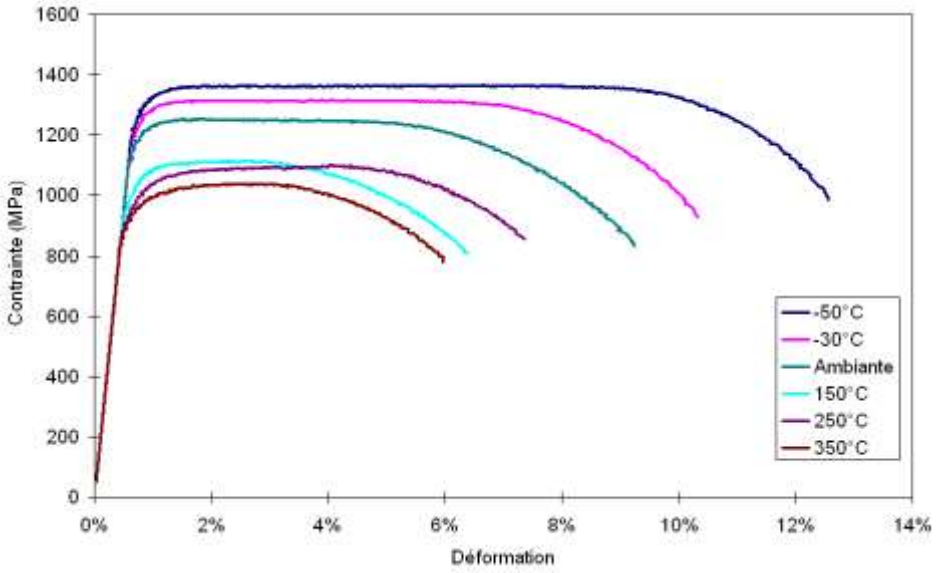


Figure 46 : Effet de la température d'essai sur le comportement mécanique du 15 5 PH 1200 MPa

On observe un fort effet de la température sur le comportement mécanique du matériau. Ainsi, une baisse de la température s'accompagne d'une augmentation générale des propriétés mécaniques (limite d'élasticité et résistance à la traction mais aussi allongement à rupture). Inversement, une augmentation de la température entraîne une diminution des propriétés mécaniques. Dans le Tableau 9, nous présentons l'ensemble des propriétés évaluées à partir de la moyenne de 3 essais de traction. Néanmoins, dans certains cas, un essai présentait des résultats différents des deux autres essais, présenté par ailleurs. Dans ce cas, celui-ci a été retiré.

	-50°C	-30°C	20°C	150°C	250°C	350°C

Limite d'élasticité Re (MPa)	1258	1112	1050	910	829	818
Δ(Re(T)-Re(20°C))	208	62	0	-140	-221	-232
Résistance à la traction Rm (MPa)	1430	1313	1256	1121	1080	1036
Δ(Rm(T)-Rm(20°C))	174	57	0	-135	-176	-220
Allongement à rupture (%)	11	9	9	6	7	6

Tableau 9 : Evolution des propriétés mécaniques avec la température

On observe ainsi que les variations de limite d'élasticité et de résistance à la traction évoluent de manière générale dans le même sens et avec la même amplitude. Les propriétés mécaniques diminuent rapidement avec l'augmentation de la température. Nous pouvons modéliser l'évolution des propriétés mécaniques en utilisant la formule proposée par Zener et Hollomon [19]. Celle-ci rend compte de l'évolution de la limite d'élasticité en fonction de la température. Elle se définit par :

$$\sigma_y(T) = A\,[T \log(\alpha/\dot{\varepsilon})]^b$$

où A et b sont des paramètres caractéristiques du matériau, T la température en Kelvin et α une constante.

En se plaçant à vitesse de déformation constante, on obtient :

$$\log(\sigma_y(T)/\sigma_y(273K)) = b \log(T/293)$$

La Figure 47 montre ainsi la représentation de cette dernière équation. On remarque que l'on peu modéliser l'évolution de la limite d'élasticité avec une bonne précision dans cette plage de température.

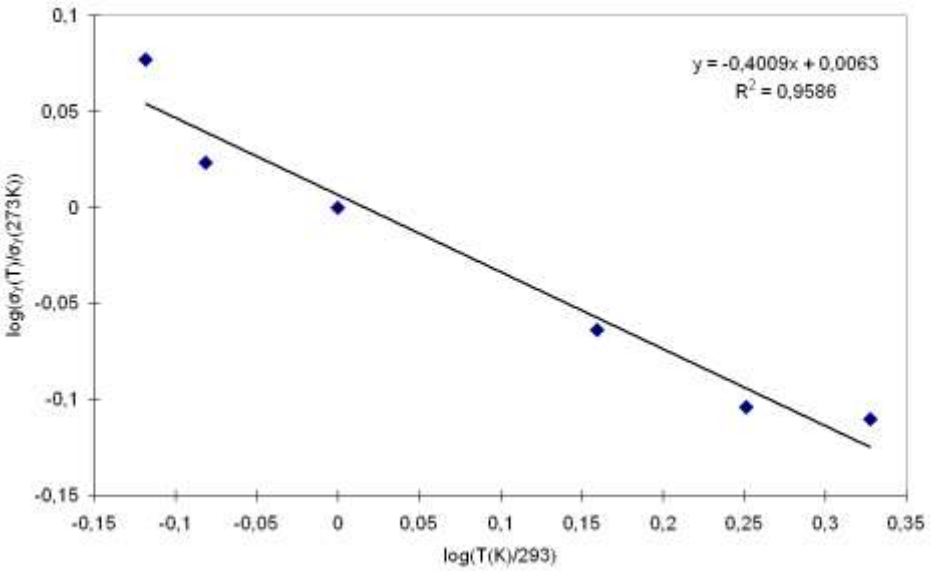


Figure 47 : Représentation selon l'équation proposée par Zener et Hollomon de la variation de la limite d'élasticité du 15-5 PH 1200 MPa avec la température.

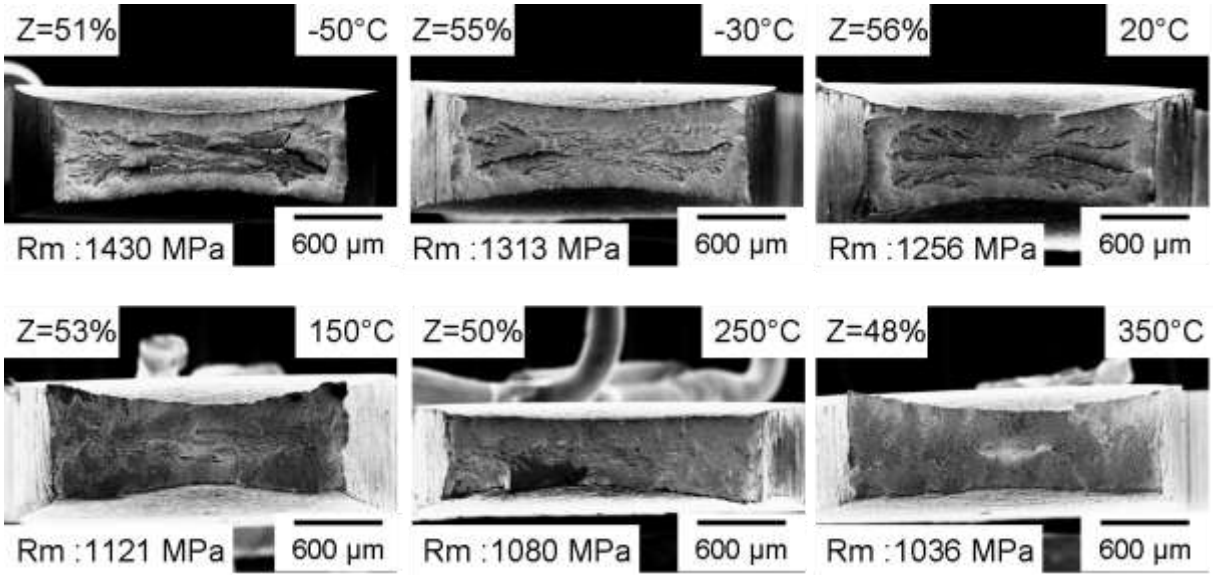


Figure 48 : Evolution des faciès de rupture avec la température d'essai pour des essais de traction réalisés sur le matériau à l'état de réception

La Figure 48 montre l'évolution de la morphologie des faciès de rupture des éprouvettes de traction avec la température. L'alliage présente des modes de rupture classiques pour ce type d'alliage, c'est-à-dire une rupture par clivage et ouverture des joints de grains ou de paquets de lattes, soulignant le caractère fragile de la rupture et une rupture par coalescence de cupules, soulignant le caractère ductile.

On remarque que la température d'essai a une forte influence. Malgré tout, les faciès restent majoritairement ductiles. En effet, la diminution de la température d'essais, par rapport à un essai effectué à température ambiante, semble conduire à une densité de décohésions présentes sur le faciès de rupture, plus élevée. La présence de clivage est beaucoup plus importante sur les faciès correspondant à ces températures d'essais. A l'inverse, une augmentation de la température d'essai s'accompagne d'une diminution de la densité de décohésions, jusqu'à leur disparition pour des essais effectués au dessus de 250°C. Malgré ces différences de comportement, nous n'observons pas d'effet de la température sur le taux de striction des faciès de rupture. Néanmoins, une forte diminution de l'allongement à rupture est mesurée. L'apparition du clivage, en diminuant la température d'essai, tend à augmenter l'allongement de l'éprouvette, sans faire évoluer la striction.

Ces observations laissent à penser qu'à température ambiante, le matériau présente encore un caractère fragile, dû à la présence de décohésions sur les faciès. Une étude plus approfondie sur des faciès de rupture pourrait amener à déterminer la température à laquelle le clivage est absent. Néanmoins, les essais Charpy restent le moyen privilégié pour déterminer la température de transition ductile-fragile.

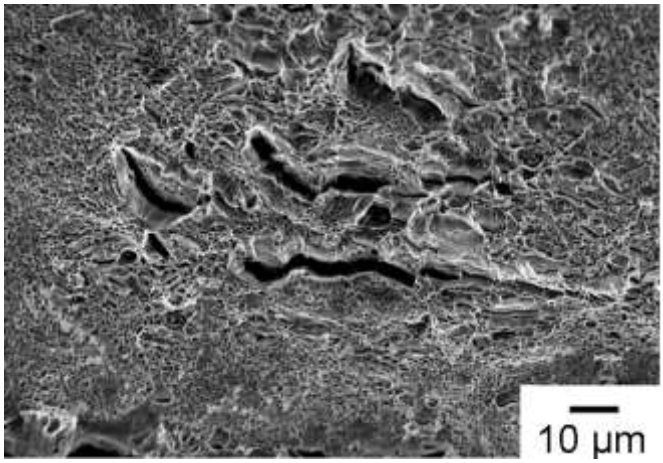


Figure 49 : Exemple de clivage observé sur un faciès d'éprouvette de traction testée à -30°C

Dans cette partie, les résultats présentés correspondent à des essais de traction effectués suivant le sens de prélèvement L-TL. Les caractéristiques affichées sont le résultat d'une moyenne de 3 essais. Nous allons maintenant déterminer si le sens de prélèvement à des conséquences sur le comportement mécanique de l'alliage, ainsi que la position de l'éprouvette dans le méplat.

2.4.2.3. Effet de la position de l'éprouvette et du sens de prélèvement

La Figure 44 permettait, sur des essais effectués à température ambiante, de voir une légère différence d'allongement à rupture pour un essai. Ceci n'est pas forcément remarquable, l'allongement à rupture pouvant être sujet à des phénomènes extrinsèques au matériau (par exemple, l'usinage des éprouvettes). Toutefois, d'autres essais montrent des comportements bien différents. Ainsi, par exemple, intéressons nous à des essais effectués, toujours sur le matériau de de l'étude dans le sens de prélèvement L-TL, à -50°C et à 250°C, respectivement reportés sur les Figure 50 et Figure 51.

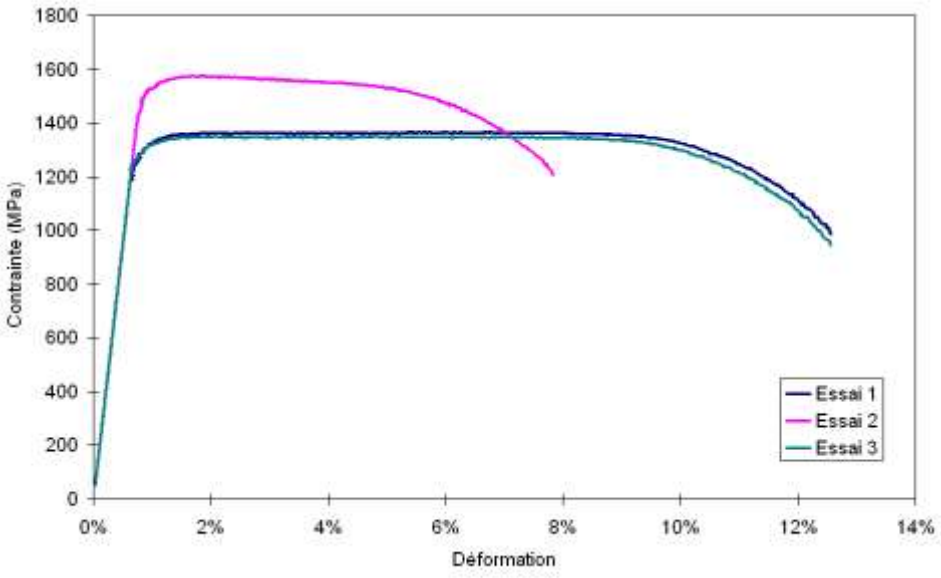


Figure 50 : Courbes de traction correspondant à des essais de traction réalisés à -50°C sur le 15 5 PH à l'état de réception

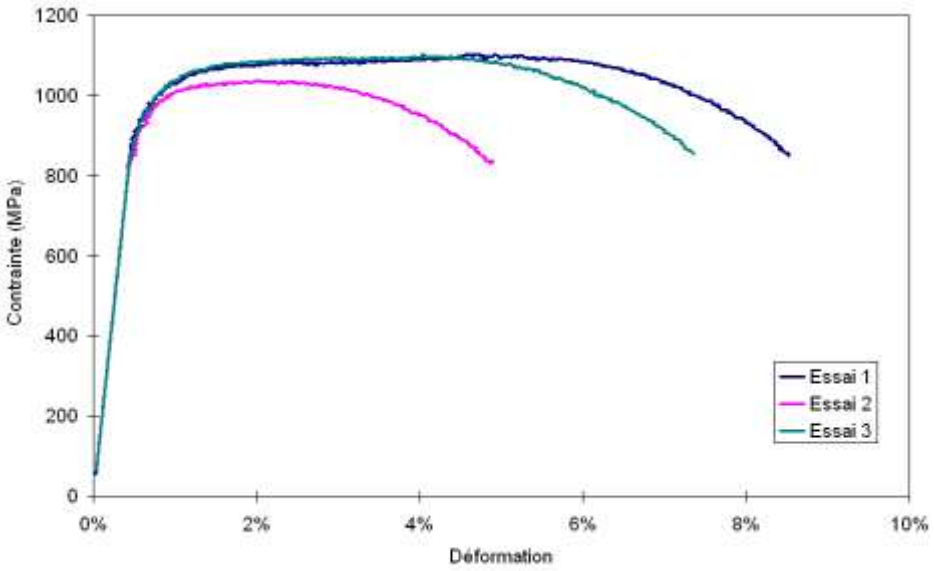


Figure 51 : Courbes de traction correspondant à des essais de tractions réalisés à 250°C sur le 15 5 PH à l'état de réception

Ces courbes montrent l'hétérogénéité du comportement mécanique de l'alliage. Nous rappelons ici la méthode d'usinage des éprouvettes. Un profil ayant la forme des éprouvettes est prélevé dans le méplat. Le profil, dans le cas d'un prélèvement dans le sens L-TL, est aussi épais que le méplat (1 mm de chaque côté du profil ont été retirés afin d'enlever la peau de la barre). Par la suite, les éprouvettes sont découpées dans le profil. Par conséquent, elles permettent d'étudier l'homogénéité du comportement mécanique dans le méplat. Dans le cas des essais présentés ci-dessus, la position de l'éprouvette dans l'épaisseur du méplat n'a pas été repérée. Toutefois, nous pouvons remarquer une grande hétérogénéité des comportements mécaniques dans l'épaisseur du méplat. Les raisons de ces hétérogénéités seront discutées plus tard dans le manuscrit.

Intéressons nous aux effets de sens de prélèvement. Nous rappelons que ceux-ci ont été définis sur la

Figure 43.

Le Tableau 10 compare les propriétés mécaniques mesurées lors de ces essais à celles obtenues pour des essais effectués sur des éprouvettes prélevées dans les différents sens définis auparavant. Très peu de différences sont à noter entre les différents sens de prélèvement. Une légère diminution de l'allongement est à noter dans le cas des essais de traction effectués dans le sens travers long.

		-50°C	-30°C	20°C	150°C	250°C	350°C
L-TL	Limite d'élasticité Re (MPa)	1258	1112	1050	910	829	818
	Résistance à la traction Rm (MPa)	1430	1313	1256	1121	1080	1036
	Allongement à rupture (%)	11	9	9	6	7	6
TL-L	Limite d'élasticité Re (MPa)	1169	1107	1084	951	890	770
	Résistance à la traction Rm (MPa)	1355	1315	1246	1117	1082	1021
	Allongement à rupture (%)	7	8	7	7	8	5
TC-L	Limite d'élasticité Re (MPa)	1155	1103	1060	955	903	815
	Résistance à la traction Rm (MPa)	1330	1294	1240	1132	1070	1047
	Allongement à rupture (%)	10	10	8	9	7	6
TL-TC	Limite d'élasticité Re (MPa)	1186		1100			821
	Résistance à la traction Rm (MPa)	1353		1228			1055
	Allongement à rupture (%)	11.2		9			5.8

Tableau 10 : Evolution des propriétés mécaniques avec la température suivant le sens de prélèvement des éprouvettes

2.4.3. Essais de résilience

Lors de ces travaux, comme expliqué auparavant, les essais de résilience ont été réalisés sur des éprouvettes 6x10 ayant 3 entailles et sur une machine de traction classique sur laquelle ont été montés des appuis de type Charpy. Avant de s'intéresser aux résultats des essais sur l'alliage 15 5 PH 1200 MPa, il est nécessaire de comparer les résultats obtenus entre des essais menés sur un mouton pendule et sur ce type d'installation. Pour cela, une première campagne d'essai a été réalisée sur le 15 5 PH 1070 MPa et les résultats ont été comparés à ceux obtenus par Herny dans ses travaux [28]. A noter, que différentes vitesses de déplacement ont été testées, de 2 mm/s jusqu'à 0.002 mm/s. Aucun effet de vitesse sur cette plage n'a été observé. La vitesse de déplacement a été par la suite fixée arbitrairement à 0.02 mm/s.

La TTDF est définie comme étant la température à laquelle l'énergie à rupture est égale à (USE+LSE)/2, avec USE (Upper Shelf Energy) l'énergie de palier ductile et LSE (Lower Shelf Energy) l'énergie de palier fragile [21].

La Figure 52 compare les résultats obtenus sur le 15 5 PH 1070 MPa entre un essai Charpy quasi statique, et un essai Charpy classique.

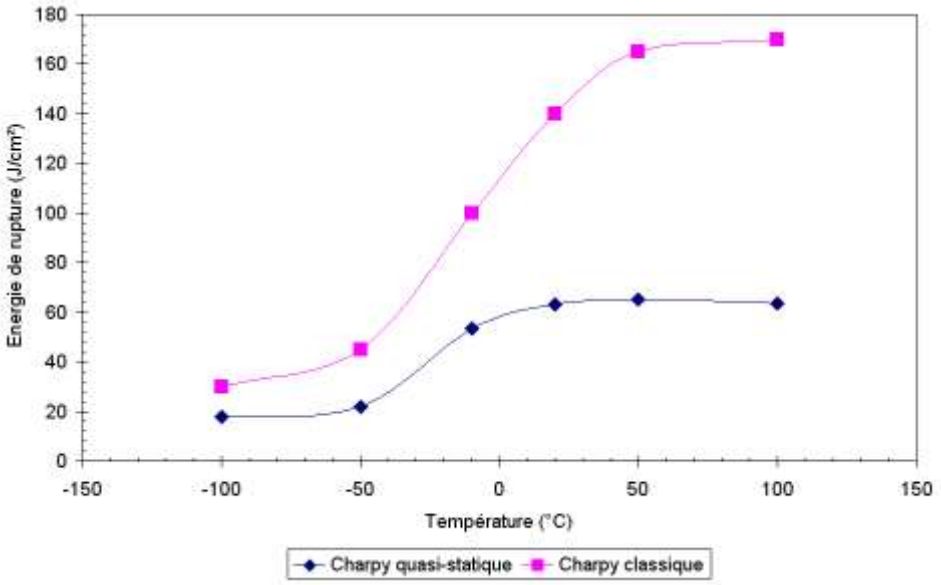


Figure 52 : Effet de la vitesse de sollicitation sur la résilience de l'alliage 15 5 PH 1070 MPa

Une nette différence est à noter entre les énergies de rupture obtenues pour les deux vitesses de sollicitation. La différence est très marquée pour ce qui concerne le plateau ductile. Néanmoins, la TTDF n'est pas modifiée. Herny l'avait ainsi définie à -17 °C. Dans le cas d'un essai Charpy quasi-statique, celle-ci a été déterminée à -25°C. Cette méthode reste valide donc pour déterminer la TTDF. Cette technique a été alors appliquée sur l'alliage traité 1200 MPa. Différents sens de prélèvements dans le méplat ont été étudiés, n'amenant néanmoins aucune différence notable au niveau des résultats. La Figure 53 montre les résultats obtenus. Dans ce cas, la TTDF a été estimée à 30°C. Ces résultats montrent ainsi, qu'à température ambiante, le matériau est en pleine transition ductile fragile. De plus, en comparant entre les deux alliages le niveau du palier ductile, celui-ci est plus bas en énergie dans le cas du 15 5 PH 1200 MPa, montrant ainsi son caractère plus fragile.

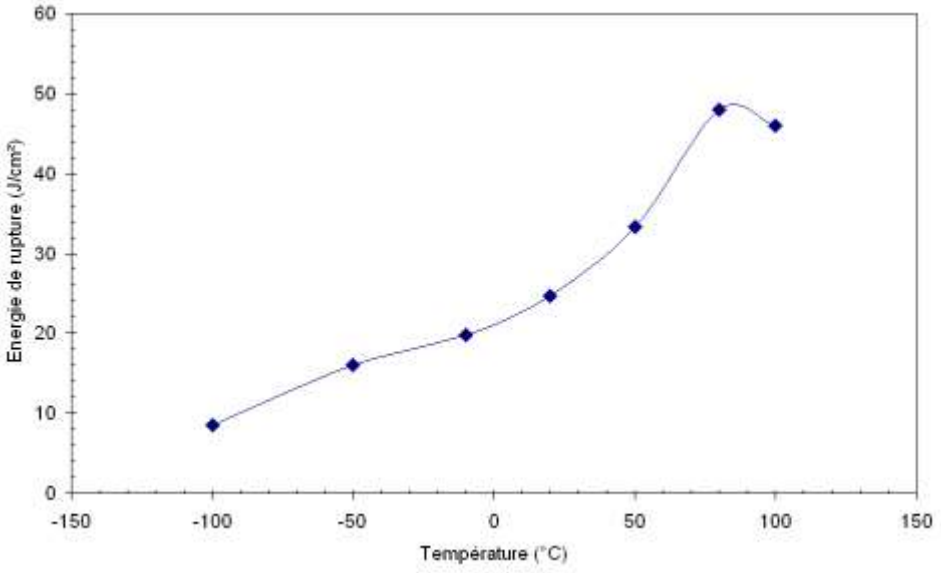


Figure 53 : Essais Charpy quasi statique effectués sur l'alliage 15 5 PH 1200 MPa

Des observations en microscopie électronique à balayage permettent de mettre en évidence le caractère fragile de l'alliage. Sur la courbe précédente, les faciès de rupture correspondant aux essais ont été rajoutés, Figure 54. L'évolution des faciès de rupture corrobore les mesures. En effet, à basse température, le faciès de rupture correspond à une rupture fragile par clivage et rupture intergranulaire, Figure 55, et ce jusqu'à environ la température de transition ductile fragile. Au dessus, le caractère ductile du matériau apparaît sur le faciès de rupture, observable par un faciès en dents de scie, Figure 56. Néanmoins, un certain nombre de fissures sont toujours observables sur les faciès, malgré le caractère ductile de la rupture. Lorsque l'essai est effectué dans la partie supérieure de la transition, 50°C dans ce cas, le faciès de rupture se décompose en trois parties : dans la partie supérieure du faciès, correspondant au fond d'entaille, on observe un faciès ductile, puis dans la zone du milieu, la propagation de la fissure se fait de manière fragile pour se terminer de manière ductile. Ce caractère mixte est observable sur la courbe force-déplacement, où une reprise de charge par l'éprouvette est présente en fin d'essai, Figure 57. Sur cette illustration, sont représentées deux courbes obtenues pour des essais dans le domaine fragile et le domaine ductile. Ce type de courbes peut être divisé en deux : jusqu'à la force maximale, il s'agit de l'initiation de la fissure. Par la suite, la seconde partie de la courbe est liée à la propagation de cette fissure.

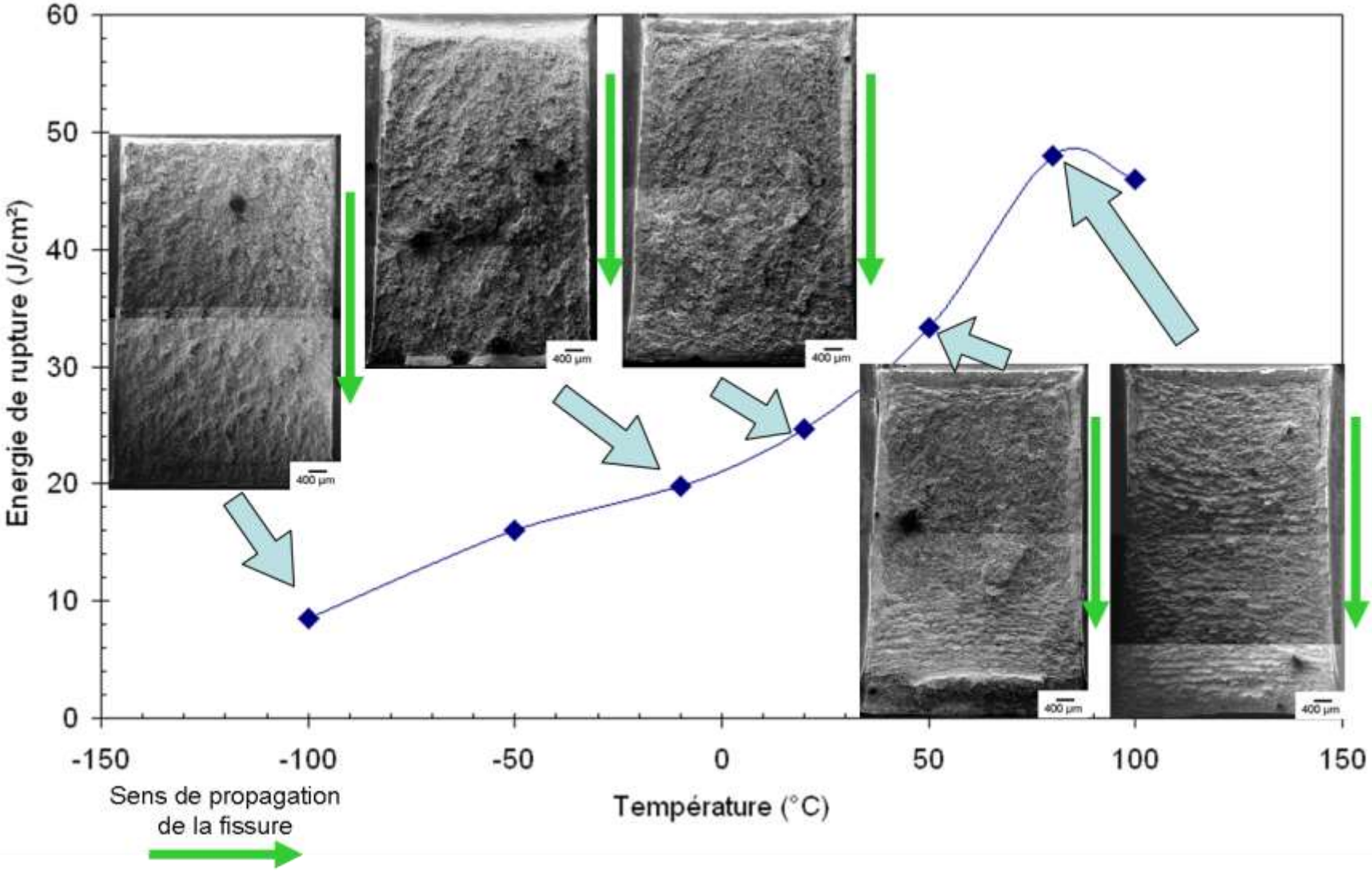


Figure 54 : Faciès de rupture observés en MEB après essais de Charpy quasi-statique (QS) sur le 15 5 PH 1200 MPa à l'état de réception

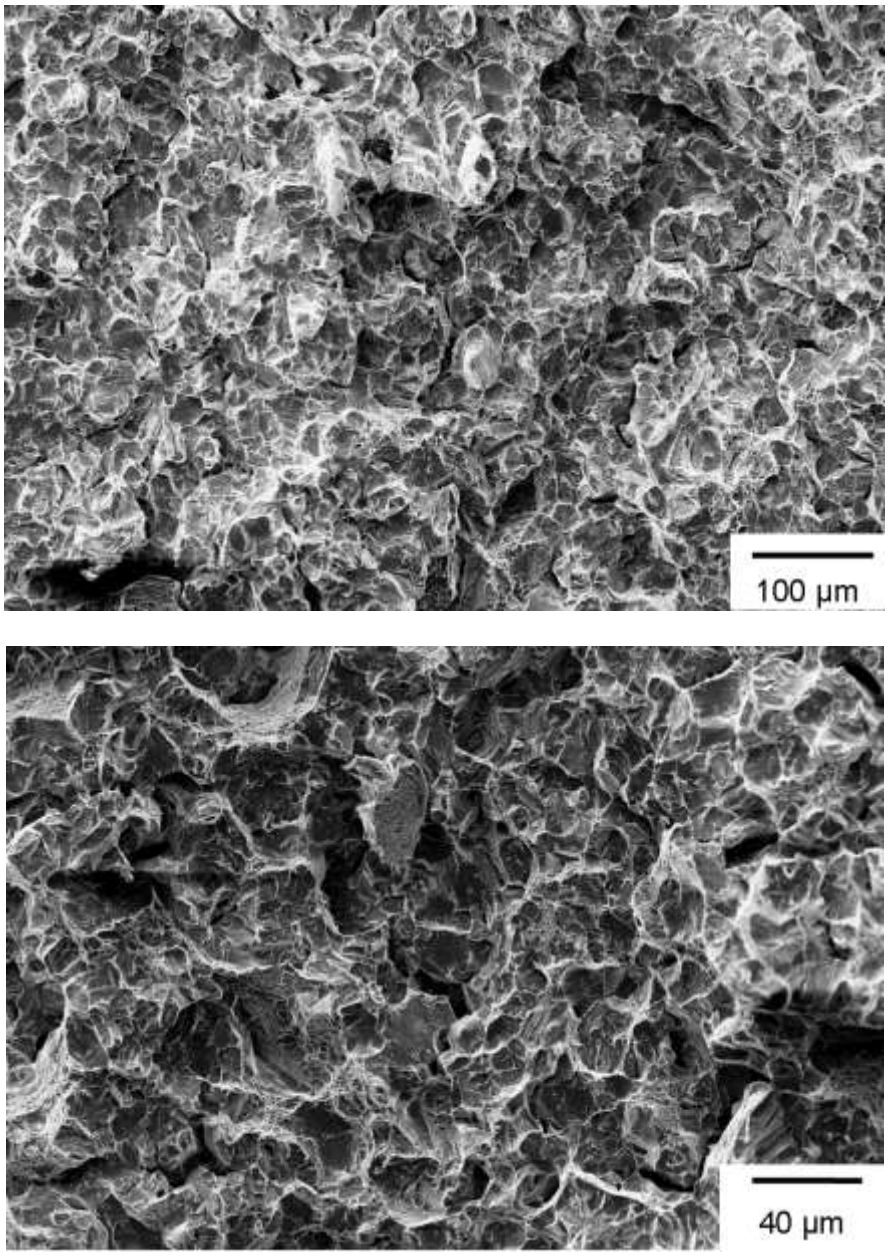


Figure 55 : Faciès de rupture d'une éprouvette rompue à -10°C

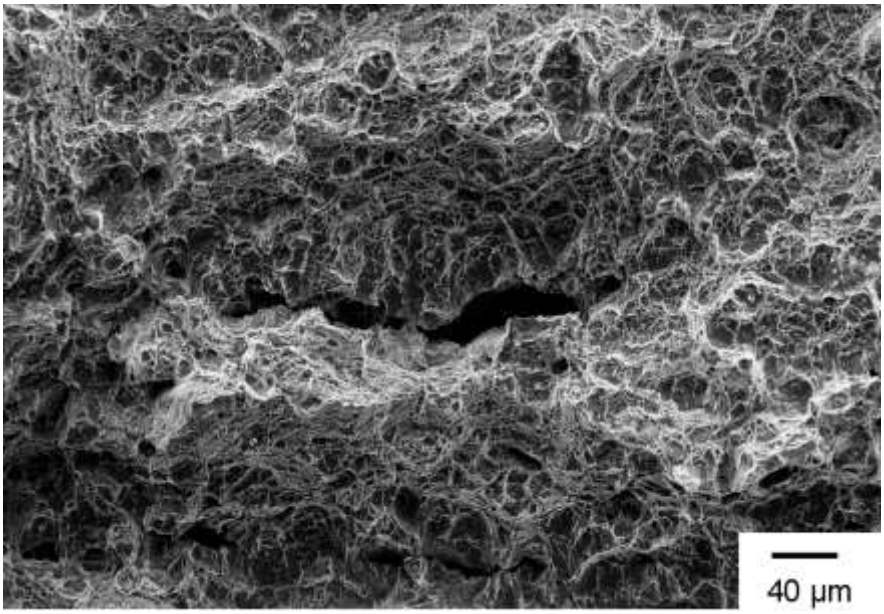


Figure 56 : Faciès de rupture d'une éprouvette rompue à 100°C

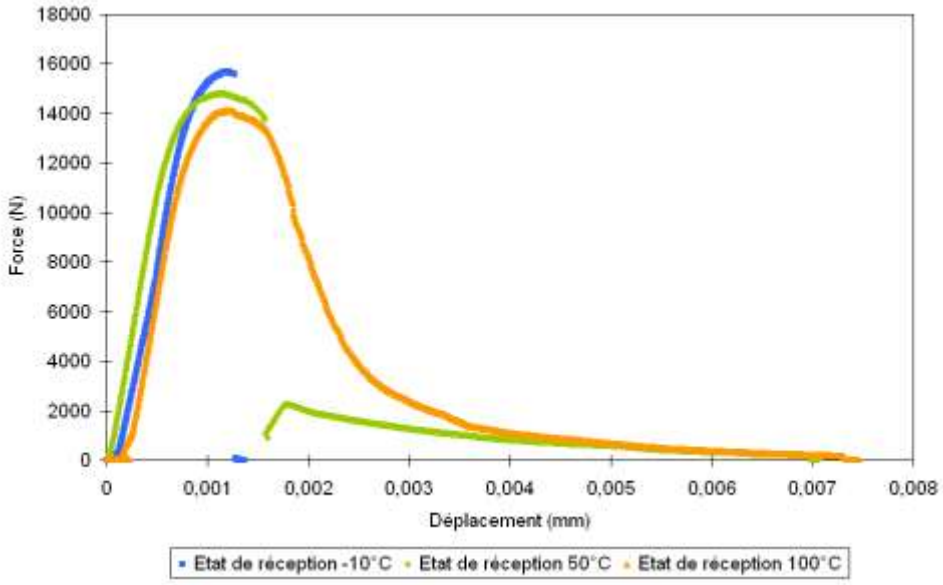


Figure 57 : Courbes force-déplacement obtenues sur l'alliage à l'état de réception pour trois températures d'essais

2.4.4. Essai de ténacité

Des essais de ténacité ont été réalisés par Aubert & Duval sur le 15-5 PH 1200 MPa à l'état revenu. Ces essais ont été effectués sur des éprouvettes Compact Tension CT 25. A température ambiante, l'alliage possède une ténacité de 144 MPa√m. Par comparaison, l'alliage 15-5 PH 1070 MPa présente une ténacité de 120 MPa√m. Malgré une valeur élevée de K_{1C}, le faciès de rupture montre un caractère fragile évident, Figure 58. De la rupture par clivage ainsi que l'ouverture des anciens joints de grains sont observées.

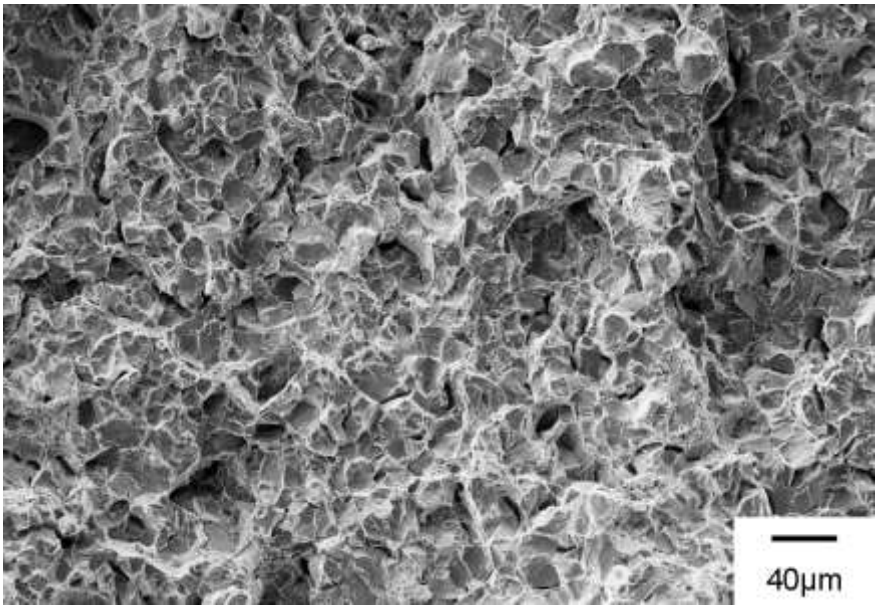


Figure 58 : Faciès de rupture après essai de ténacité sur une éprouvette CT 25 à température ambiante

Synthèse

L'alliage 15 5 PH 1200 MPa présente différentes échelles de microstructure, allant de la latte à l'ancien grain austénitique. Le comportement mécanique en dureté de l'alliage est directement lié à ces différents éléments mais aussi à l'anisotropie de comportement mécanique de la maille cristallographique cubique centrée. En réduisant la charge appliquée lors des essais de dureté à 1 kg et en augmentant la taille de l'échantillonnage à 60 essais, l'essai de dureté permet à la fois de statuer sur le comportement global du matériau, mais aussi d'évaluer son homogénéité. Pour la suite de l'étude, nous pouvons considérer qu'une variation d'une unité de l'écart type est significative.

Les essais de traction ont montré l'homogénéité du comportement de l'alliage dans les différents sens de prélèvement, mais montrent toutefois une certaine hétérogénéité dans l'épaisseur du méplat. Les essais Charpy quasi statique montrent quant à eux, que la température de transition ductile fragile de l'alliage à l'état de réception du 15 5 PH 1200 MPa est proche de 30°C. Le matériau semble donc fragile à l'état de réception à température ambiante.

Références

[1] D.Tabor : *The hardness of metals*. Oxford, 1951.

[2] B. Tanguy, J. Besson, R. Piques et A. Pineau : Ductile to brittle transition of an a508 steel characterized by charpy impact test: Part i: experimental results. *Engineering Fracture Mechanics*, 72(1):49–72, janvier 2005.

[3] Jean-Marc Cloué : *Justification de la tenue en service en milieu primaire REP d'un acier martensitique à durcissement structural*. Thèse de doctorat, Ecole des Mines de Paris, 1998.

[4] Emilie Herny : *Caractérisation mécanique et étude des mécanismes de vieillissement thermique et thermomécanique de l'acier inoxydable martensitique 15 5 PH, soudé par faisceau d'électrons*. Thèse de doctorat, INP Toulouse, 2006.

[5] C.Y. Kung et J.J. Rayment : An examination of the validity of existing empirical formulae for the calculation of ms temperature. 13(2):328–331–, 1982.

[6] Hiromoto Kitahara, Rintaro Ueji, Nobuhiro Tsuji et Yoritoshi Minamino : Crystallographic features of lath martensite in low-carbon steel. *Acta Materialia*, 54(5):1279–1288, mars 2006.

[7] Ilze Manika et Janis Maniks : Size effects in micro- and nanoscale indentation. *Acta Materialia*, 54(8):2049–2056, mai 2006.

[8] Linmao Qian, Hui Yang, Minhao Zhu et Zhongrong Zhou : Experimental verification of the strain-gradient plasticity model for indentation. *Journal of Materials Research*, 20(11):3150–3156 M3 – 10.1557/JMR.2005.0395, 2005.

[9] H. Li, A. Ghosh, Y.H. Han et R.C. Bradt : The frictional component of the indentation size effect in low load microhardness testing. *Journal of Materials Research*, 8(05):1028–1032, 1993.

[10] William D. Nix et Huajian Gao : Indentation size effects in crystalline materials: A law for strain gradient plasticity. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 46(3):411–425, mars 1998.

[11] G.B. Viswanathan, Eunha Lee, Dennis M. Maher, S. Banerjee et Hamish L. Fraser : Direct observations and analyses of dislocation substructures in the alpha phase of an alpha/beta ti-alloy formed by nanoindentation. *Acta Materialia*, 53(19):5101–5115, novembre 2005.

[12] Danial Faghihi et George Z. Voyiadjis : Determination of nanoindentation size effects and variable material intrinsic length scale for body-centered cubic metals. *Mechanics of Materials*, 44(0):189–211, janvier 2012.

[13] George Z. Voyiadjis, Amin H. Almasri et Taehyo Park : Experimental nanoindentation of bcc metals. *Mechanics Research Communications*, 37(3):307–314, avril 2010.

[14] S. Harvey, H. Huang, S. Venkataraman et W.W. Gerberich : Microscopy and microindentation mechanics of single crystal fe 3 wt. % si: Part i. atomic force microscopy of a small indentation. *Journal of Materials Research*, 8(06):1291–1299, 1993.

