

THESE DE DOCTORAT DE

L'UNIVERSITE DE NANTES
COMUE UNIVERSITE BRETAGNE LOIRE

ECOLE DOCTORALE N° 596
Matière Molécules et Matériaux
Spécialité : Sciences des matériaux

Par

Abel RAPETTI

**Fissuration à chaud par chute de ductilité dans les métaux d'apport
pour le soudage d'alliages à base de nickel**

Thèse présentée et soutenue à Nantes le 25 juin 2018

Unité de recherche : UMR 6502 – IMN – Institut des matériaux Jean ROUXEL

Rapporteurs avant soutenance :

Anne-Françoise GOURGUES Professeur, Centre des
Matériaux – MINES ParisTech
Éric ANDRIEU Professeur, CIRIMAT – ENSIACET

Composition du Jury :

Président : Philippe PAREIGE

Philippe PAREIGE	Professeur, Université de Rouen
Miguel YESCAS	Docteur, Framatome
Patrick TODESCHINI	Docteur, EDF
Sofiane HENDILI	Docteur, EDF

Directeur de thèse	
Franck TANCRET	Professeur, Université de Nantes
Co-encadrant de thèse	
Frédéric CHRISTIEN	Professeur, École des Mines de Saint-Étienne

THESE DE DOCTORAT DE

L'UNIVERSITE DE NANTES
COMUE UNIVERSITE BRETAGNE LOIRE

ECOLE DOCTORALE N° 596
Matière Molécules et Matériaux
Spécialité : Sciences des matériaux

Par

Abel RAPETTI

**Fissuration à chaud par chute de ductilité dans les métaux d'apport
pour le soudage d'alliages à base de nickel**

Thèse présentée et soutenue à Nantes le 25 juin 2018

Unité de recherche : UMR 6502 – IMN – Institut des matériaux Jean ROUXEL

Rapporteurs avant soutenance :

Anne-Françoise GOURGUES Professeur, Centre des
Matériaux – MINES ParisTech
Éric ANDRIEU Professeur, CIRIMAT – ENSIACET

Composition du Jury :

Président : Philippe PAREIGE

Philippe PAREIGE	Professeur, Université de Rouen
Miguel YESCAS	Docteur, Framatome
Patrick TODESCHINI	Docteur, EDF
Sofiane HENDILI	Docteur, EDF

Directeur de thèse

Franck TANCRET Professeur, Université de Nantes

Co-encadrant de thèse

Frédéric CHRISTIEN Professeur, École des Mines de Saint-Étienne

Sur terrain plat, de simples buttes font effet de collines.

Karl Marx
(1818 – 1883)

Remerciements

Je souhaite tout d'abord remercier les membres de mon jury de thèse : M. Philippe PAREIGE pour l'avoir présidé. J'adresse également mes remerciements aux rapporteurs de mes travaux, Mme. Anne-Françoise GOURGUES et M. Éric ANDRIEU pour le temps passé sur mon travail. Enfin je souhaite également remercier Miguel YESCAS pour avoir accepté de participer à mon jury de thèse.

Je souhaite ensuite remercier les membres de mon comité de suivi de thèse qui ont suivi mon travail durant ces trois années, Xavier SAUVAGE et avec une pensée émue pour René LE GALL.

Pendant ma thèse j'ai eu la chance d'avoir quatre encadrants que je tiens tout particulièrement à remercier et qui comptent pour beaucoup dans la réussite de mon travail. À EDF, je souhaite remercier Patrick TODESCHINI pour le suivi de mon travail et sa disponibilité. Je remercie également Sofiane HENDILI pour son soutien pendant ces trois années. Enfin, pour la partie académique je veux remercier Franck TANCRET et Frédéric CHRISTIEN qui m'ont aiguillé, apporté leur aide et leur soutien malgré la distance. En plus d'avoir de supers enseignants pendant mon passage à EDF ils ont été de supers encadrants.

J'ai passé l'essentiel de ma thèse à EDF sur le site des Renardières. Je souhaite remercier l'ensemble de mon encadrement à MMC et en particulier Bertrand pour avoir été un chef de groupe au top pendant la quasi-totalité de ma thèse. Je remercie également les différentes personnes avec qui j'ai pu interagir à EDF ou qui m'ont aidé pendant ces trois années. Julien S., Gilles R., Damien B., Christian C., Laurent L., Gilles A., Christophe D., Dominique L. et les autres. Un remerciement particulier à Faiza et Yang pour les pauses café du matin. Je remercie également Patrick B. sans qui l'essai développé pendant ma thèse n'aurait pas été possible.

EDF c'est aussi une communauté soudée de doctorant que je souhaite remercier. Merci à Émeric, Wen, Laurie, Camille, Julien, BP, Adèle, Kévin, Baptiste, Xavier, Ronan, Marylou, Jordan et les autres. Je remercie en particulier BP et Benjamin qui ont été mes points d'entrées dans la communauté et Julien et Ronan pour les moments partagés entre la course, le C24 et le B14-B16. Pour les sorties

running du midi je remercie en premier Luc, les bébés loutres et autres tableaux des bords de Seine, Antoine (T25) pour sa bonne humeur inégalable, Thomas pour les circuits 7 et 11, malheureusement découverts trop tard, Antoine (T27), Edouard et les autres avec qui j'ai pu courir le midi. J'ai eu la chance de participer avec Antoine à la conférence PVP2017. Là-bas j'y ai rencontré Laurent et Arnaud. Je remercie mes trois compagnons de conférence pour leurs conseils éclairés pendant cette semaine.

Je tiens également à remercier mes amis pour leur soutien pendant ces trois années ainsi que ceux qui m'ont permis de décompresser le soir, merci RastaValou, Oasics, Sahadow, Neutrino, Sylvoka et les autres. Raph, ce fut avec plaisir que j'ai partagé avec toi ma chambre au printemps 2016.

Je voulais également remercier deux enseignants qui m'ont marqué durant ma vie et qui je, le pense, sont en partie responsable de la personne que je suis devenu. Jacqueline CORIOU et Bernard JOAN, merci pour tout.

Je remercie enfin toute ma famille. En particulier, mes parents Jacques et Maryline à qui je dois mon éducation et qui m'ont donné l'environnement dans lequel j'ai grandi. Mes trois frères bien entendu, Adrien, Alban et Alexandre. Merci particulier également à Camille, Loïc, Nadia, Céline et les autres. J'ai une pensée pour mes grands-parents. Merci à mes beaux-parents, Alain et Christine.

Pour finir, je remercie Pauline pour tout le soutien que tu m'as apporté pendant ces trois années et les précédentes. Tu es mon équilibre. Sans toi, tout aurait été plus difficile.

Plan

1	Introduction et contexte.....	1
2	État de l'art.....	5
2.1	Historique de l'étude de la fissuration par chute de ductilité	7
2.2	Présentation des essais de sensibilité à la DDC au cours d'une opération de soudage.....	8
2.2.1	<i>Les essais de simulation thermomécanique</i>	<i>9</i>
2.2.2	<i>Les essais de soudage avec sollicitation mécanique extérieure.....</i>	<i>12</i>
2.2.3	<i>Les essais de soudage bridés ou auto-bridés.....</i>	<i>14</i>
2.2.4	<i>Synthèse des essais de sensibilité à la fissuration par chute de ductilité.....</i>	<i>17</i>
2.2.5	<i>Tentative de comparaison de résultats issus de la littérature concernant l'influence de la composition chimique sur la DDC.....</i>	<i>18</i>
2.3	Les mécanismes de la fissuration par chute de ductilité.....	22
2.3.1	<i>Les caractéristiques de la fissuration par chute de ductilité</i>	<i>22</i>
2.3.2	<i>Le glissement des joints de grains comme mécanisme de fissuration ?.....</i>	<i>23</i>
2.3.3	<i>Influence de la ségrégation des impuretés aux joints de grains</i>	<i>31</i>
2.3.4	<i>Autres explications.....</i>	<i>37</i>
2.3.5	<i>Résumé sur les hypothèses</i>	<i>39</i>
2.4	Problématique.....	41
3	Matériaux et méthodes	43
3.1	Fabrication et caractérisation des matériaux	43
3.1.1	<i>Fabrication</i>	<i>43</i>
3.1.2	<i>Composition chimique</i>	<i>45</i>
3.1.3	<i>Caractérisation des métaux à l'état de réception</i>	<i>47</i>
3.2	Méthodes d'évaluation de la fissuration par chute de ductilité	51
3.2.1	<i>Mesure de la ductilité à chaud. Essai de traction à rupture sur simulateur thermomécanique.....</i>	<i>51</i>
3.2.2	<i>Procédure des essais Varestreint.....</i>	<i>55</i>
3.2.3	<i>Mesures de la ségrégation du soufre aux joint de grains sur coupe polie par WDS</i>	<i>58</i>
3.2.4	<i>Mesure de la ségrégation du soufre aux joints de grains par analyses EDS sur lame FIB au MET</i>	<i>61</i>
4	Développement d'un essai de refusion (RCT : « Refusion Cracking Test »).....	65
4.1	Essais de ductilité à chaud : traction à rupture	65
4.1.1	<i>Présentation des résultats.....</i>	<i>65</i>
4.1.2	<i>Essais complémentaires.....</i>	<i>70</i>

4.1.3	<i>Conclusion de l'étude de la ductilité à chaud par essai de traction</i>	73
4.2	Essais Varestraint : essais de soudage avec sollicitation mécanique extérieure	73
4.2.1	<i>Présentation des résultats des essais Varestraint</i>	74
4.2.2	<i>Conclusion sur l'apport des essais de traction et de l'essai Varestraint à l'étude de la perte de ductilité des alliages 52M et 152</i>	76
4.3	Développement d'un essai de refusion (RCT)	76
4.3.1	<i>Pourquoi un nouvel essai de fissuration au soudage ?</i>	76
4.3.2	<i>Présentation de l'expérience</i>	78
4.3.3	<i>Exploitation des essais</i>	80
4.3.4	<i>Résultats des essais sur les alliages 152 et 52M</i>	81
4.4	Modélisation thermomécanique de l'essai RCT.....	87
4.4.1	<i>Étude thermique</i>	87
4.4.2	<i>Déformation plastique cumulée</i>	88
4.4.3	<i>Contraintes</i>	94
4.4.4	<i>Conclusion sur l'approche numérique</i>	97
4.4.5	<i>Synthèse sur le développement de l'essai RCT</i>	98
5	Apports sur les mécanismes de la fissuration par chute de ductilité	101
5.1	Présentation des résultats de l'essai RCT sur les alliages modèles	102
5.1.1	<i>Le choix des alliages modèles</i>	102
5.1.2	<i>Les résultats de l'essai RCT</i>	102
5.1.3	<i>Position des fissures</i>	109
5.1.4	<i>Observation de fissures</i>	111
5.1.5	<i>Résumé des résultats des essais RCT</i>	118
5.2	Analyse de la ségrégation du soufre aux joints de grains	119
5.2.1	<i>L'échantillon témoin de nickel</i>	120
5.2.2	<i>L'échantillon « base + S »</i>	128
5.2.3	<i>Conclusion sur les analyses du soufre aux joints de grains</i>	135
5.3	Propositions de scénarios sur le mode d'action du soufre	136
5.3.1	<i>La ségrégation hors d'équilibre</i>	136
5.3.2	<i>Une ségrégation dynamique en fond de fissure</i>	146
5.3.3	<i>Conclusion sur les modes d'action possibles du soufre</i>	152
5.4	L'influence du carbone, du niobium et des carbures	153
5.4.1	<i>L'effet des carbures secondaires</i>	154
5.4.2	<i>L'effet du carbone libre</i>	156
5.4.3	<i>L'influence du niobium</i>	161

5.5	Conclusion sur les mécanismes pilotes de la DDC	161
6	Conclusions et perspectives	163
6.1	Conclusions	164
6.1.1	<i>Choix de l'essai.....</i>	<i>164</i>
6.1.2	<i>Le développement d'un essai de refusion.....</i>	<i>164</i>
6.1.3	<i>Les apports sur la compréhension du mécanisme.....</i>	<i>165</i>
6.2	Perspectives	167
7	Annexes	169
7.1	Annexes à l'état de l'art.....	169
7.1.1	<i>Composition des alliages relatifs au paragraphe 2.2.5.....</i>	<i>169</i>
7.2	Annexes aux matériaux et méthodes	174
7.2.1	<i>Tableau des essais mécaniques.....</i>	<i>174</i>
7.3	Annexe : modèle numérique de l'essai RCT	175
7.3.1	<i>Maillage.....</i>	<i>175</i>
7.3.2	<i>Conditions aux limites et chargement du problème thermique.....</i>	<i>176</i>
7.3.3	<i>Conditions aux limites et chargement du problème mécanique.....</i>	<i>179</i>
7.3.4	<i>Paramètres matériau</i>	<i>179</i>
8	Liste des figures	185
9	Liste des tableaux	197
10	Liste des références	199

1 Introduction et contexte

La France possède 58 réacteurs à eau pressurisée (REP), répartis dans 19 centres nucléaires de production d'électricité (CNPE). La figure 1.1 montre le schéma de fonctionnement d'un REP. L'eau circulant dans le circuit primaire est chauffée vers 325°C et est maintenue liquide sous une pression de 150 bars environ. Cette eau sert de fluide caloporteur ; elle transfère sa chaleur à l'eau du circuit secondaire et la vaporise dans les générateurs de vapeur, puis retourne dans le réacteur à une température proche de 290°C. Cette vapeur fait tourner une turbine qui entraîne un alternateur produisant l'électricité de la centrale ; la vapeur est ensuite condensée à l'aide d'un circuit de refroidissement.

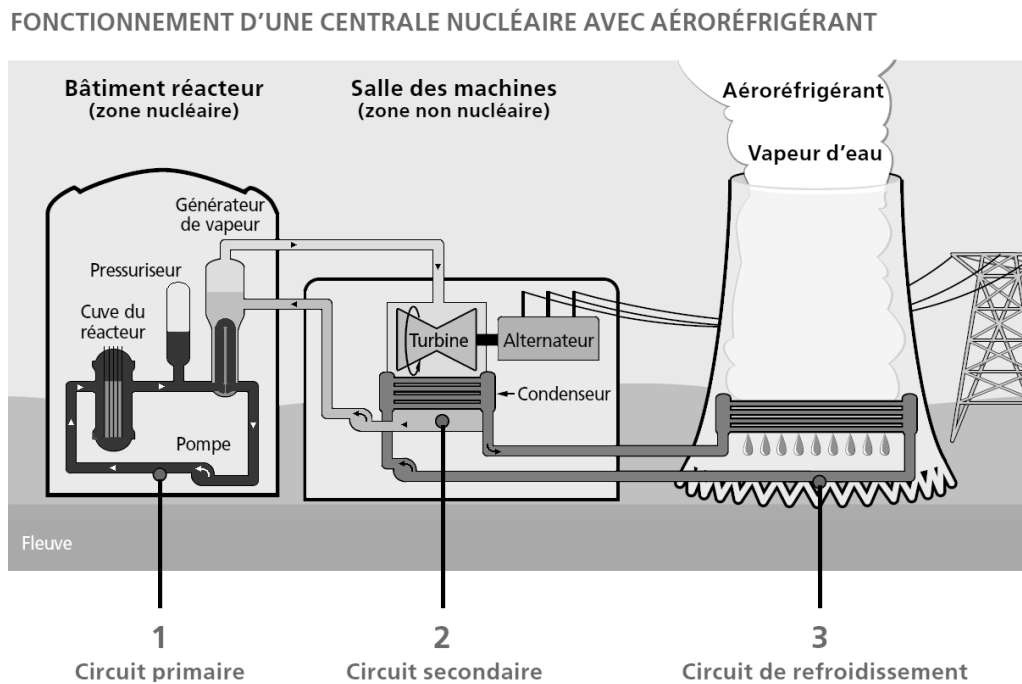


Figure 1.1 - Schéma d'un réacteur à eau pressurisée¹.

Les conditions de température et de pression qui règnent dans le circuit primaire nécessitent l'emploi, pour certaines pièces, d'alliages à base nickel, en raison de leurs caractéristiques mécaniques, de leurs coefficients de dilatation relativement proches

¹ Adapté de IRSN. Principe de fonctionnement d'une centrale nucléaire avec aéroréfrigérant. *IRSN* [en ligne]. [Consulté le 27 septembre 2017].

de ceux des aciers faiblement alliés et de leur bonne résistance à la corrosion, notamment l'alliage 690TM (~30% de Cr, ~9-10% de Fe et ~0,04% de C en masse).

Le soudage de cet alliage fait appel à des métaux d'apport dénommés 52, 52M ou 152. Ce sont des alliages à base de nickel dont la composition nominale est proche de celle de l'alliage 690TM. L'alliage 52 est à peu de chose près équivalent à l'alliage 690, alors que les alliages 52M et 152 en diffèrent surtout par une teneur en niobium minimale imposée². Les compositions et caractéristiques de tous ces matériaux seront détaillées ultérieurement.

Sur les équipements neufs, l'alliage 690TM ou ses métaux d'apport sont notamment utilisés pour le faisceau tubulaire et les revêtements de plaques à tubes de générateurs de vapeur, les soudures de pénétration de couvercles de cuves, ainsi que pour les soudures hétérogènes de liaison des enceintes sous pression aux tuyauteries du circuit primaire principal.

Ce type de matériau peut, dans certaines situations, être affecté par la fissuration à chaud lors du soudage, notamment par chute de ductilité, ou « Ductility Dip Cracking » (DDC) en anglais. Il s'agit d'un mécanisme de fissuration intergranulaire qui intervient en phase solide, conduisant à des fissures de faible longueur.

Des cas de fissuration par DDC ont été rapportés pour certaines maquettes de fabrication de centrales américaines. Ce phénomène est également reproduit en laboratoire lors d'essais de soudage. Industriellement, il est évité par sélection des matériaux de base et d'apport. Cependant, les mécanismes qui pilotent ce type de fissuration à chaud étant encore mal compris, il est important pour EDF de comprendre le phénomène pour ne pas y être confronté dans les centrales françaises, notamment dans la perspective d'éventuelles réparations par soudage.

Le présent manuscrit débute par une étude bibliographique. Après une définition et une présentation de la fissuration par chute de ductilité, la première partie se propose de présenter les différents moyens d'essais existant à ce jour pour évaluer la sensibilité à la DDC. La seconde partie fait un état de l'art des mécanismes

² La teneur en manganèse de l'alliage 152 est également très supérieure à celle de l'alliage 690

gouvernant la fissuration par chute de ductilité et tente d'identifier un éventuel consensus, d'une part concernant les essais à mettre en œuvre pour caractériser la DDC ou l'étudier, et d'autre part concernant le mécanisme prépondérant. À la suite de ces deux parties, la problématique de ce travail de thèse pourra être posée : développer un essai de caractérisation de la DDC adapté aux matériaux disponibles pour l'étude, identifier les mécanismes responsables de la fissuration et déterminer les liens entre composition de l'alliage, mécanismes et fissuration.

Le deuxième chapitre expose les différents matériaux et les méthodes d'essais utilisés dans cette étude. Les alliages retenus sont des métaux d'apports de l'alliage 690. Des matériaux modèles sont par ailleurs fabriqués afin d'étudier l'influence de certains éléments d'alliage.

Une étude de la ductilité à chaud des matériaux industriels par essais de traction est décrite dans la première partie du chapitre 3. Après avoir vérifié que les matériaux étudiés présentent une chute de leur ductilité dans la gamme de température typique de la DDC, la deuxième partie de ce chapitre donne des résultats de sensibilité au phénomène à l'aide d'un essai classique de soudabilité. La mise en regard des résultats des deux premières parties de ce chapitre justifie le développement d'un nouveau test de sensibilité, qui est présenté dans la dernière partie de ce chapitre.

Le dernier chapitre se propose d'étudier plusieurs hypothèses concernant les mécanismes pilotes de la DDC. Les alliages modèles sont testés avec le nouvel essai développé pendant ce travail. Diverses méthodes de caractérisation sont utilisées (microscopie électronique à balayage ou en transmission, spectroscopie X en dispersion de longueur d'onde...) pour essayer de mieux comprendre l'influence de la composition de l'alliage (notamment des teneurs en soufre et en carbone) sur la fissuration. Une simulation numérique thermomécanique de l'essai est également mise en œuvre pour préciser les conditions de température, déformation et contraintes provoquant la fissuration.

2 État de l'art

Il existe trois mécanismes de fissuration à chaud qui peuvent intervenir lors d'une opération de soudage. Ces fissurations résultent d'une décohésion intergranulaire ou interdendritique. La figure 2.1 présente un schéma de la solidification du métal lors du soudage. Le métal se solidifie par croissance de dendrites. Un ensemble de dendrites croissant dans la même direction peut être appelé paquet de dendrites. La limite entre les dendrites d'un même paquet est appelée ici « sous-joint de grains intrapaquet de dendrites ». Lorsque deux paquets de dendrites se rencontrent, il se forme un joint de grains entre ces deux paquets. Ces joints de grains sont interdendritiques ou (et) interpaquets de dendrites. Il arrive cependant qu'au cours du refroidissement, une migration de certains joints de grains se produise, auquel cas le joint peut alors passer au travers d'une ancienne dendrite.

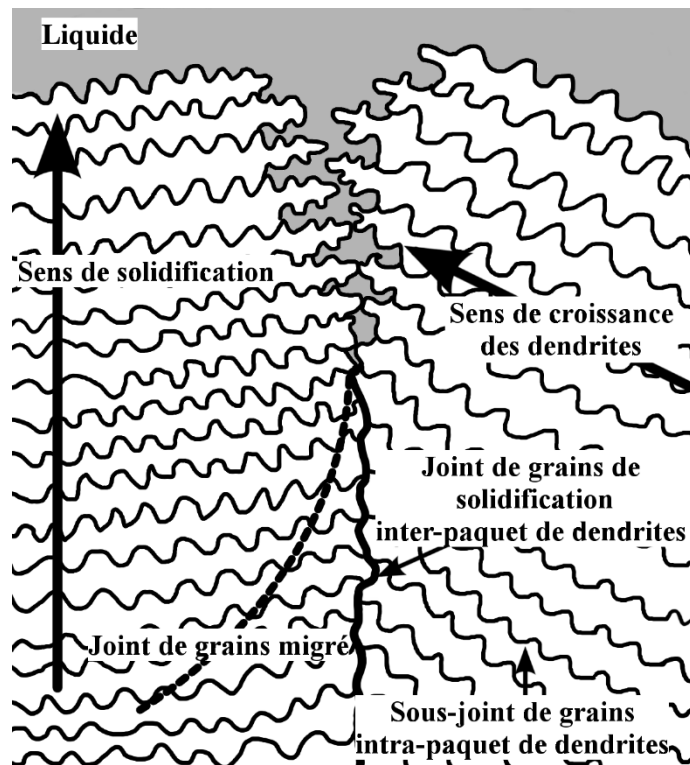


Figure 2.1. Schéma de la formation de la microstructure lors de la solidification, adapté de (1).

La fissuration à chaud lors du soudage correspond à des décohésions du matériau apparaissant à haute température le long des joints de grains lorsque la déformation et la vitesse de déformation dépassent un certain niveau ; ces fissures peuvent avoir trois origines (2, p. 17641-1) :

- *Fissures de solidification* : Fissures à chaud formées au cours de la solidification à partir de la phase liquide du métal fondu. La figure 2.2a présente un schéma de ce mécanisme de fissuration. Lors de la croissance des dendrites dans le liquide, il se peut que les déformations induites par le soudage et le retrait de solidification entraînent un manque de liquide et laissent un espace entre les fronts de croissance de deux paquets de dendrites. Les fissures qui en résultent sont interdendritiques et présentent des faciès de rupture marqués par la présence de dendrites apparentes.
- *Fissures par liquation* : Fissures à chaud formées par une fusion partielle de la zone affectée thermiquement (ZAT) du métal de base ou, dans le cas de soudage multipasse, lorsque le métal fondu est réchauffé par les cordons successifs. Le b) de la figure 2.2 présente un schéma de la fissuration par liquation. Elle résulte de la fusion de composés à bas points de fusion présents aux joints de grains. La présence de liquide couplée aux déformations induites par le soudage peut entraîner une microfissuration de ces joints de grains. Les fissures sont intergranulaires et les faciès de rupture sont lisses, comme voilés, en raison de la présence de liquide au moment de la fissuration.
- *Fissures par chute de ductilité (ou « ductility dip cracking », DDC)* : Fissures à chaud formées au cours du soudage du fait de la diminution de la ductilité à chaud. Comme pour les fissures de liquation, elles peuvent se produire dans la ZAT du métal de base ou dans les soudures multipasses, mais elles se forment en phase solide, sans intervention de liquide. Ce mécanisme, principal objet de la présente thèse, sera largement détaillé ultérieurement.

La fissuration par chute de ductilité se distingue donc notamment des deux autres mécanismes de fissuration à chaud en ce qu'elle ne fait pas intervenir de phase liquide.

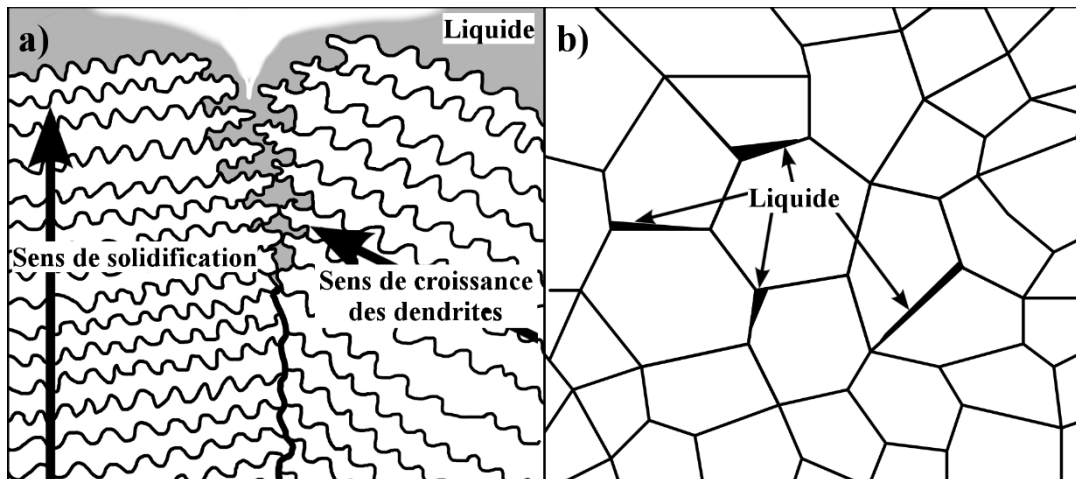


Figure 2.2. Schéma de la fissuration à chaud par solidification a) (adapté de (1)) et par liquation b).

Le présent travail de thèse se concentre sur la fissuration par chute de ductilité (DDC). La suite de cet état de l'art détaillera les hypothèses sur les mécanismes la pilotant avant de décrire les méthodes de caractérisation qui existent pour la tester.

Dans ce manuscrit, sans autres précisions, les compositions sont données par défaut en pourcentages massiques.

2.1 Historique de l'étude de la fissuration par chute de ductilité

Les premiers signes de perte de ductilité à chaud dans les alliages austénitiques ont été relevés par Bengough (3) en 1912. Au départ, ce phénomène a été associé à la problématique du travail à chaud des matériaux (4). Plus tard, en 1960, une perte de ductilité lors du soudage de différents alliages à base de nickel a été observée par Heuschkel (5).

En 1970 Weiss et coll. (6) ont étudié la ductilité à chaud de l'inconel 600. À la fin des années 1970, et principalement durant les années 1980, plusieurs auteurs ont étudié la soudabilité et la ductilité à chaud des aciers austénitiques (7–9). Des travaux ont également été menés à cette période sur Fe-Ni36% (10, 11). À partir des années 1990, certains auteurs ont commencé à travailler sur la soudabilité des alliages à base de nickel (12–15), en s'attachant à la problématique de la fissuration par chute de ductilité. Depuis le début des années 2000, le phénomène est surtout étudié pour les alliages à base de nickel, essentiellement en lien avec des applications à l'industrie nucléaire.

Ces quelques décennies de recherche sur le sujet ont mis en avant divers essais de sensibilité à la fissuration par chute de ductilité, permettant de tester différents alliages, mais également différentes pistes pour expliquer le phénomène. C'est de cela dont il sera question dans la suite de ce chapitre.

2.2 Présentation des essais de sensibilité à la DDC au cours d'une opération de soudage

Pour étudier la sensibilité à la fissuration par chute de ductilité, mais également pour en étudier les causes, il existe de nombreux essais. Certains consistent à caractériser la perte de ductilité à chaud, d'autres sont adaptés d'essais de sensibilité à la fissuration à chaud en général, quand d'autres encore ont été développés spécialement pour étudier la DDC.

La littérature détaille plusieurs types d'essais permettant de caractériser la fissuration à chaud lors du soudage, dont la DDC (16). Il est possible d'en identifier trois familles :

- Les essais de traction à chaud avec chauffage rapide, dits « de simulation thermomécanique » (type Gleeble®) : ces essais permettent de reproduire sur éprouvette les conditions thermomécaniques subies lors du soudage.
- Les essais de soudage avec sollicitation mécanique : ces essais impliquent une sollicitation externe additionnelle à l'opération de soudage. Il est possible de citer les essais de type Varestreint ou PVR (Programmierter Verformungs Riss Test) qui seront décrits ultérieurement (17).
- Les essais de soudage autobridés : la conception de la maquette assure un fort bridage de la pièce lors du soudage. Les contraintes induites par cette opération permettent de tester la sensibilité à la fissuration à chaud. Un essai de sensibilité à la DDC mis au point par Young (18, 19) ou encore celui mis au point par McCracken (20) sont deux exemples de ce type d'essais ; ils seront décrits ci-après.

La suite de cette partie 2.2. présente une revue des différents essais utilisés dans la littérature pour étudier plus spécifiquement la DDC.

2.2.1 Les essais de simulation thermomécanique

Il est possible de reproduire les conditions thermomécaniques des opérations de soudage à l'intérieur de simulateurs thermomécaniques. Ces derniers permettent d'appliquer des cycles thermiques et mécaniques bien maîtrisés afin de se rapprocher au maximum des conditions thermomécaniques observées lors d'une opération de soudage.

2.2.1.1 *Essais de ductilité à chaud : traction à rupture*

L'essai de traction à chaud jusqu'à rupture est adapté des essais de sensibilité à la fissuration par liquation décrits dans la norme ISO 17641-3 (17) dans le but de déterminer la sensibilité à la fissuration par chute de ductilité. Ces essais utilisent une machine de traction permettant d'induire des cycles thermiques rapides (exemple : machine Gleeble©). Ils permettent de reproduire, sur des éprouvettes, les sollicitations thermomécaniques subies par la zone affectée thermiquement (ZAT) lors d'une opération de soudage.

Pour les différentes températures testées, la réduction de section à rupture est la donnée mesurée et retenue comme marqueur de la ductilité du matériau. La figure 2.3 présente un exemple de courbe de ductilité qu'il est possible d'observer lors d'essais de ce type.

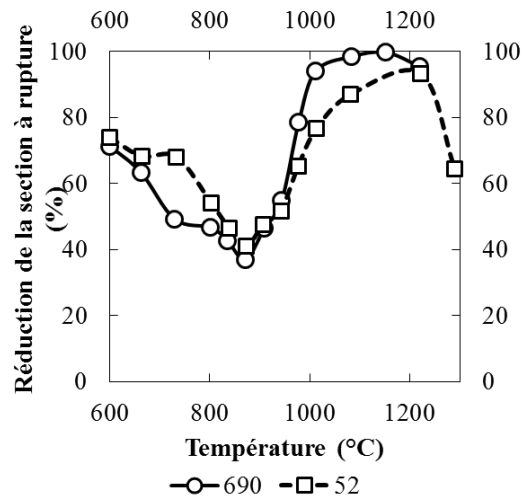


Figure 2.3. Exemple de résultats obtenus avec des essais de ductilité à chaud par traction à rupture, adapté de (21), essais réalisés au refroidissement sur un alliage 690 et son métal d'apport 52.

Ces essais sont utilisés depuis de nombreuses années pour étudier la ductilité à chaud des alliages (6, 22, 23) mais aussi pour étudier la fissuration par chute de ductilité (21, 24–26). Les vitesses de déplacement de la traverse pour rompre les éprouvettes sont diverses. Elles sont généralement assez élevées, 50 mm.s^{-1} dans l'étude de Noecker (21), 25 mm.s^{-1} pour Davé (24) et Yamaguchi (22). Elles sont parfois beaucoup moins élevées, $0,33 \text{ mm.s}^{-1}$ pour Nishimoto (25) ou $0,1 \text{ mm.s}^{-1}$ pour Noecker. Les vitesses de chauffage utilisées sont de l'ordre de 100 K.s^{-1} , les vitesses de refroidissement de l'ordre de 50 K.s^{-1} (21, 24). Les gammes de températures investiguées sont en général celles de la DDC, de 0,5 à 0,8 fois la température absolue de fusion du matériau, T_{fusion} (21). Il est à noter, toutefois, que les vitesses de déplacement de la traverse utilisées dans ces exemples conduisent en général à des vitesses de déformation beaucoup plus élevées que celles réellement observées lors du soudage.

2.2.1.2 Essais de ductilité à chaud : traction interrompue (Strain to Fracture Test, STF)

Les essais de ductilité à chaud à rupture ne permettent pas de déterminer le niveau de déformation à partir duquel les fissures de DDC commencent à se former. Une méthode a été proposée par Nissley en 2002 (27) sous le nom de test STF (Strain To Fracture test) pour permettre d'accéder à cette information. Des éprouvettes de traction plates sont utilisées, avec une réduction de section au centre. Un spot de

soudage sans apport de matière est en général réalisé au centre de l'éprouvette avant le test, mais l'essai est parfois effectué sans ce spot (28, 29).

C'est un test de traction à chaud interrompu. Un chemin thermique est appliqué à l'éprouvette. Celle-ci est déformée jusqu'à un niveau de déformation cible et l'essai est interrompu. La surface de l'éprouvette est observée afin de déterminer si elle présente des fissurations. Pour une même température, il faut reproduire l'essai à plusieurs niveaux de déformation pour obtenir un seuil de déformation à partir duquel des fissures sont observées. Ce test permet de déterminer l'évolution de ces seuils de déformation en fonction de la température. Il demande un grand nombre d'éprouvettes.

La figure 2.4 présente un exemple de résultat obtenu à la suite d'une campagne d'essais STF.

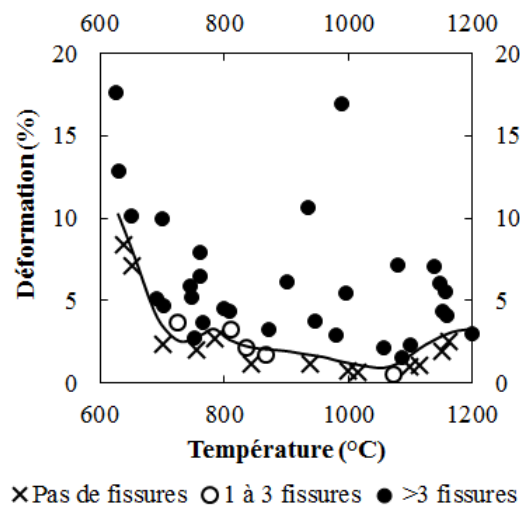


Figure 2.4. Exemple de résultats obtenus après une campagne d'essais STF menée sur l'alliage 52, adapté de (30).

Devant la quantité importante des essais qu'il est nécessaire de réaliser, afin de comparer différents alliages, certains auteurs préfèrent fixer une température, par exemple 950°C (31–33), et comparer les seuils de déformation nécessaires à l'apparition des premières fissures.

Une variante in situ de cet essai a été proposée par Torres et coll. en 2010 (34). Cette variante permet l'observation des éprouvettes pendant la réalisation de l'essai lui-même.

2.2.1.3 Synthèse sur les essais de simulation thermomécanique

Le tableau 2.1 propose un récapitulatif des essais de simulation thermomécanique. Ces essais présentent l'avantage de pouvoir décrire facilement des cycles thermomécaniques bien déterminés et précis. De cette façon il est possible de reproduire des conditions proches de celles observées en soudage et ce, sur de petites éprouvettes. Cependant, ces essais ne font que simuler des conditions thermomécaniques ; ce ne sont pas de vrais essais de soudage et ils peuvent demander la réalisation de nombreux tests.

Tableau 2.1. Récapitulatif des essais de simulation thermomécanique.

<i>Essai</i>	<i>Quantité de matière nécessaire</i>	<i>Quantité d'éprouvettes nécessaire</i>	<i>Donnée de sortie</i>
<i>Traction à rupture</i>	$\sim 1 \text{ cm}^3$	Important (au moins une par température de test)	Réduction de section en fonction de la température
<i>Traction interrompue (STF)</i>	$\sim 1 \text{ cm}^3$	Très important (au moins une par température et niveau de déformation)	Seuil de déformation pour les premières fissures observées en fonction de la température

2.2.2 Les essais de soudage avec sollicitation mécanique extérieure

2.2.2.1 Essai PVR

L'essai PVR (pour Programmierter Verformungs Riss Test ou test de fissuration par déformation programmée) est un essai de fissuration à chaud, développé à la fin des années 1970 (35), qui utilise une seule éprouvette d'essai plate (17). Sur cette éprouvette, une ligne de fusion TIG (Tungsten Inert Gas, soudage à l'arc avec une électrode non fusible) est réalisée le long de l'éprouvette simultanément à l'essai de traction. L'éprouvette est déformée dans la même direction que le soudage, à l'aide d'une machine programmée avec une vitesse de traction croissante. Les éprouvettes sont inspectées à l'aide d'une loupe binoculaire. La vitesse de déformation à partir de laquelle un certain nombre de fissures apparaît

par unité de longueur, dite vitesse de déformation critique, est utilisée comme critère d'évaluation.

Les trois types de fissuration à chaud peuvent être produits avec un unique essai, mais il n'est pas toujours simple de bien séparer certaines fissures de DDC et de liquation.

2.2.2.2 Essai Varestraint

L'essai Varestraint peut être utilisé pour fournir une mesure de la sensibilité à la fissuration à chaud des matériaux de base ou des métaux d'apport (17).

Cet essai s'effectue par dépôt de métal d'apport ou par fusion du métal à tester sur une éprouvette plate. Pendant cette opération de soudage, l'éprouvette est sollicitée mécaniquement par pliage (cf. figure 2.5). L'essai est capable de produire les trois types de fissurations à chaud, à savoir les fissurations de solidification, par liquation et par chute de ductilité.

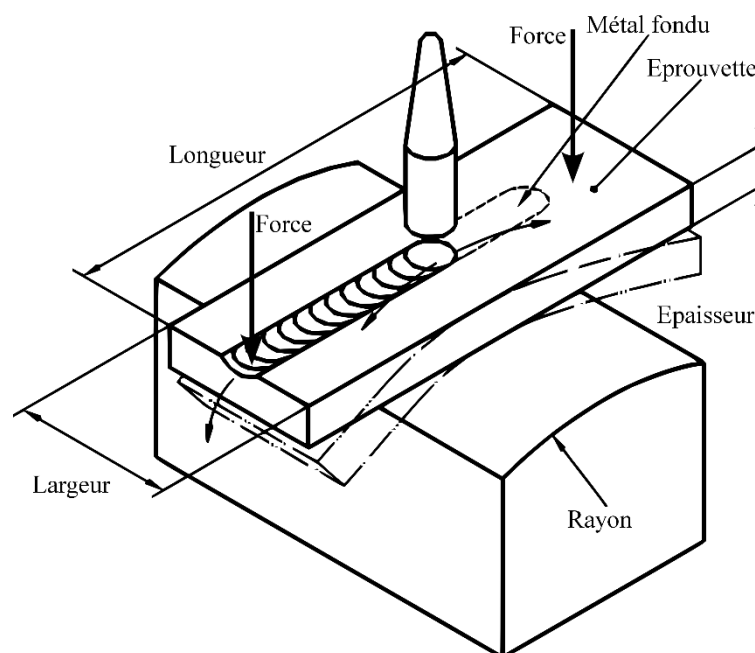


Figure 2.5. Schéma de l'essai Varestraint, adapté de la norme ISO-17641-3 (17).

Il existe des variantes à cet essai. L'essai Varestraint peut être réalisé en pliant l'éprouvette d'un seul côté, essai demi-Varestraint. Il existe aussi l'essai Trans-Varestraint. Dans cette configuration, l'éprouvette et la ligne de fusion sont tournées

de 90° par rapport à celles du schéma de la figure 2.5. Enfin, l'essai Varestraint peut être réalisé avec non pas une ligne de fusion mais un spot de fusion.

L'examen des éprouvettes après essais est fait à l'aide d'une loupe binoculaire pour la recherche des fissures, et consiste à déterminer la longueur totale des fissures visibles. Le critère d'évaluation est alors la longueur de fissures cumulée en fonction de la déformation appliquée.

2.2.2.3 Synthèse sur les essais de soudage avec sollicitation mécanique extérieure

Le tableau 2.2 présente un récapitulatif des essais de sensibilité à la fissuration à chaud avec sollicitation mécanique extérieure. Ces essais permettent de tester les matériaux au cours d'une opération de soudage. En cela, ils sont plus proches des conditions réelles de soudage que les essais précédemment décrits ; cependant, les contraintes mécaniques imposées par les chargements extérieurs ne sont pas forcément représentatives de ce qui se produit réellement lors du soudage.

Tableau 2.2. Récapitulatif des essais avec sollicitation mécanique extérieure.

<i>Essai</i>	<i>Quantité de matière nécessaire</i>	<i>Quantité d'éprouvettes nécessaire</i>	<i>Donnée de sortie</i>
<i>PVR</i>	~ 160 cm ³	Faible	Longueur cumulée des fissures Nombre de fissures
<i>Varestraint</i>	~ 80 cm ³	Faible	Longueur cumulée des fissures Nombre de fissures

2.2.3 Les essais de soudage bridés ou autobridés

2.2.3.1 Maquette de soudage de Young (18, 19) et de Mo et coll. (36)

La maquette de soudage proposée par Young (18, 19), pour tester la sensibilité à la fissuration par chute de ductilité, a pour but de reproduire une opération de soudage courante dans les installations nucléaires. La figure 2.6 présente une vue de la maquette de Young. Elle consiste en une soudure d'un chanfrein en V par le métal

d'apport à tester, entre deux métaux différents (un acier inoxydable et un acier au carbone), dans le but de reproduire des conditions de soudage proches de celles existantes dans plusieurs opérations de soudage en centrales nucléaires.

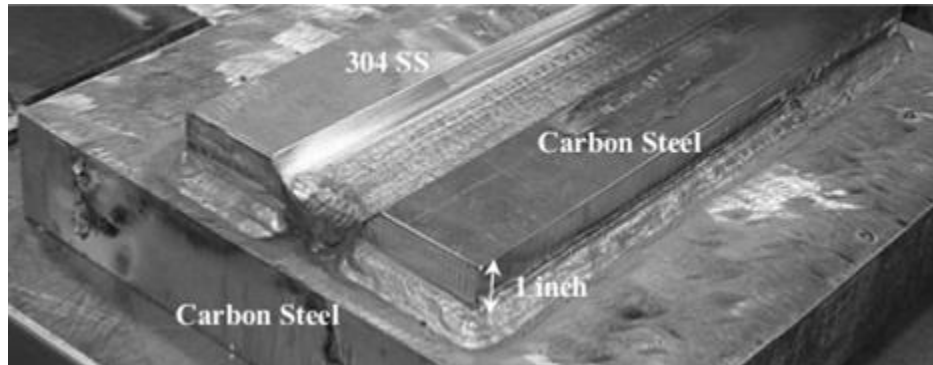


Figure 2.6 : Exemple de la maquette de Young (19).

L'avantage d'un tel essai est qu'il permet de produire des fissures avec des conditions réelles de soudage. Il a cependant certaines limites. Il demande notamment une grande quantité de matière pour pouvoir être mis en œuvre. De plus il est difficile d'accéder à l'instant de la fissuration, puisque cette dernière se produit dans la masse.

La maquette de soudage proposée par Mo et coll. (36), pour tester la sensibilité à la fissuration par chute de ductilité, est assez semblable à celle proposée par Young. Elle consiste également à tester la fissuration par chute de ductilité en déposant le métal à tester par soudage TIG dans un chanfrein entre deux plaques d'acier au carbone. La différence entre ces deux maquettes vient de la manière dont les plaques sont bridées. Dans le cas de la maquette de Young, il n'y a pas de bridage extérieur (autobridage), alors que pour la maquette de Mo, les plaques sont maintenues par des mors.

2.2.3.2 L'essai de refusions de l'EPRI (Electric Power Research Institute)

L'EPRI (qui est une structure qui gère les programmes de recherches pour le compte des différents producteurs d'électricité des États-Unis) propose un test (20, 37) ayant pour but de reproduire des conditions de soudage réelles tout en étant suffisamment instrumenté pour permettre sa simulation numérique.

La figure 2.7 présente la maquette utilisée par l'EPRI pour son essai. Une plaque d'acier faiblement allié est soudée sur une plaque d'acier au carbone. Sur cette

plaque, le métal d'apport à tester est déposé. Un chanfrein en « U » est ensuite usiné dans la partie « métal déposé ». Ce chanfrein est ensuite rempli par soudage TIG.



Figure 2.7 : Schéma de la maquette de soudage utilisée par l'EPRI (20).

La figure 2.8 présente l'empilement des passes réalisées dans le chanfrein en « U ». Entre deux passes consécutives, un profil topographique de la passe est réalisé afin de faciliter la simulation numérique de l'essai. Après les couches n°4, 7 et 10, une, deux et trois passes de refusions sont réalisées, respectivement. Le procédé TIG est utilisé pour refondre la passe précédente, sans métal d'apport. Des coupes sont faites, une fois le chanfrein complètement rempli, pour identifier la présence de fissures dans la maquette.

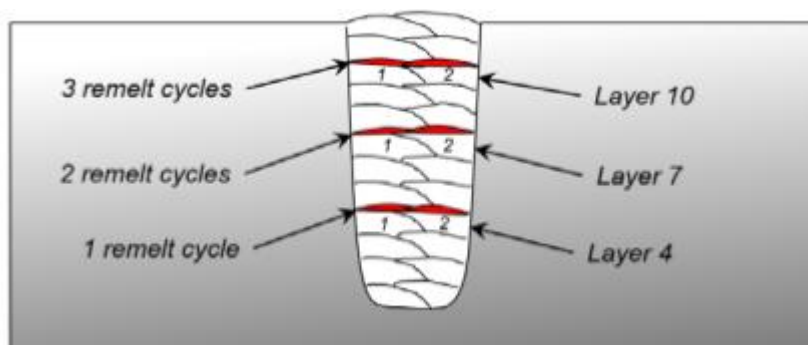


Figure 2.8 : Schéma de l'empilement des passes de l'essai de refusions de l'EPRI (20).

Les avantages et les inconvénients de cet essai sont similaires à ceux de la maquette de Young (cf. § 2.2.3.1), à ceci près que l'instrumentation importante de l'essai facilite sa simulation numérique. De plus, la fissuration semble favorisée dans la ZAT des passes de refusions, ce qui permet une mise en évidence plus aisée du phénomène de DDC ; ce point sera discuté ultérieurement.

2.2.3.3 Synthèse sur les essais de soudage bridés ou autobridés

Les essais de sensibilité à la fissuration à chaud bridés ou autobridés permettent de tester la sensibilité des matériaux à la DDC lors du soudage, dans une configuration qui peut s'avérer très proche des conditions réelles. Si ces essais sont assez simples à mettre en œuvre, puisque ce ne sont finalement que des opérations de dépôt de métal d'apport dans un chanfrein, ils nécessitent une grande quantité de matière pour pouvoir être mis en œuvre (cf. tableau 2.3).

Tableau 2.3. Tableau récapitulatif des essais de soudage bridés ou autobridés.

<i>Essai</i>	<i>Quantité de matière nécessaire estimée</i>	<i>Donnée de sortie</i>
<i>Maquette de Young</i>	~ 600 cm ³	Nombre de fissures par unité de surface
<i>Maquette de Mo</i>	> 1 000 cm ³	Nombre de fissures, longueur de fissures cumulée et longueur de fissures cumulée par unité de surface
<i>Essai de refusions de l'EPRI</i>	> 10 000 cm ³	Nombre de fissures, longueur de fissures cumulée, longueur maximale de fissure

2.2.4 Synthèse des essais de sensibilité à la fissuration par chute de ductilité.

Il existe une assez grande variété d'essais permettant de tester la sensibilité d'un métal à la fissuration par chute de ductilité, que ce soit de manière directe en observant des fissures ou en étudiant sa ductilité à chaud. Le tableau 2.4 présente une synthèse des essais permettant d'évaluer la sensibilité à la fissuration à chaud tels que présentés dans la littérature.

Tableau 2.4. Synthèse des essais de sensibilité à la fissuration par chute de ductilité.

<i>Essai</i>	<i>Matière testée</i>	<i>Donnée de sortie</i>	<i>Références</i>
<i>Essais de simulation thermomécanique : Traction à rupture</i>	Alliages à base de nickel et aciers austénitiques	Réduction de section en fonction de la température	(6, 9, 11–13, 21–26, 29, 38–40)
<i>Strain to fracture test (STF) et adaptations</i>	Alliages à base de nickel	Déformation pour les premières fissures en fonction de la température	(27–32, 34, 40–57)
<i>Essai PVR</i>	Alliages à base de nickel et aciers austénitiques	Longueur de fissures cumulée	(35, 54, 55, 58–62)
<i>Essai Varestreint et variantes</i>	Alliages à base de nickel et aciers austénitiques	Longueur de fissures cumulée	(7, 10, 13–15, 25, 38, 59, 63–65)
<i>Essais auto bridés</i>	Alliages à base de nickel	Nombre de fissures par unité de surface, longueur totale de fissures cumulée	(18–20, 37, 66)

2.2.5 Tentative de comparaison de résultats issus de la littérature concernant l'influence de la composition chimique sur la DDC

La littérature suggère principalement un effet du niobium et du molybdène ainsi que du soufre et du phosphore sur la sensibilité à la fissuration par chute de ductilité. Les résultats de différentes publications ont été compilés afin de présenter, sur la figure 2.9 et la figure 2.10, la sensibilité à la DDC en fonction de la somme des teneurs en soufre et en phosphore (« S+P ») et en fonction de la somme des teneurs en niobium et molybdène « Nb+Mo » (sauf pour l'encadré « c » ou seule la teneur en Nb est disponible). Le détail de la composition des différents alliages est disponible en annexe 7.1.1, p.169. Chaque graphe peut rassembler les résultats issus de différentes références utilisant la même technique d'évaluation de la sensibilité à fissuration par chute de ductilité. La sensibilité à la DDC est ici toujours présentée de manière normée de telle sorte que 1 corresponde à la sensibilité maximale et 0 à la sensibilité minimale mesurée sur chaque série de ces publications. Les alliages considérés sont uniquement les métaux d'apport pour le soudage de l'Inconel 690™,

de composition nominale voisine de Ni30Cr10Fe (le détail des compositions est donné en annexe 7.1).

Les deux graphes de la figure 2.9a rassemblent les résultats de différentes publications (28, 31–33, 40, p. 201; 53, 56) utilisant l'essai STF (cf. § 2.2.1.2), caractérisant les seuils de déformation nécessaires à la fissuration à 950°C.

Les deux graphes de la figure 2.9b rassemblent les résultats de deux études (51, 67) utilisant l'essai STF in situ (cf. § 2.2.1.2), caractérisant les seuils de déformation nécessaires à la fissuration.

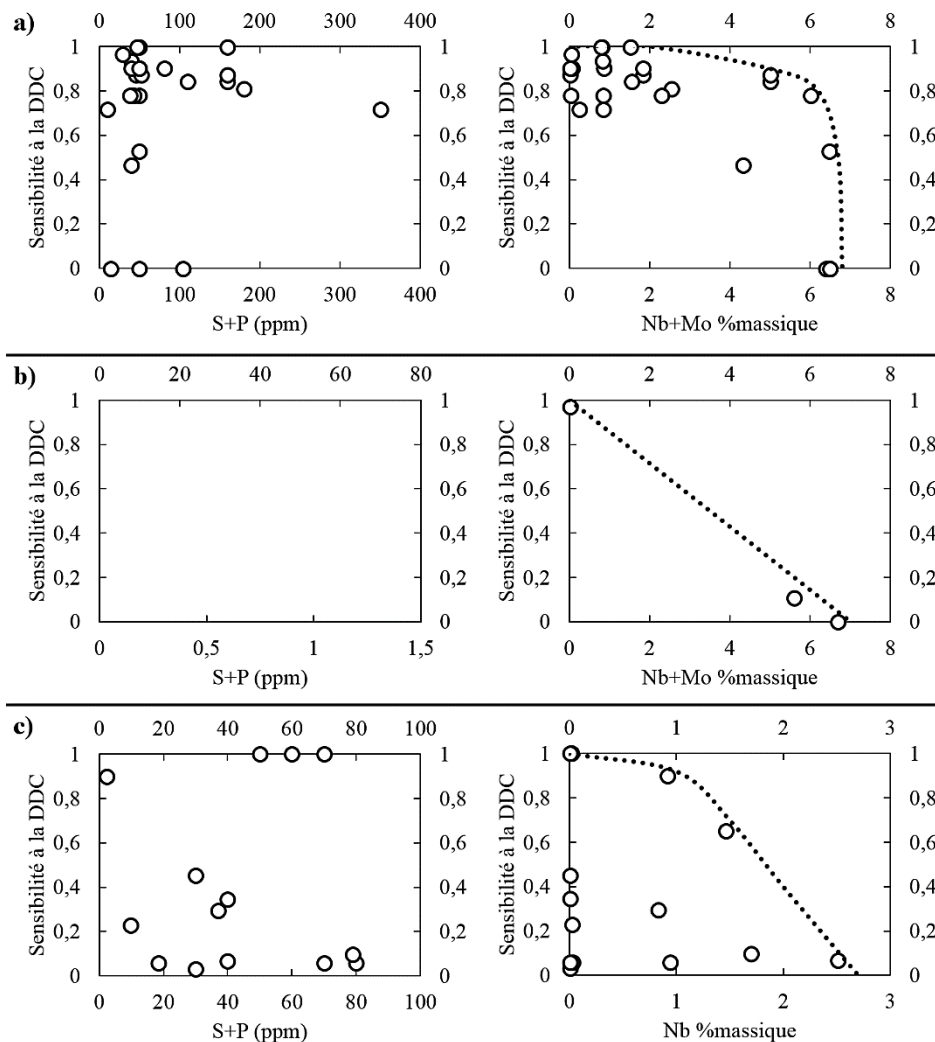


Figure 2.9. Sensibilité à la DDC en fonction de la somme S+P et de la somme Nb+Mo. Résultats issus de a) (28, 31–33, 40, p. 201; 53, 56) ; b) (51, 67) ; c) (19) – Les courbes en pointillés servent de guides pour les yeux.

Les deux graphes de la figure 2.9c rassemblent les résultats des tests de sensibilité à la fissuration par chute de ductilité obtenus avec la maquette de soudage de Young (19) (cf. § 2.2.3.1), caractérisant le nombre de fissures par unité de surface.

Les deux graphes de la figure 2.10a rassemblent les résultats de deux études utilisant l'essai PVR (60, 62) (cf. § 2.2.2.1), caractérisant le nombre de fissures à environ $8 \text{ mm} \cdot \text{min}^{-1}$ de vitesse de déplacement de la traverse.

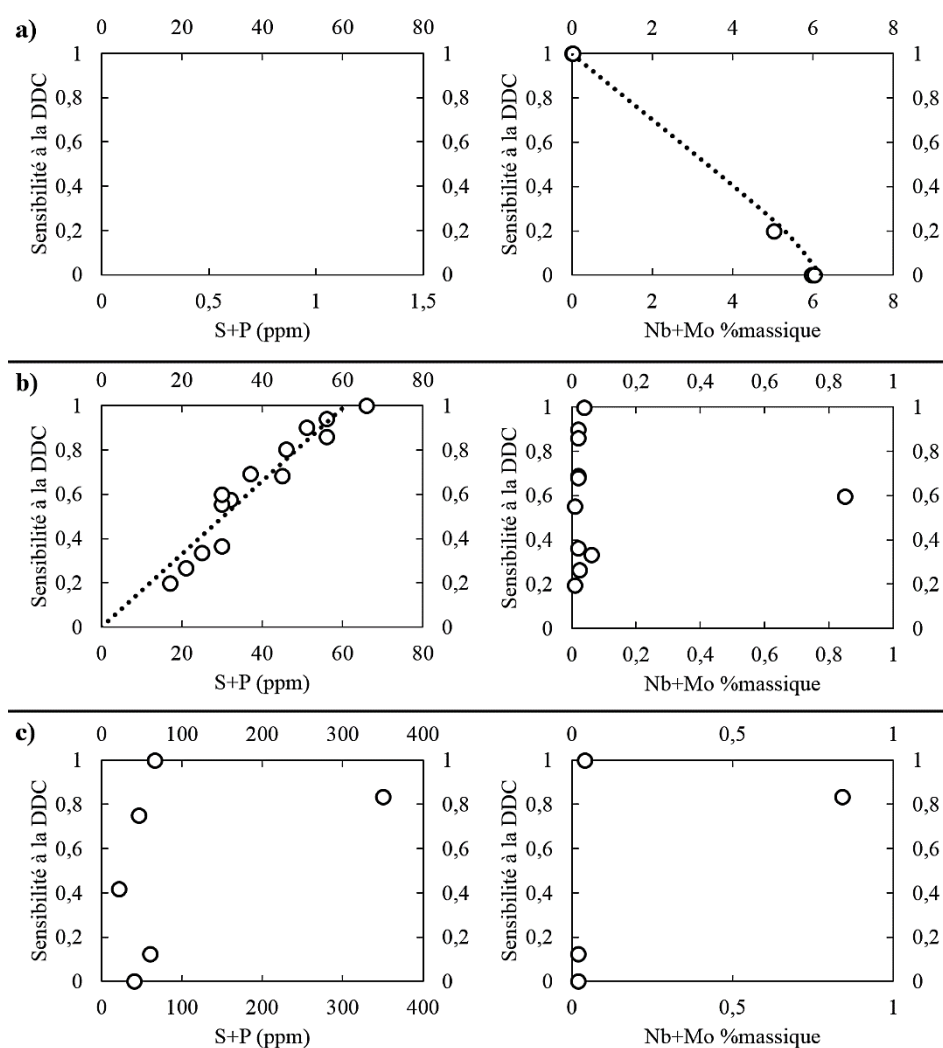


Figure 2.10. Sensibilité à la DDC en fonction de la somme S+P et de la somme Nb+Mo. Résultats issus de a) (60, 62) ; b) (68) ; c) (21, 25, 40) – Les courbes en pointillés servent de guides pour les yeux.