[15] W. Zielinski, H. Huang et W.W. Gerberich : Microscopy and microindentation mechanics of single crystal fe 3 wt. % si: Part ii. tem of the indentation plastic zone. *Journal of Materials Research*, 8(06):1300–1310 M3 – 10.1557/JMR.1993.1300, 1993.

[16] D. Kramer, H. Huang, M. Kriese, J. Robach, J. Nelson, A. Wright, D. Bahr et W.W. Gerberich : Yield strength predictions from the plastic zone around nanocontacts. *Acta Materialia*, 47(1):333–343, décembre 1998.

[17] N.A. Stelmashenko, M.G. Walls, L.M. Brown et Yu.V. Milman : Microindentations on w and mo oriented single crystals: An stm study. *Acta Metallurgica et Materialia*, 41(10):2855–2865, octobre 1993.

[18] J. J. Adams, D. S. Agosta, R. G. Leisure et H. Ledbetter : Elastic constants of monocrystal iron from 3to500k. *Journal of Applied Physics*, 100(11):–, 2006.

[19] V. I. Razumovskiy, A. V. Ruban et P. A. Korzhavyi : Effect of temperature on the elastic anisotropy of pure fe and fe0.9 cr0.1 random alloy. *Phys. Rev. Lett.*, 107(20):205504–, novembre 2011.

[20] J. A. Rayne et B. S. Chandrasekhar : Elastic constants of iron from 4.2 to 300°k. *Phys. Rev.*, 122(6):1714–1716, juin 1961.

[21] D.François : Essais de rupture - essais par choc. *Techniques de l'ingénieur*, M4165, 2005.

Chapitre III : Etude du vieillissement de l'acier 15-5 PH sans et sous contrainte appliquée

Dans ce chapitre, nous nous intéresserons au vieillissement de l'alliage 15 5 PH, et plus particulièrement à la décomposition spinodale, et à la relation vieillissement/mécanique. Dans cette étude, des vieillissements à 290, 350 et 370°C ont été effectués pour des durées allant jusqu'à 15 000h. Différents types de vieillissement ont été effectués dans cette thèse. Tout d'abord, le matériau non contraint a été vieilli afin d'étudier la cinétique de vieillissement de l'alliage mais aussi l'évolution des propriétés mécaniques après vieillissement. Parallèlement des échantillons soumis à des contraintes ont été vieillis afin d'étudier l'influence d'une contrainte externe sur la cinétique de vieillissement.

C'est dans cet ordre que les résultats obtenus suite à ces différentes conditions d'exposition seront présentés : dans un premier temps les vieillissements sans contrainte appliquée puis dans un second temps, les vieillissements effectués avec une contrainte appliquée durant tout la dureé du vieillissement.

1. Vieillissement sans contrainte appliquée

1.1. Matrice de vieillissement

Au tout début de cette étude, trois températures de vieillissement ont été choisies 290, 350 et 370°C, afin de s'approcher au mieux des conditions réelles d'utilisation des mâts réacteur. Les durées de vieillissement maximales ont été fixées à 15 000 h, représentant 625 jours de vieillissement ininterrompu, pour les vieillissements effectués à 290 et 350°C, alors que pour les vieillissements à 370°C, la durée maximale a été limitée à 5 000 h.

Comme expliqué auparavant, l'essai de dureté est un des moyens d'analyse les plus simples pour suivre la cinétique de vieillissement. La dureté a été ainsi mesurée pour chaque condition de vieillissement définie par la suite, en effectuant 60 essais avec une charge de 1 kg. Ce protocole permet ainsi de suivre l'évolution du comportement global du matériau, mais aussi de s'intéresser à l'homogénéité du vieillissement par l'étude de l'écart type de la distribution des valeurs de dureté, comme nous le verrons par la suite.

De plus, des essais de traction, de résilience et de ténacité ont été effectués sur du matériau vieilli afin de déterminer l'évolution des propriétés mécaniques de l'alliage avec le vieillissement.

Les différentes conditions de vieillissement sont reportées dans le Tableau 11.

Températures de vieillissement		Durée de vieillissement (en heures)	Essais de dureté	Essais de traction, résilience et ténacité
290 & 350°C	370°C	500	X	
		1000	X	X
		1500	X	
		2250	X	
		3350	X	
		5000	X	X
		6250	X	
		7500	X	
		8750	X	
		10000	X	X
		11250	X	
		12500	X	
		13750	X	
		15000	X	X

Tableau 11 : Matrice de vieillissement

1.2. Suivi du vieillissement

Comme écrit précédemment, le premier moyen utilisé pour suivre le vieillissement a été l'essai de dureté. Dans cette partie seront présentés séparément les résultats de dureté obtenus pour les trois températures de vieillissement. Les résultats présentés par défaut concernent la coulée A. Ensuite, nous comparerons ces résultats entre eux et étudierons l'effet de coulée. Enfin, nous comparerons les résultats de dureté après vieillissement à ceux obtenus dans la thèse de E.Herny, concernant le 15-5 PH 1100 MPa, afin d'étudier l'effet du traitement de revenu, et donc de l'état métallurgique initial, sur le vieillissement.

1.2.1. Vieillissement à 290°C

Les résultats des essais de dureté effectués sur le matériau vieilli à 290°C sont rassemblés sur la Figure 59. Sur cette figure comme sur les suivantes, les résultats seront présentés selon le protocole suivant : la moyenne des 60 indents est indiquée, encadrée par l'écart type obtenu. Par souci de clarté, les valeurs moyennes et d'écart type ne sont pas reportées directement sur le graphique. Celles-ci sont mentionnées dans le Tableau 12, pour les vieillissements à 290°C.

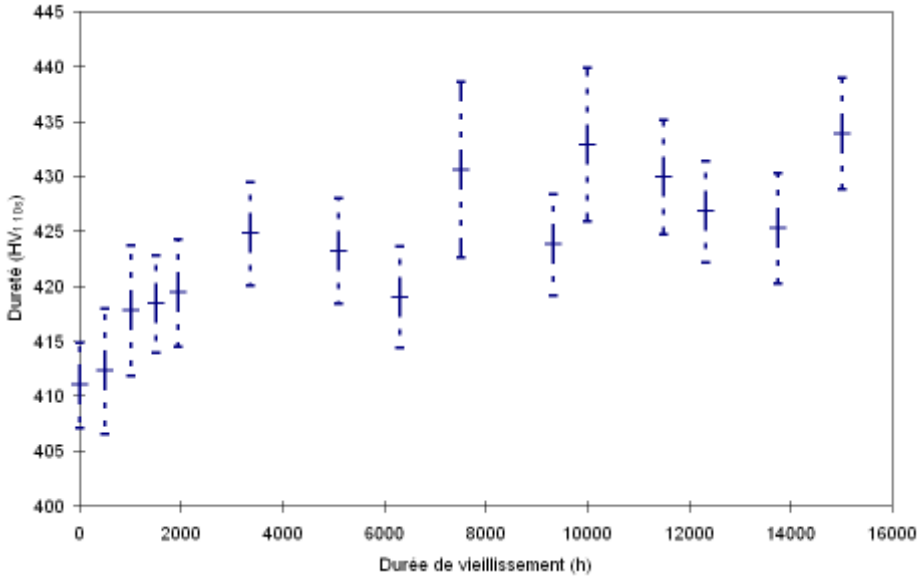


Figure 59 : Evolution de la dureté en fonction du temps de vieillissement à 290°C

D'après la Figure 59, on peut voir que le vieillissement semble se dérouler en deux phases pour les durées de vieillissement explorées. Dès les deux mille premières heures, une augmentation quasi linéaire et assez rapide de la dureté est observée.

Par la suite, la dureté augmente plus progressivement. On note toutefois, que pour les temps de vieillissement les plus longs, la distribution de dureté ne progresse pas de manière simple. En effet, on constate des hausses et des baisses successives de la dureté moyenne comme des évolutions de l'écart type. Ces évolutions non monotones nous ont incité à répéter ces mesures. C'est donc sur une base de 120 indents par temps de vieillissement que ces mesures ont été confirmées. On note aussi une augmentation de l'écart type avec le vieillissement, surtout pour des points ne suivant pas la tendance générale de la courbe.

Toutefois, nous pouvons constater que l'évolution de la dureté est assez faible. Effectivement, au bout de 15 000 h de vieillissement, l'augmentation de la dureté n'est que de 23 $HV_{1\ 10s}$. Au bout du premier stade de vieillissement, c'est-à-dire après 2 000 h de vieillissement, la dureté a déjà augmenté de quasiment 10 $HV_{1\ 10s}$, correspondant à la moitié du durcissement total mesuré.

Durée de vieillissement	Dureté $HV_{1\ 10s}$	Incrément de dureté par rapport à l'état de réception	Ecart type de la distribution
0	411	0	4.0
500	412	1	5.7
1000	417	6	5.9
1500	418	7	4.4
1940	419	8	4.9
3350	425	14	4.7
5000	423	12	4.8
6330	419	8	4.6
7500	431	20	8.0
9330	424	13	4.6
10000	433	22	7.0
11490	430	19	5.2
12330	427	18	4.6
13750	425	14	5.0
15000	434	23	5.1

Tableau 12 : Evolution de la dureté et de l'écart type pour des vieillissements effectués à 290°C jusqu'à 15 000h

Après s'être intéressé à la variation de dureté avec le vieillissement, nous allons nous intéresser maintenant à l'évolution de l'écart type de la distribution des valeurs de dureté. Cette évolution est observable sur la Figure 60. Comme présenté dans le chapitre précédent, celui-ci est représentatif de l'homogénéité du matériau. On peut s'attendre à ce que le vieillissement, par l'intermédiaire de la décomposition spinodale contribue à la modification de la distribution des hétérogénéités de propriétés dans le matériau.

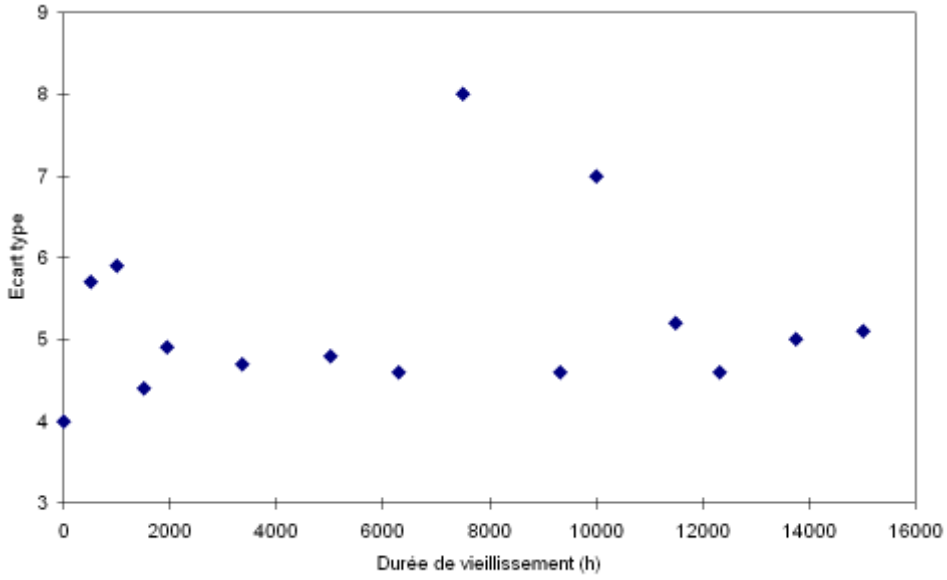


Figure 60 : Evolution de l'écart type des valeurs de dureté en fonction du temps de vieillissement à 290°C

Dans le cas des vieillissements à 290°C, nous voyons une légère augmentation de l'écart type avec le vieillissement. A l'état initial, celui-ci est de 4.0 et après 15 000 h de vieillissement à 290°C, il est de 5.1. L'évolution de l'écart type, pour cette température de vieillissement, est plutôt faible.

Mis à part les évolutions subites constatées pour des durées particulières, l'écart type n'évolue que très peu. Il semble donc que la perturbation de la microstructure du matériau reste limitée à cette température. Cette observation est à mettre en parallèle avec les variations de dureté observées à cette température, qui restent faibles.

Une analyse thermique différentielle, permet de mettre en évidence un pic endothermique, caractéristique de la réversion de la décomposition spinodale, Figure 61. Ce pic apparait à 370°C et s'étend jusqu'à 470°C. L'intensité maximale du pic est atteinte à la température de 430°C. Chacun de ces éléments est caractéristique d'un aspect de la spinodale. Ainsi, la surface du pic est proportionnelle à la quantité de phase transformée, c'est-à-dire la fraction de la matrice démixé. La température caractéristique est, quand à elle, reliée à l'état d'avancement de la spinodale. Plus cette température est élevée, plus la décomposition spinodale est avancée.

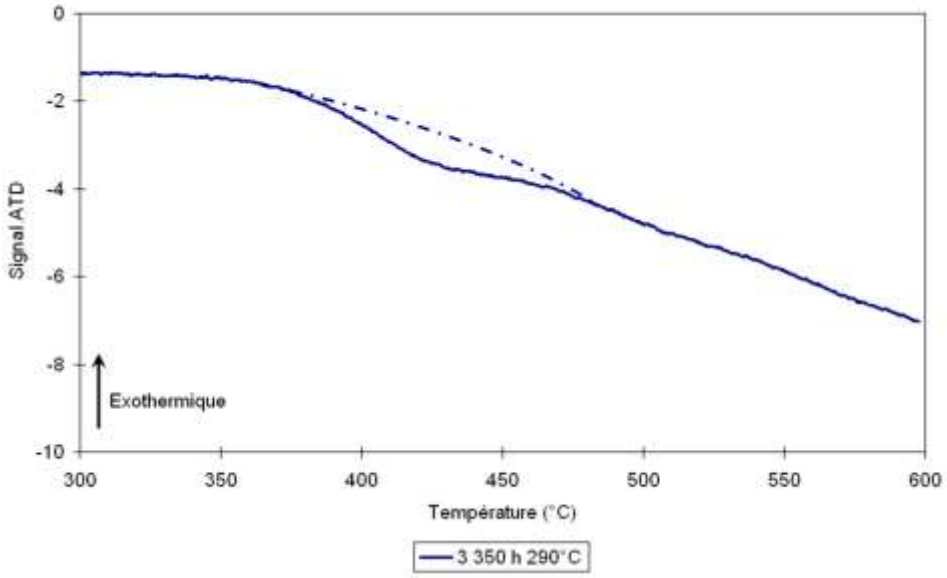


Figure 61 : ATD réalisée sur un échantillon vieilli 3 350 h à 290°C. Le trait pointillé bleu représente la courbe obtenue en l'absence de pic

1.2.2. Vieillissement à 350°C

Intéressons nous maintenant aux vieillissements effectués à 350°C. Les résultats des essais de dureté effectués sur les échantillons vieillis sont présentés sur la Figure 62. Les valeurs moyennes et les écarts types obtenus lors des essais sont consignés dans le Tableau 13.

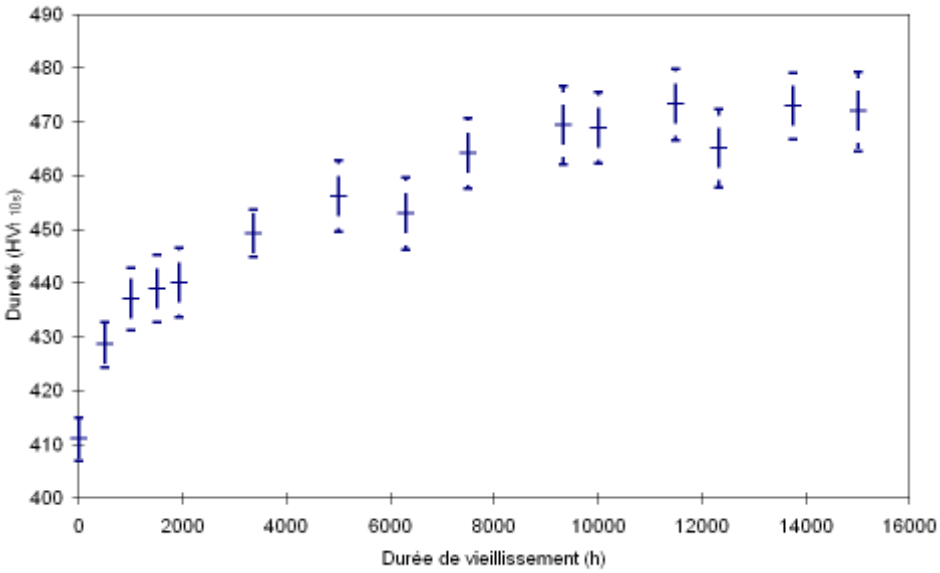


Figure 62 : Evolution de la dureté avec la durée de vieillissement à 350°C

Comme pour les vieillissements effectués à 290°C, les vieillissements à 350°C débutent par une rapide augmentation de la dureté, dans les 1 000 premières heures de vieillissement. Dans cet intervalle de vieillissement, l'augmentation de dureté est de 26 $HV_{1\ 10s}$. Dans l'intervalle 1 000 - 10 000 heures de vieillissement, nous observons une augmentation quasi linéaire de la dureté avec le temps, pour atteindre une augmentation de dureté de 58 $HV_{1\ 10s}$. Enfin, la dureté moyenne se stabilise dans les 5 000 dernières heures de vieillissement. Il n'y a plus d'évolution de la dureté avec le temps.

Durée de vieillissement	Dureté $HV_{1\ 10s}$	Incrément de dureté par rapport à l'état de réception	Ecart type de la distribution
0	411	0	4.0
500	426	15	4.2
1000	437	26	5.8
1500	439	28	6.3
1940	440	29	6.4
3350	449	38	4.4
5000	456	45	6.7
6330	453	42	6.7
7500	464	53	6.5
9330	469	58	7.3
10000	469	58	6.6
11490	473	62	6.6
12330	465	54	7.3
13750	473	62	6.2
15000	472	61	7.4

Tableau 13 : Evolution de la dureté et de l'écart type pour les vieillissements effectués à 350°C jusqu'à 15 000 h

L'évolution de la dureté est beaucoup plus importante dans le cas des vieillissements à 350°C. Au bout de 15 000 h, nous observons un durcissement du matériau d'environ 60 $HV_{1\ 10s}$. Il faut

noter que la moitié de ce durcissement est obtenu après le premier stade de durcissement, soit après 1 000 heures de vieillissement.

Comme nous pouvons le voir dans le Tableau 13, l'écart type de la distribution des valeurs de dureté mesurées évolue de manière assez significative avec le vieillissement. La Figure 63 représente l'évolution de l'écart type en fonction du temps.

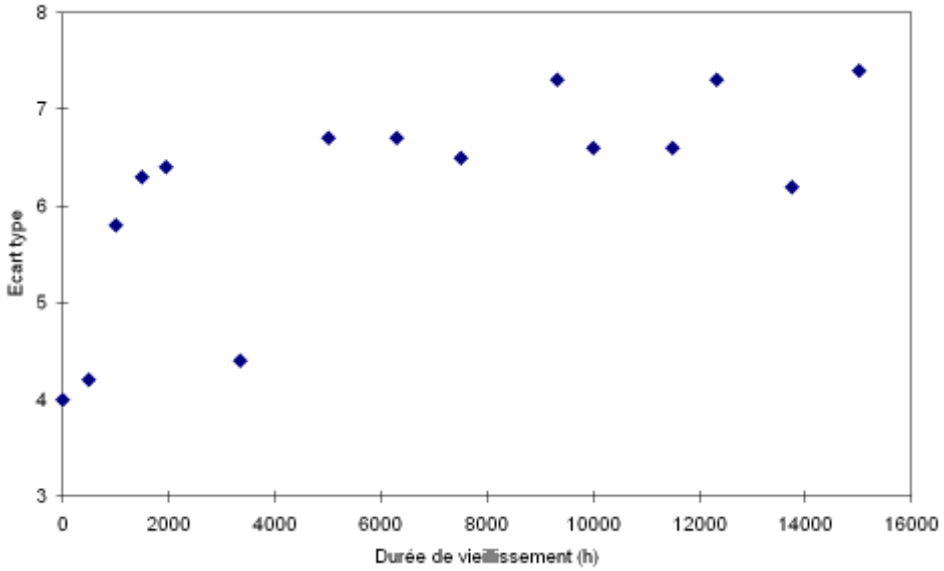


Figure 63 : Evolution de l'écart type des valeurs de dureté en fonction du temps de vieillissement à 350°C

Nous observons une forte augmentation de l'écart type des valeurs de dureté, et ce, dès 1000h de vieillissement. Par la suite, à part pour une durée de vieillissement, l'écart type se stabilise autour de 6.5. De par la signification que nous donnons à l'écart type dans cette étude, il semble que la décomposition spinodale accroit l'hétérogénéité des propriétés au sein de l'alliage. Le mécanisme de décomposition spinodale est censé affecter toute la matrice et va donc perturber l'état métallurgique initial du matériau. Il n'est pas surprenant d'observer une évolution plus importante de l'écart type plus la température de vieillissement augmente. En effet, la décomposition spinodale étant thermiquement activée et visiblement sensible à l'état métallurgique local, on peut supposer que d'un paquet de lattes à un autre il existe des écarts de cinétiques d'autant plus marqués quand la température augmente.

En ATD, le signal caractéristique de la décomposition spinodale est suffisamment important pour être mis clairement en évidence, Figure 64. Avec la durée de vieillissement, la surface du pic devient de plus en plus importante, et sa température caractéristique devient de plus en plus haute (500°C à 520°C). Il n'est pas étonnant alors d'observer des températures de pic plus élevées pour des vieillissements effectués à 350°C comparativement à 290°C, cette température étant relié à la cinétique de redissolution du chrome.

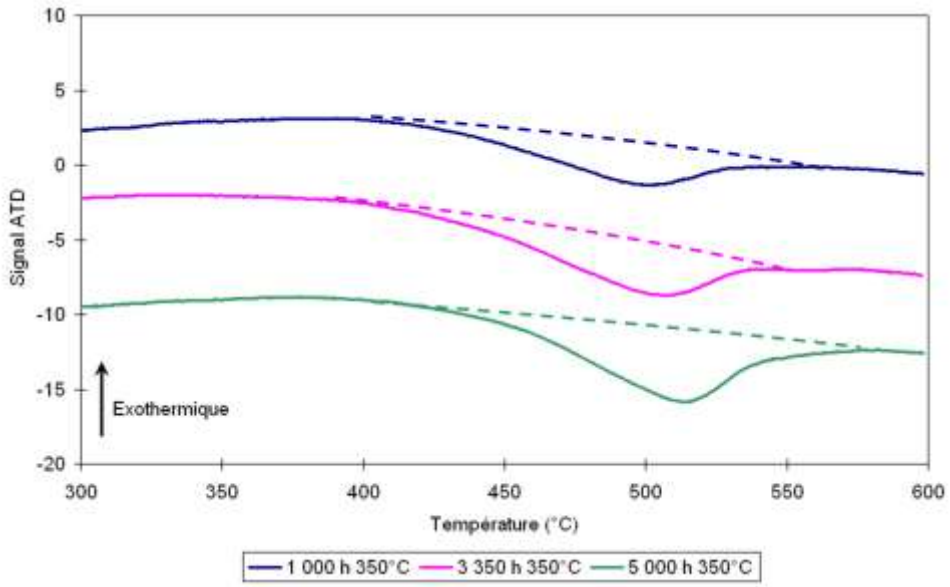


Figure 64 : ATD réalisée sur des échantillons vieillis à 350°C

1.2.3. Vieillissement à 370°C

La dernière température de vieillissement étudiée a été fixée à 370°C. La durée maximale de vieillissement a été limitée à 5 000 h. Les résultats des essais de dureté effectués sur les différents échantillons vieillis sont présentés sur la Figure 65.

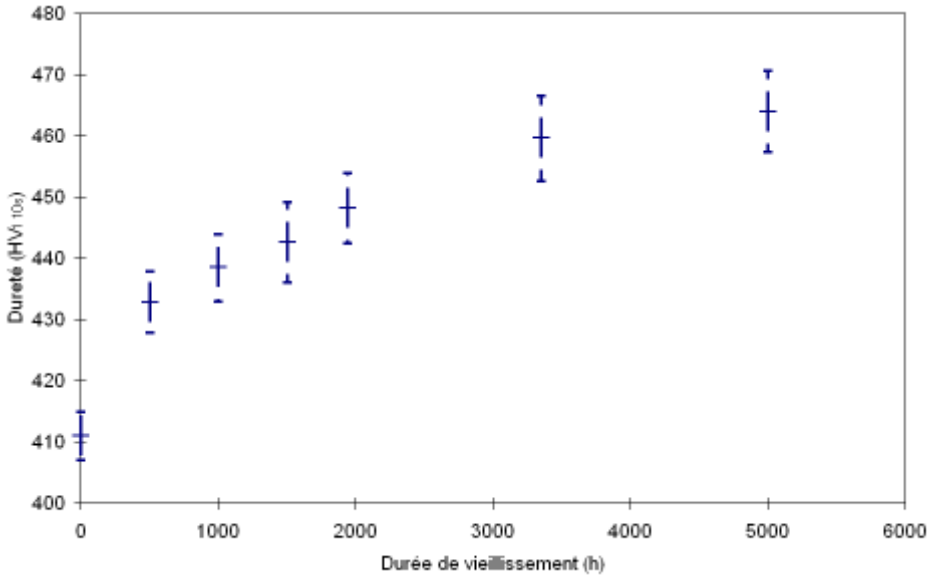


Figure 65 : Evolution de la dureté avec la durée de vieillissement à 370°C

Durée de vieillissement	Dureté $HV_{1\ 10s}$	Incrément de dureté par rapport à l'état de réception	Ecart type de la distribution
0	411	0	4.0
500	433	22	5.0
1000	439	28	5.5
1500	443	32	6.6
1940	448	37	5.8
3350	460	49	7.0
5000	464	53	6.6

Tableau 14 : Evolution de la dureté et de l'écart type pour des vieillissements effectués à 370°C jusqu'à 5 000h

Comme pour les autres températures de vieillissement, nous observons un premier stade de durcissement assez important en termes d'amplitude. Dans le cas des vieillissements réalisés à 370°C, ce premier stade correspond à des temps de vieillissement allant jusqu'à 500 h. Par la suite, nous observons une augmentation linéaire de la dureté avec la durée de vieillissement. Il semblerait qu'il y ait une certaine stabilisation de la dureté lorsque l'on atteint des temps de vieillissement de l'ordre de 5 000 h.

Après 5 000 h de vieillissement, la dureté a augmenté de 53 $HV_{1\ 10s}$, valeur légèrement supérieure, comme attendu, à un temps de vieillissement équivalent à 350°C. Comme pour les autres températures de vieillissement, la moitié du durcissement obtenu au bout de la durée de vieillissement maximale étudiée a été observée après le premier stade de vieillissement.

Le Tableau 14 et la Figure 66 présentent l'évolution de l'écart type avec la durée de vieillissement à 370°C. Nous observons ainsi que l'écart type augmente au fur et à mesure du vieillissement avant de se stabiliser. Les effets sont comparables à ceux décrits dans le cadre des vieillissements effectués à 350°C.

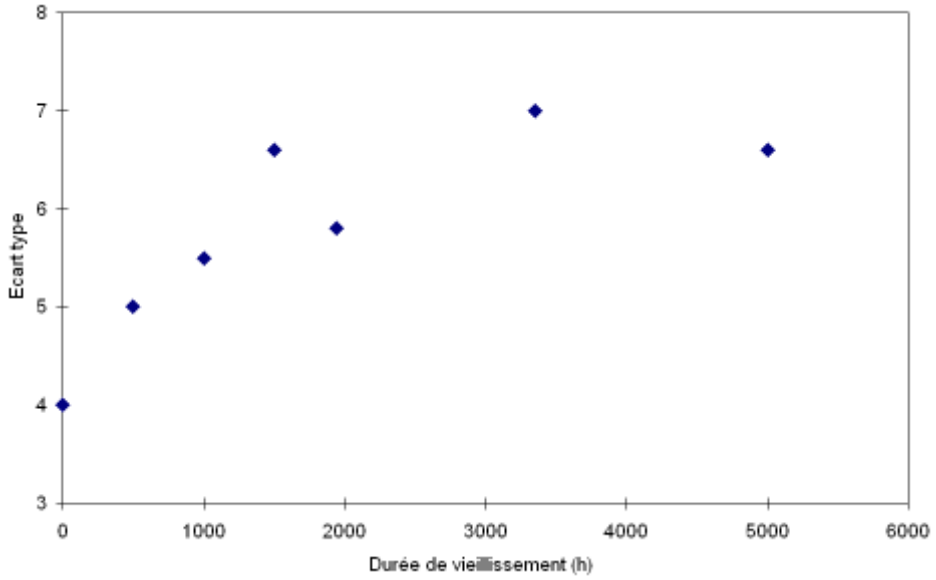


Figure 66 : Evolution de l'écart type des valeurs de dureté en fonction du temps de vieillissement à 370°C

Les remarques faites sur les analyses thermiques différentielles relatives aux échantillons vieillis à 350°C sont aussi valables pour celles réalisées sur des échantillons vieillis à 370°C, Figure 67. La température d'intensité maximale du pic passe d'environ 500°C à 530°C.

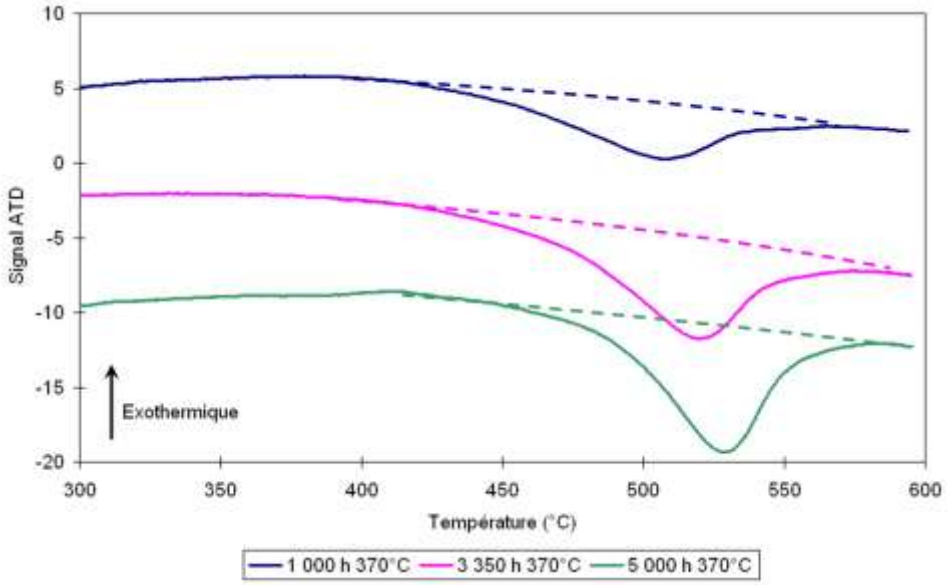


Figure 67 : ATD réalisée sur des échantillons vieillis à 370°C

1.2.4. Effets de température, coulée et de l'état métallurgique initial sur la cinétique de vieillissement

Dans ce paragraphe, nous allons étudier les trois paramètres principaux qui influencent la cinétique de vieillissement de l'alliage, à savoir la température, la coulée mais aussi l'état métallurgique initial.

1.2.4.1. Effet de la température

Les cinétiques de vieillissement ont été décrites séparément dans la partie précédente. Dans ce paragraphe, nous proposons une rapide comparaison en superposant les différentes données à notre disposition. La Figure 68 présente ainsi les données obtenues aux trois températures de vieillissement étudiées.

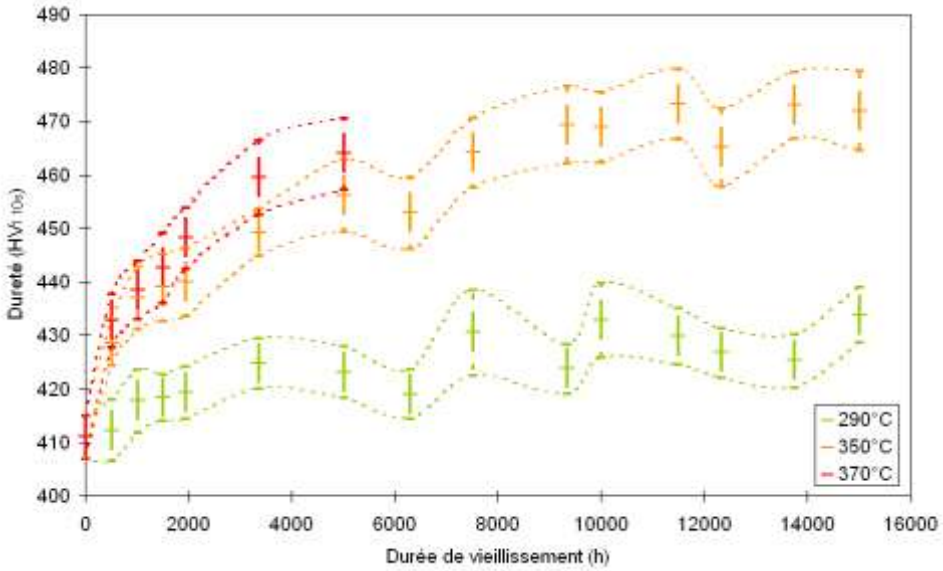


Figure 68 : Comparaison des cinétiques de durcissement du 15 5 PH pour les trois températures de vieillissement étudiées

L'effet de la température est marqué dans le cadre de ces vieillissements. On remarque bien une augmentation de la dureté à un temps de vieillissement donné avec la température. Ces données permettent de confirmer le fait que la décomposition spinodale est un phénomène thermiquement activé. Il est intéressant de noter que certaines discontinuités sont présentes dans l'évolution de la dureté à temps identiques pour les vieillissements effectués à 290°C et 350°C. Ces irrégularités ont été observées aussi par J.M. Cloué dans ses travaux sur le PH 13-08 Mo [19].

En plus d'un simple effet sur le durcissement, la température semble avoir un autre effet. Effectivement, dans le paragraphe précédent, nous avons vu que, pour toutes les températures d'étude, il y avait une phase préliminaire de durcissement rapide et plutôt importante, suivi d'un durcissement semble-t-il linéaire avec le temps. Durant cette première phase, environ 50 % du durcissement final observé a été mesuré. La température semble aussi agir sur la durée de cette première phase. Ainsi, à 290°C, cette phase dure 2 000 h, 1 500 h à 350°C et enfin 500 h à 370°C. Nous reviendrons dans la suite du manuscrit sur la nature de ce premier stade de vieillissement.

La Figure 68 peut être aussi interprétée différemment un traçant le fuseau décrit par les valeurs des écarts type de la distribution de dureté, c'est-à-dire en prenant les valeurs maximales et minimales, Figure 69. Cette représentation permet ainsi de voir que pour les vieillissements effectués à 290 et 350°C, les valeurs maximales de dureté du domaine moyenne ± écart type commencent à saturer, alors que les valeurs minimales elles ne font qu'augmenter. Ce comportement montre une différence de cinétique de vieillissement, entre les zones « dures » et les zones « molles » de l'alliage.

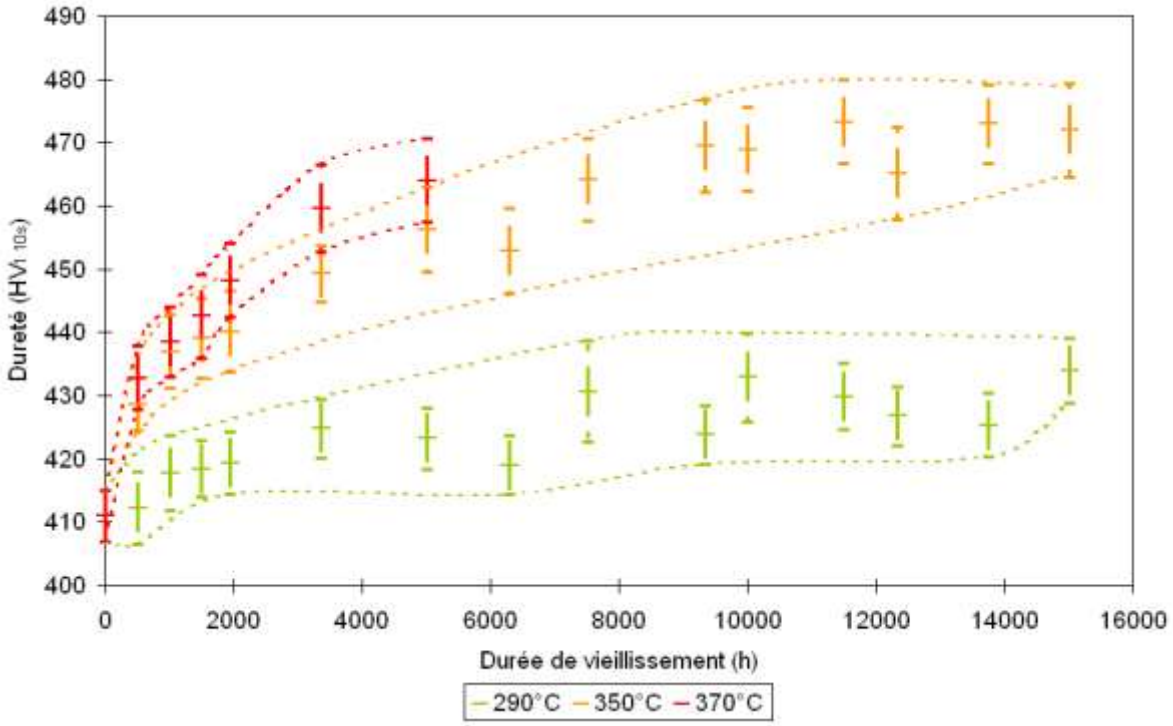


Figure 69 : Fuseau des valeurs de dureté

L'évolution de la dureté peut être suivie en utilisant le paramètre de Hollomon Jaffe [3]. Celui-ci est utilisé pour établir des équivalences temps-température en dureté lors de traitement de revenu effectués sur des aciers. Il est ainsi proposé de relier la dureté à un paramètre défini par :

$$HV = f(T^*(\log t + C))$$

où T est la température de vieillissement en degré Kelvin, t la durée de vieillissement en h et C une constante. Cette constante est définie en considérant deux couples temps-température de revenu donnant la même valeur de dureté, puis en appliquant la relation :

$$-c = (T_1^*\log(t_1)-T_2^*\log(t_2))/(T_1-T_2)$$

Dans ce cas, deux couples donnent des duretés identiques 5 000 h/370°C – 7 500 h/350°C et 1 000 h/370°C – 10 000 h/290°C et permettent de déterminer une valeur de C de 1.8 et de 4.0. La constante C a été fixée à 2.9, valeur moyenne des deux constantes déterminées. La Figure 70 représente la dureté en utilisant cette relation appliquée au vieillissement.

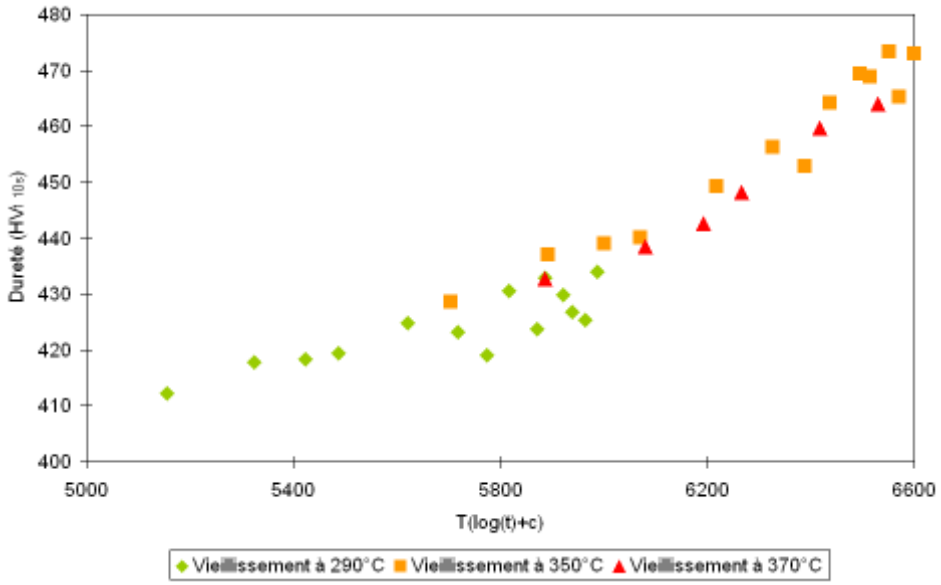


Figure 70 : Dureté représentée en fonction du paramètre défini par Hollomon Jaffe

Cette représentation permet ainsi d'établir des équivalences temps-température de vieillissement en dureté. On observe ainsi que les valeurs de dureté sont comprises dans un fuseau commun de valeurs.

1.2.4.2. Effet de coulée

Lors de cette thèse, deux lots matières ont été réceptionnés. Leurs compositions chimiques respectives ont été présentées dans le chapitre précédent. Celles-ci sont très proches, ainsi que leur dureté à l'état de réception. Néanmoins, des coupons de la coulée B ont été mis à vieillir aux trois températures choisies pour des durées allant jusqu'à 5 000 h. Les résultats obtenus sont présentés dans la Figure 71, Figure 72 et Figure 73, pour des vieillissements effectués à 290, 350 et 370°C respectivement.

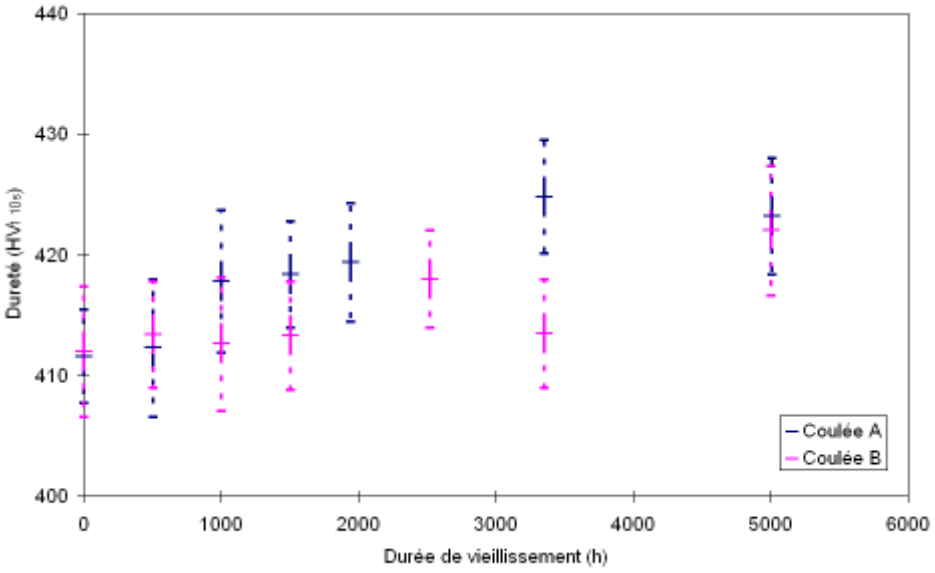


Figure 71 : Effet de coulée sur la cinétique de durcissement à 290°C

Au vu de ces trois figures, nous pouvons conclure que la coulée a un effet limité sur la cinétique de durcissement. Des écarts significatifs sont à noter après vieillissement à 290°C, sans explication pour le moment. De plus, les écarts types sont sensiblement identiques entre les deux coulées. Nous comparons ici deux coulées différentes du même fournisseur , ayant subi la même gamme de fabrication. Ces deux coulées sont donc très proches.