Les deux graphes de la figure 2.10b rassemblent les résultats des essais Varestreint effectués par Saida et coll. (68) (cf. § 2.2.2.2), caractérisant l'intervalle de température dans lequel des fissures de DDC ont été observées (DTR, Ductility Temperature Range).

Les deux graphes de la figure 2.10c rassemblent les résultats des essais de ductilité à chaud par traction à rupture (cf. § 2.2.1.1.), caractérisant le minimum de réduction de section mesuré et normalisé.

Dans la figure 2.9 et la figure 2.10a il est possible de remarquer que lorsque la teneur en Nb+Mo augmente, la sensibilité à la fissuration par chute de ductilité diminue. Cependant dans le cas de la maquette de soudage de Young de la figure 2.9c, certains alliages présentant des teneurs très faibles en Nb sont très peu sensibles à la DDC selon ce test. Il est également à noter que l'essai STF (figure 2.9a) présente des alliages relativement sensibles à la DDC avec des teneurs assez importantes en Nb+Mo.

Enfin dans la figure 2.10b,c, les alliages testés présentent une relativement faible teneur en Nb+Mo et des niveaux de sensibilité assez disparates.

Pour les alliages de la figure 2.10b (essais Varestraint caractérisant la sensibilité à la DDC par la largeur de la DTR), il semble y avoir un lien entre les teneurs en soufre et phosphore et la sensibilité à la DDC.

Il reste cependant assez difficile de comparer directement les résultats issus de différentes publications, et ce pour plusieurs raisons. Tout d'abord, il est délicat d'établir une équivalence entre un résultat obtenu par essai STF et un résultat obtenu par essai Varestraint par exemple. Le degré de sévérité des essais est vraisemblablement très différent. De plus, avec une même technique il arrive que les différentes équipes de recherche n'utilisent pas tout à fait les mêmes paramètres de test. Ensuite, la teneur en certains éléments n'est parfois pas renseignée ; il n'y a pas toujours d'indications quant aux techniques qui ont permis d'obtenir ces compositions ni quant à la précision de ces mesures (problématique spécifique aux très faibles teneurs en soufre et phosphore). Enfin, les variations de composition d'un alliage à l'autre portent toujours sur plusieurs éléments à la fois, ce qui complique l'interprétation des résultats. C'est l'une des raisons qui nous ont conduits à élaborer dans ce travail des alliages modèles, dans lesquels on peut faire varier la concentration de tel ou tel élément, « toutes choses égales par ailleurs ».

Cette partie présentait les diverses techniques de caractérisation de la sensibilité à la fissuration par chute de ductilité. Elles répondent à différentes contraintes (matière disponible, matériel disponible) ; elles sont plus ou moins aisées à mettre en œuvre, et leur interprétation semble délicate. La prochaine partie se propose de décrire les différents mécanismes métallurgiques proposés dans la littérature comme responsables de la fissuration par chute de ductilité.

2.3 Les mécanismes de la fissuration par chute de ductilité

Après avoir précisé quelles sont les caractéristiques de la fissuration par chute de ductilité seront détaillées les différentes hypothèses relatives aux mécanismes métallurgiques pouvant en être responsables.

2.3.1 Les caractéristiques de la fissuration par chute de ductilité

La fissuration par chute de ductilité est un phénomène de fissuration intergranulaire à chaud à l'état solide qui touche notamment les alliages austénitiques (cubiques à faces centrées) (57). Elle résulte d'une baisse de la ductilité dans un intervalle de température intermédiaire, comme présenté sur la figure 2.11 (typiquement $0,5 T_{\text{solidus}} - 0,8 T_{\text{solidus}}$: cet intervalle est appelé DTR pour Ductility dip Temperature Range avec T_{solidus} ou T_S la température de solidus du matériau).

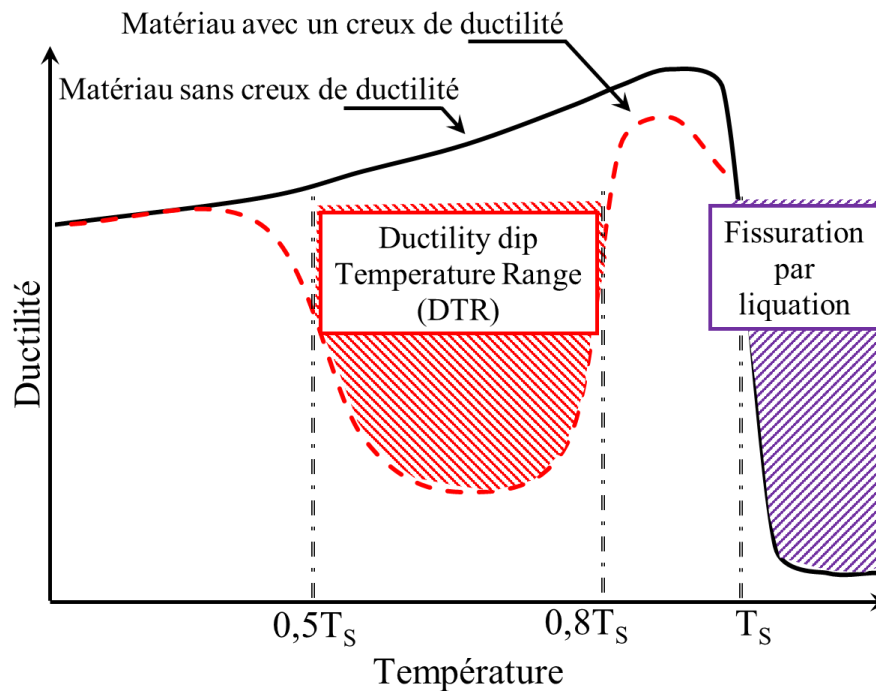


Figure 2.11. Schéma de la ductilité en fonction de la température, adapté de (54).

2.3.2 Le glissement des joints de grains comme mécanisme de fissuration ?

Le glissement des joints de grains lors de la fissuration par chute de ductilité est rapporté depuis de nombreuses années comme un marqueur de ce phénomène. Il a été observé par Zhang et coll. sur les alliages Fe-36%Ni (69). Plus tard, il est décrit par Ramirez et Lippold sur des alliages à base de nickel pour application à l'industrie nucléaire (44). Il a également été observé lors d'essais STF in situ (cf. § 2.2.1.2) par Torres et al (34). Dernièrement ce glissement a été observé, par marquage de surface d'éprouvettes de test à la fissuration par DDC, par Chen et coll. (40) ou Eilers et coll. (70). Un exemple d'observation de ce glissement des joints de grains est présenté figure 2.12. Pour réaliser ces observations et quantifier le glissement des joints de grains, les auteurs de l'étude ont marqué la surface de leurs éprouvettes avec des lignes parallèles à la direction de sollicitation. Ils observent, après la fissuration des éprouvettes, une discontinuité, légère, des lignes de marquage, preuve selon eux du glissement des joints de grains. Il est à noter que cette expérience n'indique pas si les décalages des lignes se sont produits avant, pendant ou après la fissuration.

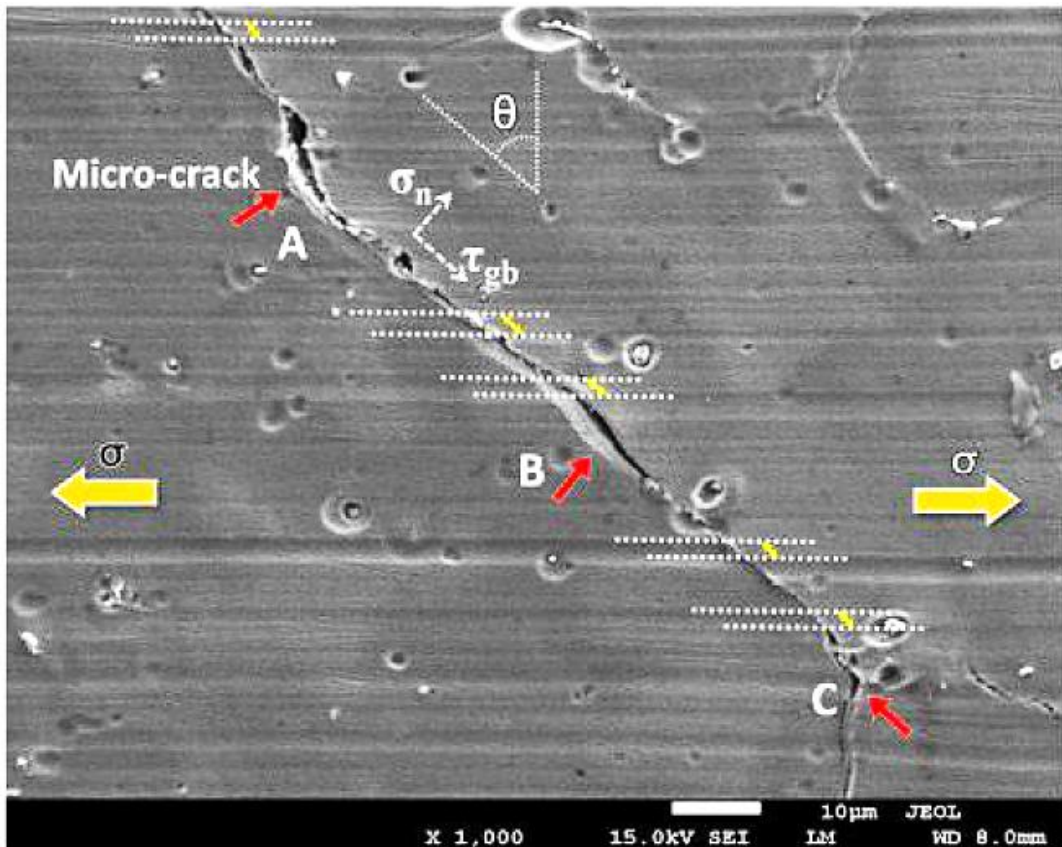


Figure 2.12. Exemple de glissement des joints de grains observé autour d'une fissure de DDC (40).

Il est donc possible que les fissures de DDC s'ouvrent suite à un glissement des grains les uns sur les autres. Cependant en 2012, Zheng (71) explique que le glissement intergranulaire n'est pas responsable de la décohésion intergranulaire dans les alliages concernés par la DDC. En effet, les alliages ultra-purs sont généralement moins sensibles à la DDC et la perte de ductilité disparaît à haute température alors que le glissement intergranulaire est de plus en plus prononcé à mesure que la température augmente. Du reste, cette hypothèse n'explique pas quels mécanismes endommagent les joints de grains au point de les faire rompre.

2.3.2.1 Influence de la morphologie des joints de grains

Plusieurs études ont été consacrées à l'influence de la morphologie des joints de grains sur la résistance à la DDC. Les alliages présentant des joints de grains plus tortueux seraient ainsi moins sensibles à la fissuration par chute de ductilité comme reporté par Collins, Ramirez, Kiser ou encore Unfried par exemple en 2003, 2004, 2008 et 2014 (30, 33, 45, 72). L'effet proposé de la tortuosité des joints de grains est une meilleure répartition des contraintes mécaniques induites par les changements de

direction des joints de grains. Il se peut que cet effet soit lié au mécanisme de glissement précédemment évoqué.

Il est cependant à noter que la tortuosité des joints de grains rapportée dans la plupart des études est seulement qualitative. Ces études s'appuient généralement sur la comparaison d'images (images MEB³, cartographies EBSD⁴ ou microscopie optique) sans quantification de cette tortuosité.

En 2016 Kadoi et coll. (56) proposent toutefois d'étudier trois alliages à base de nickel dont ils évaluent la sensibilité à la DDC à l'aide de l'essai STF (cf. § 2.2.1.2) ainsi que la tortuosité des joints fissurés. Le ratio de tortuosité des joints de grains fissurés est calculé comme suit. Si L est la longueur entre deux points d'inflexion d'un joint fissuré et h la distance maximale entre la ligne droite reliant les points d'inflexion et le joint de grains, alors le ratio de tortuosité est égal au rapport entre h et L . La corrélation, forte, entre la sensibilité des matériaux à la DDC et la tortuosité mesurée aux joints fissurés est présentée figure 2.13. Dans cette étude, les alliages présentent toutefois de légères différences de composition en plus de celle imposée par l'addition de niobium, supposée augmenter la tortuosité des joints de grains (cf. § 2.3.2.2.).

³ Microscopie électronique à balayage

⁴ Diffraction des électrons rétrodiffusés

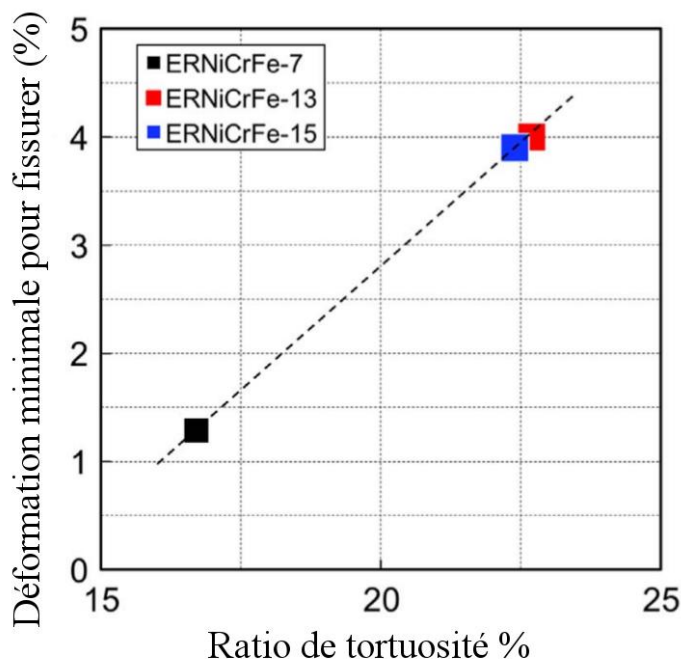


Figure 2.13. Sensibilité à la DDC en fonction de la tortuosité des joints de grains, adapté de (56) (la température du minimum de ductilité varie en fonction des alliages).

Il est à noter cependant qu'une étude présentée par Fink (73) montre qu'il est possible de fabriquer des alliages présentant des joints de grains plutôt rectilignes et qui sont pourtant résistants au test STF. Le seuil de déformation au test STF à 950°C est supérieur à 6%, soit 2% supérieur au seuil STF à 950°C de l'alliage le plus résistant testé par Kadoi et coll., bien que présentant des joints de grains plutôt rectilignes.

Afin de pouvoir statuer sur l'influence effective de la tortuosité des joints de grains sur la fissuration par chute de ductilité, il faudrait avoir des caractérisations quantitatives de la tortuosité des joints de grains à mettre en regard des résultats de sensibilité à la DDC.

2.3.2.2 Influence des carbures primaires sur la morphologie des joints de grains

Les carbures primaires, de type MC (où M est généralement du niobium) sont décrits dans la littérature comme se formant en fin de solidification (dans le métal liquide). De ce fait, ils épinglent les joints de grains lors de leur migration induisant une tortuosité intergranulaire plus importante (33, 42, 44). L'amélioration de la résistance à la DDC par le niobium a été observée à de plusieurs reprises et des

développements de nouvelles nuances ont été faits dans ce sens. L'influence bénéfique du niobium sur la fissuration par DDC, par la formation des carbures primaires, a été étudiée par différentes équipes avec des moyens d'essais divers (19, 31, 33, 36, 52, 60, 62).

Cependant, le niobium diminue la température du solidus, augmente la plage de température solide + liquide (31, 60) et augmente donc la sensibilité à la fissuration de solidification. C'est la raison pour laquelle certains auteurs proposent de substituer le niobium par d'autres éléments formant des carbures primaires, comme le tantale, ce qui permettrait d'améliorer la résistance à la DDC tout en conservant une bonne résistance à la fissuration de solidification (28, 73). Cette solution est encore à l'étude et même si elle semble prometteuse dans la mise en place d'alliages résistants, elle n'explique pas la cause de la fissuration.

Le schéma de la figure 2.14 présente l'influence de la précipitation intergranulaire sur le glissement des joints de grains et sur la DDC, telle que proposée par Ramirez et Lippold en 2004 (44).

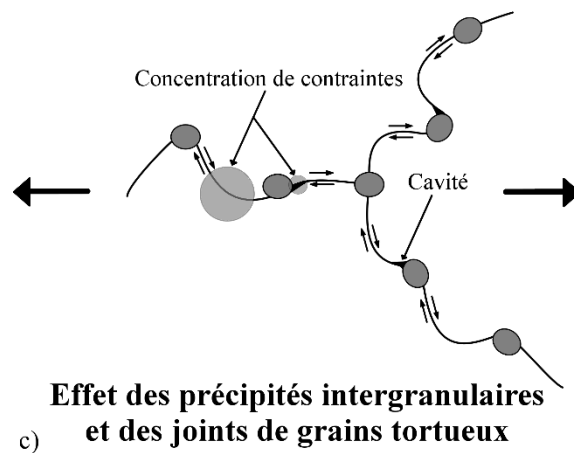
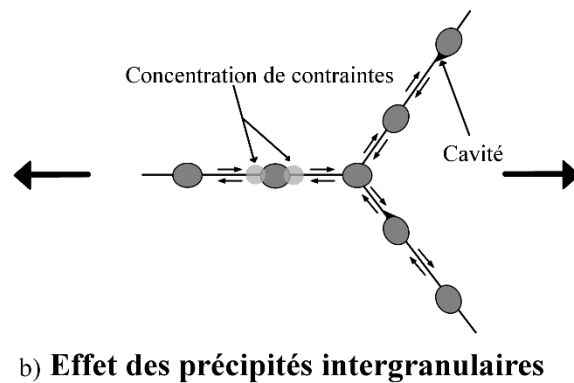
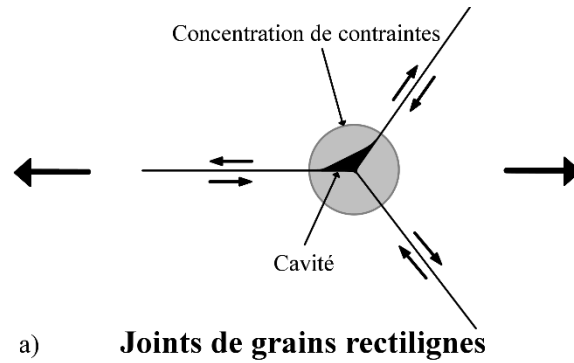


Figure 2.14. Schéma de la réduction du glissement des joints de grains par la précipitation intergranulaire et la tortuosité induite par les carbures, adapté de (44).

Dans le cas de joints de grains rectilignes, les contraintes s'accumulent aux points triples et initient la fissuration. Lorsque les joints de grains renferment des précipités, ceux-ci opposent une résistance au glissement et donc réduiraient ainsi la fissuration. Si ces précipités se forment avant la migration des joints de grains, ceux-ci vont épingler les joints de grains. La tortuosité induite par ce phénomène ainsi que la présence de précipités intergranulaires vont permettre, d'après l'interprétation proposée par Ramirez et Lippold, de mieux répartir encore les contraintes induites

par le soudage, ce qui permettait de réduire le glissement des joints de grains et donc la fissuration.

Quels que soient les phénomènes mis en jeu, il semble établi qu'ajouter des éléments d'alliage permettant la formation de carbures primaires, tels que le niobium ou le tantale par exemple, réduit la sensibilité à la fissuration par DDC.

2.3.2.3 *Influence des carbures secondaires*

L'influence des carbures secondaires, et en particulier des carbures de type $M_{23}C_6$ (« M » étant majoritairement du chrome) que l'on retrouve dans les alliages à base de nickel, sur la fissuration par chute de ductilité fait toujours débat.

La précipitation intergranulaire de ces carbures a été étudiée dans les aciers inoxydables à partir des années 1960 (74, 75). En 2004, Lim et coll. (76) reproduisent un travail mené sur les aciers sur un alliage à base de nickel de type 690. La précipitation semble être fortement liée au caractère des joints sur lesquels elle se produit. En effet, les précipités ne sont jamais observés sur les joints de macles, les joints de grains généraux présentent des gros précipités en faible quantité et une précipitation fine et abondante est observée sur les joints de grains à faible désorientation.

En 2004, Ramirez et Lippold (44) suggèrent un double effet de ces carbures sur le glissement des joints de grains. D'une part ces précipités défavoriseraient le glissement des joints de grains mais d'autre part, les contraintes induites par le soudage s'accumuleraient autour de ces précipités pour former des cavités, dont la croissance et la coalescence conduiraient à la fissuration par DDC. Noecker et DuPont (21) remarquent qu'une dissolution des carbures intergranulaires par traitement thermique réduit la ductilité à chaud. Ils supposent cependant que la formation de carbures secondaires, dans le même temps que s'accumulent les contraintes, peut augmenter la sensibilité à la fissuration par DDC. En 2016, Fink (54) observe que la présence de carbures intergranulaires augmente le seuil de déformation nécessaire pour provoquer les premières fissures par le test STF et renforce donc la résistance à la DDC. Cependant, pour des niveaux de déformation appliquée supérieurs à cette limite, la quantité de fissures observée est plus

importante, ceci étant attribué par les auteurs au fait que l'augmentation du nombre de carbures augmente le nombre de sites de germination de cavités.

En 2008, Young et coll. (18) proposent une explication semblable et identifient la DDC comme un phénomène de fissuration induit par la précipitation de carbures aux joints de grains, en mettant en regard des résultats de simulation de cinétique de précipitation sur un alliage théorique constitué de nickel, de chrome, de fer et de carbone et des résultats de sensibilité à la fissuration par chute de ductilité. Mo et coll. (77) attribuent également un effet augmentant la fissuration de DDC à ces carbures, de même que Wei et coll. en 2016 (78).

En 2009, Nissley et Lippold (50) suggèrent au contraire que les carbures $M_{23}C_6$ s'opposent au glissement des joints de grains et pourraient contribuer à réduire la DDC, dans l'hypothèse où elle résulterait d'un glissement des joints. En 2014, Chen et coll. (40) associent les $M_{23}C_6$ à une augmentation de la résistance au glissement des joints des grains et donc à une meilleure résistance à la DDC.

Enfin, Sjöström et Åkesson en 2017 (29) concluent que les $M_{23}C_6$ ne semblent pas avoir d'influence sur le phénomène.

Comme il est possible de le voir à travers ces différents exemples, certains auteurs suggèrent un double effet des carbures sur la fissuration par chute de ductilité, d'autres uniquement un effet néfaste, d'autres uniquement un effet bénéfique quand d'autres enfin ne pensent pas que les carbures aient une influence sur la DDC. L'influence réelle de ces carbures sur le phénomène de fissuration par chute de ductilité n'est donc pas claire. De plus, et pour reprendre ce qu'expliquent Zheng et coll. en 2012 (71), le fait que certains alliages exempts de précipités (ou même le nickel pur), soient sensibles à ce phénomène semble exclure que la précipitation de carbures secondaires joue le rôle de principal pilote de ce mécanisme de fissuration.

2.3.3 Influence de la ségrégation des impuretés aux joints de grains

2.3.3.1 Généralités sur la ségrégation interfaciale

Définition : *La ségrégation interfaciale exprime [...] le rassemblement, sur les interfaces du matériau, d'une (ou de plusieurs) espèce(s) chimique(s) (79).* Nous ne parlons pas ici de la ségrégation d'éléments majoritaires présents dans les alliages, mais plutôt de la ségrégation d'impuretés telles que le soufre ou le phosphore. La ségrégation de tels éléments peut avoir lieu sur toutes les interfaces du matériau, que ce soit les surfaces libres, les pores, les fissures, les joints de grains ou les joints interphases. Chacune de ces interfaces possède cependant ses spécificités propres, et les impuretés considérées n'y ségrègent pas de la même manière. Nous ne faisons ici que des rappels succincts permettant d'appréhender au mieux le travail présent. Pour plus de détails sur la ségrégation interfaciale dans les métaux, nous renvoyons à l'ouvrage Endommagement interfacial des métaux (79).

2.3.3.2 Forces motrices de la ségrégation

Un métal, comme tout système, cherche à réduire son enthalpie libre autant que possible. La ségrégation se produit lorsqu'elle permet un tel abaissement. L'abaissement de l'enthalpie libre qui accompagne le passage d'un atome d'impureté du volume vers l'interface peut avoir comme origine :

- la baisse de l'énergie élastique du métal ;
- la modification de l'énergie interfaciale ;
- les variations de l'enthalpie et de l'entropie de mélange du système impureté métal dans le joint relativement à celle du grain.

2.3.3.3 Thermodynamique de la ségrégation

Une interface est un défaut cristallin dans laquelle il existe des liaisons chimiques insaturées. L'excès d'énergie interne généré par ces liaisons insaturées rend l'enthalpie libre spécifique de l'interface supérieure à l'enthalpie libre spécifique du réseau cristallin. Cette enthalpie libre dépend de la température, de la pression et de son volume spécifique, de sa structure cristalline et de sa composition. Le système considéré, par exemple deux grains et le joint de grains qui les sépare, va chercher à minimiser son enthalpie libre par des réarrangements du réseau cristallin, la création

de dislocations, la redistribution des atomes entre les grains et le joint de grains, pouvant entraîner une ségrégation de l'impureté des grains vers le joint de grains.

Il est possible de calculer, à l'aide de l'équation thermodynamique de McLean (79, 80), simplifiée à un système à deux éléments avec une impureté très diluée, le taux de recouvrement en impureté dans l'interface $\theta = \frac{X}{X_{max}}$, avec X la concentration de l'impureté dans l'interface et X_{max} la concentration maximale (compte tenu du nombre de sites de ségrégation disponibles) de l'impureté dans l'interface considérée. X et X_{max} peuvent être exprimées en masse ou en nombre d'atomes de soluté ségrégué par unité de surface (g.cm^{-2}) ou en fraction de monocouche.

$$\theta = \frac{X_V \times \exp\left(-\frac{\Delta G}{RT}\right)}{1 + X_V \times \exp\left(-\frac{\Delta G}{RT}\right)} \quad (2.1.)$$

Avec, R , la constante des gaz parfaits, T , la température, X_V , la fraction molaire de l'impureté dans le volume et ΔG l'enthalpie libre de ségrégation (négative) de l'espèce considérée dans l'interface. Un exemple de courbe tracée à l'aide de l'équation 2.1 est présenté sur la figure 2.15. Cet exemple concerne le couple nickel – soufre.

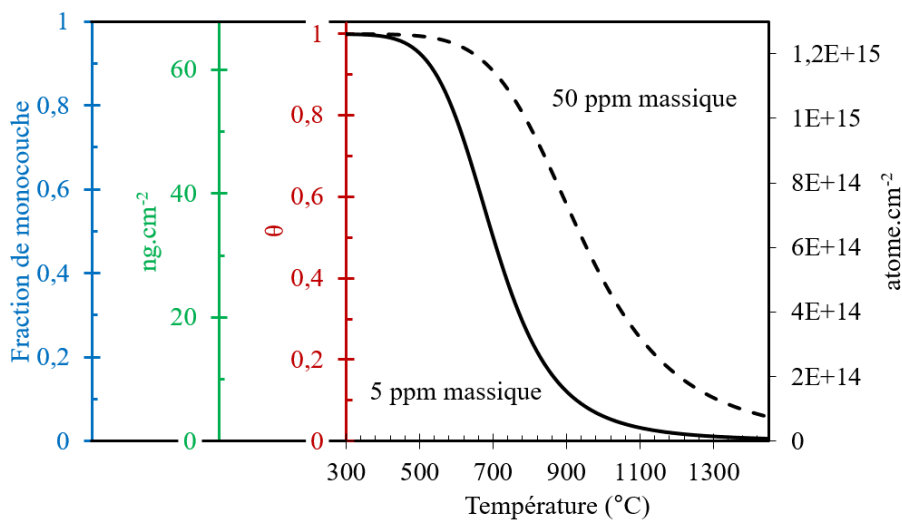


Figure 2.15. Concentration intergranulaire de soufre à l'équilibre dans le nickel en fonction de la température, tracée à partir de l'équation 2.1 pour deux teneurs en volume X_V . Les paramètres retenus sont ceux donnés par Allart et coll. (81) : $\Delta G = -93,9 \text{ kJ.mol}^{-1}$, $X_{max} = 97\%$ d'une monocouche, soit $65,8 \text{ ng.cm}^{-2}$ soit $1,26 \times 10^{15}$ atomes par centimètre carré.

2.3.3.4 Cinétique de la ségrégation

La cinétique de ségrégation d'une impureté dans une interface est régie par la diffusion de celle-ci à travers le réseau cristallin, et dépend donc de sa mobilité. Il n'est de ce fait pas toujours possible d'atteindre l'équilibre thermodynamique proposé par l'équation 2.1. Le coefficient de diffusion D d'un soluté s'écrit sous la forme d'une loi d'Arrhenius selon l'équation suivante (82) :

$$D = D_0 \times \exp\left(-\frac{Q}{RT}\right) \quad (2.2.)$$

Avec D_0 le facteur préexponentiel et Q l'énergie d'activation de la diffusion du soluté.

À l'aide la loi simplifiée de McLean (80), il est possible de calculer la cinétique de ségrégation intergranulaire :

$$X(t) = 4 \times X_V \times \sqrt{\frac{D \times t}{\pi}} \quad (2.3.)$$

Où X est la concentration d'impureté dans l'interface considérée, exprimée en masse ou en nombre d'atomes de soluté par unité de surface et X_V est la concentration de soluté en volume (masse ou nombre d'atomes par unité de volume). L'équation 2.3 n'est valable en toute rigueur que pour des temps suffisamment courts, c'est-à-dire lorsqu'on est « loin » du niveau de ségrégation d'équilibre.

La figure 2.16 présente l'effet de la concentration et de la température sur les cinétiques de ségrégation. À nouveau, cet exemple concerne le système nickel – soufre. Une augmentation de la concentration volumique à température constante se traduit par une augmentation du niveau de ségrégation d'équilibre et une accélération de la cinétique (cf. figure 2.16a). Une augmentation de la température, à concentration volumique constante, se traduit par une diminution du niveau de ségrégation d'équilibre et une accélération de la cinétique (cf. figure 2.16b).

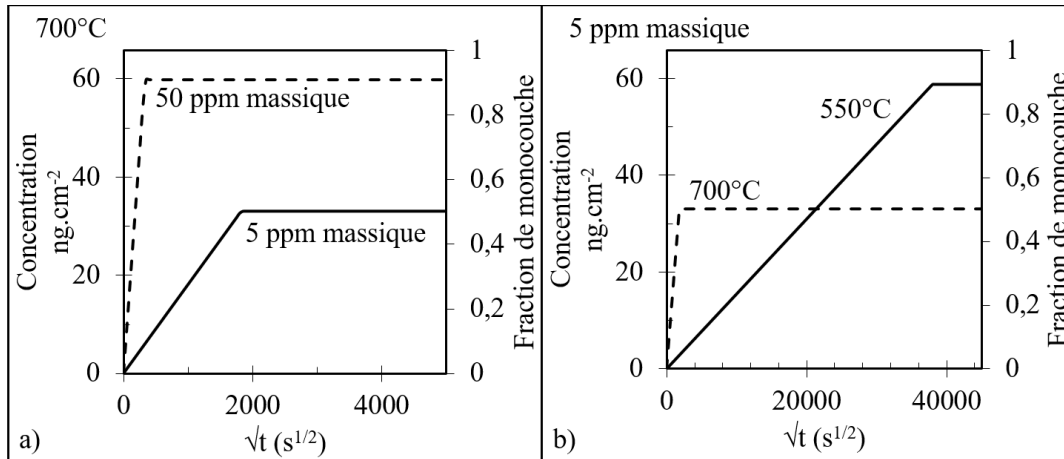


Figure 2.16. Exemples de cinétiques de ségrégation intergranulaire du soufre dans le nickel (concentration intergranulaire de soufre en fonction de la racine carrée du temps). L'encadré a) représente un calcul à 700°C pour deux teneurs volumiques en soufre. L'encadré b) représente un calcul pour une même teneur en soufre mais à deux températures différentes. Le coefficient de diffusion du soufre est calculé à l'aide de l'équation (2.2) avec $D_0 = 1,4 \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ et $Q = 218,6 \text{ kJ} \cdot \text{mol}^{-1}$ (83).

2.3.3.5 Application à la perte de ductilité

Certains alliages austénitiques sont connus pour être difficilement forgeables à chaud. Cette perte de forgeabilité, qui est parfois associée à une perte de ductilité (79), peut entraîner une rupture intergranulaire fragile à haute température (84). Dans le nickel pur, le soufre abaisse la cohésion des joints de grains dans lesquels il ségrège (79) et peut être responsable d'une forte perte de ductilité dans la gamme de température 550°C-1150°C (85).

En 1979, à l'aide d'essais de ductilité à chaud (cf. § 2.2.1.1), Yamaguchi et coll. (22) observent une corrélation forte entre la teneur en soufre et la ductilité de l'alliage Inconel 600™. Dans leur étude, le calcium et le magnésium présents dans les alliages testés semblent réduire l'impact néfaste du soufre. Différentes études, menées sur la soudabilité (10) et la ductilité à chaud (86, 87) des alliages Fe-36%Ni dans les années 1980 et 1990, attestent de l'influence néfaste du soufre. Un exemple de la perte de ductilité à chaud observée sur les alliages Fe-36%Ni en fonction de la teneur en soufre est présenté figure 2.17.

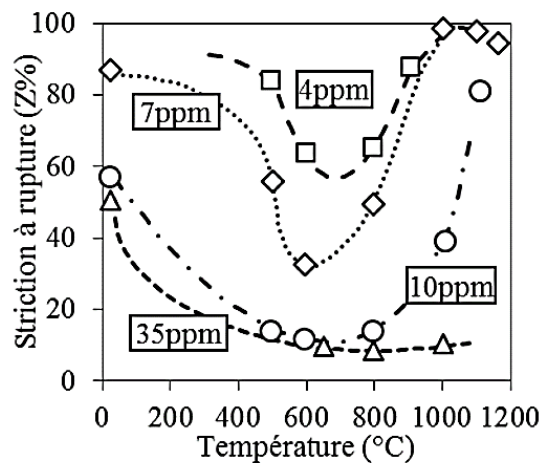


Figure 2.17. Creux de ductilité pour différentes teneurs en S pour des alliages Fe-36%Ni - adaptés de (87)– les lignes sont des guides pour les yeux.

Dans les années 2000, des études menées spécifiquement sur la susceptibilité à la fissuration par DDC dans les alliages à base de nickel utilisés dans l'industrie attestent d'un effet aggravant du soufre sur le phénomène (42, 44). Capobianco et Hanson (66) observent du soufre, par spectrométrie Auger, à la surface de fissures de DDC. Ces fissures étaient présentes dans la maquette de soudage et ont été ouvertes dans le spectromètre. Les auteurs ne savent cependant pas si le soufre observé par spectroscopie Auger est le résultat d'une ségrégation aux joints (qui aurait provoqué la fissuration intergranulaire) ou celui d'une ségrégation de surface dans une fissure déjà ouverte, auquel cas la ségrégation peut ne pas être la cause de la fissuration. Fournier Dit Chabert (88) a détecté du soufre sur la surface fraîchement formée par le prolongement intergranulaire fragile à température ambiante, dans un spectromètre Auger, d'une fissure de DDC. Le soufre était donc présent dans le joint avant l'ouverture de ce joint.

Une série d'études sur l'influence du soufre et du phosphore sur la DDC a été menée au Japon (68, 89, 90). Pour évaluer la sensibilité à la DDC les auteurs ont mesuré la DTR (intervalle de température dans lequel une chute de la ductilité est observée, Ductility dip Temperature Range) après des essais spot-Varestraint menés sur des variantes de métaux d'apport pour le soudage de l'Inconel 690™ (cf. § 2.2.2.2). La DTR a dans ces études été déduite à partir des distances pour lesquelles des fissures de DDC étaient observées. Une corrélation forte est obtenue

entre la teneur en soufre et phosphore des alliages testés et la largeur de la DTR, comme présenté figure 2.18.

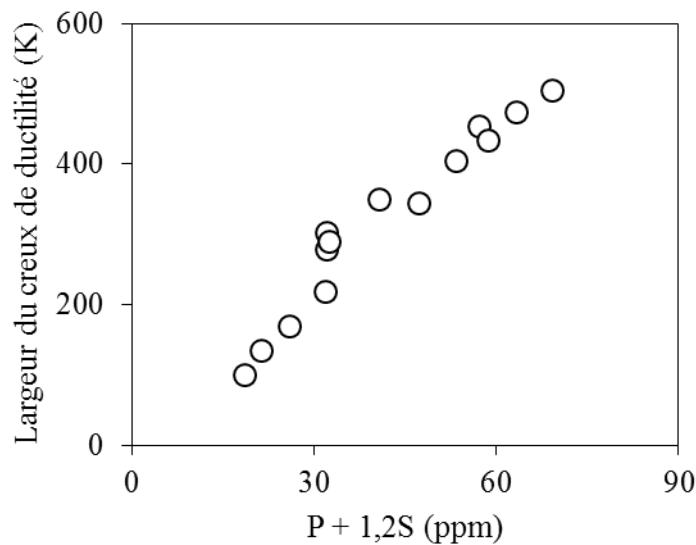


Figure 2.18. DTR mesurée lors d'essais spot-Varestraint en fonction de la teneur en soufre et phosphore (la meilleure corrélation étant obtenue en fonction de la quantité $P+1,2S$) adapté de (68).

En 2012, Zheng et coll. reportent un travail sur les phénomènes d'endommagement du nickel et de ses alliages aux températures intermédiaires (71). Ils passent en revue les hypothèses avancées pour expliquer la perte de ductilité observée sur ces alliages. Dans le cas particulier de la ségrégation, ils expliquent que la ségrégation du soufre à l'équilibre n'est pas assez rapide et avancent l'hypothèse d'une ségrégation hors d'équilibre.

En 2013, Allart et coll. (91) observent que la déformation plastique a une influence très forte sur la vitesse de ségrégation du soufre aux joints de grains dans le nickel (contenant 5,4 ppm en masse de soufre). Comme il est possible de le voir sur la figure 2.19., la vitesse de diffusion du soufre vers les joints de grains est fortement dépendante de la vitesse de déformation. La ségrégation du soufre semble liée à la déformation plastique puisque les mêmes niveaux de ségrégation sont atteints aux mêmes niveaux de déformation plastique pour les deux vitesses de déformation testées. Deux mécanismes, selon les auteurs de cette étude, sont susceptibles de transporter le soufre lors de la déformation, le transport du soufre par les dislocations ou bien une diffusion accélérée par la présence de lacunes supplémentaires induites par la déformation plastique.

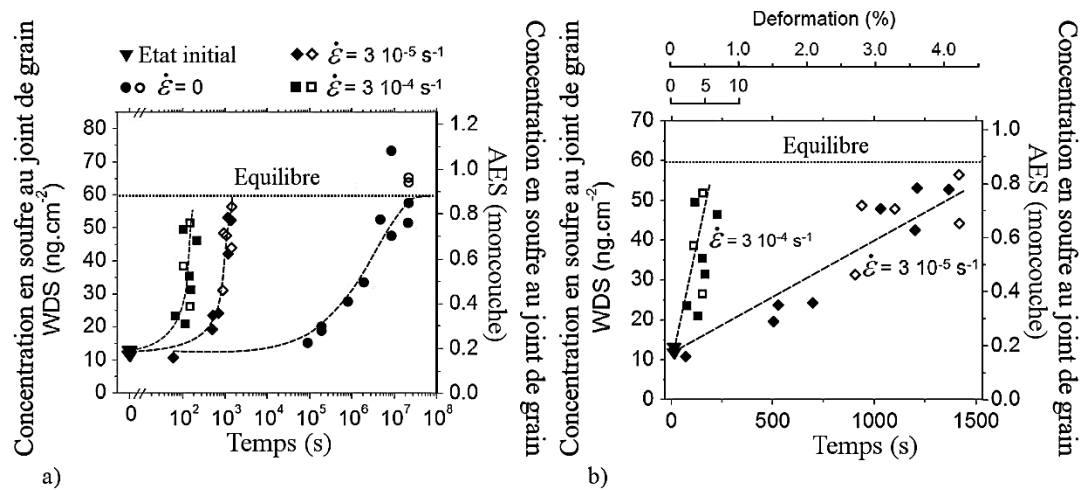


Figure 2.19. Concentration en soufre aux joints de grains mesurée par WDS et spectrométrie Auger (AES) en fonction : a) du temps pour trois vitesses de déformation et b) du temps et de la déformation plastique pour deux vitesses de déformation pour du nickel contenant 5,4 ppm en masse de soufre. La température est de 550°C (91).

2.3.4 Autres explications

2.3.4.1 Influence de la taille des grains

En 2017, Hua et coll. ont étudié l'influence du soudage assisté par ultrasons sur la sensibilité à la DDC (92). En impulsant des ultrasons en amont de la torche de soudage à une fréquence de 20 kHz, la taille des grains a été diminuée de manière significative, de même que leur facteur de forme. Il y avait donc plus de joints de grains mais ils étaient plus courts. Les résultats qu'ils ont obtenus à l'aide du test STF montrent que le matériau soudé avec assistance ultrasonore est plus résistant que le matériau soudé de manière conventionnelle. Cette augmentation de la résistance à la fissuration a été associée par les auteurs à la réduction de la longueur des joints de grains et à leur plus grand nombre. L'influence de la taille des grains sur la résistance à la DDC avait déjà été relevée par Fink en 2016 (54).

2.3.4.2 L'accumulation de dislocations aux joints de grains comme cause ?

En 2017, Qian et coll. (93) ont proposé une explication de la DDC basée sur l'accumulation aux joints de grains de dislocations induites par les déformations d'origine thermique lors du soudage. Pour arriver à cette conclusion, ils ont analysé quarante grains adjacents à une fissure de DDC par microdiffraction des rayons X pour en caractériser les dislocations. Les auteurs proposèrent la représentation schématique de la figure 2.20. Les déformations d'origine thermique induites par le soudage génèrent des dislocations. Celles-ci peuvent se retrouver bloquées dans leur

déplacement lorsqu'elles rencontrent un joint de grains fortement désorienté. L'empilement de ces dislocations augmente localement les contraintes qui peuvent alors dépasser la limite de cohésion du joint, favorisant la formation de cavités, leur croissance, coalescence et finalement entraîne la rupture des joints de grains.

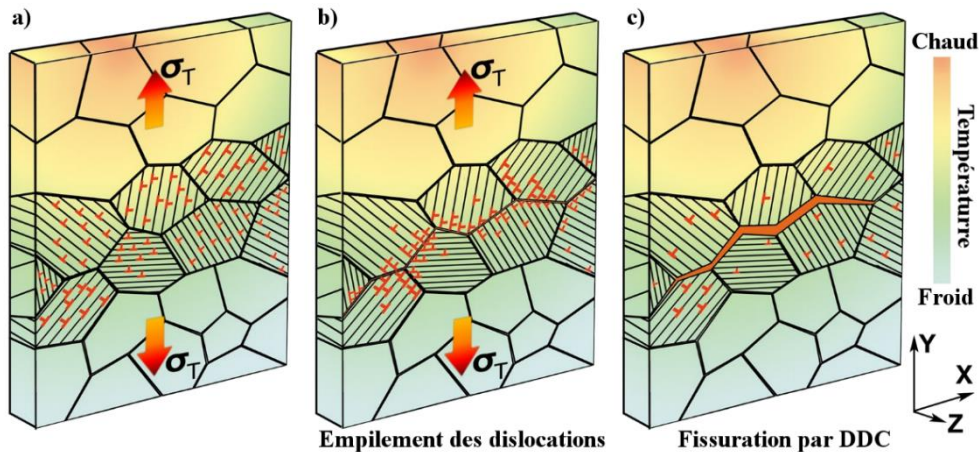


Figure 2.20. Représentation schématique de la fissuration pilotée par accumulation de dislocations telles que proposée par Qian et coll., adapté de (93).

Il convient de noter que la publication de Qian et coll. ne présente des analyses des bandes de dislocations que dans les joints de grains adjacents à la fissure caractérisée. Il serait intéressant d'avoir une analyse similaire sur d'autres joints de grains pour savoir si les joints fissurés présentent une accumulation de dislocations plus importante que les joints non fissurés.

On peut souligner par ailleurs que l'empilement des dislocations sur les joints de grains est un phénomène systématique dans la plasticité des polycristaux, sans que cela s'accompagne forcément de fissuration intergranulaire, ce qui nous laisse penser qu'il ne peut s'agir d'une cause unique de la DDC.

2.3.4.3 L'importance du cyclage

Dans les récents travaux de l'EPRI (20), les auteurs suggéraient que le cyclage thermomécanique avait une importance très forte sur la fissuration. Ainsi avec le développement de leur essai (cf. § 2.2.3.2) incluant des passes de refusions sans dépôt de matière, les auteurs ont montré qu'un matériau non fissurant dans des conditions normales de dépôt pouvait s'avérer sensible à la fissuration de DDC après deux ou trois passes de refusions sans apport de matière. Ces refusions successives feraient

passer une partie de la ZAT plusieurs fois dans l'intervalle de température de perte de ductilité. Ces passages successifs dans la DTR, couplés aux contraintes mécaniques, pourraient expliquer la fissuration.

2.3.5 Résumé sur les hypothèses

Le tableau 2.5 classe les différentes hypothèses présentées dans cette partie en donnant pour chacune d'entre elles une liste de références, les années de publication et le type d'alliages concernés.

Tableau 2.5. Synthèse des explications du phénomène de DDC.

<i>Mécanisme</i>	<i>Année</i>	<i>Auteur</i>	<i>Alliages testés</i>	<i>Référence</i>
<i>Glissement des joints de grains</i>	1985			
	2004	Zhang, Ramirez	Fe-36%Ni	(34, 40, 44, 69, 70)
	2010	Torres, Chen	et	
	2014	Eilers	Ni-Cr-Fe	
	2017			
<i>Morphologie des joints de grains (la tortuosité et la taille des grains ont une influence sur la résistance à la DDC)</i>	2003	Collins, Ramirez	Ni-Cr-Fe	(19, 28, 30, 31, 33, 36, 45, 52, 54, 56, 62, 72, 73, 92)
	2004	Young, Lippold		
	2007	Kiser, Mo		
	2008	Unfried, Tirand		
	2013	Afonso, Kadoi		
	-	Fink, Hope		
2017	Hua			
<i>Les carbures secondaires augmentent la fissuration</i>	2004		Ni-Cr-Fe	(18, 26, 44, 54, 77, 78)
	2008	Ramirez, Young		
	2009	Noecker, Mo		
	2014	Wei, Fink		
	2016			
<i>Les carbures secondaires réduisent la fissuration</i>	2004		Ni-Cr-Fe	(21, 40, 44, 50, 54)
	2009	Ramirez, Nissley		
	2014	Noecker, Chen		
	2016	Fink		
<i>Ségrégation d'impuretés aux joints de grains (soufre, phosphore)</i>	1979	Yamaguchi	Fe-36%Ni Alliages à base de nickel et nickel	(10, 22, 42, 44, 66, 68, 71, 79, 86, 87, 89, 90)
	1984	Matsuda		
	1991	Ben Mostefa		
	1995	Perrot-Simonetta		
	2002	Saïndrenan		
	2004	Ramirez, Collins		
	2005	Capobianco		
	2006	Nishimoto		
	2010	Okauchi, Saida		
	2012	Zheng		
<i>Dislocations</i>	2017	Qian et coll.	Alliages à base de nickel	(93)

2.4 Problématique

L'état de l'art présenté dans cette partie reprend les différentes techniques de caractérisation existantes pour étudier et évaluer la sensibilité à la fissuration par DDC des matériaux (cf. tableau 2.4). Il est également proposé un aperçu des différentes hypothèses existantes pour expliquer ce phénomène (cf. tableau 2.5).

Il existe à ce jour de nombreux essais pour tester la sensibilité des alliages à la fissuration à chaud par manque de ductilité (cf. § 2.2). Il n'y a toutefois pas de consensus clair en faveur de l'une ou l'autre des techniques existantes. Il semblerait ainsi utile d'évaluer la pertinence de différents types d'essais ainsi que leur facilité de mise en œuvre, voire d'en déduire un moyen simple et fiable de caractérisation de la résistance à la DDC. Ce sera l'un des axes de ce travail.

Par ailleurs, il est souvent supposé que la fissuration par chute de ductilité augmente avec l'amplitude de glissement des joints de grains (cf. § 2.3.2), bien que ceci ne suffise pas à expliquer pourquoi les joints de grains rompent. La morphologie des joints de grains et la taille des grains semblent avoir une influence forte sur la fissuration ; la résistance à la fissuration augmente le plus souvent avec la tortuosité des joints de grains et diminue avec la taille des grains (cf. § 2.3.2.1 et § 2.3.2.2). Cependant la tortuosité des joints de grains est rarement quantifiée.

Le rôle des carbures, qu'ils soient primaires ou secondaires, n'est pas entièrement clair en particulier en ce qui concerne les carbures secondaires (cf. § 2.3.2.2 et § 2.3.2.3), et en cela l'influence de la teneur en carbone des alliages reste largement indéterminée. Il serait ainsi intéressant d'étudier cette influence et son interaction éventuelle avec celle d'autres additions ; cet aspect sera également l'objet du présent travail. En outre, parmi les principaux éléments métalliques d'addition rencontrés dans la famille des alliages « 690 », il semblerait que seul le rôle bénéfique du niobium (et de Mo et/ou Ta dans certains cas) sur la résistance à la DDC soit établi (cf. § 2.3.2.2) ; son étude spécifique ne paraît donc pas prioritaire même si on veillera ici à d'éventuelles interactions avec d'autres éléments.

Enfin, la ségrégation interfaciale de certains éléments semble avoir une influence forte sur la fissuration (cf. § 2.3.3) bien que certains alliages à forte teneur

en soufre ne soient pas sensibles au phénomène. Il apparaît donc nécessaire d'étudier l'influence du soufre et d'éventuelles interactions avec d'autres éléments.

3 Matériaux et méthodes

3.1 Fabrication et caractérisation des matériaux

Deux alliages industriels ont été approvisionnés pour ce travail de thèse. Il s'agit de deux blocs de métal déposés avec des métaux d'apport pour le soudage de l'alliage Inconel 690™. L'un est un métal d'apport pour le soudage à l'électrode enrobée, l'alliage 152, l'autre un métal d'apport pour le soudage à l'arc sous protection de gaz inerte avec électrode de tungstène (ou soudage TIG), l'alliage 52M.

Par ailleurs, quatre alliages modèles ont été élaborés. Ces quatre alliages ont été basés sur la composition chimique de l'alliage 52M, sans niobium puisque le rôle de cet élément a pu être assez clairement identifié à partir de la littérature (cf. Chapitre 1) et avec des teneurs différentes en carbone et soufre dans le but d'étudier l'influence de ces deux éléments sur la sensibilité à la fissuration par DDC.

Les compositions des alliages seront précisées ultérieurement.

3.1.1 Fabrication

3.1.1.1 Fabrication des maquettes de soudage

Les deux alliages industriels considérés dans ce travail sont des métaux d'apport pour le soudage, déposés par soudage à l'arc sous forme de blocs. Les blocs ont été réalisés par la société AREVA au centre technique de Saint-Marcel (voir figure 3.1). : soudage TIG pour l'alliage 52M et soudage à l'électrode enrobée pour l'alliage 152.

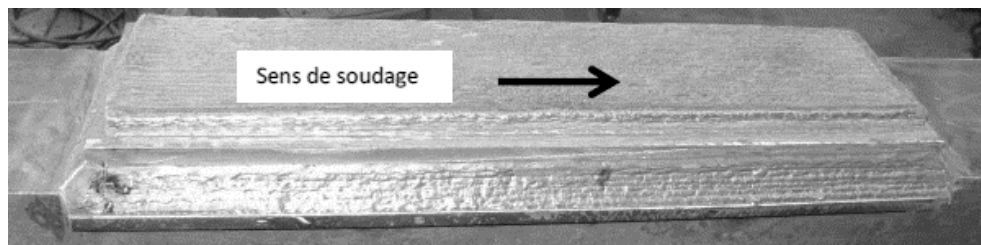


Figure 3.1. Vue de la maquette de soudage de l'alliage 152 en cours de réalisation, image AREVA.

Le dépôt a été effectué sur une tôle support en alliage Inconel 600™ bridée sur un ensemble rigide, selon le schéma présenté sur la figure 3.2. Le soudage induisant

des effets de bords et de dilutions, 7 mm de matière ont été chutés sur le pourtour du métal déposé. Le bloc obtenu, a des dimensions de $1000 \times 130 \times 60 \text{ mm}^3$.

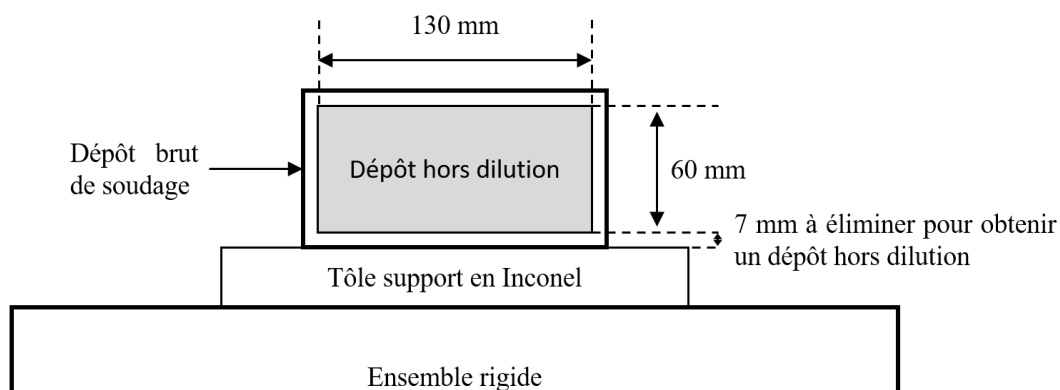


Figure 3.2. Schéma de fabrication des blocs d'alliages industriels.

Les paramètres de soudage utilisés pour la réalisation de ces dépôts sont présentés dans le tableau 3.1 pour l'alliage 152 et dans le tableau 3.2 pour l'alliage 52M.

Tableau 3.1. Paramètres de soudage pour la fabrication du dépôt de l'alliage 152.

Tension (V)	23/24
Intensité (A)	128
Vitesse (cm.min^{-1})	20

Tableau 3.2. Paramètres de soudage pour la fabrication du dépôt de l'alliage 52M.

Tension haute (V)	$12 \pm 0,5$
Intensité haute (A)	280 – 310
Intensité basse (A)	175 – 185
Intensité moyenne (A)	212 – 228
Fréquence (Hz)	2
Vitesse (cm.min^{-1})	7,7 – 8,6

Il convient de noter que dans cette configuration de soudage, qui correspond à un dépôt de métal à plat sur une tôle plane (donc sans contraintes imposées par un chanfrein, ou une géométrie de soudage particulière), il est possible, avec des paramètres ad hoc, de déposer de grandes quantités de matière sans qu'il y ait fissuration, alors que les conditions industrielles de soudage sont susceptibles de conduire à une fissuration.

3.1.1.2 Fabrication des alliages modèles

Afin de tester l'influence sur la DDC du soufre, du carbone et de leur éventuelle interaction, des alliages modèles ont été fabriqués en visant des teneurs hautes et/ou basses de ces éléments, à l'intérieur des spécifications d'EDF afin d'avoir des compositions représentatives des gammes utilisées en industrie (bas S \approx 3 ppm, haut S \approx 50 ppm, bas C \approx 10 ppm et haut C \approx 400 ppm). Ainsi, quatre alliages modèles ont été produits : basses teneurs en soufre et en carbone (« base »), bas soufre et haut carbone (« base + C »), haut soufre et bas carbone (« base + S »), et finalement haut soufre et haut carbone (« base + CS »). Les alliages modèles ont été fabriqués dans les laboratoires de l'École des Mines de Saint-Étienne par fusion en nacelle froide sous atmosphère protectrice. Les éléments métalliques (Ni, Cr, Fe, Mn, Ti, Al...) provenaient de métaux de très haute pureté. À la fin du processus de fabrication, environ 400 g de chaque alliage modèle étaient disponibles. Après solidification, les quatre lingotins ont été forgés à température ambiante de façon à obtenir des parallélépipèdes de dimensions 8×50×130 mm³.

3.1.2 Composition chimique

Il convenait de vérifier que la composition chimique des alliages industriels correspondait bien aux spécifications du code de construction des matériaux considérés, à savoir, le RCC-M⁵ de l'AFCEN⁶ en France (94), de manière à ancrer l'étude dans le cas d'alliages représentatifs de ceux utilisés dans l'industrie. D'autre part, il était important de disposer des teneurs d'éléments présents à l'état de traces pour une connaissance plus complète des matériaux dans la perspective de l'étude de fissuration.