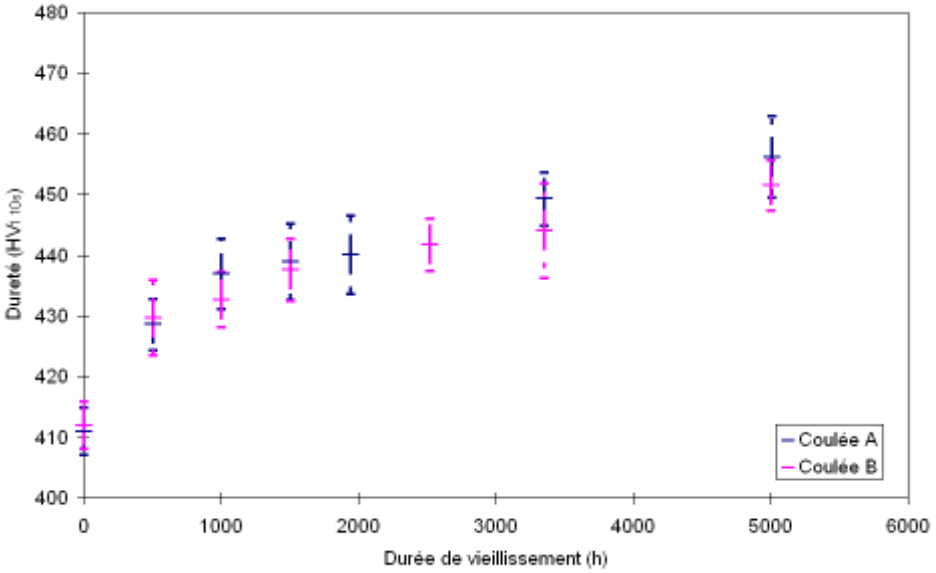


Figure 72 : Effet de coulée sur la cinétique de durcissement à 350°C

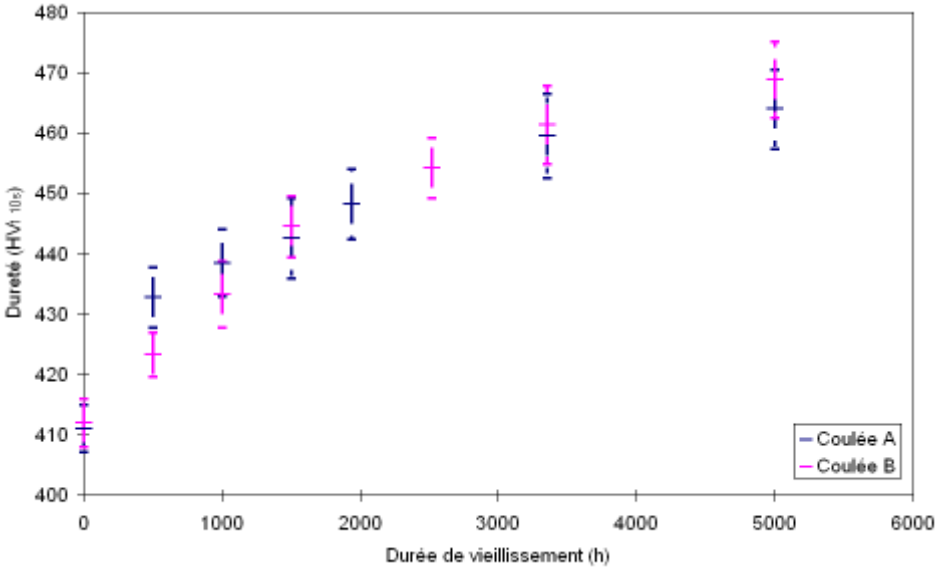


Figure 73 : Effet de coulée sur la cinétique de durcissement à 370°C

1.2.4.3. Effet de l'état métallurgique initial

Dans le chapitre consacré au matériau, nous avons mentionné le fait que le 15 5 PH est un alliage à durcissement structural. De ce fait, en ajustant le traitement thermique, il est possible d'adapter les propriétés mécaniques aux besoins de l'application. L'alliage étudié dans cette thèse est le 15 5 PH 1200 MPa. Nous allons comparer ici sa cinétique de vieillissement avec celle de la nuance 15 5 PH 1070 MPa, objet de la thèse d'Emilie Herny.

Nous rappelons ici qu'à l'état de réception, le 15 5 PH 1200 MPa possède une dureté de 411 $HV_{1\ 10s}$ contre 370 $HV_{1\ 10s}$ pour le 15 5 PH 1070 MPa. Pour ce dernier alliage, nous nous intéressons à des vieillissements effectués à 290, 350 et 400°C jusqu'à 5 000 h. De plus, les valeurs présentées concernant cet alliage proviennent d'essais de dureté HV_{30}.

Afin de n'aborder que la cinétique de vieillissement en elle-même, nous allons étudier, l'augmentation de la dureté par rapport à l'état de réception en fonction du temps de vieillissement. Les résultats sont présentés sur la Figure 74.

Pour les vieillissements effectués à 290°C, nous voyons qu'au bout de 5 000 h, l'augmentation de dureté mesurée est la même entre les nuances. Pour les temps plus courts, dans le cas du 15 5 PH 1070 MPa, aucune augmentation de dureté n'a été observée. Ceci est probablement dû au fait que les augmentations de dureté sont relativement faibles et donc en dureté 30 kg, celles-ci ne sont pas décelables.

Pour la température de vieillissement de 350°C, commune aux deux nuances, nous pouvons voir que l'augmentation de dureté est à la fois plus rapide et plus importante dans le cas du 15 5 PH 1070 MPa.

Cette figure montre aussi l'effet de la température de vieillissement sur la cinétique de vieillissement pour le 15 5 PH 1070 MPa.

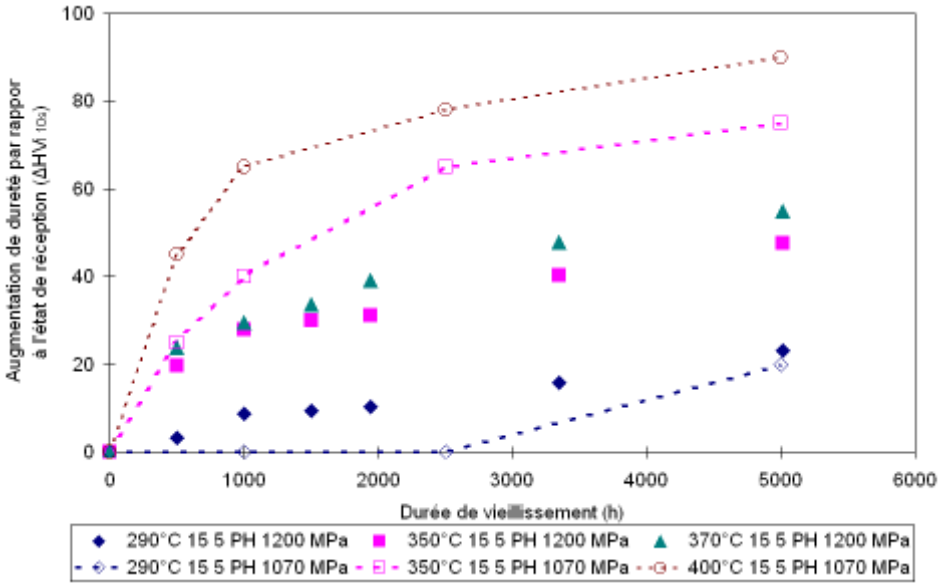


Figure 74 : Augmentation de la dureté par rapport à l'état de réception en fonction de la durée de vieillissement pour les alliages 15 5 PH 1200 MPa et 15 5 PH 1070 MPa

Il est toutefois aussi intéressant de tracer l'évolution de la dureté en fonction du temps de vieillissement pour les deux états métallurgiques initiaux. Cette représentation est visible sur la Figure 75.

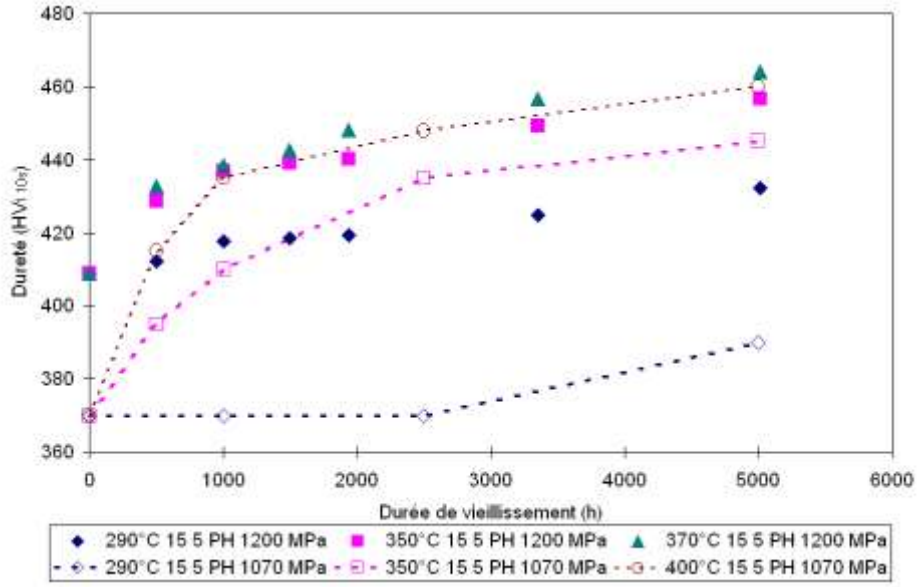


Figure 75 : Evolution de la dureté en fonction du temps de vieillissement aux différentes températures étudiées pour les alliages 15 5 PH 1200 MPa et 15 5 PH 1070 MPa

Cette représentation possède plusieurs intérêts. Entre les deux états métallurgiques initiaux vieillis à la même température, l'écart de dureté initial observé tend à diminuer. A la fin du premier stade de vieillissement, soit après 2 500 h dans le cas du 15 5 PH 1070 MPa, l'écart de dureté n'est plus que de 10 $HV_{1\ 10s}$, alors qu'il est de 40 $HV_{1\ 10s}$ à l'état de réception, exception faite des vieillissements à 290°C.

De plus, pour les températures de vieillissement entre 350 et 400°C, quels que soient l'état métallurgique initial de l'alliage et la température de vieillissement, nous observons que la deuxième phase de durcissement semble être identique. Effectivement, celles-ci semblent être linéaires à partir de 1 500 h et 1 000 h pour les vieillissements effectués respectivement à 350 et 370°C sur le 15 5 PH 1200 MPa et à partir de 2 500 et 1 000 h pour les vieillissements effectués respectivement à 350 et 400°C pour le 15 5 PH 1070 MPa. Des régressions linéaires ont été effectuées dans les domaines définis. Les résultats sont consignés dans le Tableau 15.

Type d'alliage	Température de vieillissement (°C)	Domaine de temps modélisé (h)	Coefficient directeur	Coefficient de régression R^2
15 5 PH 1200 MPa	350	1500 – 5000	0.0052	0.99
	370	1000 – 3354	0.0093	0.99
15 5 PH 1100 MPa	350	2500 – 5000	0.004	1
	400	1000 – 5000	0.0052	0.97

Tableau 15 : Coefficients directeurs calculés sur les stades de vieillissement linéaires aux différentes conditions de vieillissement

Ces résultats montrent ainsi que, quels que soient l'état métallurgique initial et les conditions de vieillissement, l'augmentation de dureté sur cette plage de temps est peu influencée par ces paramètres.

Cette étude comparative entre le 15 5 PH 1200 MPa et le 15 5 PH 1070 MPa permet de mettre en lumière l'influence de l'état métallurgique sur le premier stade de vieillissement. Par la suite, il ne semble pas avoir d'influence sur la cinétique de durcissement. Nous reviendrons sur ces résultats.

1.3. Evolution des propriétés mécaniques après vieillissement

1.3.1. Evolution du comportement en traction

L'évolution de la dureté avec le vieillissement fournit des informations utiles mais insuffisantes pour ce qui concerne le comportement élastoplastique du matériau. Les essais de traction fournissent des données complémentaires qui peuvent être utilisées pour identifier la loi de comportement. Cet aspect de la mécanique ne sera pas considéré dans cette partie. L'objectif ici est d'exploiter simplement les courbes pour donner les caractéristiques les plus courantes.

1.3.1.1. Comparaison entre état de réception et états vieillis

Les essais de dureté ont été réalisés à température ambiante. L'évolution du comportement en traction du matériau après vieillissement sera présentée dans un premier temps à température ambiante. Les résultats après vieillissement, jusqu'à 15 000 h aux trois températures, sont reportés dans la Figure 76, la Figure 77 et la Figure 78.

Après vieillissement à 290°C, le comportement en traction à l'ambiante de l'alliage n'évolue que très peu. On observe une légère augmentation de la limite d'élasticité et de la résistance maximale à la traction. Ces résultats corroborent ceux obtenus en dureté, où une faible évolution est observée, par rapport aux évolutions aux autres températures de vieillissement décrites par la suite.

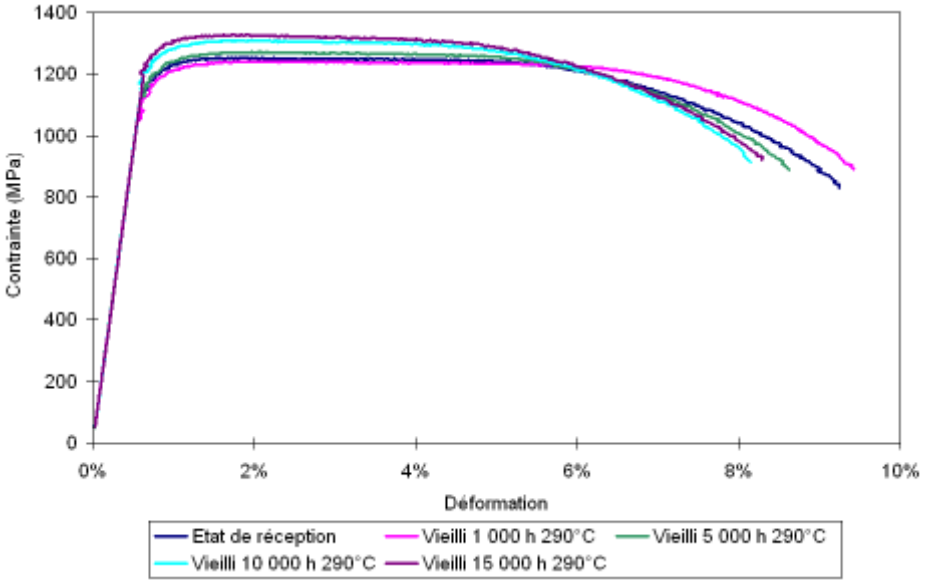


Figure 76 : Evolution du comportement en traction de l'alliage après vieillissement à 290°C

Après vieillissement à 350 et 370°C, l'évolution du comportement en traction de l'alliage est beaucoup plus marquée. Effectivement, on remarque une augmentation significative de la limite d'élasticité et de la résistance maximale à la traction dès 1 000 h de vieillissement. De plus, une diminution brutale de la déformation à rupture est aussi constatée. A l'état de réception, celle-ci est de quasiment 10 % et atteint des valeurs de 6 % après vieillissement. Nous observons bien une fragilisation du matériau. Néanmoins, pour les vieillissements à 370°C, la déformation à rupture est légèrement supérieure à celle mesurée à des temps identiques à 350°C.

De manière qualitative, on observe une relation entre l'évolution de la dureté et l'évolution du comportement mécanique en traction. Cette corrélation sera discutée lors du prochain chapitre de ce manuscrit.

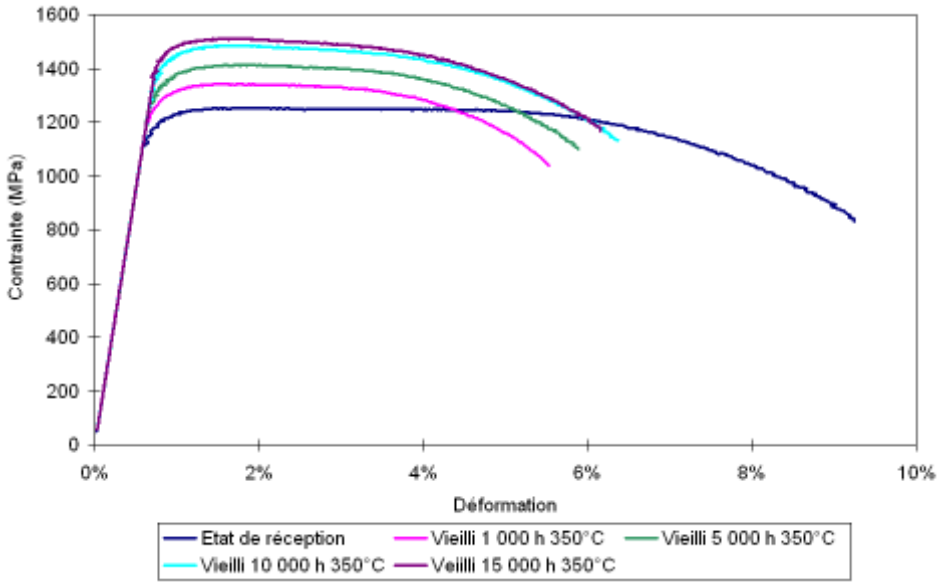


Figure 77 : Evolution du comportement en traction de l'alliage après vieillissement à 350°C

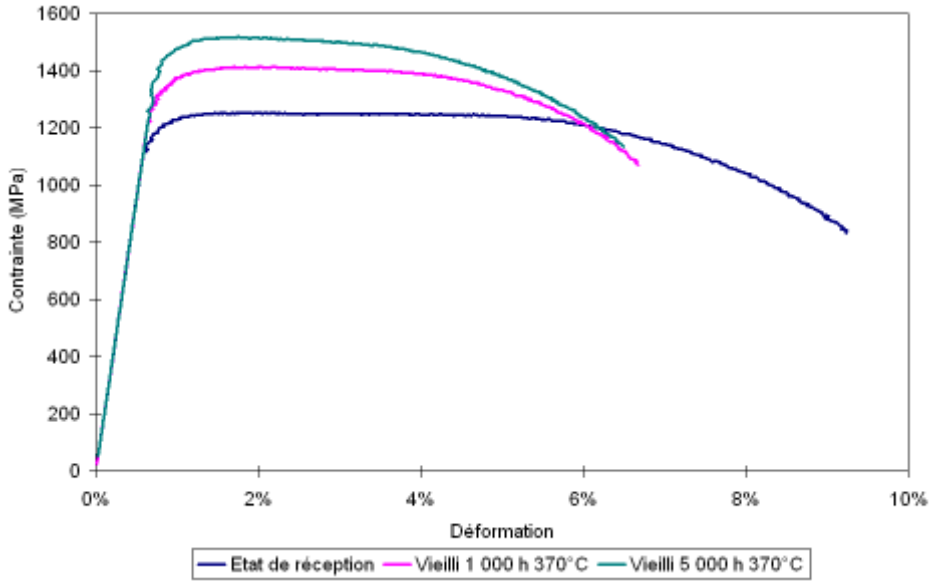


Figure 78 : Evolution du comportement en traction de l'alliage après vieillissement à 370°C

L'endommagement de l'alliage devrait être visible au niveau des faciès de rupture. La Figure 79 présente les faciès de rupture après traction à l'ambiante d'un matériau à l'état de réception, d'un matériau vieilli 1 000 h à 350°C et d'un autre vieilli 5 000 h à 350°C. La morphologie du faciès de rupture évolue peu. La rupture reste majoritairement ductile, même si la présence de clivage, révélée par des fissures, est importante.

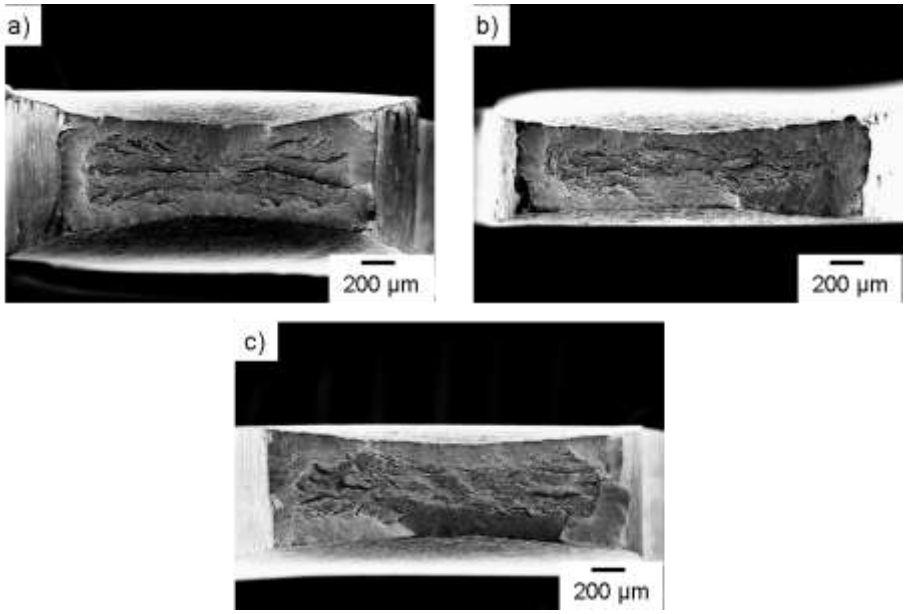


Figure 79 : Evolution du faciès de rupture après traction à température ambiante sur une éprouvette a) l'état de réception, b) vieillie 1 000 h et c) vieillie 5 000 h à 350°C

L'évolution de la résistance maximale à la traction peut être elle aussi suivie en utilisant le paramètre de Hollomon Jaffe. La méthode de détermination de la constante C est identique à celle utilisée dans le cas de la dureté. Deux couples temps – température sont ainsi définis, 5 000 h/370°C – 10 000 h/350°C et 1 000 h/350°C – 10 000 h/290°C, donnant des valeurs de C de 5.7 et de 6.4 respectivement. La constante a été fixée à 6.1.

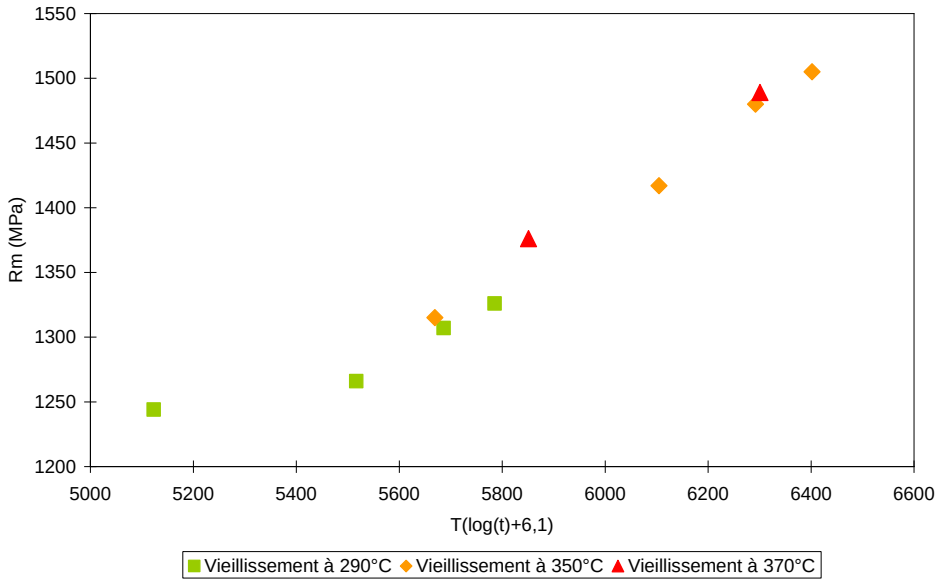


Figure 80 : Résistance maximale à la traction représentée en fonction du facteur de Hollomon Jaffe pour les trois températures de vieillissement

Comme pour la dureté, l'utilisation de ce paramètre permet d'établir des équivalences temps – température de vieillissement pour la résistance maximale à la traction. L'évolution de cette dernière suit un seul et même fuseau. L'utilisation de ce paramètre semble être tout indiquée dans ce cas.

1.3.1.2. Evolution des propriétés mécaniques avec la température d'essai sur matériau vieilli

Les essais mécaniques sur matériau vieilli ont été effectués sur la même plage de température que pour le matériau à l'état de réception, c'est-à-dire de -50°C à 350°C.

L'évolution de la limite d'élasticité Re et de la résistance maximale à la traction, Rm, pour les trois températures de vieillissement, 290°C, 350°C et 370°C est reportée de la Figure 81 à la Figure 86.

Comme attendu, l'évolution de Re et Rm après vieillissement pour le matériau vieilli à 290°C est limitée. Celle-ci corrobore la faible évolution de la dureté avec le vieillissement à cette température.

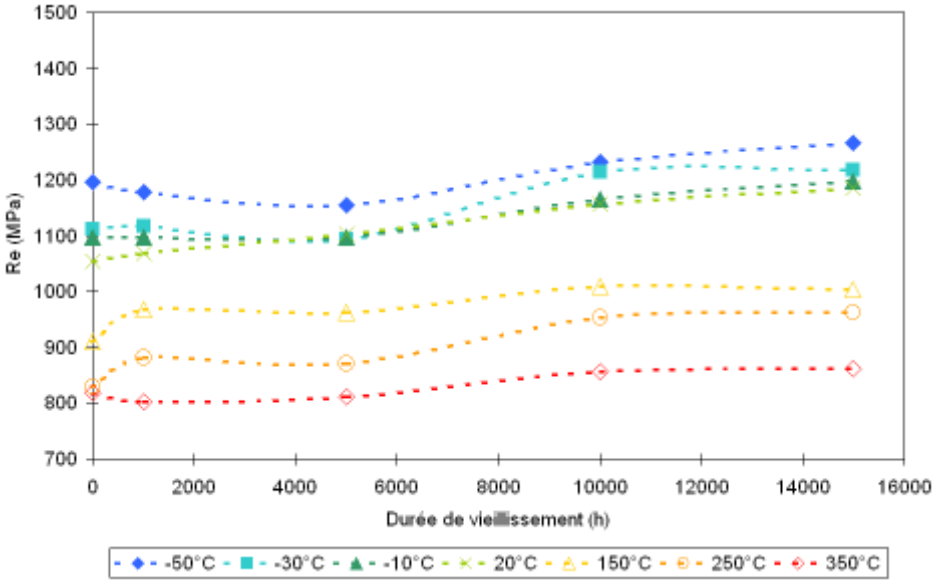


Figure 81 : Evolution de la limite d'élasticité Re avec la température d'essai pour un matériau vieilli à 290°C

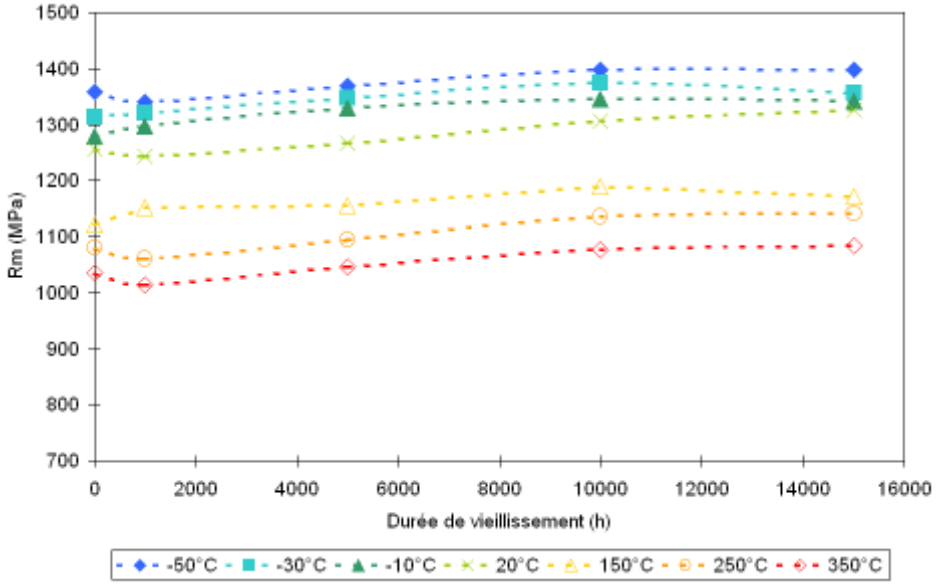


Figure 82 : Evolution de la résistance maximale à la traction Rm, avec la température d'essai pour un matériau vieilli à 290°C

A 350°C et 370°C, l'évolution de Re et de Rm est beaucoup plus importante. Pour un vieillissement de 5 000 h et un essai à -50°C, Rm atteint des valeurs d'environ 1500 MPa,

grandeur qui atteint 1 600 MPa après vieillissement de 15 000 h à 350°C. De façon peu surprenante, l'évolution est plus importante à 370°C. Pour les vieillissements à 350°C, alors que Rm semble atteindre une valeur seuil après 15 000 h de vieillissement, la limite d'élasticité du matériau semble toujours évoluer de manière linéaire, sans atteindre de seuil ; et ce pour toutes les températures d'essais.

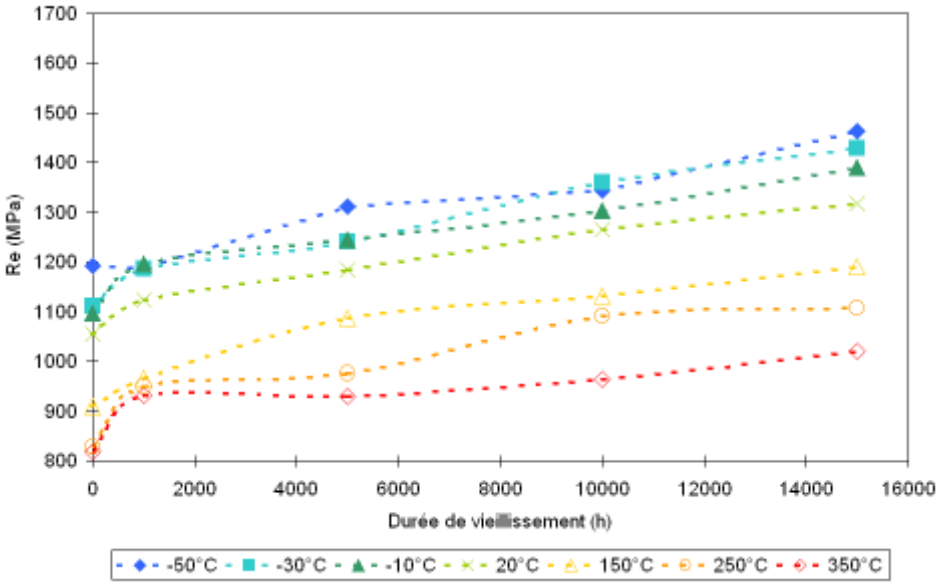


Figure 83 : Evolution de la limite d'élasticité Re, avec la température d'essai après vieillissement pour un matériau vieilli à 350°C

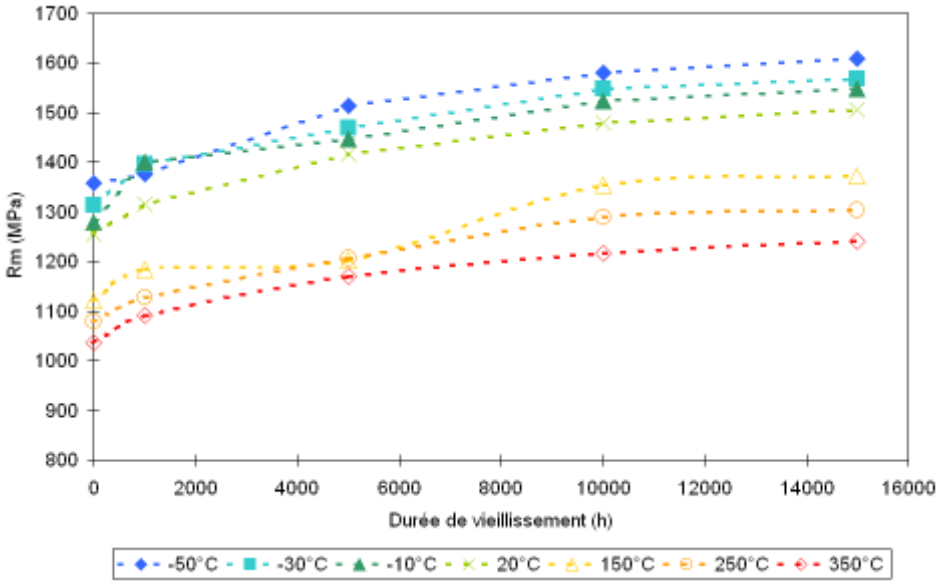


Figure 84 : Evolution de la résistance maximale à la traction Rm, avec la température d'essai pour un matériau vieilli à 350°C

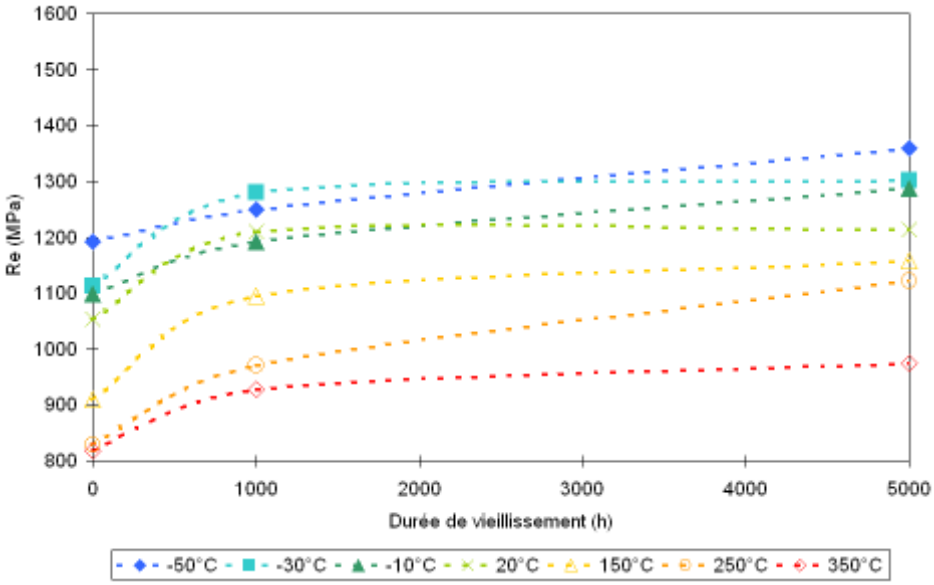


Figure 85 : Evolution de la limite d'élasticité Re, avec la température d'essai pour un matériau vieilli à 370°C

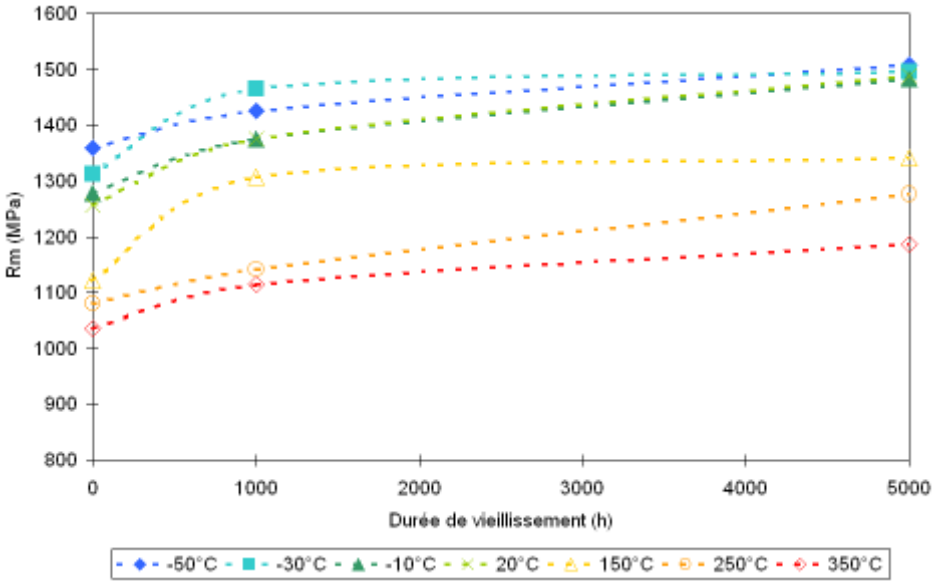


Figure 86 : Evolution de la résistance maximale à la traction Rm, avec la température d'essai pour un matériau vieilli à 370°C

Lors de la présentation du matériau à l'état de réception, il a été montré que la relation proposée par Zener et Hollomon permettait de suivre l'évolution de la limite d'élasticité en fonction de la température d'essai. Cette même relation reste applicable sur les matériaux vieillis dans les différentes conditions. La pente de la droite de régression linéaire ainsi que le coefficient de régression sont reportés dans le Tableau 16.

	Vieillissement à 290°C		Vieillissement à 350°C		Vieillissement à 370°C	
	Pente	R^2	Pente	R^2	Pente	R^2
Etat de réception	-0.37	0.98	-0.37	0.98	-0.37	0.98
Vieilli 1 000 h	-0.31	0.98	-0.29	0.94	-0.33	0.99
Vieilli 5 000 h	-0.33	0.97	-0.32	0.99	-0.27	0.90
Vieilli 10 000 h	-0.34	0.98	-0.31	0.97		
Vieilli 15 000 h	-0.36	0.98	-0.35	0.98		

Tableau 16 : Evolution des paramètres de régression linéaire de la relation de Zener Hollomon appliquée aux différents matériaux vieillis

L'évolution de la pente reste faible pour les différentes conditions de vieillissement.

1.3.2. Evolution de la température de transition ductile fragile (TTDF)

Le suivi de l'évolution de la température de transition ductile fragile a été effectué à l'aide d'essais Charpy quasi statique, technique expliquée dans le chapitre II. Les conditions de vieillissement des éprouvettes correspondent à celles des éprouvettes testées en traction. La Figure 87, la Figure 88 et la Figure 89 présentent les résultats d'essais Charpy quasi statique après les vieillissements effectués à 290, 350 et 370°C.

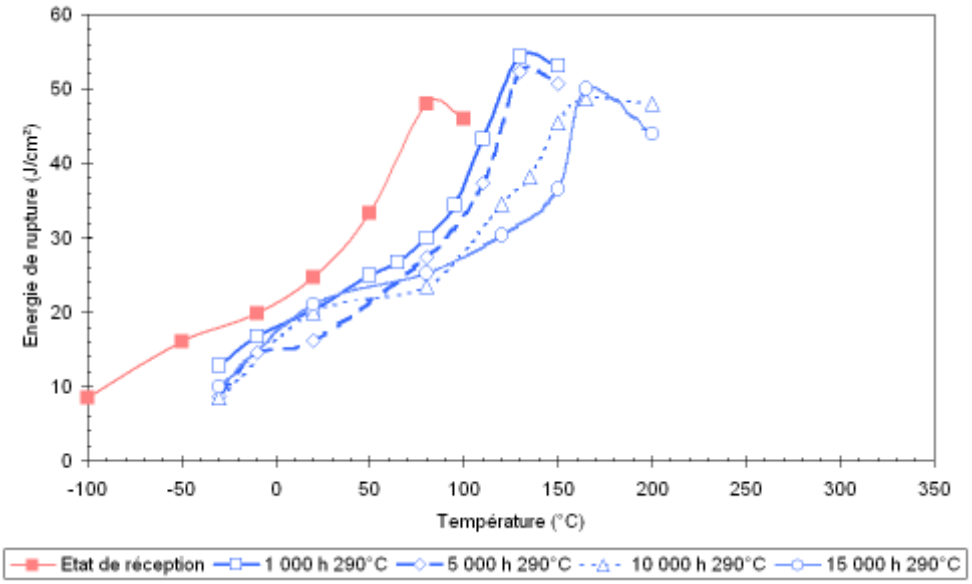


Figure 87 : Evolution de l'énergie de rupture avec la température d'essai après vieillissement à 290°C

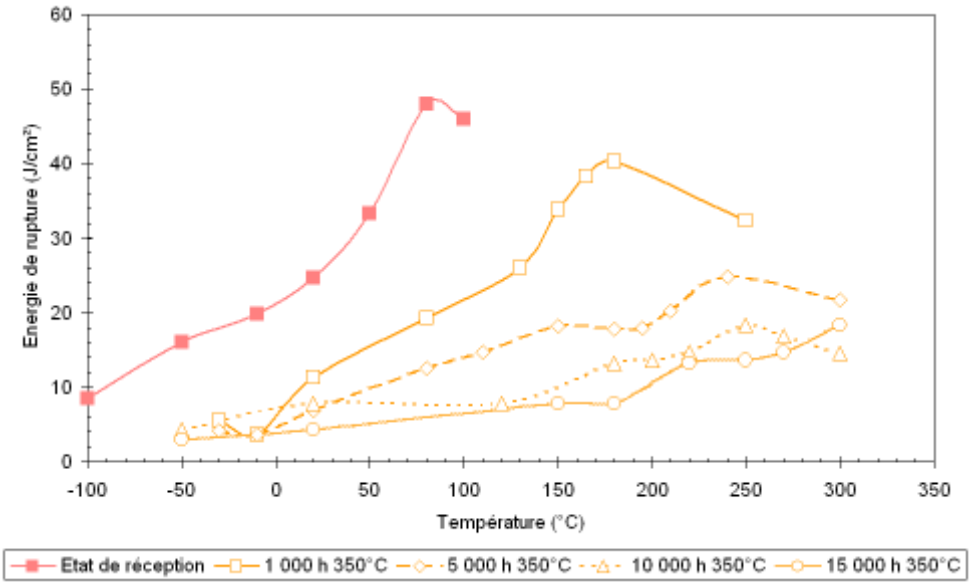


Figure 88 : Evolution de l'énergie de rupture avec la température d'essai après vieillissement à 350°C

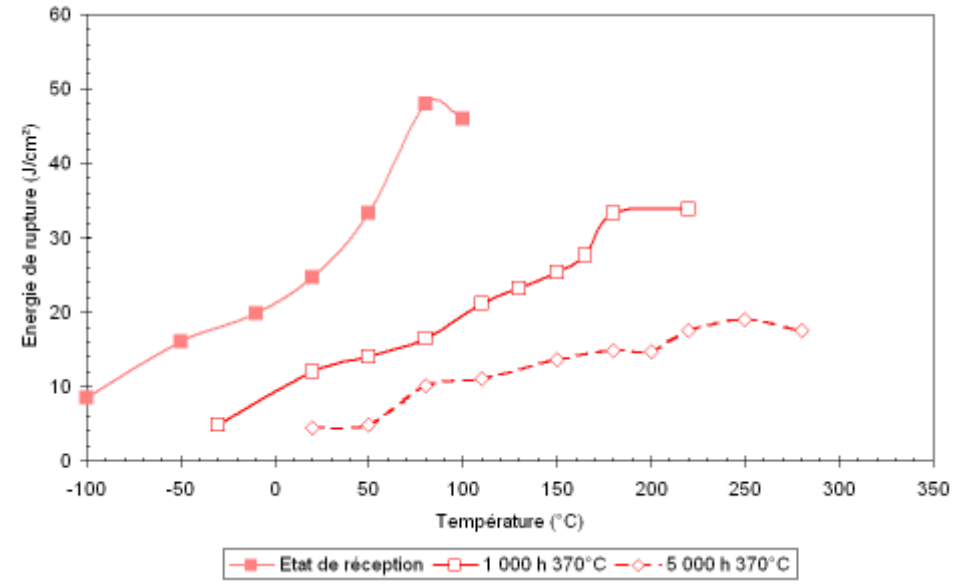


Figure 89 : Evolution de l'énergie de rupture avec la température d'essai après vieillissement à 370°C

Ces essais montrent que le vieillissement influe de deux manières sur le comportement en résilience de l'alliage. Tout d'abord, la température de transition ductile fragile évolue vers les températures les plus hautes. Ce décalage est d'autant plus important que la température de vieillissement est haute. Le Tableau 17 répertorie les différentes températures de transition ductile-fragile déterminées grâce à ces essais. Cette température caractéristique évolue au fur et à mesure du vieillissement. Néanmoins, pour les vieillissements effectués à 290°C, l'évolution semble se stabiliser après 15 000 h de vieillissement. La Figure 90 présente l'évolution de la TTDF en fonction de la durée de vieillissement.

Température de vieillissement (°C)	Durée de vieillissement (h)	TTDF (°C)	ΔTTDF (°C)
Etat de réception		30	0
290	1 000	80	50
	5 000	90	60
	10 000	100	70
	15 000	100	70
350	1 000	100	70
	5 000	125	95
	10 000	160	130
	15 000	200	170
370	1 000	90	60
	5 000	120	90

Tableau 17 : Evolution de la TTDF après les différents vieillissements

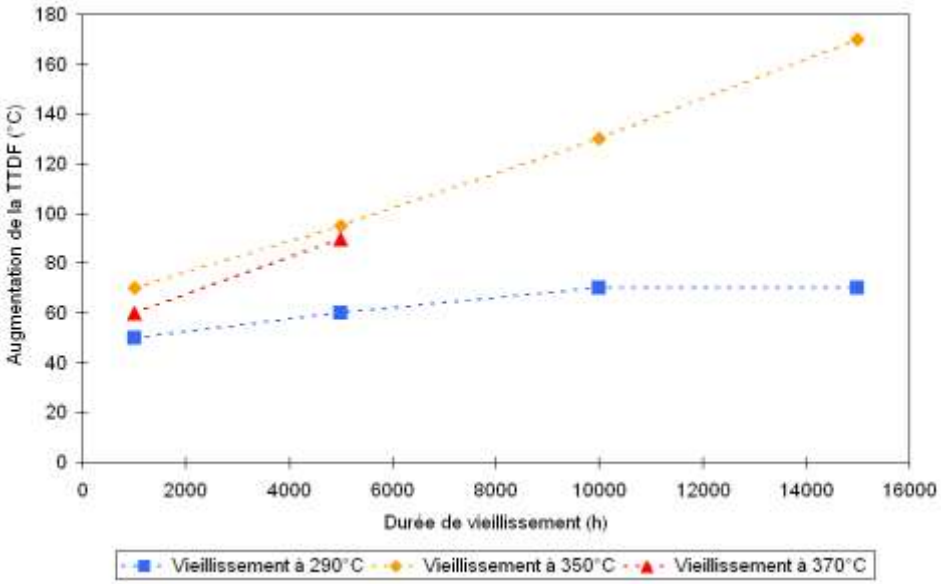


Figure 90 : Evolution de la TTDF en fonction de la durée de vieillissement

Dans un second temps, le niveau du palier ductile évolue aussi avec le vieillissement. Effectivement, celui-ci diminue au fur et à mesure du vieillissement, pour une température de vieillissement donné, et diminue avec la température de vieillissement pour une durée de vieillissement donnée.

L'observation des faciès de rupture permet de corroborer les mesures effectuées. Les modes de rupture pour des conditions de vieillissement différentes ne changeant pas, nous ne nous intéresserons ici qu'à deux conditions de vieillissement, 15 000 h à 290°C et 10 000 h à 350°C. Les faciès sont analogues à ceux obtenus pour les essais sur l'état de réception. En dessous de la température de transition ductile-fragile, la rupture s'opère par clivage et rupture intergranulaire. Au dessus de cette température, le caractère ductile de la rupture devient de plus en plus prépondérant, même si des fissures sont encore observées. Néanmoins, pour les essais effectués à haute température après vieillissement de 10 000 h à 350°C, même si la rupture reste ductile, l'énergie de rupture est faible. De plus, la propagation de la fissure se fait beaucoup plus rapidement dans ce cas, par rapport à un état de réception par exemple, à haute température aussi, Figure 93.

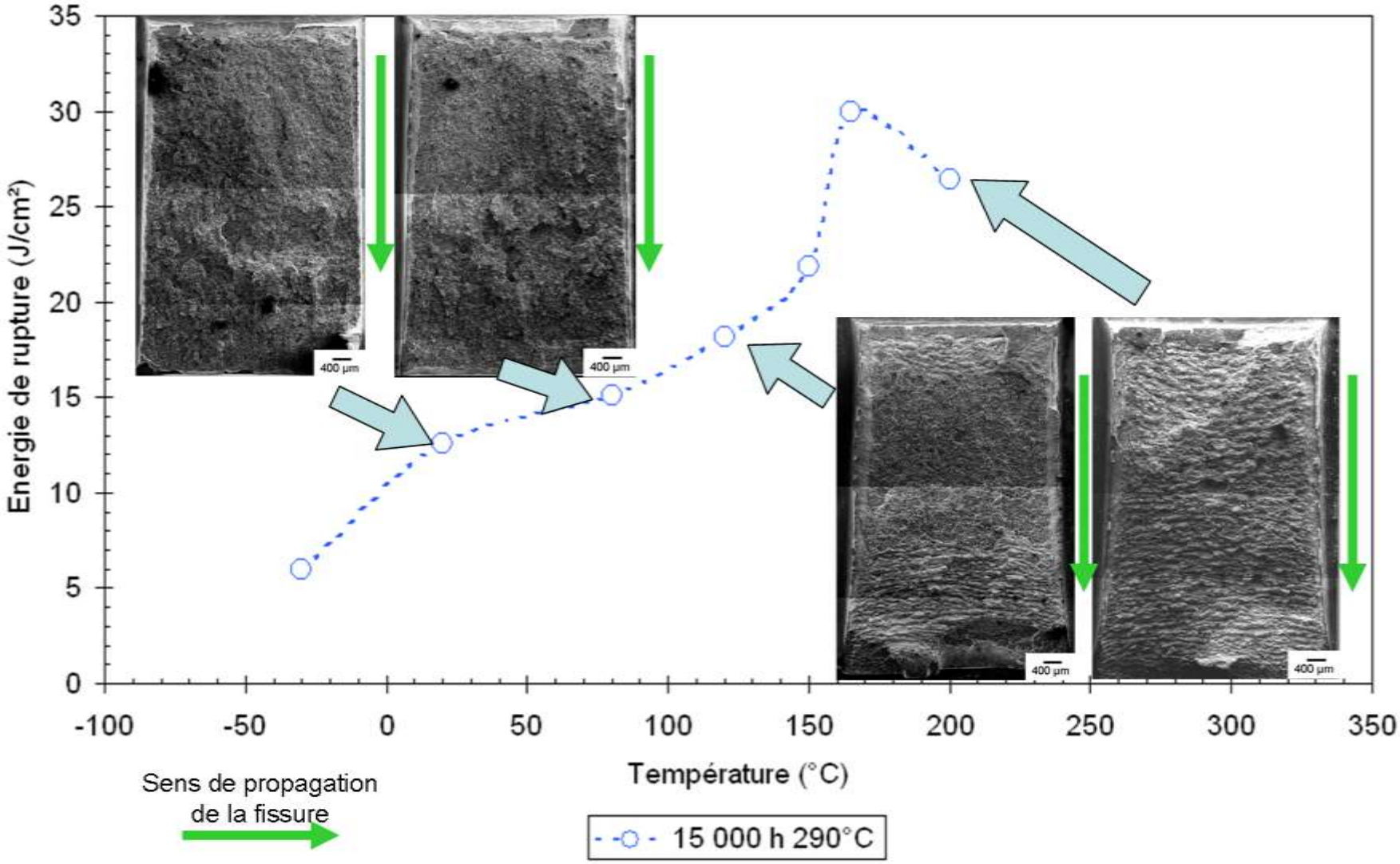


Figure 91 : Evolution des faciès de rupture d'éprouvettes Charpy QS avec la température d'essai après vieillissement à 290°C pendant 15 000 h

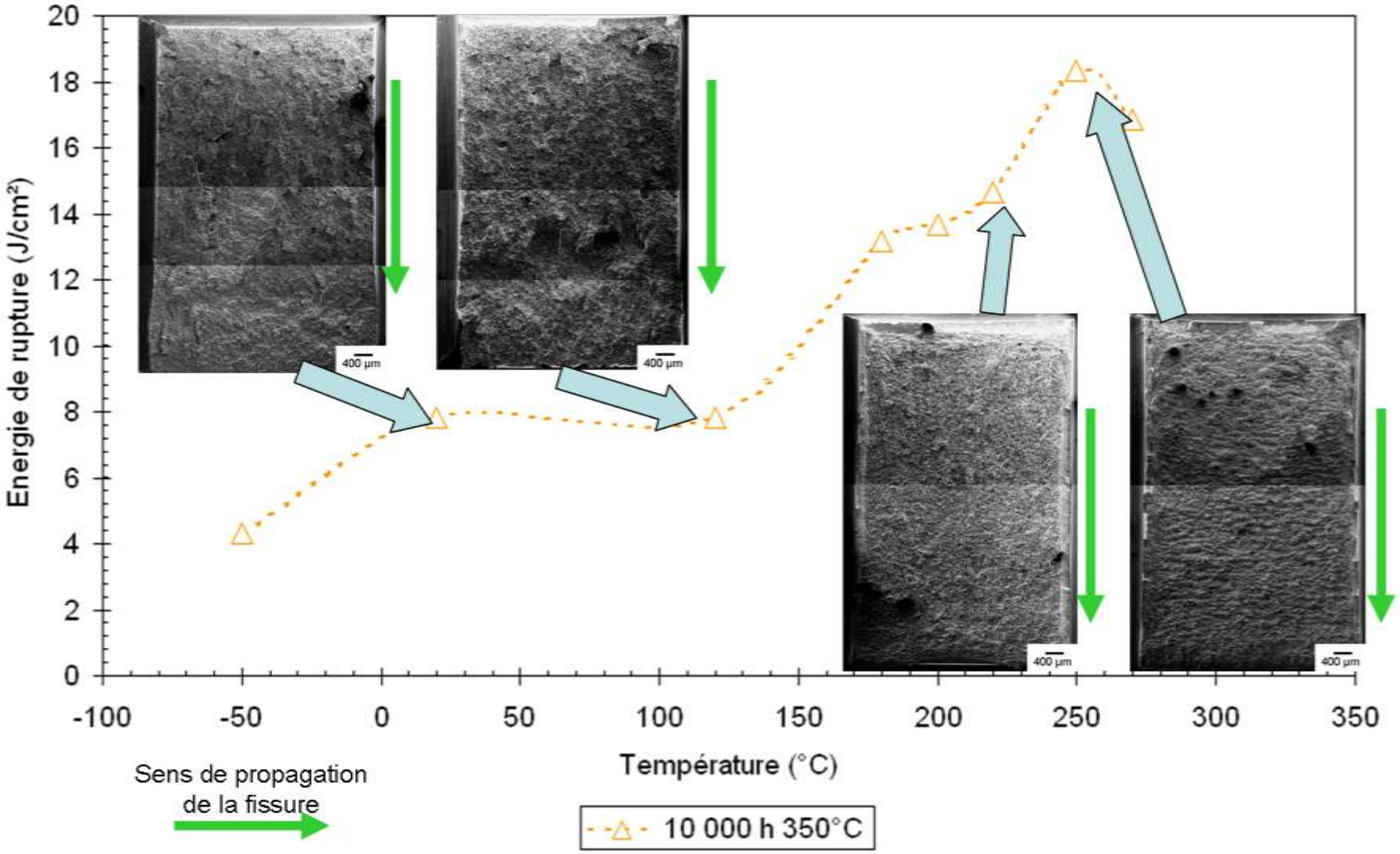


Figure 92 : Evolution des faciès de rupture d'éprouvettes Charpy QS avec la température d'essai après vieillissement à 350°C pendant 10 000 h

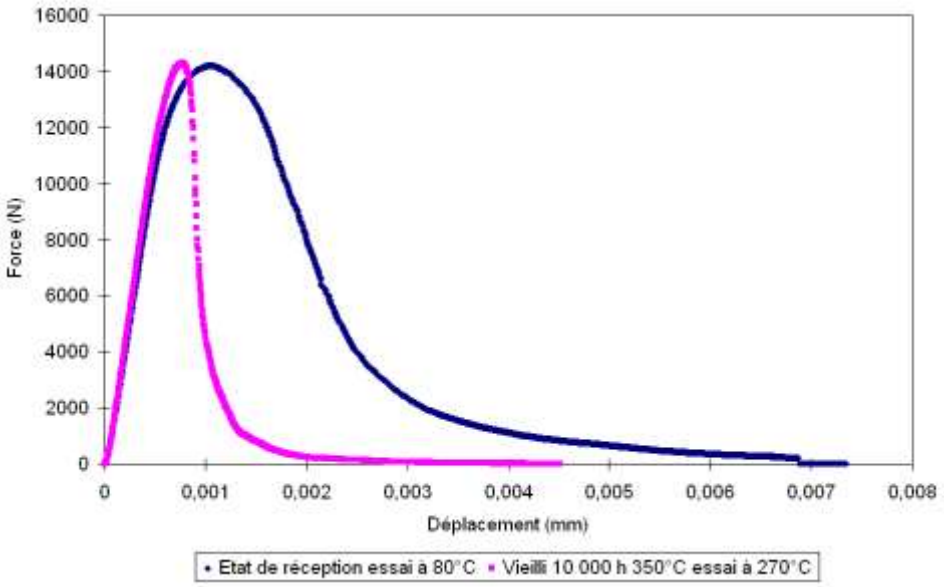


Figure 93 : Evolution de l'énergie de propagation de fissure entre un état vieilli et l'état de réception. Les deux éprouvettes sont testées dans le domaine ductile.

1.3.3. Evolution de la ténacité

Des essais de ténacité à température ambiante sur matériau vieilli ont été effectués par Aubert & Duval. Les résultats de ces essais sont visibles sur la Figure 94. Une diminution de la ténacité du matériau est mesurée au fur et à mesure du vieillissement. On remarque que celle-ci est très importante après 1 000 h de vieillissement :

- de l'ordre de 80 MPa√m pour les vieillissements à 350 et 370°C, ce qui représente quasiment 60% de la ténacité à l'état de réception
- et de l'ordre de 40 MPa√m pour le vieillissement à 290°C.

Les 4 000 h suivantes de vieillissement ont une influence moins importante sur la ténacité, même si cette dernière continue de diminuer. Après 5 000 h de vieillissement à 350 ou 370 °C, la ténacité a chuté de 70 % par rapport à l'état initial. Au bout de 15 000 h de vieillissement à 350°C, la ténacité ne vaut plus que 33 MPa√m, représentant environ un quart de la valeur initiale. Après la même durée de vieillissement à 290°C, la ténacité de l'alliage vaut 60 MPa√m, valeur identique à celle d'un alliage vieilli 1 000 h à 350 ou 370°C.

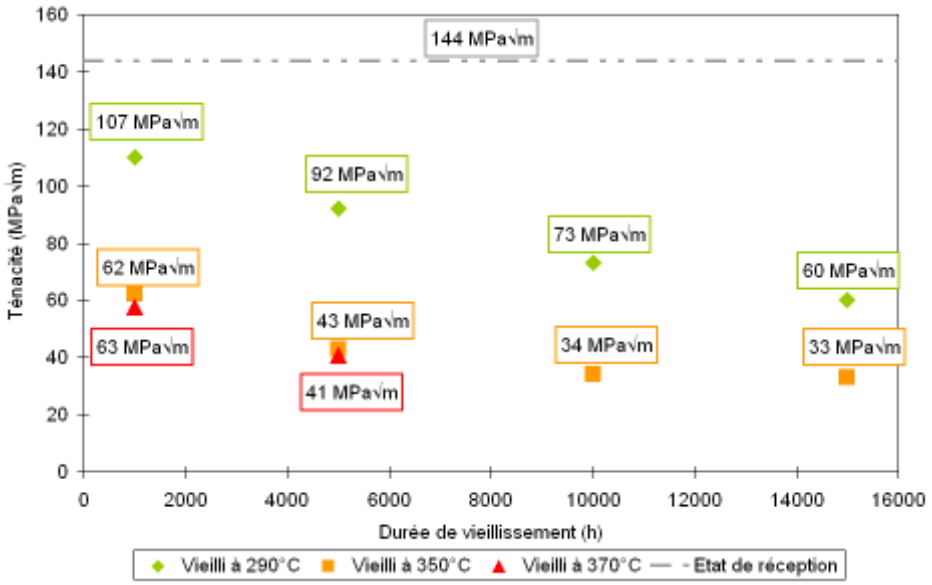


Figure 94 : Evolution de la ténacité en fonction du temps et de la température de vieillissement

Les faciès de rupture nous renseignent sur le mode de rupture du matériau, Figure 95 et Figure 96. On observe au fur et à mesure du vieillissement une plus grande part du clivage dans la rupture. De plus, pour les températures les plus hautes et le temps de vieillissement le plus long, l'ouverture des anciens joints de grains austénitique et des joints de familles de lattes est observée. Les faciès de rupture montrent le caractère fragile grandissant du matériau avec le vieillissement.

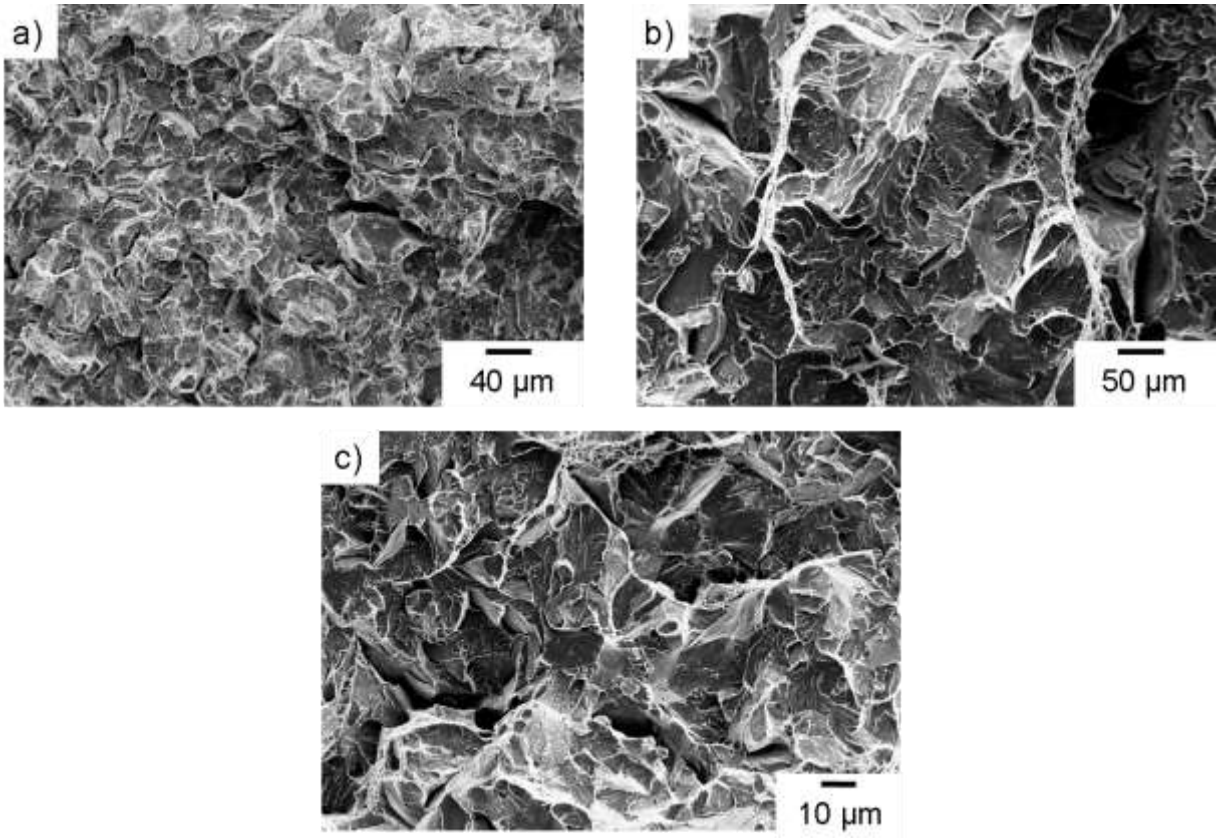


Figure 95 : Faciès de rupture des éprouvettes de ténacité après essai à l'ambiante pour le matériau vieilli a) à 290°C, b) à 350°C et c) à 370°C pendant 1 000 h

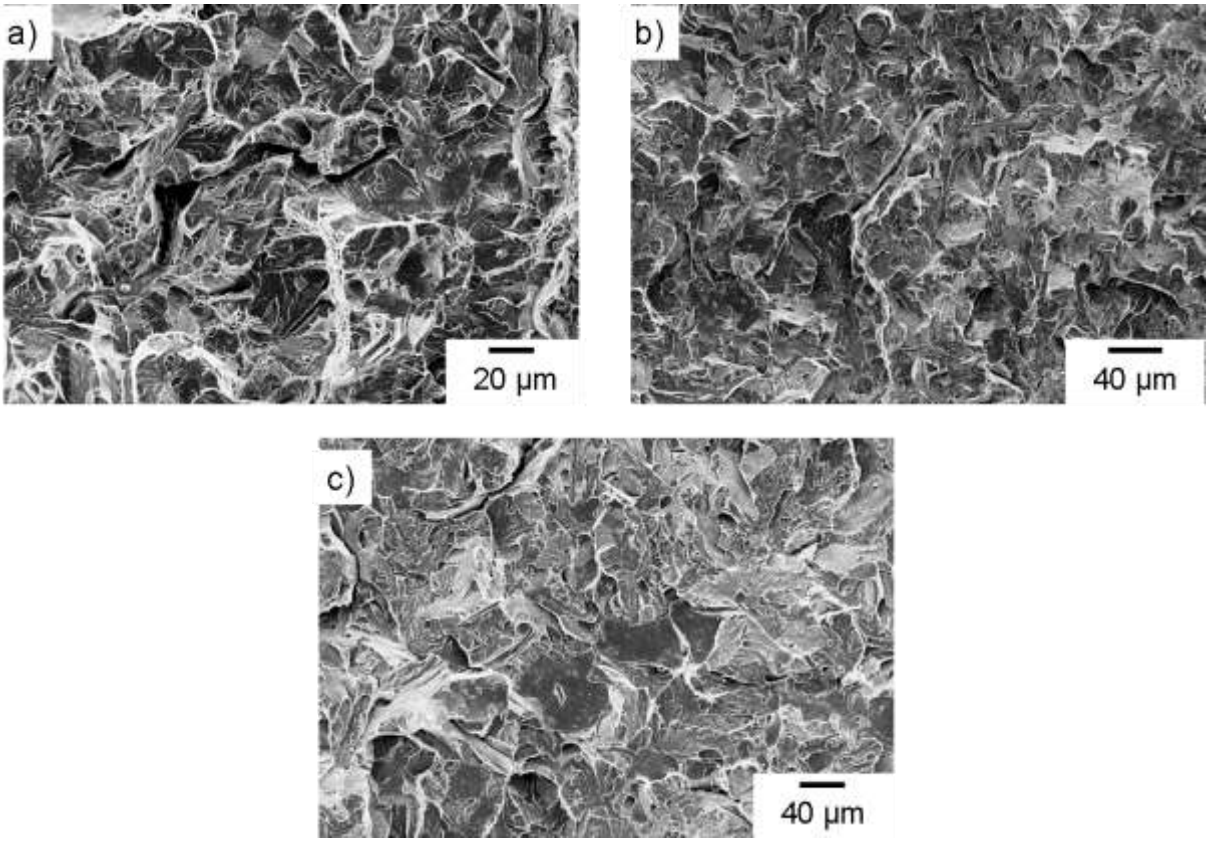


Figure 96 : Faciès de rupture des éprouvettes de ténacité après essai à l'ambiante pour le matériau vieilli a) à 290°C, b) à 350°C et c) à 370°C pendant 5 000 h

Synthèse

Dans cette partie du travail, le vieillissement a été suivi d'un point de vue cinétique grâce à l'essai de dureté. Le vieillissement semble se dérouler en deux étapes : la première correspond à une augmentation importante de la dureté en un temps relativement court et la deuxième à une augmentation plus progressive de la dureté. La température, en plus d'agir sur l'amplitude du durcissement, influence la durée du premier stade de vieillissement.

L'état métallurgique initial semble aussi influer sur ce premier stade de vieillissement. Par la suite, les cinétiques de durcissement sont identiques entre deux états métallurgiques initiaux différents. Il n'a pas été vu d'effet de la coulée sur la cinétique de vieillissement.

Les essais de traction, de résilience et de ténacité montrent bien le caractère fragilisant du vieillissement thermique.

2. Vieillissement avec contrainte externe appliquée

Lors de cette étude, des essais de vieillissement sous contrainte ont été effectués. E.Herny [28] et J.-M. Cloué [19] dans leurs thèses respectives, ont montré qu'une contrainte appliquée lors d'un vieillissement accélère celui-ci.

Dans le cadre de notre étude, plusieurs types de chargements mécaniques ont été explorés. Des éprouvettes de traction lisses multi-sections, des éprouvettes entaillées ainsi que des poutres en flexion 4 points ont été vieillies.

Les différents types de vieillissement vont tout d'abord être présentés. Par la suite, les résultats associés à chaque type de vieillissement sous contrainte seront exposés.

2.1. Présentation des différents essais de vieillissement sous contrainte

2.1.1. Vieillissement d'éprouvettes en traction

Le premier type de vieillissement a été le vieillissement en traction simple. Celui-ci a été effectué sur des machines dites « de traction embarquée », développées par J.-C. Salabura lors de la thèse de E.Herny [28]. La Figure 97 présente le montage complet. Ce montage est ensuite placé dans un four pour vieillissement. Comme nous pouvons le voir sur la Figure 97, les vieillissements ont été effectués sur des éprouvettes multi-sections, ayant une épaisseur d'environ 1 mm. Ces éprouvettes permettent ainsi, sur une seule machine de traction, d'étudier cinq niveaux de contrainte différents.

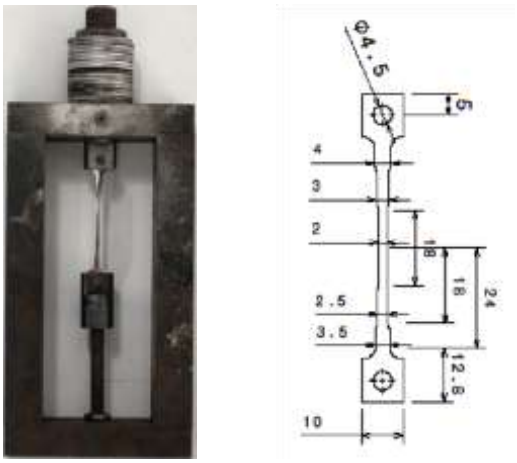


Figure 97 : Machine de traction embarquée et géométrie des éprouvettes multi-sections

Les forces appliquées ont été telles que les contraintes dans les différentes sections varient de 45 à 90 % de la limite d'élasticité initiale à la température de vieillissement considérée.

Les conditions de vieillissement sont les suivantes :

- 1 000 h, 5 000 h, 10 000 h et 15 000 h pour les vieillissements effectués à 290°C et 350°C
- 1 000 h et 5 000 h pour les vieillissements effectués à 370°C

Des essais de dureté réalisés dans les différents fûts permettent de suivre l'évolution de la dureté après vieillissement et en fonction de la contrainte.

2.1.2. Vieillissement d'éprouvettes entaillées en traction

Le vieillissement d'éprouvettes entaillées possède l'avantage de se rapprocher des structures réelles. L'entaille génère un champ de contrainte ainsi qu'un champ de taux de triaxialité. Ce dernier est défini comme étant le rapport entre la contrainte hydrostatique et la contrainte équivalente de Von Mises. Dans un essai de traction simple, le taux de triaxialité est égal à 0.3.

La Figure 98 présente la géométrie de l'éprouvette entaillée. Des calculs par éléments finis ont été effectués en utilisant le logiciel Castem ©. La force à appliquer a ainsi pu être calculée. Celle-ci a été définie pour que la contrainte de Von Misès soit au moins égale à 80 % de la limite d'élasticité du matériau à 300 µm du fond d'entaille. Le résultat du calcul est visible sur la Figure 99.

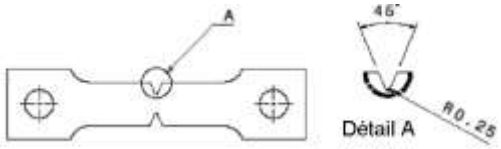


Figure 98 : Géométrie des éprouvettes entaillées vieillies en traction

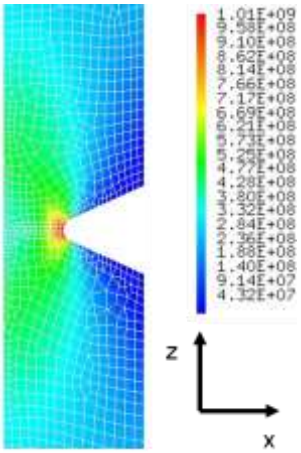


Figure 99 : Contraintes de Von Misès calculées par éléments finis sur une éprouvette entaillée sous charge. Les contraintes sont exprimées en Pa.

En fond d'entaille, le matériau se plastifie. Le calcul permet aussi de déterminer la contrainte principale, σ_{zz}, Figure 100. Celle-ci atteint une valeur de 400 MPa, ce qui représente environ 40 % de la limite d'élasticité de l'alliage aux températures de vieillissement.

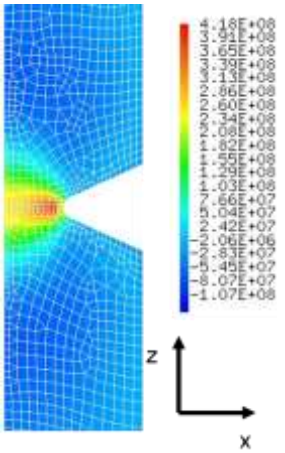


Figure 100 : Contrainte principale suivant l'axe z, σ_{zz}. Les contraintes sont exprimées en Pa

Par la suite, le taux de triaxialité a été calculé entre les deux entailles. Les résultats sont visibles sur la Figure 101, où l'évolution de la contrainte de Von Misès a également été représentée. On remarque ainsi une zone où le taux de triaxialité reste constant et égal à 0.6. Cette zone correspond à une contrainte de Von Misès d'environ 50 % de la limite d'élasticité aux températures de vieillissement.

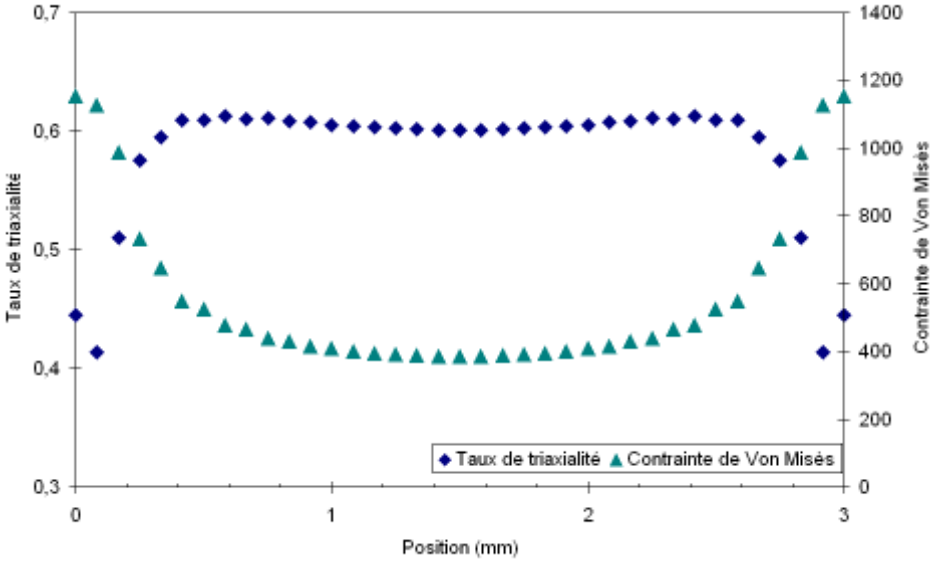


Figure 101 : Evolution du taux de triaxialité et de la contrainte de Von Misès entre les entailles

Les éprouvettes entaillées ont été vieillies 1 000 et 5 000 h à 290, 350 et 370°C. Des essais de dureté ont été réalisés entre les deux fonds d'entaille, comme indiqué sur la Figure 102.

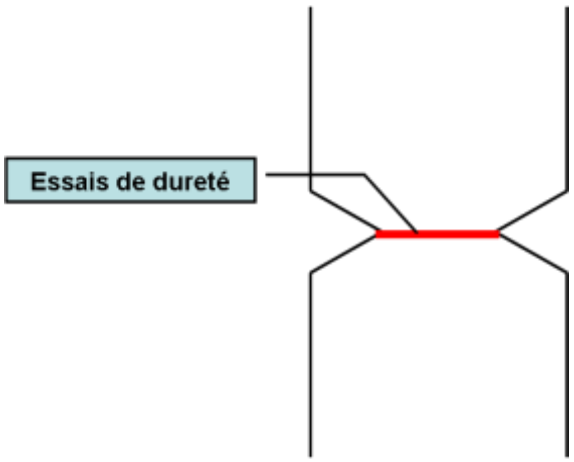


Figure 102 : Position des essais de dureté effectués sur les éprouvettes entaillées

2.1.3. Vieillissement de poutres en flexion 4 points

Le dernier type de vieillissement sous contrainte mis en place a consisté à vieillir des poutres en flexion 4 points. Ceci a été mis en place sur des bâtis identiques à ceux présentés plus haut. Ces bâtis ont été configurés de manière à pouvoir appliquer un effort de compression. Un exemple de montage est visible sur la Figure 103.

Figure 103 : Machine de flexion 4 points sur poutres

L'intérêt de vieillir des poutres est que sur une seule éprouvette, nous pouvons nous intéresser à la fois à l'effet de la contrainte de type traction, mais aussi à la contrainte de type compression. De plus, la flexion quatre points offre l'avantage de présenter une zone assez étendue, le long de laquelle le moment fléchissant est constant. Cet aspect peut faciliter la mesure de dureté en évitant de se préoccuper d'un éventuel gradient de contrainte. Un exemple de calcul par éléments finis effectué sous Castem est disponible sur la Figure 104.

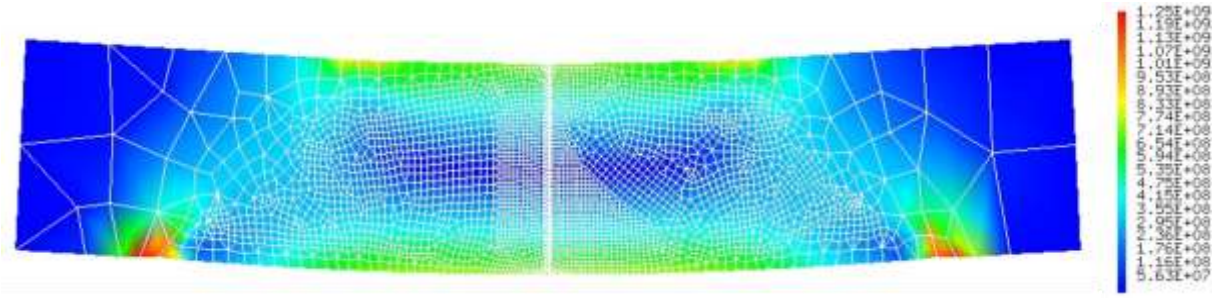


Figure 104 : Contrainte de Von Misès sur une poutre en flexion 4 points calculée par éléments finis. Les contraintes sont exprimées en Pa

En faisant varier les dimensions des poutres, les contraintes maximales atteintes en peau pour le même effort appliqué sont modifiées. Ainsi, plusieurs poutres ont été mises à vieillir avec des contraintes maximales allant de 40 à 90 % de la limite d'élasticité. Ce type de vieillissement a été réalisé aussi bien sur le 15 5 PH 1200 MPa que sur le 15 5 PH 1070 MPa. Malheureusement, dans le premier cas, du fait d'efforts imposés trop importants, le matériau a flué sous les appuis, menant à un déchargement progressif des éprouvettes.

Afin d'évaluer l'effet de la contrainte sur la cinétique de vieillissement, des essais de dureté sont effectués dans l'épaisseur de la poutre, en allant de la face soumise à la compression à la face soumise à la traction.

2.2. Vieillissement d'éprouvettes en traction

Nous allons présenter ici les résultats des essais de dureté effectués sur les éprouvettes multi-sections vieillies en traction. Tout d'abord, les résultats obtenus sur le 15 5 PH 1200 MPa exposé aux trois températures d'essais seront présentés. Puis, nous rappellerons les résultats obtenus sur le 15 5 PH 1070 MPa.

Une charge de 1 kg a été utilisée lors des essais de dureté effectués sur le 15 5 PH 1200 MPa et 60 indents ont été réalisés pour chaque condition de vieillissement, selon le protocole défini dans le chapitre précédent. Les résultats seront représentés par la moyenne calculée ainsi que l'écart

type de la distribution, en fonction de la limite d'élasticité à la température de vieillissement à l'état non vieilli. De plus, sur chaque graphique, les résultats (moyenne et écart type) obtenus pour des vieillissements effectués dans les mêmes conditions mais sans contrainte appliquée seront ajoutés afin d'évaluer l'effet de la contrainte sur la cinétique de vieillissement : en trait plein, la valeur moyenne, en traits pointillés la moyenne ± l'écart type.

2.2.1. Eprouvettes vieillies en traction à 290°C

A cette température, 4 durées de vieillissement ont été testées. Les Figure 105, Figure 106, Figure 107 et Figure 108 présentent les résultats des essais de dureté faits sur les différentes éprouvettes vieillies à 290°C. Ces résultats montrent l'influence de la contrainte sur la cinétique de vieillissement de l'alliage.

Après 1 000 h de vieillissement, nous observons qu'en moyenne, la dureté augmente avec la contrainte dès application d'environ 40 % de la limite d'élasticité. Pour une contrainte d'environ 95 % de la limite d'élasticité, une augmentation de 12 $HV_{1\ 10s}$ est constatée. Toutefois, pour les états de contraintes inférieurs, l'augmentation de dureté est limitée. L'intervalle de valeurs défini par la moyenne et l'écart type pour un état non contraint et les états contraints jusqu'à 75 % de la limite d'élasticité coïncident en grande partie, restant néanmoins légèrement supérieur.

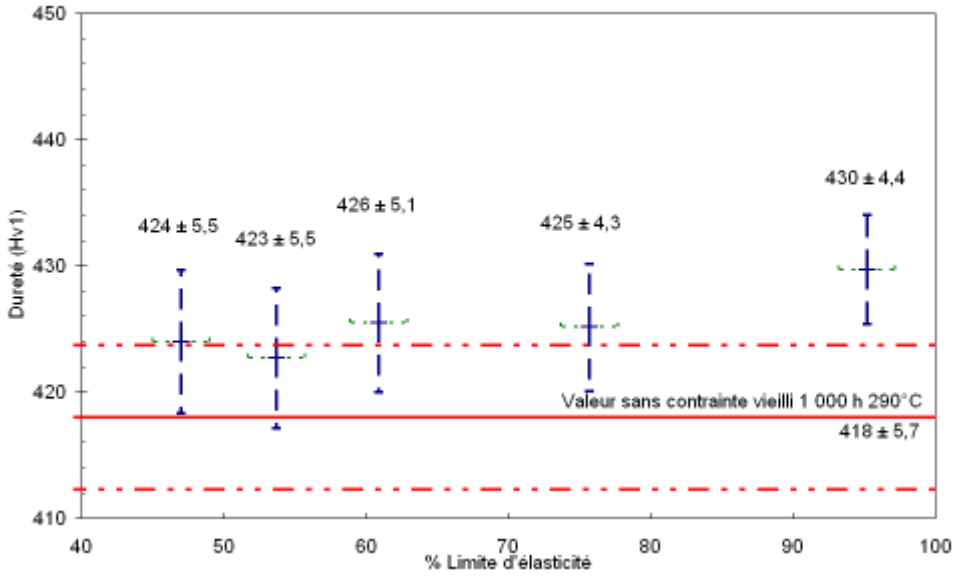


Figure 105 : Influence de la contrainte sur la cinétique de vieillissement après 1 000 h à 290°C

Après 5 000 h de vieillissement, l'influence de la contrainte sur l'évolution de la dureté est légèrement différente. Pour les états contraints jusqu'à 70 % de la limite d'élasticité, les valeurs de dureté obtenues sont comprises dans l'intervalle [moyenne ± écart type] des valeurs obtenues pour un état sans contrainte. L'augmentation de la dureté est assez faible pour ces états de contrainte. Toutefois, pour un état de contrainte d'environ 90 % de la limite d'élasticité, l'augmentation de dureté due à la contrainte est significative 13 $HV_{1\ 10s}$.