Pour déterminer la composition des alliages étudiés, plusieurs méthodes de mesure ont été utilisées en fonction des éléments chimiques considérés. Pour la majorité des éléments, la mesure a été réalisée par spectrométrie de fluorescence des rayons X (95). Du fait de la limite de quantification de cette méthode, elle a été complétée par la spectrométrie de masse à décharge lumineuse ou GDMS (Glow

⁵ Règle de conception et de construction des matériels mécaniques des îlots nucléaires REP

⁶ Association Française pour les règles de conception et de construction des matériels des Chaudières ElectroNucléaires

Discharge Mass Spectroscopy) (96), afin de préciser la teneur des éléments présents à l'état de traces (<0,1 % en masse). Enfin, les teneurs de carbone, oxygène, azote et soufre dans les alliages modèles et industriels ont été déterminées par analyse par combustion. Le tableau 3.3 présente la composition des alliages industriels et rappelle les spécifications des normes associées à ces alliages. Les alliages industriels respectent bien leurs spécifications de références.

Tableau 3.3. Composition des alliages industriels étudiés.

		Mesures		Code RCC-M 2016 (94)		
		52M	152	52M	152	Référence alliage 690
%massique	Ni	59,5	55,5 ⁷	Solde	Solde	≥ 58
	Cr	29,9 ⁷	28,7 ⁷	28,00 – 31,50	28,00 – 31,50	28,00 – 31,00
	Fe	8,5 ⁷	9,2 ⁷	8,00 – 11,00	8,00 – 12,00	8,00 – 11,00
	Mn	0,75 ⁸	3,7 ⁷	< 1,00	< 5,00	< 0,50
	Nb	0,84 ⁷	2,1 ⁷	–	–	–
	Nb + Ta			0,50 – 1,00	1,20 – 2,20	–
	Si	0,11 ⁸	0,51 ⁸	< 0,50	< 0,65	< 0,50
	Ti	0,23 ⁸	0,0810 ⁸	< 1,0	< 0,50	< 0,50
	Al	0,11 ⁷	0,0400 ⁸	< 1,10	–	< 0,50
Résiduels (ppm)	Cu	43 ⁸	58 ⁸	< 3000	< 5000	< 5000
	P	17 ⁸	82 ⁸	< 150	< 200	< 150
	O	30 ⁸	760 ⁸	–	–	–
	N	140 ⁸	210 ⁸	–	–	–
	C	130⁹	370⁹	< 400	< 450	100 – 400
	S	9,2⁸	51⁸	< 50	<100	< 100

Le tableau 3.4 présente la composition des alliages modèles. Ceux-ci ont été élaborés sur la base de la composition de l'alliage 52M disponible pour cette étude, mais dépourvu de niobium. Les teneurs en soufre et carbone sont ajustées à différents niveaux afin de tester leur influence sur la DDC. On observe que les éléments

⁷ Mesuré par fluorescence X, précis à ±1 sur le dernier chiffre de la mesure

⁸ Mesuré par GDMS, précis à ±20% de la valeur mesurée

⁹ Mesuré par analyse par combustion, précis à ±1 sur le dernier chiffre de la mesure

résiduels phosphore, oxygène et azote sont en plus faibles teneurs dans les alliages modèles que dans le 52M.

Tableau 3.4. Composition des alliages modèles étudiés.

		<i>Base</i>	<i>Base + C</i>	<i>Base + S</i>	<i>Base + CS</i>
%massique	Ni	Solde	Solde	Solde	Solde
	Cr ¹⁰	29,9	29,7	30,0	30,0
	Fe ¹⁰	8,42	8,44	8,44	8,41
	Mn ¹⁰	0,85	0,76	0,84	0,80
	Si ¹⁰	0,14	0,11	0,14	0,14
	Ti ¹⁰	0,21	0,21	0,21	0,21
	Al ¹⁰	0,13	0,13	0,13	0,13
Résiduels (ppm)	Nb ¹¹	3,3	3,6	NM ¹²	NM ¹²
	Cu ¹¹	8	8	NM ¹²	NM ¹²
	P ¹¹	1	1	NM ¹²	NM ¹²
	O ¹⁰	7	5	7	4
	N ¹⁰	1	1	1	1
	C¹⁰	11	404	16	418
	S	4,7¹¹	3,1¹¹	52¹⁰	56¹⁰

3.1.3 Caractérisation des métaux à l'état de réception

3.1.3.1 Microsonde électronique de Castaing

La microsonde de Castaing est une méthode d'analyse élémentaire inventée en 1951 par Raimond Castaing. Elle consiste à bombarder un échantillon avec un faisceau électronique focalisé et à analyser le spectre des rayons X émis par l'échantillon sous cette sollicitation (97), avec une résolution latérale de l'ordre du micromètre.

¹⁰ Mesuré par le centre SMS de l'École des Mines de Saint Étienne, précis à ± 1 sur le dernier chiffre

¹¹ Mesuré par GMDS, précis à $\pm 20\%$

¹² Non mesuré

La figure 3.3 présente une observation au microscope optique sur coupe polie après attaque à l'acide oxalique de l'alliage 152. La structure observée est bien une structure de solidification. La taille des dendrites est de l'ordre de 10 μm . La taille de grains est de plusieurs centaines de micromètres.

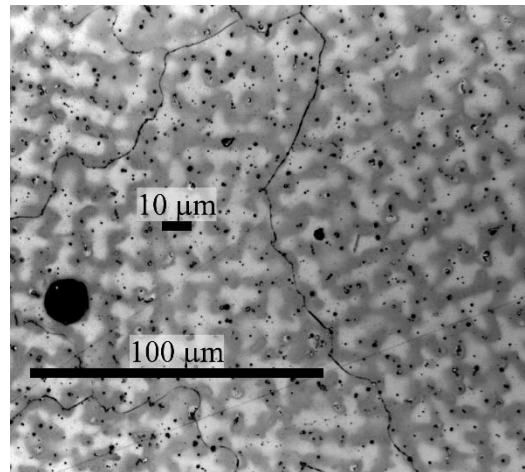


Figure 3.3. Observation sur coupe polie au microscope optique après attaque à l'acide oxalique de l'alliage 152 dans le plan de la surface du bloc à l'état de réception.

La figure 3.4 présente des cartographies des éléments Fe, Cr et Nb obtenues par microsonde électronique de Castaing sur l'alliage 152 à l'état de réception. La répartition des éléments observée sur l'alliage 52M est similaire. Il apparaît que les espaces interdendritiques sont moins riches en fer et en chrome que les dendrites. Les espaces interdendritiques sont enrichis en niobium.

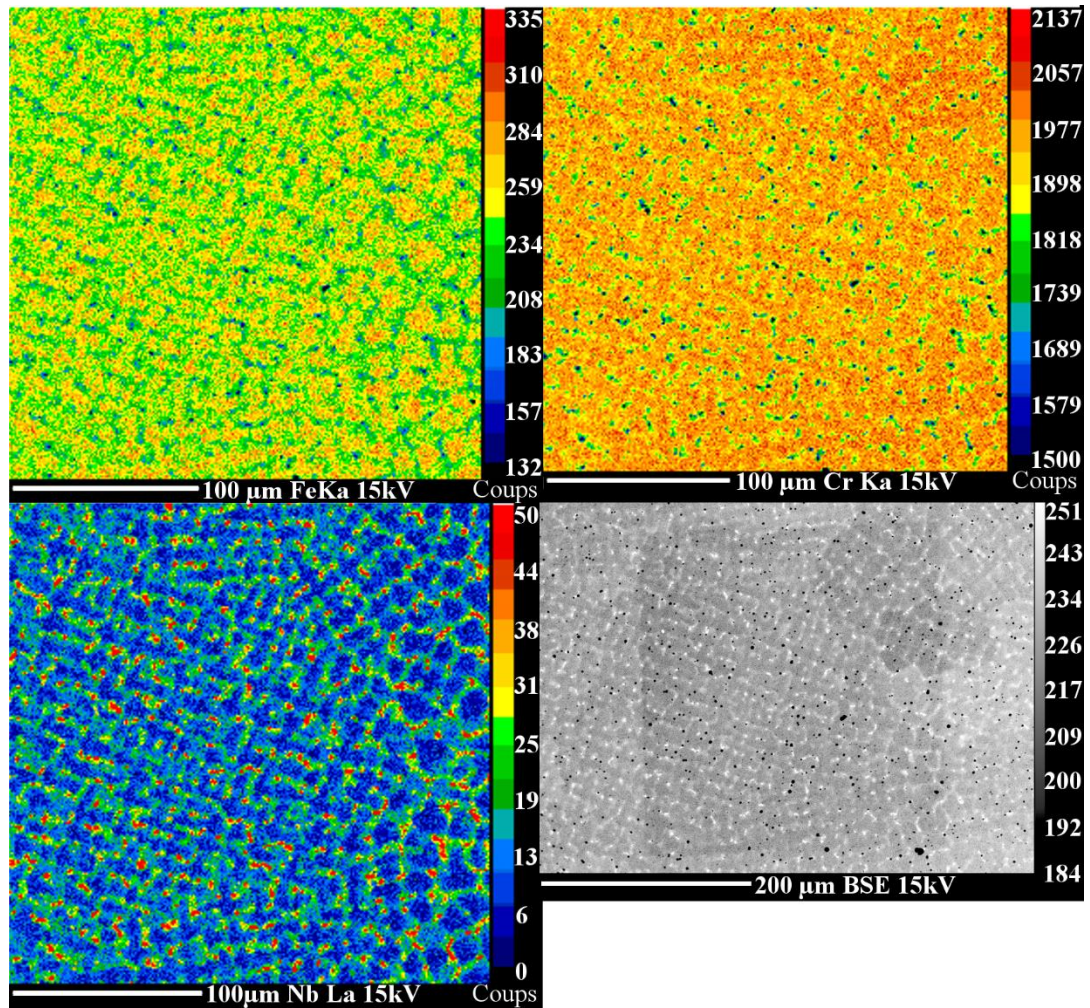


Figure 3.4. Cartographies des éléments Fe, Cr et Nb obtenues par microsonde électronique de Castaing sur l'alliage 152, et photographie MEB en électrons rétrodiffusés.

3.1.3.2 Analyse thermique différentielle

L'analyse thermique différentielle permet la détection des transformations de phases. Il est possible d'en donner la définition suivante (98) : *L'analyse thermique différentielle (ATD), est une technique d'analyse thermique qui consiste à suivre l'évolution de la différence de température entre l'échantillon étudié et un corps témoin inerte, c'est-à-dire dépourvu d'effets thermiques dans le domaine de température étudié.*

Les températures de liquidus et de solidus ont été mesurées par ATD sur les alliages 152 et 52M en utilisant du nickel pur comme matériau de référence. Les résultats de ces analyses ont été mis en regard des températures de solidus, T_S , et de

liquidus, T_L , calculées avec MatCalc® version 5.62¹³ et présentées dans le tableau 3.5. Les températures calculées sont proches des températures mesurées par ATD.

Tableau 3.5. Températures de solidus et de liquidus pour les alliages 152 et 52M. Comparaison entre les mesures ATD et les calculs MatCalc.

Nuance	Mesures ATD		Calculs MatCalc® ¹⁴	
	152	52M	152	52M
T_L (°C)	1335	1377	1335	1374
T_S (°C)	1272	1354	1247	1330
$T_L - T_S$ (K)	69	23	86	44

L'alliage 152 présente des températures de liquidus et de solidus significativement inférieures à celles de l'alliage 52M. De plus, l'écart $T_L - T_S$ est plus élevé pour l'alliage 152, ce qui le rend potentiellement plus sensible à la fissuration de solidification. Ceci est cohérent avec les compositions chimiques présentées dans le tableau 3.3. : l'alliage 152 contient notamment plus de niobium et de manganèse, qui augmentent l'intervalle de température de solidification et donc probablement la sensibilité à la fissuration de solidification (99).

3.1.3.3 Essais mécaniques

En plus des spécifications chimiques, les métaux d'apport pour le soudage doivent respecter certains critères mécaniques définis dans les normes. Des essais de tractions conventionnels ont ainsi été réalisés afin de bien vérifier que les matériaux que nous étudions sont représentatifs de ceux utilisés dans le parc nucléaire. Les valeurs des réductions de section à rupture obtenues lors de ces essais seront utilisées pour compléter les données obtenues lors des essais de traction à chaud sur simulateur thermomécanique, cf. § 4.1. L'ensemble des résultats des essais mécaniques est présenté en annexe 7.2.1.

¹³ MatCalc® est un logiciel dédié au calcul de précipitation qui permet également de calculer des équilibres thermodynamiques.

¹⁴ Les calculs de diagramme d'équilibre de phases sont faits avec la base de données thermodynamiques Ni2.011 en prenant en compte les éléments suivants : Ni, Cr, Fe, Mn, Nb, Al, Ti, Si, C, N.

3.2 Méthodes d'évaluation de la fissuration par chute de ductilité

Cette partie présente la méthode de mesure de ductilité à chaud par traction à rupture ainsi que l'un des tests de fissuration au soudage (l'essai Varestraint) mis en œuvre dans cette étude.

3.2.1 Mesure de la ductilité à chaud. Essai de traction à rupture sur simulateur thermomécanique

La ductilité à chaud des alliages industriels 152 et 52M a été mesurée par traction jusqu'à rupture à différentes températures. Pour se rapprocher des conditions de soudage caractérisées par des vitesses de chauffage et de refroidissement très élevées, les essais de traction sont réalisés sur un « simulateur thermomécanique » de marque Gleeble™, qui autorise de telles vitesses.

3.2.1.1 Géométrie des éprouvettes

Les éprouvettes sont placées dans des mors qui servent à appliquer les conditions thermomécaniques souhaitées. Un thermocouple soudé au centre de l'éprouvette permet de piloter la température. Le chauffage est assuré par effet Joule, le refroidissement par conduction vers les mors refroidis.

Le mode de chauffage peut induire un gradient thermique assez fort le long de l'éprouvette, suivant la géométrie de l'éprouvette et le matériau constitutif des mors. Seul le voisinage du thermocouple de régulation est à la température de consigne.

Le dessin retenu pour ces essais prévoit une réduction de la section au centre de l'éprouvette, selon le schéma présenté sur la figure 3.5. Cette réduction de section a eu un double avantage en permettant de concentrer les contraintes et le champ thermique, au centre de l'éprouvette, à la position du thermocouple de consigne. Les éprouvettes sont prélevées dans le sens travers des passes de dépôt du métal d'apport.

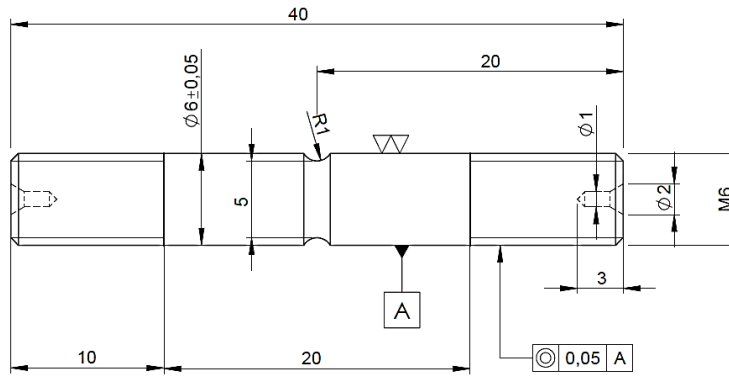


Figure 3.5. Schéma des éprouvettes utilisées pour les essais de traction à rupture sur simulateur thermomécanique.

3.2.1.2 Conditions d'essai

Au regard de ce qui se fait dans la littérature, il a été décidé de réaliser les essais au refroidissement (21). Il semblerait en effet que les effets de la DDC soient plus marqués au refroidissement qu'au chauffage (lors d'une passe de soudage, on peut s'attendre à ce que la matière soit en compression au chauffage et en traction au refroidissement ; cet aspect sera abordé ultérieurement).

Le cycle thermomécanique utilisé lors de nos essais est schématisé sur la figure 3.6. L'éprouvette est chauffée rapidement (environ 1000 K.s^{-1}) jusqu'à une température maximale d'environ 100 K de moins que la température du solidus. Le passage à cette température a pour objectif de remettre en solution les carbures secondaires. Après un court maintien ($\sim 2\text{s}$) à cette température, l'éprouvette est refroidie jusqu'à la température de test. Pendant le refroidissement (refroidissement libre, entre 200 K.s^{-1} et 50 K.s^{-1}), un déplacement des mors à faible vitesse ($0,014 \text{ mm.s}^{-1}$) est imposé pour garantir que l'éprouvette est maintenue en traction (du fait d'un possible jeu dans les mors). Une fois la température de test atteinte, l'éprouvette est rompue à grande vitesse, pour éviter les problèmes d'amorçage d'arcs électriques qui peuvent abîmer les faciès de rupture lors d'une traction plus lente.

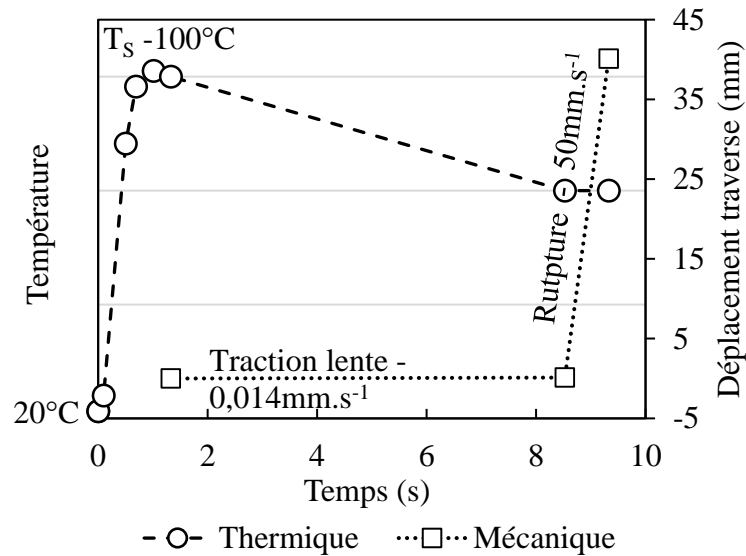


Figure 3.6. Schéma des conditions thermomécaniques utilisées pour les essais de traction à chaud, les gros points marquent les positions des ruptures de pente.

3.2.1.2.1 Précision sur la température mesurée

Il convenait d'estimer l'incertitude liée à l'erreur due au positionnement du thermocouple de consigne, et donc sur la mesure de la température de test. Pour cela, lors de certains tests, deux thermocouples ont été placés sur la même isotherme apparente. En comparant les températures mesurées en Kelvin, il est apparu que l'incertitude sur le placement des thermocouples conduit à environ 2% d'écart sur la mesure en kelvin de la température maximale atteinte pendant le cycle, écart qui se situe plutôt autour de 1% de la température mesurée en kelvin au moment de rompre l'éprouvette, soit environ 13 K de précision pour une température de test à $1000^{\circ}\text{C} \approx 1273\text{ K}$.

3.2.1.3 Traitement des essais

3.2.1.3.1 Mesure de la section à rupture

Pour chaque température de test, la réduction de section de la zone de striction est évaluée par le ratio Z , qui a été calculé selon la formule 3.1. où S_0 est la section initiale et S la section après rupture.

$$Z = \frac{S_0 - S}{S_0} \quad (3.1.)$$

Un essai à rupture produit deux faciès de rupture par éprouvette. Pour chaque éprouvette, la moyenne de la surface de ces deux faciès a été retenue. Les images ont

été acquises à l'aide d'une caméra Dino Lite et de son logiciel d'acquisition DinoCapture 2.0.

Le contour des surfaces de rupture a été défini manuellement. Un exemple de mesure de surface de rupture est donné à la figure 3.7.



Figure 3.7. Exemple de mesure de la surface d'un faciès de rupture, alliage 52M, essai à 850°C.

Afin d'estimer la précision sur ces mesures, les faciès de rupture de six éprouvettes ont été mesurés plusieurs fois : deux fois pour quatre d'entre elles, cinq fois pour une autre et six fois pour la dernière. Ces mesures ont été réalisées avec des orientations d'images différentes et avec au moins 24 h d'intervalle entre deux mesures pour une même éprouvette (pour tenter de s'affranchir d'un éventuel effet de la mémoire visuelle). L'incertitude de mesure ΔS a été estimée comme le rapport entre l'écart type et la moyenne de la série de mesures considérée (équation 3.2.).

$$\Delta S = \frac{100 \times \sqrt{\frac{1}{n} \times \sum_{i=1}^n (x_i - \bar{x})^2}}{\bar{x}} \quad (3.2.)$$

Avec, n le nombre mesures effectuées, x_i une mesure de la surface du faciès considéré et \bar{x} la moyenne de la série de mesures.

L'incertitude sur la moyenne des mesures des deux faciès d'une éprouvette est la même que celle estimée sur un seul faciès, soit 1,3%.

3.2.1.3.2 Estimation des fractions transgranulaires et intergranulaires des faciès de rupture

Les faciès de rupture obtenus au cours de cette étude sont mixtes : ils sont constitués d'une fraction intergranulaire et d'une fraction transgranulaire. Les zones des faciès transgranulaires sont toujours ductiles à grosses cupules. Les zones intergranulaires ont généralement peu de relief ou associées à des cupules très fines.

La fraction transgranulaire du faciès de rupture a été estimée à l'aide d'images MEB et du logiciel ImageJ par des mesures manuelles du rapport de la somme des zones identifiées comme ductiles sur la surface totale considérée ; un exemple est donné sur la figure 3.8.

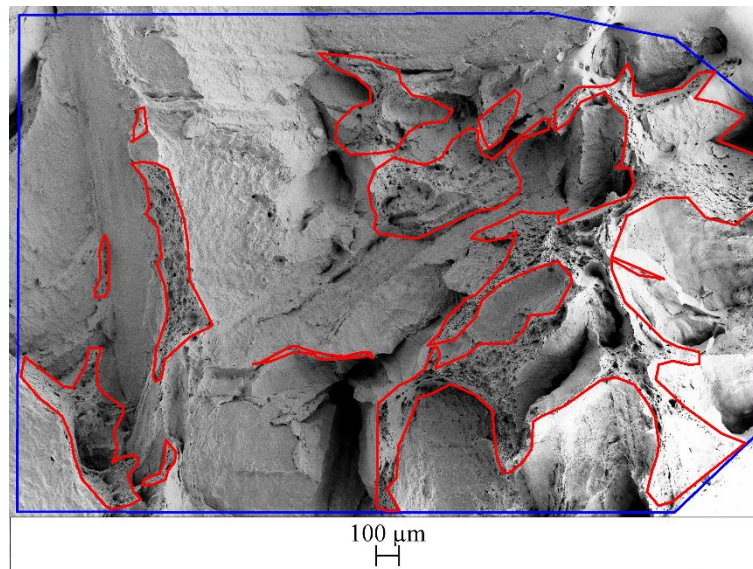


Figure 3.8. Exemple de mesure de la part de rupture transgranulaire sur un faciès de rupture - alliage 52M rompu à 1050°C, les zones transgranulaires sont entourées en rouge.

Pour chaque faciès observé, au moins cinq mesures ont été réalisées, toutes espacées d'au moins 24 h, en prenant soin de retourner l'image considérée pour s'affranchir autant que possible d'un effet de mémoire visuelle. Toutes les vues sont prises dans les mêmes conditions de réglage du MEB.

3.2.2 Procédure des essais Varestraint

Des essais Varestraint ont été réalisés dans les laboratoires d'EDF Lab Les Renardières. Le dispositif disponible est un essai semi-Varestraint dont le schéma de fonctionnement est présenté sur la figure 3.9. L'une des extrémités de l'éprouvette

est bridée sur un sabot refroidi par circulation d'eau. L'éprouvette est centrée sur le sabot, repère A sur le schéma. Lorsque la torche arrive (à la vitesse de soudage de $14 \text{ cm}\cdot\text{min}^{-1}$) au repère B (6 mm avant le repère A), l'éprouvette est pliée (en $\sim 1 \text{ s}$) à l'aide d'un vérin pneumatique.

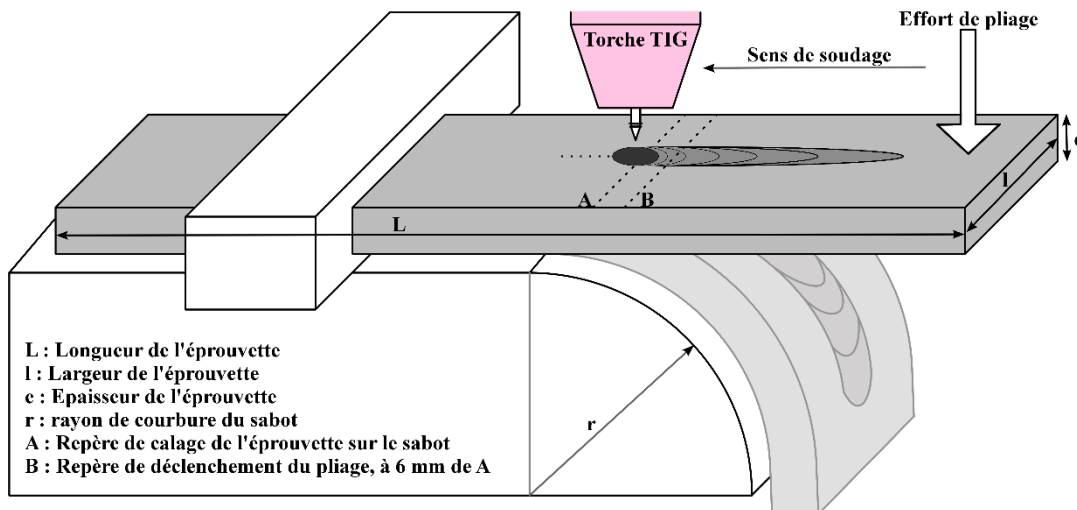


Figure 3.9. Schéma de l'essai semi-Varestraint utilisé à EDF.

3.2.2.1 Éprouvettes de test

Les éprouvettes ont été prélevées dans le sens longitudinal des alliages industriels 152 et 52M. Les éprouvettes ont une longueur de 200 mm, une largeur de 60 mm et une épaisseur de 7 mm. La déformation appliquée pour des éprouvettes de 7 mm d'épaisseur, avec le sabot utilisé, est de 7% en surface, dans la zone pliée. Le tableau 3.6 présente les épaisseurs (et les déformations appliquées correspondantes) des éprouvettes Varestraint utilisées pour l'alliage 152, qui changent un peu d'une éprouvette à l'autre en raison d'une procédure différente de prélèvement.

Tableau 3.6. Présentation des épaisseurs des éprouvettes Varestraint en alliage 152.

Épaisseur (mm)	Déformation appliquée en surface de l'éprouvette (%)
5,5	5,6
6,7	6,7
6,1	6,2
5,6	5,7

3.2.2.2 Paramètres de soudage

Les paramètres de soudage TIG utilisés pour les essais Varestreint sont présentés dans le tableau 3.7. Ce sont les paramètres de soudage utilisés habituellement par EDF Lab Les Renardières.

Tableau 3.7. Paramètres de soudage TIG utilisés lors des essais Varestreint.

Tension (V)	Intensité (A)	Vitesse (cm.min ⁻¹)	Énergie (kJ.mm ⁻¹)
13	200	14	0,67

« L'énergie de soudage » est estimée à partir de l'énergie électrique fournie par unité de longueur de soudure et d'un coefficient de « rendement thermique ». Elle est calculée selon la formule recommandée par la norme EN-1011-1 (100) qui donne un facteur de rendement thermique pour le soudage TIG de 0,6.

$$Q = 0,6 \times \frac{U \times I}{v} \quad (3.3.)$$

Où : Q est l'énergie de soudage par unité de longueur de cordon, U la tension, I l'intensité et v la vitesse de soudage. Les paramètres de soudage sont contrôlés pendant l'opération de soudage sur un pupitre.

3.2.2.3 Dépouillement des essais

Après l'essai, la surface des éprouvettes a été observée à la loupe binoculaire avec un grossissement $\times 25$. La longueur cumulée de fissures et le nombre de fissures observées à ce grandissement ont été relevés.

Les fissures ont été classées en deux groupes distincts, d'une part les fissures pour lesquelles une présence de liquide était suspectée, en rouge sur le schéma de la figure 3.10, et d'autre part celles suspectées d'être des fissures de DDC, en bleu sur le schéma. Les fissures de solidification et de liquation sont plus ou moins positionnées sur une même isotherme (parallèle à la circonférence du bain de métal fondu au moment du pliage). Les fissures de DDC sont déportées par rapport à l'isotherme des autres fissures à chaud, du fait de leur formation à une température plus basse.

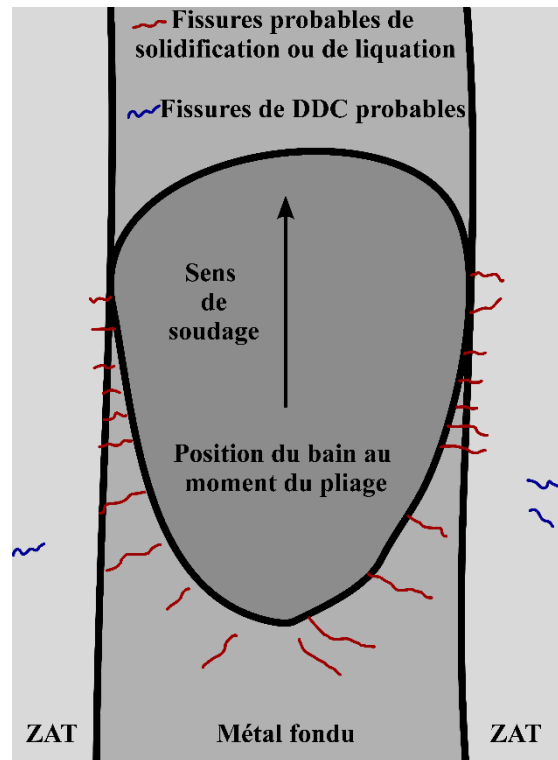


Figure 3.10. Schéma des types de fissurations possibles lors d'un essai Varestraint.

La surface de certaines éprouvettes a également été observée au MEB après les essais.

3.2.3 Mesures de la ségrégation du soufre aux joints de grains sur coupe polie par WDS

La technique de mesure de la ségrégation du soufre aux joints de grains par WDS (Wavelength Dispersive Spectroscopy, équivalente à la microsonde de Castaing) est décrite dans une publication de Christien et Risch en 2016 (101) ; la quantification du soufre dans le joint de grains par intégration de l'aire sous le pic du profil de concentration reprend la méthode proposée par Christien et coll. en 2012 (102).

Les mesures WDS ont été réalisées à l'aide d'un spectromètre INCAWave d'Oxford Instruments monté dans un MEB-FEG Merlin (Field Emission Gun – Microscope à Balayage Electronique) de la marque Carl Zeiss. Les analyses sont réalisées avec une tension d'accélération de 20 kV et le courant de faisceau maximal disponible à cette tension, de l'ordre de 300 nA.

Cette méthode repose sur une série de pointés d'analyses WDS réalisés sur une coupe polie de matériau au travers d'un joint de grains. La figure 3.11 présente une vue schématique de l'interprétation de ces analyses dans le cas particulier d'un joint de grains vertical – vues a), b) et c) – et dans le cas général d'un joint incliné sous la surface du plan poli – vues d), e) et f). Les vues a) et d) représentent le déplacement de la sonde à travers le joint de grains dans les deux configurations considérées. Dans les cases b) et e), l'hypothèse est prise d'une zone d'interaction de forme carrée, entre la sonde et le matériau analysé, et le déplacement relatif du joint par rapport à la zone d'interaction est représenté. Les cases c) et f) schématisent le signal recueilli.

Il convient de noter que le signal mesuré dépend de l'angle θ que fait le joint de grains avec la verticale, et que ce signal est majoré d'un facteur $1/\cos\theta$.

Le pas des analyses est compris entre 100 et 500 nanomètres. Pour une sonde d'environ 2 micromètres, il y a donc entre 4 et 20 points d'interpolation entre la sonde et le joint de grains.

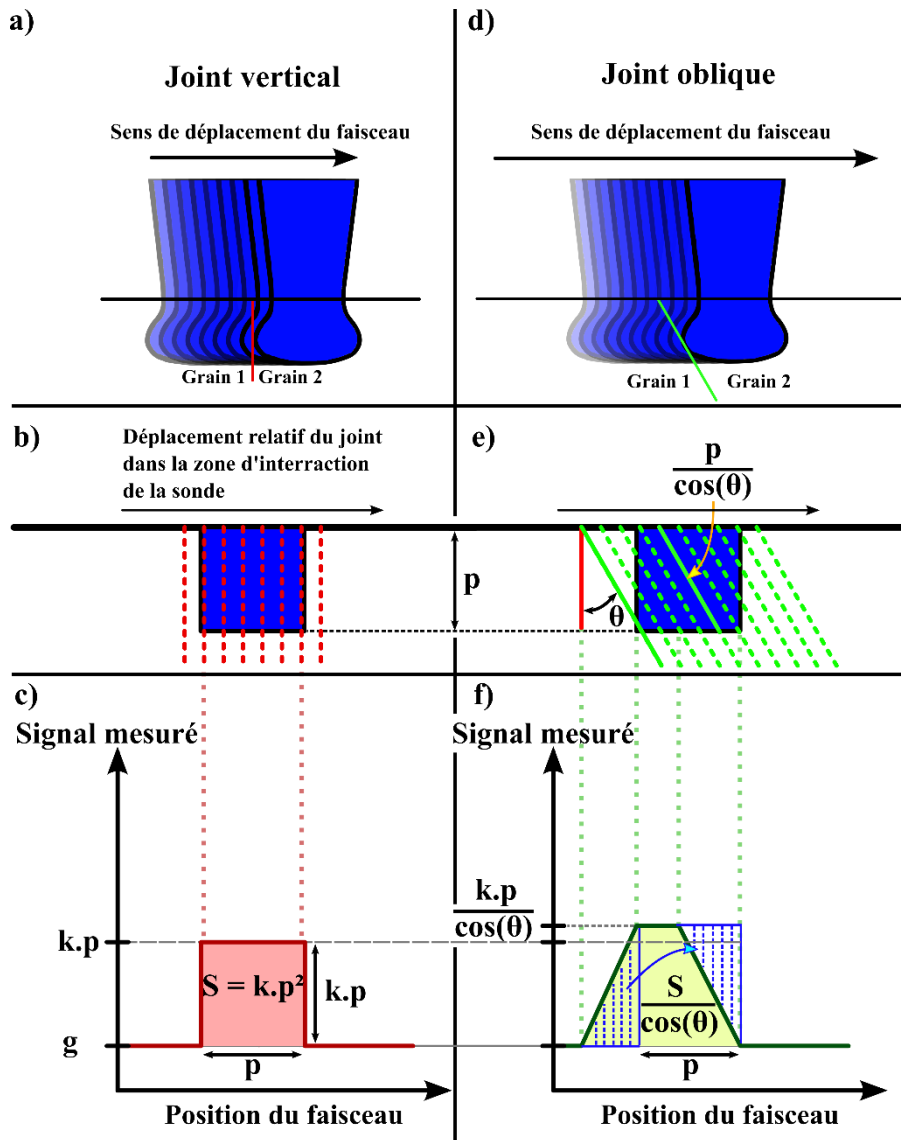


Figure 3.11. Représentation du déplacement du faisceau à travers un joint de grains, a) et d) - schématisation du déplacement relatif du joint par rapport à une zone d'interaction carrée, b) et e) - schématisation du signal mesuré, c) et f).

Le signal mesuré est le produit de convolution entre la concentration de soufre dans le joint de grains (assimilée à un pic de Dirac) et la fonction de sonde (dans l'exemple de la figure 3.11, un carré), voir équation 3.4.

$$S_m = C_r \otimes P \text{ en ppm} \quad (3.4.)$$

Avec :

- S_m : le signal mesuré (fraction massique « apparente » de soufre) ;
- C_r : le profil de la teneur réelle de soufre dans le joint de grains ;

- P : la fonction qui caractérise la forme de la sonde.

Lors des analyses WDS, pour chaque point d'analyse, une quantité de soufre est mesurée en ppm. Pour estimer la concentration de soufre dans le joint de grains, il convient de calculer l'aire sous le pic du signal mesuré, en prenant comme ligne de base le signal du grain.

En multipliant l'aire sous le pic par la masse volumique du nickel, ρ_{Ni} , il est possible d'obtenir la concentration de soufre dans le plan du joint de grains, μ . Il convient d'appliquer un coefficient correcteur en cas d'inclinaison du joint par rapport à la verticale, voir équation 3.5.

$$\mu(g.cm^{-2}) = Aire(cm) \times \rho_{Ni}(g.cm^{-3}) \times \cos(\theta) \quad (3.5.)$$

3.2.4 Mesure de la ségrégation du soufre aux joints de grains par analyses EDS sur lame FIB au MET

Les analyses, dont la méthode est présentée ici, ont été réalisées par Julien Stodolna, au laboratoire de microscopie d'EDF Lab Les Renardières.

3.2.4.1 Matériel utilisé

Des analyses EDS (Energy Dispersive X-ray Spectrometry, ou analyse dispersive en énergie) ont été menées au microscope électronique en transmission (MET) de marque FEI Osiris. Ces analyses ont été réalisées sur des lames préparées dans un MEB à double faisceau FEI Helios Nanolab, faisceau électronique et ionique focalisé (FIB – Focused Ion Beam). Le MET utilisé est équipé du système SuperX (canon XFEG forte brillance associé à 4 détecteurs EDS) qui permet une très bonne détection des éléments même présents à de faibles teneurs ($\sim 0,1\%$).

3.2.4.2 Préparation de la lame mince

On part d'une coupe polie du matériau qu'on observe en électrons rétrodiffusés, afin d'identifier un joint ayant été analysé par MEB + WDS. Une fois la zone d'intérêt identifiée, une couche de platine de quelques centaines de nanomètres est déposée en utilisant la colonne électronique, puis un ajout supplémentaire de $2\ \mu\text{m}$

environ est réalisé à l'aide de la colonne ionique, et d'une source de platine. La réalisation de ce dépôt en deux étapes permet de protéger l'échantillon tout en évitant d'implanter des ions Ga^+ directement sur la surface à étudier. À la suite de ce dépôt, les étapes de découpe sont réalisées en utilisant un courant décroissant au fur et à mesure des étapes d'amincissement (9,3 nA jusqu'à 4 μm d'épaisseur, 2,8 nA jusqu'à 2 μm). La lame est ensuite extraite puis fixée sur une grille omniprobe en cuivre en drapeau. L'amincissement final est réalisé en utilisant de faibles courants : 0,92 nA jusqu'à 1 μm d'épaisseur puis 0,48 nA jusqu'à 500 nm, 93 pA jusqu'à une centaine de nanomètres et finalement 28 pA jusqu'à obtenir la transparence aux électrons en imagerie à 5 kV. À la suite de la préparation FIB, un amincissement ionique à basse tension (500 V) est réalisé à l'aide d'un PIPS II (Gatan) afin d'obtenir des zones d'intérêt dont l'épaisseur est comprise entre 20 et 70 nm.

3.2.4.3 Paramètres d'analyse par STEM-EDS

Pour nos analyses, le joint de grains a été placé parallèle au faisceau d'électrons sans mesure particulière. Les paramètres d'acquisition utilisés sont les suivants :

- Tension d'accélération : 200 kV ;
- Mode balayage STEM (Scanning Transmission Electron Microscopy = MET à balayage ;
- Diaphragme C2 : 70 μm ;
- Gun Lens : 3 ;
- Spot Size : 6 (taille de sonde estimée ~ 0,5 nm) ;
- Nombre de détecteurs EDS utilisés : 4 ;
- Résolution des cartographies : 1024×1024 ;
- Logiciel d'acquisition et de traitement : Bruker Esprit 1.9 ;
- Gamme d'énergie utilisée : 0 – 20 keV ;
- Temps de pose par pixel : 10 μs ;
- Pas de mesure variable selon les cartographies (champ variable mais résolution fixe).

Avec ces paramètres, le courant mesuré sur l'échantillon est d'environ 2 nA et le taux de comptage du système EDS est compris entre 20 000 et 30 000 coups par seconde. Lorsque cela a été possible (c'est-à-dire que le nombre de coups

était suffisant), les cartographies ont été traitées en quantification. Un profil de concentration est ensuite extrait de ces cartographies et nous avons alors appliqué aux profils de concentration la même technique que pour les profils WDS (cf. § 3.2.3), pour en déduire une concentration de soufre dans le joint de grains (102), exprimée ici aussi en masse de soufre par unité de surface.

4 Développement d'un essai de refusions (RCT : « Refusion Cracking Test »)

Afin d'étudier le phénomène de fissuration à chaud par manque de ductilité, nous disposons dans un premier temps d'alliages industriels 152 et 52M. Nous avons décidé de tester la sensibilité de ces matériaux à l'aide de deux moyens d'essais différents. Ce chapitre présente notamment les résultats de ces essais de sensibilité à la DDC. Tout d'abord, les mesures de ductilité par traction à chaud seront présentées, puis ce seront les résultats des essais Varestreint sur ces alliages qui seront abordés. La littérature montre que ces deux approches sont abondamment utilisées pour caractériser les fissurations au soudage, notamment la DDC. Cependant, au travers des essais réalisés, nous verrons quelles sont leurs limitations, à la fois en termes techniques et en termes d'informations relatives à la DDC. Ceci nous conduira à une réflexion sur la nécessité de développer dans le cadre de cette thèse un nouveau test de sensibilité à la DDC que nous avons appelé RCT (« Refusion Cracking Test »). Ce nouveau test est présenté en fin de chapitre.

4.1 Essais de ductilité à chaud : traction à rupture

Les essais de traction à rupture à chaud ont pour objectif de tester la ductilité des alliages considérés dans des conditions proches de celles observées lors d'une opération de soudage. Ces essais, dont les conditions ont été présentées au 2.2.1.1, ont été réalisés à l'Université de Bretagne Sud, au laboratoire IRDL à l'aide d'une machine Gleeble®.

4.1.1 Présentation des résultats

Les essais de traction à rupture à chaud ont été réalisés sur les alliages industriels 52M et 152 (cf. § 4.1.1.1.). Cette partie détaille les résultats obtenus lors de ces essais.

4.1.1.1 Essais de traction à chaud sur les alliages 52M et 152

La figure 4.1 présente la réduction de section en fonction de la température de test des éprouvettes pour les alliages 152 a) et 52M b). Elle présente également la part

de rupture transgranulaire des faciès de rupture en fonction de la température pour les alliages 152 c) et 52M d). Les conditions des tests et leurs exploitations sont présentées au 3.3.1. Les cercles correspondent aux essais de traction à chaud, les croix noires sont les réductions de section à rupture d'essais de traction conventionnels. La ligne discontinue est arbitraire et sert de guide pour le regard. Les deux bandes verticales noires délimitent la DTR (intervalle de température de chute de ductilité).

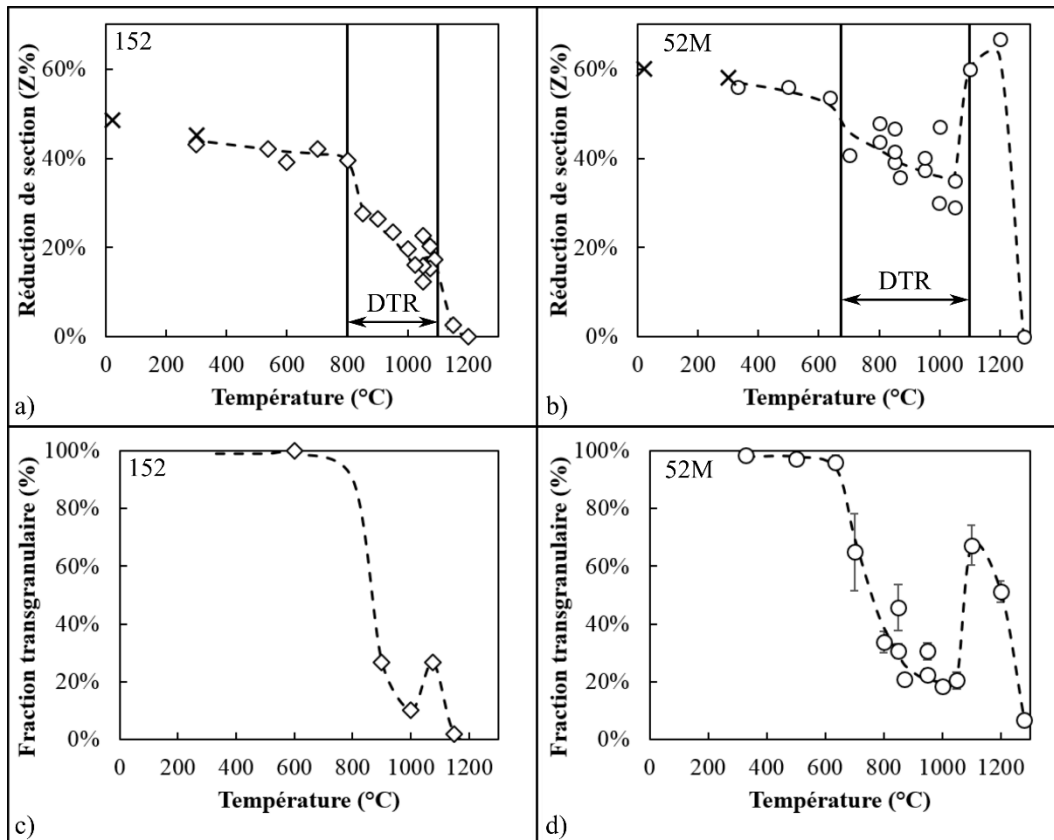


Figure 4.1. Résultats des essais de ductilité à chaud pour les alliages 152 a) et 52M b). La ligne discontinue est un guide pour les yeux. L'essai de traction à la température considérée est précédé par un passage à $T_{\text{solidus}} - 100^{\circ}\text{C}$. Les croix correspondent à la réduction de section à rupture d'essais de traction conventionnelle. Part de rupture transgranulaire des faciès de rupture en fonction de la température pour les alliages 152 c) et 52M d).

À des températures inférieures à 600°C pour l'alliage 52M (figure 4.1b), et à des températures inférieures à 800°C pour l'alliage 152 (figure 4.1a), les courbes donnant la réduction de section en fonction de la température présentent respectivement un plateau à environ 55% et 45%. Dans ces gammes de température, la rupture est entièrement ductile transgranulaire. Des exemples de faciès de rupture sont présentés figure 4.2a pour l'alliage 52M et figure 4.3a pour l'alliage 152, à trois

grandissements différents. Ces images présentent des cupules de quelques micromètres, caractéristiques de la rupture ductile transgranulaire.

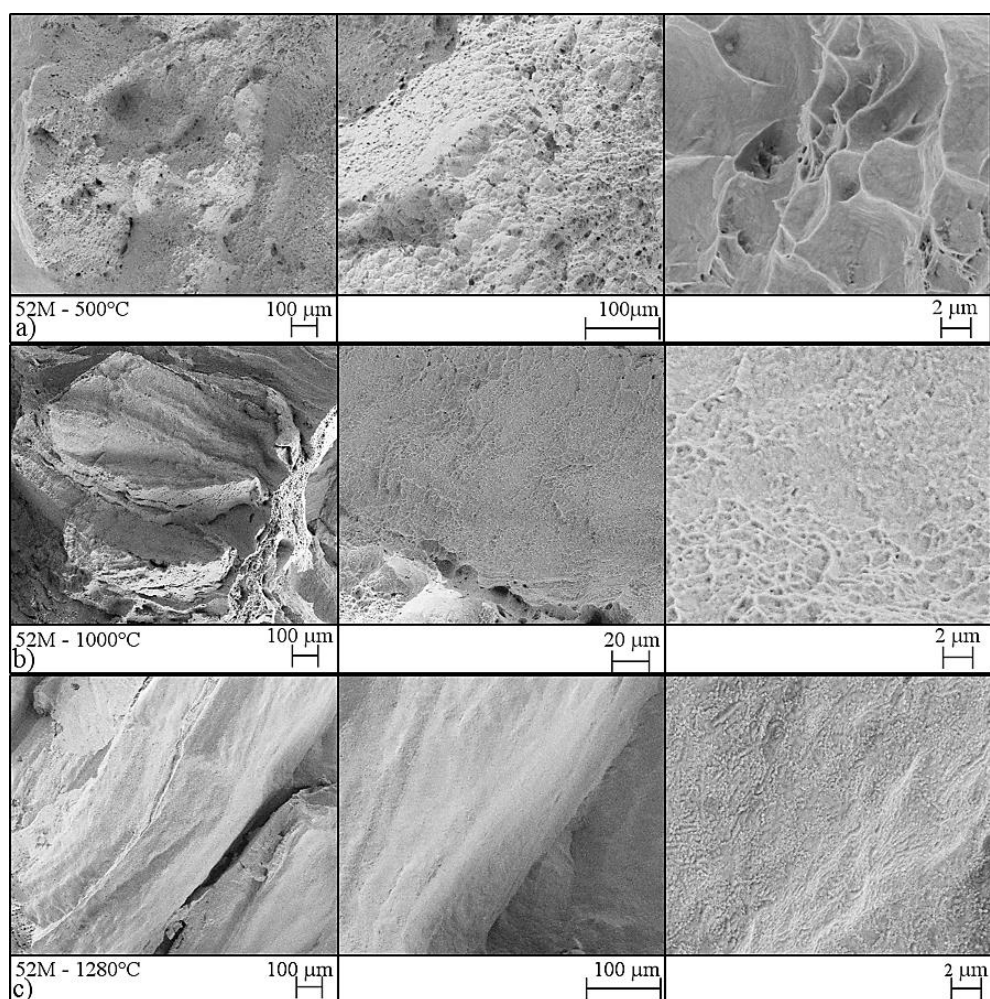


Figure 4.2. Photographies MEB de faciès de rupture d'éprouvettes rompues à : a) 500°C, b) 1000°C et c) 1280°C, alliage 52M, électrons secondaires.

Pour des températures supérieures à 650°C pour l'alliage 52M (800°C pour l'alliage 152), la fraction transgranulaire des faciès de rupture et la réduction de section à rupture chutent avant de remonter au-delà de 1050°C pour l'alliage 52M (1100°C pour l'alliage 152). Des exemples de faciès de rupture caractéristiques de ces gammes de température sont présentés figure 4.2b pour l'alliage 52M et de la figure 4.3b pour l'alliage 152, à trois grandissements différents. Dans cette gamme de température, les faciès de rupture comportent des signes de deux modes de rupture différents. Ils présentent des zones de rupture ductile transgranulaire mais aussi des zones révélant la structure colonnaire dendritique (de solidification) du matériau, caractéristiques d'une rupture intergranulaire. En observant ces zones

intergranulaires à plus fort grossissement, il est possible de voir des cupules ayant une taille caractéristique inférieure au micromètre (figure 4.2b, image de droite) dans certaines zones. Le mode de rupture passe de purement transgranulaire à basse température à un mode mixte transgranulaire/intergranulaire. Une corrélation très forte entre la réduction de section et la fraction de rupture transgranulaire mesurée sur le faciès est observable sur les encadrés a) et c), ainsi que b) et d) de la figure 4.1. En d'autres termes, le creux de ductilité observé entre 650°C et 1050°C, pour l'alliage 52M, (et celui observé entre 800°C et 1100°C pour l'alliage 152) coïncide avec le mode de rupture intergranulaire.

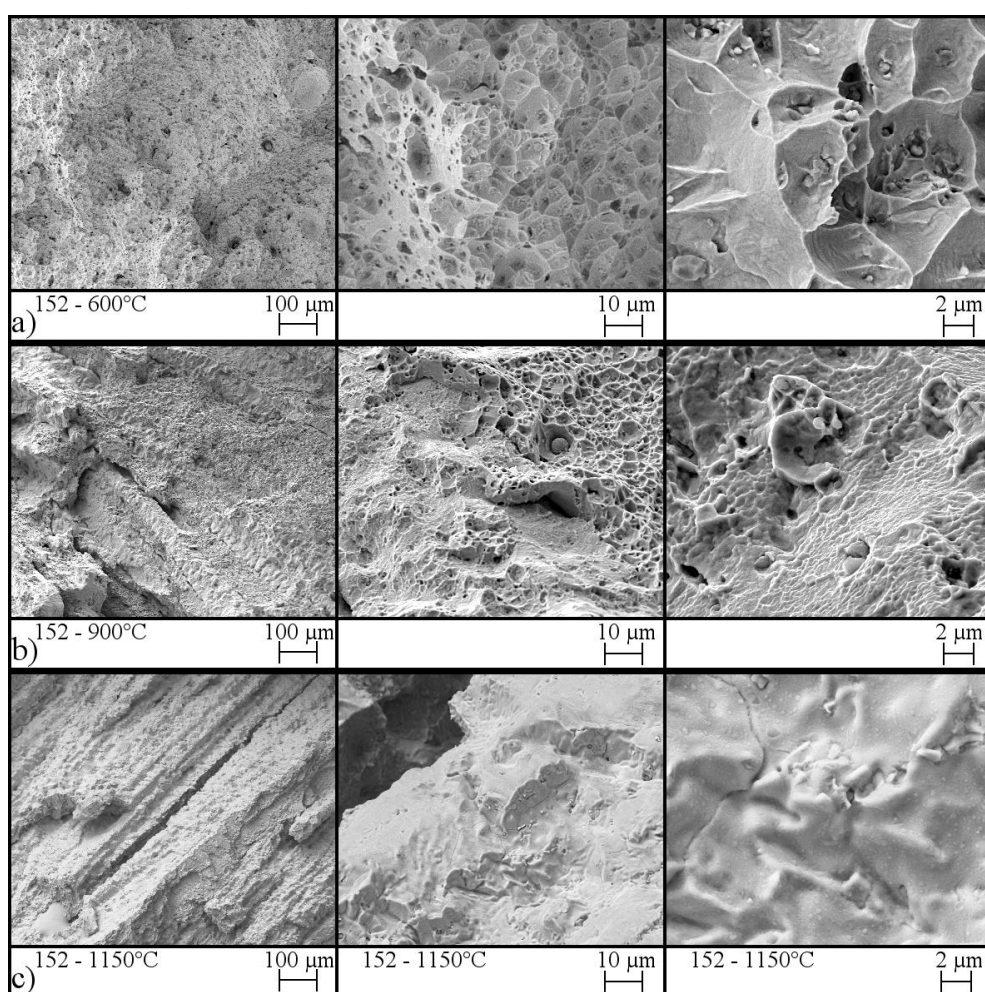


Figure 4.3. Photographies MEB de faciès de rupture d'éprouvettes rompues à : a) 600°C, b) 900°C et c) 1150°C, alliage 152, électrons secondaires.

Au-dessus de 1200°C pour l'alliage 52M et au-dessus de 1100°C pour l'alliage 152, la réduction de section à rupture et la fraction de rupture transgranulaire chutent toutes deux brutalement. Les encadrés c) de la figure 4.2 et de la figure 4.3 présentent

des faciès d'éprouvettes rompues à 1280°C et 1150°C respectivement pour les alliages 52M et 152. L'aspect de ces faciès est très lisse et la réduction de section à rupture est nulle. Ces indices indiquent une rupture par présence de liquide aux joints de grains, caractéristique de la rupture par liquation, et marquent l'entrée dans la BTR (Brittle Temperature Range = intervalle de température d'apparition des premiers liquides, assimilable à l'intervalle liquidus/solidus) du matériau.

Les courbes de réduction de section et de fraction transgranulaire présentées sur la figure 4.1 ont la même allure, montrant que l'aspect des faciès de rupture est lié à la ductilité du matériau. L'alliage 52M présente ainsi une perte de ductilité pour des températures comprises entre 650°C et 1100°C environ et l'alliage 152 pour des températures comprises entre 800°C et 1100°C environ. Ces intervalles de température correspondent aux DTR de ces matériaux.

4.1.1.2 Discussion

Les essais de sensibilité à la fissuration à chaud par traction en simulateur thermomécanique Gleeble® permettent d'obtenir les profils de réduction de section en fonction de la température pour les deux alliages industriels testés, voir figure 4.1.

Les mesures de la part de rupture transgranulaire des faciès de rupture mises en regard de celles de la réduction de section (cf. figure 4.1) permettent de faire le lien entre aspect du faciès et réduction de section à rupture. Pour un même matériau, les réductions de section à rupture les plus élevées sont associées à une rupture majoritairement (ou totalement) transgranulaire ductile. Les réductions de section à rupture les plus faibles présentent des faciès de rupture plus intergranulaires. La diminution de la section à rupture observée est bien associée à une perte de ductilité, elle-même liée à une fragilisation des joints de grains.

Pour les deux alliages, il a été possible d'identifier l'intervalle de température à l'intérieur duquel une chute de la ductilité est observée ainsi que le minimum de réduction de section mesuré dans ce même intervalle, voir tableau 4.1. En prenant comme critère de sensibilité à la DDC la largeur de l'intervalle de chute de ductilité (DTR), il serait possible de considérer que l'alliage 52M est plus sensible à la fissuration par DDC que l'alliage 152 car il présente un DTR de 450 K contre 300 K

pour l'alliage 152. Cependant, en prenant comme critère le minimum de réduction de section à rupture dans ce même intervalle de température, alors l'alliage 152 (12% de réduction de section minimum) serait plus sensible que l'alliage 52M (29%). Le classement serait le même en prenant comme critère le minimum de la part de rupture transgranulaire : l'alliage 152 semble plus sensible ($\approx 10\%$) que l'alliage 52M ($\approx 20\%$). Enfin, en prenant comme critère possible la profondeur relative du creux de ductilité, calculée avec la formule 4.1., ce classement resterait inchangé : l'alliage 152 serait plus sensible que l'alliage 52M avec une profondeur relative d'environ 70%, contre 40% pour l'alliage 52M.

$$Z_{relative} = \frac{Z_{ambiante} - Z_{creux}}{Z_{ambiante}} \quad (4.1.)$$

Tableau 4.1. Intervalle de température de chute de ductilité, minimum de réduction de section dans cet intervalle, profondeur relative du creux de réduction de section par rapport à la température ambiante pour les alliages et part de la rupture transgranulaire dans le creux de ductilité pour les alliages 152 et 52M.

Alliage	DTR (K)	Minimum de réduction de section dans le DTR	Profondeur relative du creux de réduction de section par rapport à l'ambiante	Part de rupture transgranulaire dans le creux de ductilité
52M	450	29%	40%	20%
152	300	12%	70%	10%

En fonction du critère choisi, le classement de ces deux alliages peut être inversé. Cela ne permet pas de caractériser de manière fiable la sensibilité d'un alliage à la DDC et donc de pouvoir prédire sa susceptibilité au phénomène lors d'une opération de soudage. Il conviendra donc de compléter ces essais avec un autre essai de caractérisation de la sensibilité à la DDC.

4.1.2 Essais complémentaires

Des variantes de l'essai décrit au 3.3.1 ont été testées, en particulier sur l'alliage 152 afin de produire des faciès de rupture impliquant une phase liquide abondante et sur l'alliage 52M afin de mettre en évidence une éventuelle influence de la précipitation des carbures secondaires.

4.1.2.1 Essais de traction à l'entrée de la BTR

Afin d'obtenir des faciès de rupture impliquant une phase liquide, des essais de traction ont été réalisés sur l'alliage 152 à 700°C, 1100°C et 1140°C après un passage à 1265°C comme point maximal de température (au lieu de 1150°C pour les essais présentés figure 4.1). Cette température se situe entre la température de solidus calculée par MatCalc® (1247°C) et celle mesurée en ATD (1272°C).

Pour les trois températures de test (700°C, 1100°C et 1140°C), la réduction de section à rupture est nulle et les faciès de rupture présentent des signes de fissuration en présence de liquide (cf. figure 4.4). L'aspect macroscopique est interdendritique, les dendrites sont clairement identifiables à plus fort grossissement. Un passage à 1265°C fait fondre partiellement l'éprouvette et la fait rompre à cette température (probablement lors du début du refroidissement, lorsque l'éprouvette passe en légère traction, ou alors par ajustement des jeux de la machine). Ces essais permettent d'obtenir des faciès de rupture représentatifs d'une fissuration à chaud de solidification et permettront ultérieurement d'identifier sans ambiguïté, lors d'un essai de soudage, des fissures de solidification.

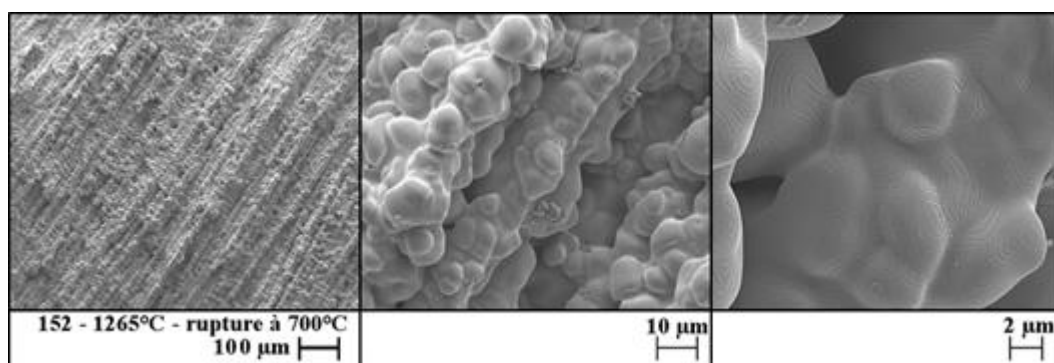


Figure 4.4. Exemple d'un faciès de rupture à 700°C après passage à 1265°C, alliage 152, électrons secondaires.

4.1.2.2 Influence d'un temps d'attente avant traction

La figure 4.5 présente les résultats de deux variantes de conditions d'essai. Le graphe a) présente l'influence d'un temps de maintien à 850°C avant traction à cette même température. L'idée est de permettre une éventuelle évolution de la microstructure du matériau avant traction. Le graphe b) présente l'effet d'un temps de maintien à 1220°C plus ou moins long avant la traction à 850°C.

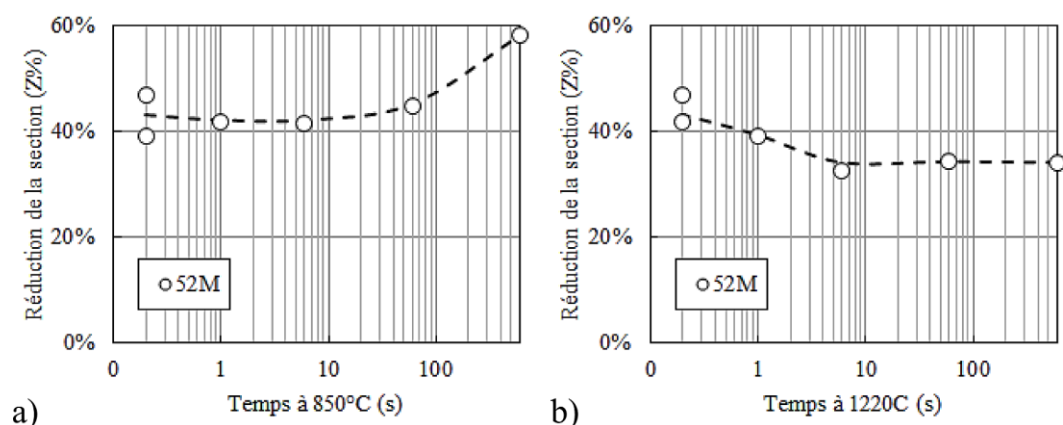


Figure 4.5. Réduction de section en fonction a) du temps d'attente à 850°C avant traction à 850°C, b) du temps d'attente à 1220°C avant descente vers la température de traction à 850°C – alliage 52M.

La figure 4.5a montre une légère amélioration de la ductilité pour un temps d'attente de 600 s à 850°C avant traction à cette même température. Cette amélioration n'est pas sensible pour des temps d'attente inférieurs. Au contraire, la figure 4.5b montre une légère dégradation de la ductilité avec le temps de maintien à 1220°C avant la traction à 850°C. Cette dégradation n'est sensible que pour des temps courts. Les variations constatées sont faibles dans les deux cas mais nous estimons qu'elles sont malgré tout réelles.

Nous proposons ici une interprétation de ces observations fondées sur la précipitation intergranulaire des carbures secondaires. Le temps d'attente à 850°C pourrait conduire à une augmentation de la précipitation intergranulaire, qui se traduirait par une amélioration de la ductilité. A contrario, l'augmentation du temps de maintien à 1220°C favoriserait la dissolution des carbures préexistants. À supposer que les carbures ne se reforment pas pendant le refroidissement jusqu'à 850°C, ou en tout cas dans une quantité moindre que celle présente dans la configuration initiale de l'essai, on peut penser que le niveau de précipitation intergranulaire au moment de l'essai de traction diminue avec le temps de maintien à 1220°C. On arriverait donc à nouveau à la conclusion que la ductilité augmenterait avec le niveau de précipitation intergranulaire des carbures. Le rôle des carbures sur la DDC sera discuté plus en détail ultérieurement.

4.1.3 Conclusion de l'étude de la ductilité à chaud par essai de traction

L'étude a porté sur les deux alliages industriels 52M et 152.

- En fonction du critère de sensibilité à la DDC retenu, caractérisant soit l'ampleur de la perte de ductilité, soit l'étendue de température sur laquelle elle se produit, il est possible d'obtenir deux classements de sensibilité à la DDC différents. Il convient donc de compléter ces essais à l'aide d'une autre technique de test. Pour cela, des essais Varestraint, présentés au paragraphe suivant, ont été réalisés sur ces deux alliages.
- Un temps d'attente à 850°C avant traction (à cette température) a tendance à améliorer la ductilité. Un temps de maintien à 1220°C avant traction à 850°C a tendance à la dégrader. En supposant que ces observations sont liées à la précipitation/dissolution des carbures intergranulaires, cela signifierait que ces carbures améliorent la résistance à la DDC. Ce point sera discuté ultérieurement.
- Nous avons obtenu des faciès de rupture de référence pour les trois mécanismes de fissuration à chaud que sont : la fissuration par solidification, par liquation et par chute de ductilité. Ces faciès pourront servir de base de comparaison pour les faciès de rupture obtenus avec d'autres essais.

4.2 Essais Varestraint : essais de soudage avec sollicitation mécanique extérieure

Afin de compléter les résultats des essais de ductilité à chaud par traction à rupture, des essais Varestraint ont été réalisés sur les alliages 52M et 152, suivant le protocole décrit au § 3.3.2. Cinq éprouvettes ont été testées pour l'alliage 52M et quatre éprouvettes ont été testées pour l'alliage 152. Le critère retenu est la longueur de fissure de DDC cumulée, mesurée lors des observations de la surface des éprouvettes à la loupe binoculaire (la manière de distinguer les fissures de DDC des fissures de solidification ou de liquation lors des essais Varestraint a été décrite au § 3.3.2.3).

4.2.1 Présentation des résultats des essais Varestraint

La figure 4.6 présente la longueur de fissures cumulée pour les deux alliages industriels testés ; la barre d'erreur représente deux écarts types. L'alliage 152 ne présente aucune fissure de DDC visible dans les conditions d'observation. L'alliage 52M quant à lui présente une longueur de fissures cumulée de 3,3 mm avec un écart type de 1,4 mm pour cinq éprouvettes testées. Pour cet essai, le résultat est sans appel. L'alliage 52M est plus sensible à la DDC que l'alliage 152. Il est à noter que la longueur cumulée de fissures de liquation et solidification a également été mesurée. Pour ce type de fissuration, l'alliage 152 se révèle plus sensible que l'alliage 52M, ce qui est cohérent avec les compositions chimiques des deux alliages ; en effet, l'alliage 152 est plus riche en niobium, élément connu pour aggraver les phénomènes de fissuration faisant intervenir une phase liquide (cf. § 2.3.2.2.).

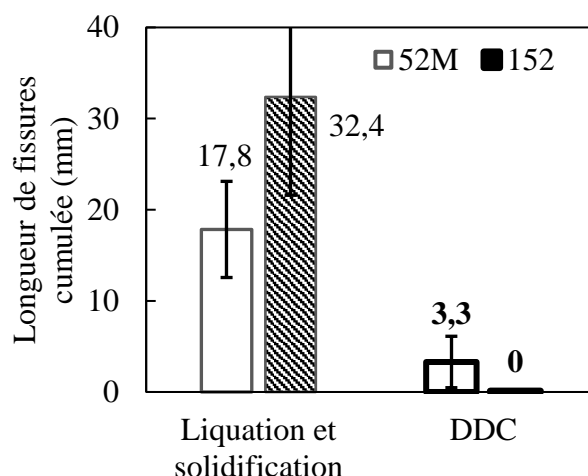


Figure 4.6. Longueur de fissures cumulée de DDC et de solidification plus liquation pour les essais Varestraint.

La dispersion plus importante sur les résultats de l'alliage 152 peut s'expliquer en partie par le fait que l'épaisseur des éprouvettes testées n'est pas rigoureusement identique, et donc le niveau de déformation est légèrement différent d'une éprouvette à l'autre (cf. § 3.3.2.1.). La figure 4.7 présente le lien entre longueur de fissures cumulée et la déformation appliquée pour l'alliage 152. Cependant, il est à noter que toute la dispersion sur ces mesures ne peut s'expliquer de ce seul fait, en effet les éprouvettes de 52M ont toutes la même épaisseur (7,0 mm) et les résultats sur cet alliage présentent tout de même une certaine dispersion.

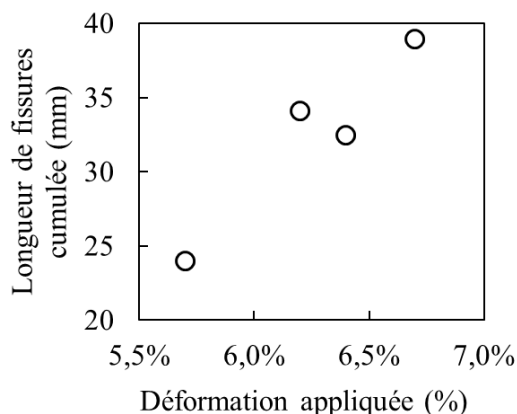


Figure 4.7. Lien entre déformation appliquée et longueur de fissures cumulée mesurée après essai Varestraint pour l'alliage 152.

Des observations de fissures ont été réalisées au MEB, à la surface de certaines éprouvettes Varestraint. La figure 4.8 présente une fissure observée à la surface d'une éprouvette de l'alliage 152, et la figure 4.9 présente une fissure observée à la surface d'une éprouvette de l'alliage 52M. La fissure de la figure 4.8 présente les caractéristiques d'une fissure de solidification, semblable au faciès observé sur l'éprouvette Gleeble® sur la figure 4.4.

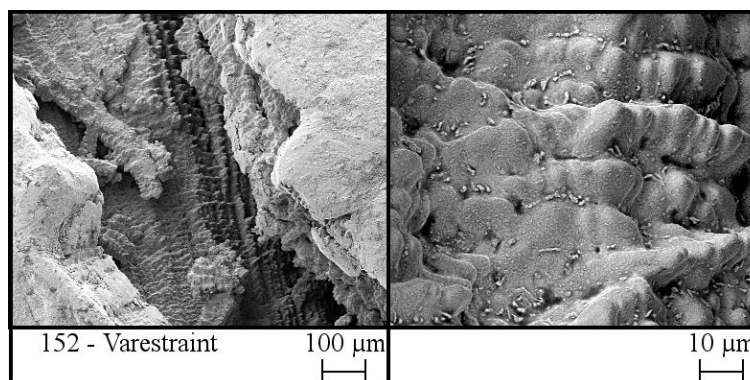


Figure 4.8. Observation MEB de fissures après essais Varestraint sur l'alliage 152 – électrons secondaires, fissure de solidification.

La fissure de la figure 4.9 possède quant à elle les caractéristiques de la DDC. Il est possible de voir que cette fissure est bien moins ouverte que celle observée sur la figure 4.8. De plus, le faciès ne présente pas les marques de structures de solidification ni l'aspect voilé caractéristique d'une fissuration de liquation.

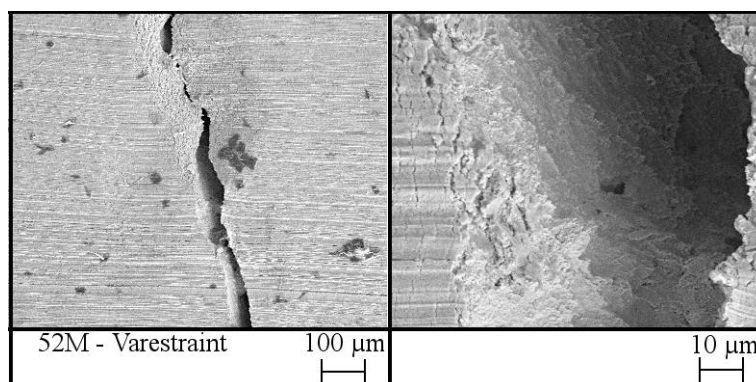


Figure 4.9. Observation MEB de fissures après essais Varestraint sur l'alliage 52M - électrons secondaires, fissure de DDC.

4.2.2 Conclusion sur l'apport des essais de traction et de l'essai Varestraint à l'étude de la perte de ductilité des alliages 52M et 152

Les essais de traction n'ont pas permis de mettre en évidence un classement clair entre les deux alliages s'agissant de leur résistance à la perte de ductilité : suivant le critère d'appréciation retenu (largeur ou profondeur du creux par exemple), l'alliage 52M peut être considéré comme plus résistant que l'alliage 152, ou inversement. A contrario, les essais Varestraint montrent une différence de comportement très claire entre les deux alliages : l'alliage 52M est nettement plus sensible à la fissuration par chute de ductilité que l'alliage 152. Cependant, la production d'une faible quantité de fissures par rapport à la quantité de matière utilisée, associée à la forte présence de fissures de liquation et/ou solidification est problématique. Cela peut gêner l'expertise des éprouvettes n'est pas très efficace dans l'optique de l'étude de la fissuration par chute de ductilité.

4.3 Développement d'un essai de refusions (RCT)

4.3.1 Pourquoi un nouvel essai de fissuration au soudage ?

Les essais mis en œuvre jusqu'ici (essais de traction et essais Varestraint) ont permis de mieux comprendre la perte de ductilité des matériaux étudiés, mais ces essais présentent un certain nombre de limites et d'inconvénients, qui nous ont incités à développer un nouveau test répondant mieux à nos attentes. Cet essai est appelé « Refusion Cracking Test » en anglais, abrégé par RCT.

Les essais de traction d'une part et l'essai Varestraint d'autre part ont conduit à des conclusions différentes s'agissant de la résistance respective des deux alliages étudiés à la DDC. Ce constat nous a conduits à nous interroger sur la représentativité des essais de traction par rapport aux conditions de soudage. En particulier, les niveaux de déformation atteints localement dans l'éprouvette de traction avant rupture sont potentiellement beaucoup plus élevés que ceux que l'on peut observer en conditions de soudage. De plus, la vitesse de traction choisie dans notre protocole expérimental est sans doute exagérément élevée. On peut donc s'interroger sur la pertinence des essais de traction pour représenter une opération de soudage. D'une manière comparable, les essais Varestraint font appel à une déformation imposée par une sollicitation extérieure assez rapide, probablement peu représentative de conditions réelles de soudage au cours desquelles les déformations proviennent seulement d'effets de dilatation et de contraction thermiques.

Par ailleurs, les travaux publiés par l'EPRI (20), ainsi que les discussions que nous avons initiées avec cette équipe, ont montré l'importance de « refusions multiples » (cf. § 2.3.4.3), qui se traduisent par une sollicitation cyclique de la ZAT, dans le phénomène de DDC. Ces refusions multiples permettent de reproduire un soudage multipasse. Or, ni l'essai Varestraint ni l'essai de traction en simulateur thermomécanique (dans les conditions utilisées dans ce travail de thèse) ne prennent en compte cette caractéristique cyclique.

Enfin, l'essai Varestraint, tout comme les essais de traction, ou comme les essais de soudage de Young (18, 19), Mo (36) ou de l'EPRI (20) nécessitent de grandes quantités de matière. Ils sont donc peu adaptés à l'étude d'alliages modèles, disponibles en petites quantités, tels que ceux que nous avons fait fabriquer et pour lesquels nous ne disposons que de quelques centaines de grammes par composition.

Au cours de cette étude, nous avons donc jugé utile de développer un nouvel essai visant à mieux prendre en compte les critères suivants :

- Représentativité : nous souhaitons développer un essai de soudage plutôt qu'un essai de simulation thermomécanique du soudage. La sollicitation mécanique cyclique sera obtenue par refusions multiples d'une même zone à l'aide d'un procédé de soudage.

- Quantité de matière disponible : nous souhaitons un essai permettant de tester de faibles quantités de matière, en particulier pour nos alliages modèles.
- Forme de la matière disponible : nous n'avons pas de possibilités de faire du fil ou des électrodes avec les alliages modèles.
- État métallurgique : on cherche à caractériser le matériau dans un état brut de solidification résultant d'une opération de soudage.
- La simplicité est une caractéristique intéressante du test conçu (pour sa mise en œuvre expérimentale et pour la possibilité de simulation numérique).

4.3.2 Présentation de l'expérience

L'essai consiste à faire des passes de refusions successives à la surface d'une éprouvette de test, à l'aide d'un procédé de soudage TIG sans métal d'apport. Le critère retenu pour caractériser la sensibilité à la DDC est la longueur de fissures cumulée, mesurée après chaque passe à l'aide d'observations à la loupe binoculaire à un grandissement de $\times 50$.

La figure 4.10 présente un schéma du dispositif expérimental. L'éprouvette de test, aux dimensions de $50 \times 40 \times 7 \text{ mm}^3$, est soudée à la surface d'une plaque en acier aux dimensions de $200 \times 60 \times 6 \text{ mm}^3$ pour pouvoir assurer un bon contact électrique avec la table de soudage et de permettre l'autobridage de l'éprouvette. Cet ensemble est installé dans un cylindre de diamètre 30 cm et de hauteur 7 cm, qui est rempli d'argon pendant deux minutes à 15 l.min^{-1} avant chaque opération de soudage. L'argon étant plus lourd que l'air, il reste majoritairement au fond du cylindre ; la concentration d'oxygène dans le cylindre après deux minutes de remplissage à l'argon est ainsi d'environ 2%. Ce cylindre complète la protection qu'apporte le flux d'argon sortant de la torche TIG pendant le soudage.

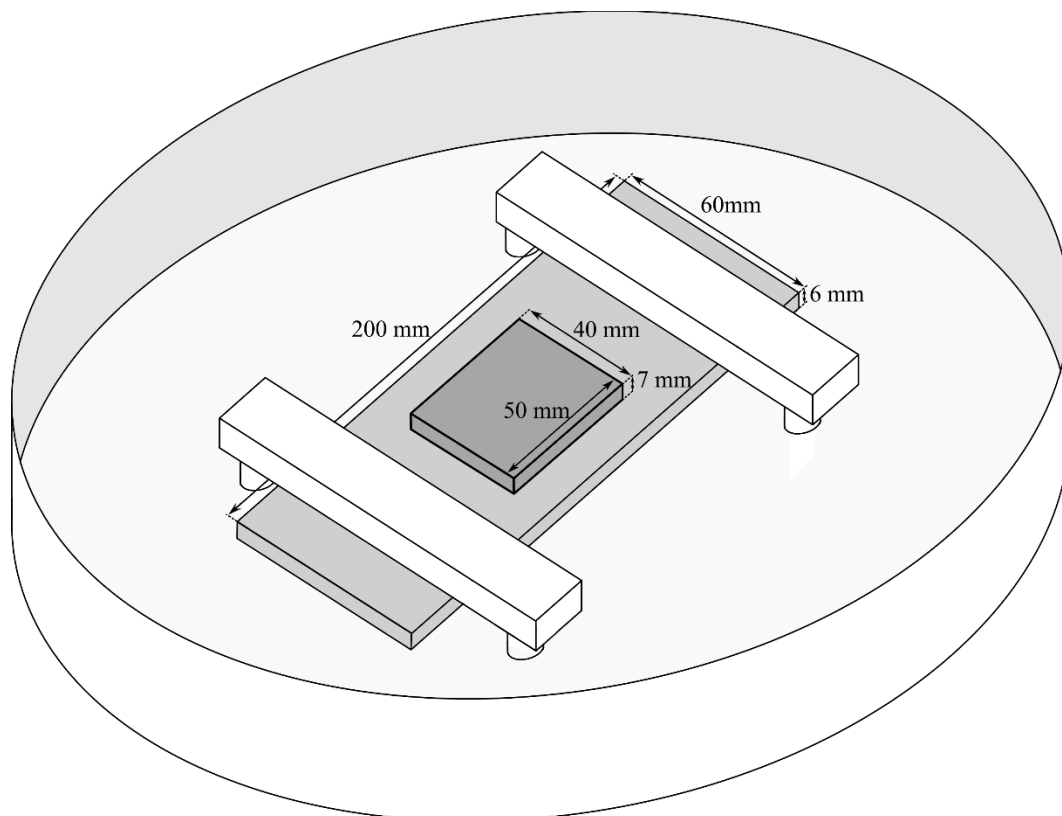


Figure 4.10. Schéma du dispositif expérimental pour l'essai de refusions.

La surface de l'éprouvette est préparée par polissage mécanique et rincée à l'acétone. Des lignes de fusion sont réalisées à l'aide d'un robot de soudage TIG à une vitesse de $11 \text{ cm}\cdot\text{min}^{-1}$ ($2 \text{ mm}\cdot\text{s}^{-1}$), une intensité de 120 A et une tension de 10 V. Le gaz protecteur utilisé est de l'argon ($< 2 \text{ ppm d'O}_2$ et $< 3 \text{ ppm H}_2\text{O}$), avec un débit de $15 \text{ l}\cdot\text{min}^{-1}$.

Deux prépasses de fusion, A et B sur le schéma de la figure 4.11, sont effectuées sans métal d'apport, dans le but de former une structure de solidification, dont les conditions de formation sont bien définies. Les « passes de refusions-multiples » sont ensuite réalisées, toujours sans métal d'apport, entre ces deux prépasses en suivant toujours la même trajectoire. Ainsi, la zone affectée thermiquement des passes de refusions se situe dans la zone fondue de chaque prépass, comme présenté sur la figure 4.11, là où les fissures de DDC sont attendues. De cette manière, les éventuelles fissures de DDC seront bien localisées dans un matériau brut de solidification, issu d'une opération de soudage, quelle que soit la microstructure initiale du matériau.

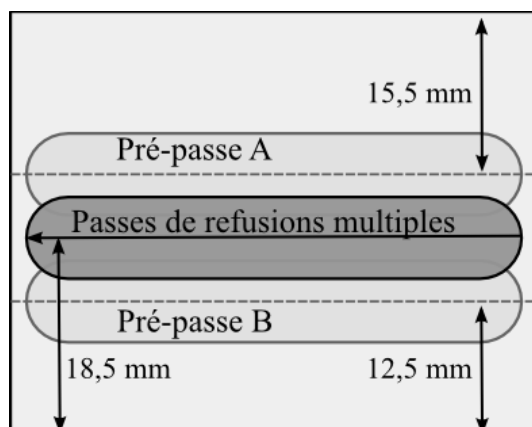


Figure 4.11. Position des passes à la surface de l'éprouvette de test RCT.

Après les deux prépasses, la surface de l'éprouvette est de nouveau polie mécaniquement et nettoyée à l'acétone. Entre chaque passe de refusions, la surface de l'éprouvette est nettoyée à l'acétone.

4.3.3 Exploitation des essais

Pour l'alliage 52M, huit passes de refusions ont été réalisées. La surface des éprouvettes a été observée entre chaque passe à la loupe binoculaire. Pour l'alliage 152, seize passes de refusions ont été faites et les observations ont été réalisées après les passes 4, 8, 12 et 16.

La longueur de fissures cumulée, ainsi que la distance des fissures à la ligne de fusion, sont mesurées « manuellement ». Deux fissures disjointes à une passe « n » qui se rejoignent à la passe « n + 1 » sont comptées comme deux fissures à la passe « n » et comme une seule à la passe « n + 1 ». Cela peut induire une imprécision quant au nombre total de fissures présentes à la surface d'une éprouvette après une passe ou une imprécision quant à la longueur de la fissure la plus longue. Mais l'incidence sur la longueur de fissures cumulée est faible. Pour certaines passes, deux ou trois mesures ont été réalisées à partir des mêmes images afin d'estimer la précision des mesures.

Pour l'alliage 52M, la température est mesurée à la surface de l'éprouvette à l'aide de thermocouples de type K, dont la position par rapport à la ligne de fusion est déterminée après la réalisation des passes de refusions. Un exemple de la position des thermocouples à la surface de l'éprouvette est donné pour la 3^e passe de fusion

sur l'alliage 52M sur la figure 4.12. Les températures enregistrées par les thermocouples serviront à ajuster le modèle de simulation numérique du soudage de l'essai, permettant ensuite de définir l'intervalle des températures maximales à l'intérieur duquel des fissures sont observées.

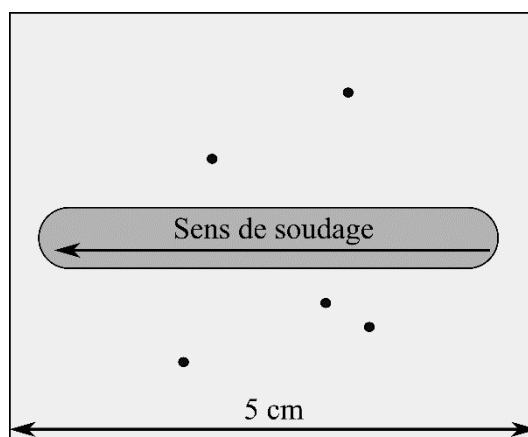


Figure 4.12. Position des thermocouples lors de la passe 3 de l'essai sur l'alliage 52M.

4.3.4 Résultats des essais sur les alliages 152 et 52M

L'essai a été mis en œuvre sur les alliages industriels dans un premier temps. La figure 4.13 présente la longueur de fissures cumulée mesurée en fonction du nombre de passes de refusions pour les alliages 152 et 52M. L'alliage 152 ne fissure pas, même après seize passes de refusions. L'alliage 52M quant à lui fissure significativement à partir de la passe 3, et présente deux fissures lors de l'examen de la passe 2. Ces résultats rejoignent ceux obtenus avec les essais Varestraint.

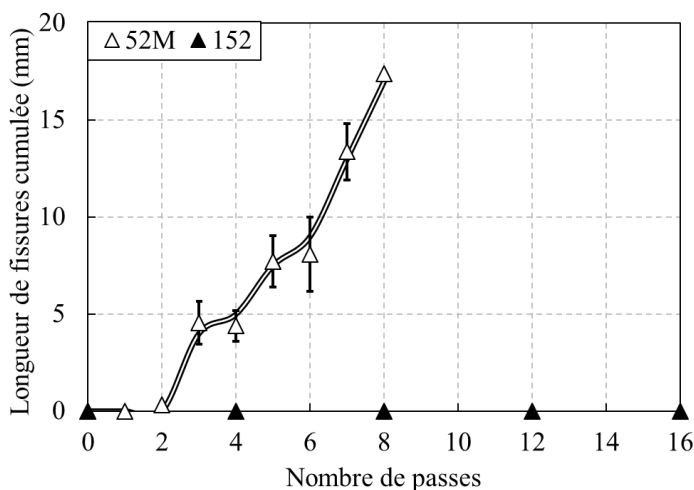


Figure 4.13. Longueur de fissures cumulée en fonction du nombre de passes ; la ligne est un guide pour les yeux ; les barres d'erreur représentent deux fois l'écart type sur la mesure de la longueur de fissures cumulée lorsque plusieurs mesures ont été réalisées.

La figure 4.14 présente une observation à la loupe binoculaire d'une même zone pour les passes 3 à 8 sur l'alliage 52M. Il est possible d'y voir l'évolution de différentes fissures. Cette série d'images permet également de comprendre l'importance de la fusion successive et cyclique dans ce phénomène de fissuration. En effet dans cette zone, avant la passe 4, aucune marque d'endommagement n'est visible. Cependant après plusieurs cycles, les fissures apparaissent et s'agrandissent.

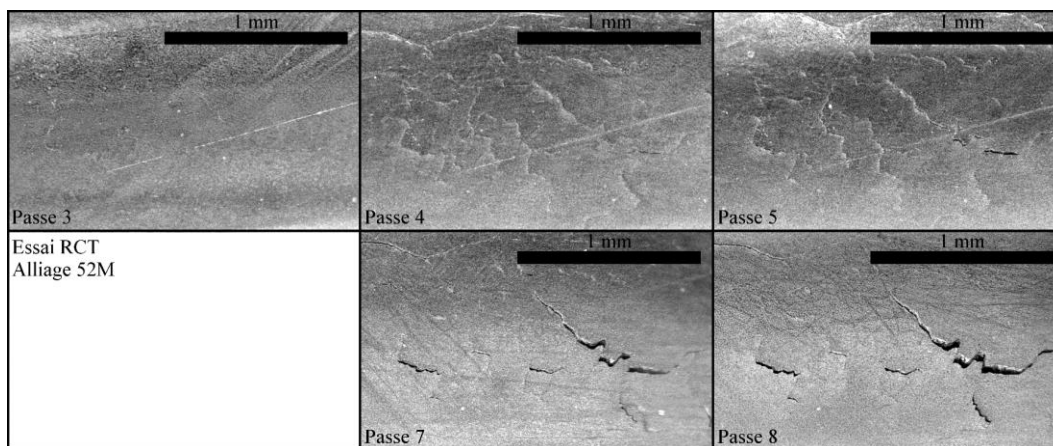


Figure 4.14. Exemple de l'évolution de différentes fissures en fonction du nombre de refusions, alliage 52M.

4.3.4.1 Caractéristiques des fissures observées sur l'alliage 52M

La figure 4.15 présente la longueur maximale de fissure, la longueur de la plus longue fissure mesurée à la surface de l'éprouvette, et la longueur moyenne mesurée en fonction du nombre de passes. La longueur maximale des fissures de l'alliage 52M

augmente jusqu'à la passe 5 avant de se stabiliser (l'apparente baisse de la longueur maximale de fissure qui peut être observée ici entre les passes 6 et 7 peut probablement s'expliquer à l'aide des réserves émises au §4.3.3 quant à la précision des mesures). Ces résultats sont comparés avec les longueurs moyennes et longueurs maximales obtenues pour deux refusions et trois refusions par l'EPRI sur leur maquette de soudage (20) dans le tableau 4.2. Les fissures de DDC sont des fissures ayant une taille caractéristique inférieure au millimètre.

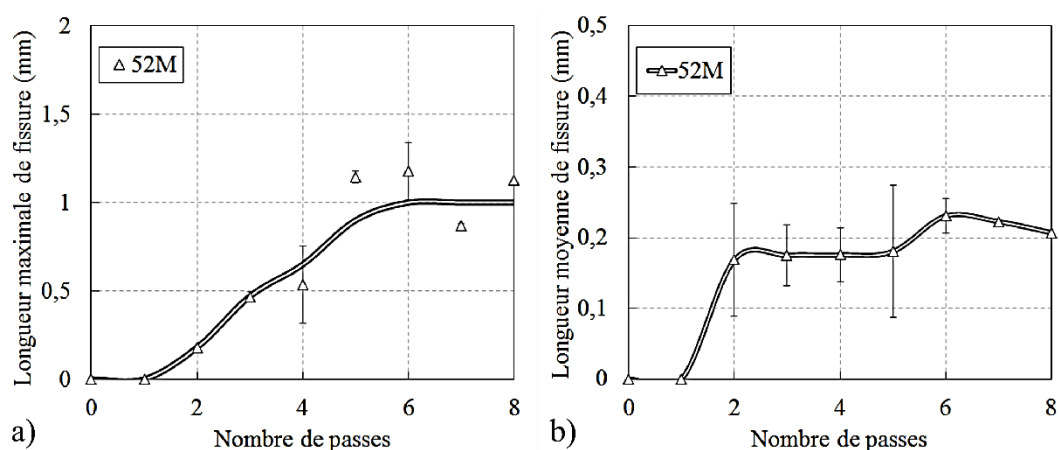


Figure 4.15. a) Longueur maximale et b) longueur moyenne mesurées pour l'alliage 52M sur le test RCT. La ligne est un guide pour les yeux.

On constate que les longueurs maximales des fissures observées à la surface de l'éprouvette sur l'essai RCT sont similaires à celles mesurées en coupe par l'EPRI sur leur maquette de soudage, il en est de même pour les longueurs moyennes de fissures. Nos conditions d'essai produisent donc des résultats cohérents avec ceux obtenus par l'équipe de l'EPRI.

Tableau 4.2. Comparaison entre les résultats obtenus avec le test RCT sur le 52M avec les résultats obtenus par l'EPRI grâce à leur maquette de soudage.

Alliage	Longueur maximale de fissures (mm)		Longueur moyenne de fissures (mm)	
	2	3	2	3
52M au RCT	0,18	0,47	0,17	0,18
52M (adapté de (20))	0,33	0,51	0,23	0,27

4.3.4.2 Position des fissures et températures correspondantes

L'essai réalisé sur l'alliage 52M a permis de mettre en place une simulation numérique de cette opération de soudage à l'aide de Code_Aster (logiciel libre de simulation numérique utilisé et principalement développé par EDF R&D). La simulation numérique du soudage de l'essai a été réalisée par Abdelatif Amansag lors d'un stage de fin de master 2 sous la tutelle de Sofiane Hendili dans le département PRISME de EDF R&D, ce modèle est présenté en détail au paragraphe 4.4. Les paramètres d'entrée du modèle thermique (certaines caractéristiques du matériau et certains paramètres de la source thermique) ont été ajustés de façon à reproduire les cycles de température mesurés par les thermocouples en des points particuliers de la surface de l'éprouvette, ainsi que la forme des bains de fusion, obtenus par observation métallographique.

Au cours d'une passe de refusions, chaque point de l'éprouvette voit sa température augmenter puis diminuer. On peut donc associer à chaque point une température maximale atteinte. Cette température maximale atteinte diminue avec la distance à la ligne de fusion.

Seule la distance des thermocouples au bord droit de l'éprouvette (dans le sens de soudage) a été retenue (la position a été projetée comme représenté sur le schéma de la figure 4.16). La courbe de la température maximale atteinte simulée par Code_Aster et calculée au centre de l'éprouvette (à la moitié de la course de la source de chaleur) est présentée sur la figure 4.17. Ce graphique permet de comparer les résultats de la simulation avec les températures maximales mesurées par les thermocouples au cours du soudage.

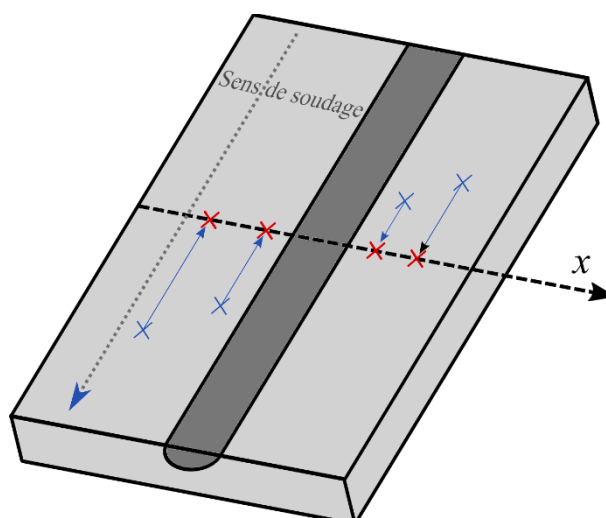


Figure 4.16. Schéma de la projection de la position des thermocouples pour la simulation. Les croix bleues schématisent la position des thermocouples sur la surface de l'éprouvette. Seules les distances au bord droit de l'éprouvette (dans le sens de soudage) sont retenues (croix rouges).

Les cercles sur la figure 4.17 correspondent aux températures maximales mesurées par les thermocouples et les carrés correspondent à la température du solidus mesurée par ATD.

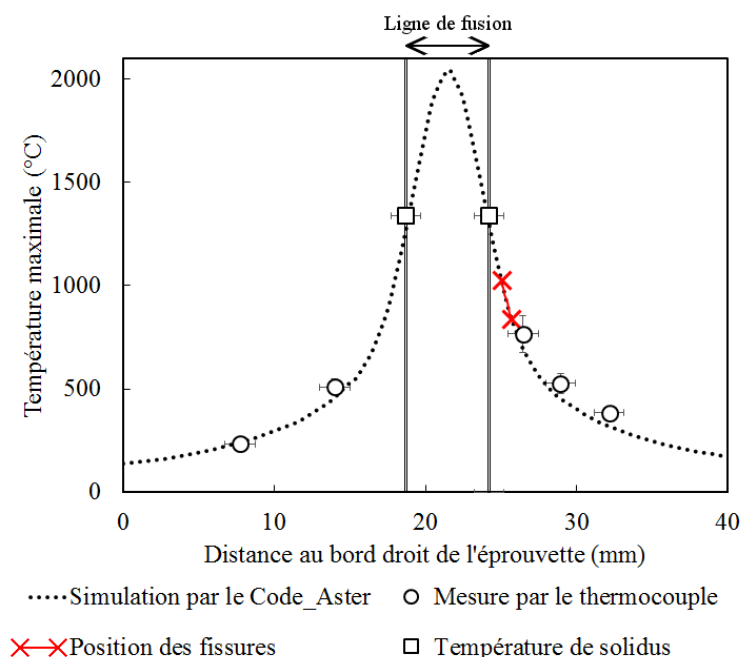


Figure 4.17. Simulation numérique (ligne pointillée) de la température maximale atteinte en fonction de la position à la surface de l'éprouvette (distance au bord droit de l'éprouvette) lors de l'opération de soudage et comparaison avec les températures maximales mesurées par les thermocouples lors de la passe 4 sur l'alliage 52M. Les cercles correspondent aux températures maximales mesurées par les thermocouples et les carrés correspondent à la température du solidus mesurée par ATD. Les croix rouges désignent la température maximale atteinte à la position des fissures les plus éloignées et les plus proches de la ligne de fusion observées pour la passe 4 sur l'alliage 52M.

La simulation de la thermique de l'essai permet, à l'aide de la position des fissures sur l'éprouvette, de déterminer la température maximale atteinte dans la zone qui fissure. Pour la passe 4, les fissures sont situées à une distance comprise entre 0,8 mm et 1,5 mm de la ligne de fusion ; cela signifie que la température maximale atteinte dans cette zone pendant la passe est comprise entre 840°C et 1030°C, soit entre 0,7 et 0,8 fois la température de solidus. Ces températures maximales atteintes lors de la passe de fusion aux positions où sont observées les fissures sont cohérentes avec la DDC. De plus elles sont comprises dans le creux de ductilité observé lors des essais de ductilité à chaud, cf. § 4.1.1. Enfin, il faut souligner le fait que les températures déterminées ici sont les valeurs maximales atteintes au cours des cycles : il est possible que les fissures observées se soient formées à plus basse température. Pour connaître plus précisément la température à laquelle sont apparues les fissures, un repérage temporel aurait été nécessaire, en plus du repérage spatial réalisé dans cette étude.

4.4 Modélisation thermomécanique de l'essai RCT

Nous présentons ici quelques résultats de calcul thermomécanique issu d'un modèle numérique de l'essai RCT par la méthode des éléments finis. Comme déjà signalé, ce modèle a été développé principalement dans le cadre du stage de master d'Abdellatif Amansag encadré par Sofiane Hendili, en parallèle au travail de thèse qui fait l'objet de ce manuscrit. Une présentation détaillée du modèle est proposée en Annexe 7.3. L'objectif principal de ce travail de modélisation est d'estimer :

- les températures maximales atteintes au cours d'une passe de refusions dans la zone de fissure ;
- les niveaux de contraintes et de déformation plastique.

4.4.1 Étude thermique

À l'aide des thermocouples placés à la surface des éprouvettes (cf. figure 4.16 pour l'éprouvette 52M), il est possible de comparer les températures mesurées et celles calculées à l'aide de la simulation de l'essai, comme le montre la figure 4.18. L'encadré a) présente une cartographie de température de la surface d'une éprouvette RCT à un moment donné au cours d'une passe de refusions. La position du thermocouple sur l'éprouvette est identifiée par une croix rouge dans un carré noir. Le graphe b) de cette même figure présente les températures enregistrées par le thermocouple à cette position sur la plaque ainsi que la température calculée en ce point de l'espace. Nous constatons un écart sur la température maximale atteinte entre la simulation et le thermocouple (la situation est la même pour quatre des cinq thermocouples de l'éprouvette de l'alliage 52M, cf. figure 4.17). Cependant les cinétiques de chauffage et de refroidissement sont semblables.

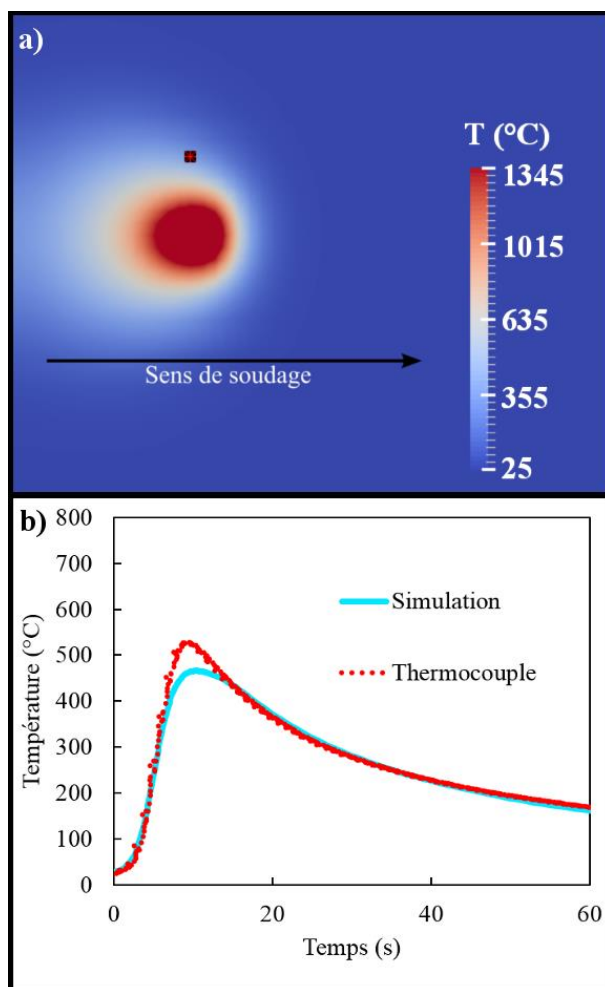


Figure 4.18. Cartographie de la température de surface de l'éprouvette à un instant donné au cours d'une passe de l'essai RCT (a) et profils de température calculé et mesuré par thermocouple au point rouge (b). Il s'agit du deuxième thermocouple le plus proche de la ligne de fusion utilisé sur l'éprouvette de l'alliage 52M.

4.4.2 Déformation plastique cumulée

4.4.2.1 Déformation plastique cumulée en surface

La figure 4.19 présente les températures maximales atteintes en surface de l'éprouvette au cours d'une passe de refusions ainsi que les déformations plastiques cumulées à la fin de chacune des passes, pour les prépasse ainsi que pour les passes 1 à 4. Les rectangles rouges des deux encadrés représentent les zones fondues. La figure b) montre une vue grossie de la moitié de l'éprouvette, le zéro de l'abscisse correspondant au milieu de la zone fondue. Nous pouvons constater que les déformations plastiques cumulées en fin de passes augmentent avec la température maximale atteinte en cours de refusions. Les zones les plus proches de la ligne de fusion sont celles qui atteignent les déformations plastiques cumulées les plus importantes. Les déformations induites en zone fondue sont surestimées,

l'érouissage en compression lors de la phase de chauffage n'étant pas restauré dans le calcul par la fusion. L'érouissage dû aux prépasses en zone de fissuration est donc surestimé.

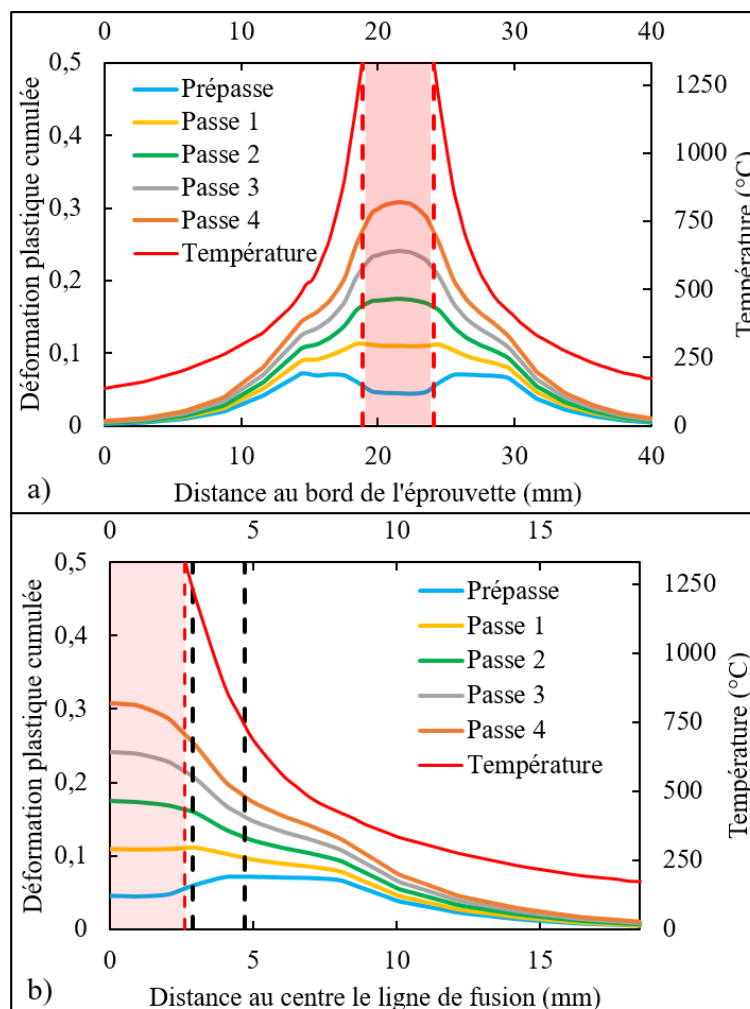


Figure 4.19. Déformation plastique cumulée en fin de passes et température maximale atteinte au cours d'une passe, en fonction de la position à la surface de l'éprouvette. L'encadré a) présente les résultats dans la largeur de toute l'éprouvette ; la zone rouge au centre correspond à la zone fondue. L'encadré b) représente la moitié de la largeur de l'éprouvette ; les lignes en tirets noirs représentent l'intervalle spatial dans lequel des fissures sont observées.

4.4.2.2 Déformation plastique cumulée en profondeur

La figure 4.20 présente la cartographie de température maximale atteinte dans une coupe transversale de l'éprouvette. Prenons deux points situés sur la même verticale P0 et P1, et un troisième point P2 situé sur la même isotherme que P0. P1 est à 1,98 mm de la surface, donc de P0. P2 est à 1,27 mm de la surface et à 0,67 mm de P0 et P1 selon la direction \vec{y} .

Les températures de ces trois points au cours des passes de refusions sont présentées figure 4.21. P0 et P2 sont situés sur l'isotherme $T_{\max} = 1150^{\circ}\text{C}$ et P1 est situé quant à lui sur l'isotherme $T_{\max} = 900^{\circ}\text{C}$.

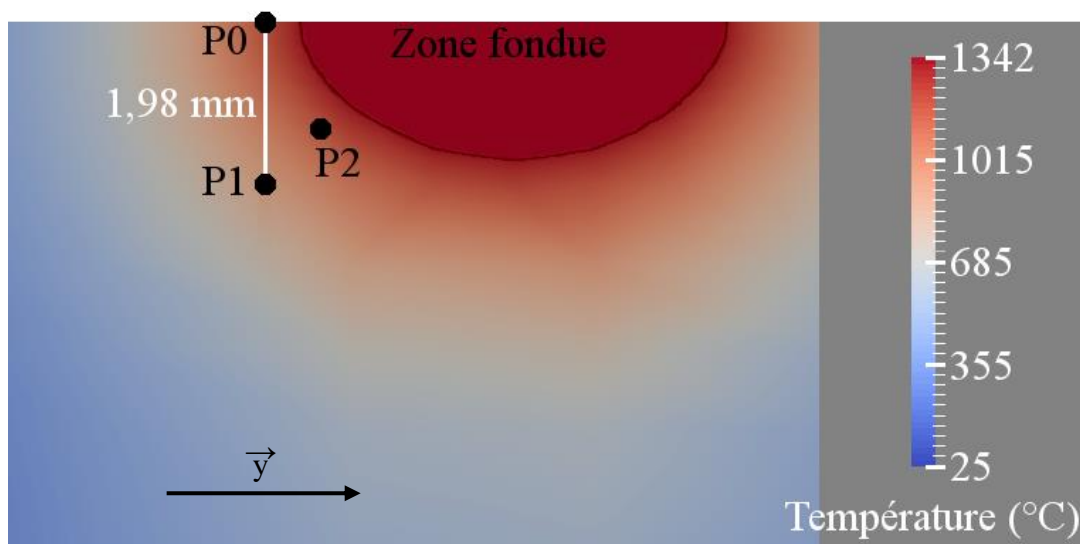


Figure 4.20. Position des points P0, P1 et P2 vis-à-vis de la zone fondue. La ligne rouge foncé marque le bord de la zone fondue. Cartographie de la température maximale atteinte en cours de passe.

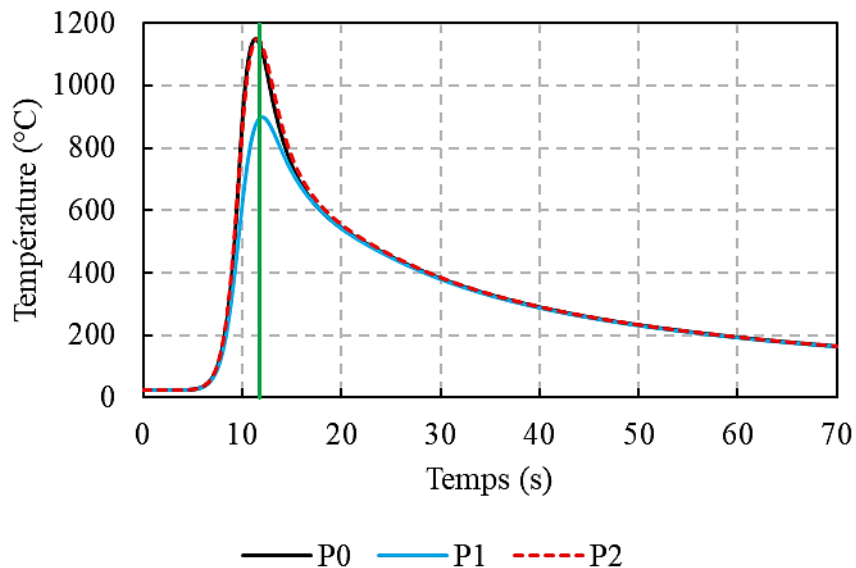


Figure 4.21. Température pendant une passe de refusions pour les trois points considérés, P0, P1 et P2, le segment vert marque le début du refroidissement.

Les déformations plastiques cumulées pendant les passes 1 et 5 sont présentées sur la figure 4.22. Pour ces deux passes, les évolutions temporelles de la déformation aux trois points ont la même allure, mais sont décalées en valeur absolue du fait de

l'accumulation de déformation au cours de passes. À l'aide de la figure 4.23, qui présente les points P0 et P2 sur l'échelle de gauche et le point P1 sur l'échelle de droite (pour permettre une meilleure lisibilité), nous pouvons remarquer que la majeure partie de l'accroissement de la déformation plastique a lieu pendant le chauffage. Les déformations plastiques augmentent légèrement en début de refroidissement.

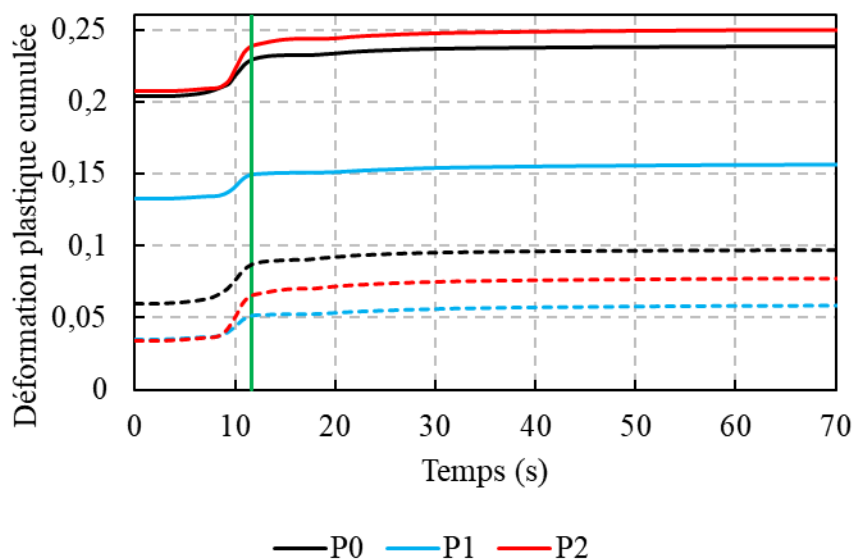


Figure 4.22. Déformation plastique cumulée pendant la première passe (tirets) et à la cinquième passe (lignes continues) pour les trois points considérés, P0 (lignes noires), P1 (lignes bleues) et P2 (lignes rouges). La ligne verte marque le début du refroidissement.

Nous pouvons également constater à l'aide de ces deux figures que la déformation plastique cumulée du point P2 est plus faible que celle du point P0 lors de la première passe mais pas lors de la cinquième passe. Nous pouvons voir que pour ces deux points situés sur la même isotherme de température maximale (et qui présentent des cycles thermiques similaires, cf. figure 4.21) la déformation plastique cumulée est plus importante pour le point en profondeur que pour le point en surface lors de la passe 5, alors que le classement était inversé lors de la première passe (du fait de la pré-passe).

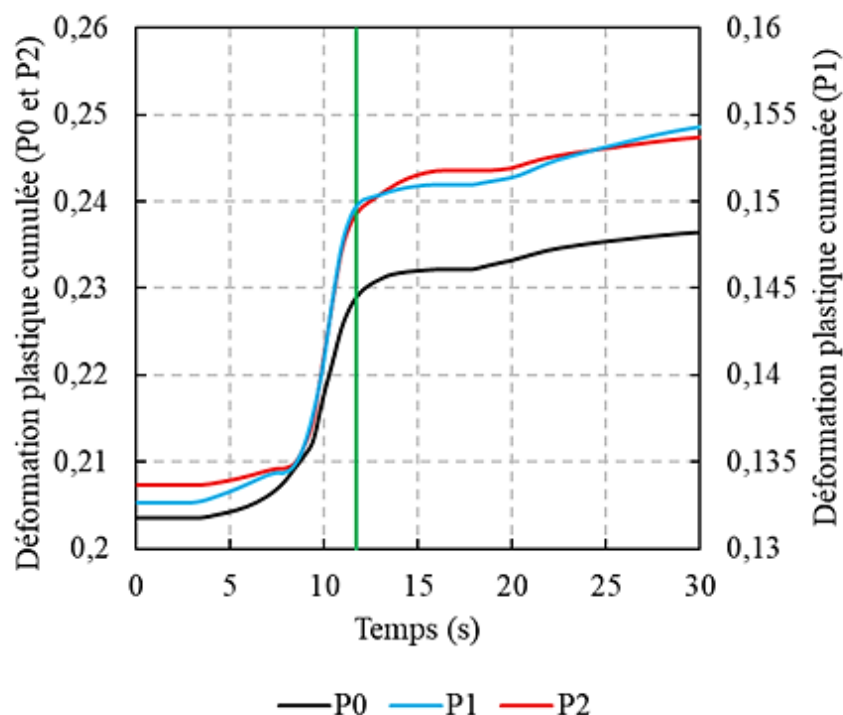


Figure 4.23. Déformation plastique cumulée pendant la cinquième passe pour les trois points considérés, P0, P1 et P2. Pour une meilleure lisibilité, la déformation plastique des points P0 et P2 est lisible sur l'axe de gauche, la déformation plastique cumulée de P1 sur l'axe de droite. La ligne verte marque le début du refroidissement.