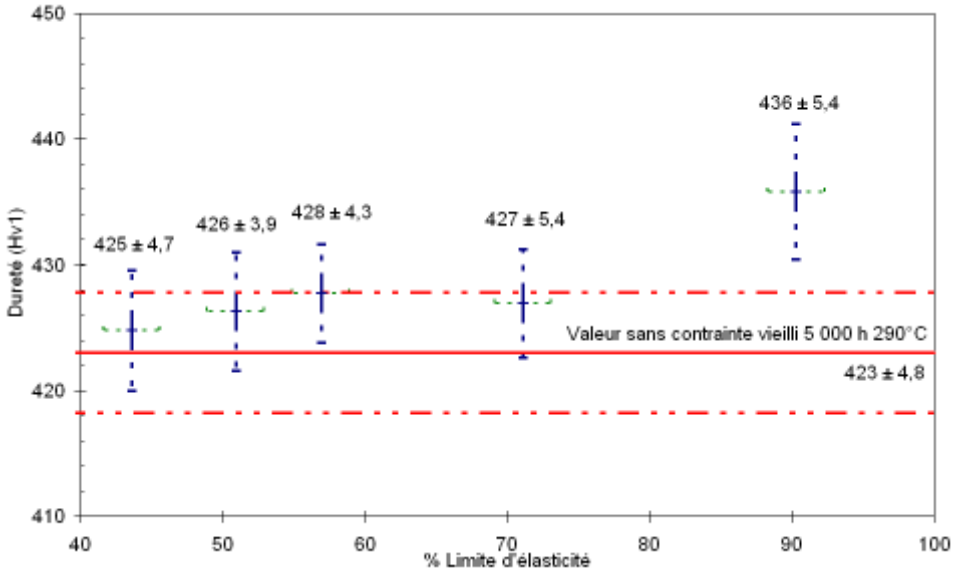


Figure 106 : Influence de la contrainte sur la cinétique de vieillissement après 5 000 h à 290°C

Pour l'éprouvette vieillie 10 000 h, la comparaison des résultats entre un état non contraint et les états contraints reste délicate. En effet, dans ce cas, il ne semble pas y avoir d'effet de la contrainte sur la cinétique de vieillissement. Néanmoins, il faut rappeler que pour les vieillissements sans contrainte appliquée à 290°C, certains points ne suivaient pas la tendance générale d'augmentation de dureté. Les valeurs de dureté obtenues à 10 000 h pour un état non contraint faisaient parties de ces points.

Néanmoins, nous observons une augmentation de la dureté obtenue pour un état contraint à 90 % de la limite d'élasticité par rapport aux autres états contraints, comme pour les précédents temps de vieillissement.

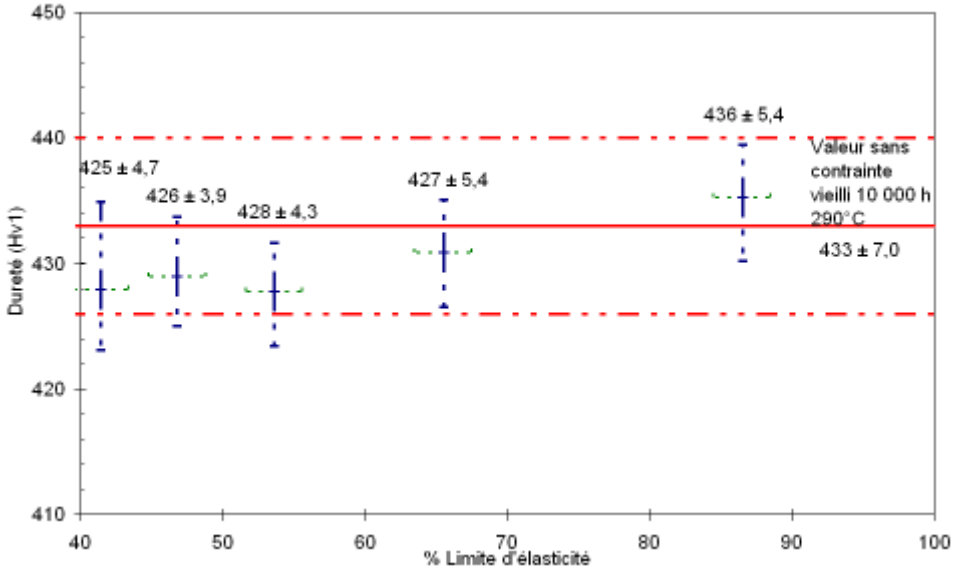


Figure 107 : Influence de la contrainte sur la cinétique de vieillissement après 10 000 h à 290°C

Les résultats obtenus sur l'éprouvette vieillie 15 000 h corroborent les observations faites sur les temps de vieillissement plus courts. Pour une contrainte appliquée de 95 % de la limite d'élasticité, on observe une augmentation significative de la dureté. Par contre, pour des contraintes appliquées plus faibles, l'augmentation de dureté due à la contrainte appliquée est plus limitée.

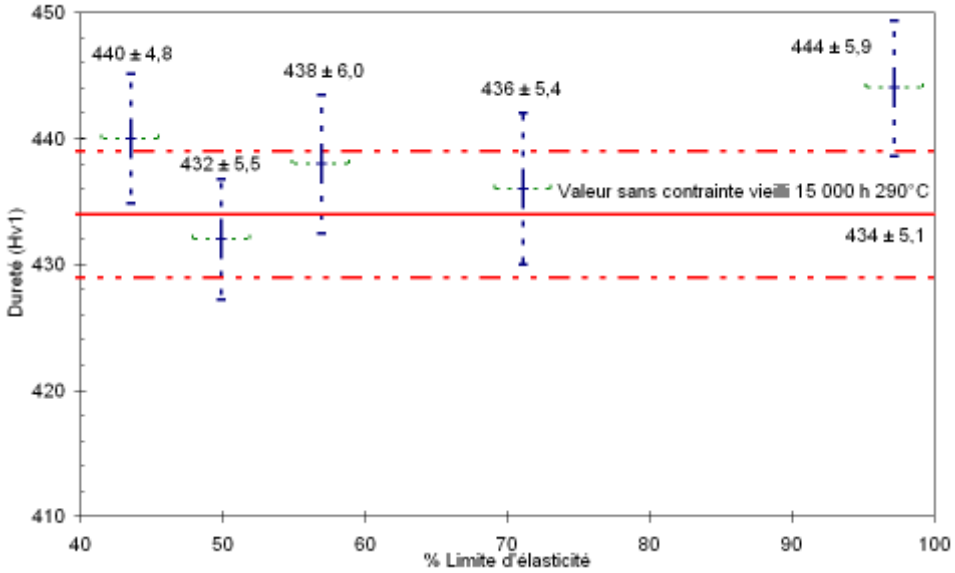


Figure 108 : Influence de la contrainte sur la cinétique de vieillissement après 15 000 h à 290°C

La Figure 109 présente un récapitulatif des résultats présentés auparavant. Ce graphique permet ainsi de voir que la contrainte a un effet limité sur la cinétique de durcissement jusqu'à environ 70 % de la limite d'élasticité à cette température de vieillissement. Pour un vieillissement effectué avec une contrainte égale à 90 % de la limite d'élasticité, l'effet de la contrainte sur la cinétique de vieillissement est beaucoup plus marqué et devient significatif.

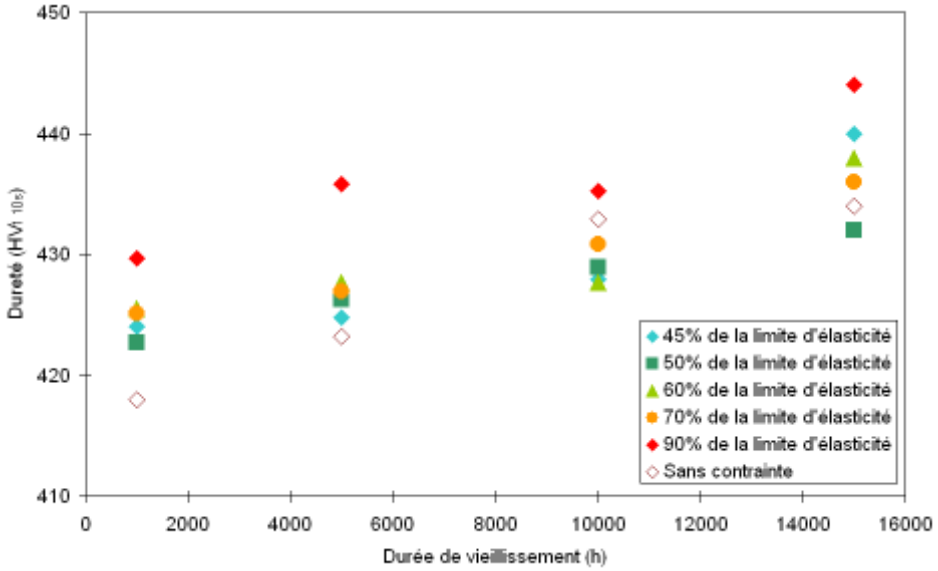


Figure 109 : Evolution de la dureté en fonction de l'état de contrainte et de la durée de vieillissement à 290°C

En comparant les valeurs de dureté obtenues sur des vieillissements sans contrainte et avec contrainte, nous remarquons qu'une éprouvette vieillie à 90 % de la limite d'élasticité à 290°C pendant 1 000 h possède la même dureté qu'un coupon vieilli sans contrainte appliquée 7 500 h à 290°C. De plus, pour les éprouvettes toujours vieillies à 90 % de la limite d'élasticité, les valeurs de dureté obtenues pour les vieillissements plus longs ne sont pas atteintes par des vieillissements sans contrainte.

2.2.2. *Eprouvettes vieillies en traction à 350°C*

A cette température, comme à 290°C, les mêmes durées de vieillissement ont été appliquées aux éprouvettes. Les résultats sont visibles sur les figures suivantes.

La Figure 110 montre l'influence de la contrainte sur la cinétique de vieillissement à 350°C. L'effet de la contrainte est observable pour des contraintes supérieures à 90 % de la limite d'élasticité. En dessous, la contrainte n'a pas d'influence sur la cinétique de vieillissement.

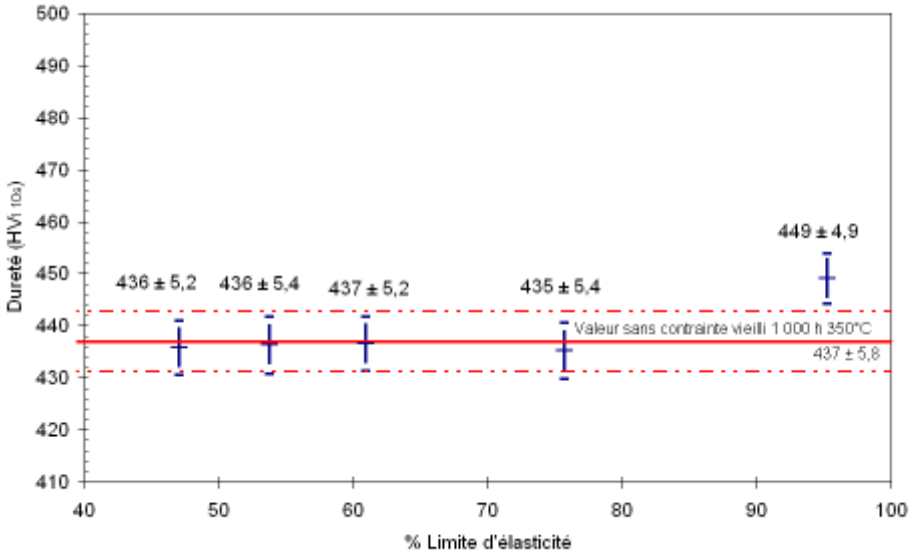


Figure 110 : Influence de la contrainte sur la cinétique de vieillissement après 1 000 h à 350°C

Après 5 000 h de vieillissement, le constat est le même (Figure 111). La contrainte a un effet sur la cinétique de vieillissement que pour l'état le plus contraint. Cette conclusion est aussi applicable dans le cas des vieillissements durant 10 000 h, Figure 112.

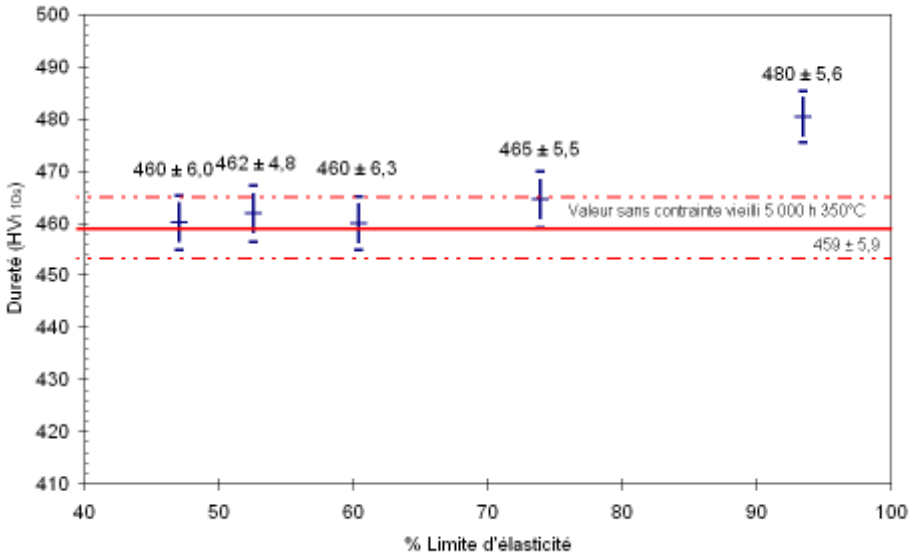


Figure 111 : Influence de la contrainte sur la cinétique de vieillissement après 5 000 h à 350°C

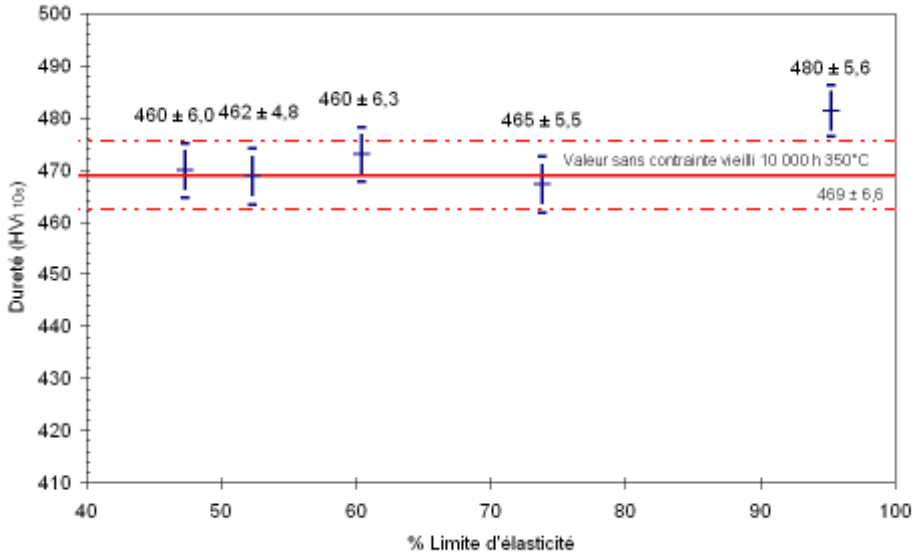


Figure 112 : Influence de la contrainte sur la cinétique de vieillissement après 10 000 h à 350°C

Après 15 000 h de vieillissement, l'influence de la contrainte est légèrement différente, Figure 113. Celle-ci a effectivement un effet sur la cinétique de vieillissement dès que sa valeur dépasse 45 % de la limite l'élasticité.

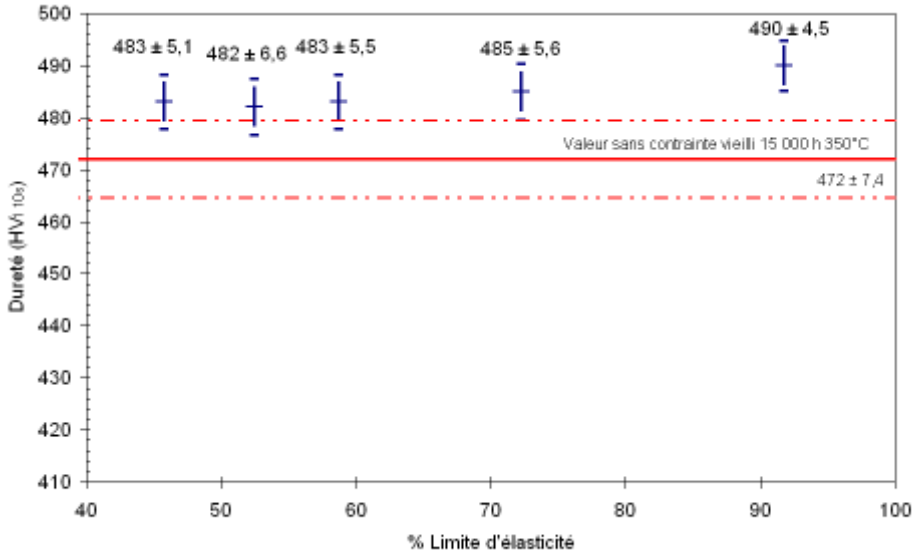


Figure 113 : Influence de la contrainte sur la cinétique de vieillissement après 15 000 h à 350°C

La Figure 114 résume les différents résultats présentés précédemment. On note ainsi qu'entre 5 000 h et 10 000 h de vieillissement, la dureté de l'état le plus contraint évolue peu. Par contre, l'écart de dureté entre l'état le plus contraint et les autres tend à se réduire. Par la suite, la dureté du matériau vieilli sans contrainte évolue peu, quand celle du matériau vieilli sous contrainte augmente de nouveau.

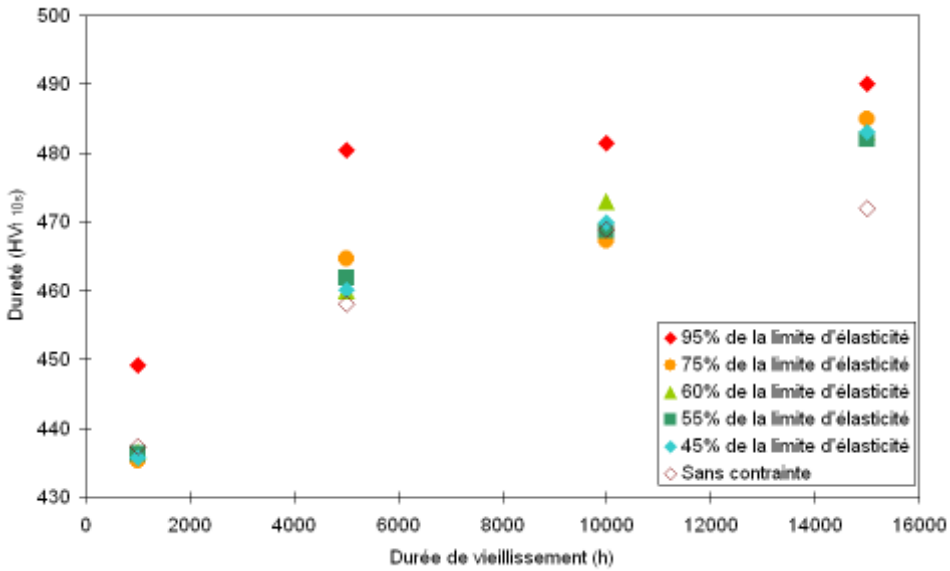


Figure 114 : Evolution de la dureté en fonction de l'état de contrainte et de la durée de vieillissement à 350°C

Une éprouvette vieillie 1 000 h à 90 % de la limite d'élasticité du matériau possède la même dureté qu'une éprouvette vieillie près de 4 000 h à la même température sans contrainte appliquée.

2.2.3. Eprouvettes vieillis en traction à 370°C

A cette température de vieillissement, deux éprouvettes ont été vieillies sous contrainte, l'une pendant 1 000 h et l'autre pendant 5 000 h. Les résultats des essais de dureté sont visibles sur la Figure 115.

Pour les deux temps de vieillissement, l'effet de la contrainte sur la cinétique de vieillissement est visible dès les plus basses valeurs de contrainte appliquée. Même si l'effet est limité, jusqu'à environ une contrainte correspondant à 75 % de la limite d'élasticité, l'effet de la contrainte sur la cinétique de durcissement reste visible.

Au-delà d'une contrainte correspondant à 75 % de la limite d'élasticité, l'effet de la contrainte sur la cinétique de durcissement est beaucoup plus marqué. Pour les deux temps de vieillissement, l'augmentation de dureté est de 10 et de 15 $HV_{1\ 10s}$ pour une contrainte équivalente 75 et 95 % de la limite d'élasticité respectivement.

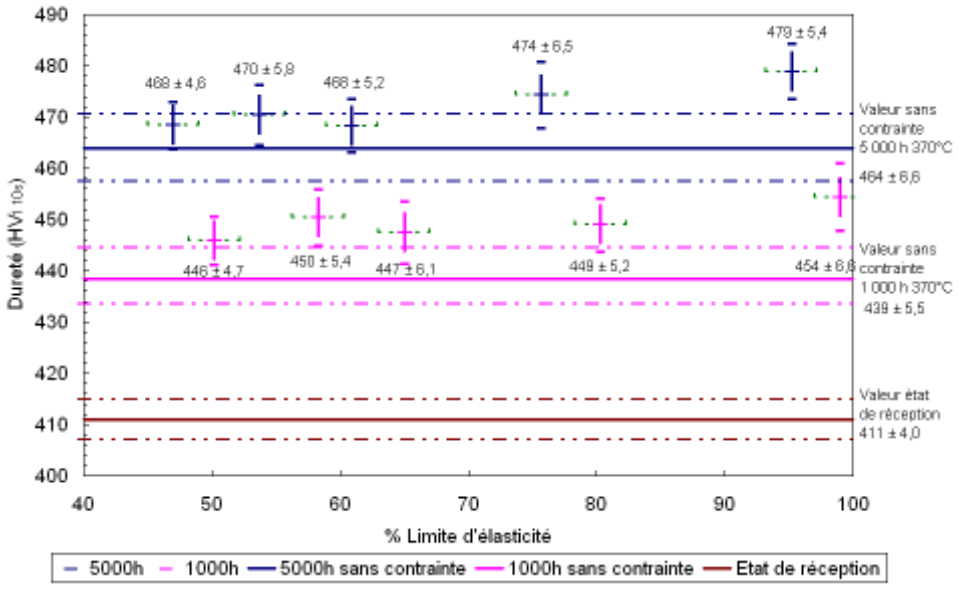


Figure 115 : Influence de la contrainte sur la cinétique de durcissement à 370°C

En terme de dureté, une éprouvette vieillie 1 000 h à 370°C avec une contrainte appliquée de traction de l'ordre de 95 % de la limite d'élasticité du matériau est équivalente à un coupon vieilli près de 2 000 h sans contrainte à la même température.

2.2.4. Validation des essais de vieillissement effectués sur machine de traction embarquée

Les essais de vieillissement sous contrainte de type traction effectués sur machine de traction embarquée présentent l'avantage d'être faciles à mettre en œuvre. En effet, ils ne nécessitent, que des enceintes de vieillissement d'un volume suffisant pour pouvoir y installer plusieurs machines embarquées. Toutefois, une des limitations de ces essais provient de l'application de la charge tout au long du vieillissement. Effectivement, rien ne prouve que le cadre lui-même ne vieillisse pas et que les ressorts gardent un effort constant durant le vieillissement. Lors du démontage de ces machines, une mesure de l'effort toujours appliqué sur la machine a été effectuée. Toutefois, celle-ci ne fut pas concluante du fait de l'oxydation empêchant le piston de se déplacer librement.

C'est pourquoi, en parallèle de ces essais, un essai de vieillissement sous contrainte sur éprouvette multi-sections a été lancé sur une machine de fluage conventionnelle. Cet essai présente le gros avantage d'appliquer une force constante sur l'éprouvette tout au long du vieillissement, puisque celle-ci est appliquée grâce une charge morte. Il permet aussi de vérifier la vitesse de fluage du matériau.

Un essai de fluage a donc été lancé sur une éprouvette multi-section à 350°C. Toutefois, du fait que le four n'était pas adapté à ce genre d'éprouvettes, une partie de l'éprouvette a vieilli à une température de l'ordre de 350°C et l'autre à une température autour de 370°C. La Figure 116 montre le suivi de l'allongement total de l'éprouvette en fonction du temps d'essais.

Le matériau flue peu à la température d'essai. Au bout de 7 500 h, l'éprouvette ne s'est allongée que de 120 µm. En considérant que l'allongement a lieu, dans sa totalité dans le fût de l'éprouvette le plus étroit, la déformation correspondante est de 0.7 %. Cette hypothèse a été vérifiée en mesurant l'éprouvette, aprés fluage. L'allongement de l'éprouvette est bien localisé dans le fût de l'éprouvette de plus faible section. La raideur de l'ensemble des ressorts servant à maintenir la charge sur les systèmes embarqués a été mesurée à 800 N/mm. Un fluage de 120 µm d'une éprouvette implique donc une perte de charge de 96 N, soit moins de 10 % de la charge appliquée initialement.

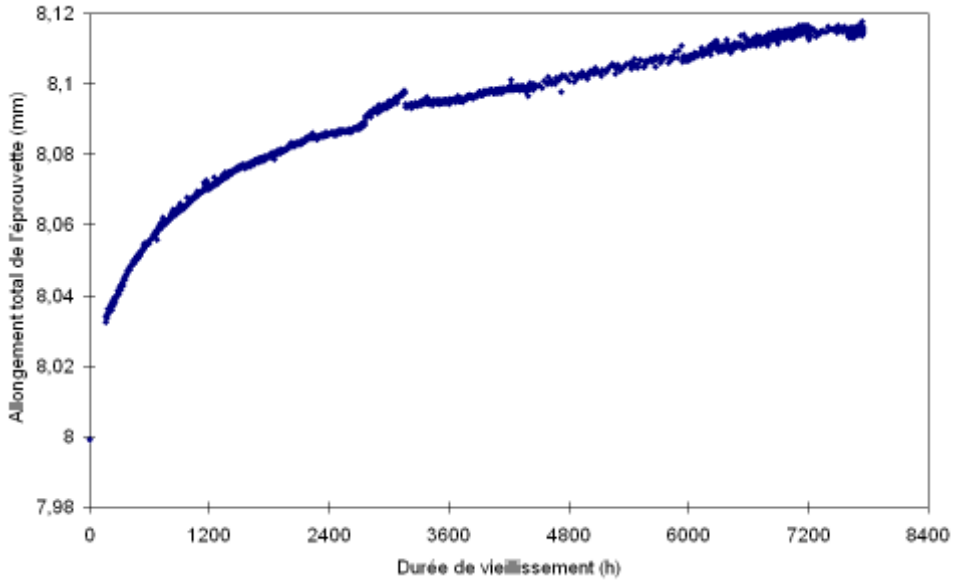


Figure 116 : Suivi de l'allongement au cours de l'essai de fluage à 350-370°C

Les essais de dureté effectués sur les différents fûts sont comparés sur la Figure 117 et la Figure 118 aux cinétiques de vieillissement obtenues sur les machines de traction embarquée, en reprenant le même code couleur que celui de la Figure 114.

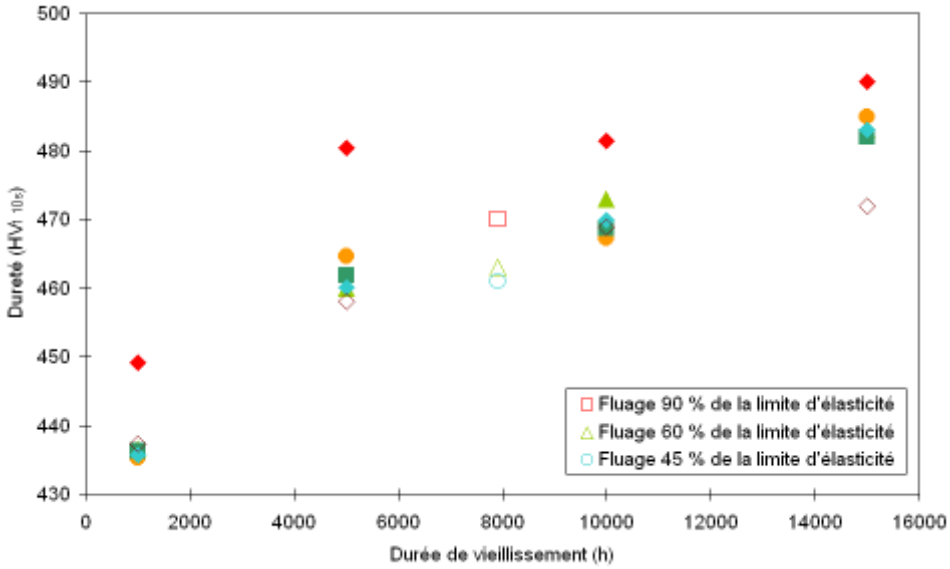


Figure 117 : Comparaison des valeurs de dureté obtenues sur éprouvette vieillie sur machine de fluage avec les éprouvettes vieillies sur machines de traction embarquées

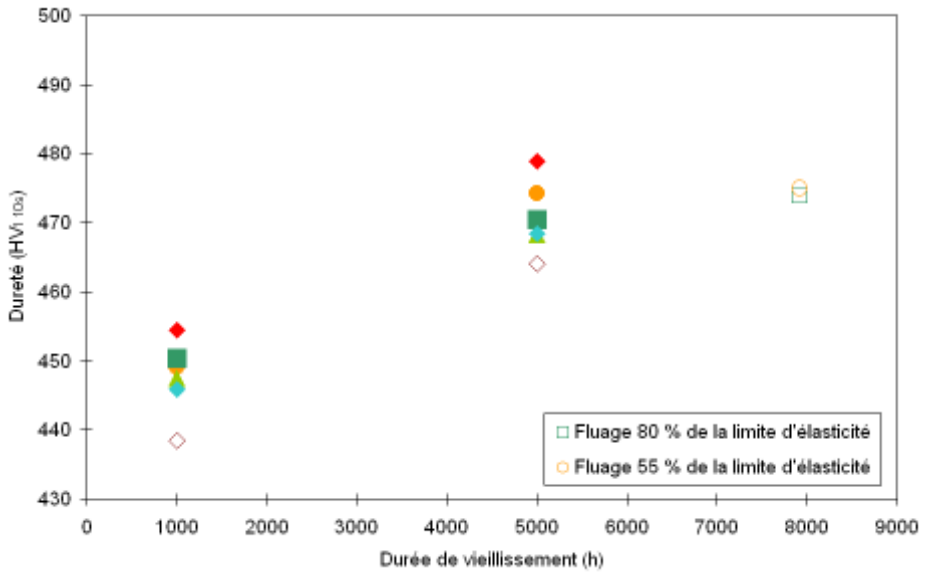


Figure 118 : Comparaison des valeurs de dureté obtenues sur éprouvette vieillie sur machine de fluage avec les éprouvettes vieillies sur machines de traction embarquée

Les résultats obtenus entre les deux types d'essais concordent. Une légère baisse des valeurs obtenues en fluage à 350°C par rapport aux essais sur machine de traction embarquée est à noter, surtout pour la partie de l'éprouvette la plus contrainte.

2.2.5. Comportement en vieillissement sous contrainte du 15 5 PH 1070 MPa

Lors de ses travaux de thèse, E.Herny a réalisé des vieillissements de même type sur le 15 5 PH 1070 MPa. La Figure 116 présente les résultats obtenus.

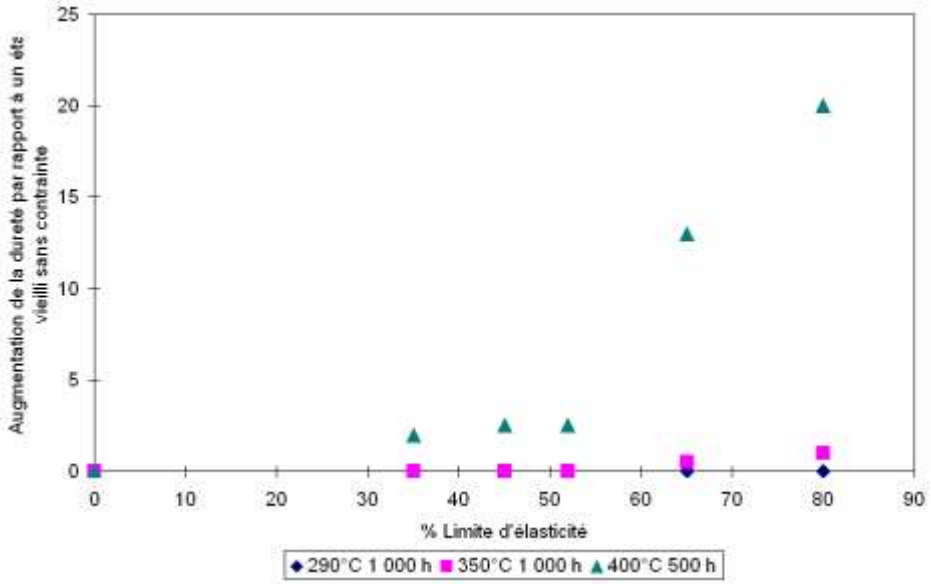


Figure 119 : Influence de la contrainte sur la cinétique de durcissement du 15 5 PH 1070 MPa

Les résultats ne montrent pas d'effet de la contrainte sur la cinétique de durcissement pour les vieillissements effectués à 290 et 350°C. A noter,que lors de ces essais, la charge appliquée était légèrement plus faible, la contrainte maximale représentait environ 80 % de la limite d'élasticité.

Par contre, pour l'éprouvette vieillie 500 h à 400°C, une nette augmentation de la dureté est observable lorsque la contrainte dépasse 50 % de la limite d'élasticité.

2.3. Vieillissement d'éprouvettes entaillées en traction

Des éprouvettes entaillées ont été vieillies sous une contrainte de type traction durant 1 000 et 5 000 h aux trois températures de l'étude. Les résultats obtenus sur le 15 5 PH 1200 MPa seront exposés ainsi que les résultats obtenus sur le 15 5 PH 1070 MPa.

2.3.1. Eprouvettes entaillées en 15 5 PH 1200 MPa

Les essais de dureté ont été effectués sur une demi-éprouvette dans toute la zone sous l'entaille. Dans les graphiques qui suivent, la position 0 correspond au centre de la largeur de l'éprouvette et donc la position 1.5 mm correspond au fond de l'entaille. Les moyennes de deux essais de dureté sont représentés sur les figures ci-dessous (Figure 120, Figure 121 et Figure 122).

Le comportement en dureté est identique aux différentes conditions de vieillissement. Une augmentation de la dureté est observée près de l'entaille par rapport à un état vieilli sans contrainte. Ensuite, lorsqu'on s'approche du cœur de l'éprouvette, on remarque une baisse de la dureté, atteignant des valeurs de dureté égales à un vieillissement sans contrainte.

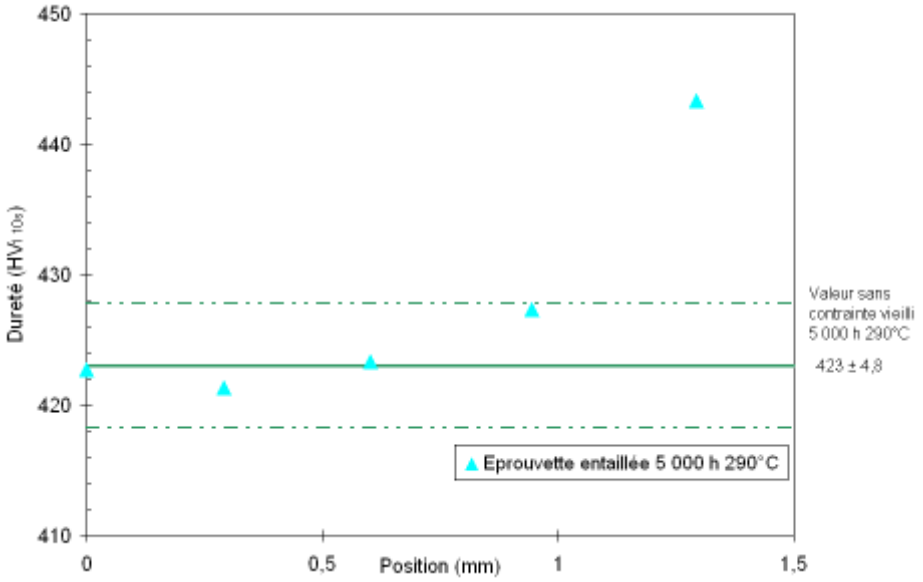


Figure 120 : Résultats des essais de dureté effectués sur une éprouvette entaillée vieillie 5 000 h à 290°C

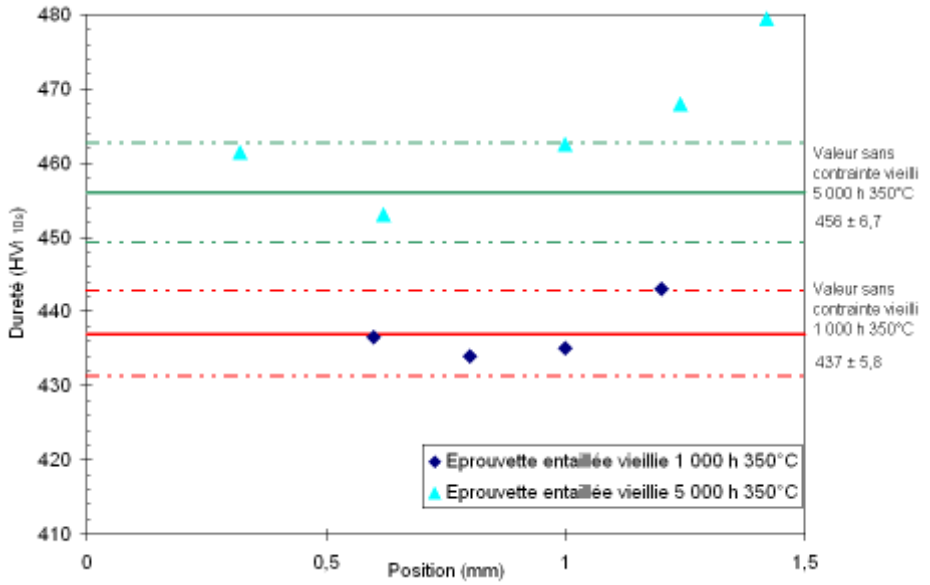


Figure 121 : Résultats des essais de dureté effectués sur des éprouvettes vieillies 1 000 et 5 000 h à 350°C

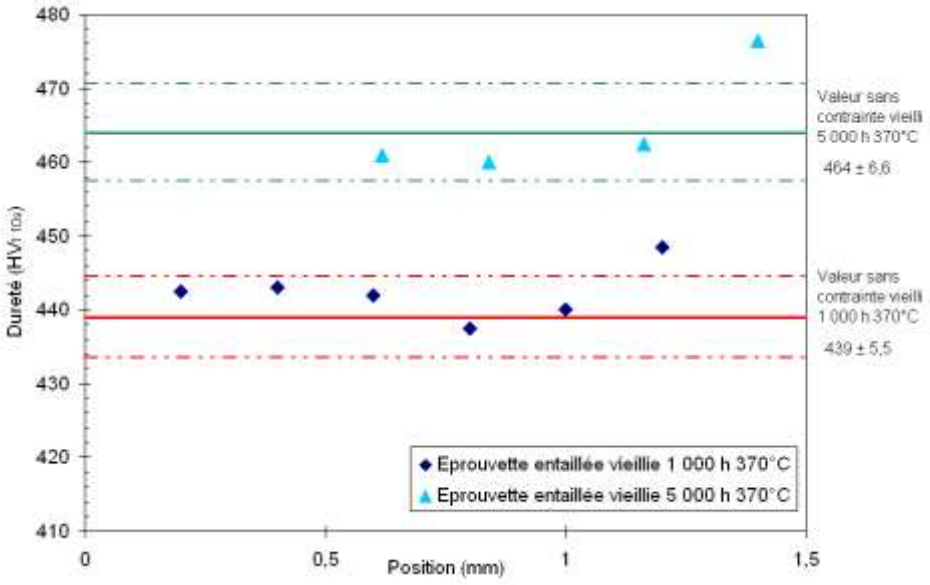


Figure 122 : Résultats des essais de dureté effectués sur des éprouvettes vieillies 1 000 et 5 000 h à 370°C

La Figure 123 présente l'évolution du taux de triaxialité en plus des résultats de dureté obtenus pour une éprouvette entaillée vieillie 5 000 h à 290°C. On peut voir ainsi que dans la zone où le taux de triaxialité reste contant, la dureté après vieillissement n'est pas modifiée par rapport à un état non contraint. Par contre, lorsqu'on se rapproche de l'entaille, on observe une nette augmentation de la dureté.

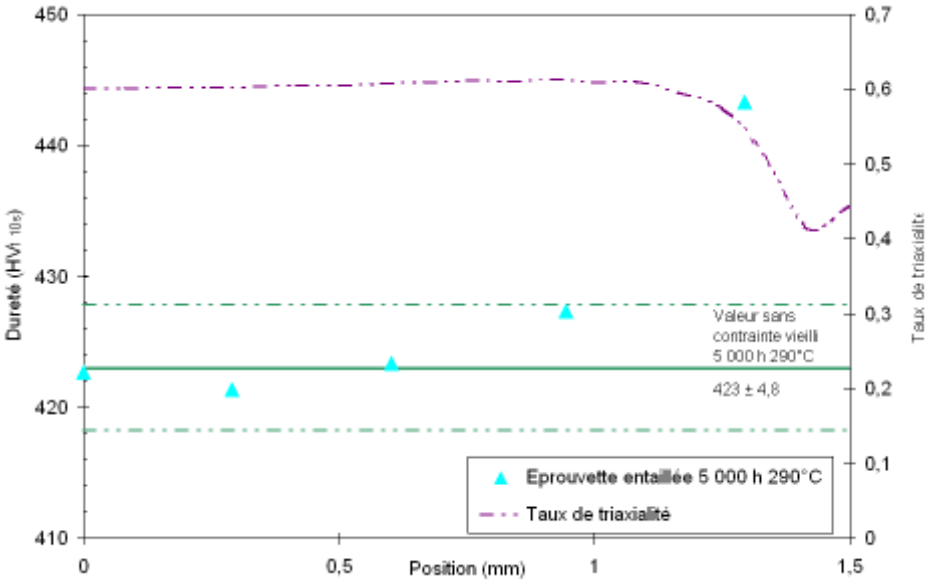


Figure 123 : Résultats des essais de dureté effectués sur une éprouvette vieillie 5 000 h à 290°C et évolution du taux de triaxialité

2.3.2. Eprouvette entaillée en 15 5 PH 1070 MPa

Des mesures identiques avaient été effectuées par E.Herny sur le 15 5 PH 1070 MPa lors de ses travaux de thèse. Les résultats sont présentés sur la Figure 124.