4.4.2.3 Confrontation des résultats du modèle avec la littérature

Comme nous l'avons déjà mentionné, l'équipe de Steven McCracken de l'EPRI (Electric Power Research Institute) a développé un test de fissuration par refusions et proposé une modélisation thermomécanique de cet essai (20).

Compte tenu de la similitude entre les essais RCT et « EPRI », il nous a semblé intéressant de comparer les résultats de la modélisation thermomécanique de chacun des deux essais. Cette comparaison est présentée sur la figure 4.24.

Dans les deux essais (RCT et « EPRI »), on se place en un point de l'éprouvette situé à une distance de la zone fondue telle que la température maximale atteinte est de 1340°C. La figure 4.24 présente, pour chacun des deux essais, l'évolution de la température et de la déformation plastique cumulée en fonction du temps au point considéré. Il s'agit dans les deux cas de l'alliage 52M. L'évolution de la température est la même à chaque passe ; elle n'est donc représentée qu'une fois. On observe une augmentation de la déformation plastique cumulée au cours de chaque passe (la déformation plastique en début de passe n correspond à celle obtenue en fin de passe

$n - 1$). Les évolutions de la déformation plastique cumulée au cours des passes présentent des allures similaires dans les deux essais, mais on note que nos calculs sur l'essai RCT donnent des déformations environ deux fois plus faibles. Les ordres de grandeur de ces déformations cumulées sont de 20 à 45% pour les essais RCT et EPRI respectivement, après trois passes de refusions (dont environ 5 et 10% respectivement avant les refusions).

S'agissant de la thermique, on note que l'essai RCT, par rapport à l'essai « EPRI », conduit à une vitesse de refroidissement plus rapide en début de refroidissement ($6 \text{ s} < t < 12 \text{ s}$) mais plus lente au-delà de 12 s. Les différences observées entre les deux modèles, en matière de température et de déformation plastique cumulée, semblent compatibles avec les différences géométriques, effectives. Les écarts observés peuvent aussi venir de possibles différences sur les paramètres de soudage (les paramètres de soudage de l'EPRI ne sont pas connus, mais l'énergie de soudage est manifestement supérieure à celle de l'essai RCT au vu du cycle thermique montré figure 4.24).

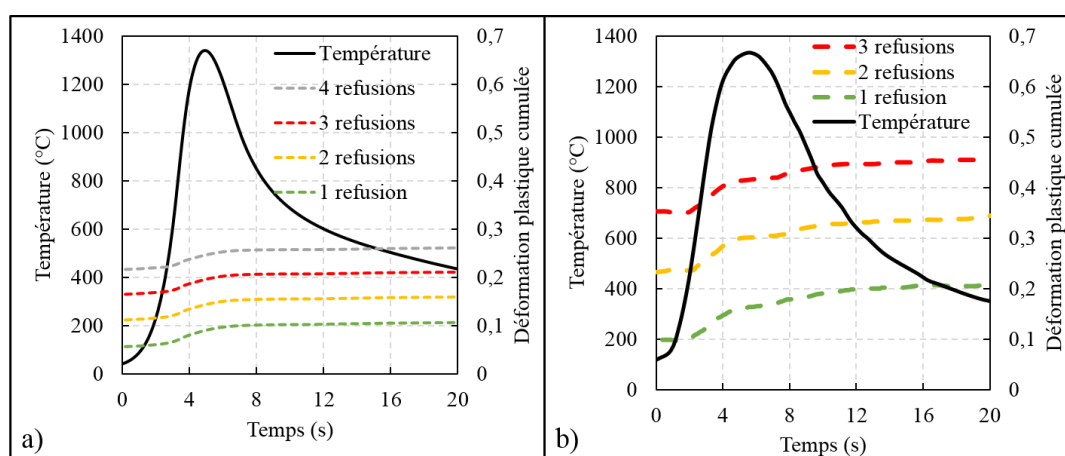


Figure 4.24. Comparaison du calcul de la température et de la déformation plastique cumulée lors des passes de refusions de l'essai RCT a) et de l'essai « EPRI » b) (adapté de (20)). Le calcul est réalisé en un point situé à une distance de la zone fondue telle que la température maximale atteinte est de 1340°C. Alliage 52M.

Dans l'essai RCT (figure 4.24a), la plasticité est active (la déformation plastique cumulée augmente) surtout lors de la phase de chauffage. Une augmentation faible et continue de la déformation plastique est notée durant presque toute la phase de refroidissement (déformation constante aux environs du temps 15 s).

Dans l'essai EPRI (figure 4.24b), on note également une phase de plasticité active comparable au chauffage, et une seconde assez bien marquée au refroidissement entre 1100 et 800 °C environ.

4.4.2.4 Conclusions sur les déformations plastiques cumulées

Nous pouvons conclure que la déformation plastique cumulée augmente avec le nombre de passes. De plus nous avons constaté que la déformation plastique cumulée et décroît avec la distance à la ligne de fusion. Enfin, nous avons pu constater que pour deux points situés sur une même isotherme, la déformation plastique cumulée augmente plus fortement entre chaque passe pour les points situés en profondeur. Les niveaux de déformation plastique cumulée atteints sont relativement élevés : de l'ordre de 0,27 après quatre passes. Il convient de noter cependant qu'une restauration partielle peut intervenir à haute température. Cette restauration n'est pas prise en compte dans le modèle.

4.4.3 Contraintes

Nous continuons ici de travailler avec les points P0, P1 et P2 que nous avons présentés figure 4.20 et analysons les contraintes qui ouvrent les fissures, c'est-à-dire les contraintes selon la direction \vec{y} , direction normale à la direction de soudage dans le plan de la surface de l'éprouvette.

En comparant les contraintes en P0, P1 et P2, présentés sur la figure 4.25 et plus en détail sur la figure 4.26, nous pouvons constater que la contrainte en début et fin de passe est supérieure pour le point P1, que ce soit pour la première passe ou la cinquième passe. Durant le cycle thermique, les trois points passent en compression lors de la phase de chauffage. Les points situés sur l'isotherme $T_{\max} = 1150^{\circ}\text{C}$ (P0 et P2) sont ceux dont la contrainte repasse en traction en premier, peu de temps après le début du refroidissement. Le point P0 a une contrainte supérieure à celle du point en profondeur pendant le début du refroidissement, qui est probablement la période durant laquelle les fissures s'ouvrent, puisque l'on note ensuite une phase de décharge transitoire. C'est ce que suggère la littérature, les essais STF sont faits au refroidissement par exemple (cf. Tableau 2.4 p.18 pour les références). De plus pour que les fissures puissent s'ouvrir, il faut que la matière soit en traction, comme c'est

le cas au refroidissement d'après notre simulation. La contrainte en surface passe par un maximum de l'ordre de 200 MPa pour une température proche de 750°C. Après quelques secondes de refroidissement (environ 4 s, lorsque les deux points, P0 et P2, ont une température proche de 600°C), le point en profondeur subit une contrainte de traction supérieure à celle du point en surface, si l'on considère la contrainte dans la direction d'ouverture des fissures (\vec{y}).

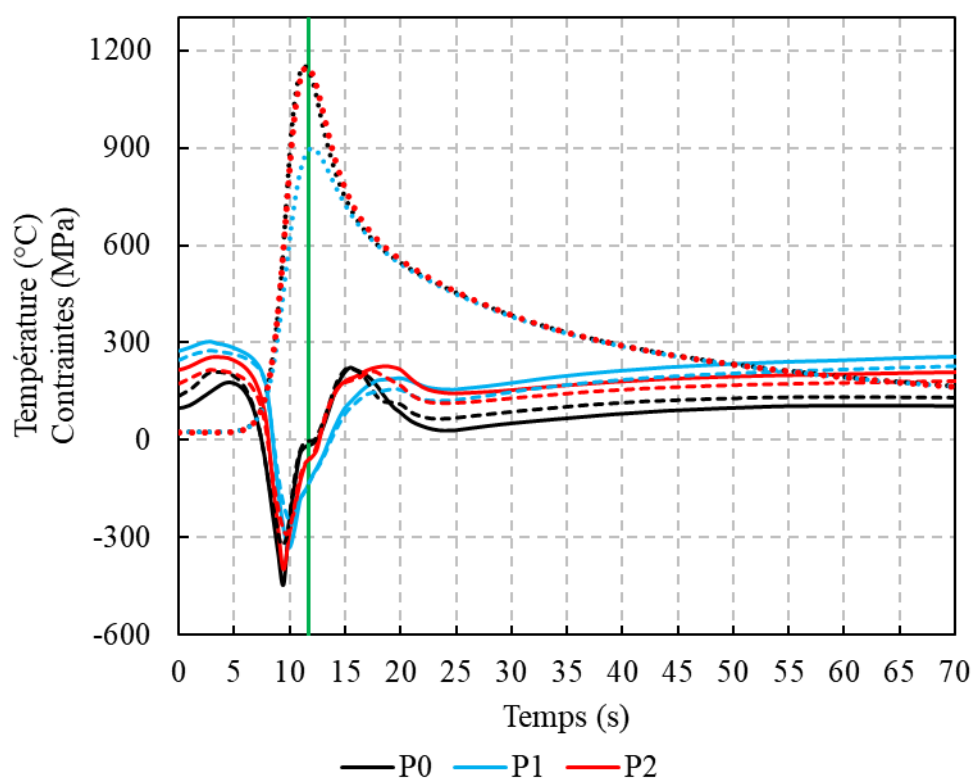


Figure 4.25. Température (pointillés) et contrainte selon la direction \vec{y} pour les trois points P0 (lignes noires), P1 (lignes bleues) et P2 (lignes rouges), à la 1^{re} (tirets) et 5^e passe (lignes continues). P0 et P2 sont sur la même isotherme, P0 et P1 sont sur la même verticale. La ligne verte marque le début du refroidissement.

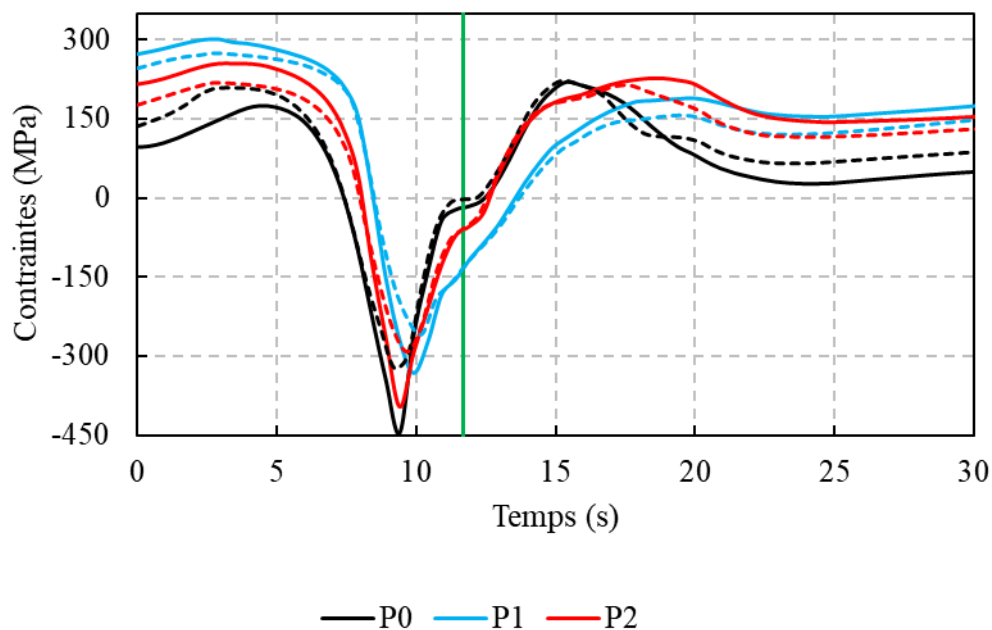


Figure 4.26. Contrainte selon la direction \vec{y} pour les trois points P0 (lignes noires), P1 (lignes bleues) et P2 (lignes rouges), aux 1^{re} (tirets) et 5^e passes (lignes continues). P0 et P2 sont sur la même isotherme, P0 et P1 sont sur la même verticale. La ligne verte marque le début du refroidissement.

Pour les deux points situés sur une même verticale (selon l'axe \vec{z}), en fin de passe, la contrainte de traction croît avec la profondeur. En cours de passe, au début du refroidissement et pendant environ quatre secondes, la contrainte est légèrement plus élevée en surface qu'en profondeur.

4.4.3.1 Contraintes au fur et à mesure des refusions

Pour les points en profondeur, P1 et P2, la contrainte en fin de cycle est plus grande après cinq cycles qu'après un cycle (environ + 30 MPa dans les deux cas). Par contre, ce n'est pas le cas pour le point en surface P0, dont la contrainte est plus faible après cinq cycles (environ – 30 MPa).

Pour les trois points, la contrainte de compression est plus importante (valeur plus négative) à la cinquième passe qu'à la première. De plus, pendant les quatre ou cinq premières secondes du refroidissement (jusqu'à ce que la température soit proche de 600°C pour les trois points), les contraintes varient très peu entre la première et la cinquième passe, pour les trois points considérés. Les contraintes en fin de passes et les contraintes minimales en cours de passes sont présentées dans le tableau 4.3.

Tableau 4.3. Contraintes en fin de passe et contraintes minimales pour les trois points aux première et cinquième passes.

	<i>P0</i>	<i>P1</i>	<i>P2</i>
<i>Contrainte en fin de 1^{re} passe (MPa)</i>	118	251	197
<i>Contrainte minimale en cours de 1^{re} passe (MPa)</i>	-324	-258	-292
<i>Contrainte en fin de 5^e passe (MPa)</i>	92	281	221
<i>Contrainte minimale en cours de 5^e passe (MPa)</i>	-445	-331	-397

4.4.3.2 Résumé sur les contraintes

Nous pouvons conclure de ces calculs que la contrainte en fin de passe augmente en profondeur (environ + 10% après quatre passes supplémentaires) et semble diminuer en surface (environ – 10% après quatre passes supplémentaires). Les contraintes transitoires de compression au cours du chauffage sont plus importantes après cinq passes qu'à la première (environ + 25% sur la valeur absolue de la contrainte de compression après quatre passes supplémentaires).

En revanche, les contraintes calculées en début de refroidissement sont semblables entre les passes 1 et 5 pour les trois points.

Les contraintes sont plus importantes en début et fin de passe en profondeur. Cependant, en cours de passe, les contraintes de compression sont plus élevées en surface et les contraintes de traction sont également plus élevées en début de refroidissement en surface.

4.4.4 Conclusion sur l'approche numérique

Les apports du travail de modélisation thermomécanique réalisé ici peuvent être résumés ainsi :

- L'étude thermique permet de connaître les températures maximales atteintes au cours d'une passe dans la zone de l'éprouvette qui fissure. Les fissures les plus éloignées de la zone fondue sont situées dans des zones où la température n'excède jamais 800°C. Cela signifie que dans

ces zones, la température de fissuration est inférieure (ou éventuellement égale) à 800°C.

- Des contraintes de traction se développent de façon quasiment synchrone avec le début du refroidissement, puis passent par un maximum à une température dépendant du point considéré. Ce sont ces phases de plasticité active en traction qui sont manifestement les plus endommageantes et donc susceptibles d'initier et propager les fissures.
- Les contraintes augmentent peu au fur et à mesure des passes.
- On observe une augmentation forte de la déformation plastique cumulée au cours des passes. Cette déformation atteint 20 à 25% après quatre passes dans la zone qui fissure.

Toutefois, en présence de fissures, il y a des effets de concentrations de contraintes et de déformations, qui ne sont pas pris en compte par notre modèle. Ces résultats seront exploités lors de l'interprétation ultérieure des conditions et mécanismes de fissuration, au Chapitre 5.

4.4.5 Synthèse sur le développement de l'essai RCT

Nous avons mis en place un essai de fissuration par chute de ductilité qui permet de produire des fissures, sur l'alliage 52M, comparables en taille à celles obtenues par d'autres équipes avec un essai semblable. Ces fissures se forment à une distance de la ligne de fusion qui correspond à des maxima de température compris dans la DTR du matériau, identifiée à l'aide des essais de traction à chaud. De plus, la température maximale atteinte au niveau des fissures est inférieure d'environ 200 K à la température de solidus mesurée par ATD (cf. figure 4.17). L'ensemble de ces informations indique que les fissures observées se forment en phase solide et sont par conséquent des fissures de DDC.

L'essai développé ici permet de discriminer efficacement les deux alliages industriels que nous avons à notre disposition. De plus, les résultats sont cohérents avec ceux obtenus à l'aide des essais Varestraint. L'essai RCT met également en évidence l'importance de la sollicitation cyclique pour engendrer des fissures dans les matériaux.

Cet essai est simple à mettre en œuvre et demande une quantité de matière relativement réduite pour être mis en place ($\sim 20 \text{ cm}^3$) contrairement à d'autres essais existants ($\sim 600 \text{ cm}^3$ pour la maquette de Young ou plus de $10\,000 \text{ cm}^3$ pour la maquette de soudage de l'EPRI, cf. § 2.2.3). C'est un essai autobridé et donc plus représentatif d'une opération de soudage qu'un essai à sollicitation mécanique externe ou bien que des essais en simulateur thermomécanique.

Par sa géométrie simple, il est facilement modélisable. La simulation numérique de cet essai a permis d'accéder aux champs de température, de déformation et de contraintes de nos éprouvettes. La déformation plastique cumulée augmente fortement au fur et à mesure des passes au contraire des contraintes qui restent assez semblables d'une passe à l'autre. Au cours des passes, en tout point, on observe notamment au début du refroidissement des contraintes de traction susceptibles d'initier et de propager des fissures. Ces simulations ne prennent cependant pas compte la présence de fissures, ni les concentrations de contraintes et de déformations qu'elles induisent.

Une fois que cet essai a été mis en place et afin de mieux comprendre le phénomène de fissuration par chute de ductilité, les alliages modèles, dont les compositions sont données au paragraphe 3.2.1., ont été testés à l'aide de ce même essai. Les résultats et discussions associés font l'objet du prochain chapitre.

5 Apports sur les mécanismes de la fissuration par chute de ductilité

L'étude bibliographique a montré la difficulté d'établir des corrélations entre la teneur en un élément particulier et la sensibilité à la fissuration par perte de ductilité. Cette difficulté provient, en partie, de la complexité chimique des matériaux industriels, sur lesquels s'appuient les études que nous avons recensées dans la littérature : entre deux matériaux industriels, la variation de composition chimique porte toujours sur plusieurs éléments. Il est donc très difficile, voire impossible, d'isoler l'effet d'un élément particulier en comparant plusieurs matériaux industriels. Pour contourner cette difficulté, nous avons choisi de nous appuyer sur des matériaux « modèles », dont nous pouvons contrôler précisément la composition, et en particulier faire varier la teneur d'un élément donné « toutes choses égales par ailleurs ». De plus, nous avons mis au point une nouvelle méthode, présentée au paragraphe 4.3, pour la mesure de la sensibilité à la DDC : l'essai RCT. Cette méthode, qui a donné des résultats qualitativement similaires à ceux de l'essai Varestreint sur deux matériaux industriels (alliages 52M et 152), est en revanche plus simple de mise en œuvre et beaucoup plus économe en matériau. C'est donc l'essai RCT que nous avons retenu pour mesurer la sensibilité des alliages modèles à la DDC.

Après avoir présenté les résultats de l'essai RCT sur les alliages modèles, nous présenterons des observations, sur certains de ces alliages, de faciès de rupture, de coupes polies et de fissures vues depuis la surface. En exploitant les résultats obtenus sur les alliages modèles et sur les alliages industriels, nous tenterons de relier la sensibilité à la DDC à la composition, en particulier aux teneurs en niobium, en carbone et en soufre. Nous discuterons ensuite les effets possibles de ce dernier élément en proposant plusieurs scénarios possibles sur son mode d'action. À la suite de cette discussion, nous aborderons l'effet du carbone et des carbures.

5.1 Présentation des résultats de l'essai RCT sur les alliages modèles

5.1.1 Le choix des alliages modèles

Nous avons à notre disposition un essai d'évaluation de la sensibilité à la fissuration par chute de ductilité qui a permis de différencier nos deux alliages industriels. Nous nous proposons ici d'utiliser cet essai pour tester l'influence de la teneur en soufre et en carbone sur la DDC.

En effet, l'étude bibliographique menée dans ce travail suggère un rôle fragilisant du soufre (cf. § 2.3.3 p.31 et tableau 2.5 p.40). De plus, il nous semblait intéressant d'étudier l'influence des carbures secondaires sur la fissuration du fait de l'absence de consensus autour de ces derniers (cf. § 2.3.2.3 p.29). Afin de n'étudier que l'influence potentielle des carbures secondaires, nous avons fait le choix de ne pas mettre de niobium dans nos alliages modèles pour éviter la formation de carbures primaires. Nous avons ainsi pris comme base de composition de nos alliages modèles celle de l'alliage 52M, en retirant le niobium et en faisant varier les teneurs en carbone et en soufre, pour un total de quatre alliages (cf. tableau 3.4 p.47) :

- Une base, à basse teneur en soufre (4,7 ppm) et en carbone (11 ppm).
- Un alliage à haute teneur en soufre (52 ppm) et basse teneur en carbone (16 ppm), qui sera appelé alliage « base + S » par la suite.
- Un autre à basse teneur en soufre (3,1 ppm) et à haute teneur en carbone (404 ppm), qui sera appelé alliage « base + C ».
- Enfin un alliage à haute teneur en soufre (56 ppm) et haute teneur en carbone (418 ppm) qui sera par la suite appelé alliage « base + CS ».

5.1.2 Les résultats de l'essai RCT

Les alliages modèles ont été testés à l'aide de l'essai RCT. Sauf mention contraire, chacun a subi huit passes de refusions.

5.1.2.1 Influence du soufre

La figure 5.1 présente les résultats des essais RCT pour les alliages « base » et « base + S ». Ces essais permettent de mettre en évidence l'influence néfaste du soufre. L'alliage « base + S » se révèle bien plus sensible à la DDC que l'alliage « base »,

que ce soit sur la longueur de fissures cumulée ou bien sur le nombre de fissures observées. Du fait de sa forte sensibilité, seules quatre passes ont été réalisées sur cet alliage, contre huit passes pour les autres alliages modèles. Passer de 4,7 ppm en masse de soufre à 52 ppm a un très net impact sur la sensibilité à la fissuration. On note cependant que l'alliage « base » présente déjà une certaine sensibilité. On peut penser que la teneur résiduelle de soufre (4,7 ppm massique), bien que faible, soit responsable de cette sensibilité.

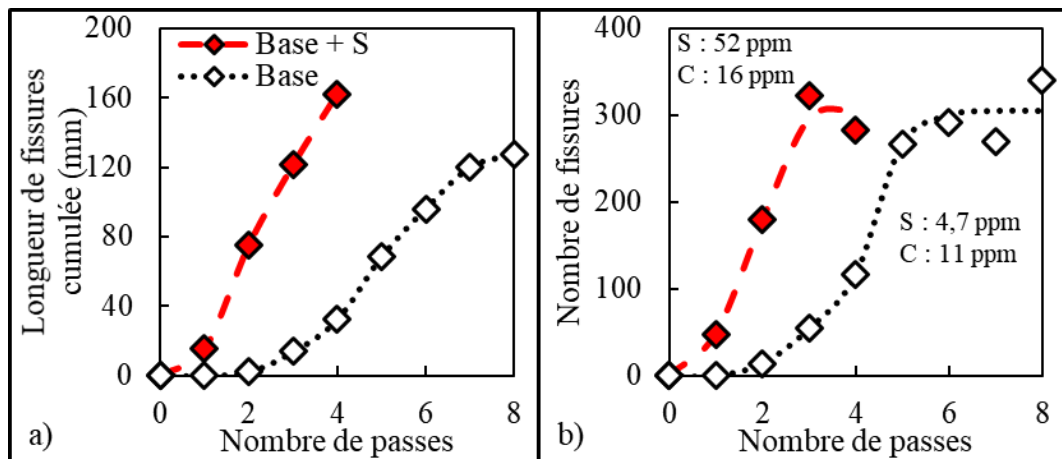


Figure 5.1. Résultats des essais RCT sur les alliages modèles « base » (11 ppm de carbone et 4,7 ppm de soufre) et « base + S » (16 ppm de carbone et 52 ppm de soufre). a) longueur de fissures cumulée en fonction du nombre de passes de refusions, et b) nombre de fissures en fonction du nombre de passes. Les lignes sont des guides pour les yeux.

Il semblerait que le nombre de fissures n'augmente plus au bout d'un certain nombre de passes, trois pour l'alliage « base + S » et cinq pour l'alliage « base ». Nous discuterons de ce point plus tard.

5.1.2.2 Influence du carbone

La figure 5.2 présente les résultats obtenus sur les alliages « base » et « base + C ». L'alliage « base + C » est plus résistant que l'alliage « base », que ce soit en termes de longueur de fissures cumulée ou de nombre de fissures. L'ajout d'environ 400 ppm de carbone permet de réduire fortement la sensibilité à la DDC.

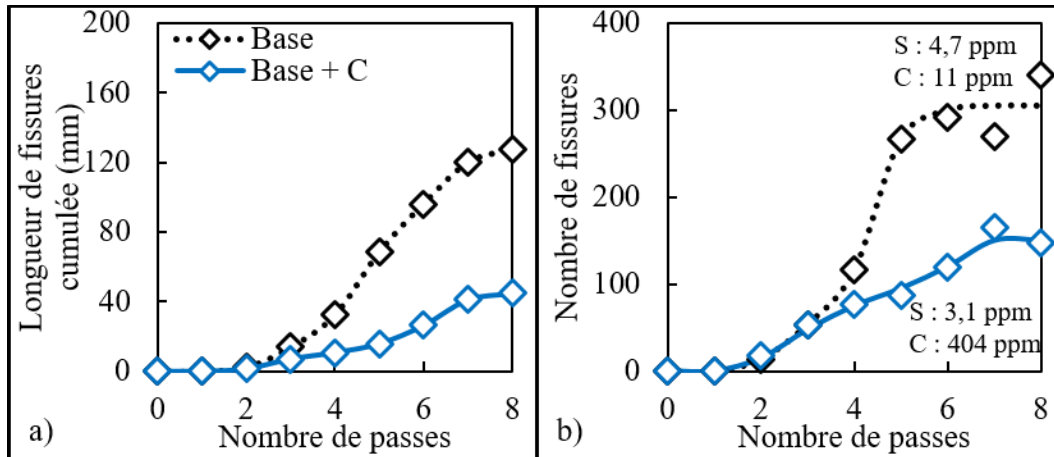


Figure 5.2. Résultats des essais RCT sur les alliages modèles « base » (11 ppm de carbone et 4,7 ppm de soufre) et « base + C » (404 ppm de carbone et 3,1 ppm de soufre). a) longueur de fissures cumulée en fonction du nombre de passes de refusions, et b) nombre de fissures en fonction du nombre de passes. Les lignes sont des guides pour les yeux.

5.1.2.3 Influence couplée

La figure 5.3 présente les résultats des essais RCT pour les quatre alliages modèles. Les résultats sur l'alliage « base + CS » confortent ceux de l'alliage « base » vis-à-vis de « base + S » et de l'alliage « base » vis-à-vis de « base + C » : « base + CS » fissure plus que « base + C » mais moins que « base + S ». La différence notable sur les longueurs de fissures cumulée entre les alliages « base + C » et « base + CS » ne se retrouve toutefois pas au niveau du nombre des fissures. La longueur de fissures cumulée semble donc être un meilleur indicateur de la sensibilité à la fissuration.

En résumé, les alliages à basse teneur en carbone sont moins résistants que les alliages à haute teneur en carbone, et les alliages à haute teneur en soufre sont plus sensibles que les alliages à basse teneur en soufre. La présence de carbone neutralise quasiment l'action du soufre.

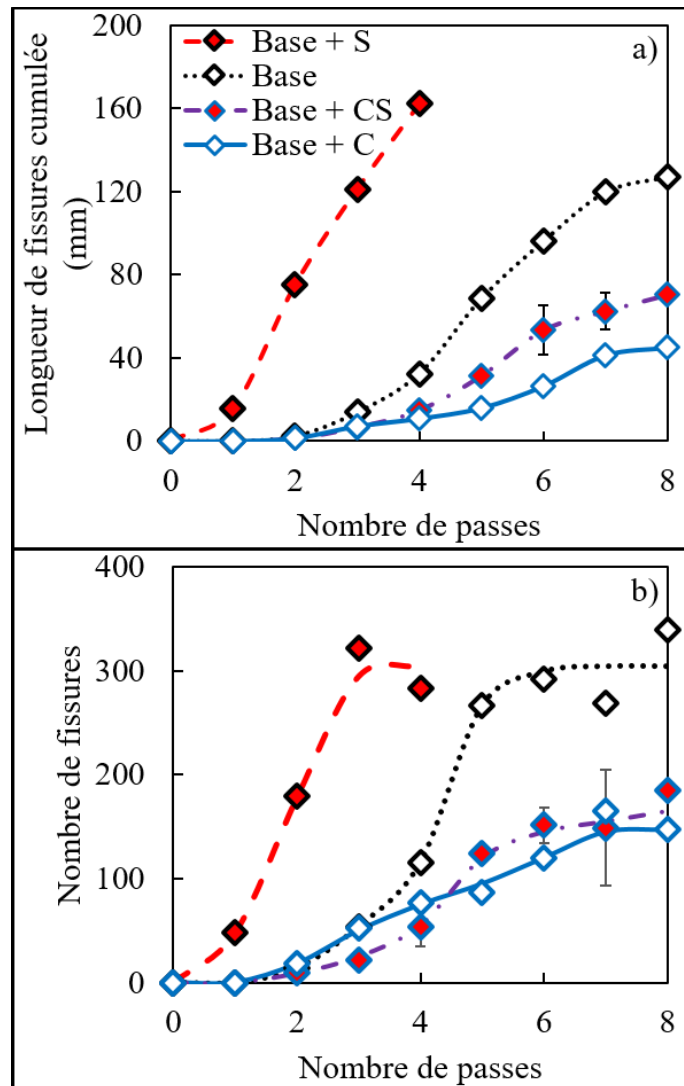


Figure 5.3. Résultats des essais RCT sur les alliages modèles « base » (11 ppm de carbone et 4,7 ppm de soufre), « base + S » (16 ppm de carbone et 52 ppm de soufre), « base + C » (404 ppm de carbone et 3,1 ppm de soufre) et « base + CS » (418 ppm de carbone et 56 ppm de soufre). Longueur de fissures cumulée (a) et nombre de fissures (b) en fonction du nombre de passes. Les lignes sont des guides pour les yeux.

5.1.2.4 Proposition d'une relation entre sensibilité à la fissuration et composition

Les alliages modèles peuvent être classés en fonction de leur sensibilité à la fissuration par chute de ductilité, en prenant comme critère la longueur de fissures cumulée mesurée à la suite des essais RCT. Les alliages modèles présentent alors le classement suivant, du moins sensible au plus sensible :

$$\ll \text{base + C} \gg < \ll \text{base + CS} \gg < \ll \text{base} \gg < \ll \text{base + S} \gg$$

Il nous est possible d'associer un rang à chacun de ces quatre alliages en fonction de leur sensibilité, de 1 à 4, (1 étant le moins sensible et 4 le plus sensible). Nous pouvons alors proposer une relation simple, entre le rang de sensibilité à la fissuration et la teneur en soufre et carbone des alliages, comme le présente l'équation 5.1. Celle-ci traduit l'influence néfaste du soufre et bénéfique du carbone sur la résistance à la DDC. Une représentation graphique de cette relation est proposée sur la figure 5.4.

$$\text{Rang} = 3 - 51 \times C + 209 \times S \quad (5.1.)$$

Où C et S sont les teneurs en carbone et en soufre, exprimées en ppm massiques.

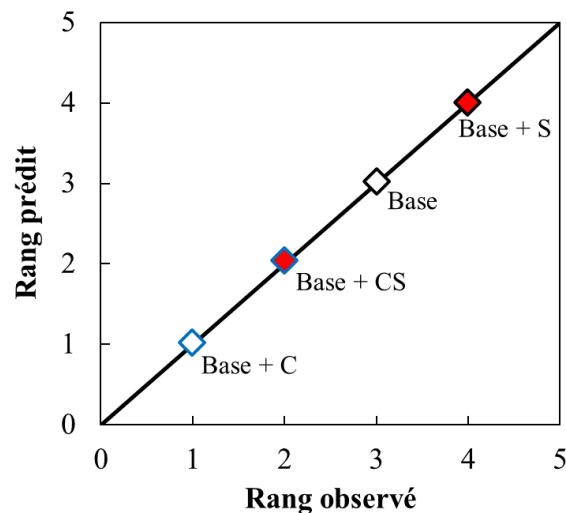


Figure 5.4. Rang prédit en fonction du rang observé à l'aide de l'équation 5.1. Le rang correspond au classement des alliages selon de leur sensibilité à la fissuration par chute de ductilité mesurée par l'essai RCT. Plus le rang est élevé, plus l'alliage est sensible.

5.1.2.5 Comparaison avec les alliages industriels

Comme nous l'avons précisé au paragraphe 5.1.1, les alliages modèles ont été élaborés en prenant l'alliage 52M comme base de composition, en supprimant le niobium. La figure 5.5 présente sur le même graphe les résultats des alliages modèles et de l'alliage 52M. On observe que l'alliage industriel 52M présente une meilleure résistance à la fissuration que n'importe lequel des alliages modèles. Les alliages sont donc classés dans l'ordre de sensibilité croissante suivant :

$$52M < \text{base} + C < \text{base} + CS < \text{base} < \text{base} + S$$

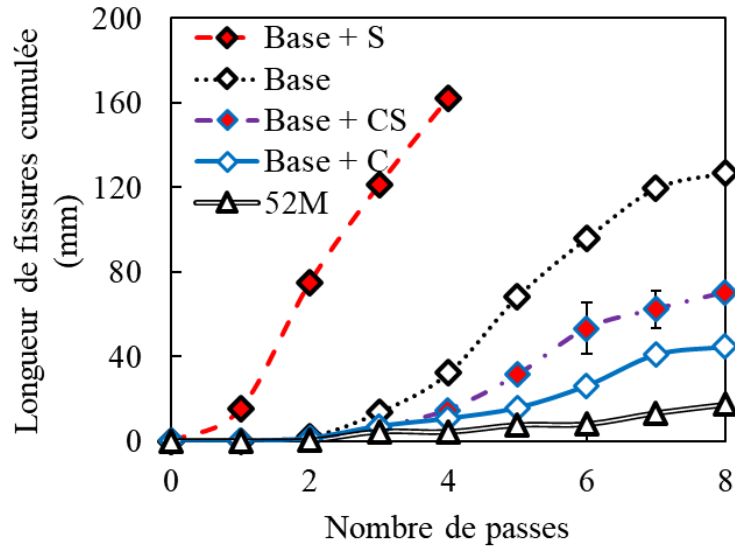


Figure 5.5. Résultats des essais RCT sur les alliages modèles (cf. figure 5.3) et sur l'alliage industriel 52M (130 ppm de carbone, 9,2 ppm de soufre et 0,84% en masse de niobium). Longueur de fissures cumulée en fonction du nombre de passes. Les lignes sont des guides pour les yeux.

Faisons l'hypothèse que seuls le carbone et le soufre jouent un rôle sur le classement des alliages au test RCT. Dans ce cas, il est possible de prédire le rang de l'alliage 52M à partir de la relation 5.1. : nous obtenons alors un rang prédit égal à 2,53 ; alors que le rang mesuré serait de 0 (l'alliage 52M étant le plus résistant des cinq alliages considérés et les quatre autres étant classés de 1 à 4 selon ce modèle, cet alliage occuperait le rang 0). Dans ces conditions, il est possible de supposer qu'un autre élément joue un rôle dans ce mécanisme de fissuration. La principale différence entre les alliages modèles et l'alliage 52M est la présence dans ce dernier de 0,84% en masse de niobium. Nous concluons que le niobium a un rôle protecteur vis-à-vis de la fissuration par chute de ductilité, ce qui est en accord avec la littérature (1–7).

La relation 5.1 est adaptable en ajoutant simplement un terme prenant en compte la teneur en niobium, comme le propose la relation 5.2 ; on notera que le terme constant est passé de 3 à 4 afin d'avoir un classement des alliages de 1 à 5 et non pas de 0 à 4. Une représentation graphique de cette relation est proposée figure 5.6.

$$\text{Rang} = 4 - 3 \times Nb - 51 \times C + 209 \times S \quad (5.2.)$$

où Nb est la teneur en niobium, exprimée en % massique.

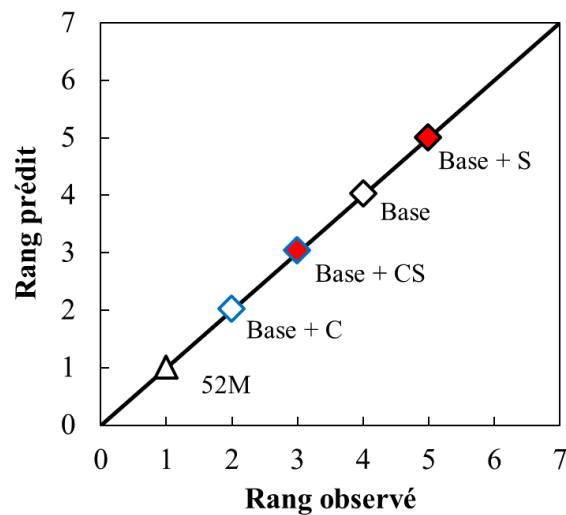


Figure 5.6. Rang prédit en fonction du rang observé à l'aide de l'équation 5.2. Le rang correspond au classement des alliages en fonction de leur sensibilité à la fissuration par chute de ductilité mesurée par l'essai RCT. Plus le rang est élevé, plus l'alliage est sensible.

La figure 5.7 présente sur un même graphe les résultats de l'essai RCT obtenus sur les alliages modèles, l'alliage industriel 52M et l'alliage industriel 152, qui a pour principales différences avec l'alliage 52M de contenir plus de carbone, plus de soufre et plus de niobium (pour plus de détails, voir le tableau 3.1.). L'alliage 152 est le plus résistant des alliages puisqu'il ne fissure pas, même après huit, douze ou seize passes.

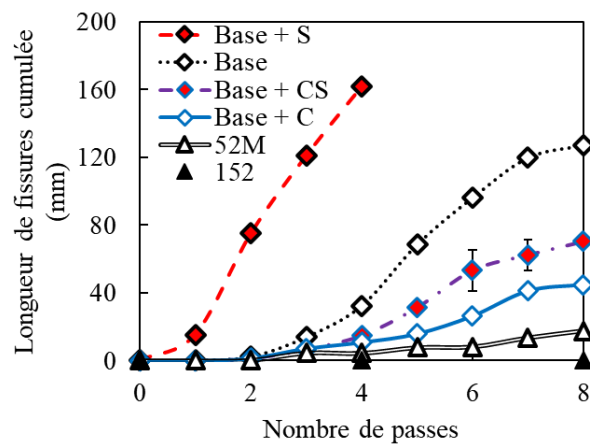


Figure 5.7. Résultats des essais RCT sur les alliages modèles (cf. figure 5.3) et sur les alliages industriels 52M (130 ppm de carbone, 9,2 ppm de soufre et 0,84% en masse de niobium) et 152 (370 ppm de carbone, 51 ppm de soufre et 2,1% en masse de niobium). Longueur de fissures cumulée en fonction du nombre de passes. Les lignes sont des guides pour les yeux.

La relation 5.2 prédit, pour l'alliage 152, un rang de $-3,1$. Ce classement négatif peut avoir du sens dans la mesure où l'alliage 152 ne fissure pas. Il suffirait d'ajuster les coefficients de la relation 5.2 pour faire commencer le classement au

rang « 1 ». Retenons ici que la comparaison des alliages industriels avec les alliages modèles met en évidence un effet protecteur du niobium vis-à-vis de la fissuration par chute de ductilité.

5.1.3 Position des fissures

Comme présenté au paragraphe 4.3.4.2 p.84, nous pouvons, à partir de la position des fissures à la surface des éprouvettes (leur distance à la ligne de fusion), déterminer la température maximale atteinte durant le cycle de soudage, et ainsi borner en température maximale atteinte la zone où les fissures apparaissent, comme le présente le tableau 5.1.

La figure 5.8 présente la température maximale atteinte en surface de l'éprouvette RCT en fonction de la distance à la ligne de fusion, perpendiculairement au sens de soudage. La courbe noire est le résultat du calcul et les points représentent les mesures par thermocouples sur les différents matériaux étudiés, ainsi que les températures et positions des lignes de fusion. Plus les thermocouples sont proches de la ligne de fusion, plus les températures maximales atteintes au cours d'une passe de refusions sont élevées. Le calcul reproduit bien l'allure du profil expérimental, certaines températures enregistrées par les thermocouples étant cependant parfois légèrement inférieures, parfois légèrement supérieures, à la température calculée.

La largeur des zones fondues varie légèrement d'un alliage à l'autre, nous raisonnons donc ici selon la distance des thermocouples à la ligne de fusion et non pas selon leur position absolue à la surface de l'éprouvette. Ce faisant, nous pouvons constater sur la figure 5.8 que la décroissance en température est similaire entre les différents alliages, et que la distance à la ligne de fusion nous permet donc bien de calculer l'histoire thermique de la zone fissurée pour chacun des alliages avec cette simulation numérique.

Nous avons également présenté les températures maximales moyennes des zones fissurées (ligne et croix rouges).

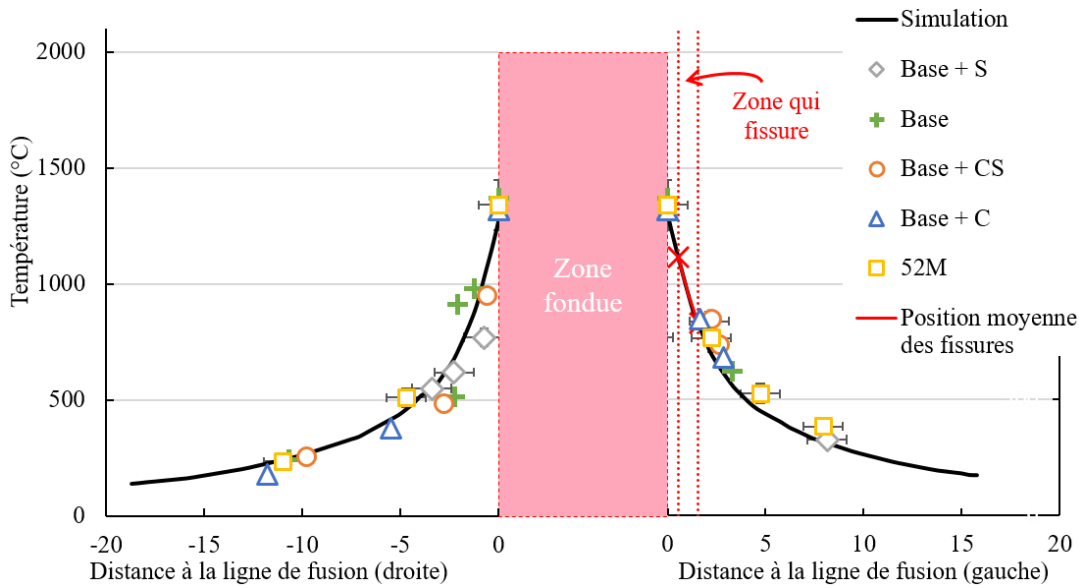


Figure 5.8. Températures maximales atteintes calculées à la surface de l'éprouvette en fonction de la distance au bord de la ligne de fusion (position dans la largeur perpendiculaire au sens de soudage). Les températures maximales enregistrées par les thermocouples au cours d'une passe sont reportées pour chaque alliage. Les positions de bords des bains fondus (les lignes de fusion) sont également placées sur le graphe. La zone fondue est schématisée par le rectangle rose. La position moyenne de la zone fissurée (de gauche) est représentée par la ligne et les croix rouges.

La température maximale atteinte dans la zone de l'éprouvette qui fissure lors de la quatrième passe de refusions va, en moyenne sur les différents alliages testés, de 831°C pour les fissures les plus éloignées de la zone fondue à 1115°C pour les fissures les plus proches. Il convient de préciser cependant que les valeurs annoncées ici ne sont pas des températures de fissuration, mais uniquement les limites hautes de la température de fissuration : il est possible que les fissures que nous observons post-mortem apparaissent à des températures plus faibles que celles que nous annonçons ici.

Tableau 5.1. Températures maximales atteintes pour les fissures observées après la quatrième refusions.

	<i>Base + S</i>	<i>Base</i>	<i>Base + CS</i>	<i>Base + C</i>	<i>52M</i>	<i>Moyenne</i>
<i>Température maximale de la fissure la plus proche de la ligne de fusion</i>	1190	1037	1097	1223	1028	1115
<i>Température maximale de la fissure la plus éloignée de la ligne de fusion</i>	811	750	828	927	839	831
<i>Intervalle des températures maximales atteintes</i>	380	288	270	296	189	284

5.1.4 Observation de fissures

Dans cette partie, seront présentés un faciès de rupture d'une fissure de l'alliage « base + S », des observations sur coupes polies des alliages « base + S » (après quatre passes) et « base + CS » (après huit passes) et enfin l'observation, depuis la surface de l'éprouvette, de l'évolution d'une zone fissurée pour les alliages « base + S » et « base + CS ».

5.1.4.1 Observation d'un faciès de rupture

Un échantillon de matière contenant une fissure a été prélevé sur l'éprouvette RCT de l'alliage modèle « base + S ». Cette fissure a été ouverte et observée au MEB. La figure 5.9 présente une partie de ces observations. Au grandissement le plus faible, nous voyons clairement l'aspect intergranulaire de la fissure et la décohésion de certains grains. À grandissement plus fort sont visibles quelques cupules de faible taille semblables à ce qui a été observé sur les faciès de rupture des éprouvettes de traction de l'alliage 52M, dans le trou de ductilité (650°C – 1050°C), rompues sur machine Gleeble (cf. § 3.2.1 p.51). De plus, ce faciès ne présente ni les caractéristiques d'une fissure de liquation (voir figure 4.2c p.67 et figure 4.3c p.68) ni d'une fissure de solidification (voir figure 4.4 p.71 ou figure 4.8 p.75).

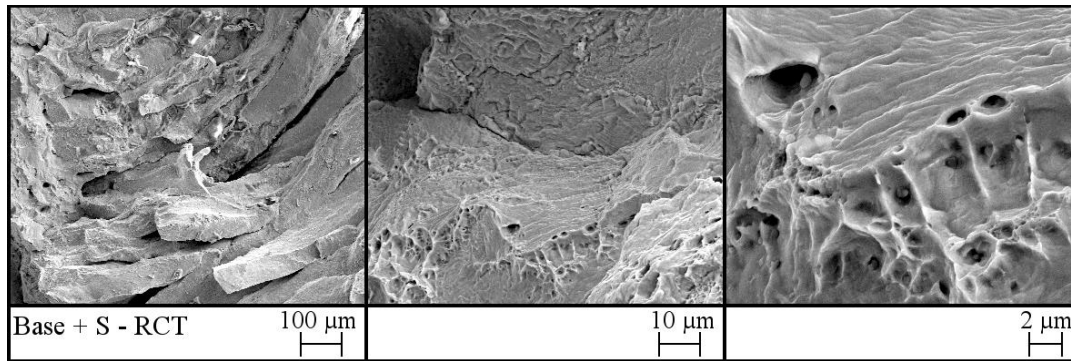


Figure 5.9. Observations au MEB par électrons secondaires, à trois grossissements différents, d'un faciès de rupture d'une fissure de l'essai RCT sur l'alliage « base + S » après quatre passes.

5.1.4.2 Observations de coupes polies

Pour compléter les observations des faciès de rupture de l'alliage « base + S », des photos ont été prises au microscope optique et au MEB sur des coupes polies des alliages « base + S » et « base + CS » après une attaque à l'acide oxalique. Cette attaque permet de révéler la microstructure des matériaux : joints de grains et dendrites, limite des passes de soudage.

La figure 5.10 et la figure 5.11 présentent une vue d'une coupe polie à plusieurs grossissements des alliages modèles « base + S » et « base + CS » (respectivement). Sur les encadrés a) de ces deux figures, il est possible de voir la position centrale des passes de refusions par rapport aux deux prépasses. Les zones affectées thermiquement par les passes de refusions sont dans la zone fondue des deux prépasses, de telle sorte que, indépendamment des microstructures initiales des différents alliages, la structure de la zone affectée, là où les fissures apparaissent, a bien une structure de solidification de soudage, quel que soit l'alliage étudié.

Les attaques réalisées à l'acide oxalique permettent de révéler les joints de grains (en noir sur les images), les dendrites et les espaces interdendritiques. Les fissures comme les joints de grains apparaissent en noir, mais leur largeur permet de les différencier.

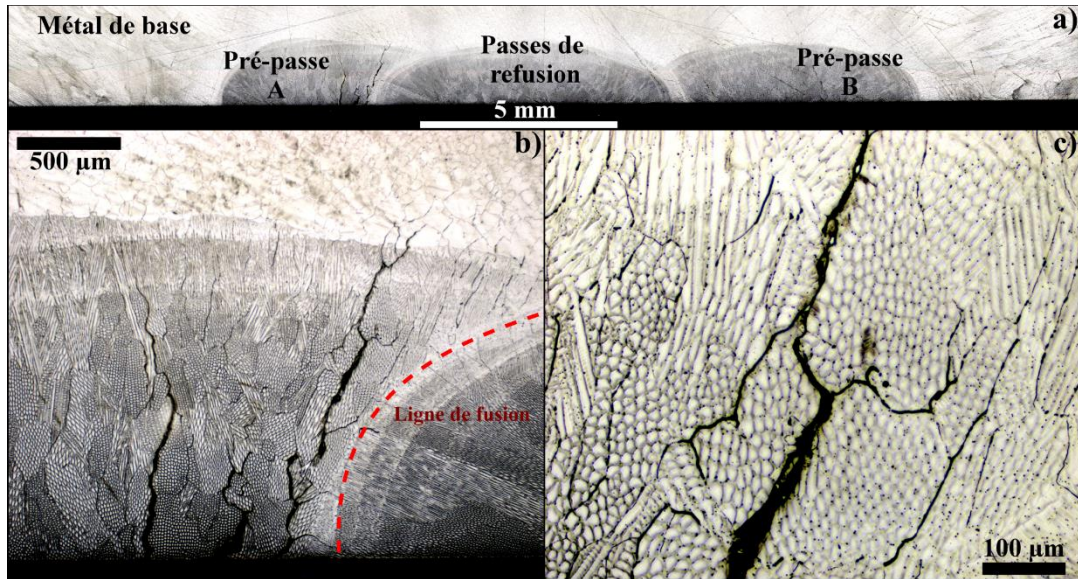


Figure 5.10. Exemples de micrographies sur coupe polie de l'alliage « base + S » après un essai RCT (quatre passes) à trois grossissements. Observation au microscope optique après attaque à l'acide oxalique.

Ces photographies permettent de bien mettre en évidence le caractère intergranulaire des fissures ainsi que leur position vis-à-vis de la ligne de fusion : les fissures se forment systématiquement dans les prépasses ; nous n'observons pas de fissures dans la zone fondue des passes de refusions. Par exemple, pour l'alliage modèle « base + S », sur la figure 5.10 il y a trois fissures très nettes visibles au grossissement intermédiaire (encadré b)). Celles-ci se situent à des distances comprises entre 140 et 1320 μm de la ligne de fusion.

Sur la figure 5.11, certains joints de grains fissurés sont des joints de solidification : ils passent dans des espaces interdendritiques (voir par exemple l'ellipse en rouge de l'encadré d)). D'autres sont des joints de grains ayant migré après solidification : ils passent au travers d'une ou plusieurs dendrites (voir par exemple l'ellipse bleue). Le fait que des joints de grains ayant migré fissurent permet d'écarter l'hypothèse d'une fissuration de liquation. En effet, cette dernière résulte d'un passage à l'état liquide de composés à bas point de fusion (composés qui se solidifient en dernier, dans les espaces interdendritiques), et ne peut donc concerner que des joints de solidification.

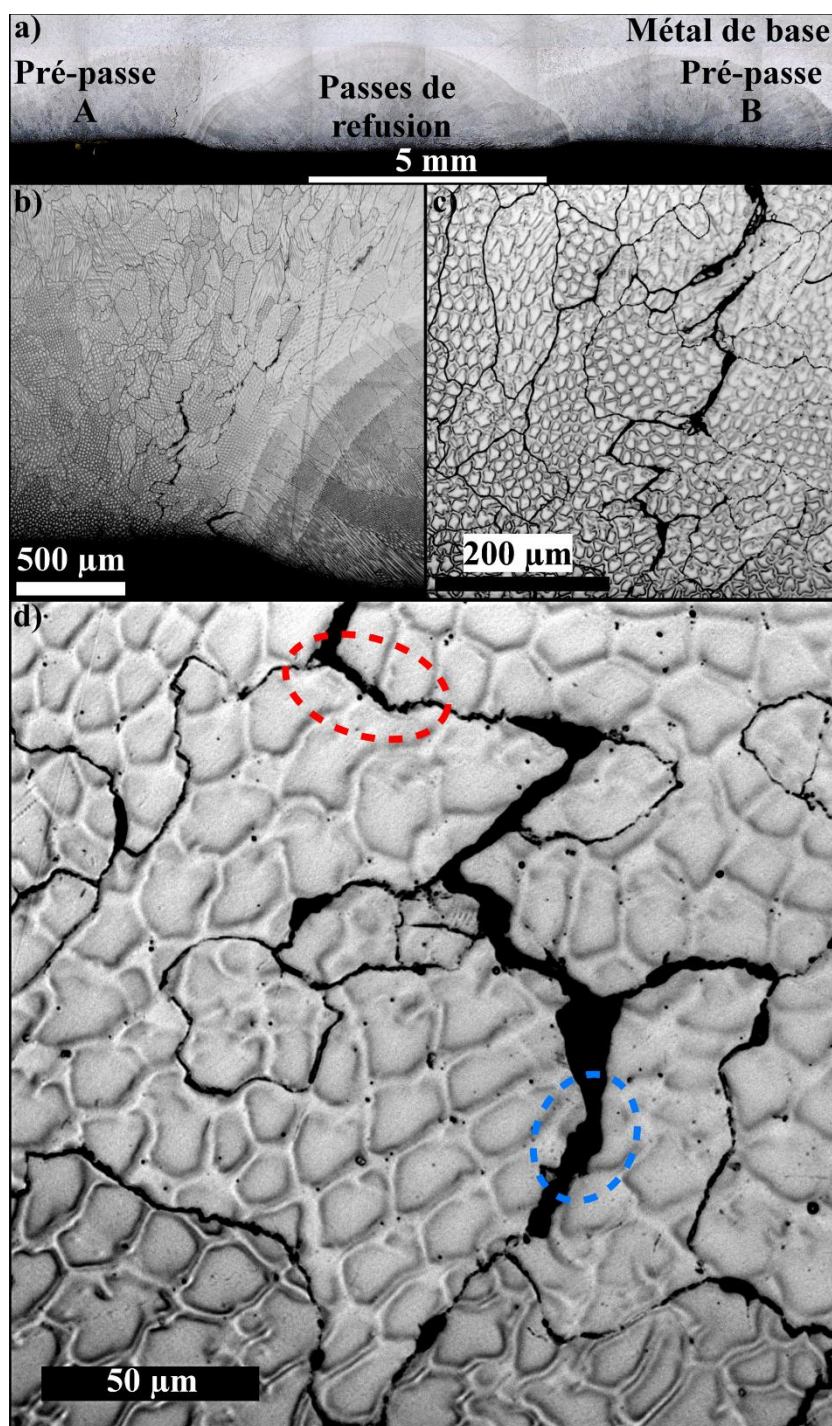


Figure 5.11. Exemples de micrographies sur coupe polie de l'alliage « base + CS » après un essai RCT (passe huit) à quatre grossissements. Observation au microscope optique après attaque à l'acide oxalique.

La figure 5.12 présente des photographies des coupes polies prises au MEB.

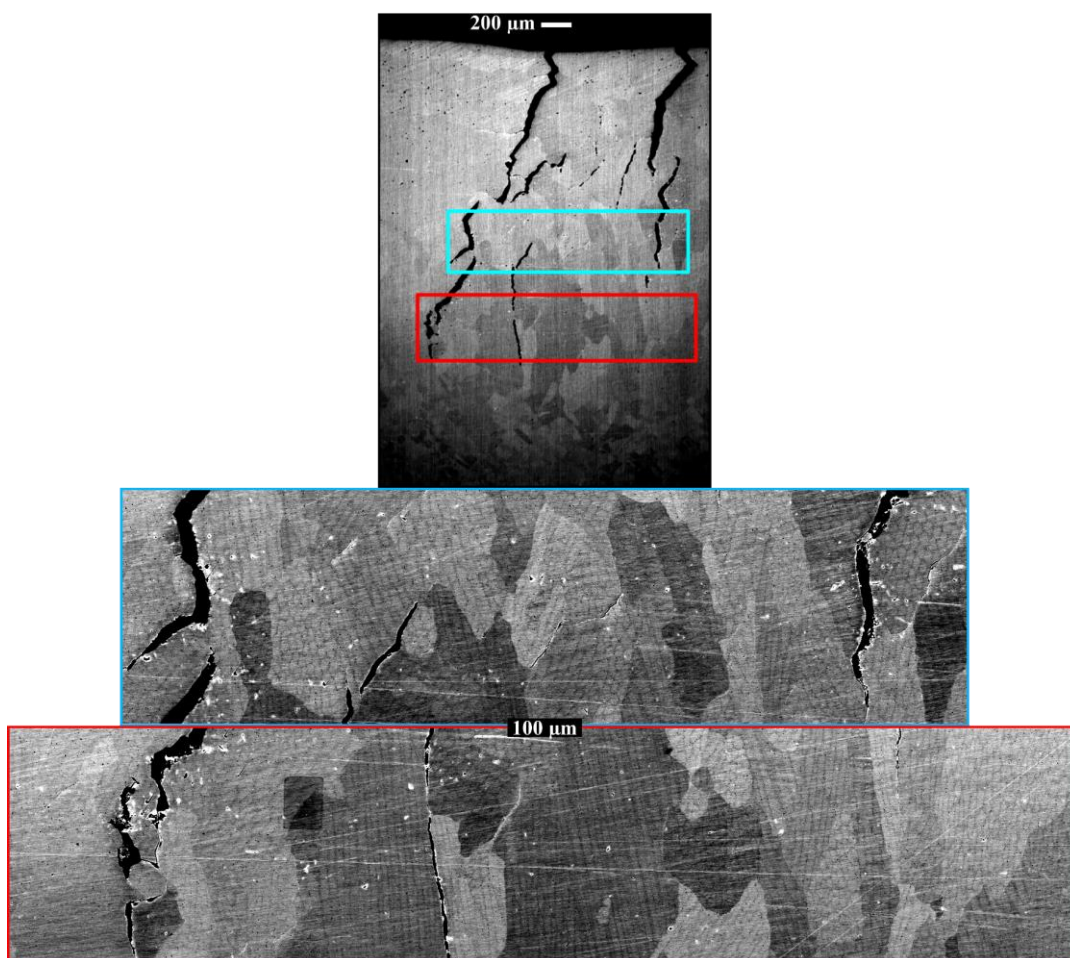


Figure 5.12. Images MEB d'une coupe polie de l'alliage « base + S » après RCT (quatre passes).

5.1.4.3 Observations depuis la surface des éprouvettes

- Localisation et orientation des fissures

Les observations réalisées depuis la surface des éprouvettes confirment que les fissures sont entièrement localisées dans les prépasses, dans la zone affectée thermiquement par les passes de refusions. On n'observe pas de fissures dans la zone fondue des passes de refusions. De plus, les fissures présentent une orientation préférentielle assez marquée, parallèle à la direction de soudage. Les observations sur coupe polie ont mis en évidence une orientation des fissures assez proche de la perpendiculaire à la surface. Il semble donc que ce soit la contrainte de traction perpendiculaire à la direction de soudage qui provoque l'initiation et la propagation des fissures.

- Évolution de la colonie de fissures

Des images de zones fissurées, observées depuis la surface des éprouvettes à l'aide d'une loupe binoculaire, sont proposées figure 5.13 et figure 5.14. Ces figures présentent respectivement des observations après les passes 3 à 8 pour l'alliage modèle « base + CS » et des observations après les passes 2 à 4 pour l'alliage « base + S ».

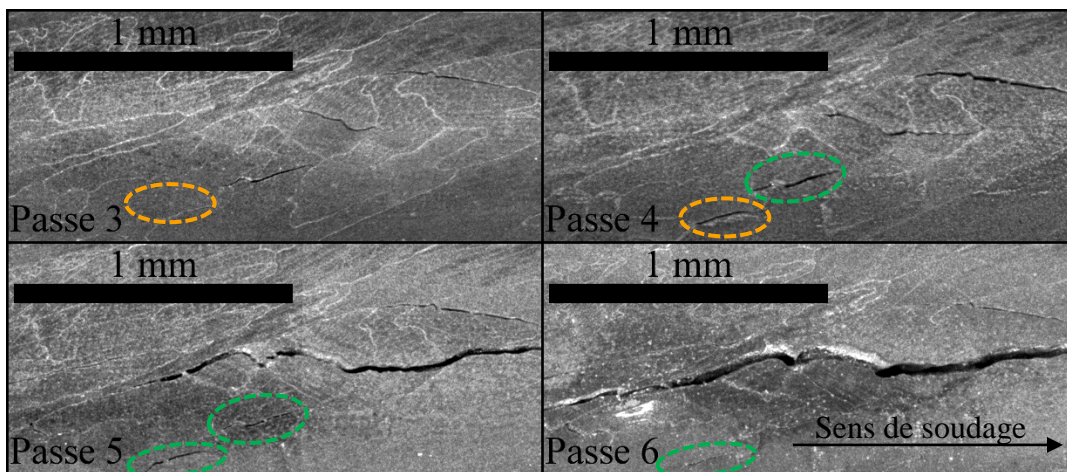


Figure 5.13. Exemple de l'évolution d'une zone fissurée pour l'alliage modèle « base + CS » pour les passes 3 à 6. Les ellipses orange donnent l'exemple d'une fissure qui se forme entre la passe 3 et la passe 4. Les ellipses vertes montrent un exemple d'une fissure qui se referme partiellement entre la passe 4 et la passe 5, et une autre entre la passe 5 et la passe 6.

Au cours des refusions successives, il y a formation de nouvelles fissures, comme l'illustrent les ellipses orange, entre la passe 3 et la passe 4 sur la figure 5.13. Certaines fissures se propagent, comme c'est le cas de la fissure principale de la figure 5.13, qui se propage fortement vers la droite et la gauche de l'image entre les passes 4 et 5, ou comme c'est le cas pour la fissure centrale de la figure 5.14 qui se propage elle aussi vers la droite à chaque passe.

Un troisième type de comportement des fissures est observable sur ces clichés : certaines fissures se referment d'une passe à l'autre comme le montrent les exemples entourés en vert sur les deux figures (cette fermeture n'est que « géométrique » ; la matière ne retrouve pas de cohésion). Entre deux passes, la propagation d'une fissure s'accompagne, en arrière du front de propagation, d'une diminution locale de la contrainte. Ceci peut conduire à ce que certaines fissures, voisines de celle qui se propage, se referment : elles deviennent « dormantes » ou « écrantées » (103). Les

jointes de grains en question restent fissurés ; cependant dans cette configuration, les fissures deviennent très peu ouvertes, voire elles apparaissent totalement fermées au grandissement utilisé pour l'observation. En résumé, entre deux passes, il est possible d'assister à la formation de nouvelles fissures (initiation), de voir certaines fissures se propager (propagation) et d'autres se refermer (écranage).

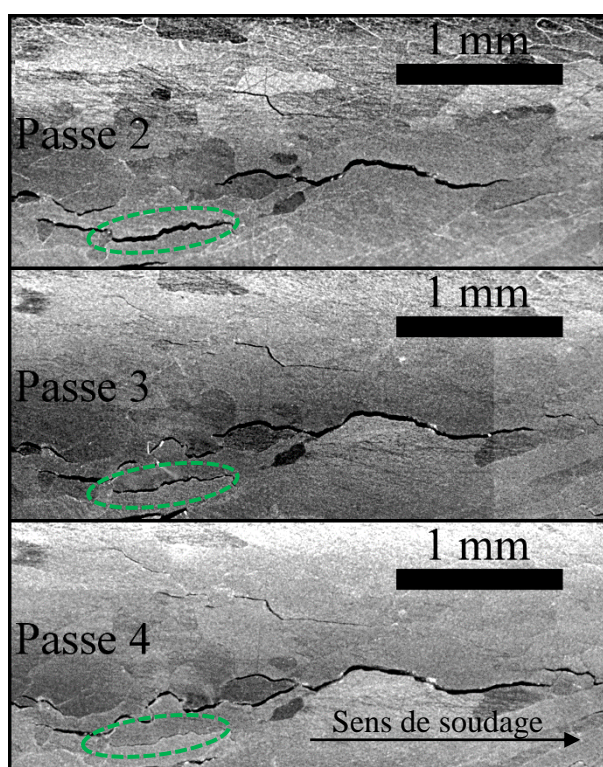


Figure 5.14. Exemple de l'évolution d'une zone fissurée pour l'alliage modèle « base + S » pour les passes 2 à 4. Les ellipses vertes montrent une fissure qui se referme petit à petit, de la passe 2 à 3 et de la passe 3 à 4.

Cependant, ces images donnent seulement un aperçu en deux dimensions d'un phénomène en trois dimensions, il faut donc rester prudent quant à leur interprétation.

Les observations faites sur ces fissures indiquent un effet du cyclage thermomécanique sur le phénomène. La figure 5.15 montre qu'au fur et à mesure des passes il y a plus de fissures et elles sont en moyenne de plus en plus longues. Cette figure permet également de voir que le nombre de fissures augmente avec le nombre de passes mais que pour les deux alliages qui fissurent le plus, les alliages modèles « base » et « base + S », le nombre de fissures peut atteindre un palier. Les évolutions illustrées par la figure 5.15 sont le résultat des phénomènes d'interactions entre fissures dans la colonie : l'écranage (« stress shielding ») dont nous avons déjà parlé, et la coalescence (deux fissures qui se rejoignent et n'en forment plus qu'une), qui

pourraient expliquer le plafond observé sur la figure 5.15 b, pour les deux alliages les plus sensibles.

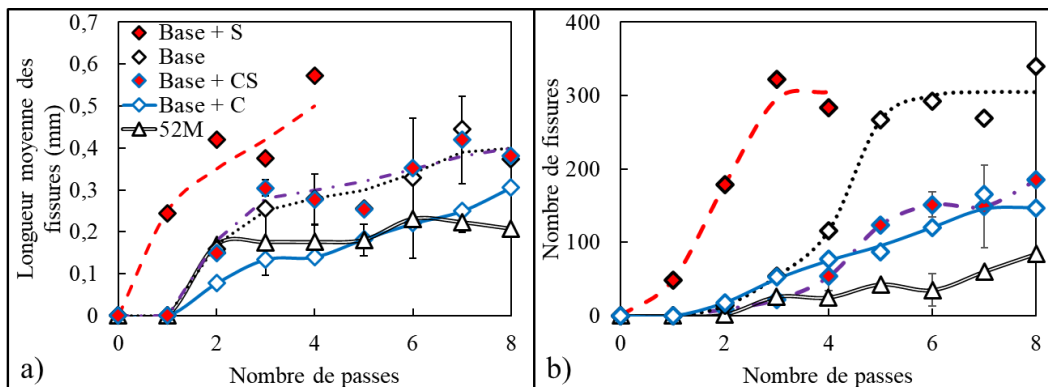


Figure 5.15. Longueur moyenne des fissures en fonction du nombre de passes et nombre de fissures pour les alliages modèles et l'alliage 52M. Les lignes sont des guides pour les yeux. La longueur moyenne des fissures et le nombre de fissures augmentent avec le nombre de passes. Pour les alliages « base » et « base + S », il se peut qu'un palier en nombre de fissures ait été atteint.

5.1.5 Résumé des résultats des essais RCT

Les alliages modèles ont été testés à l'aide de l'essai RCT pour compléter les essais menés sur les alliages industriels.

Les résultats montrent que le soufre a un effet fragilisant et augmente la sensibilité à la fissuration par DDC. Nos résultats montrent également que l'ajout de carbone permet de réduire la sensibilité au phénomène. Enfin, la faible sensibilité des alliages industriels, par rapport aux alliages modèles, peut s'expliquer par la présence de niobium.

L'observation de faciès de rupture et de fissures en coupe permet d'écartier l'hypothèse d'une fissuration de liquation. Les faciès ne présentent en effet pas de traces de liquation ; certaines fissures traversent des dendrites (zones peu ségréguées à l'issue de la solidification et donc insensibles à la fissuration de liquation) dans lesquelles des joints de grain ont migré.

L'observation de zones fissurées montre que les fissures sont entièrement localisées dans les prépasses latérales et qu'elles sont préférentiellement orientées selon des plans quasiment perpendiculaires à la surface et parallèles à la direction de soudage.

L'analyse de l'évolution de la colonie de fissures suggère que les cycles successifs de refusions ont plusieurs effets sur les fissures : de nouvelles fissures se forment, d'autres se propagent, d'autres encore se referment (fissures dormantes écrantées par l'ouverture d'une autre fissure) et d'autres enfin se rejoignent (coalescence).

Des propositions d'explications de l'effet des éléments chimiques sur la fissuration par chute de ductilité seront détaillées plus après.

5.2 Analyse de la ségrégation du soufre aux joints de grains

Les résultats des essais RCT montrent un effet fragilisant du soufre, qui aggrave la fissuration par chute de ductilité. Les fissures observées étant intergranulaires, une explication possible de l'effet du soufre sur la fissuration est sa ségrégation aux joints de grains. Nous avons donc décidé d'analyser cette possible ségrégation. Nous précisons à nouveau que la ségrégation dont il est question ici désigne le regroupement d'atomes de soluté dans le joint, sous la forme d'une monocouche plus ou moins dense. Ce phénomène est distinct de la ségrégation de solidification, également présente dans nos matériaux (cf. figure 3.4 p.49).

Dans un premier temps, nous avons essayé de réaliser des analyses par spectrométrie Auger. La démarche consiste à prélever dans une éprouvette RCT un bâtonnet de matériau contenant une fissure. Ce bâtonnet, une fois introduit dans le spectromètre Auger, est refroidi à environ -100°C (par circulation d'azote liquide), puis rompu par flexion-choc (un marteau vient frapper l'extrémité libre de l'éprouvette, lorsque l'autre est maintenue immobile par des mors), l'objectif étant de propager la fissure intergranulaire issue du soudage. Le matériau recouvrant sa ductilité à température ambiante, le refroidissement a pour but d'obtenir une rupture fragile intergranulaire. Précisons qu'en spectrométrie Auger, seules les surfaces de rupture obtenues *in situ* (c'est-à-dire dans le spectromètre, sous ultravide) sont analysables, cette méthode ayant déjà été utilisée sur des alliages de nickel (88). Malheureusement, même à froid, les alliages que nous avons essayé d'analyser (alliage industriel 52M et alliage modèle « base + S ») restaient ductiles, rendant l'analyse des joints de grains impossible. Nous avons donc décidé de nous reporter sur une autre technique, décrite au paragraphe 3.3.3. Cette méthode a l'avantage

d'être assez simple à mettre en œuvre puisqu'elle consiste en une série d'analyses WDS successives, à travers un joint de grains, à la surface d'une coupe polie.

Avant de mettre en œuvre cette méthode sur l'un de nos alliages modèles, nous avons souhaité la tester sur un échantillon témoin de nickel pur, contenant 5,4 ppm en masse de soufre, dont nous savons que les joints présentent une ségrégation avérée en soufre. Cet échantillon témoin a subi un traitement thermique de cent jours à 550°C, ayant entraîné une ségrégation du soufre aux joints. De plus, il a par ailleurs fait l'objet d'analyses en spectrométrie Auger (81), en SIMS (spectrométrie de masse à ionisation secondaire) (102) et WDS (101). Il s'agit ici de s'assurer que les méthodes mises en œuvre, ainsi que les conditions d'analyse et de préparation d'échantillons, permettent de détecter et mesurer la ségrégation.

5.2.1 L'échantillon témoin de nickel

5.2.1.1 Analyses WDS au MEB

Plusieurs séries d'analyses ont été réalisées sur l'échantillon témoin, lors de différentes campagnes d'essais. Un exemple de joint de grains est donné figure 5.16. Sur l'encadré c) de cette figure, les croix rouges correspondent au premier point de la ligne d'analyse, au point du milieu et au dernier point. Le profil correspondant à ce joint de grains est présenté dans l'encadré h) de la figure 5.17. La figure 5.17 présente des profils acquis lors de ces campagnes d'essais. Une fois un joint de grains identifié, à partir de l'image en électrons rétrodiffusés pour obtenir un contraste d'orientation cristalline, on définit une ligne de plusieurs analyses successives, permettant d'obtenir un profil de teneur en soufre.



Figure 5.16. Exemple d'un joint de grains dans l'échantillon témoin de nickel à 5,4 ppm de soufre, à trois grossissements. Sur l'encadré c), il est possible de voir les premier et dernier points de la ligne d'analyse, ainsi que le point du milieu.

La figure 5.17 présente les profils obtenus sur treize joints. Ces profils font tous apparaître un pic qui coïncide avec la position du joint. Comme nous l'avons déjà mentionné, la largeur des pics ($> 1\mu\text{m}$) est liée à la « fonction de sonde », qui intègre les effets de « poire d'interaction » (diffusion latérale des électrons dans le solide) mais aussi, et surtout, la forme du faisceau incident. Les profils expérimentaux ont été représentés par une fonction gaussienne. L'aire du pic de la gaussienne donne la concentration « apparente » de soufre dans le joint, exprimée en ng.cm^{-2} . Cette concentration est dite « apparente » car elle suppose que le plan de chaque joint analysé est perpendiculaire à la surface de l'échantillon, ce qui n'est pas vrai dans le cas général. L'effet d'orientation du joint peut être pris en compte de manière statistique sur un ensemble de mesures, en appliquant un facteur multiplicatif de 0,79 (101, 102).

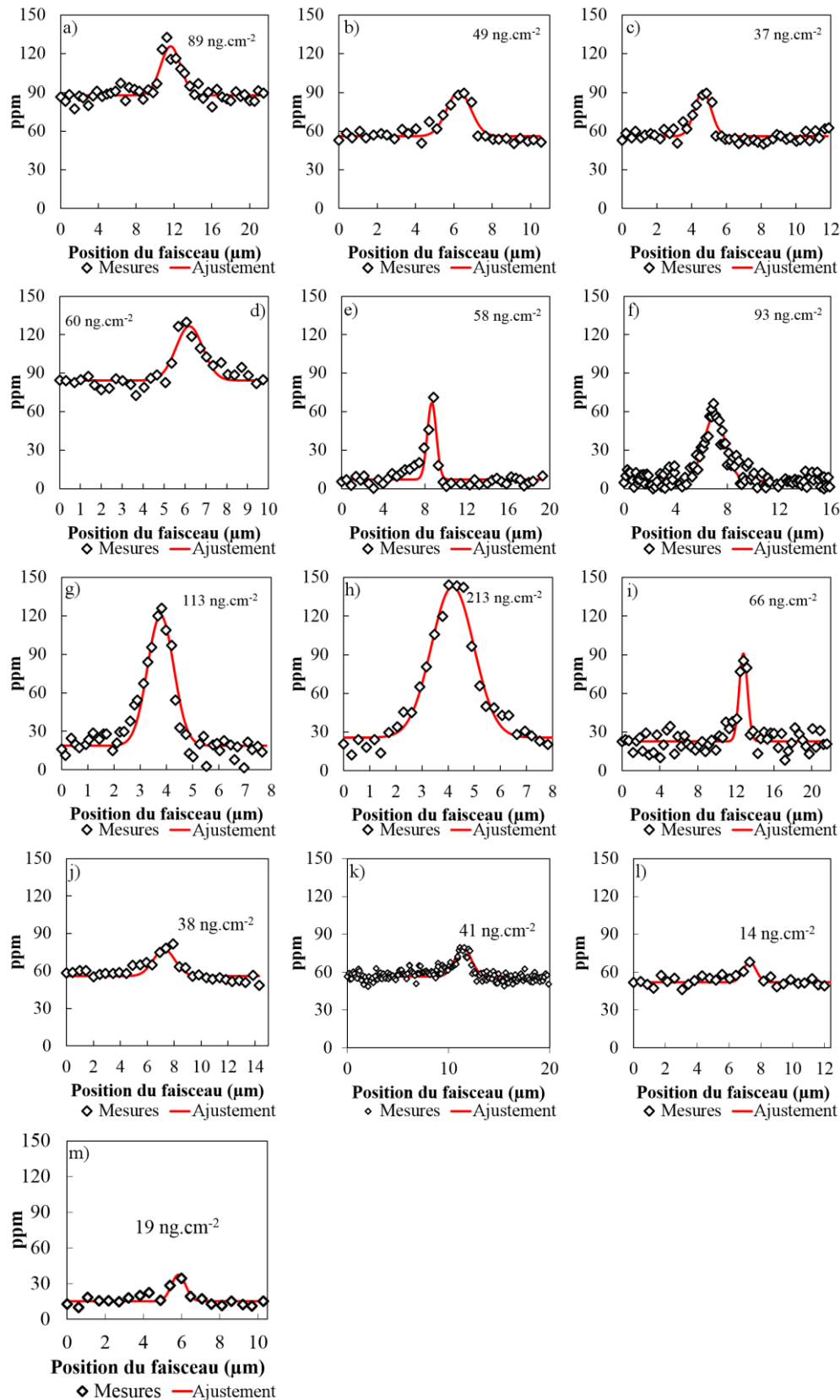


Figure 5.17. Profils de concentration acquis par analyse WDS à travers treize joints de grains, sur une coupe polie de l'échantillon témoin de nickel à 5,4 ppm de soufre (100 jours à 550°C). Chaque point correspond à un temps d'analyse de 60 s.

La figure 5.18 présente les concentrations apparentes en soufre mesurées par WDS aux joints de grains pour les treize joints analysés pour cette étude. Dix de ces joints ont une concentration apparente en soufre comprise entre 37 ng.cm⁻² et 113 ng.cm⁻². Les deux autres, les joints « h », « l » et « m » de la figure 5.17, présentent des teneurs apparentes de 213 ng.cm⁻², 14 ng.cm⁻² et 19 ng.cm⁻² respectivement.

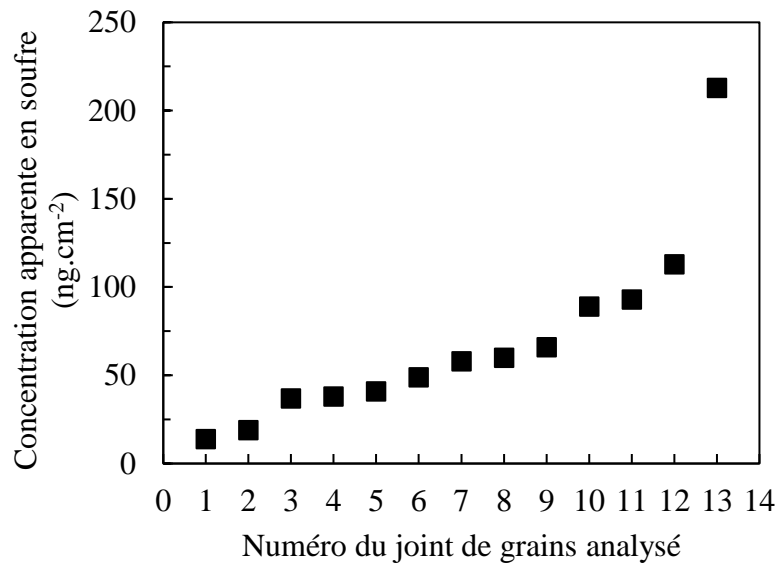


Figure 5.18. Concentrations apparentes en soufre aux joints de grains pour les treize joints analysés par WDS sur l'échantillon de nickel témoin.

Nous obtenons expérimentalement une concentration apparente moyenne en soufre de 68 ng.cm⁻², soit 54 ng.cm⁻² après prise en compte de l'inclinaison moyenne des joints (facteur 0,79). L'écart type est assez élevé et correspond à environ 73% de la valeur moyenne. Cette forte dispersion des mesures de concentration apparentes, semblable à celle observée par Christien et Risch (101) peut s'expliquer par des variations d'un joint à l'autre du niveau de ségrégation en soufre, mais aussi de l'orientation du joint sous la surface.

Allart et coll. ont calculé qu'une monocouche complète au joint de grains comporte $1,3 \times 10^{15}$ atomes par cm² (c'est une valeur comprise entre la densité des plans (100) et (110) dans le nickel pur, respectivement $1,61 \times 10^{15}$ atomes par cm² et $1,14 \times 10^{15}$ atomes par cm²) (81, 91). Nous pouvons donc, à l'aide de cette valeur,

convertir les concentrations mesurées en fractions de monocouches, comme présenté dans le tableau 5.2.

Tableau 5.2. Moyenne des mesures par WDS de la ségrégation intergranulaire du soufre dans l'échantillon de nickel recuit 100 jours à 550°C et conversion en fraction de monocouche.

	Concentration apparente mesurée (ng.cm ⁻²)	Concentration corrigée d'un facteur 0,79 (ng.cm ⁻²)	Fraction de monocouche (calculée à partir de la concentration corrigée)
Moyenne	69	54	78%
Écart type	50	40	57%

Nous obtenons sur ces treize mesures une concentration moyenne de 54 ng.cm⁻². L'échantillon que nous avons utilisé ici avait déjà été étudié par ailleurs avec cette même technique d'analyses WDS au travers de joints de grains (35,2 ng.cm⁻² (101)) mais également par SIMS (27 ng.cm⁻² (102)), spectroscopie Auger sur faciès de rupture (64,6 ng.cm⁻² (81)) et par WDS sur faciès de rupture (56,7 ng.cm⁻² (81)). Nous obtenons ainsi une valeur qui est un peu plus élevée que celles obtenues par Christien et Risch (35,2 ng.cm⁻²) en utilisant la même technique (WDS sur coupe polie) lors d'une étude précédente. Cette différence peut provenir du hasard du choix des joints de grains. L'écart type sur les mesures étant très grand, nos résultats ne sont pas incompatibles avec cette étude. On retiendra surtout de notre étude que la méthode permet de détecter sans ambiguïté le soufre ségrégué aux joints de grains et d'en faire une quantification avec le bon ordre de grandeur.

Commentaires additionnels :

1. La teneur nominale en soufre dans l'échantillon est de 5,4 ppm massique. Pourtant certains profils présentent des lignes de base à des niveaux de concentration nettement plus élevés. Seuls les encadrés e) et f) présentent une ligne de base proche de 5,4 ppm. Les lignes de base des autres profils varient autour de valeurs proches de 20 ppm (profils g, h et i), de 60 ppm (profils b, c, j, k et l) et de 80 ppm (profils a et d). Ces variations sur les valeurs de la ligne de base sont explicables par le mode opératoire de préparation de la surface des coupes polies avant observation. Lors de notre campagne de mesures, la surface des échantillons n'a probablement pas été idéalement nettoyée et, en

fonction de la session, il a pu exister une pollution de surface (contenant du soufre) plus ou moins prononcée. Cependant, il est à noter qu'il reste possible de mesurer des pics de ségrégation aux joints de grains, même avec une pollution de surface. La procédure de nettoyage a par la suite été optimisée de façon à s'affranchir de cette pollution.

2. Dans les conditions d'analyse utilisées ici, la taille de la sonde est relativement stable. Aussi les variations dans la largeur des pics analysés peuvent probablement s'expliquer par l'orientation du joint de grains sous la surface. Plus celui-ci est perpendiculaire au plan de la coupe polie, plus le pic mesuré est fin ; au contraire plus il est incliné, plus le pic est large (cf. § 3.3.3).

5.2.1.2 Analyses EDS au MET

Les mesures présentées au paragraphe précédent ont montré que la méthode « WDS sur coupe polie » permettait de détecter, et même de quantifier, la ségrégation du soufre aux joints. Nous souhaitons cependant compléter cette approche à l'aide d'une méthode d'analyse plus locale : l'analyse STEM-EDS (Scanning Transmission Electron Microscopy – Energy Dispersive Spectroscopy) sur lame FIB (Focused Ion Beam). Ces analyses ont été réalisées par Julien Stodolna, du laboratoire de microscopie d'EDF Lab Les Renardières. Ici encore, nous travaillons dans un premier temps sur un matériau témoin, le même que celui que nous avons utilisé pour les mesures WDS, de façon à nous assurer que toutes les conditions sont réunies pour l'analyse de la ségrégation aux joints sur nos alliages testés à l'aide de l'essai RCT.

Une lame pour microscope électronique en transmission, contenant un joint de grains, a été préparée par sonde ionique focalisée (ou focused ion beam, FIB (104)). Nous avons choisi de prélever un joint ayant déjà fait l'objet d'une analyse par WDS. Il s'agit du joint correspondant au signal h) de la figure 5.17.

Les encadrés a) et b) de la figure 5.19 présentent des photos prises au MEB de la zone de la coupe polie investiguée ; l'encadré c) montre le profil d'analyse WDS correspondant. L'encadré d) est une photo de la lame préparée par découpe FIB pour l'analyse EDS au MET. Enfin les encadrés e) et f) présentent l'analyse EDS du joint de grains par cartographie EDS ou en ligne d'analyse. Pour estimer la teneur en soufre

dans le joint de grains à partir du profil de concentration obtenu par EDS au STEM, la même méthode de calcul d'aire sous la courbe que pour les profils WDS a été utilisée (102), afin de pouvoir comparer directement les profils issus des deux techniques. Le profil EDS a été traité en quantification au préalable. On obtient une concentration en soufre dans le joint de grains de 32 ng.cm^{-2} .

L'inclinaison du joint de grains par rapport à la verticale (75°), visible sur l'image de la lame FIB, permet d'appliquer un coefficient correcteur ($\cos(75^\circ) = 0,26$) à la valeur mesurée par WDS. La valeur corrigée donnée par l'analyse WDS est donc de $213 \times 0,26 = 55 \text{ ng.cm}^{-2}$ (cette correction permet du reste d'expliquer la valeur apparente très élevée obtenue en WDS par rapport aux autres mesures, cf. figure 5.18). Il y a donc un écart entre les deux valeurs (32 et 55 ng.cm^{-2}) de 26%. S'il subsiste une différence entre ces deux mesures, il n'en demeure pas moins que cette analyse par STEM-EDS permet elle aussi de détecter la ségrégation du soufre dans un joint de grains et d'en faire une estimation quantitative.

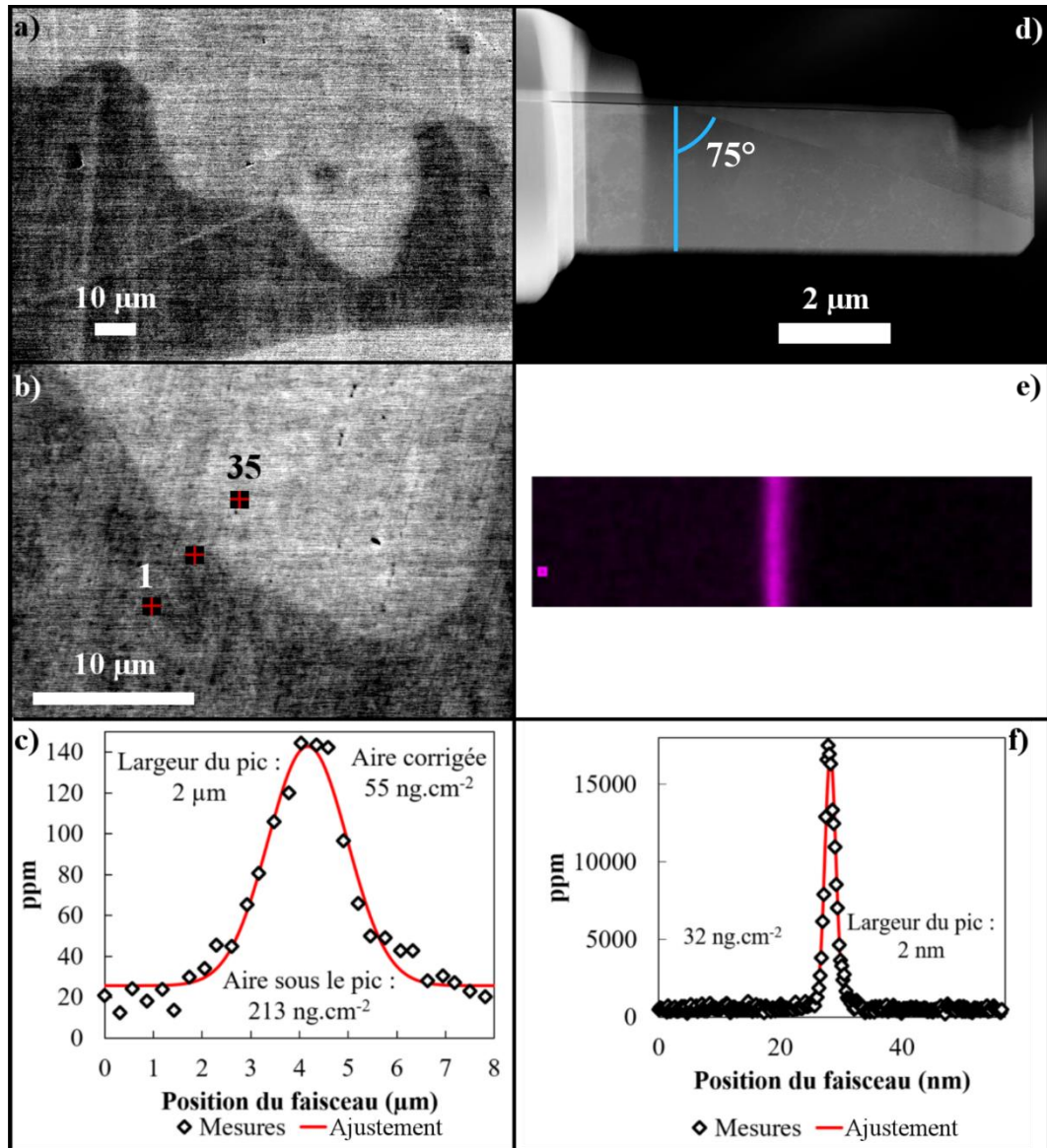


Figure 5.19. Analyses MEB+WDS et STEM+EDS sur un même joint de grains de l'échantillon témoin de nickel. a) et b) sont des photographies MEB de la coupe polie, et c) le profil de concentration mesuré par WDS sur la coupe polie. L'encadré d) est une photographie MEB de la lame FIB utilisée pour l'analyse EDS au STEM. Encadrés e) : cartographie du soufre et f) : profil de concentration du soufre déduit de la cartographie. Les largeurs des pics indiquées dans les encadrés c) et f) sont les largeurs à mi-hauteur.

5.2.1.3 Estimation des limites de détection

La limite de détection correspond à la possibilité de mettre un pic en évidence sur les profils de concentration en soufre¹⁵. Nous faisons ici l'hypothèse qu'un pic est détectable dès que sa hauteur est au moins égale au « bruit de fond ». Ce bruit de fond est calculé comme étant l'écart type des mesures sur la ligne de base des profils de

¹⁵ En EDS, une autre définition peut être donnée à partir du spectre en énergie : détection d'un pic de soufre d'intensité non quantifiable.

concentration. On obtient l'aire du plus petit pic détectable en multipliant sa hauteur (prise égale à la valeur du bruit de fond) par la largeur de la fonction de sonde (largeur à mi-hauteur des pics).

- MEB + WDS :
 - En moyenne, sur les treize profils, le bruit de fond est de 4,6 ppm en masse sur la ligne de base. En multipliant par la largeur moyenne à mi-hauteur des pics des profils que nous avons obtenus (1,4 μm), on obtient une limite de détection de 6,0 $\text{ng}\cdot\text{cm}^{-2}$, soit une fraction de 9% d'une monocouche. Lors de leur étude, Christien et Risch (101) avaient, quant à eux, un bruit de fond de l'ordre de 6,7 ppm en masse, mais leurs pics étaient en moyenne moins larges et avaient, de ce fait, eux aussi une limite de détection de l'ordre de 9% d'une monocouche.
- STEM + EDS
 - Sur le profil acquis sur notre échantillon témoin, le « bruit de fond » sur la ligne de base est de 151 ppm en masse. Ceci correspond à une limite de détection d'un pic de concentration de 0,27 $\text{ng}\cdot\text{cm}^{-2}$, soit 0,4% d'une monocouche en prenant en compte un pic d'une largeur à mi-hauteur de 2 nm.

Ainsi, de manière assez logique, la limite de détection de la technique la plus locale (STEM + EDS) est bien meilleure (environ vingt fois) que celle de la technique la moins locale (MEB + WDS).

5.2.2 L'échantillon « base + S »

Nous avons confirmé que la méthode MEB + WDS permet de détecter la ségrégation intergranulaire du soufre dans un échantillon témoin de nickel. Nous allons maintenant appliquer cette méthode à l'alliage modèle « base + S », que nous avons choisi en raison de sa très forte sensibilité à la DDC en lien avec sa forte teneur en soufre. C'est donc dans cet alliage que l'on s'attend au niveau de ségrégation intergranulaire le plus élevé.

5.2.2.1 Analyses WDS au MEB

Nous avons cherché à détecter la ségrégation du soufre au travers de quinze joints de grains. Toutes les analyses ont été réalisées sur des joints de grains sélectionnés entre les deux grandes fissures les plus éloignées, visibles sur la figure 5.12. De cette façon, nous étions sûrs d'analyser des joints de grains se situant dans la zone d'intérêt de la DDC. Les profils de teneurs apparentes en soufre sont présentés sur la figure 5.20. Pour chacun des profils, la ligne verticale bleue symbolise la position du joint de grains, les losanges sont les points d'analyse. Lorsque les profils sont plats (a, b, c, d, e, m et n), nous avons indiqué la valeur moyenne des valeurs mesurées. Pour les profils qui ont un pic coïncidant avec la position du joint de grains, nous avons indiqué la valeur de l'aire sous la courbe. Les quinze profils obtenus peuvent être rangés en deux catégories :

- 1) Les profils qui ne présentent pas de pic au niveau du joint de grains (profils a, b, c, d, e, f, g, m, n et o), soit dix profils sur quinze.
- 2) Les profils qui présentent un pic au niveau du joint de grains (profils h, i, j, k et l), soit cinq profils sur quinze.

L'absence de pics dans la première catégorie de profils permet de conclure qu'il n'y a pas de ségrégation de soufre dans ces joints de grains, ou alors que celle-ci est inférieure à la limite de détection (9% d'une monocouche). Nous observons, pour une partie des profils de cette catégorie, une variation de la concentration en soufre indépendante de la position du joint de grains, probablement induite par les ségrégations de solidification (par exemple sur les profils f, g et o).

Pour les cinq profils qui présentent un pic en concordance avec la position du joint de grains, il est possible que ces pics soient dus à une ségrégation intergranulaire du soufre. Cependant, nous ne pouvons pas exclure qu'ils soient liés à une ségrégation de solidification.

Le profil h) présente une concentration apparente en soufre de 835 ng.cm^{-2} , ce qui correspond environ à dix monocouches. Il est probable que le pic enregistré ici corresponde en réalité à une ségrégation de solidification. Même en admettant que l'effet d'orientation du joint sous la surface puisse contribuer à cette valeur très élevée

($\cos\theta$ petit), elle paraît peu compatible avec une ségrégation dans le joint. Finalement, il y a donc seulement quatre joints sur les quinze analysés qui pourraient présenter une ségrégation intergranulaire de soufre.

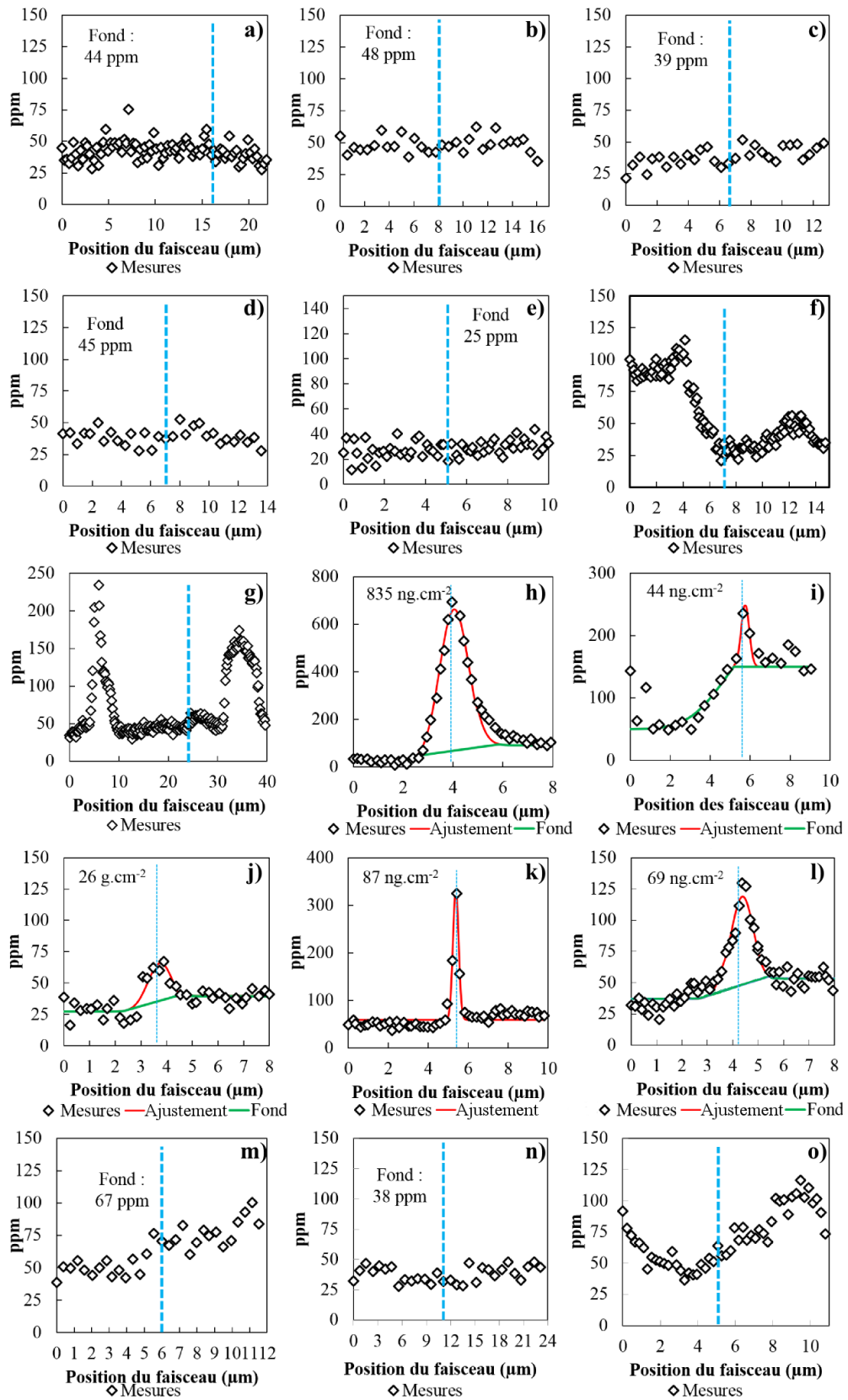


Figure 5.20. Profils de concentration acquis par analyses WDS sur une coupe polie de l'échantillon « base + S ». Quinze joints de grains ont été analysés ; la ligne en tirets bleus représente la position du joint de grains.

5.2.2.2 Analyses par EDS au MET

Il s'agit ici de vérifier par une technique d'analyse locale si les pics obtenus par WDS correspondent bien à une ségrégation du soufre dans le joint de grains. À partir des mesures WDS présentées sur la figure 5.20, nous avons présélectionné les quatre joints présentant un pic de soufre en coïncidence avec le joint de grains (encadrés i), j), k) et l) sur la figure 5.20). Parmi les quatre possibles, le choix a été fait sur la base de l'allure générale des profils mesurés par WDS. Les pics i) et j) sont moins marqués que ceux des graphes k) et l), c'est pourquoi, par leur ressemblance avec les pics observés sur l'échantillon témoin, nous avons sélectionné ces deux derniers en vue de l'analyse EDS au STEM. Les analyses ont là aussi été réalisées par Julien Stodolna du laboratoire de microscopie d'EDF Lab les Renardières.

Joint l)

La figure 5.21 présente les analyses MEB + WDS et STEM + EDS du joint l). Les encadrés a) et b) sont la zone d'analyse et le profil WDS associé. Lors du prélèvement de la lame à l'aide du FIB, nous avons pu constater que le joint l) était fissuré, comme l'illustre l'image de la lame, présentée dans l'encadré c) de la figure 5.21. La zone entourée en bleu est celle où l'analyse EDS a été réalisée (on observe une légère tache de contamination). La cartographie du soufre (figure 5.21 d)), ainsi que le profil de concentration (figure 5.21 e)) mettent clairement en évidence un enrichissement en soufre dans la fissure. Il semble que le soufre détecté soit ségrégué sur les deux surfaces de la fissure, ce qu'il n'était pas possible de discerner sur le profil WDS à cause d'une résolution latérale insuffisante. Le soufre a une forte affinité avec les surfaces libres et a tendance à y ségréger facilement. Dans le nickel pur, l'enthalpie libre de ségrégation du soufre sur une surface libre (-180 kJ.mol^{-1} (105)) est environ deux fois plus grande que l'enthalpie libre de ségrégation aux joints de grains ($-93,9 \text{ kJ.mol}^{-1}$ (91)). Il se peut ainsi que le soufre ait ségrégué sur les surfaces libres créées après la rupture du joint. Nous ne pouvons donc pas savoir si le soufre, que nous observons sur les surfaces de ce joint de grains fissuré, a ségrégué avant ou après sa fissuration.

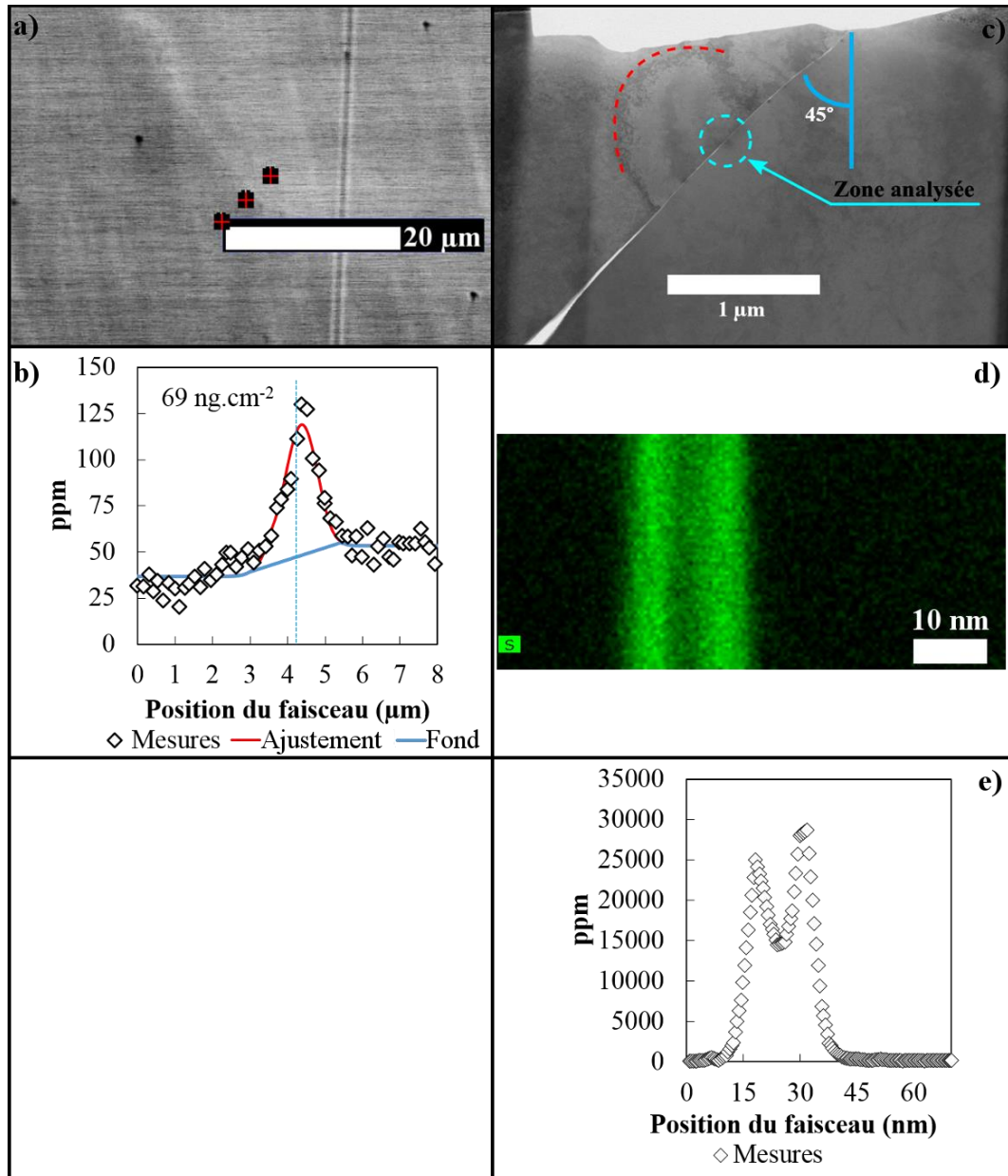


Figure 5.21. Analyses MEB+WDS et STEM+EDS sur un même joint de grains dans l'alliage modèle « base + S ». a) est une photographie MEB de la coupe polie et b) le profil de concentration mesuré par WDS sur la coupe polie. L'encadré c) est une photographie MEB de la lame FIB utilisée pour la cartographie EDS au STEM, encadré d). L'encadré e) est un profil issu de la cartographie de l'encadré d).

Joint k)

Deux lames FIB ont été prélevées à des endroits différents de ce joint. La figure 5.22 présente les analyses réalisées sur l'une des deux lames FIB prélevées dans le joint k). L'analyse EDS de ces deux lames a démontré l'absence de ségrégation de soufre dans le joint. On en déduit que le pic observé par analyse WDS à travers le joint résulte très probablement d'une ségrégation de solidification, non localisée dans le joint de grains.

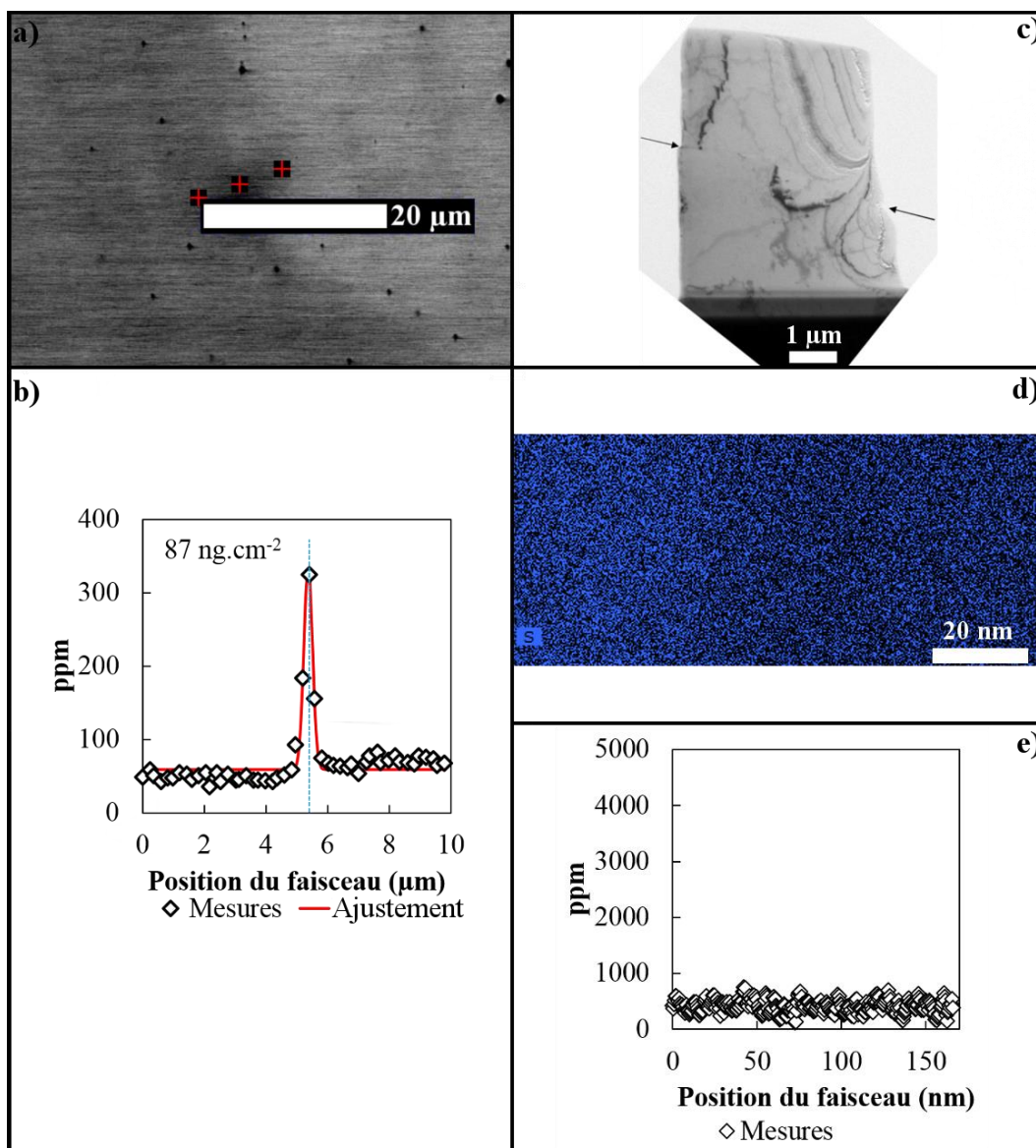


Figure 5.22. Analyses MEB+WDS et STEM+EDS sur un même joint de grains (joint k) dans l'alliage modèle « base + S ». a) est une photographie MEB de la coupe polie et b) le profil de concentration mesuré par WDS sur la coupe polie. L'encadré c) est une photographie MEB de la lame FIB utilisée pour la cartographie EDS au STEM, encadré d); les flèches repèrent les extrémités du joint de grains. L'encadré e) est un profil issu de la cartographie de l'encadré d).

5.2.3 Conclusion sur les analyses du soufre aux joints de grains

La méthode d'évaluation de la ségrégation intergranulaire du soufre, par analyses WDS au travers des joints de grains, a été testée, avec succès, sur un échantillon de référence de nickel pur, qui présente une ségrégation de soufre aux joints avérée et déjà étudiée par ailleurs (81, 101, 102). Les analyses montrent que nous sommes capables de détecter à coup sûr la ségrégation du soufre aux joints de grains de ce matériau témoin, avec une limite de détection de 9% environ d'une monocouche de soufre. L'une des analyses WDS a été confirmée, avec succès, à l'aide d'une technique plus locale, l'analyse EDS par STEM.

Quinze joints de l'alliage modèle « base + S », le plus sensible à la DDC, ont ensuite été analysés par la méthode MEB-WDS. Deux de ces joints ont également fait l'objet d'une analyse complémentaire par STEM-EDS après prélèvement de lames FIB. On peut résumer nos observations de la façon suivante :

- Onze joints sur quinze ne présentent assurément pas de ségrégation intergranulaire de soufre ou, si elle existe, elle est inférieure à la limite de détection de la méthode d'analyse par WDS.
- Pour les quatre autres joints, l'hypothèse d'une ségrégation intergranulaire du soufre est peu probable, le pic de soufre détecté par WDS pouvant résulter d'une ségrégation de solidification ou d'une ségrégation de surface dans le cas d'un joint fissuré. Deux de ces joints ont été analysés par STEM-EDS : l'un ne présente pas de ségrégation et l'autre est fissuré.
- L'analyse STEM-EDS d'un joint fissuré a montré la présence de soufre dans la fissure, probablement ségrégé sur les surfaces.

Les analyses WDS sur l'alliage modèle ont également mis en évidence la plus grande complexité de notre matériau par rapport à celle de l'échantillon témoin. En effet, l'alliage modèle présente une structure de solidification de soudage caractérisée par une ségrégation diffuse de certains éléments, dont le soufre, dans les espaces interdendritiques. Cette ségrégation de solidification complique la détection de pic de ségrégation intergranulaire par WDS.

Pour conclure sur les essais RCT et la recherche d'une ségrégation du soufre aux joints, nous observons bien un effet fort du soufre sur la sensibilité à la fissuration par chute de ductilité lors de nos essais, mais en revanche nous avons montré à l'aide de nos analyses post-mortem, menées par MEB - WDS et STEM - EDS sur l'alliage « base+ S », qu'il n'y a pas de ségrégation généralisée du soufre aux joints de grains. Quatre scénarios expliquant de possibles modes d'action du soufre seront proposés plus après dans ce chapitre.

5.3 Propositions de scénarios sur le mode d'action du soufre

Nous avons vu que le soufre a un effet fort sur la sensibilité des matériaux à la fissuration par chute de ductilité à l'aide de notre essai RCT. Le mode d'action du soufre le plus évident est la ségrégation de ce dernier aux joints de grains ; cependant, on n'observe pas, post-mortem, de ségrégation intergranulaire généralisée du soufre (cf. § 5.2), ce qui peut paraître contradictoire. Dans cette partie, nous proposons donc différents scénarios possibles sur les modes d'action du soufre qui permettraient d'expliquer cette apparente contradiction.

5.3.1 La ségrégation hors d'équilibre

Les analyses post-mortem que nous avons menées montrent qu'il n'y a pas de ségrégation généralisée du soufre aux joints de grains. Le mécanisme de ségrégation hors équilibre thermodynamique tel que proposé par Zheng (71) pourrait peut-être expliquer à la fois l'effet du soufre sur les essais RCT et l'absence de soufre aux joints de grains non fissurés, dans les échantillons analysés post-mortem. Ce mécanisme de ségrégation hors d'équilibre repose sur le transport du soufre par les lacunes venant s'éliminer aux joints de grains durant le refroidissement. Ce phénomène se produit à des températures « élevées », là où la ségrégation n'est pas stable thermodynamiquement.