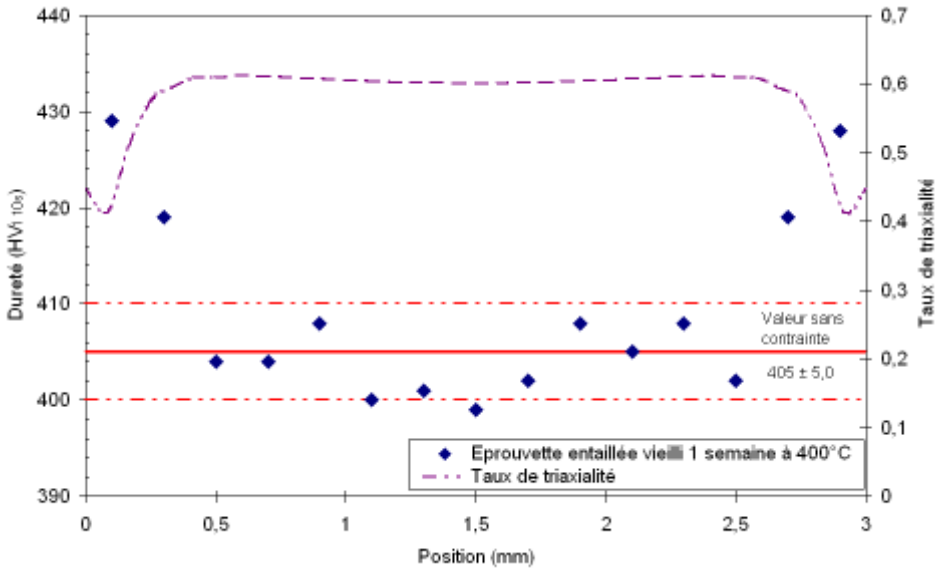


Figure 124 : Résultats des essais de dureté effectués sur une éprouvette vieillie 1 semaine à 400°C

Les résultats sont identiques aux résultats obtenus sur le 15 5 PH 1200 MPa. Dans la zone où le taux de triaxialité reste constant, les valeurs de dureté obtenues correspondent à des valeurs obtenues pour un état vieilli sans contrainte. Par contre, lorsque l'on s'approche des entailles, une augmentation de la dureté est mesurée.

2.4. Vieillissement de poutres en flexion 4 points

Une poutre vieillie en flexion 4 points présente l'intérêt de balayer tout un ensemble d'états de contrainte différents, en se déplaçant dans l'épaisseur de la poutre. Les résultats obtenus pour une poutre de 15 5 PH 1070 MPa sont exposés sur la Figure 125. Sur cette figure, sont représentées les valeurs de dureté obtenues et le taux de triaxialité en fonction du rapport de la contrainte de Von Misès divisée par la limite d'élasticité. Les valeurs négatives de ce rapport correspondent donc à la face en compression, les valeurs positives à la face en traction. Les contraintes maximales supportées par la poutre sont de l'ordre de 90 % de la limite d'élasticité du matériau, aussi bien en traction qu'en compression.

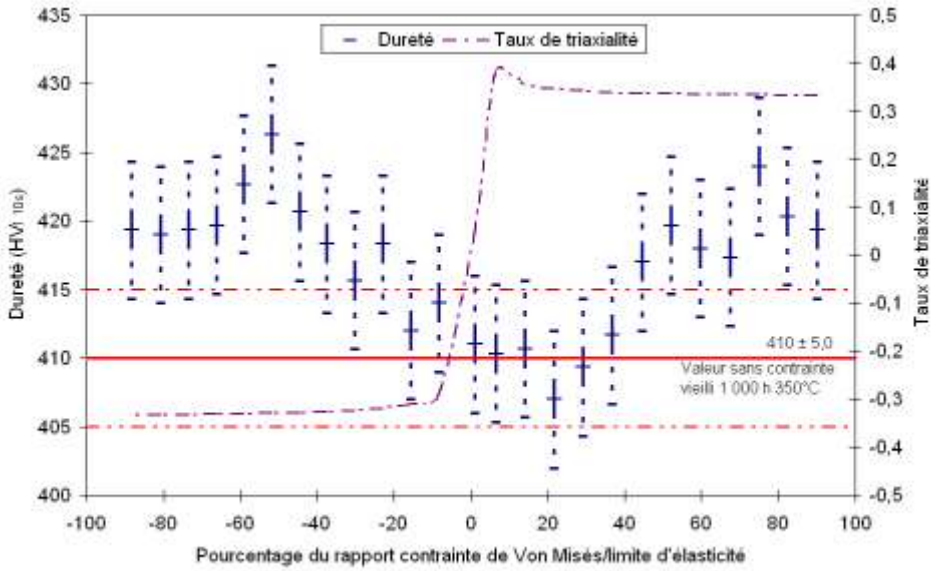


Figure 125 : Résultats des essais de dureté effectués dans l'épaisseur d'une poutre vieillie en flexion 4 points pendant 1 000 h à 350°C

Ces résultats permettent de mettre en évidence le rôle accélérateur de la contrainte de type compression sur la cinétique de vieillissement et confirment le rôle de la contrainte de type traction.

Lorsqu'on se rapproche du centre de l'éprouvette, et donc de la fibre neutre, et des états moins contraints en valeur absolue, une baisse progressive de la dureté est observée. Ces résultats seront discutés dans la dernière partie de ce manuscrit.

Synthèse

L'application d'une contrainte lors du vieillissement d'éprouvettes a une influence sur la cinétique de durcissement du matériau. A partir d'état de contraintes dépendant de chaque condition de vieillissement, la dureté mesurée sur une éprouvette contrainte en traction augmente de manière significative par rapport à un état vieilli sans contrainte.

De plus, les éprouvettes entaillées vieillies sous contrainte montrent un effet de la contrainte sur la cinétique de vieillissement à proximité du fond d'entaille.

Il semble par contre, qu'une contrainte de type traction et qu'une contrainte de type compression aient le même effet sur le cinétique de vieillissement.

Références

[1] Jean-Marc Cloué. *Justification de la tenue en service en milieu primaire REP d'un acier martensitique à durcissement structural*. PhD thesis, Ecole des Mines de Paris, 1998.

[2] Emilie Herny. *Caractérisation mécanique et étude des mécanismes de vieillissement thermique et thermomécanique de l'acier inoxydable martensitique 15 5 PH, soudé par faisceau d'électrons*. PhD thesis, INP Toulouse, 2006.

[3] J.H.Hollomon and L.D. Jaffe. Time-temperature relations in tempering steel. *Transactions of the American Institute of Mining and Metallurgical Engineers*, 162:223–249, 1945.

Chapitre IV : Contribution à la compréhension du vieillissement des aciers

Ce chapitre est consacré à la discussion des différents résultats présentés dans le chapitre III. Dans un premier temps, une brève étude permettra de s'intéresser aux hétérogénéités présentes dans le matériau de réception. Puis dans les deux parties suivantes, les résultats de vieillissement sans contrainte appliquée lors du vieillissement puis avec une contrainte appliquée tout au long du vieillissement seront discutés.

1. Hétérogénéité dans le matériau à l'état de réception

Lors de la présentation du matériau à l'état de réception, et particulièrement lors des essais de traction, il a été observé une hétérogénéité de comportement mécanique entre éprouvettes prélevées dans la même direction et le même plan relativement au repère du larget. La recherche de l'origine de cette hétérogénéité de comportement a motivé la mise en œuvre de quelques expériences simples relatives aux traitements thermiques subis par le larget i.e la trempe et le revenu. En effet, nous pouvons considérer le méplat comme un produit épais, et donc, les hétérogénéités de comportement peuvent être liées à ces étapes de traitement.

1.1. Etude de la trempe : Essai Jominy

Dans le chapitre II, nous avons introduit une nouvelle façon d'utiliser l'essai de dureté afin de caractériser le matériau. Toutefois, nous nous étions contentés de caractériser le matériau à l'état de réception qui, rappelons le, est à l'état trempé et revenu. Dans cette partie, nous souhaitons aller un peu plus loin dans l'interprétation des résultats de dureté avec ce nouvel outil, en nous intéressant à la trempe dans un premier temps.

1.1.1. Description de l'essai Jominy

L'essai Jominy est un essai très utile lors du développement d'une nuance d'alliage et plus particulièrement d'acier. En effet, il permet de statuer sur la trempabilité d'une nuance et fournit des abaques permettant de prévoir les évolutions de microstructure dans des produits de différentes épaisseurs. Le principe de l'essai Jominy est assez simple : une éprouvette cylindrique est chauffée jusqu'à son domaine d'austénitisation puis elle est extraite du four et positionnée sur un montage lui permettant de la refroidir uniquement par le bas grâce à un jet d'eau dont le débit et la température doivent répondre à la norme NF EN ISO 642 (1999-10), Figure 126. Ainsi, un gradient de vitesse de refroidissement est créé sur la hauteur de l'éprouvette.

Figure 126 : Eprouvette Jominy

A l'issue du traitement, la procédure a été appliquée selon la norme, c'est-à-dire en effectuant des essais de dureté Vickers 30 kg à des positions prédéfinies. Puis, le protocole défini auparavant

a été repris avec une charge de 1 kg. Les résultats obtenus sont présentés sur les figures 2 et 3. La position 0 correspond au bas de l'éprouvette, soit la zone la plus proche du jet d'eau.

1.1.2. Dureté sur l'éprouvette

La Figure 127 présente les résultats de dureté HV_{30} effectués sur l'éprouvette après essai Jominy. On observe une légère diminution des valeurs de dureté dans la zone 10-30 mm. Néanmoins, la dureté reste quasi constante tout au long de l'éprouvette. Ce résultat n'est guère surprenant dans la mesure où le matériau est auto trempant.

La tendance des valeurs de dureté obtenues en $HV_{1\ 10s}$ est la même que pour les valeurs de dureté obtenues en HV_{30}, Figure 128. On observe toutefois une augmentation de la dureté mesurée à proximité de la zone en contact direct avec l'eau, avec malgré tout une diminution de la dureté en extrême surface. Cette variation peut être la résultante de fortes contraintes résiduelles développées dans cette zone, auxquelles les essais de dureté $HV_{1\ 10s}$ sont beaucoup plus sensibles.

Néanmoins, il faut aussi prendre en compte l'effet de la vitesse de refroidissement sur le déplacement des points de transformation. Des diagrammes TRC sur le PH 13-08 Mo [19] et sur l'acier APX4 [2] montrent que l'augmentation de la vitesse de refroidissement diminue la température Ms de début de transformation martensitique. Une telle évolution peut être envisagée sur le 15-5 PH. Nous rappelons ici que la température Ms théorique a été déterminée à 180°C. Ainsi, en modifiant Ms et aussi Mf, la transformation martensitique peut ne pas être totale pour une température de fin de trempe de 20°C. De l'austénite résiduelle pourrait être présente en extrême surface de l'éprouvette Jominy, correspondant à la baisse de dureté mesurée sur les 3 premiers millimètres de l'éprouvette. Cette baisse de dureté a été observée pour des trempes à 100°C/s sur l'acier APX4 [2]. On remarque que dans cette zone, les écarts types mesurés sont très importants. Nous rappelons que dans le cas du matériau à l'état de réception, l'écart type mesuré est de 4.0.

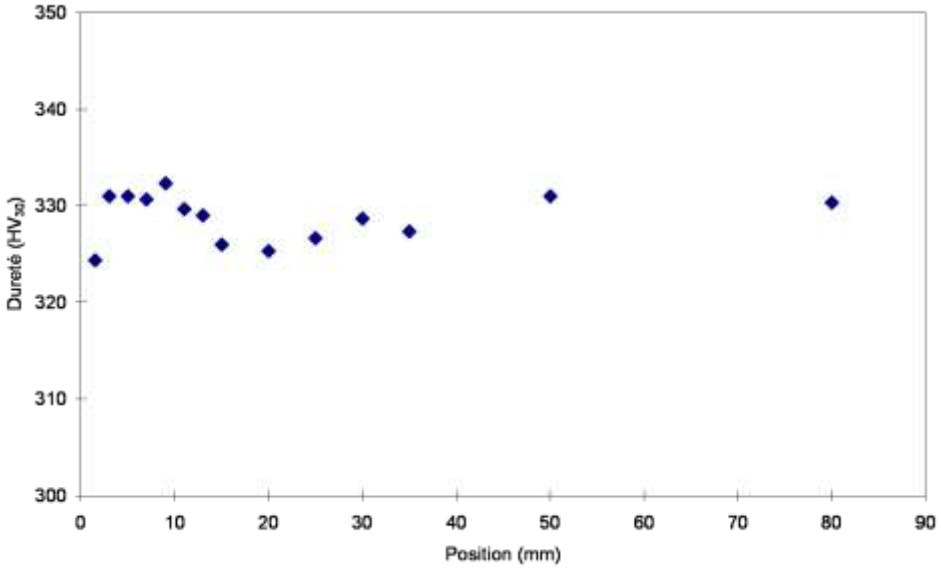


Figure 127 : Résultats de dureté HV_{30} sur éprouvette après essai Jominy

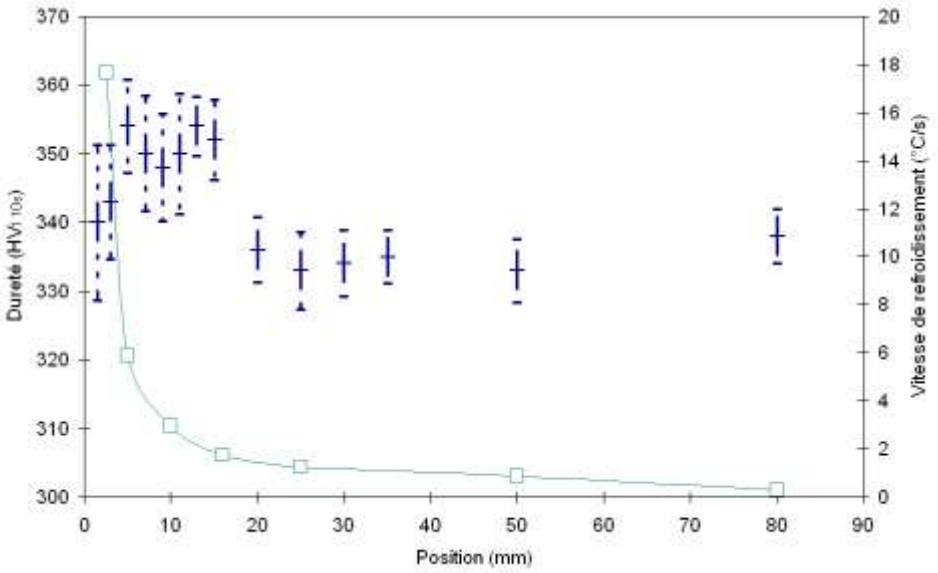


Figure 128 : Résultats de dureté $HV_{1\ 10s}$ et écart type obtenus après essai Jominy

L'évolution de l'écart type avec la position dans l'éprouvette Jominy est significative. En effet, près de la zone refroidie le plus rapidement, l'écart type atteint la valeur de 11. Au fur et à mesure que l'on s'éloigne de cette zone, l'écart type diminue, pour atteindre une valeur de 4 à 80 mm de la zone au contact de l'eau. Cet essai montre ainsi qu'un processus de refroidissement mal contrôlé peut engendrer des hétérogénéités de comportement mécanique associées ici à un écart type important. Cette hétérogénéité de comportement peut aussi bien être la conséquence de la présence d'une autre phase, l'austénite résiduelle par exemple, que la manifestation de contraintes résiduelles importante issues de la trempe.

1.1.3. Application au méplat

Le même type de démarche a été appliqué au méplat à l'état de réception, c'est à dire trempé-revenu. Cette fois la filiation de dureté a été réalisée dans l'épaisseur du méplat, afin de révéler un éventuel gradient de dureté qui pourrait être imputé à un gradient de vitesse de refroidissement dans l'épaisseur. Les résultats sont présentés sur la Figure 129, où la position 0 correspond à un bord du méplat et la position 35 mm au centre du méplat.

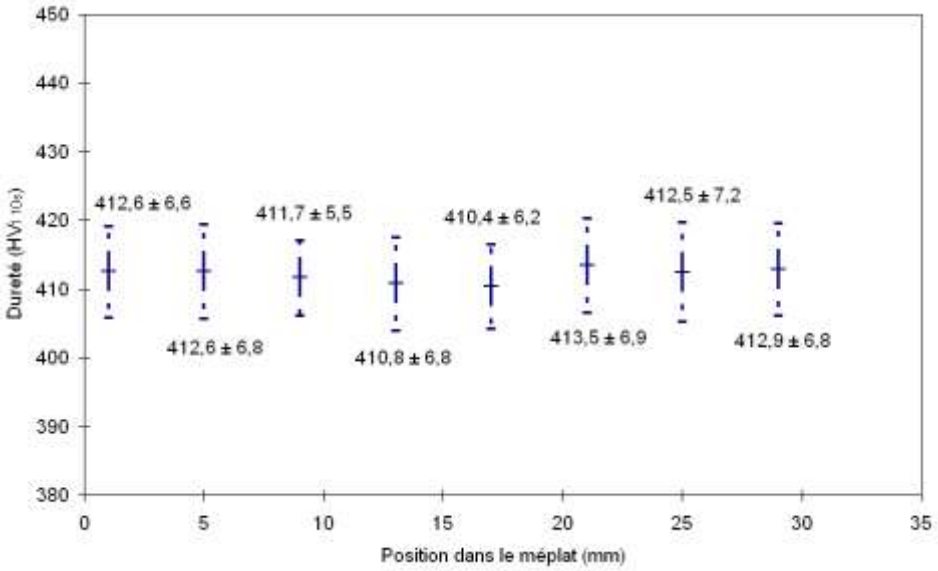


Figure 129 : Résultats des essais de dureté effectués sur l'épaisseur du méplat

Ces essais montrent ainsi que la dureté moyenne est quasi constante sur toute l'épaisseur du méplat. En revanche, comme le montrent les écarts type mesurés, on constate une hétérogénéité des propriétés.

1.2. Etude du traitement de revenu

L'hétérogénéité de propriétés mécaniques révélée suite à l'essai Jominy a-t-elle des conséquences sur les propriétés du matériau après le revenu ?

Quel est l'effet d'une contrainte appliquée lors du revenu sur la cinétique de durcissement ?

Ce sont les questions auxquelles nous allons essayer de répondre dans ce paragraphe.

Avant de discuter des différents résultats, il est bon de rappeler ici que l'alliage, lors de son traitement industriel, est enfourné four chaud pour cette étape du traitement thermique ce qui engendre une vitesse de montée en température importante. En revanche, dans le cas du 15 5 PH 1070 MPa, le traitement thermique était lancé four froid, avec un contrôle de la vitesse de montée en température. Durant cette montée en température, deux phénomènes antagonistes ont lieu :

- la relaxation des contraintes résiduelles via la restauration des structures de déformation héritées de la trempe
- la précipitation du cuivre constituant des obstacles au mouvement des dislocations limitant ainsi la cinétique de restauration et par là même la relaxation des contraintes résiduelles.

La reproduction du traitement thermique d'austénitisation et de revenu en laboratoire a été faite sur des échantillons de petites tailles. Ainsi, les cinétiques de montée en température et de refroidissement sont beaucoup plus rapides dans ce cas et de ce fait, la vitesse de chauffage dépasse largement celle correspondant à d'un enfournement four chaud. Ces conditions particulières de traitement peuvent expliquer le fait que les résultats obtenus sur ces essais dits de laboratoire s'écartent de ceux obtenus sur le matériau industriel. Nous nous cantonnerons donc ici à une analyse comparative entre des matériaux traités en laboratoire. La transposition brutale de ces résultats au cas industriel reste certes délicate mais intéressante.

1.2.1. Traitement de revenu sans contrainte

Dans un premier temps, nous avons étudié des échantillons austénitisés et refroidis à l'air puis vieilli à 505°C pendant 4 h et 8 h. Les résultats des essais de dureté effectués sur ces échantillons sont disponibles dans le Tableau 18.

Echantillon	Dureté ($HV_{1\ 10s}$)	Ecart type
Austénitisé - refroidissement air (RA)	313	4.5
Austénitisé (RA)+ revenu 4 h à 505°C	414	5.9
Austénitisé(RA) + revenu 8 h à 505°C	391	5.2

Tableau 18 : Résultats de dureté obtenus sur échantillons traités en laboratoire

Sans trop de surprise, ces résultats montrent l'effet durcissant du traitement de revenu. Mais, ils montrent aussi un autre effet de ce traitement. En effet, après l'austénitisation, l'écart type de la distribution des valeurs de dureté est de 4.5. Après un traitement de 4 h à 505°C, celui-ci augmente à 5.9. Compte tenu des précautions prises lors de l'exploitation des essais de dureté, la différence d'écart type entre les deux distributions est significative. Son augmentation à l'issue du revenu montre, à notre sens, que lors de la phase de durcissement, les contraintes résiduelles sont peu relâchées du fait du peu de temps passé par le matériau dans le domaine de température où le cuivre reste en solution solide. Ce type d'histoire thermique semble être source d'hétérogénéité de propriétés. Cependant, cette hétérogénéité diminue au fur et à mesure du temps de maintien, puisqu'après un traitement de revenu de 8 h, l'écart type diminue légèrement et atteint une valeur de 5.2. Conjointement la dureté baisse de 20 $HV_{1\ 10s}$. Ce comportement est attribuable à la contribution de la réversion de la martensite et dans une moindre mesure à la restauration de la structure de déformation car la mobilité des dislocations se trouve limitée par la densité de précipités de cuivre.

Ces résultats sont à comparer avec ceux obtenus sur un échantillon trempé à l'eau puis revenu 4 h à 505°C. Les résultats sont présentés dans le Tableau 19.

Echantillon	Dureté ($HV_{1\ 10s}$)	Ecart type
Austénitisé + refroidissement air (RA)	313	4.5
Austénitisé + trempe eau (TE)	340	7.9
Austénitisé + trempe eau + revenu 4 h 505°C	401	6.1

Tableau 19 : Résultats de dureté pour des échantillons trempés à l'eau

Ces résultats corroborent ceux exposés auparavant. Effectivement, une augmentation de la vitesse de refroidissement induit une augmentation de la dureté mesurée sur l'échantillon. L'écart type est aussi largement augmenté, passant de 4.5 à 7.9 entre les deux types de refroidissement. Cet essai montre ainsi le rôle des contraintes résiduelles sur l'écart type de la distribution des valeurs de dureté. Par la suite, le traitement de revenu fait évoluer cet écart type, en passant de 7.9 à 6.1, valeur proche de celle obtenue pour un matériau refroidi à l'air puis revenu 4 h à 505°C. Finalement, même si les valeurs de dureté diffèrent en fin de traitement de revenu, les écarts types sont équivalents. L'augmentation de la dureté associée à la précipitation du cuivre est bien diminuée pour l'échantillon trempé eau. Il semble que les contraintes résiduelles héritées de la trempe à l'eau perturbent notablement la cinétique ou la distribution spatiale de la phase durcissante. Une étude détaillée de cet état métallurgique permettrait probablement d'affiner l'analyse. Cela étant, à l'issue de cette petite étude complémentaire, nous avons identifié une source possible d'hétérogénéité de propriétés attribuée aux contraintes résiduelles. A cela, il faut bien entendu, rajouter l'effet de la vitesse de refroidissement sur les points de transformation et donc la possible présence d'austénite résiduelle.

1.2.2. Traitement de revenu sous contrainte

Des traitements de revenu (505 °C/4h) ont également été effectués sous contrainte de type traction. Le niveau de contrainte appliqué correspond à 50% de la limite d'élasticité du matériau austénitisé (RA). L'effet du moment d'application du chargement par rapport au cycle thermique sur la dureté finale a été exploré. Bien entendu, au cours du vieillissement, la contrainte appliquée reste constante alors que la limite d'élasticité croit. Quatre procédures ont été suivies lors de ces essais :

- chauffage puis chargement de l'éprouvette puis déchargement et refroidissement (Ep1)
- chauffage puis chargement de l'éprouvette puis refroidissement et déchargement (Ep2)
- chargement puis chauffage de l'éprouvette puis refroidissement et déchargement (Ep3)
- chargement puis chauffage de l'éprouvette puis déchargement et refroidissement (Ep4)

60 indents de dureté en utilisant une charge de 1 kg ont été effectués sur les fûts des éprouvettes. Les résultats sont présentés dans Tableau 20.

Eprouvette	Dureté ($HV_{1\ 10s}$)	Ecart type
Ep1	379	6.6
Ep2	389	4.8
Ep3	378	4.7
Ep4	380	4.8

Tableau 20 : Résultats des essais de dureté effectués sur le matériau revenu sous contrainte

Ces résultats montrent que la contrainte induit à la fois un effet sur la précipitation du cuivre et la précipitation d'austénite de réversion. En effet, la dureté est plus faible que celle obtenue sur un matériau à l'état de réception. Rappelons qu'à l'état de réception le matériau a été vieilli juste après le pic de dureté. Pour un vieillissement à plus haute température, ce qui est le cas du 15 5 PH 1070 MPa, la dureté obtenue est plus faible. Les valeurs de dureté obtenues ici montrent que l'application d'une contrainte a le même effet qu'une augmentation de la température, puisque les résultats de dureté sont quasiment équivalents à ceux obtenus dans le cas du 15 5 PH 1070 MPa. Cette diminution de dureté peut aussi être attribuée à une précipitation plus importante d'austénite de réversion, qui aurait les mêmes conséquences qu'un survieillissement des précipités de cuivre. Une étude dédiée à la mesure de la fraction volumique et à la distribution de la taille des précipités de cuivre ainsi qu'un un dosage de l'austénite de réversion sont nécessaires pour statuer sur l'origine de cette baisse de dureté.

De plus, hormis pour l'éprouvette 1, la contrainte a plutôt tendance à diminuer l'écart type par rapport à un échantillon revenu sans contrainte. Une étude plus approfondie serait utile afin de conclure sur ce point.

Ces essais montrent l'influence de l'application d'une contrainte sur l'évolution de la dureté de l'alliage au cours du revenu. En changeant d'échelle, et en s'intéressant à l'état de contrainte entre lattes, il est possible que l'application d'une contrainte externe conduise à une homogénéisation de l'état de contrainte interne. Cette nouvelle distribution des contraintes dans la microstructure, pourrait permettre de réduire la dispersion de dureté entre paquets de lattes via une homogénéisation des cinétiques de précipitation du cuivre et de formation de l'austénite de réversion qui semblent être plutôt sensibles à une contrainte seuil. Cette accélération des transformations pourrait expliquer le survieillissement du matériau qui se manifeste par une diminution de dureté comparativement à un matériau revenu sans contrainte externe appliquée. On peut donc suspecter l'existence d'hétérogénéités de vieillissement responsables d'hétérogénéités de propriétés à l'échelle des paquets de lattes.

1.3. Relation dureté/TTDF à l'échelle locale

Comme nous avons pu le voir, le protocole de dureté utilisé durant toute cette étude fournit deux informations : la valeur moyenne et la dispersion des valeurs de dureté. Après s'être intéressé aux sources probables de dispersion, intéressons-nous aux conséquences de cette dispersion et l'interprétation que nous pouvons en faire.

A l'échelle macroscopique, la relation entre l'augmentation de la dureté et de la température de transition ductile-fragile a été clairement mise en lumière. Lorsque l'on s'intéresse aux résultats de dureté obtenus sur un échantillon à l'état de réception, Figure 35 au Chapitre II, nous observons une large distribution de ces valeurs : la valeur moyenne est de 411 $HV_{1\ 10s}$ et les valeurs de dureté sont comprises dans l'intervalle [400 ; 425]. Au vu des volumes sollicités lors de l'essai de dureté 1 kg, nous pouvons relier une valeur de dureté au comportement d'un ou plusieurs paquets de lattes. D'après les relations reliant les valeurs de dureté et la TTDF, nous pouvons envisager d'associer une TTDF à chaque paquet de lattes. Le matériau étant un agrégat de paquets de lattes, nous pouvons schématiser le matériau comme une distribution spatiale de TTDF. Ainsi, comme montre la Figure 130, nous pouvons identifier deux populations de paquets de lattes à l'état de réception. Les essais de dureté ayant été effectués à température ambiante (20°C) et la TTDF pour le matériau à l'état de réception ayant été déterminée à 30°C, nous pouvons conclure que les paquets de lattes ayant une dureté inférieure à la dureté moyenne ont une TTDF plus basse que la température ambiante, et sont donc ductile à température ambiante. Par contre, les paquets de lattes ayant une dureté plus élevée que la valeur moyenne possèdent eux une TTDF plus élevée que la température ambiante et correspondent donc à des zones fragiles à la température ambiante.

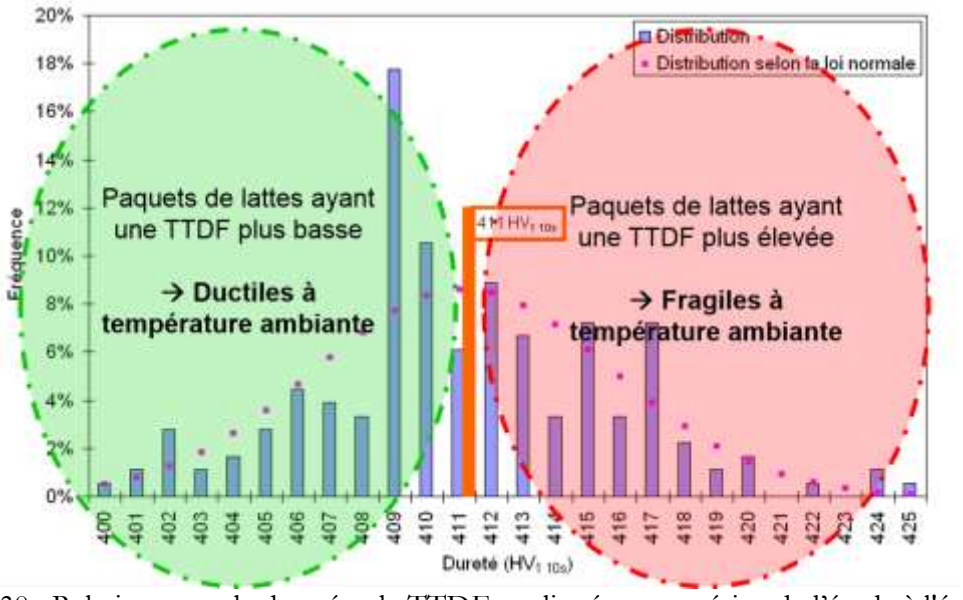


Figure 130 : Relation entre la dureté et la TTDF appliquée au matériau de l'étude à l'état de réception

En faisant l'hypothèse que les paquets de lattes les plus durs et donc les plus fragiles sont assimilables aux inclusions invoquées dans l'amorçage de la rupture fragile (tels les MnS et les carbures), ces paquets de lattes peuvent être ainsi assimilés à des sites d'amorçage de clivage. De ce fait, la taille élémentaire des défauts serait alors de 20 µm. La population de paquets de lattes ayant la dureté la plus élevée constituerait les sites pouvant amener la rupture par clivage du matériau. L'étalement de la courbe de transition Ductile-Fragile pourrait alors résulter de la distribution spatiale de zones dures/fragiles et de zones molles/ductiles.

Synthèse

Ces différentes études ont été effectuées dans le but de trouver les causes des hétérogénéités de comportement mécanique observées à l'état de réception. Nous avons pu montrer ainsi que l'essai de dureté permet de statuer sur, aussi bien l'homogénéité du matériau que sur le niveau de contraintes résiduelles, grâce à une charge appliquée réduite et à un échantillonnage important.

Ces essais ont ainsi montré qu'en fonction de la vitesse de refroidissement lors de la trempe, l'homogénéité du matériau au niveau du comportement mécanique peut être changée. Au cours d'un refroidissement rapide, des contraintes résiduelles importantes peuvent persister et influent sur l'écart type de la distribution des valeurs de dureté. De plus, il est raisonnable de penser que les points de transformations changent avec la vitesse de refroidissement. De l'austénite résiduelle peut être ainsi présente en fin de trempe après un refroidissement suffisamment rapide.

Au cours du traitement de revenu, une partie de ces contraintes sont accommodées par le matériau. Toutefois, la précipitation du cuivre engendre elle aussi une inhomogénéité de comportement mécanique. Des essais de revenu sous contrainte montrent qu'une contrainte externe n'agit pas forcément sur la distribution des valeurs de dureté, mais plus sur sa valeur moyenne. Cette baisse de dureté peut être expliquée aussi bien par un survieillissement des précipités de cuivre que par une précipitation d'austénite de réversion assistée par la contrainte.

On peut déduire de ces essais, que les contraintes résiduelles issues du refroidissement à l'air après l'austénitisation, peuvent localement influencer l'état métallurgique de l'alliage. Ceci peut induire par la suite une hétérogénéité du comportement mécanique de l'alliage. En réduisant la taille des éprouvettes de traction, ces hétérogénéités sont révélées.

D'autres hypothèses peuvent expliquer l'hétérogénéité de comportement mécanique de l'alliage, comme la présence de macro zones ou de ferrite delta. Toutefois, ces deux hypothèses n'ont pu être confirmées dans ces travaux.

En faisant l'analogie entre paquets de lattes les plus durs et inclusions invoquées dans l'amorçage de la rupture par clivage, le matériau est ainsi vu comme une distribution spatiale de température de transition ductile fragile. Ces paquets de lattes les plus durs/fragiles peuvent être ainsi des sites d'amorçage de clivage.

2. Vieillissement sans contrainte appliquée

2.1. Localisation du durcissement

Lors de la présentation du matériau, des essais de nano indentation en utilisant la méthode CSM ont été effectués afin de s'intéresser au comportement mécanique des différents éléments de microstructure. Nous avons procédé de même ici sur un échantillon vieilli, pour des indentations allant de 50 nm à 5 µm de profondeur. Le but de ces essais était de préciser l'échelle à laquelle le durcissement dû à la décomposition spinodale se produisait. Les résultats obtenus sur un échantillon vieilli 11 300 h à 350°C sont répertoriés dans la Figure 131.

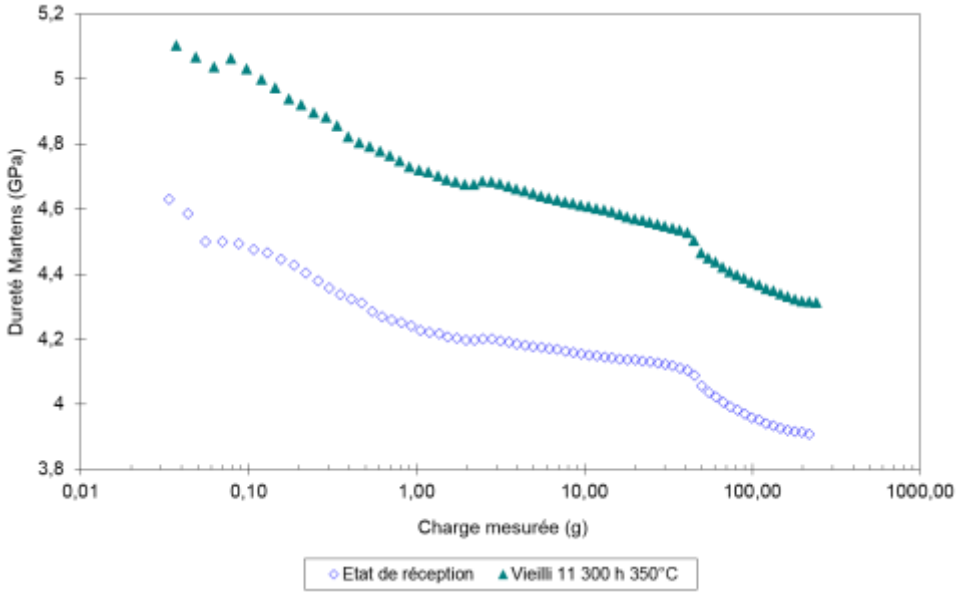


Figure 131 : Evolution du comportement en nano dureté du 15 5 PH après vieillissement

Ces résultats montrent que le comportement du matériau, en fonction de la charge appliquée, reste identique qu'il soit à l'état de réception ou à l'état vieilli. La dureté se stabilise à partir des charges d'environ 200 g. En dessous de cette charge, la dureté augmente, phénomène révélateur de l'effet ISE exposé plus tôt dans le manuscrit. Le vieillissement implique uniquement un décalage vers les valeurs de dureté les plus hautes de la courbe caractéristique du matériau. La décomposition spinodale affecte la globalité du matériau, en ne privilégiant aucune échelle de microstructure.

2.2. Etude de la microstructure

Dans le chapitre précédent, le vieillissement a été suivi grâce à des essais de dureté. Ces essais montrent que, pour les trois températures d'essais, l'évolution de la dureté se passe en deux voire trois stades :

- durant le premier stade de vieillissement, une forte augmentation de la dureté est mesurée. Celle-ci correspond à environ la moitié du durcissement final mesuré. Ce stade dure 2 000 h, 1 000 h et 500 h pour les températures de vieillissement de 290°C, 350°C et 370°C respectivement. Il est grandement influencé par l'état métallurgique initial du matériau.
- lors du deuxième stade de vieillissement, l'augmentation de la dureté est quasiment linéaire avec le temps, indépendamment de la température de vieillissement et de l'état métallurgique initial.

- pour les vieillissements réalisés à 350°C, lors des 5 000 dernières heures de vieillissement, une stabilisation de la dureté a été observée.

Pour expliquer ces différents stades de vieillissement, une étude de la microstructure après vieillissement est nécessaire. Celle-ci constitue le sujet de la thèse de Laurent Couturier au SIMAP à Grenoble (38), thèse faisant partie du programme PREVISIA. Lors de cette thèse, différents moyens de caractérisation ont été utilisés afin de caractériser les évolutions microstructurales liées au vieillissement des aciers : la Sonde Atomique Tomographique (SAT), la diffusion de neutrons à petits angles (SANS) et la diffusion des rayons X aux petits angles (SAXS). Ces deux dernières techniques présentent l'avantage de pouvoir s'intéresser à la fois au suivi de l'évolution de la décomposition spinodale mais aussi des précipités de cuivre, et d'analyser un volume de matière plus important comparativement à la SAT.

2.2.1. Evolution de la décomposition spinodale

Dans la littérature, différents auteurs se sont intéressés au phénomène de décomposition spinodale dans d'autres systèmes. Effectivement, le gros inconvénient du système Fe-Cr est le fait qu'il faille des équipements lourds et des durées de vieillissement longues afin d'observer la décomposition spinodale. Dans les années 60-70, la décomposition spinodale a été très étudiée sur des systèmes Al-Zn [3] [4], Cu-Ni [5], Cu-Ni-Fe [6] [7] et Cu-Ni-Cr [8] entre autres, présentant un intérêt académique à la fois pour l'étude de la cinétique mais aussi celui, non négligeable, de pouvoir observer ce mécanisme de démixtion par MET et DRX. Les informations tirées de ces études permettent d'expliquer les résultats précédents.

Ainsi, Saunderson et. al. [8] se sont intéressés à la décomposition spinodale dans le système Cu-Ni-Cr, pour différentes teneurs en éléments d'alliage afin de se déplacer dans la lacune de miscibilité. Leur conclusion, quant au vieillissement de ces alliages, est qu'il existe 5 phases de vieillissement. Celles-ci sont résumées dans le Tableau 21.

Phase	Caractéristique	Longueur d'onde	Percolation	Taille de précipités
1	Décomposition spinodale	Constante	Haute	Pas applicable
2	Inter connectivité	En augmentation	Très haute	Pas applicable
3	Dégénération	Constante	Décroissante	Pas applicable
4	Coalescence de particules	Pas applicable	Pas applicable	En augmentation
5	Incohérence des interfaces	Pas applicable	Pas applicable	En augmentation (+ coalescence)

Tableau 21 : Différentes phases dans le vieillissement d'alliage type Cu-Ni-Cr d'après Saunderson et. Al .

Nous allons maintenant revenir de manière plus détaillée sur les différentes phases. Toutefois, il faut noter un élément commun à toutes ces phases : elles ne sont que la manifestation de la diminution progressive de l'énergie d'interface par la diffusion.

- Phase 1 : cette phase correspond à proprement parler à la décomposition spinodale. Il n'est alors pas étonnant de ne pas voir d'évolution de la longueur d'onde des variations de chrome dans le cas d'un alliage Fe-Cr durant cette étape. Effectivement, comme expliqué par Cahn, la décomposition spinodale se traduit par une variation périodique de concentration en un élément donné avec une longueur d'onde dépendant uniquement de

la température. Au cours de ce phénomène, seule l'amplitude des variations de concentration augmente. Ces zones riches en chrome restent connectées entre elles.

- Phase 2 : durant cette phase, il y a augmentation de la longueur d'onde. Cette augmentation est liée à la coalescence des zones riches en chrome issues de la décomposition spinodale. Différents mécanismes sont proposés afin d'expliquer cette coalescence :
    - La coalescence discontinue : le long d'une interface mobile et incohérente, les atomes se redistribuent afin de créer des zones riches avec des paramètres différents
    - La coalescence harmonique : des zones riches en atomes se créent pour des valeurs de longueur d'ondes multiples de la longueur d'onde initiale, soit des harmoniques
    - La coalescence continue : celle-ci correspond à une augmentation progressive de la longueur d'onde par un déplacement en continu des atomes

  L'augmentation de la longueur d'onde suit une loi puissance d'exposant 1/3 avec la durée de vieillissement, révélateur d'un phénomène de diffusion en volume.
- Phase 3 : la longueur d'onde atteint un maximum et se stabilise lorsque la phase 3 est atteinte. En effet, l'espacement entre atomes devient trop important pour qu'il y ait interaction entre les différentes zones. De plus, la percolation diminue. Il y a isolement progressif des zones riches en un élément donné, ce qui va donner à la fin de cette phase des ilots isolés, avec des gradients de concentration locaux très importants.
- Phases 4 & 5 : les ilôts riches en éléments formés auparavant sont maintenant complètement isolés. Des particules sont formées, grossissent et coalescent.

Ces différentes phases ne sont le témoin que de différents régimes de diffusion, commençant par une réponse à la sursaturation de la matrice, puis, toujours en voulant diminuer l'énergie du système, à la formation progressive de zones riches de plus en plus isolées, pour enfin finir par des particules totalement isolées, avec une interface définie. Cette représentation semble bien expliquer l'évolution de la microstructure avec le temps. L'apparition des différentes phases est sujette à la position dans la lacune de miscibilité. Ainsi, lorsque l'alliage se trouve sur une des extrémités, la toute première phase peut être très courte. La Figure 132 présente une schématisation de cette séquence de vieillissement.