5.3.1.1 Principe de la ségrégation hors d'équilibre

La ségrégation hors d'équilibre provient du transport du soufre à haute température par les lacunes. Lors du refroidissement, les lacunes qui ont été produites au chauffage vont s'éliminer sur les joints de grains (106), pouvant entraîner avec elles des atomes de soufre et ainsi engendrer un enrichissement des joints de grains

en soufre. Cet effet d'entraînement du soufre par les lacunes résulte de la « forte » attraction lacune-soufre (énergie d'interaction : 0,42 eV dans le nickel pur (107)). Lorsque certains joints sont affectés par cette ségrégation hors d'équilibre, leur cohésion est diminuée. Les conditions d'équilibre feraient ensuite repartir le soufre vers le volume.

La figure 5.23 schématise cette explication et propose de représenter sur différents graphes avec la même abscisse de temps, la température (schéma a)), la quantité de soufre dans le joint de grains (schéma b)), la densité de lacunes (schéma c)), la cohésion du joint de grains et les contraintes de traction (schéma d)).

Lorsque la température augmente, il y a production de lacunes thermiques. Une fois la température maximale du cycle atteinte, le matériau refroidit et les lacunes viennent s'éliminer aux joints de grains, entraînant avec elles le soufre (schémas b et c). La présence de soufre aux joints de grains affaiblit la cohésion de ceux-ci. Lorsque la température passe en dessous d'une certaine valeur, la ségrégation hors d'équilibre n'est plus possible car le flux d'élimination de lacunes devient très faible. En dessous de cette température, le soufre ayant ségrégré sous l'effet des lacunes n'est pas à l'équilibre thermodynamique dans le joint de grains ; il va alors avoir tendance à le quitter.

La cohésion des joints de grains est affectée par le soufre qui y a ségrégré puisque le soufre va affaiblir les liaisons métal-métal (79) (schémas b et d). Si la perte de cohésion d'un joint de grains est suffisante, en d'autres termes si les contraintes que subit ce joint sont supérieures à sa limite de cohésion, alors ce joint va rompre, créant ainsi deux surfaces libres. Lors de la suite du refroidissement ou des passes ultérieures, il est probable que d'autres atomes de soufre viennent ségréger sur ces surfaces libres, ce qui peut expliquer la présence de soufre sur le joint l) de la figure 5.21. Au contraire, si les contraintes ne sont pas assez importantes, ou si la cohésion du joint de grains n'est pas assez affectée (pas assez de soufre dans le joint de grains par exemple), alors le joint ne fissure pas et le soufre va repartir du joint de grains concerné (sur le schéma d, cela correspond à la courbe en pointillés noirs).

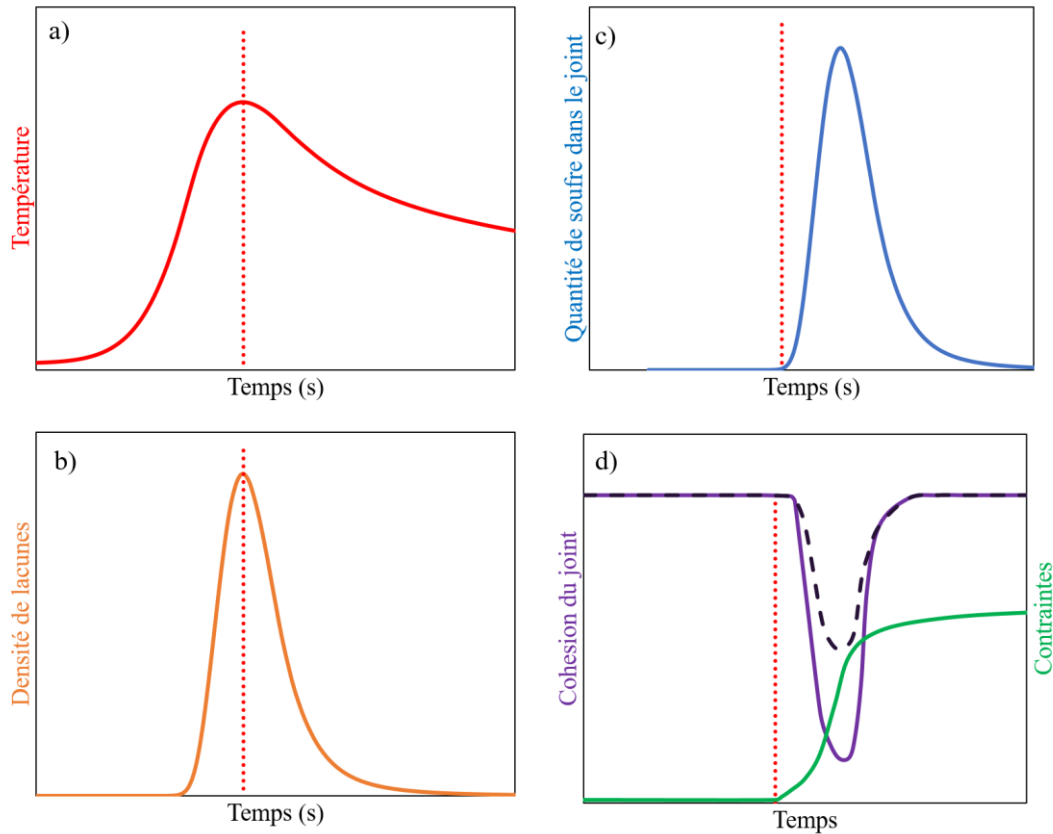


Figure 5.23. Schémas illustrant un possible mode d'action du soufre par ségrégation hors d'équilibre. L'encadré a) représente la température en fonction du temps lors d'une passe de soudage. L'encadré b) présente la densité de lacunes thermiques, l'encadré c), la quantité de soufre dans le joint de grains en fonction du temps et l'encadré d) la cohésion du joint de grains et les contraintes dues au soudage. Les lignes en pointillés rouges marquent le maximum de température.

Un tel mécanisme n'est cependant envisageable que si diverses conditions thermodynamiques et cinétiques sont réunies. Ces aspects sont discutés dans les paragraphes suivants.

5.3.1.2 Quantité de couples lacune-soufre

On s'interroge dans ce paragraphe sur la quantité de couples lacune-soufre produits au cours d'un cycle de soudage qui pourraient atteindre les joints de grains : cette quantité est-elle suffisante pour conduire à des niveaux significatifs de ségrégation hors d'équilibre du soufre ?

La figure 5.24 présente l'évolution de la température en fonction du temps au cours d'une passe de soudage. Les courbes correspondent à deux positions qui encadrent la zone fissurée en surface ainsi qu'à la température « moyenne » de la zone fissurée ($D_{\text{moy}} = 1,01$ mm, $D_{\text{min}} = 0,25$ mm et $D_{\text{max}} = 1,98$ mm, distances à

la ligne de fusion). Elles résultent d'un calcul de thermique à l'aide d'un modèle présenté en annexe 7.3.

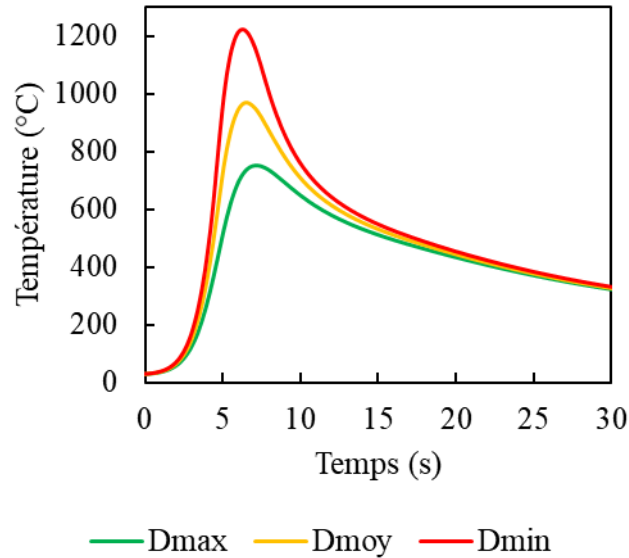


Figure 5.24. Cycles de température calculés, pour les deux positions qui encadrent la zone fissurée en surface. $D_{max} = 1,98$ mm est le point le plus éloigné, $D_{moy} = 1,01$ mm le point à la distance moyenne et $D_{min} = 0,25$ mm le plus proche de la ligne de fusion ; valeurs communes pour tous les alliages.

On observe que la température maximale atteinte dans la zone qui fissure se situe entre 750°C et 1220°C . Dans un premier temps, considérons que la température maximale atteinte dans la zone qui fissure est de 970°C « en moyenne », selon le cycle jaune de la figure 5.24. Nous cherchons à connaître la quantité de soufre que les lacunes peuvent transporter aux joints de grains durant le refroidissement. La distance de diffusion x des couples lacune-soufre peut être calculée à l'aide de l'équation 5.1 :

$$x = \sqrt{\int_{970^{\circ}\text{C}}^T D_{v-S}(t). dt} \quad (5.1)$$

avec $T < 970^{\circ}\text{C}$ la température et D_{v-S} le coefficient de diffusion du couple lacune-soufre (équation 5.2) dans les alliages Ni-Cr-Fe proposé par Kai et coll. (108) :

$$D_{v-S} = D_{0v-S} \times \exp\left(-\frac{Q_{0v-S}}{k_B \times T}\right) \quad (5.2)$$

avec $D_{0v-S} = 0,423$ en $\text{cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ le terme préexponentiel, k_B la constante de Boltzmann ($8,625 \cdot 10^{-5}$ eV.K⁻¹), et Q_{0v-S} l'énergie d'activation de la diffusion du

couple lacune-soufre (1,4 eV) et T la température absolue. La distance que peuvent parcourir les couples lacune-soufre pendant le refroidissement, entre 970°C et 200°C, est présentée figure 5.25.

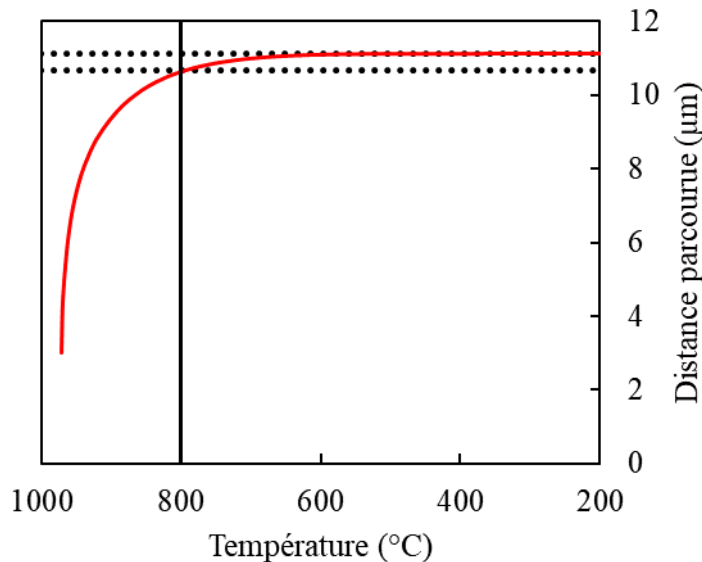


Figure 5.25. Distance parcourue par les couples lacune-soufre pendant le refroidissement.

Entre 970°C et 800°C, les couples lacune-soufre parcourent 96% de la distance possible lors du refroidissement, soit 10,7 μm. Pour la suite, nous pouvons alors considérer que seuls les couples lacune-soufre à une distance de 10,7 μm d'un joint de grains sont susceptibles d'alimenter les joints de grains en soufre par ce mécanisme.

Faisons les hypothèses suivantes :

- Les paires lacunes-soufre sont stables (les couples ne se défont pas, ce qui va surestimer notre calcul).
- Pour un cycle thermique qui atteint une température maximale de 970°C, les paires lacune-soufre qui peuvent alimenter en soufre les joints de grains sont celles qui s'éliminent entre 970°C et 800°C, soit celles qui se trouvent dans une peau de 10,7 μm.
- Tous les couples présents à moins de 10,7 μm d'un joint vont s'éliminer aux joints de grains (ce qui surestime encore une fois notre calcul puisque certaines lacunes vont s'éliminer sur les dislocations et pas aux joints).

Sous ces hypothèses, nous pouvons calculer le nombre de couples lacunes-soufre thermiques à 970°C, N_{v-S} :

$$N_{v-S} \approx N_{voisins} \times N_S \times \exp\left(\frac{A}{k_B \times T}\right) \times N_{Lacunes} \quad (5.3.)$$

où $N_{voisins}$ est le nombre de premiers voisins (soit 12), A l'attraction lacune-soufre dans le nickel ($A = 0,42$ eV (107)), k_B la constante de Boltzmann ($8,625 \cdot 10^{-5}$ eV.K⁻¹), et T la température absolue (1173 K = 970°C), $N_{Lacunes}$ la fraction molaire de lacunes thermiques à la température considérée, donnée par l'équation 5.4. et N_S est la fraction molaire d'atomes de soufre dans l'alliage.

$$N_{Lacunes} = \exp\left(-\frac{E_a}{k_B \times T}\right) \quad (5.4.)$$

où, E_a est l'énergie de formation des lacunes (1,486 eV, moyenne de cinq valeurs de l'énergie de formation de la lacune dans le nickel disponibles dans la littérature (109–113)). Nous raisonnons sur l'alliage « base + S », qui contient 52 ppm massique de soufre, soit 95,7 ppm atomique, nous obtenons alors une fraction molaire de couples lacune-soufre possible, à 970°C de $N_{v-S} = 5,5 \times 10^{-08}$.

Afin de déterminer le nombre d'atomes de soufre par centimètre carré, N_{S_jdg} , qu'il est possible de transporter aux joints de grains à l'aide de ce mécanisme il suffit d'appliquer l'équation 5.5 :

$$N_{S_jdg} = \frac{2 \times N_{v-S} \times \mu_{Ni} \times x \times N_A}{M_{Ni}} \quad (5.5.)$$

avec, N_A la constante d'Avogadro ($6,022140861 \times 10^{23}$ mol⁻¹), μ_{Ni} la masse volumique du nickel ($8,902$ g.cm⁻³) et M_{Ni} sa masse molaire ($58,69$ g.mol⁻¹) et x ($10,7$ μm) la distance maximale depuis laquelle les couples lacune-soufre peuvent atteindre le joint de grains. Le facteur 2 permet de prendre en compte l'influence des deux grains. On obtient ainsi à 970°C : $N_{S_jdg} = 1,1 \times 10^{13}$ atomes par centimètre carré, soit 0,83% d'une monocouche. La conversion en monocouche de ségrégation suppose qu'une monocouche contient $1,3 \times 10^{15}$ atomes par centimètre carré (c'est une valeur comprise entre les densités des plans (100) et (110) du nickel) (81).

Par la suite, nous avons fait ce calcul pour différentes températures maximales qui peuvent être atteintes dans la zone fissurée au cours du cycle de refusions. Les résultats sont présentés dans tableau 5.3 :

Tableau 5.3. Fraction molaire des couples lacune-soufre produits et niveau maximal possible de la ségrégation hors d'équilibre du soufre, en fonction de la température maximale atteinte :

Température maximale atteinte au cours d'une passe de soudage(°C)	N_{v-S} (fraction molaire)	N_{S_jdg} (atomes.cm ⁻²)	Fraction de monocouche (%)
750	$6,5 \times 10^{-09}$	$1,3 \times 10^{12}$	0,1%
800	$1,1 \times 10^{-08}$	$2,2 \times 10^{12}$	0,2%
900	$3,1 \times 10^{-08}$	$6,0 \times 10^{12}$	0,5%
970	$5,5 \times 10^{-08}$	$1,1 \times 10^{13}$	0,8%
1000	$7,0 \times 10^{-08}$	$1,4 \times 10^{13}$	1,0%
1100	$1,4 \times 10^{-07}$	$2,8 \times 10^{13}$	2,1%
1220	$2,9 \times 10^{-07}$	$5,7 \times 10^{13}$	4,4%

Le tableau 5.3 nous indique que les fractions de monocouche qu'il est possible d'atteindre sont très faibles même pour la température maximale atteinte la plus élevée (correspondant aux fissures les plus proches de la ligne de fusion). De plus, comme nous l'avons précisé, nos hypothèses surestiment la quantité de soufre qu'il est possible de transporter via ce mécanisme (les couples sont supposés stables et ils sont supposés tous s'éliminer aux joints de grains). Il semble ainsi peu probable que ce mécanisme puisse être responsable de l'endommagement des joints de grains que nous observons.

5.3.1.3 Rétrodiffusion du soufre

Dans ce paragraphe nous montrons une incompatibilité supplémentaire d'un transport significatif du soufre par ségrégation hors d'équilibre avec nos observations car sa rétrodiffusion n'est pas assez rapide (et/ou thermodynamiquement improbable).

Dans le mécanisme de ségrégation hors d'équilibre tel qu'il est présenté dans la littérature (71, 106), le soluté a vocation à quitter le joint de grains lors du refroidissement. Il y a donc « rétrodiffusion » du soluté du joint vers l'intérieur du grain. Nous nous interrogeons dans ce paragraphe sur la possibilité, thermodynamique d'une part, et cinétique d'autre part, de cette rétrodiffusion.

- Possibilité thermodynamique

La figure 5.26 présente le niveau de ségrégation d'équilibre, exprimé en fraction de monocouche, en fonction de la température. Ces courbes ont été obtenues grâce à l'équation thermodynamique de McLean (80).

$$\frac{X}{X_{max} - X} = X_V \times \exp\left(-\frac{\Delta G}{RT}\right) \quad (5.7.)$$

Ou encore en posant $\theta = \frac{X}{X_{max}}$ le taux de recouvrement :

$$\theta = \frac{X_V \times \exp\left(-\frac{\Delta G}{RT}\right)}{1 + X_V \times \exp\left(-\frac{\Delta G}{RT}\right)} \quad (5.8.)$$

Nous avons considéré ici les données issues du travail d'Allart et coll. (81) dans le nickel pur : $X_{max} = 0,97$, $\Delta G = -93,9 \text{ kJ.mol}^{-1}$ (courbe rouge de la figure 5.26). La concentration volumique de soufre X_V est ici de 95,7 ppm atomiques, exprimée en fraction molaire. Cela correspond aux 52 ppm massiques de l'alliage « base + S ».

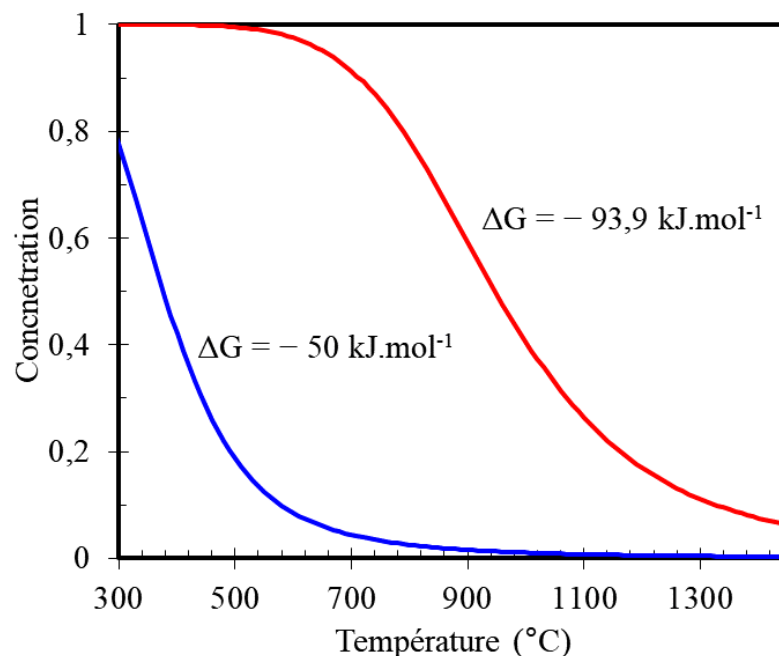


Figure 5.26. Taux de recouvrement d'équilibre, en fonction de la température, pour deux valeurs de ΔG .

Si on considère les données issues du travail d'Allart et coll. (81), on observe que la ségrégation du soufre est stable jusqu'à des températures relativement élevées : par exemple le taux de recouvrement intergranulaire de soufre à l'équilibre est de 0,6 à 900°C (courbe rouge de la figure 5.26). Dans ces conditions, il est fort peu probable, thermodynamiquement, que le soufre (arrivé au joint sous l'effet d'un flux de lacunes) puisse « rétrodiffuser » vers l'intérieur du grain pour des températures inférieures lors du refroidissement. Or ceci est en contradiction avec les analyses faites post-mortem par MEB + WDS et STEM + EDS, qui ont montré l'absence de soufre dans les joints.

Cependant, l'enthalpie libre de ségrégation intergranulaire du soufre n'est pas connue spécifiquement pour notre matériau. Si, au lieu des valeurs d'Allart et coll. (81) ($\Delta G = 93,9 \text{ kJ.mol}^{-1}$ dans le nickel pur), nous considérons une enthalpie libre de ségrégation de 50 kJ.mol^{-1} (par exemple), nous obtenons la courbe bleue sur la figure 5.26 (une étude de la ségrégation d'équilibre du soufre dans ce matériau que nous n'avons pas pu mener dans la durée de cette thèse serait nécessaire pour confirmer les hypothèses énoncées ici). Cette courbe montre que la ségrégation intergranulaire n'est vraiment stable qu'en dessous de $500^\circ\text{C} \sim 600^\circ\text{C}$. Dans ces conditions, la rétrodiffusion du soufre deviendrait thermodynamiquement possible et pourrait permettre d'interpréter l'absence de ségrégation observée post-mortem.

- Possibilité cinétique

Nous pouvons calculer la distance que peut parcourir le soufre dans le nickel pur entre les températures atteintes pendant le soudage et la température ambiante lors d'un cycle thermique de soudage à l'aide de nos simulations thermiques et de l'équation suivante :

$$x = \sqrt{\int_{T_{max}}^{25^\circ\text{C}} D(t). dt} \quad (5.9.)$$

avec T_{max} la température maximale atteinte pendant le cycle thermique et $D(t)$, le coefficient de diffusion du soufre :

$$D(t) = D_0 \times \exp\left(-\frac{Q}{RT(t)}\right) \quad (5.10.)$$

où D_0 est le terme préexponentiel égal à $1,4 \text{ cm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$. Q est l'énergie d'activation, égale à $218\,600 \text{ J} \cdot \text{mol}^{-1}$. Les valeurs de D_0 et Q sont issues des mesures de Vladimirov dans le nickel pur (83). Enfin, R est la constante des gaz parfaits ($8\,314 \text{ J mol}^{-1} \text{ K}^{-1}$) et $T(t)$ est la température absolue en fonction du temps.

L'équation 5.9 permet d'estimer la distance que le soufre peut parcourir entre la température maximale du cycle et la température ambiante. Nous avons représenté la distance parcourable par le soufre pendant le refroidissement pour trois températures maximales atteintes dans la zone fissurée (les températures extrêmes de la zone fissurée et la température maximale moyenne) sur la figure 5.27. Pendant le refroidissement, les distances que le soufre peut parcourir, dans la zone fissurée, sont comprises entre 1533 nm et 32 nm.

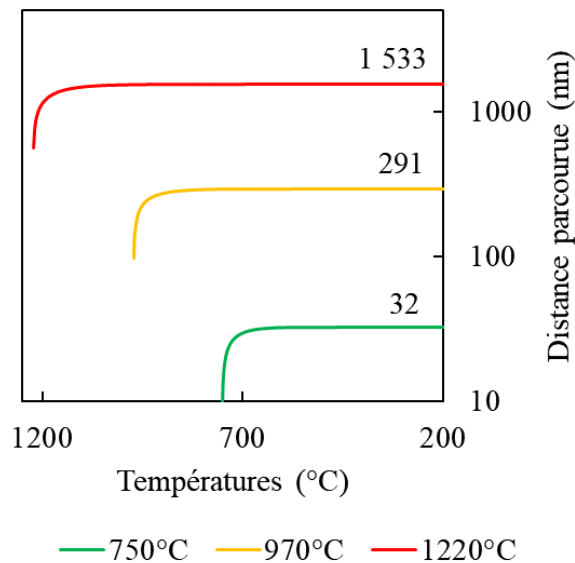


Figure 5.27. Distance de rétrodiffusion du soufre pendant le refroidissement pour les cycles extrêmes et le cycle moyen de la zone fissurée ; calculs issus de nos simulations de l'essai RCT.

Lors de nos analyses WDS post-mortem nous n'observons pas d'enrichissement de soufre aux joints de grains. La largeur à mi-hauteur moyenne des pics de nos profils d'analyses WDS (voir figure 5.17) est de $1,4 \mu\text{m}$ (écart type de $0,36 \mu\text{m}$). Nous pouvons supposer que notre sonde a une taille du même ordre de grandeur que la largeur à mi-hauteur moyenne de nos pics soit environ $1,4 \mu\text{m}$. Cela signifie que pour des distances de rétrodiffusion du soufre inférieure à 700 nm, nous

devrions détecter un enrichissement au joint (ou à proximité du joint) par le soufre transporté par les lacunes thermiques, et ce même s'il a rétrodiffusé. Nos calculs montrent que pour des fissures situées dans une zone où la température maximale atteinte est inférieure à 970°C, le soufre ne pourrait pas rétrodiffuser suffisamment loin pour échapper à notre analyse. Cet argument va lui aussi contre l'hypothèse d'une ségrégation hors d'équilibre du soufre.

5.3.1.4 Réserves sur le mécanisme de ségrégation hors d'équilibre

Nous avons examiné ici la possibilité d'une ségrégation hors d'équilibre du soufre appliquée à notre cas et à nos cycles thermiques. Comme nous avons pu le voir, les fractions de monocouches de soufre qu'il est possible d'atteindre dans les joints avec ce mécanisme de ségrégation sont très faibles, alors même que nos hypothèses surestiment ces quantités (cf. tableau 5.3).

De plus, même à considérer que des quantités suffisantes de soufre puissent ségréger aux joints via un transport par les lacunes thermiques, nos analyses post-mortem suggèreraient que le soufre est reparti des joints de grains sur des distances supérieures à notre demi-taille de sonde (soit environ 700 nm). Cependant, pour une température maximale atteinte de 970°C (soit la température maximale moyenne de nos zones fissurées) la distance maximale que peut parcourir le soufre est seulement de 291 nm. Il y a donc de nombreux joints de gains pour lesquels la rétrodiffusion du soufre ne devrait pas empêcher sa détection lors de nos analyses.

Ces deux arguments permettent de conclure que cette hypothèse ne semble pas pouvoir expliquer le mécanisme d'action du soufre lors de nos essais.

5.3.2 Une ségrégation dynamique en fond de fissure

Nous proposons ici trois autres scénarios possibles, que nous dirons dynamiques. Ils reposent sur des effets endommageant du soufre en pointe ou en fond de fissure. Ces scénarios reposent tous sur l'hypothèse de l'existence de défauts de taille infime, qui ne peuvent pas se propager en l'absence de fragilisation des joints de grains par le soufre, mais qui peuvent conduire à une fissuration seulement après fragilisation, si la contrainte critique de rupture du joint de grains diminue suffisamment pour devenir inférieure à la contrainte appliquée en pointe de fissure.

5.3.2.1 Un effet thermodynamique des contraintes

Le premier de ces trois scénarios possibles s'inspire d'un phénomène observé dans les aciers inoxydables ou dans le système Fe-P-C (114, 115). En effet dans ces alliages, les contraintes faciliteraient, au plan thermodynamique, la ségrégation du phosphore aux joints de grains.

Un tel phénomène pourrait se produire avec le soufre et expliquer la propagation des fissures que nous observons, lors de l'essai RCT, au cours des passes successives. Une fois qu'une fissure est amorcée, les contraintes sont plus importantes dans le voisinage de la pointe de fissure. Cette concentration de contraintes pourrait, localement, rendre plus négative l'enthalpie libre de ségrégation du soufre aux joints, et permettre sa ségrégation pour des températures où il n'est pas thermodynamiquement stable dans le joint en l'absence de contraintes. Le schéma de la figure 5.28 propose une représentation de ce possible phénomène.

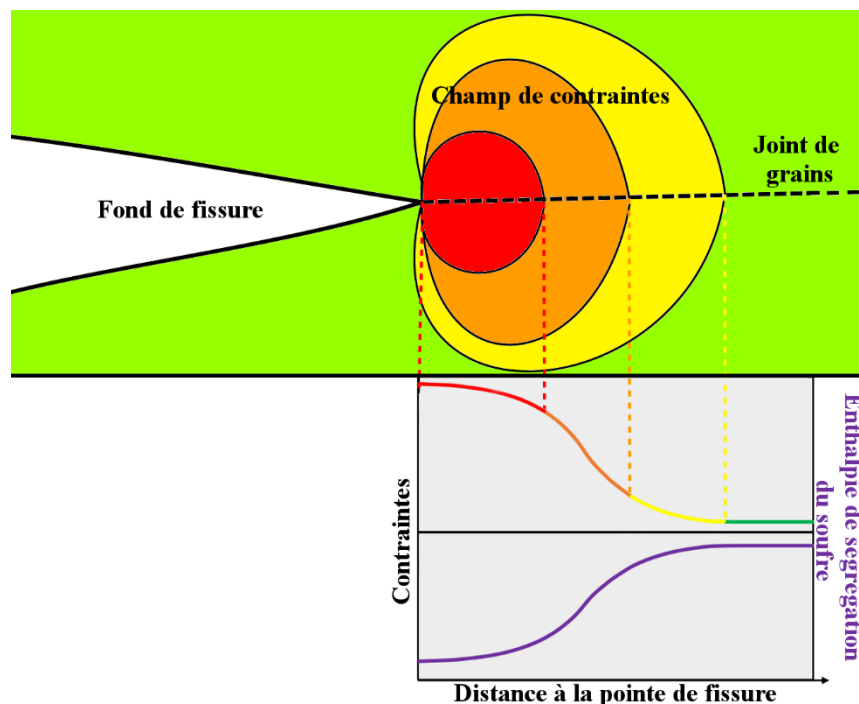


Figure 5.28. Schéma d'explication du phénomène possible d'abaissement de l'enthalpie de ségrégation du soufre aux joints de grains par le champ de contraintes.

Les contraintes plus élevées dans le voisinage de la pointe de fissure pourraient donc abaisser l'enthalpie de ségrégation du soufre aux joints de grains. De ce fait, on pourrait observer une ségrégation du soufre localisée dans le proche voisinage de la

pointe de fissure (sur une distance caractéristique du même ordre de grandeur que celui du champ de contraintes dû à la fissure). Le soufre abaisserait alors la cohésion des joints de telle sorte que la contrainte critique de rupture du joint de grains soit inférieure aux contraintes appliquées au voisinage de la pointe de fissure ; il y aurait donc rupture du joint de grains et propagation de la fissure de proche en proche, tant que le couple contraintes/température le permettrait.

5.3.2.2 *Un effet cinétique de la déformation*

Une autre hypothèse, envisageable pour expliquer ce que nous observons, repose sur la cinétique de ségrégation à l'équilibre du soufre qui peut être fortement augmentée par les déformations plastiques. Comme l'ont démontré Allart et coll. en 2013 (91), la cinétique de ségrégation du soufre aux joints de grains dans le nickel est très fortement accélérée par la déformation plastique. Dans les domaines de vitesse de déformation ($10^{-5} - 10^{-4} \text{.s}^{-1}$) et de températures (450 °C – 550 °C) étudiés, ces auteurs ont montré que la vitesse de ségrégation du soufre est quasiment proportionnelle à la vitesse de déformation et à peu près indépendante de la température (voir figure 5.29). Il se peut que le transport du soufre se fasse sous l'action conjointe du réseau de dislocations induites par les déformations ainsi que par l'excès de lacunes créées par les déformations plastiques.

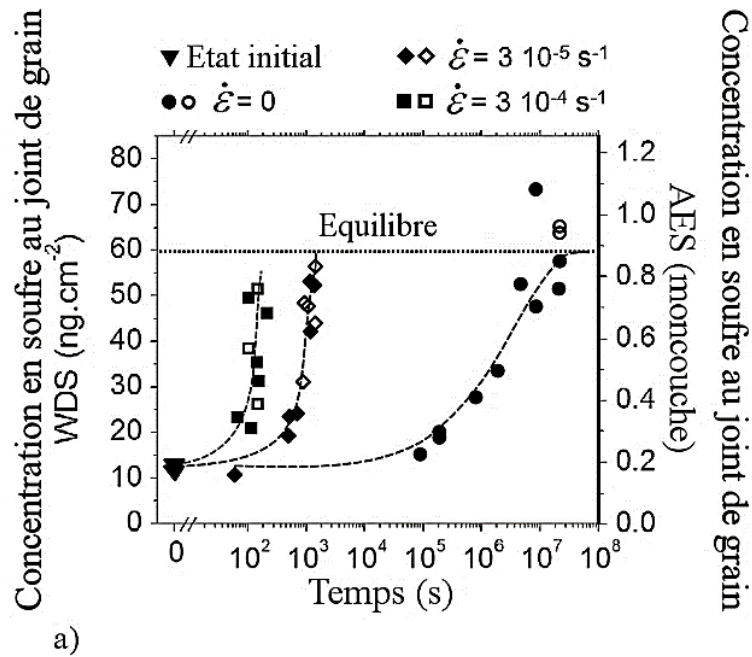


Figure 5.29. Lien entre vitesse de déformation plastique et cinétique de ségrégation du soufre aux joints de grains dans le nickel pur à 550°C, adapté de (91).

Il est alors légitime de penser que les déformations plastiques présentes en pointe de fissure peuvent être responsables du transport accéléré du soufre au joint de grains. La simulation numérique du soudage de notre essai (cf. annexe 7.3) permet de borner les déformations plastiques cumulées dans la zone à l'intérieur de laquelle sont observées les fissures. Nous pouvons aussi calculer les vitesses de déformation plastique au cours du refroidissement des passes de soudage ; ces vitesses de déformation sont comprises entre 10^{-3} s^{-1} et 10^{-2} s^{-1} , comme le montre la figure 5.30. Cette figure présente les vitesses de déformation au cours d'une passe de refusions pour les distances minimale et maximale à la ligne de fusion entre lesquelles des fissures sont observées. L'échelle de temps est telle que $t = 0$ soit au niveau du maximum de température de la passe ; le refroidissement commence donc à $t = 0 \text{ s}$.

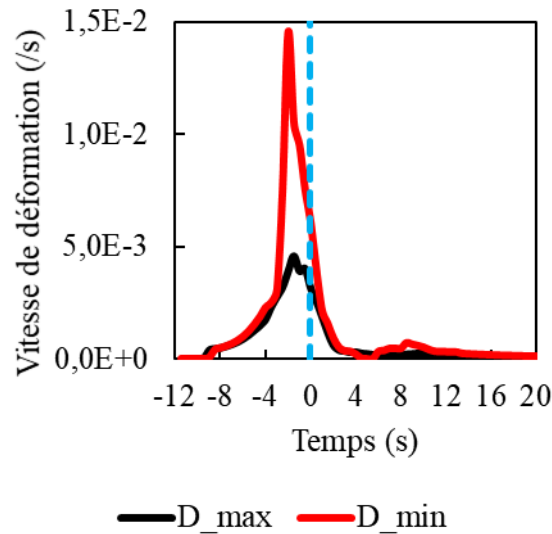


Figure 5.30. Vitesse de déformation au cours de la passe de soudage pour les distances minimale (rouge) et maximale (noire) à la ligne de fusion pour lesquelles des fissures sont observées. La ligne en pointillés bleus marque le début du refroidissement.

Les vitesses de déformation dans la zone présentant des fissures de DDC sont de l'ordre de 10^{-3} s^{-1} à partir du début du refroidissement et peuvent atteindre $\sim 10^{-2} \text{ s}^{-1}$ pendant le chauffage. Lorsqu'une fissure est présente, on s'attend à ce que la déformation plastique se concentre au voisinage de la pointe de fissure. Localement, en pointe de fissure, la vitesse de déformation peut donc être significativement plus élevée que ce qu'indique la figure 5.30. En faisant l'hypothèse que notre matériau est sensible au même phénomène que celui observé par Allart et coll. dans le nickel pur, il est possible que les déformations plastiques qui s'accumulent autour des pointes de fissures puissent accélérer la ségrégation du soufre aux joints de grains, à tel point que celle-ci serait envisageable durant le refroidissement d'une passe de refusions. Dans ce scénario, c'est donc la déformation plastique, localisée en pointe de fissure, qui piloterait (cinétiquement) la ségrégation.

Ici encore, la présence de soufre aux joints de grains, rendue possible au plan cinétique par les déformations plastiques localisées en pointe de fissure, abaisserait la contrainte critique de rupture du joint de grains sous la valeur des contraintes appliquées au voisinage de la pointe de fissure, permettant la propagation de la fissure.

5.3.2.3 Une ségrégation alimentée par le fond de la fissure

Une dernière contribution du fond de fissure sur la ségrégation et l'endommagement du joint de grains est possible, comme présenté par Ben Mostefa Daho, Saindrenan et coll. ou encore Bika et coll. (79, 116–118). Les surfaces libres sont un lieu privilégié de la ségrégation du soufre. Pour rappel, dans le nickel pur, l'enthalpie libre de ségrégation du soufre sur une surface libre (-180 kJ.mol^{-1} (105)) est environ deux fois plus grande que l'enthalpie libre de ségrégation aux joints de grains ($-93,9 \text{ kJ.mol}^{-1}$ (91)). La formation d'une fissure se traduit par la création de deux surfaces libres. Le soufre qui vient ségréger sur ces surfaces libres pourrait, en fond de fissure, servir de source pour une ségrégation de proche en proche dans le joint de grains au voisinage direct du fond de la fissure, comme le montre le schéma de la figure 5.31. Sur cette figure sont représentés deux grains (disques vert clair et vert foncé) ainsi que le fond d'une fissure et ses surfaces libres (disques bleus). Le soufre va ségréger préférentiellement sur ces surfaces libres et ensuite alimenter par l'amont la ségrégation dans le joint de grains.

Une nouvelle fois, sans présence de soufre, les défauts initiaux restent sous-critiques ; en présence de soufre, ils deviennent critiques et peuvent se propager.

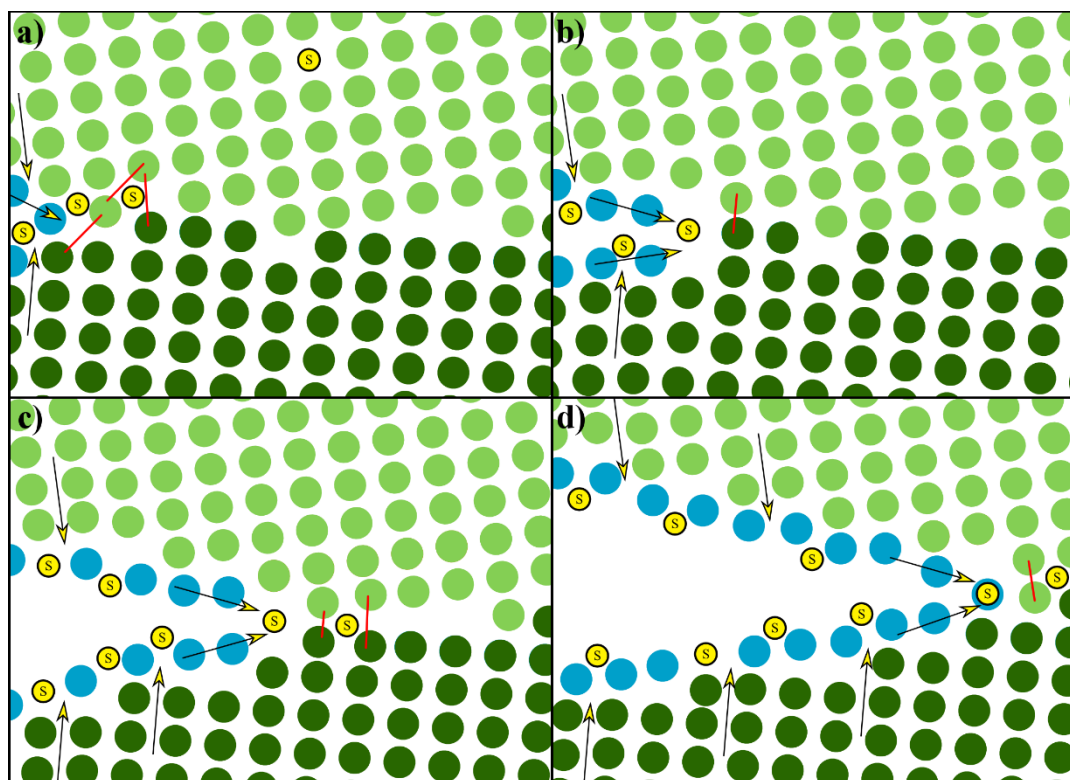


Figure 5.31. Ségrégation du soufre au joint de grains depuis la fissure, et fragilisation des liaisons métal-métal. Les disques verts représentent les atomes de deux grains. Les disques jaunes représentent les atomes de soufre. Les segments rouges représentent les liaisons métal-métal affectées par les atomes de soufre au joint de grains. Les disques bleus représentent la surface libre.

5.3.3 Conclusion sur les modes d'action possibles du soufre

Nos résultats montrent un effet fort du soufre sur la sensibilité à la fissuration par chute de ductilité. La nature intergranulaire des fissures suggère que le soufre a un effet sur la cohésion des joints. Il paraît donc logique d'attribuer l'endommagement observé à la ségrégation intergranulaire du soufre. Cependant, comme nous l'avons vu, nos analyses post-mortem ont montré l'absence, dans les joints de grains non fissurés à l'issue du soudage, de ségrégation généralisée du soufre. Nous avons donc proposé quatre hypothèses, que l'on peut classer en deux catégories.

La première catégorie relève d'une ségrégation hors d'équilibre. Au refroidissement, les lacunes thermiques entraineraient le soufre en allant s'éliminer aux joints de grains. Ce phénomène se produirait à des températures supérieures au domaine de stabilité intergranulaire du soufre, d'où le qualificatif « hors d'équilibre ». Si les contraintes induites par le soudage sont suffisantes, et si la cohésion du joint est suffisamment affectée, le joint rompt. Sinon, une fois que les

lacunes se sont toutes éliminées, le soufre qui n'est pas à l'équilibre aux joints repart dans les grains, expliquant ainsi qu'il n'est pas possible de détecter le soufre (post-mortem) à température ambiante. Comme nous l'avons cependant vu, les faibles quantités de soufre que ce mécanisme peut faire ségréger, les distances de rétrodiffusion du soufre inférieures à la taille de notre sonde WDS et l'absence de signal lors de nos analyses WDS rendent cette hypothèse peu crédible.

La deuxième catégorie d'hypothèses relève d'une ségrégation dynamique au voisinage du fond de fissure. Dans ce cas, il se peut que le champ de contraintes puisse localement abaisser l'enthalpie de ségrégation (la rendre plus négative), ou alors que les déformations plastiques plus élevées dans cette zone augmentent la cinétique de ségrégation. Il se peut enfin que la ségrégation de surface au voisinage du fond de la fissure agisse comme une source importante de soufre, alimentant localement la ségrégation intergranulaire de proche en proche. Dans les trois cas, ces hypothèses décrivent assez bien la propagation des fissures que nous observons et expliquent également pourquoi nous n'observons pas de soufre dans les joints que nous avons analysés. Elles supposent cependant des défauts ou fissures intergranulaires préexistants non critiques, rendus critiques par abaissement de la cohésion par le soufre.

Rappelons enfin que toutes ces hypothèses ne sont que des propositions de mécanismes possibles, observés dans d'autres configurations et adaptés à notre cas précis. Maintenant que nous avons discuté de l'effet du soufre sur la fissuration par chute de ductilité, il convient d'aborder les cas du carbone, du niobium et des carbures.

5.4 L'influence du carbone, du niobium et des carbures

Nos essais montrent que le carbone a une influence protectrice sur la fissuration par chute de ductilité. En effet, les alliages modèles ayant une teneur basse en carbone, « base » et « base + S », sont plus sensibles que leurs homologues à haute teneur en carbone, respectivement « base + C » et « base + CS ».

5.4.1 L'effet des carbures secondaires

Comme nous l'avons vu au paragraphe 2.3.2.3 p.29, le rôle des carbures secondaires, de type $M_{23}C_6$ n'est pas clair. Plusieurs auteurs attribuent aux carbures secondaires un rôle fragilisant qui aggraverait la fissuration par chute de ductilité (18, 77, 78). D'autres lui attribuent un effet protecteur (40, 50), quand certains suggèrent qu'il n'a aucun effet sur la sensibilité à la DDC (29). Rappelons que les carbures secondaires sont ceux qui se forment lors d'une exposition en température alors qu'ils sont absents à l'issue de la solidification. Dans la famille d'alliages étudiée, ce sont majoritairement des carbures riches en chrome de type $Cr_{23}C_6$. Nous allons discuter leur éventuelle influence au regard de nos résultats.

Des calculs de diagramme d'équilibre de phase avec MatCalc® version 5.62.¹⁶, présentés à la figure 5.32, prédisent une présence accrue de carbures $Cr_{23}C_6$ dans l'alliage modèle « base + C » par rapport à l'alliage « base ». Ces calculs montrent que le domaine d'équilibre des carbures $Cr_{23}C_6$ est bien plus important lorsque les alliages contiennent du carbone.

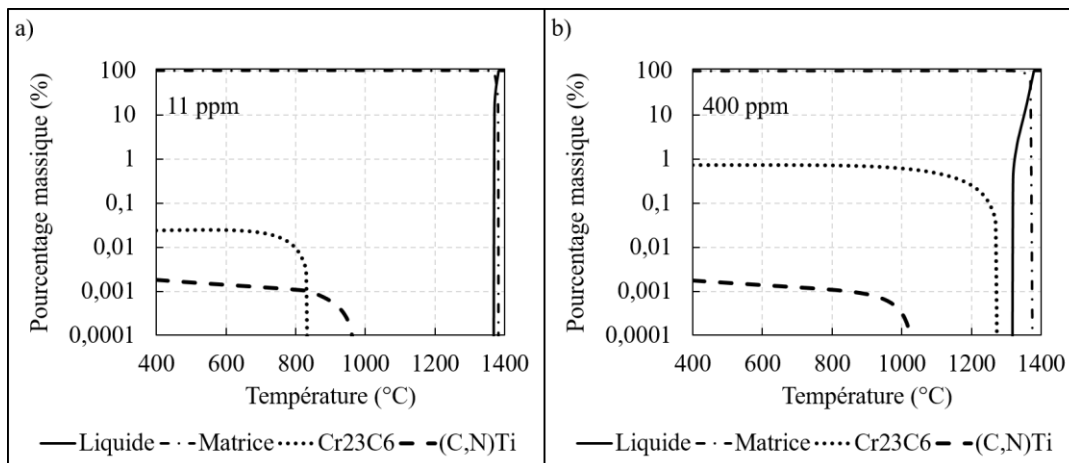


Figure 5.32. Diagrammes d'équilibre de phases pour deux des alliages modèles « base » a) et « base + C » b) calculés à l'aide de MatCalc® version 5.62. Les phases considérées sont le liquide, la matrice cubique à faces centrées, les carbures $M_{23}C_6$ et les carbonitrides de titane.

Ces calculs sont cohérents avec les observations que nous avons pu faire sur des coupes polies des alliages « base + CS » et « base + S ». La figure 5.33 présente des photographies MEB de coupes polies des alliages modèles « base + CS » (encadré

¹⁶ Les calculs de diagramme d'équilibre de phases sont faits avec la base de données Ni2.011 en prenant en compte les éléments suivants : Ni, Cr, Fe, Mn, Nb, Al, Ti, C, N.

a) et «base + S» (encadré b)). En effectuant des recherches au MEB sur des coupes polies de ces deux alliages modèles après les essais de refusions, il est possible d'observer des carbures –supposés secondaires– aux joints de grains dans l'alliage « base + CS ». Dans les mêmes conditions d'observation, il n'a pas été possible de trouver de tels carbures dans l'alliage « base + S ».

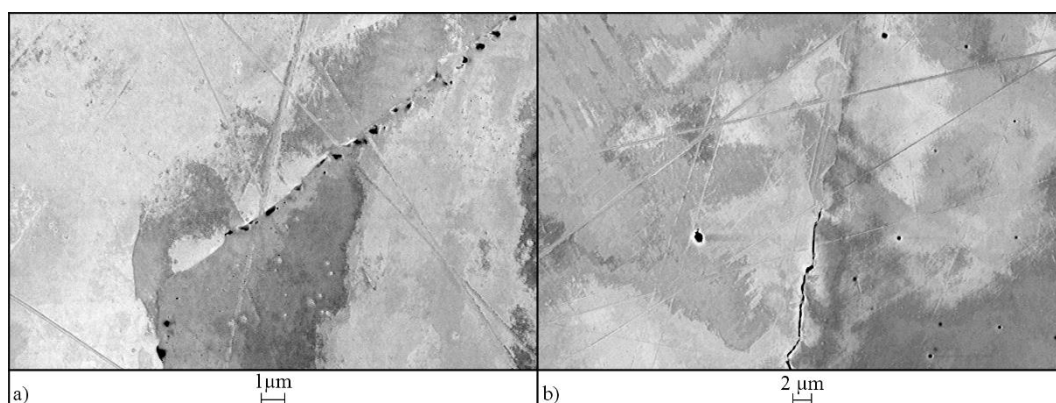


Figure 5.33. Photographies MEB de coupes polies des alliages modèles « base + CS » a) et « base + S » b) après respectivement huit et quatre passes au test RCT.

Comme nous pouvions nous y attendre, l'ajout de carbone augmente donc bien la précipitation de carbures secondaires aux joints de grains. Or nous observons, d'après les résultats des alliages modèles au test RCT, que l'ajout de carbone augmente la résistance à la fissuration. Donc :

- Soit les carbures secondaires ont un rôle protecteur, en accord avec Nissley et Lippold (50) ou Chen et coll. (40) ;
- Soit les carbures secondaires ont un rôle néfaste, qui est alors plus que compensé par une action bénéfique du carbone libre sur la fissuration, ce point sera discuté ultérieurement ;
- Soit les carbures secondaires n'ont pas d'effet, comme le suggèrent Sjöström et Åkesson (29), et alors c'est de nouveau le carbone libre qui a un effet protecteur pouvant expliquer la résistance accrue des alliages à haute teneur en carbone.

Dans le cas où les carbures secondaires auraient un effet protecteur, ce dernier pourrait s'expliquer par une possible augmentation de la résistance des joints de grains, venant s'opposer au glissement des joints de grains ou tout du moins à leur

décohésion. Les résultats obtenus sur les variantes des essais de traction en simulateur thermomécanique (cf. § 4.1.2 p.70), lorsque nous avons testé l'influence du temps de remise en solution (supposé) des carbures ainsi que le temps de précipitation (supposé), allaient dans le sens d'un effet légèrement bénéfique des carbures secondaires sur la ductilité. Il se peut que nous observions ici la même chose.

Dans les deux autres cas, l'effet bénéfique du carbone doit s'expliquer par l'effet du carbone libre.

5.4.2 L'effet du carbone libre

5.4.2.1 Carbone libre dans l'austénite

Comme déjà constaté sur la figure 5.32 l'augmentation de la teneur en carbone augmente la fraction de carbures prédite par MatCalc 5.62 dans les alliages modèles. Ceci est confirmé sur l'ensemble des alliages, comme on peut le voir sur la figure 5.34. Malgré tout, augmenter la teneur en carbone dans les alliages accroît également la concentration en carbone libre dans l'austénite, et ce malgré une précipitation de carbures plus abondante.

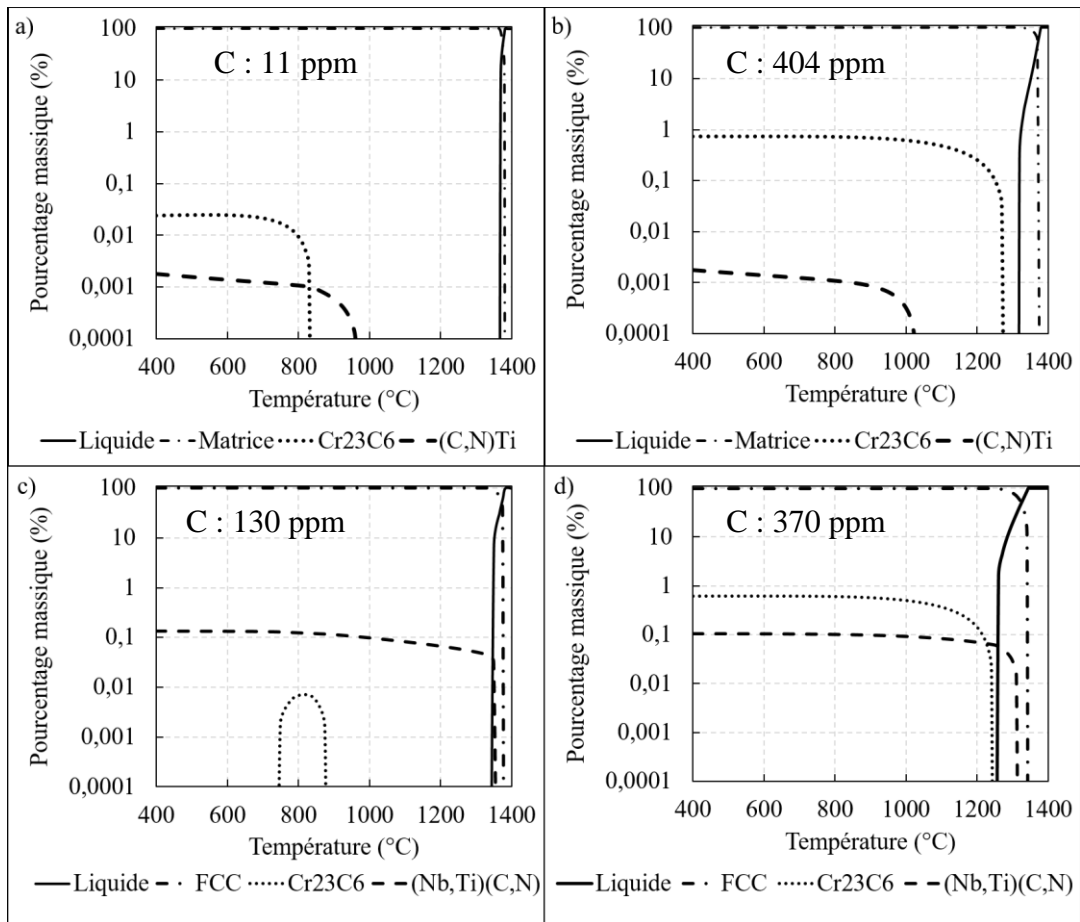


Figure 5.34. Diagrammes d'équilibre de phase pour quatre alliages, a) alliage modèle « base », b) alliage modèle « base + C », c) alliage industriel 52M et d) alliage industriel 152.

Bien que la quantité de carbures augmente avec l'ajout de carbone dans les alliages, la teneur en carbone libre dans l'austénite est plus élevée dans les alliages qui contiennent le plus de carbone, comme il est possible de le voir sur la figure 5.35, en particulier dans les gammes de températures qui nous intéressent (au-dessus de 750°C). Toutefois, la quantité de carbone libre est plus importante dans l'alliage « base + C » que dans l'alliage 52M, ce dernier étant par ailleurs moins sensible à la fissuration par chute de ductilité.

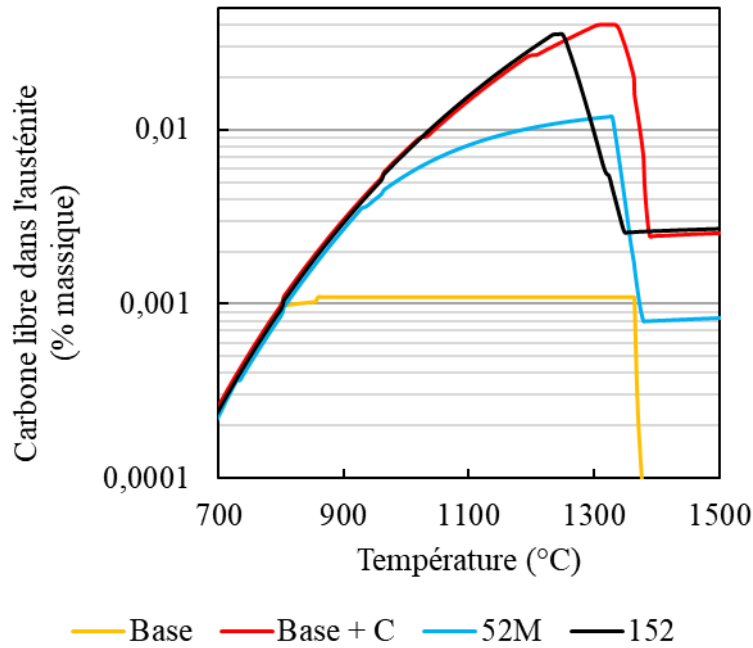


Figure 5.35. Carbone libre dans l'austénite à l'équilibre thermodynamique en fonction de la température pour quatre alliages, calculé à l'aide de MatCalc 5.62¹⁷.

Les calculs de la figure 5.36 présentent des alliages hypothétiques basés sur la composition de l'alliage 52M, où seules les teneurs en carbone et en niobium diffèrent (cf. tableau 5.4). Ces alliages hypothétiques ont pour objectifs de tester l'influence de l'ajout de carbone à teneur en niobium constant (alliage A1 vis-à-vis de l'alliage 52M) et l'ajout de niobium à teneur en carbone constante (alliages A2, A3 et A4 vis-à-vis de l'alliage A1) sur la quantité de carbone libre dans l'austénite.