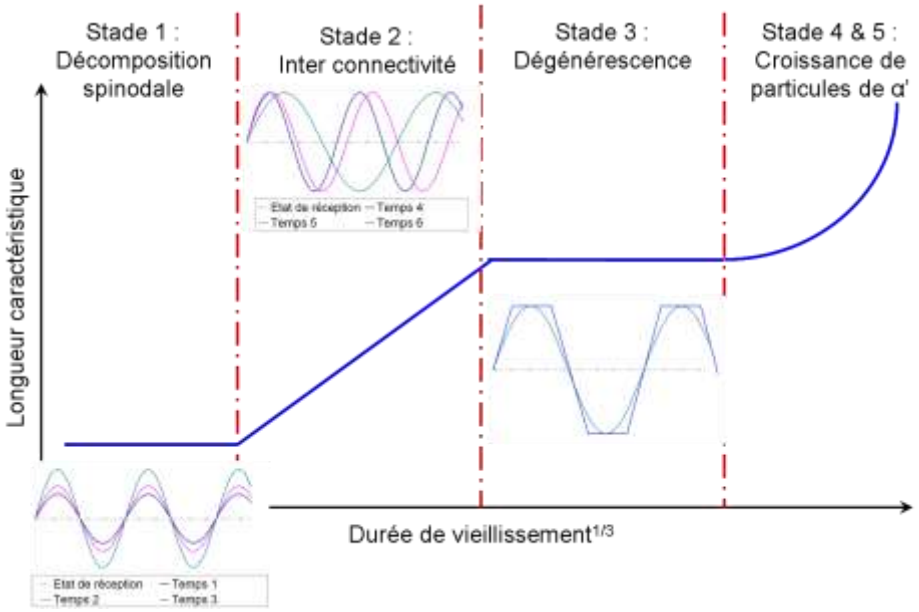


Figure 132 : Représentation du modèle proposé par Saunderson

2.2.2. *Evolution des précipités de cuivre*

La précipitation du cuivre a été analysée par SANS, afin de caractériser le rayon moyen des précipités ainsi que leur fraction volumique. Les données obtenues pour les trois températures de vieillissement sont visibles dans les Figure 133 , 8 et 9..

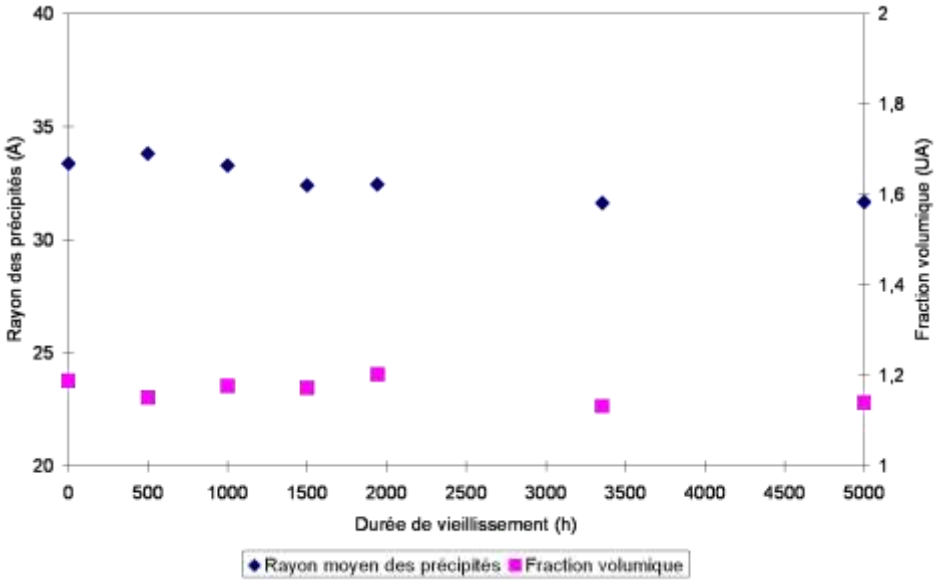


Figure 133 : Evolution des précipités de cuivre au cours du vieillissement à 290°C

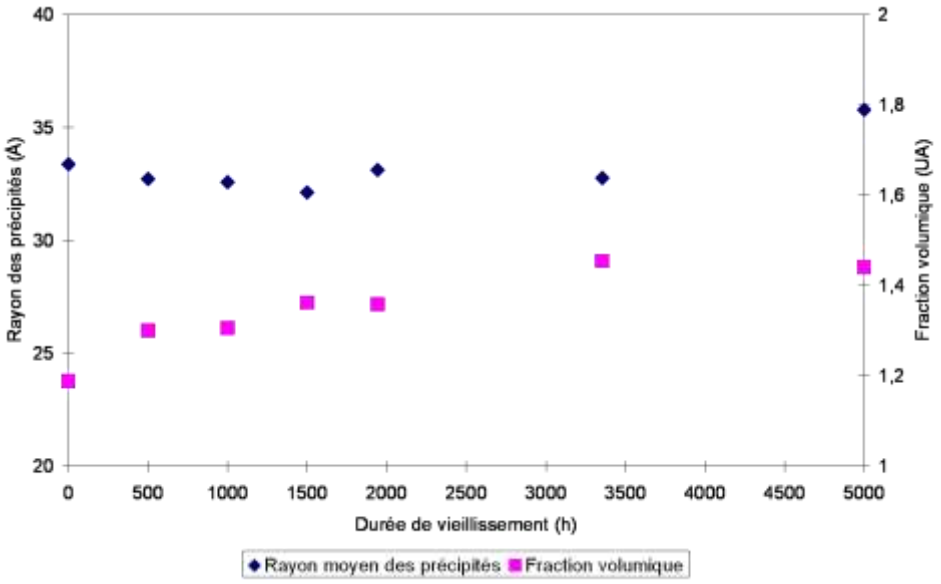


Figure 134 : Evolution des précipités de cuivre au cours du vieillissement à 350°C

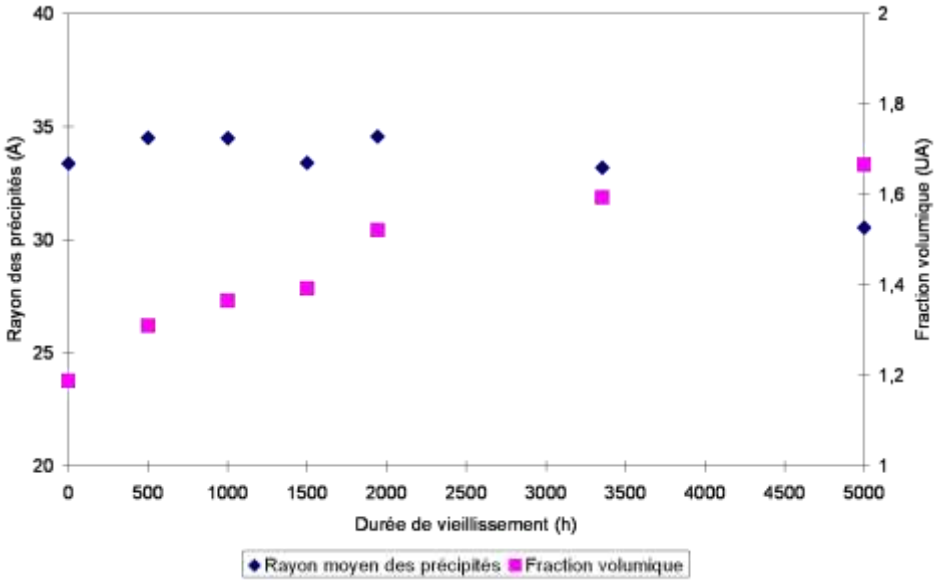


Figure 135 : Evolution des précipités de cuivre au cours du vieillissement à 370°C

Les résultats obtenus après vieillissement à 290°C indiquent que la taille moyenne comme la fraction volumique des précipités n'évoluent quasiment pas. Il semble donc que malgré la sursaturation importante de la matrice en cuivre, le complément de précipitation qui ramènerait le système proche de l'équilibre n'est pas observé via ce type d'analyse

L'exploitation des résultats obtenus suite aux vieillissements effectués à 350 et 370°C met en évidence deux comportements :

- une diminution du rayon moyen des précipités de cuivre avec le vieillissement
- une augmentation de la fraction volumique des précipités de cuivre au cours du vieillissement

Après vieillissement à 290°C, l'évolution des paramètres est faible. Les précipités ne semblent pas évoluer au cours du vieillissement.

Ces deux phénomènes suggèrent que la sursaturation en cuivre, encore importante à ces deux températures, semble cette fois donner lieu à une évolution de l'état de précipitation du cuivre. La diminution du rayon des précipités de cuivre conjointement à l'augmentation de leur fraction volumique peut être expliquée via la formation d'un complément de précipitation significatif générant des précipités de très petites tailles qui, du point de vue de l'analyse, réduisent la valeur de la taille moyenne. Après le traitement de revenu, nous observons une population de précipités de cuivre dont le rayon moyen est d'environ 3 nm. Ces précipités ont été formés à 505°C du fait de la sursaturation en cuivre dans la matrice après la trempe de l'alliage. La diminution du diamètre moyen constatée à l'issue du vieillissement suggère que la matrice se dé-sature plutôt par précipitation que par un complément de croissance des précipités existants. L'apparition d'une nouvelle population de précipités de cuivre, de très petites tailles et en nombre suffisamment important pour influencer à la fois le rayon moyen et la fraction volumique des précipités de cuivre du matériau semble donc caractériser cette composante du vieillissement.

Cette précipitation complémentaire a lieu aussi bien pour le 15 5 PH 1200 MPa que pour le 15 5 PH 1070 MPa. Toutefois, pour ce dernier état métallurgique, son influence sur la dureté est beaucoup plus importante. En effet, lorsque l'on compare les cinétiques de vieillissement des deux états métallurgiques, après le premier stade de vieillissement, les cinétiques de vieillissement associées aux deux états métallurgiques sont quasiment identiques. Cependant, durant le premier stade, l'augmentation de dureté est plus importante dans le cas du 15 5 PH 1070 MPa. Pour cet état métallurgique, les précipités de cuivre, après revenu à 550°C, ont un rayon moyen supérieur à 3.5 nm, d'après les mesures SAXS. Cette augmentation de taille explique parfaitement l'évolution des propriétés mécaniques entre les deux états métallurgiques. Les précipités de cuivre sont donc

« moins durcissants » lorsqu'ils sont formés à plus haute température. Ces résultats corroborent ceux obtenus par Habibi sur le même alliage [9]. Dans un second temps, il n'est pas alors surprenant de voir que la précipitation complémentaire de cuivre de petite taille a un fort effet durcissant sur l'alliage.

2.2.3. Interaction décomposition spinodale et précipitation de cuivre

Il est probablement très difficile de découpler la décomposition spinodale et la précipitation du cuivre.

En effet, lors du traitement de revenu, la précipitation du cuivre induit indirectement une augmentation de la concentration en chrome dans la matrice martensitique de l'alliage. En effet, un calcul rapide montre, en posant comme hypothèse un matériau de composition Fe-Cr (15 % wt)- Ni (5 % wt)-Cu (3 % wt) et une précipitation totale du cuivre après revenu, hypothèse contestable compte tenu du paragraphe précédent, une augmentation de 0.5 point de la concentration en chrome dans la matrice. Celle-ci va donc accroitre la sursaturation en chrome de l'alliage, et probablement agir sur la force motrice de la décomposition spinodale.

De plus, en précipitant, le cuivre rejette du nickel, qui forme une couronne autour des précipités de cuivre, comme montré par Murayama [10]. Cet élément a tendance à augmenter la vitesse de la décomposition spinodale. Effectivement, le nickel ne joue pas sur l'énergie d'activation de la diffusion du chrome dans une matrice Fe-Cr de 10 à 20% de chrome, mais va plutôt jouer sur le terme pré-exponentiel dans une relation de type Arrhenius [11]. Indirectement donc, la précipitation du cuivre va de nouveau influer sur la cinétique de la décomposition spinodale.

Pour les mêmes raisons, lorsque le complément de précipitation de cuivre se produit lors du vieillissement, la décomposition spinodale déjà en place dans l'alliage va s'en trouver encouragée.

Ainsi on peut décrire le premier stade de vieillissement, en couplant l'effet durcissant du complément de précipitation du cuivre au durcissement induit par la décomposition spinodale. Bien entendu une fois la matrice dé-saturée en cuivre c'est la décomposition spinodale qui contrôle l'évolution de dureté. Il ne faut cependant pas ignorer ici l'éventuelle contribution adoucissante de l'austénite de réversion. Cet éventuel effet de l'austénite de réversion sera discuté dans la partie suivante.

Afin d'étudier l'effet du cuivre sur la décomposition spinodale, des échantillons trempés ont été vieillis, sans traitement de revenu, à 290, 350 et 370°C pendant 500 et 1 000 h. Les résultats des essais de dureté sont consignés dans le Tableau 22. Une forte augmentation de la dureté est observée après les différents vieillissements. Après 1 000 h à 290 et 370°C, la dureté augmente de 44 HV et de 189 HV respectivement. Cette évolution est beaucoup plus importante que pour les vieillissements effectués après traitement de revenu.

	Dureté	Incrément de dureté
Trempé	313	0
Trempé + 500 h à 290°C	344	+31
Trempé + 1 000 h à 290°C	357	+44
Trempé + 500 h à 350°C	434	+121
Trempé + 1 000 h à 350°C	466	+153
Trempé + 500 h à 370°C	486	+173
Trempé + 1 000 h à 370°C	502	+189

Tableau 22 : Evolution de la dureté sur matériau trempé et vieilli à 290, 350 et 370°C

Afin d'observer une éventuelle précipitation de cuivre, ces échantillons ont été observées en utilisant le MET. Toutefois, il n'a pas pu être observé directement de précipités de cuivre sur

aucun des échantillons. Afin de caractériser l'état métallurgique de l'alliage après ces vieillissements, les échantillons vieillis 1 000 h ont été analysés par ATD. Les résultats sont reportés sur la Figure 136, pour une montée en température de 5 °C/min.

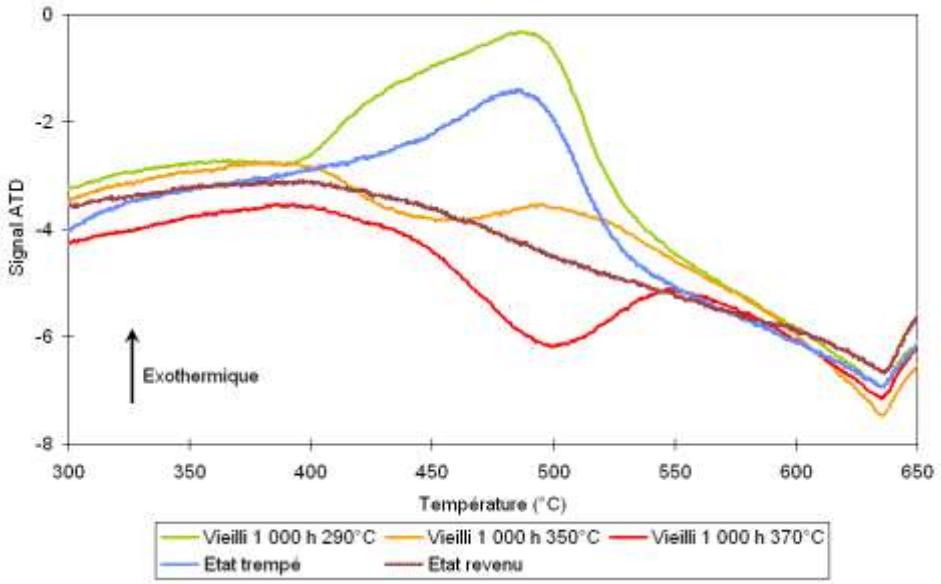


Figure 136 : Courbes ATD obtenues pour une vitesse de chauffe de 5°C/min pour les matériaux vieillis 1 000 h aux trois températures de l'étude directement après trempe. Les courbes obtenues pour le matériau trempé et le matériau revenu sont aussi représentées

Avant de s'attarder sur les résultats obtenus sur les échantillons vieillis, rappelons les caractéristiques du pic exothermique attribué à la précipitation du cuivre, différence entre la courbe bleue et la courbe marron sur la figure. A cette vitesse de chauffage, en régime dynamique donc, la précipitation du cuivre commence à environ 370°C pour se terminer autour de 550°C.

Après vieillissement à 290°C, un pic exothermique est observé entre 400 et 550°C. Ce pic est vraisemblablement associé à la précipitation du cuivre, puisqu'un pic relativement identique est observé sur le matériau trempé dans la même gamme de température. Toutefois, le pic du matériau vieilli présente un changement de concavité autour de 400°C, non observé sur le matériau trempé. Cet évènement peut être interprété comme un pic endothermique, caractéristique de la remise en solution des atomes de Cr et de Fe après décomposition spinodale [33] [28]. A cette température de vieillissement, le cuivre n'a pu précipiter, mais la décomposition spinodale a eu lieu.

Aux deux autres températures de vieillissement, c'est-à-dire 350 et 370°C, il est observé un pic endothermique, qui devient plus important et décalé vers les températures les plus hautes avec l'augmentation de la température de vieillissement. Ces pics sont révélateurs de la réversion de la décomposition spinodale. A ces températures, il n'a pas été observé de pic exothermique signe de la précipitation du cuivre lors du cycle d'analyse ATD, signifiant que la précipitation du cuivre a eu lieu et s'est terminée lors du vieillissement. Le fait de ne pas observer de précipitation de cuivre en microscopie électronique provient surement du fait de la taille trop petite des particules.

Nous proposons le scénario suivant afin d'expliquer les résultats observés en ATD. Dans un premier temps, seule la décomposition spinodale a lieu, le temps d'incubation de la précipitation du cuivre n'ayant pas été atteint. En effet, une des caractéristiques de la décomposition spinodale est son absence de temps d'incubation. En d'autres termes, une fois la température de vieillissement atteinte, la décomposition spinodale de la matrice commence. Par contre, les analyses ATD réalisées à la vitesse de chauffage de 5°C/min montrent que la précipitation de cuivre ne commence pas avant 370°C en régime dynamique. En régime stationnaire, un temps d'incubation est nécessaire avant de précipiter le cuivre. Lorsque celui-ci a été atteint, la

précipitation du cuivre démarre, augmentant la sursaturation du chrome au fur et à mesure de la précipitation. Au final, après 1 000 h de vieillissement, on obtient un incrément de dureté beaucoup plus important que pour un matériau revenu puis vieilli. La dureté obtenue après 1 000 h de vieillissement à 370°C est supérieure à celle obtenue après vieillissement 15 000 h à 350°C. Ces résultats tendent à montrer la synergie entre le chrome et le cuivre pendant la décomposition spinodale.

2.2.4. Austénite de réversion

La diffraction des Rayons X, en utilisant un faisceau synchrotron, a été utilisée afin de quantifier l'austénite de réversion dans l'alliage à l'état de réception. Une évolution de la quantité d'austénite de réversion est observée tout au long du vieillissement. Nous rappelons ici que l'austénite, compte tenu de sa dureté propre, a tendance à adoucir le matériau, c'est-à-dire, diminuer sa dureté, la position de la TTDF et augmenter sa ductilité. Cet effet a été montré par J.M. Cloué et E. Herny au cours de leurs travaux respectifs sur le PH 13 8 Mo et le 15 5 PH. Dans le cas du 15 5 PH, E.Herny avait également pu observer une augmentation de la ductilité du matériau pour des vieillissements effectués à 400°C. Les résultats de ces dosages sont visibles sur la Figure 137. Les échantillons analysés avaient une épaisseur d'environ 1 mm et le faisceau synchrotron avait un diamètre de l'ordre de 200 µm.

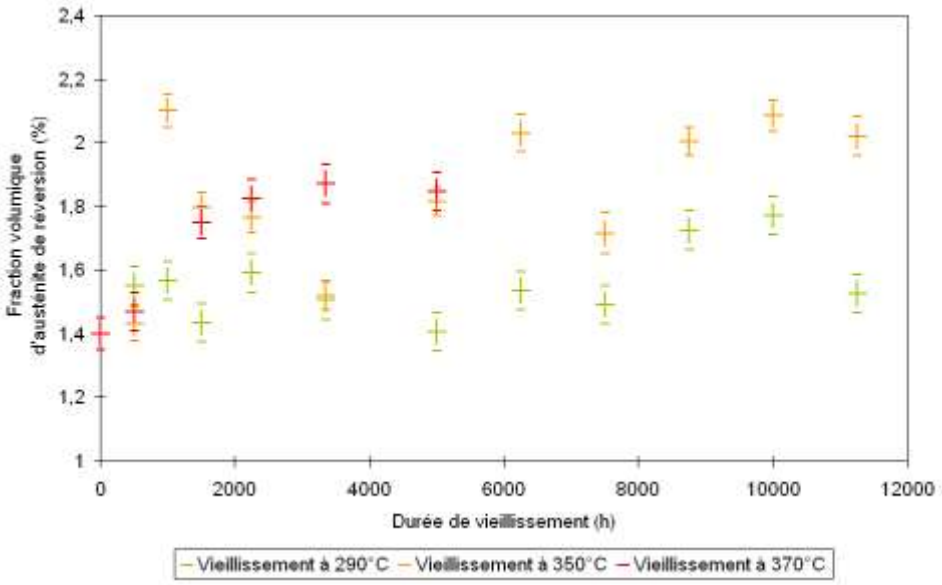


Figure 137 : Evolution de la fraction volumique d'austénite de réversion au cours du vieillissement

A 290°C, le vieillissement n'induit pas d'augmentation significative de la fraction volumique l'austénite de réversion. En revanche, à 350 et 370°C, celle-ci augmente avec le vieillissement. Après 5 000 h à 370°C, elle est passée de 1.4 % à 1.8 % et après 10 000 de vieillissement à 350°C à pratiquement 2 %.

L'évolution de la teneur en austénite de réversion est néanmoins assez faible dans le cas du 15 5 PH à ces températures de vieillissement. Néanmoins, nous allons essayer de rapprocher ces résultats de dosage d'austénite de réversion des valeurs de dureté mesurées, Figure 138.

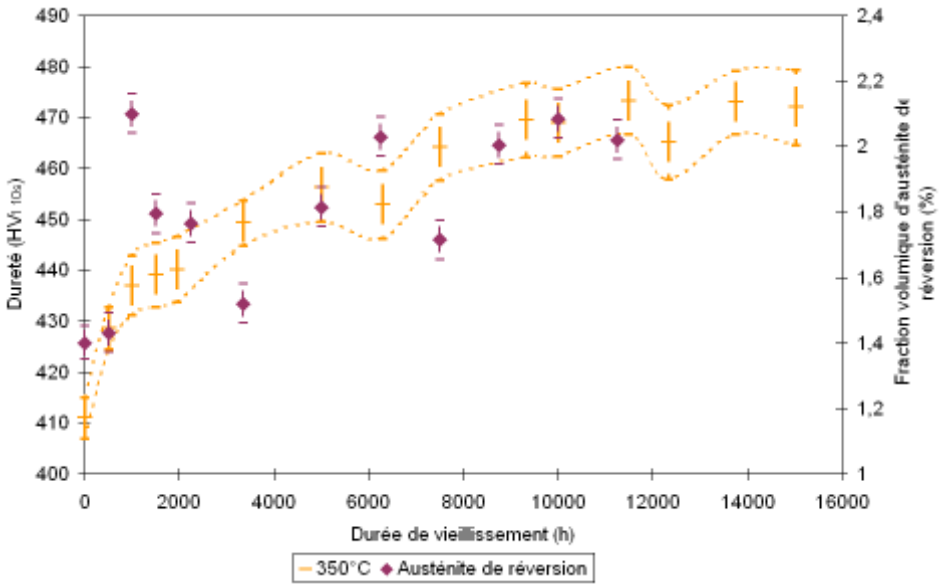


Figure 138 : Evolution de la dureté et de la fraction volumique d'austénite de réversion au cours du vieillissement à 350°C

Nous remarquons ainsi qu'il y a une certaine concordance entre les évolutions de dureté et celles d'austénite de réversion. Afin de voir s'il y a un lien direct entre ces deux évolutions, considérons que la dureté de l'alliage est égale à la somme de la dureté de l'austénite de réversion et de celle du complexe martensite, précipités de cuivre et décomposition spinodale en cas de vieillissement, chacun pondéré par sa fraction volumique, soit :

$$HV_{total} = f_{Mart+Cu+Spino}\, HV_{Mart+Cu+Spino} + f_{\gamma rev} HV_{\gamma rev} = (1-f_{\gamma rev})\, HV_{Mart+Cu+Spino} + f_{\gamma rev}\, HV_{\gamma rev}$$

En connaissant la dureté de l'alliage ainsi que la fraction volumique d'austénite de réversion à l'état de réception, et en prenant la dureté de l'austénite égale à 250 HV, la dureté du complexe martensite et précipités de cuivre vaut, à l'état de réception, 413.3 HV. Le Tableau 23 montre la dureté de l'alliage calculée avec ces données, en faisant varier la fraction d'austénite de réversion.

Fraction d'austénite de réversion (%)	Dureté calculée (HV)
1	411.7
1.4	411.0
1.5	410.9
1.8	410.4
2	410.0

Tableau 23 : Variation de la dureté en fonction de la teneur en austénite de réversion selon la loi de mélange proposée

Ce petit modèle permet ainsi de montrer que l'effet de l'austénite de réversion sur le comportement en dureté est très faible. Des variations de l'ordre de 0.1 % de la fraction volumique en austénite de réversion influent ainsi la dureté de l'ordre de 0.1 HV. Les variations de fraction d'austénite de réversion mesurées ne permettent pas d'expliquer l'augmentation non monotone de la dureté avec la durée de vieillissement.. Ceci peut être expliqué par le fait que les températures de vieillissement restaient relativement basses et que de plus, le 15 5 PH ne contient que 5 % de nickel, élément gamma gène.

2.3. Relation entre évolution de la microstructure et comportement en dureté

Il est ainsi intéressant de voir qu'après le premier stade de vieillissement, les évolutions de ces deux grandeurs sont linéaires. En partant de l'hypothèse évoquée auparavant que la précipitation complémentaire du cuivre est terminée après le premier stade de vieillissement, nous pouvons donc évaluer le durcissement engendré par la décomposition spinodale au cours du temps, celle-ci étant linéaire dans le deuxième stade de vieillissement. Ainsi, en extrapolant par la suite ce durcissement sur les temps les plus courts, il est possible de déconvoluer l'effet de la décomposition spinodale et du complément de précipitation du cuivre sur le comportement en dureté du matériau. Cette démarche est représentée sur la Figure 139.

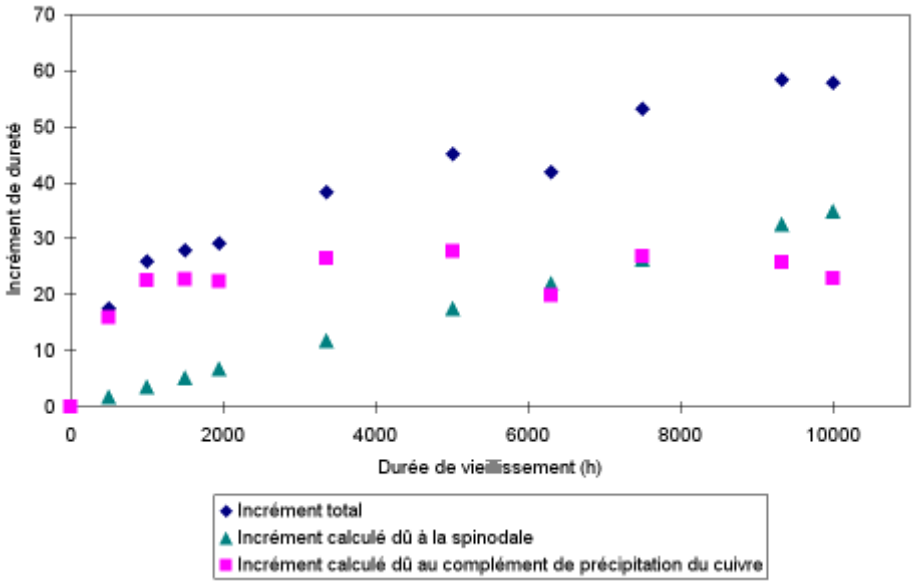


Figure 139 : Part de chaque phénomène dans l'évolution du comportement en dureté du matériau

Cette analyse permet ainsi de voir qu'après vieillissement à 350°C, le complément de précipitation de cuivre apporte un durcissement supplémentaire de l'ordre de 22 $HV_{1\ 10s}$. La limitation de cette analyse est qu'il n'est pas prouvé, lors de la première phase de durcissement et donc de l'augmentation de l'amplitude des variations de concentration, que la variation de dureté induite par la décomposition spinodale reste linéaire. Toutefois, lors de la deuxième phase de durcissement, l'amplitude est maximale. Donc, il semblerait, par cette méthode, que nous surévaluions la part de la décomposition spinodale. Une approche similaire a été effectuée sur les échantillons vieillis à 370°C. Les résultats montrent que le durcissement induit par le complément de précipitation de cuivre est de18 $HV_{1\ 10s}$. A 290°C, vu les résultats obtenus dans le paragraphe 2.2.3 et le fait que l'augmentation de dureté soit indépendante de l'état métallurgique, il n'y a pas de complément de précipitation de cuivre. L'analyse faite dans cette partie n'est pas transposable à ce cas.

La phase 3 du vieillissement, correspondant à la dégénérescence de la décomposition spinodale semble être atteinte après 10 000 h de vieillissement à 350°C, puisque la dureté n'évolue plus. Cette phase de dégénérescence du vieillissement peut être associée à une dé-percolation progressive conduisant à la formation de la phase alpha prime. Cependant, à l'heure de la rédaction de ce manuscrit, les mesures pouvant confirmer cette hypothèse n'ont pas encore été faites.

Ces différentes observations permettent de montrer la richesse des informations que l'essai de dureté peut amener. Une schématisation des résultats de dureté avec les différents stades de

vieillissement est proposée sur la Figure 140. Les stades 4&5 n'ont pas été atteints pour les temps et températures étudiés durant cette thèse. Néanmoins, une forte augmentation de la dureté après une phase de stabilisation a été mise en évidence par J.M. Cloué lors de ses travaux sur certaines coulées de PH 13 8 Mo.

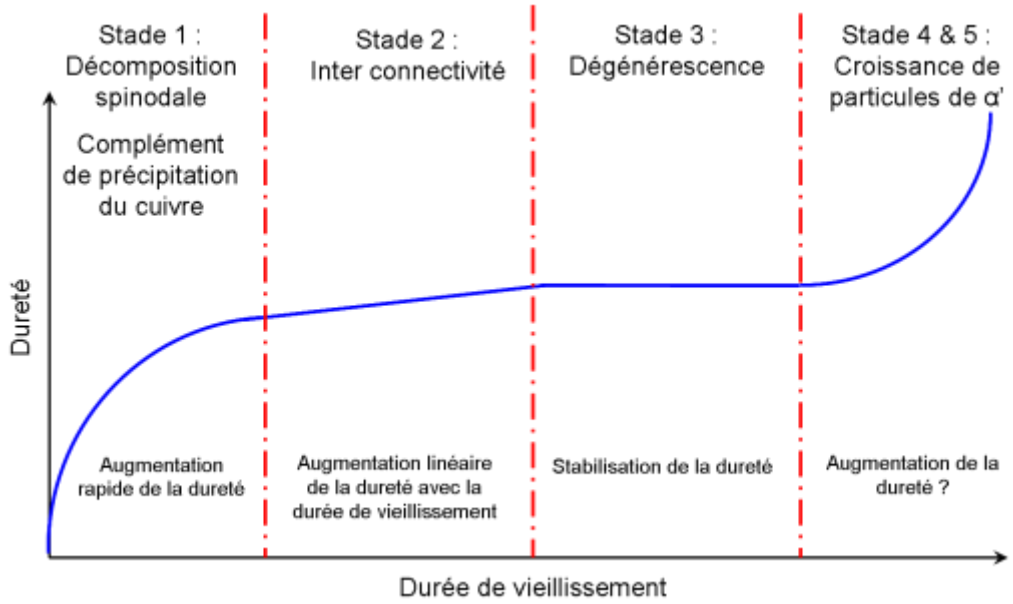


Figure 140 : Evolution de la dureté en fonction des différents stades de vieillissement

2.4. Relation dureté, comportement en traction, TTDF

Plusieurs études ont montré l'importance de l'essai de dureté dans la mesure où plusieurs relations empiriques permettent de relier la variation de dureté avec la variation de limite d'élasticité et de température de transition ductile fragile [28] [21] [22]. Dans la présente étude, les relations liant ces différents paramètres pour des vieillissements effectués à 290 et 350°C ont été identifiées. Pour les vieillissements à 370°C, n'ayant que deux points expérimentaux, ces relations n'ont pas été déterminées. De plus, les relations n'ont été calculées que pour des vieillissements allant jusqu'à 10 000 h. En effet, par la suite, la dureté n'évolue plus, mais les autres grandeurs, telles que Re et la TTDF continuent d'évoluer.

Les représentations de variations de limite d'élasticité et de température de transition ductile fragile pour les vieillissements à 290°C et 350°C sont représentées sur la Figure 141 et la Figure 142.

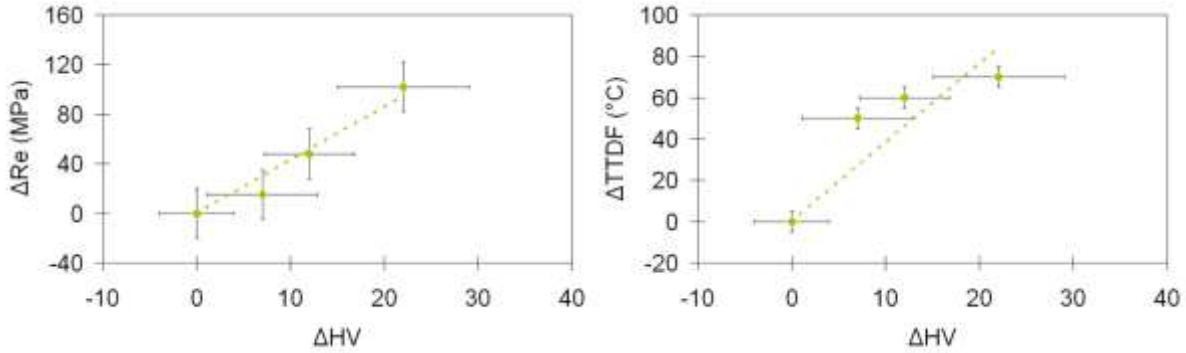


Figure 141 : Relation entre l'augmentation de dureté et l'augmentation de la limite d'élasticité et de la température de transition ductile fragile après vieillissement à 290°C jusqu'à 10 000 h

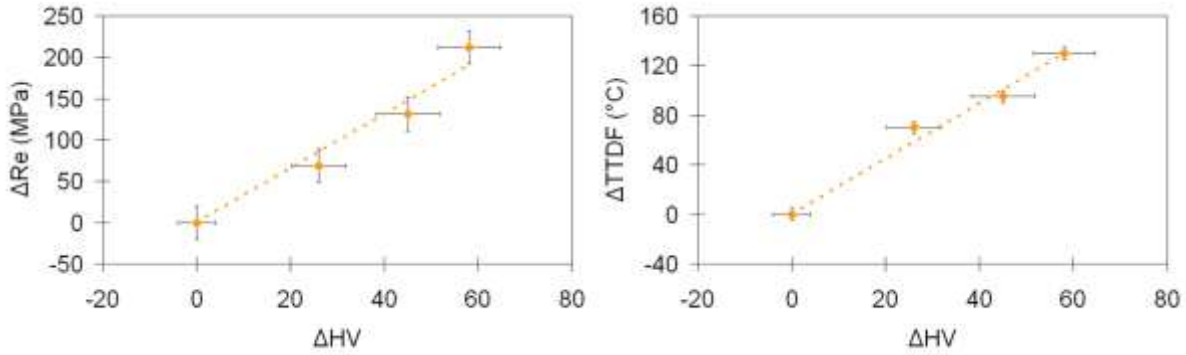


Figure 142 : Relation entre l'augmentation de dureté et l'augmentation de la limite d'élasticité et de la température de transition ductile fragile après vieillissement à 350°C jusqu'à 10 000

Ainsi, à 290°C, on obtient $\Delta Re = 4.3\ \Delta HV$ et $\Delta TTDF = 3.9\ \Delta HV$ et à 350°C on obtient $\Delta Re = 3.3\ \Delta HV$ et $\Delta TTDF = 2.2\ \Delta HV$. Ces relations sont proches de celles proposées par Herny dans ses travaux [28] et de Yirieix [22]. De plus, la résistance maximale à la traction peut être déterminée grâce à la relation empirique $Rm = 3\ HV$ [1]. Ces relations montrent l'importance de l'essai de dureté. En effet, il permet d'accéder à des grandeurs caractéristiques du comportement mécanique de l'alliage, du moins en traction et en résilience.

2.5. Evolution de la distribution de dureté au cours du vieillissement à 350°C

L'écart type de la distribution de dureté évolue au fur et à mesure du vieillissement, en augmentant significativement dans un premier temps puis en se stabilisant, après 10 000 h de vieillissement tout comme les valeurs de dureté, Figure 63. La valeur de l'écart type fournit effectivement une information sur la dispersion des résultats en supposant que les valeurs de dureté suivent une loi normale. Pour des vieillissements effectués à 350°C jusqu'à une durée de 10 000 h, les valeurs de dureté suivent effectivement une loi normale, Figure 143.

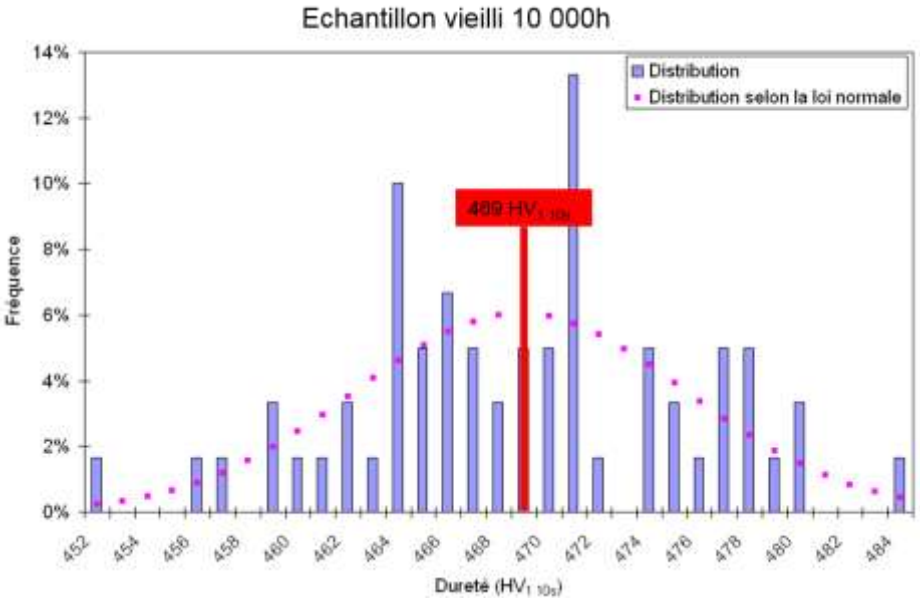


Figure 143 : Distribution des valeurs de dureté obtenues sur un échantillon vieilli 10 000 h à 350°C

Néanmoins, lorsque l'on s'intéresse à la dispersion réelle des échantillons vieillis plus longtemps, il a été observé que celle-ci ne suivait plus une loi normale, Figure 144. On voit apparaître ainsi deux populations de paquets de lattes: des paquets de lattes mous et des paquets de lattes durs.

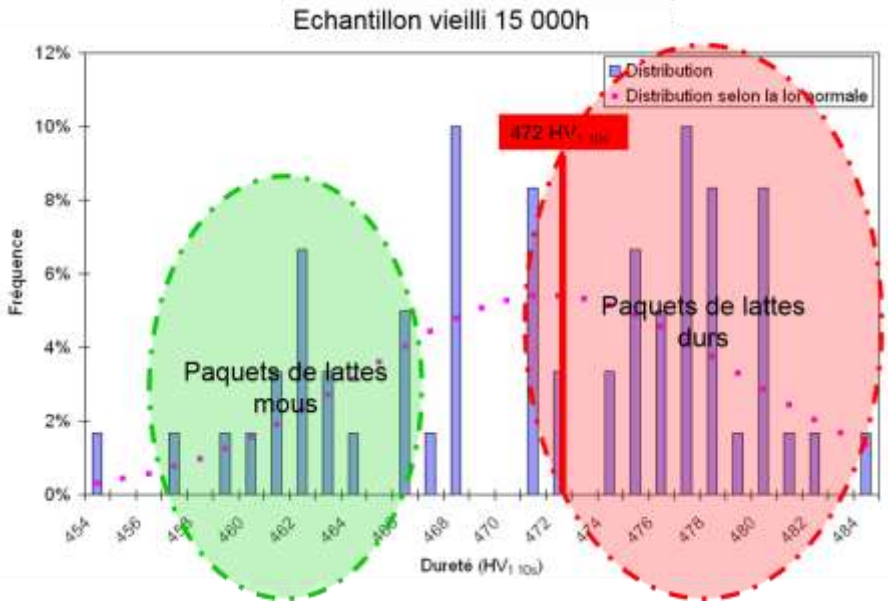


Figure 144 : Distribution des valeurs de dureté obtenues sur un échantillon vieilli 15 000 h à 350°C

Les valeurs moyennes ainsi que les écarts types semblent identiques entre ces deux conditions de vieillissement. Cependant, à la double distribution présentée sur la figure 144 ne peut être associée un seul écart type. Ainsi, en reprenant l'approche évoquée dans la partie 1.3 de ce même chapitre, cette forme de distribution suggère une plus grande concentration spatiale de zones fragiles. En toute logique, ce matériau devrait être plus fragile et donc devrait avoir une température de transition ductile fragile plus élevée que celle du matériau vieilli 10 000 h. Au vu des résultats des essais Charpy, Tableau 17, on constate que la TTDF continue d'augmenter malgré le fait que la dureté se stabilise. Ce résultat donne du sens à l'interprétation proposée ci-dessus assimilant les paquets de lattes les plus durs à des zones d'amorçage du clivage.

2.6. Traitement de régénération

Le traitement de régénération permet de remettre sous forme de solution solide les atomes de fer et de chrome, effaçant ainsi les effets de la décomposition spinodale. Ce traitement dont l'intérêt a été évoqué dans différentes études, permet de conclure sur le rôle des différentes évolutions microstructurales dans le changement des propriétés mécaniques. Dans notre cas, d'autres phases apparaissent lors du vieillissement, la phase G et les carbures de chrome. Celles-ci sont toujours présentes après le traitement de régénération alors que les propriétés mécaniques de l'alliage reviennent à des valeurs équivalentes à celles obtenues avant vieillissement. Ces phases ne participent pas de manière significative au durcissement du matériau [28] [17] [36] [32].

Le traitement de régénération consiste à porter à 550°C l'alliage durant 20 à 30 min. Cette température permet de sortir l'alliage de la lacune de miscibilité. Ce traitement a été appliqué sur des éprouvettes de traction vieillies jusqu'à 15 000 h aux trois températures de vieillissement. Les résultats sont visibles sur les Figure 145, 18 et Figure 147.

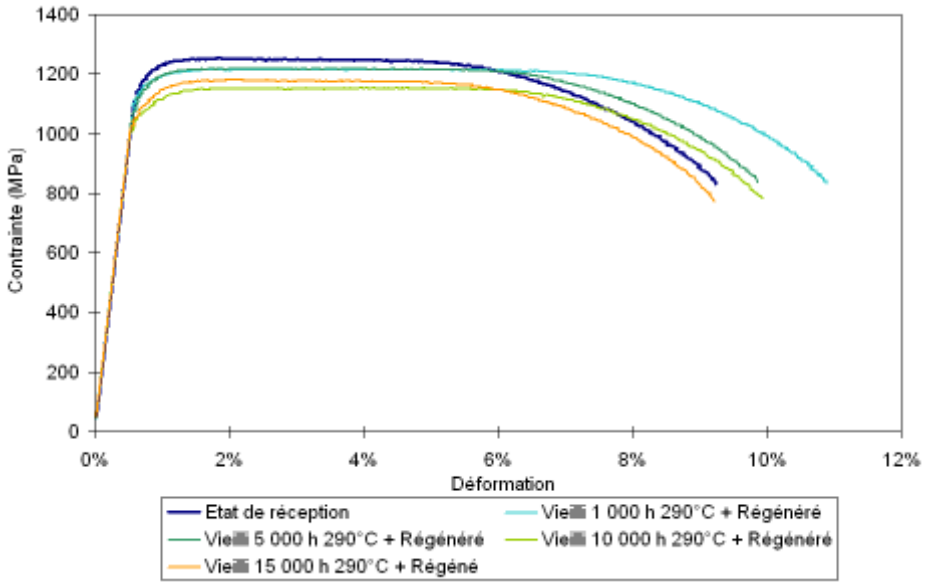


Figure 145 : Comportement en traction à 20°C après traitement de régénération sur éprouvettes vieillies à 290°C

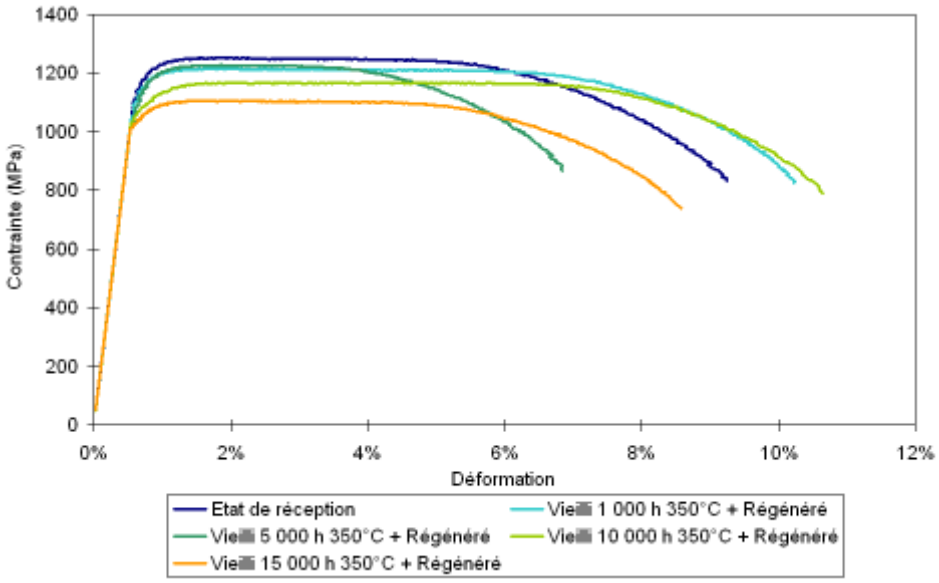


Figure 146 : Comportement en traction à 20°C après traitement de régénération sur éprouvettes vieillies à 350°C

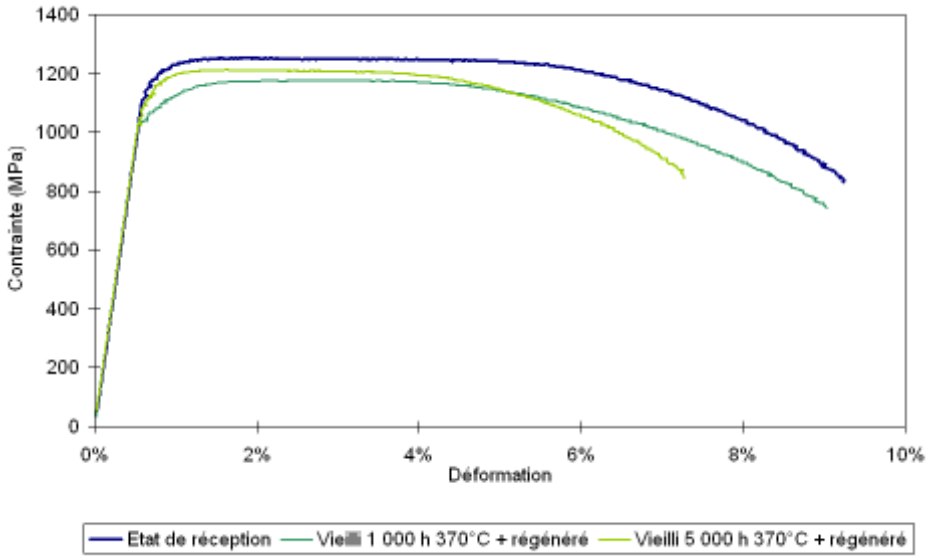


Figure 147 : Comportement en traction à 20°C après traitement de régénération sur éprouvettes vieillies à 370°C

Le traitement de régénération permet d'obtenir des propriétés mécaniques quasiment identiques à celles mesurées sur le matériau à l'état de réception. Rappelons que le traitement de revenu pour le 15 5 PH à l'état 1200 MPa consiste en un traitement de 4 h à 505 °C. Néanmoins quelques différences sont à noter :

- l'allongement à rupture est plus important dans le cas du matériau régénéré que dans le cas du matériau à l'état de réception. Cette différence peut être expliquée par le fait que lors du vieillissement, même si son évolution reste faible, il y a précipitation d'austénite de réversion. Lorsque le traitement de régénération est appliqué à la pièce vieillie, cette austénite formée à plus basse température peut servir de germes et peut croitre, comme lors du traitement de revenu. Cette austénite va donc adoucir le matériau
- la résistance à la traction est aussi légèrement diminuée. Même si l'augmentation de la quantité d'austénite de réversion peut expliquer cette diminution, il faut noter aussi que le traitement de régénération est 45°C plus chaud que le traitement de revenu. Ainsi, les précipités formés à 505°C vont évoluer, grossir dans ce cas, ainsi que les précipités formés pendant le vieillissement. Ce grossissement des deux populations de précipités va avoir deux effets antagonistes. En effet, du fait de leur taille déjà relativement importante, les précipités formés à 505°C, en grossissant, vont diminuer la résistance maximale à la traction. Ces précipités seront survieillis. Par contre, les éventuels précipités formés lors du vieillissement vont certainement participer à l'augmentation de la résistance, leur taille restant trop faible. Néanmoins, il ne serait pas étonnant qu'une partie de ces précipités se redissolvent également dans la matrice. Néanmoins, sans preuve directe, l'existence de ces précipités reste hypothétique.

Ce traitement de régénération aurait une application industrielle directe, puisqu'il permettrait de régénérer les propriétés mécaniques « originelles » du matériau. Néanmoins, sa mis en œuvre n'est pas chose aisée, notamment, sur une pièce aussi complexe que le mât réacteur d'un avion. De plus, ce traitement de régénération possède une limite. En effet, dès que la percolation du réseau de chrome formé lors de la décomposition spinodale est perdue, le traitement de régénération ne permet plus de remettre en solution le chrome et le fer. Cette limitation a été mise en évidence dans les travaux de E.Herny [28]. Par rapport à la séquence de vieillissement proposée, à partir du moment où le stade III de vieillissement est suffisamment avancé, le traitement de régénération n'agit plus.

Il reste, toutefois, scientifiquement intéressant de connaître la cinétique de vieillissement d'un alliage vieilli puis régénéré. Cette séquence a été effectuée sur du 15 5 PH 1070 MPa. La séquence de vieillissement ainsi que les résultats de dureté sont répertoriés dans le Tableau 24. Rappelons que l'augmentation de dureté mesurée après un vieillissement de 1 000 h à 350°C sur l'état de réception donne une augmentation de dureté de 45 HV.

	Dureté (HV_1)
Etat de réception (ER)	380
+ 5 000 h à 350°C	455
+ 20 min à 550°C	377
+ 1 000 h à 350°C	419

Tableau 24 : Cinétique de vieillissement d'un échantillon vieilli après un premier vieillissement et un traitement de régénération

Cette séquence montre qu'un second vieillissement sur un matériau régénéré amène celui-ci à vieillir selon la même cinétique. Sur un échantillon vieilli 5 000 h à 350°C, Herny avait montré que des carbures de chrome se formaient aux joints de lattes. Même si ces carbures piègent en partie le chrome, la quantité piégée est suffisamment faible pour ne pas influencer la cinétique de vieillissement. De même, la présence de phase G n'affecte pas non plus la cinétique de vieillissement. De plus, ce résultat semble montrer que la précipitation complémentaire de cuivre qui a lieu lors du vieillissement se redissout, la solubilité du cuivre augmentant lors du traitement de régénération.

Synthèse

Le vieillissement des aciers, pour la partie décomposition spinodale, peut se décomposer en cinq étapes, ayant chacune leurs propres caractéristiques, au niveau de l'amplitude des différences de concentration et des longueurs caractéristiques. Ces paramètres vont aussi dépendre de la température de vieillissement. De plus, un complément de précipitation du cuivre apparaît aussi lors du premier stade de vieillissement.

Par sa simplicité et la source d'information qu'il apporte, aussi bien sur l'évolution des autres propriétés mécaniques que sur l'avancée du vieillissement, l'essai de dureté est un moyen privilégié afin de suivre le vieillissement de pièces industrielles.

3. Effet de la contrainte sur la cinétique de vieillissement

3.1. Vieillissement en traction

Les différents vieillissements effectués sur le 15 5 PH, aussi bien 1200 MPa que 1070 MPa, montrent qu'il semble exister un seuil de chargement à partir duquel la contrainte va avoir un effet sur la cinétique de vieillissement Ce seuil, évolue en fonction de l'état métallurgique initial, de la température de vieillissement et de la durée de vieillissement. Le Tableau 25 présente les différents seuils à partir desquels la contrainte va avoir un effet sur la cinétique de durcissement de l'alliage. De plus, il a été rajouté les données issues de la thèse de J.M. Cloué sur le vieillissement sous contrainte d'éprouvette en PH 13-08 Mo.

Etat métallurgique initial	Température de vieillissement (°C)	Durée de vieillissement (h)	Seuil (% de la limite d'élasticité)
15-5 PH 1070 MPa	290	1 000	>80
	350	1 000	>80
	400	500	55
15-5 PH 1200 MPa	290	1 000	80
		5 000	75
		10 000	
		15 000	75
	350	1 000	80
		5 000	75
		10 000	75
		15 000	45
	370	1 000	50
		5 000	40
PH 13-08 Mo	400	500	33
		1 000	10
		3 000	10
		5 000	10

Tableau 25 : Evolution du seuil de contrainte à partir duquel celle-ci a un effet sur la cinétique de vieillissement de l'alliage

La Figure 148 a déjà présentée dans le chapitre III, permet de se rendre compte des effets de contrainte sur la cinétique de vieillissement à 350°C.

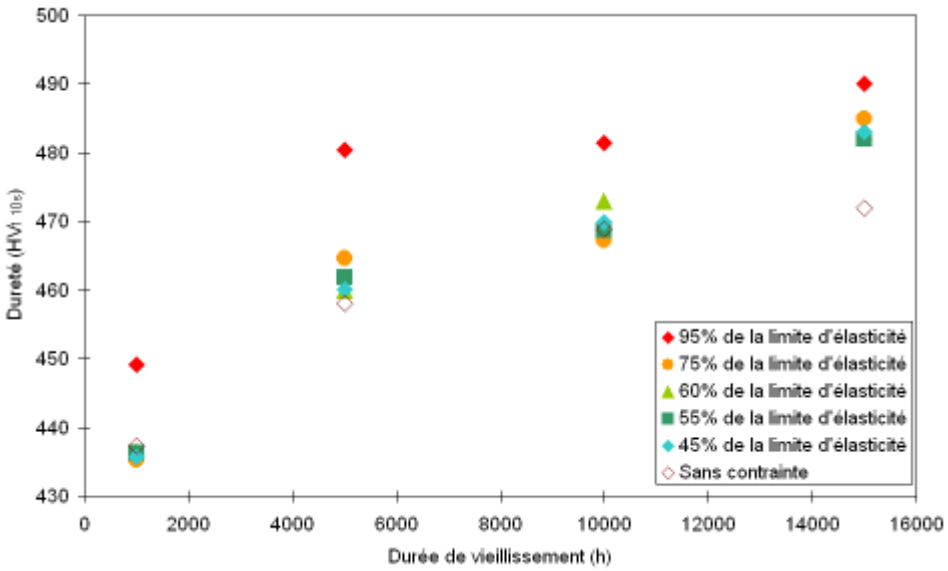


Figure 148 : Evolution de la dureté en fonction de l'état de contrainte pour des vieillissements effectués à 350°C

Il est intéressant de remarquer que pour les vieillissements effectués 95% de la limite d'élasticité, on observe un comportement semblable à celui proposé comme modèle précédemment avec différents stades de vieillissement. En effet, la dureté augmente rapidement, jusqu'à 5 000 h de vieillissement environ. Par la suite, jusqu'à environ 10 000 h de vieillissement, celle-ci reste constante. Puis, lors des 5 000 h de vieillissement suivantes, la dureté augmente à nouveau. Il est donc raisonnable de penser que les 5 000 premières heures correspondent aux stades 1 & 2 de vieillissement, c'est-à-dire la décomposition spinodale et le complément de précipitation du cuivre. Par la suite, entre 5 000 et 10 000 h de vieillissement, le stade 3 de vieillissement est atteint, où la dégénérescence de la décomposition spinodale est observée. Enfin, entre 10 000h et 15 000 h de vieillissement, le stade 4 est atteint, des particules de α' sont formés et viennent durcir le matériau.

Pour les vieillissements effectués à des contraintes moins élevées, on observe un comportement identique à celui d'un échantillon vieilli sans contrainte. Néanmoins, après 10 000 h de vieillissement, une augmentation de dureté est observée par rapport à un vieillissement effectué sans contrainte. Les stades de vieillissement 4 & 5 sont ainsi observés. Pour une température de vieillissement de 290°C, figures dans le chapitre III, le comportement est identique, la contrainte de type traction accélère le vieillissement et permet d'observer les différents stades de vieillissement.

La contrainte semble agir de deux façons différentes sur la cinétique de vieillissement.

En premier lieu, sur le premier stade de vieillissement, correspondant au complément de précipitation du cuivre et à la décomposition spinodale. Pour des vieillissements effectués à 350°C, ce premier stade correspond aux 1 000 premières heures de vieillissement. Au bout de cette durée de vieillissement, pour des valeurs de contrainte imposée jusqu'à environ 80% de la limite d'élasticité du matériau, aucun effet de la contrainte n'est observé. Toutefois, pour des vieillissements effectués avec une contrainte supérieure, une augmentation de la dureté de 15 HV est à noter. Deux scenarii sont possibles :

- La contrainte va influencer la cinétique de la décomposition spinodale en l'accélérant tout simplement, par un facteur 3 dans ce cas, à partir d'une valeur seuil. Au bout de 1 000 h, le stade I de vieillissement est déjà dépassé, et la spinodale se trouve déjà dans le stade II.
- L'écart de dureté mesuré est essentiellement dû à l'effet de la contrainte sur la précipitation du cuivre. Sous l'effet de la contrainte de type traction dans ce cas, la limite

de solubilité du cuivre dans le système est abaissée. Du coup, la sursaturation en cuivre restant en solution après le traitement de revenu est plus importante que lors de vieillissement sans contrainte appliquée. La précipitation complémentaire du cuivre est favorisée.

Procédons maintenant à un changement d'échelle, de l'échelle macroscopique, à l'échelle de la maille. La contrainte agirait donc au niveau de la décomposition spinodale en accélérant les stades II et III de vieillissement, correspondant respectivement à l'augmentation de la longueur caractéristique de la spinodale et à l'isolement des zones riches en chrome. La diffusion des éléments serait alors favorisée par l'application d'une contrainte tout au long du vieillissement. En reprenant la théorie émise par Cahn, certaines directions sont privilégiées durant la décomposition spinodale, si le système considéré est anisotrope lors de vieillissement sans contrainte appliquée. Ainsi, dans le système cubique, les zones de compositions maximales et minimales forment une structure de type CsCl, c'est-à-dire deux structures cubiques centrées imbriquées, reliées par des filaments orientés selon les directions de type <100>, ne correspondant pas aux directions denses. Dans la maille cubique du fer, ces directions correspondent aux directions de module d'élasticité le plus faible. Cahn, dans sa théorie, propose ainsi de ne considérer les longueurs d'onde que dans les directions <100>.

Lors d'un vieillissement sans contrainte appliquée, l'énergie élastique stockée dans le cristal issue des différences d'accommodation de la déformation maille à maille reste relativement faible. En appliquant une contrainte externe, avec des valeurs relativement élevées, l'énergie élastique stockée selon ces directions va augmenter. Et ce d'autant plus que l'orientation de la maille cristalline sera en adéquation avec la contrainte appliquée, c'est-à-dire, directions <100> parallèles à la direction de sollicitation. Cet effet d'orientation, bien que non quantifié proprement, a été observé par Danoix en sonde atomique tomographique [29]. En effet, sur certains échantillons vieillis sous contrainte, les volumes reconstruits révèlaient une orientation de la spinodale. Celle-ci s'allongeait parallèlement à la direction de sollicitation. Cette observation n'a pas été faite sur tous les volumes analysés. Afin d'expliquer ces différences, l'orientation de la latte de martensite analysée par rapport à la direction d'application de la contrainte doit être prise en compte. C'est ainsi que l'on peut imaginer qu'une latte qui possède une direction <100> parallèle à la direction de chargement présentera après vieillissement une élongation des zones riches en chrome, contrairement à d'autres orientations de lattes.

Dans leurs travaux, Jang et ses collaborateurs [21] ont montré l'influence du type de contrainte appliquée sur la diffusion du fer à l'intérieur d'une maille cubique centrée. Ils montrent ainsi qu'une contrainte uniaxiale de type traction va augmenter les coefficients de diffusion dans la maille selon la direction de chargement, alors qu'une contrainte uniaxiale de type compression aura plutôt tendance à les diminuer. Lorsque les coefficients de diffusion perpendiculaires à l'axe de chargement sont étudiés, les auteurs montrent que la contrainte de type traction diminue ceux-ci alors que la contrainte de type compression les augmente par rapport aux coefficients mesurés parallèlement à l'axe de chargement. Une contrainte de type unixiale va ainsi influencer l'enthalpie de formation des lacunes ainsi que la barrière énergétique de migration des lacunes.

Ainsi, il est envisageable que des paquets de lattes orientés selon les directions <100> et dont l'axe de chargement est parallèle à cette direction présente une anisotropie de démixtion.

3.2. Vieillissement sur éprouvette entaillée en traction

Dans le paragraphe précédent, nous avons vu qu'à partir d'un certain seuil, la contrainte avait une influence sur la cinétique de vieillissement. Cette remarque va permettre d'interpréter les résultats obtenus pour les éprouvettes entaillées vieillies en traction. Nous rappelons ici que pour des essais effectués dans la zone où le taux de triaxialité vaut 0.6, la contrainte ne semble pas avoir d'effet sur la cinétique de vieillissement. Par contre, en se rapprochant du fond de l'entaille, la dureté augmente de manière importante. Grâce aux calculs effectués en éléments finis sous

Castem, nous avons accès à l'état de contrainte sur la ligne où ont été effectués les essais de dureté. La Figure 149 présente les résultats obtenus pour une éprouvette vieillie 1 000 h à 370°C, sur lesquels ont été superposées la variation de la contrainte de Von Misès, de la contrainte hydrostatique et de la plus grande contrainte principale. Nous avons choisi d'illustrer notre interprétation uniquement par ces conditions de vieillissement. Néanmoins, nous renvoyons le lecteur au chapitre III afin de vérifier que les variations décrites sur la Figure 149 sont similaires à celles observées sur des éprouvettes entaillées vieillies à 290°C et 350°C jusqu'à 5 000 h.

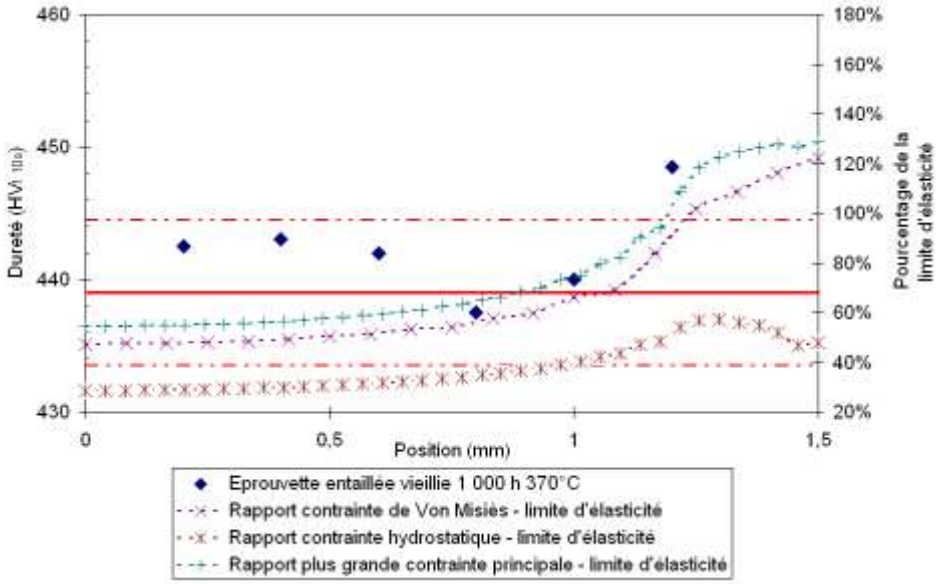


Figure 149 : Résultats de dureté sur une éprouvette entaillée vieillie en traction 1 000 h à 370°C et calculs par éléments finis de l'état de contrainte de l'éprouvette

Cette représentation permet de mettre en lien directement les états de contrainte et la dureté. Ainsi, la zone où la contrainte n'a pas d'effet sur la cinétique de durcissement, la contrainte de Von Misès est d'environ 50 % de la limite d'élasticité en traction du matériau. Par contre, l'augmentation de la dureté est reliée à une augmentation de l'état de contrainte local. En effet, lorsque la contrainte de Von Misès atteint environ 80 % de la limite d'élasticité du matériau, une augmentation nette de la dureté est observée. De plus, dans cette zone, il est observé que la contrainte hydrostatique reste faible et que la plus grande contrainte principale est quant à elle, élevée. Il apparaît ainsi que la distorsion de la maille semble être l'élément gouvernant l'effet de la contrainte sur la cinétique de vieillissement.

Ces résultats sont à mettre en parallèle avec l'influence de la contrainte sur la diffusion du fer dans une maille cubique centrée étudiée par Jang et ses collaborateurs [21]. En plus de l'effet d'une contrainte uniaxiale, ils ont montré que le cisaillement et la traction hydrostatique facilite la diffusion en, respectivement, abaissant les barrières énergétiques de migration des lacunes et en diminuant l'enthalpie de formation des lacunes et en augmentant la concentration des lacunes. Les résultats présentés ici vont aussi dans ce sens. La notion d'une énergie de distorsion limite au delà de laquelle la contrainte a un effet sur la cinétique de vieillissement, illustrée pour les vieillissements en traction par l'existence d'une contrainte seuil, semble constituer une piste de recherche qui mériterait d'être poursuivie.

En mettant en parallèle ces mesures avec l'interprétation faite auparavant pour ce qui concernait l'évolution de la dureté avec des vieillissements effectués en traction pure, l'augmentation de la dureté près du fond de l'entaille est sûrement due à l'effet de la contrainte sur le complément de précipitation du cuivre. L'augmentation de dureté est observée aussi bien après 1 000 h que 5 000 h, cf Chapitre III de vieillissement. Des mesures supplémentaires seront nécessaires afin de mesurer et quantifier l'effet de la contrainte sur l'augmentation de dureté

observé en fond d'entaille. Les durées de vieillissement dans ce cas sont trop courtes pour voir un quelconque effet de la contrainte sur la cinétique de décomposition spinodale.

3.3. Vieillissement sur poutre en flexion 4 points

Les résultats obtenus dans ces conditions de vieillissement sont représentés sur la Figure 150. Ces essais montrent, à valeur absolue de taux de triaxialité constante, qu'il n'y a pas d'effet du signe de la contrainte sur la cinétique de vieillissement.

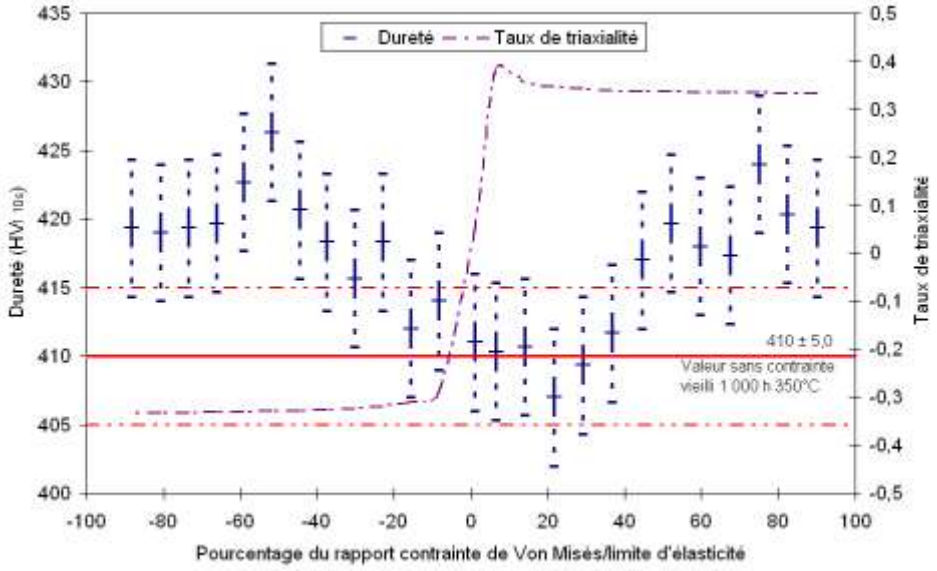


Figure 150 : Essais de dureté sur poutre vieilli en flexion 4 points 1 000 h à 350°C

Néanmoins, vu les conditions de vieillissement, l'effet observé n'est surement relié qu'à l'effet de la contrainte sur la précipitation du cuivre. Effectivement, dans les paragraphes précédents, nous avons vu que, dans le cas du 15 5 PH 1070 MPa, le premier stade de vieillissement à 350°C se terminait après 2 500 h de vieillissement. Dans le cas de cet essai, l'alliage se trouve toujours dans ce premier stade de vieillissement. De plus, nous avons vu que lors de l'application d'une contrainte de type traction lors du vieillissement dans le premier stade de vieillissement, celle-ci agissait sur le complément de précipitation du cuivre. Il est alors possible d'interpréter les évolutions de dureté sur cette poutre vieilli en flexion 4 points, comme un effet de la contrainte appliquée sur le complément de précipitation du cuivre. Néanmoins, les résultats des essais de dureté sont surprenants, puisque symétrique par rapport au centre de l'éprouvette, montrant ainsi un effet identique entre une pression et une traction. Ces contraintes vont jouer sur les limites de solubilité, les diminuant dans le cas d'une compression et les augmentant dans le cas d'une traction [22]. De plus, les contraintes vont avoir le même effet sur les coefficients de diffusion [21]. Néanmoins, à l'heure actuelle, nous n'avons pas d'interprétation plus avancée permettant d'expliquer cette forme particulière.

Synthèse

L'effet des contraintes sur la cinétique de vieillissement des aciers est double. Dans un premier temps, la contrainte va accentuer la précipitation du cuivre, et ce à partir d'un seuil de contrainte, dépendant des conditions de vieillissement. Par la suite, la contrainte va agir en réduisant les temps caractéristiques des différents stades de vieillissement. En agissant à l'échelle de la maille, cette contrainte va avoir des répercussions à l'échelle macroscopique.

Il est proposé ici que ce soit l'énergie de distorsion qui gouverne l'effet du chargement mécanique sur la cinétique de vieillissement.

Références

[1] Jean-Marc Cloué : *Justification de la tenue en service en milieu primaire REP d'un acier martensitique à durcissement structural*. Thèse de doctorat, Ecole des Mines de Paris, 1998.

[2] Carole Dessolin : *Etude multi-expérimentale des évolutions métallurgiques en température et de leur incidence sur les propriétés mmécanique usuelles d'un acier inoxydable martensitique "APX4"*. Thèse de doctorat, Université de Bourgogne, 2010.

[3] K.B Rundman et J.E Hilliard : Early stages of spinodal decomposition in an aluminum-zinc alloy. *Acta Metallurgica*, 15(6):1025–1033, juin 1967.

[4] J.J. Hoyt, B. Clark, D. de Fontaine, J.P. Simon et O. Lyon : A synchrotron radiation study of phase separation in alî–¸zn alloysâ€"i. kinetics. *Acta Metallurgica*, 37(6):1597–1609, juin 1989.

[5] A. Sato, Sho-Ichi Katsuta et Masaharu Kato : Stress aging of a cu-10ni-6sn spinodal alloy. *Acta Metallurgica*, 36(3):633–640, mars 1988.

[6] E.P. Butler et G. Thomas : Structure and properties of spinodally decomposed cu-ni-fe alloys. *Acta Metallurgica*, 18(3):347–365, mars 1970.

[7] R.J Livak et G Thomas : Spinodally decomposed cu-ni-fe alloys of asymmetrical compositions. *Acta Metallurgica*, 19(6):497–505, juin 1971.

[8] R.I. Saunderson, P. Wilkes et G.W. Lorimer : Coarsening in the cu-ni-cr system. *Acta Metallurgica*, 26(9):1357–1370, septembre 1978.

[9] H. R. Habibi Bajguirani : The effect of ageing upon the microstructure and mechanical properties of type 15-5 ph stainless steel. *Materials Science and Engineering A*, 338(1-2):142–159, décembre 2002.

[10] M. Murayama, K. Hono et Y. Katayama : Microstructural evolution in a 17-4 ph stainless steel after aging at 400 Â°c. *Metallurgical and Materials Transactions A*, 30(2):345–353, 1999-02-01.

[11] F. Danoix et P. Auger : Atom probe studies of the fe-cr system and stainless steels aged at intermediate temperature: A review. *Materials Characterization*, 44(1-2):177–201, janvier.

[12] Andrieu E. Lacaze J. Danoix F. Lecoq N. Herny, E. : Study by differential thermal analysis of reverse spinodal transformation in 15-5 ph alloy. *Solid State Phenomena*, 172-174:338–343, 2011.

[13] Emilie Herny : *Caractérisation mécanique et étude des mécanismes de vieillissement thermique et thermomécanique de l'acier inoxydable martensitique 15 5 PH, soudé par faisceau d'électrons*. Thèse de doctorat, INP Toulouse, 2006.

[14] Y.Meyzaud et R.Cozar : Ferritic alloys for use in nuclear energy technologies. *In AIME Conference*, June 1983.

[15] B. Yrieix et M. Guttmann : Aging between 300 and 450°c of wrought martensitic 13-17 wt-%cr stainless steels. *Materials Science and Technology*, 9(2):125–137, 1993-02-01T00:00:00.

[16] D.Tabor : *The hardness of metals*. Oxford, 1951.

[17] J.M. Vitek, S.A. David, D.J. Alexander, J.R Keiser et R.K. Nanstad : Low temperature aging behavior of type 308 stainless steel weld metal. *Acta Metallurgica and Materialla*, 39(4):503–516, 1991.

[18] Takuyo Yamada, Satoshi Okano et Hisashi Kuwano : Mechanical property and microstructural change by thermal aging of scs14a cast duplex stainless steel. *Journal of Nuclear Materials*, 350(1):47–55, mars 2006.

[19] H. M. Chung et T. R. Leax : Embrittlement of laboratory and reactor aged cf3,cf8, and cf8m duplex stainless steels, 1990-03-01T00:00:00.

[20] F. Danoix, J. Lacaze, A. Gibert, D. Mangelinck, K. Hoummada et E. Andrieu : Effect of external stress on the fe-cr phase separation in 15-5 ph and fe-15cr-5ni alloys. *Ultramicroscopy*, 132(0):193–198, septembre 2013.

[21] Je-Wook Jang, Junhyun Kwon et Byeong-Joo Lee : Effect of stress on self-diffusion in bcc fe: An atomistic simulation study. *Scripta Materialia*, 63(1):39–42, juillet 2010.

[22] F.C. Larché et J.W. Cahn : Overview no. 41 the interactions of composition and stress in crystalline solids. *Acta Metallurgica*, 33(3):331–357, mars 1985.

Conclusion générale et perspectives d'étude

Le but du projet PREVISIA était de caractériser le vieillissement thermique de l'acier 15 5 PH à propriétés mécaniques améliorées par rapport à celui actuellement utilisé.

S'appuyant sur trois thèses, ce projet, profitant des compétences des différents laboratoires impliqués, permettait d'établir et de comprendre les relations entre structure et propriétés en intégrant différentes échelles d'observation, de caractérisation, d'analyse et de modélisation.

Mes travaux de thèse avaient pour objectif d'étudier l'effet du vieillissement thermique sur le comportement mécanique de l'alliage mais aussi d'aborder l'effet d'une contrainte appliquée sur l'évolution des propriétés de l'acier tout au long du vieillissement.

De par sa conception, cette thèse a été construite de manière à contribuer à l'établissement du lien entre l'échelle atomique et l'échelle macroscopique pour les aspects liés au vieillissement de ces aciers avec ou sans contrainte appliquée.

C'est avec ce positionnement particulier (changement d'échelles) que les travaux effectués dans cette thèse ont été réalisés. C'est en mettant en œuvre cette démarche au départ pour la caractérisation du matériau à l'état de réception (notamment en dureté) qu'un protocole expérimental basé sur la dureté a été développé. Il permet à la fois de mesurer le comportement global en dureté du matériau, mais aussi de statuer sur le niveau d'homogénéité de celui-ci. Des essais de dureté à différentes charges ont ensuite été réalisés ; ils ont mis en évidence une inhomogénéité de comportement du matériau. Nous avons ainsi pu montrer que cette inhomogénéité était reliée aux effets d'échelle de la microstructure de l'alliage, à l'anisotropie de la maille cristalline et très probablement à des différences d'état de précipitation des particules de cuivre. En se basant sur les relations à l'échelle macroscopique entre l'évolution de la dureté et celle de la température de transition ductile fragile, le matériau peut être assimilable à une distribution spatiale de paquets de lattes ayant des températures de transition ductile fragile différentes. L'hypothèse que les zones les plus dures soient des zones d'amorçage de clivage invoquées dans la rupture fragile a été posée et semble être vérifiée.

A l'état de réception, l'alliage ne montre pas d'hétérogénéité de comportement mécanique en traction suivant la direction de sollicitation, mais présente des hétérogénéités de comportement suivant la position dans l'épaisseur de l'éprouvette. Un banc d'essais Charpy quasi statique a été développé, permettant de réaliser des essais en température. Celui-ci a permis de déterminer la température de transition ductile-fragile de l'alliage à environ 30°C pour cette nuance.

La volonté de placer l'essai de dureté au centre de cette étude provient du fait qu'il constitue un moyen rapide et fiable pour suivre l'évolution du vieillissement et que des corrélations assez robustes permettent de relier les variations de dureté aux évolutions de la TTDF ou de la llimite d'élasticité. Trois températures de vieillissement ont été étudiées, 290, 350 et 370°C, chacune d'elles répondant à des situations réelles rencontrées lors de l'utilisation des pièces. Les vieillissements ont pu être conduits jusqu'à des temps de 15 000 h. Le suivi des propriétés mécaniques, que ce soit en traction, résilience et ténacité, durant le vieillissement a permis de mettre en lumière le caractère fragilisant du vieillissement. En comparant les résultats avec ceux obtenus pour le 15 5 PH 1070 MPa (nuance en cours d'utilisation réelle sur avion), l'influence de l'état métallurgique initial a pu être mise en lumière notamment pour ce qui concerne les premières heures de vieillissement durant lesquelles un durcissement important est observé. Par la suite, la cinétique de durcissement est identique quel que soit l'état métallurgique initial : on observe une augmentation linéaire de la dureté avec le temps de vieillissement puis un plateau de dureté semble être atteint.

Afin de comprendre ces différentes étapes de vieillissement, une analogie a été faite avec d'autres systèmes, tels les alliages Cu-Ni-Cr. Ceci nous a permis de cerner de façon plus précise des phénomènes ayant lieu durant le vieillissement. Ces différents éléments montrent que le vieillissement d'un alliage dont la composition chimique le situe dans la lacune de miscibilité peut

se décomposer suivant, au maximum, 5 étapes. Ces étapes contribuent à la diminution de l'énergie libre de l'alliage. Ainsi, durant le stade I, le vieillissement se traduit par la création de zones percolées riches en chrome. A l'instar du système fer – chrome, ces zones sont créées avec une longueur caractéristique donnée et une amplitude de concentration qui augmente avec le temps. Ensuite, dans le stade II, les zones riches en chrome s'étalent, à concentration maximale constante, puis atteignent une longueur caractéristique seuil. Le stade III se traduit par une diminution de la percolation caractérisée par un isolement des zones. Enfin, une fois les particules isolées, celles-ci vont poursuivre leur coalescence, mais en ayant créé une interface franche avec la matrice. De plus dans le cas du 15 5 PH, durant le stade I un complément de précipitation de la phase durcissante ε_{cu}, est observé. L'intensité et la durée de ces phénomènes dépendent bien évidemment des températures de vieillissement.

Les vieillissements réalisés sous sollicitation mécanique montrent l'effet double de la contrainte sur la cinétique de vieillissement. La notion de seuil de contrainte a ainsi été mise en lumière par les différents essais de vieillissement sous contrainte de traction. La valeur de la contrainte seuil tend à diminuer au fur et à mesure du vieillissement et avec l'augmentation de la température de vieillissement. Cette étude a permis de montrer que la contrainte influence le vieillissement dès le stade I en agissant sur la précipitation complémentaire de la phase durcissante ε_{cu}. Les stades II et III sont également affectés, l'effet de la contrainte se manifestant par une accélération de la cinétique. La diffusion étant favorisée selon certaines directions cristallographiques et par le type de contrainte appliqué, les zones riches en chrome s'isoleraient plus rapidement que lors de vieillissement sans contrainte appliquée. Cet effet serait d'autant plus important que les directions <100> du cristal de martensite sont alignées avec l'axe de contrainte. L'étude de l'effet du taux de triaxialité, par vieillissement d'éprouvettes entaillées sollicitées en traction uniaxiale et de poutres en flexion 4 points, a permis de confirmer cette hypothèse. En couplant les évolutions de dureté avec des calculs par éléments finis sur les différents types d'éprouvettes étudiées ici, nous en concluons que le niveau d'énergie de distorsion élastique de la maille, symbolisée par la contrainte équivalente de Von Misès, est l'élément déterminant l'influence de la contrainte sur la cinétique de vieillissement, quel que soit le type de chargement.

Afin de valider les différentes hypothèses avancées durant cette thèse, il serait bon d'effectuer une étude assez similaire sur des alliages dits modèles, tels Fe-Cr ou Fe-Ni-Cr par exemple, afin de suivre aussi bien à l'échelle atomique que macroscopique l'évolution de la décomposition spinodale sans être perturbé par la précipitation du cuivre. Ces études permettraient de confirmer les relations entre les différents régimes d'évolution de la dureté et l'avancement de la décomposition spinodale.

De plus, afin de mieux comprendre les effets spécifiques éventuels de la composante hydrostatique ou du déviateur des contraintes, la mise en œuvre de vieillissements en torsion i.e en cisaillement pur, suffisamment longs pour permettre de statuer sur l'effet de la nature de la contrainte appliquée serait de mon point de vue très utile.

Une étude reliant effet d'orientation de la latte et orientation de la contrainte appliquée pourrait permettre de confirmer ou non les hypothèses avancées dans le cadre de ce mémoire. Etant donnés les différents niveaux d'échelle de la microstructure et les résultats présentés, le vieillissement à l'échelle locale semble très hétérogène. Des analyses couplant à la fois des vieillissements avec ou sans contrainte appliquée, l'orientation de la famille de lattes déterminée par EBSD et des essais de nano dureté afin de caractériser l'état d'avancement du vieillissement à l'intérieur d'un paquet de lattes permettraient ainsi de faire le lien entre l'état de contrainte local, l'orientation et la cinétique de durcissement de la famille de lattes.

Enfin, afin de s'approcher encore plus des conditions d'utilisation de pièces réelles, il serait intéressant d'étudier l'effet des contraintes sur des vieillissements à plus basses températures, autour de 250°C.

Le vieillissement des structures en acier inoxydable reste une problématique de majeure pour les constructeurs aéronautiques. La connaissance de l'état d'avancement du vieillissement sur pièces réelles serait pour eux un atout pour anticiper les maintenances éventuelles. L'essai de dureté, réalisable directement sur structures, pourrait remplir cet objectif. Néanmoins, c'est essai n'est pas conservatif pour la pièce testée. Un rajout de matière sur les mâts afin de pouvoir réaliser ces essais pourrait être une solution. Les moyens de contrôle non destructif (CND) seraient des plus intéressants pour une application industrielle. Quelques mesures de résistivité ont été réalisées durant ces travaux sur des matériaux vieillis, et montrent une évolution de cette grandeur. L'évolution du comportement électrique de l'alliage au cours du vieillissement semble être un axe de recherche à développer.

Enfin, d'un point de vue industriel, le traitement de régénération est très intéressant, puisqu'il permet d'annuler les effets de la décomposition spinodale. Néanmoins, du fait de la complexité des mâts réacteurs actuels, ce traitement n'est pas réalisable. Il serait alors intéressant de prendre en compte, dès la conception, la possibilité d'effectuer un traitement de régénération sur une partie du mât qui serait amovible bien entendu.