Tableau 5.4. Teneur en carbone et en niobium des alliages hypothétiques de la figure 5.36

	52M	A1	A2	A3	A4
C (ppm)	130	404	404	404	404
Nb (%)	0,84	0,84	1,68	2,1	3

La figure 5.36 montre que les alliages hypothétiques A1, A2 et A3 contiennent toujours plus de carbone libre que l'alliage 52M et ce même si la quantité de niobium est plus importante. Il est à noter également que plus la teneur en niobium est

¹⁷ Les calculs de diagrammes d'équilibre de phases sont faits avec la base de données Ni2.011 en prenant en compte les éléments suivants : Ni, Cr, Fe, Mn, Nb, Al, Ti, C, N.

importante et plus la teneur en carbone libre est réduite, puisque le niobium consomme une partie du carbone pour former des carbures.

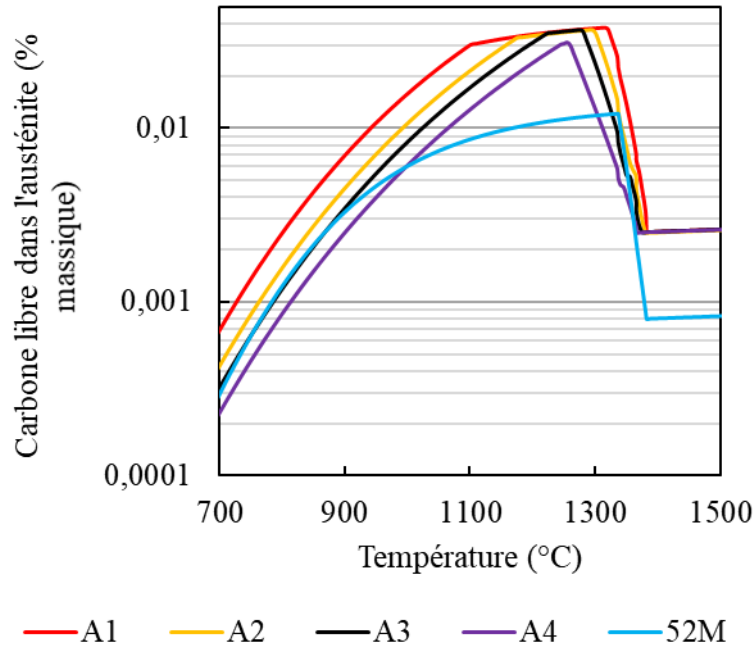


Figure 5.36. Carbone libre dans l'austénite à l'équilibre thermodynamique en fonction de la température pour quatre alliages hypothétiques, basés sur l'alliage 52M, calculé à l'aide de MatCalc 5.62.

Ces calculs confirment qu'à teneur équivalente en niobium, ajouter du carbone augmente la quantité de carbone libre dans la matrice. Ils permettent également de montrer que l'ajout de niobium à teneur en carbone constante diminue la quantité de carbone libre dans la matrice (dans une moindre mesure).

Nous pouvons donc considérer que les alliages peuvent être classés comme suit en ce qui concerne la teneur en carbone libre dans l'austénite, à la suite de nos calculs MatCalc :

$$\text{Base} + \text{C} \approx \text{Base} + \text{CS} \approx 152 > 52\text{M} > \text{Base} + \text{S} \approx \text{Base}.$$

Bien entendu, ces calculs sont faits à l'équilibre thermodynamique et pas quand nos alliages sont issus d'une solidification de soudage, mais cela permet d'avoir une idée des tendances.

5.4.2.2 *L'effet possible du carbone libre*

Dans le fer pur, le soufre a, comme dans les alliages à base de nickel ou le nickel pur, un effet néfaste sur la cohésion des joints de grains. Il a été observé que l'ajout de carbone avait un double effet. Le carbone entre en compétition avec le soufre lors de la ségrégation intergranulaire et améliore la cohésion des joints de grains (119). Dans le nickel pur, le carbone a une énergie de ségrégation en surface qui est trois fois plus faible (en valeur absolue) que celle du soufre (120) ; il a donc moins tendance à ségréger que le soufre, à concentrations volumiques égales. On peut supposer qu'une telle différence existe aussi pour la ségrégation intergranulaire. Cependant, le carbone est en général présent en plus grande quantité que le soufre, ce qui pourrait permettre au carbone de ségréger dans des proportions comparables, voire plus importantes que le soufre. De plus, comme le carbone et le soufre se repoussent, une fois que le carbone est en place (dans ses sites de ségrégation), il empêche ce dernier de pouvoir venir ségréger (119).

Si nous extrapolons ces observations aux alliages de nickel, alors il est possible que le carbone joue un rôle bloquant la ségrégation du soufre, et ce, dans les différentes hypothèses que nous proposons quant aux mécanismes possibles de ségrégation du soufre aux joints de grains. Le carbone libre ségrégerait aux joints de grains de manière préférentielle au soufre et améliorerait ainsi la cohésion intergranulaire (comme dans le fer pur).

Ce raisonnement pourrait convenir aux alliages modèles, parmi lesquels les alliages qui présentent le plus de carbone libre sont les plus résistants. Cependant, lorsque nous incluons les alliages industriels, ce raisonnement est mis en question. En effet, l'alliage 52M présenterait (d'après les calculs MatCalc) une quantité moins élevée de carbone libre dans la matrice que l'alliage « base + C », pourtant il est moins sensible à la DDC. Pour cette raison, l'influence du niobium doit aussi être prise en compte.

5.4.3 L'influence du niobium

Les résultats de l'essai RCT ont montré que les alliages industriels présentent une meilleure résistance à la fissuration que les alliages modèles. Nous avons attribué cela à un effet bénéfique du niobium tel que rapporté dans la littérature (18, 31, 33, 36, 52, 60, 62). D'après cette dernière, un mode d'action du niobium sur la fissuration par chute de ductilité serait une augmentation de la tortuosité des joints de grains par la précipitation abondante de carbures primaires de type NbC. Nous n'avons pas eu le temps d'approfondir cette hypothèse durant ce travail. Il se pourrait aussi que le niobium en solution agisse directement sur la ségrégation du soufre.

5.5 Conclusion sur les mécanismes pilotes de la DDC

Les résultats des essais RCT obtenus sur les alliages modèles permettent de mettre en évidence un effet assez clair du soufre et du carbone sur la sensibilité à la fissuration par chute de ductilité ; le soufre fragilise les alliages vis-à-vis de la DDC, au contraire du carbone qui les renforce. De plus, en comparant les alliages modèles avec les alliages industriels, on peut conclure à un effet fortement protecteur du niobium.

Pour ce qui concerne le soufre, nous avons observé l'absence de ségrégation généralisée de ce dernier aux joints de grains, à l'aide d'analyses WDS au travers de joints de grains sur coupes polies, et d'analyse par STEM + EDS sur lames FIB. Nous avons proposé quatre hypothèses permettant d'expliquer le possible mode d'action du soufre : une hypothèse de ségrégation hors d'équilibre en début de refroidissement, assez peu probable au vu des conditions d'apparition de la DDC et de nos analyses, ainsi que trois hypothèses de ségrégation dynamique au voisinage de la pointe de fissure, pilotée thermodynamiquement par la contrainte, cinétiquement par la déformation plastique, ou par les surfaces de la fissure.

L'effet bénéfique du carbone observé sur les alliages modèles est assez net. L'ajout de carbone favorisant la précipitation de carbures de type $M_{23}C_6$, il se peut que les carbures secondaires expliquent cet effet protecteur, contredisant ainsi une partie des auteurs étudiant le sujet. Cependant, il n'est pas à exclure que l'effet des carbures secondaires soit négligeable devant l'effet du carbone libre. Le carbone

libre, qui pourrait avoir un effet bénéfique sur la cohésion des joints de grains (dans nos alliages comme c'est le cas dans le fer pur), pourrait ici entrer en compétition avec le soufre, bloquant ainsi son action en pointe de fissure.

Suite aux résultats accumulés durant cette thèse et aux observations qui ont pu être faites, il est probable que la fissuration par chute de ductilité soit pilotée par l'endommagement des joints de grains à des températures intermédiaires par ségrégation du soufre aux joints. Cette ségrégation est probablement dynamique, selon les hypothèses que nous avons proposées. La sensibilité au phénomène peut être réduite par l'ajout d'éléments tels que le carbone ou le niobium, avec des modes d'action manifestement très différents : effet de solution solide pour le carbone, repoussant le soufre lors de la ségrégation, effet de précipitation et épinglage des joints de grains ou influence sur la ségrégation du soufre par le niobium, rendant l'endommagement plus difficile.

6 Conclusions et perspectives

Cette thèse avait pour but de mieux comprendre la fissuration à chaud par chute de ductilité, pouvant intervenir durant le soudage des alliages à base de nickel utilisés dans l'industrie nucléaire.

Notre étude de l'état de l'art (cf. § 2.) montre que ce dernier est complexe et non consensuel. Il est à noter en particulier :

- L'absence totale de consensus sur les mécanismes de la DDC (cf. 2.3.5)
- L'absence de corrélation, identifiable à partir de la littérature, entre la composition chimique et la sensibilité à la DDC (cf. § 2.2.5)
- La grande diversité des méthodes de caractérisation et la difficulté de les corréler entre elles (cf. § 2.2.4 et 2.2.5)

Pour ces trois raisons, ce travail a été divisé en plusieurs parties. Dans un premier temps, les alliages industriels ont été étudiés à l'aide de deux techniques : des essais de traction à rupture à chaud en simulateur thermomécanique et des essais de soudage à sollicitation mécanique externe (essais Varestreint). Les résultats obtenus ont motivé le développement d'un nouvel essai d'évaluation de la sensibilité à la fissuration par chute de ductilité. Une fois cet essai mis en place, une étude de l'influence du soufre et du carbone au travers du test d'alliages modèles et d'investigations post-mortem des éprouvettes a été menée.

Nous présentons ici les principales conclusions de notre étude, ainsi que les perspectives qu'elle ouvre.

6.1 Conclusions

6.1.1 Choix de l'essai

Le premier résultat de ce travail porte sur le choix des essais pour évaluer la sensibilité à la fissuration à chaud par chute de ductilité. Comme présenté dans l'état de l'art en début de manuscrit (cf. § 2.2), de nombreux types d'essais sont disponibles. Nous avons montré qu'en testant nos deux alliages industriels avec d'une part un essai de traction à chaud en simulateur thermomécanique et d'autre part un essai de soudage avec sollicitation mécanique extérieure (essai Varestraint), il est possible d'arriver à un classement différent des matériaux en fonction des critères retenus pour l'évaluation de la sensibilité. De plus, l'essai Varestraint produisant également d'autres types de fissures, cela peut rendre l'expertise et le dépouillement des essais plus compliqué. Une partie de la diversité des explications proposées dans la littérature quant aux mécanismes pilotant le phénomène de DDC pourrait ainsi être induite par la variété des essais disponibles et utilisés pour l'étudier. Il est donc primordial de bien choisir les essais à employer lors de l'étude de ce phénomène.

Le développement d'un essai de refusions

Afin de remédier à ces problèmes, nous avons proposé le développement d'un nouvel essai dit « essai RCT ». Notre essai permet de solliciter de manière cyclique une même zone ayant une structure de solidification de soudage. Il est représentatif d'une opération de soudage, peut être réalisé avec de faibles quantités de matière et est utilisable avec des matériaux non déposés (ce qui était le cas de nos alliages modèles par exemple) tout en restant simple, facilitant ainsi sa simulation numérique. De plus, l'essai RCT permet de produire des fissures de DDC, il est discriminant et il permet d'envisager une quantification de la sensibilité à la fissuration (par exemple en mesurant la longueur de fissures après un nombre de passes donné).

Afin de cerner l'influence de certains éléments sur la fissuration par chute de ductilité, nous avons testé quatre alliages modèles en plus des deux alliages industriels disponibles. L'utilisation d'alliages modèles permet d'éviter les variations de compositions chimiques inhérentes à l'utilisation d'alliages industriels. Ces

alliages modèles, dont la composition était adaptée de celle de l'alliage 52M, nous ont permis d'évaluer avec précision l'influence du soufre et du carbone sur la DDC.

Un premier travail de simulation numérique de notre essai RCT a été entrepris. Ce dernier a permis d'estimer des plages de déformations plastiques cumulées en fonction du nombre de passes. Il a également été possible d'estimer les vitesses de déformation observées dans la zone d'intérêt durant nos essais RCT, mais également d'accéder aux contraintes.

6.1.2 Les apports sur la compréhension du mécanisme

6.1.2.1 *L'effet du soufre*

Nos essais démontrent clairement l'influence néfaste du soufre sur la fissuration à chaud par chute de ductilité, comme cela avait été rapporté par différents auteurs. Nous avons alors entrepris d'importantes investigations (MEB + WDS et STEM + EDS) dans le but d'étudier la possible ségrégation du soufre aux joints de grains. Ces analyses ont permis de montrer l'absence de ségrégation intergranulaire généralisée du soufre aux joints de grains de l'alliage modèle fissurant le plus, lors d'analyses menées post-mortem au travers de joints de grains sur coupe polie.

Nous nous sommes alors trouvés devant une contradiction. L'ajout de soufre dans le matériau augmente la fissuration intergranulaire de nos alliages ; pourtant nous ne détectons pas de soufre ségrégué aux joints de grains lors de nos observations post-mortem. Nous avons alors proposé quatre scénarios possibles pouvant expliquer cette apparente contradiction ; la ségrégation du soufre hors d'équilibre ; la ségrégation « dynamique » induite par abaissement de l'enthalpie de ségrégation par le champ de contraintes en pointe de fissure ; la ségrégation « dynamique » due au transport du soufre par les dislocations induites par les déformations plastiques au voisinage de la pointe des fissures ; enfin une ségrégation « dynamique » alimentée par le soufre ségrégué sur les surfaces libres proches de la pointe de fissure. Le premier de ces quatre scénarios nous semble non approprié, et d'après nos calculs, n'est pas en adéquation avec nos observations. Les trois autres pourraient expliquer les résultats que nous avons observés, s'accordant plutôt bien avec la propagation observée des fissures au fur et à mesure des passes de refusions.

6.1.2.2 *L'effet du carbone*

Les résultats de nos essais révèlent également l'effet protecteur du carbone sur la fissuration par chute de ductilité, ce qui constitue, à notre connaissance, un résultat novateur. Cet effet n'a pas pu être totalement compris. Cependant, le carbone a une influence sur la précipitation ; l'ajout de carbone semble augmenter la précipitation de carbures $M_{23}C_6$. Il se peut donc que les carbures $M_{23}C_6$ puissent réduire la sensibilité à la fissuration, comme le rapporte une partie de la communauté scientifique à ce sujet (cf. § 2.3.5). Il se peut également que ce soit le carbone libre qui ait un effet sur la sensibilité à la DDC, par augmentation de la cohésion des joints de grains ou par répulsion du soufre, limitant la ségrégation de ce dernier aux joints de grains.

6.1.2.3 *L'effet du niobium*

La bonne résistance des alliages industriels à la DDC est explicable par la présence de niobium et son influence protectrice, déjà établie dans la littérature, raison pour laquelle l'étude de l'influence du niobium n'a pas été approfondie. Le niobium pourrait influencer la tortuosité des joints de grains comme rapporté par la littérature.

6.1.2.4 *L'importance des cycles*

Les résultats obtenus avec notre essai d'évaluation de la sensibilité à la DDC sur les alliages industriels et modèles nous ont permis de mieux comprendre le phénomène. Nos résultats montrent l'impact important du « cyclage » sur ce phénomène de fissuration : aucun de nos alliages, industriels comme modèles, ne fissurent à la première passe.

6.2 Perspectives

Bien que la fissuration par chute de ductilité soit de plus en plus étudiée depuis le début des années 2000, il n'existe pas, à ce jour, d'essai de soudage autocontraint permettant son étude en mettant en œuvre des quantités de matière restreintes. Cette thèse a permis le développement d'un tel essai, mais il reste encore plusieurs pistes à approfondir.

Cet essai a l'avantage d'être simple et de ne nécessiter qu'une faible quantité de matière pour évaluer la sensibilité d'un matériau et démontre qu'il est possible d'étudier la DDC par simples refusions successives à la surface d'un bloc. Après un léger travail d'optimisation des paramètres de soudage et d'évaluation de sa répétabilité et de sa reproductibilité, il est tout à fait envisageable d'utiliser un tel essai pour évaluer la sensibilité à la DDC de différents alliages dans une optique de tri de matériaux industriels.

Afin de tirer meilleur profit de la simulation de cet essai il est important de réussir à obtenir l'instant auquel les fissures de DDC s'ouvrent. Cela permettra de connaître précisément la température à laquelle elles se forment et ainsi de mieux comprendre le phénomène. Cet instant de fissuration pourrait être déterminé par observation directe à l'aide d'une caméra rapide équipée d'une optique permettant un grandissement suffisant. Une autre approche consisterait à utiliser l'émission acoustique pour localiser l'initiation et la propagation des fissures à la fois dans l'espace et dans le temps, mais cela nécessiterait l'utilisation d'un moyen de soudage non bruyant, comme une source laser par exemple.

Les hypothèses que nous avons avancées dans ce travail concernant les possibles modes d'action du soufre restent à confirmer. Pour ce faire, il faudrait dans un premier temps étudier la ségrégation d'équilibre du soufre (intervalle de température et cinétique de ségrégation, enthalpie de ségrégation) dans ces matériaux. Pour étudier les différentes hypothèses, il faudrait ensuite mettre en place des programmes d'études spécifiques sur l'effet de la déformation plastique sur les cinétiques de ségrégation et l'effet des contraintes sur la tendance thermodynamique à la ségrégation du soufre. Il conviendrait également de mener une étude plus systématique par MET + EDS dans le prolongement des fissures pour confirmer la

présence de soufre dans les joints de grains à cet endroit. L'étude de la ségrégation du carbone serait également à envisager pour mieux comprendre son effet.

L'influence du niobium pourrait être confirmée avec l'étude d'alliages modèles contenant du niobium. Il conviendrait également de pousser quantitativement l'étude de la tortuosité (ou de la rugosité) des joints de grains afin d'évaluer si celle-ci a une influence sur la DDC, ou si l'effet du niobium réside ailleurs.

Quoi qu'il en soit, les résultats que nous avons obtenus durant ce travail de thèse, en particulier sur les effets du soufre et du carbone, ouvrent de nouvelles pistes de réflexion sur les mécanismes mis en œuvre lors de cette fissuration. Étudier le mode d'action précis du soufre, sur la base des hypothèses que nous proposons, ouvre des perspectives de recherches assez importantes. De même, l'effet protecteur du carbone, observé dans ce travail, qui est en soi un résultat novateur, demande de pousser plus encore les recherches pour comprendre les modes d'action de cet élément.

7 Annexes

7.1 Annexes à l'état de l'art

7.1.1 Composition des alliages relatifs au paragraphe 2.2.5

Les tableaux qui suivent présentent les teneurs d'alliages issus de la littérature et qui servent à construire les graphes du paragraphe 2.2.5. Les alliages sont rangés par technique, les teneurs des différents éléments sont présentées sur les lignes, chaque colonne représente un alliage différent. Pour chaque technique de test et chaque alliage, les résultats selon le critère retenu par les auteurs sont présentés sur l'avant-dernière ligne. La dernière ligne présente la valeur normalisée retenue dans le présent manuscrit.

Cr	STF	29,09	30,04	30,06	29,5	29,6	30,2	29,94	30	26,67	28,68
Fe		8,88	8,42	8,22	8,04	8,04	8,2	8,8	9,15	9,2	8,75
Mn		0,25	0,81	0,8	0,77	0,72	0,8	0,9	1,21	0,17	3,16
Si		0,17	0,03	0,09	0,12	0,05	0,04	0,75	0,2	0,6	0,3
S		0,0037	0,001	0,001	0,001	0,001	0,001	0,0016	0,0012	0,001	0,008
Cu		0,011	0,02	0,02	0,01	0,05	-	0,01	0,01	0,02	0,04
Al		0,71	0,1	0,11	0,12	0,03	0,2	0,13	0,11	0,29	0,04
Ti		0,5	0,021	0,22	0,19	0,2	0,2	0,68	0,39	0,16	0,07
Nb		0,02	0,85	0,83	0,82	1	2,5	0,01	1,83	0,01	1,53
Mo		0,05	0,02	-	-	4	4	0,01	0,01	0,02	-
P		0,0044	0,004	0,003	0,004	0,015	0,004	0,003	0,004	0,004	0,008
Pb		-	0,007	-	-	-	-	0,005	0,01	0,009	-
Co		-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Mg		-	0,004	0,003	0,001	0,004	0,001	0,0008	0,0014	0,001	0,002
B		-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
N		-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
O		-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
C		0,026	0,02	0,02	0,03	0,02	0,02	0,029	0,005	0,017	0,03
Zr		0	0,015	0,01	0,008	0,006	0,007	0	0	0	0,003
Hf		-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Test	2,0%	2,0%	1,5%	0,5%	3,0%	10,0%	2,5%	2,5%	4,0%	0,5%	
Normalisé	0,91	0,91	0,94	1,00	0,84	0,00	0,88	0,88	0,78	1,00	
Cr	STF	29,53	30,18	28,91	30,06	29	26,8	29,92	30,34	29,94	29,23
Fe		8,33	8,2	10,53	8,22	8,35	9,04	8,31	8,18	8,8	9,99
Mn		0,68	0,8	0,24	0,8	0,05	2,64	0,19	0,79	0,9	0,04
Si		0,12	0,2	0,15	0,09	0,08	0,39	0,11	0,21	0,13	0,01
S		0,0007	0,001	0,001	0,001	0,001	0,012	0,0013	0,0014	0,001	0,001
Cu		0,03	-	0,02	0,02	0,06	0,01	0,059	0,06	0,01	0,02
Al		0,13	0,04	0,66	0,11	0,24	0,1	0,07	0,218	0,75	0,65
Ti		0,19	0,2	0,55	0,224	0,34	0,13	0,193	0,188	0,68	0,55
Nb		0,78	2,48	0,03	0,83	2,46	2,53	2,57	2,49	0,01	0,01
Mo		0,02	4	0,04	0,01	1,87	0,01	3,83	4,01	0,01	0,04
P		0,004	0,004	0,004	0,003	0,003	0,006	0,0001	0,009	0,003	0,0019
Pb		-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Co		-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Mg		0,001	0,001	-	-	-	-	-	-	-	-
B		-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
N		-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
O		-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
C		0,014	0,021	0,026	0,02	0,026	0,012	0,026	0,024	0,029	0,025
Zr		0,0006	0,007	0	0	0	0	0	0	0	0
Hf		-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Test	2,5%	0,5%	8,0%	2,0%	4,0%	9,0%	3,5%	15,0%	16,5%	2,0%	
Normalisé	0,88	1,00	0,53	0,91	0,78	0,47	0,81	0,00	0,00	0,91	

Figure 7.1. Composition et valeurs du test (absolue et normalisée) des alliages relatifs au 2.2.5. Essais STF : seuil de déformation pour les premières fissures (28, 31, 33, 40, 49, 53, 56).

Cr	30,06	29,6	30	28,43	29,5	27	29,18		28,91	29,2
Fe	8,22	9	9,15	12,3	8,79	2,55	8,43		9,03	9,01
Mn	0,8	0,68	1,21	0	3,51	0,01	3,66		0,25	0,95
Si	0,09	0,03	0,11	0	2,51	2,29	0,39		0,14	0,16
S	0,015	0,001	0,001	0,001	0,0023	0,0019	0,005		-	0,0011
Cu	0,02	0,05	0,01	-	0,05	0,01	-		-	-
Al	0,11	0,05	0,2	0,017	0,13	0,05	-		0,67	0,075
Ti	0,224	0,2	0,39	0,002	0,18	0,3	-		0,56	0,25
Nb	0,84	1	1,83	0,005	2,51	2,29	1,56		0,01	0,94
Mo	-	4	0,01	0,005	3,51	0,01	-		-	-
P	0,02	0,015	0,004	-	0,002	0,0019	0,006		0,003	0,00074
Pb	-	-	-	-	-	-	-		-	-
Co	-	-	-	-	-	-	-		0,004	0,0022
Mg	-	0,004	-	-	-	-	-		0,001	0,0026
B	-	-	-	-	-	-	-		0,01	0,0128
N	-	-	-	-	-	-	-		-	-
O	-	-	-	-	-	-	-		0,02	0,023
C	0,02	0,02	0,005	0,043	0,023	0,043	0,029		-	0,0032
Zr	0	0,006	0	0	0	0	0		-	-
Hf	-	-	-	0,24	-	-	-		-	-
Test	2,0%	5,0%	1,0%	4,0%	4,0%	3,0%	5,0%		0,95	1,7
Normalisé	0,91	0,72	0,97	0,78	0,78	0,84	0,72		0,03	0,06
Cr	28,44	29,19	29,3	29,9	28,8	29,99	28,91	29,21	29,9	28,5
Fe	9,71	9,03	8,75	9,48	8,5	7,83	9,07	8,97	9,09	8,87
Mn	2,98	0,24	2,97	2,89	0,22	0,76	0,16	0,24	2,77	0,93
Si	0,14	0,19	0,1	0,21	0,11	-	0,16	0,13	-	0,027
S	0,005	-	0,002	0,0039	0,0006	0,0007	-	0,001	-	0,00012
Cu	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Al	1	0,52	0,7	0,038	0,75	-	0,77	0,68	0,05	0,07
Ti	0,01	0,57	0,34	0,3	0,3	0,22	0,28	0,47	0,17	0,25
Nb	0,03	0,01	2,51	1,70	0,03	0,83	0,01	0,01	1,46	0,92
Mo	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
P	0,002	0,008	0,002	0,004	0,0004	0,003	0,004	0,002	-	0,00012
Pb	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Co	-	-	0,002	2,5E-05	0,0001	-	0,01	0,002	-	0,00043
Mg	0,001	0,001	0,0003	0,0012	0,0004	-	0,001	0,0003	0,004	0,0019
B	0,011	-	0,011	0,0281	0,0157	-	0,0098	0,001	0,0136	0,0085
N	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
O	0,05	0,02	0,033	0,014	0,038	0,016	0,02	0,027	0,019	0,02
C	0,01	-	0,01	0,0013	0,0039	-	-	0,01	0,006	0,0096
Zr	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Hf	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Test	1,7	1,75	2	2,9	6,85	8,8	10,35	13,55	19,5	27
Normalisé	0,06	0,06	0,07	0,10	0,23	0,29	0,35	0,45	0,65	0,90

Figure 7.2. Composition et valeurs du test (absolue et normalisée) des alliages relatifs au 2.2.5. Essais STF : seuil de déformation pour les premières fissures. Maquette de soudage de Young : nombre de fissures par inches carrés (19, 28, 31, 33, 40, 49, 53, 56).

Cr	28,82	28,9	33,28	PVR	30,3	29,19	28,97	29,64	29,49	
Fe	9,92	9,92	8,91		7,24	9,99	8,86	9,03	8,79	
Mn	0,26	0,27	0,15		0,29	0,24	0,24	0,6	0,3	
Si	0,3	0,13	-		0,15	0,12	0,14	0,03	0,11	
S	0,005	0,004	0,003		0,002	0,001	-	-	-	
Cu	-	-	-		-	-	-	-	-	
Al	0,98	0,74	0,6		0,22	0,72	0,69	0,01	0,13	
Ti	0,01	0,01	0,51		0,25	0,51	0,58	0,2	0,18	
Nb	0,02	0,02	0,01		2,52	-	0,01	1,03	2,52	
Mo	-	-	-		3,45	0,01	0,01	4	3,51	
P	0,002	0,002	0,002		0,0055	0,003	-	-	-	
Pb	-	-	-		-	-	-	-	-	
Co	-	-	-		-	-	-	-	-	
Mg	0,001	0,001	0,001		-	-	-	-	-	
B	0,003	0,015	0,0022		-	-	-	-	-	
N	-	-	-		-	-	-	-	-	
O	0,04	0,05	0,02		-	-	-	-	-	
C	0,01	0,01	-		0,024	0,021	0,02	0,02	0,023	
Zr	-	-	-		-	-	-	-	-	
Hf	-	-	-		-	-	-	-	-	
Test	30	30	30	0	90	10	2	0		
Normalisé	1,00	1,00	1,00	0	1	1	0,2	0		
Cr	29,59	29,78	29,76	29,87	29,93	29,15	30,06	30,04	29,06	28,92
Fe	10,13	10,15	10,12	10,14	10,14	11,05	8,22	10,31	9,9	10
Mn	0,27	0,27	0,26	0,27	0,26	0,25	0,08	0,08	0,10	0,01
Si	0,15	0,17	0,19	0,18	0,22	0,28	0,09	0,03	0,11	0,01
S	0,0009	0,0018	0,0031	0,0011	0,0013	0,0016	0,001	0,001	0,0005	0,0008
Cu	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Al	0,216	0,214	0,224	0,248	0,235	0,092	0,11	0,1	0,21	0,09
Ti	0,406	0,423	0,421	0,42	0,41	0,17	0,224	0,21	0,39	0,09
Nb	-	-	-	-	-	-	-	0,83	0,05	-
Mo	0,02	0,02	0,02	0,02	0,02	0,039	0,01	0,02	0,01	0,01
P	0,0021	0,0019	0,002	0,0034	0,0043	0,005	0,002	0,002	0,002	0,0009
Pb	0,05	0,05	0,05	0,05	0,05	0,024	0,027	0,007	-	0,02
Co	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Mg	0,00001	0,00002	0,00001	0,00001	0,00001	0,00001	-	-	-	-
B	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
N	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
O	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
C	0,02	0,022	0,022	0,019	0,018	0,02	0,02	0,02	0,01	0,0019
Zr	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Hf	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Test	220	350	455	345	435	505	280	303	170	100
Normalisé	0,37	0,69	0,90	0,68	0,86	1,00	0,55	0,60	0,34	0,20

Figure 7.3. Composition et valeurs du test (absolue et normalisée) des alliages relatifs au 2.2.5. Maquette de soudage de Young : nombre de fissures par inches carrés. Essais PVR : nombre de fissures à une certaine position de l'éprouvette. DTR par Varestraint : largeur de la DTR (en kelvin) estimée à partir d'essais Varestraint (19, 68).

Cr	29,63	29,55	29,89	29,68		28,5	29,1	27,4	27,4	29,13
Fe	10,74	10,59	10,12	10,97		10	10,3	9,6	9,4	10,08
Mn	0,24	0,08	0,08	0,08		-	0,28	0,3	0,26	0,25
Si	0,00	0,08	0,05	0,09		-	-	-	-	0,13
S	0,0036	0,0037	0,0002	0,0001		-	-	-	-	-
Cu	-	-	-	-		-	-	-	-	0,01
Al	0,13	0,21	0,16	0,21		-	0,45	0,67	0,69	0,71
Ti	0,22	0,36	0,35	0,39		-	0,48	0,45	0,5	0,51
Nb	-	-	-	-		-	-	2,3	2,4	0,01
Mo	0,0046	0,0014	0,0039	0,023		-	-	4,4	3,2	0,01
P	0,002	0,0009	0,003	0,002		-	-	-	-	-
Pb	0,0004	0,0004	0,0006	0,015		-	-	-	-	-
Co	-	-	-	-		-	-	-	-	-
Mg	0,00001	0,0001	0,00019	0,00024		-	-	-	-	-
B	-	-	-	-		-	-	-	-	-
N	-	-	-	-		-	-	-	-	-
O	-	-	-	-		-	-	-	-	-
C	0,02	0,008	0,01	0,015		-	0,027	0,022	0,025	0,03
Zr	-	-	-	-		-	-	-	0,36	-
Hf	-	-	-	-		-	-	-	-	-
Test	475	405	290	135		3,5%	7%	22%	20%	4%
Normalisé	0,94	0,80	0,57	0,27		1	0,79	0	0,11	0,97
Cr	29,28	29,13	30,06	29,15	29,55	29,68				
Fe	9,12	10,08	8,22	11,05	10,59	10,97				
Mn	0,17	0,25	0,8	0,25	0,076	0,076				
Si	0,08	0,13	0,09	0,28	0,078	0,086				
S	0,001	0,001	0,015	0,0016	0,0037	0,0001				
Cu	0,01	0,01	0,02	-	-	-				
Al	0,22	0,71	0,11	0,092	0,21	0,21				
Ti	0,3	0,51	0,224	0,17	0,36	0,39				
Nb	0,01	0,01	0,84	-	-	-				
Mo	0,01	0,01	-	0,039	0,0046	0,0039				
P	0,005	0,003	0,02	0,005	0,0009	0,002				
Pb	-	-	-	-	-	-				
Co	-	-	-	0,024	0,0004	0,015				
Mg	-	-	-	-	-	-				
B	-	-	-	0,0001	0,0012	0,0024				
N	-	-	-	-	-	-				
O	-	-	-	-	-	-				
C	0,025	0,027	0,02	0,02	0,008	0,015				
Zr	-	-	-	-	-	-				
Hf	-	-	-	-	-	-				
Test	37%	40%	20%	16%	22%	30%				
Normalisé	0,13	0,00	0,83	1,00	0,75	0,42				

Figure 7.4. Composition et valeurs du test (absolue et normalisée) des alliages relatifs au 2.2.5. DTR par Varestraint : largeur de la DTR (en kelvin) estimée à partir d'essais Varestraint. STF in situ : seuil de déformation pour les premières fissures. Réduction de section à rupture : minimum de la réduction de section à rupture dans la DTR (26, 40, 51, 67, 68, 89).

7.2 Annexes aux matériaux et méthodes

7.2.1 Tableau des essais mécaniques

Tableau 7.1. Résultats des essais mécaniques et comparaison au RCC-M.

	Mesures EDF	Mesures AREVA	Norme RCC-M	Mesures EDF	Mesures AREVA	Norme RCC-M
Nuance	152			52M		
Température	Ambiante			Ambiante	AW ¹⁸ ambiante	Ambiante
Rp_{0,2} (MPa)	457	412	>240	402	465	>240
Rm (MPa)	643	654	550 < x < 800	601	667	550 < x < 800
A (%)	30	43	>30	33	47	>30
Z (%)	48	48		62	59	
E (GPa)	143	141		196	/	
Température	300°C	360°C	350°C	300°C	PWHT ¹⁹ ambiante	350
Rp_{0,2} (MPa)	389	321	190	319	377	190
Rm (MPa)	542	536	550 < x < 800	482	587	/
A (%)	29	42	30	36	34	/
Z (%)	50	48		67	59	/
E (GPa)	130	132		191		/

¹⁸ As-welded : état brut de solidification après dépôt par soudage TIG

¹⁹ Post Weld Heat Treatment : état après traitement thermique de détentionnement

7.3 Annexe : modèle numérique de l'essai RCT

On présente dans cette section le modèle numérique utilisé pour simuler le comportement thermomécanique de l'essai RCT par la méthode des éléments finis. Les différentes étapes de prétraitement des paramètres de l'essai, de calcul et de post-traitement ont été réalisées à l'aide des modules de la plateforme Salome-Meca.

7.3.1 Maillage

La simulation de l'essai RCT est réalisée sur un maillage qui couvre un domaine 3D composé de l'éprouvette de test, aux dimensions de 50×40×7 mm, de son support, aux dimensions de 200×60×6 mm, ainsi que les cordons de soudage de l'éprouvette sur la plaque support. Ce maillage est composé de 31 128 éléments isoparamétriques hexaédriques. En considérant une interpolation linéaire pour la résolution du problème thermique et une interpolation quadratique pour la résolution du problème mécanique, on obtient respectivement 24 494 nœuds et 94 382 nœuds. La figure 7.5 illustre le maillage considéré dans cette étude et permet de distinguer les trois niveaux de raffinement appliqués dans ce maillage avec un maillage particulièrement fin dans la zone de fusion. On notera que l'axe (O,X) du repère coïncide avec l'axe de soudage et que l'axe (O,Y) coïncide avec la direction transverse au soudage.

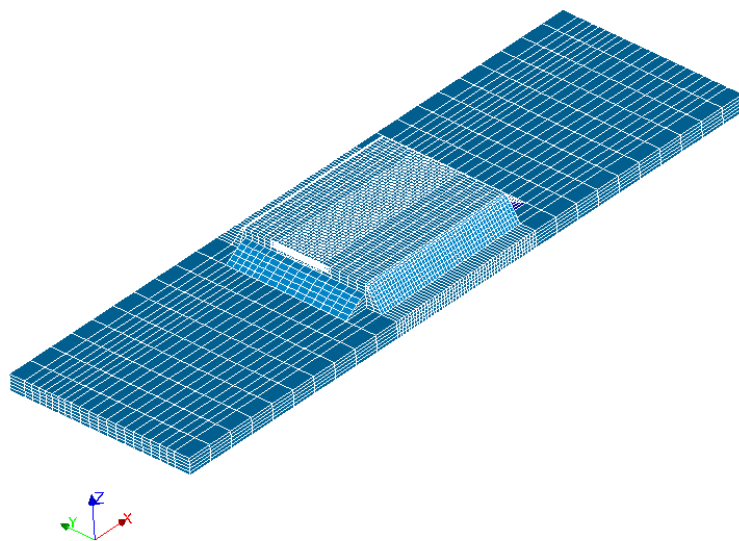


Figure 7.5. Maillage considéré pour la simulation des éprouvettes de l'essai RCT.

7.3.2 Conditions aux limites et chargement du problème thermique

7.3.2.1 Conditions aux limites

Des conditions d'échange par convection avec l'extérieur et de rayonnement sont appliquées sur la surface extérieure de l'ensemble éprouvette + support. Les échanges convectifs sont caractérisés par le coefficient d'échange h et la température du milieu extérieur notée T^{ext} . Le rayonnement de la pièce est caractérisé par la constante d'émissivité ε et par la constante de Stefan-Boltzmann σ . Le tableau 7.2 résume les valeurs numériques affectées aux paramètres qui caractérisent les conditions aux limites du problème thermique.

Tableau 7.2. Paramètres caractérisant les conditions aux limites du problème thermique.

Paramètres	Valeurs
T^{ext}	25 °C
h	$h = 15.10^{-6} W.mm^{-2}.^{\circ}K^{-1}$
ε	0,2
σ	$\sigma = 5,67.10^{-14} W.mm^{-2}.^{\circ}K^{-4}$

7.3.2.2 Chargement : source de chaleur du procédé de soudage

Le chargement du problème thermique est constitué par l'apport de chaleur engendré par l'opération de soudage qui est modélisé par une source thermique « dite » équivalente. Cette source de chaleur est représentée par un terme source dans l'équation de bilan du problème thermique. Ce terme source est un flux de chaleur volumique dont l'intensité varie en suivant une répartition spatiale et temporelle qui permet de reproduire au mieux l'apport de chaleur issue d'un procédé de soudage. Dans notre cas, on considère une source de chaleur de type Goldak caractérisée par une répartition spatiale gaussienne de son intensité.

La source de chaleur est mobile, avec un déplacement rectiligne à vitesse constante V , suivant l'axe (O,X) du repère cartésien (O,X,Y,Z) lié à la pièce soudée. Dans cette configuration, et en supposant que l'instant initial est égal à zéro,

l'intensité de la source $q(X, Y, Z, t)$ a une répartition gaussienne définie par la formule suivante :

$$q(X, Y, Z, t) = \begin{cases} \frac{Q_0 \cdot 12 \cdot \sqrt{3}}{(a_r + a_f) \cdot b \cdot c \cdot (\sqrt{\pi})^3} \cdot \exp \left[-\frac{3(X-X_0)^2}{a_f^2} - \frac{3(Y-Y_0)^2}{b^2} - \frac{3(Z-Z_0)^2}{c^2} \right], & X < X_0(t) \\ \frac{Q_0 \cdot 12 \cdot \sqrt{3}}{(a_r + a_f) \cdot b \cdot c \cdot (\sqrt{\pi})^3} \cdot \exp \left[-\frac{3(X-X_0)^2}{a_r^2} - \frac{3(Y-Y_0)^2}{b^2} - \frac{3(Z-Z_0)^2}{c^2} \right], & X > X_0(t) \end{cases}$$

Avec a_f et a_r respectivement le rayon « avant » et le rayon « arrière » de l'ellipsoïde, Q_0 est la puissance transmise, qui est donnée par $Q_0 = \eta \cdot U \cdot I$, où η est le rendement de la source, U la tension, I l'intensité du procédé et X_0 la position de la torche de soudage définie par $X_0(t) = X_0(t_0) + V(t - t_0)$, où t_0 est l'instant de démarrage du procédé. La figure 7.6 décrit la forme de cette source de chaleur avec les différents paramètres.

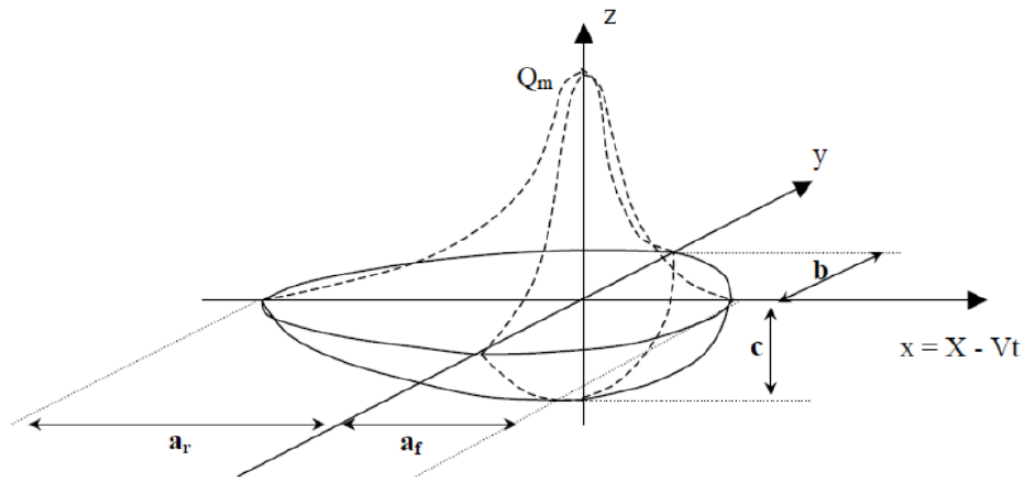


Figure 7.6 : Répartition spatiale de la puissance de la source thermique équivalente.

Les paramètres inconnus de ce modèle, à savoir : a_f , a_r , b , c et η , sont déterminés par recalage à partir des mesures de température obtenues grâce aux thermocouples instrumentés lors des essais expérimentaux. Cette étape de calage du modèle thermique est réalisée avec le module RSTE de la plateforme logiciel Salome-Meca. Le résultat de ce calage est illustré dans la figure 7.7.

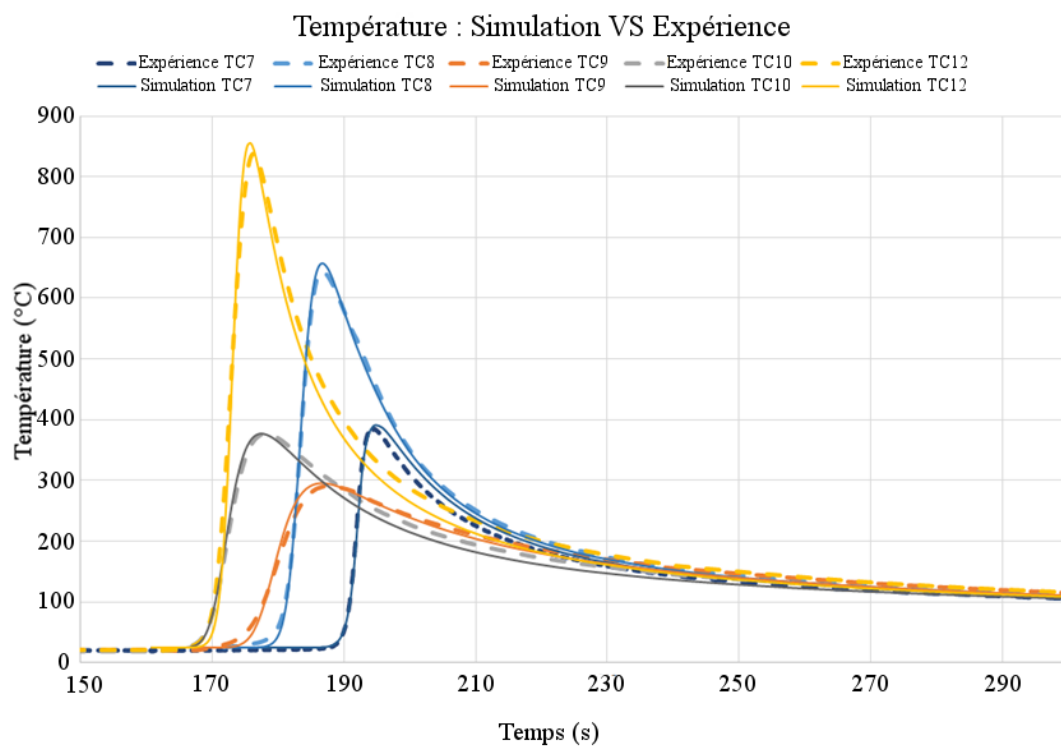


Figure 7.7. Évolution de la température à la position des thermocouples.

Le tableau 7.3 récapitule les paramètres de la source thermique considérés pour la simulation de l'essai RCT.

Tableau 7.3. Paramètres de la source thermique pour la simulation de l'essai RCT.

Paramètres	Valeurs
V	$1,8333 \text{ mm. s}^{-1}$
U	10 V
I	120 A
η	$0,67$
a_f	$2,1 \text{ mm}$
a_r	$6,5 \text{ mm}$
b	$4,1 \text{ mm}$
c	$1,2 \text{ mm}$

On notera que la valeur de $X_0(t_0) = 8 \text{ mm}$ (sachant que l'origine du repère (O, X, Y, Z) est sur un des deux bords de l'éprouvette, perpendiculaires à l'axe de soudage). Cette valeur est constante pour les deux prépasses de l'essai RCT ainsi que pour les passes de refusions. La valeur de $Z_0(t_0)$ est également constante (elle correspond à la position de la surface supérieure de l'éprouvette suivant l'axe (O, Z)), alors que la valeur de $Y_0(t_0)$ dépend de la passe considérée. Plus précisément, on a :

- $Y_0(t_0) = 15,5 \text{ mm}$ pour la première prépassé ;
- $Y_0(t_0) = 27,5 \text{ mm}$ pour la seconde prépassé ;
- $Y_0(t_0) = 21,5 \text{ mm}$ pour les passes « centrales » de refusions.

7.3.3 Conditions aux limites et chargement du problème mécanique

Les conditions aux limites du problème mécanique se résument à l'encastrement de la surface inférieure de la plaque support.

Le chargement du problème mécanique est la déformation thermique due à la variation de température engendrée par le procédé de soudage.

7.3.4 Paramètres matériau

Les résultats présentés dans la partie 5.5 ont été obtenus en supposant que l'éprouvette est en Inconel 52M et que la plaque support est en acier 316L. Les paramètres matériau du modèle numérique sont par la suite présentés en distinguant les valeurs affectées à l'éprouvette de celles affectées à la plaque support.

7.3.4.1 Paramètres du problème thermique

Les paramètres thermophysiques du problème thermiques sont la capacité calorifique volumique (cf. tableau 7.5) et la conductivité thermique (cf. tableau 7.4). Les paramètres considérés sont donnés dans les tableaux suivants.

Tableau 7.4. Conductivité thermique considérée en fonction de la température pour l'alliage 52M.

T (°C)	$\lambda(W.mm^{-1}.^{\circ}C^{-1})$
21	11,8E-3
315	17,3E-3
482	20,4E-3
649	23,7E-3
760	25,8E-3
870	27,9E-3
1204	33,9E-3
1316	36,2E-3

Tableau 7.5. Capacité calorifique volumique considérée en fonction de la température pour l'alliage 52M.

T (°C)	$\rho C(J.mm^{-3}.^{\circ}C^{-1})$
20	3.663E-3
100	3.836E-3
200	4.009E-3
300	4.141E-3
400	4.281E-3
500	4.422E-3
600	4.768E-3
700	4.908E-3
800	5.040E-3
900	5.181E-3
1204	6.047E-3
1316	6.319E-3

Tableau 7.6. Conductivité thermique et capacité calorifique volumique considérées en fonction de la température pour l'acier 316L (plaque support).

T (°C)	$\lambda(W \cdot mm^{-1} \cdot ^\circ C^{-1})$	$\rho C(J \cdot mm^{-3} \cdot ^\circ C^{-1})$
20	14.1E-3	4.059E-3
100	15.2E-3	4.144E-3
200	16.7E-3	4.240E-3
300	18.1E-3	4.339E-3
400	19.5E-3	4.438E-3
500	20.9E-3	4.537E-3
600	22.4E-3	4.636E-3
700	23.8E-3	4.743E-3
800	25.2E-3	4.842E-3
900	26.7E-3	4.941E-3
1000	28.1E-3	5.040E-3
1100	29.5E-3	5.139E-3
1200	30.9E-3	5.238E-3
1300	32.4E-3	5.337E-3
1400	33.8E-3	5.436E-3

7.3.4.2 Paramètres du problème mécanique

Les paramètres thermomécaniques sont liés au choix de la loi de comportement. Dans cette étude, on modélise la réponse mécanique de la plaque support par un comportement thermoélastique et la réponse de l'éprouvette par une loi de comportement thermoélasto viscoplastique à écrouissage mixte de type Chaboche. Les paramètres considérés sont explicités dans les tableaux suivants (tableau 7.7, tableau 7.8, tableau 7.9 et tableau 7.10). α est le coefficient de dilatation thermique, ν le coefficient de Poisson et E le module d'Young. La loi d'identification des paramètres mécaniques n'ayant pas pu être faite, nous avons pris les paramètres mécaniques d'un alliage 82, supposés proches.

Tableau 7.7. Paramètres thermoélastiques de l'acier 316L (plaque support).

T (°C)	α (°C ⁻¹)	ν	E (MPa)
20	1,46E-05	0,3	195 600
100	1,54E-05	0,3	191 200
200	1,62E-05	0,3	185 700
300	1,69E-05	0,3	179 600
400	1,74E-05	0,3	172 600
500	1,78E-05	0,3	164 500
600	1,81E-05	0,3	155 000
700	1,84E-05	0,3	144 100
800	1,87E-05	0,3	131 400
900	1,90E-05	0,3	116 800
1000	1,93E-05	0,3	100 000
1100	1,95E-05	0,3	80 000
1200	1,98E-05	0,3	57 000
1300	2,00E-05	0,3	30 000
1400	2,02E-05	0,3	20 000

Tableau 7.8. Paramètres thermoélastiques de l'Inconel 82 (éprouvette).

T (°C)	α (°C ⁻¹)	ν	E (MPa)
20	12.40E-6	0,3	213 745
93	13.00E-6	0,3	208 229
148	13.30E-6	0,3	206 161
204	13.60E-6	0,3	203 403
260	13.90E-6	0,3	199 955
315	14.10E-6	0,3	197 887
371	14.30E-6	0,3	194 439
426	14.50E-6	0,3	190 302
482	-	0,3	186 165
537	14.90E-6	0,3	182 028
600	15.30E-6	0,3	180 000
700	15.80E-6	0,3	172 000
800	16.10E-6	0,3	164 000
900	16.40E-6	0,3	154 000
1000	17.00E-6	0,3	143 000
1150	17.00E-6	0,3	115 000
1260	17.00E-6	0,3	78 258
1315	17.00E-6	0,3	39 302

Tableau 7.9. Paramètres de l'érouissage mixte, Inconel 82 (comportement plastique de l'éprouvette).

T (°C)	Érouissage isotrope			Érouissage cinématique			
	R_o (MPa)	R_∞ (MPa)	b	C_1 (MPa)	C_2 (MPa)	γ_1 (MPa)	γ_2 (MPa)
20	135	374	2,4	96902	6017	588	115
200	110	398	1,8	81072	4054	588	115
400	115	470	1,8	62940	3450	588	115
600	140	419	3,8	25626	3082	588	115
700	140	196	18	20000	3000	588	115
850	126	125	0	12000	3000	588	115
1000	62	61	0	3000	1000	588	115
1050	50	50	0	0	0	588	115
1200	10	10	0	0	0	588	115

Tableau 7.10. Paramètres du comportement visqueux, Inconel 82 (éprouvette).

T (°C)	K (MPa. s ^N)	N
20	16	2
300	24	2
600	60	5
800	139	5,8
1000	2018	6,5
1200	75	4,05
1250	64	4,02
1300	52	4,42
1340	44	4,22

8 Liste des figures

<i>Figure 1.1 - Schéma d'un réacteur à eau pressurisée.....</i>	<i>1</i>
<i>Figure 2.1. Schéma de la formation de la microstructure lors de la solidification, adapté de (1).....</i>	<i>5</i>
<i>Figure 2.2. Schéma de la fissuration à chaud par solidification a) (adapté de (1) et par liquation b).....</i>	<i>7</i>
<i>Figure 2.3. Exemple de résultats obtenus avec des essais de ductilité à chaud par traction à rupture, adapté de (21), essais réalisés au refroidissement sur un alliage 690 et son métal d'apport 52.....</i>	<i>10</i>
<i>Figure 2.4. Exemple de résultats obtenus après une campagne d'essais STF menée sur l'alliage 52, adapté de (30).</i>	<i>11</i>
<i>Figure 2.5. Schéma de l'essai Varestraint, adapté de la norme ISO-17641-3 (17).</i>	<i>13</i>
<i>Figure 2.6 : Exemple de la maquette de Young (19).....</i>	<i>15</i>
<i>Figure 2.7 : Schéma de la maquette de soudage utilisée par l'EPRI (20).....</i>	<i>16</i>
<i>Figure 2.8 : Schéma de l'empilement des passes de l'essai de refusions de l'EPRI (20).</i>	<i>16</i>
<i>Figure 2.9. Sensibilité à la DDC en fonction de la somme S+P et de la somme Nb+Mo. Résultats issus de a) (28, 31–33, 40, p. 201; 53, 56) ; b) (51, 67) ; c) (19) – Les courbes en pointillés servent de guides pour les yeux.</i>	<i>19</i>
<i>Figure 2.10. Sensibilité à la DDC en fonction de la somme S+P et de la somme Nb+Mo. Résultats issus de a) (60, 62) ; b) (68) ; c) (21, 25, 40) – Les courbes en pointillés servent de guides pour les yeux.</i>	<i>20</i>
<i>Figure 2.11. Schéma de la ductilité en fonction de la température, adapté de (54).</i>	<i>23</i>
<i>Figure 2.12. Exemple de glissement des joints de grains observé autour d'une fissure de DDC (40).....</i>	<i>24</i>

- Figure 2.13. Sensibilité à la DDC en fonction de la tortuosité des joints de grains, adapté de (56) (la température du minimum de ductilité varie en fonction des alliages). 26*
- Figure 2.14. Schéma de la réduction du glissement des joints de grains par la précipitation intergranulaire et la tortuosité induite par les carbures, adapté de (44). 28*
- Figure 2.15. Concentration intergranulaire de soufre à l'équilibre dans le nickel en fonction de la température, tracée à partir de l'équation 2.1 pour deux teneurs en volume X_v . Les paramètres retenus sont ceux donnés par Allart et coll. (81) : $\Delta G = -93,9 \text{ kJ.mol}^{-1}$, $X_{max} = 97\%$ d'une monocouche, soit $65,8 \text{ ng.cm}^{-2}$ soit $1,26 \times 10^{15}$ atomes par centimètre carré. 32*
- Figure 2.16. Exemples de cinétiques de ségrégation intergranulaire du soufre dans le nickel (concentration intergranulaire de soufre en fonction de la racine carrée du temps). L'encadré a) représente un calcul à 700°C pour deux teneurs volumiques en soufre. L'encadré b) représente un calcul pour une même teneur en soufre mais à deux températures différentes. Le coefficient de diffusion du soufre est calculé à l'aide de l'équation (2.2) avec $D_0 = 1,4 \text{ cm}^2.\text{s}^{-1}$ et $Q = 218,6 \text{ kJ.mol}^{-1}$ (83). 34*
- Figure 2.17. Creux de ductilité pour différentes teneurs en S pour des alliages Fe-36%Ni - adaptés de (87)– les lignes sont des guides pour les yeux. 35*
- Figure 2.18. DTR mesurée lors d'essais spot-Varestraint en fonction de la teneur en soufre et phosphore (la meilleure corrélation étant obtenue en fonction de la quantité P+1,2S) adapté de (68). 36*
- Figure 2.19. Concentration en soufre aux joints de grains mesurée par WDS et spectrométrie Auger (AES) en fonction : a) du temps pour trois vitesses de déformation et b) du temps et de la déformation plastique pour deux vitesses de déformation pour du nickel contenant 5,4 ppm en masse de soufre. La température est de 550°C (91). 37*

<i>Figure 2.20. Représentation schématique de la fissuration pilotée par accumulation de dislocations telles que proposée par Qian et al., adapté de (93).</i>	38
<i>Figure 3.1. Vue de la maquette de soudage de l'alliage 152 en cours de réalisation, image AREVA.</i>	43
<i>Figure 3.2. Schéma de fabrication des blocs d'alliages industriels.</i>	44
<i>Figure 3.3. Observation sur coupe polie au microscope optique après attaque à l'acide oxalique de l'alliage 152 dans le plan de la surface du bloc à l'état de réception.</i>	48
<i>Figure 3.4. Cartographies des éléments Fe, Cr et Nb obtenues par microsonde électronique de Castaing sur l'alliage 152, et photographie MEB en électrons rétrodiffusés.</i>	49
<i>Figure 3.5. Schéma des éprouvettes utilisées pour les essais de traction à rupture sur simulateur thermomécanique.</i>	52
<i>Figure 3.6. Schéma des conditions thermomécaniques utilisées pour les essais de traction à chaud, les gros points marquent les positions des ruptures de pente.</i> 53	
<i>Figure 3.7. Exemple de mesure de la surface d'un faciès de rupture, alliage 52M, essai à 850°C.</i>	54
<i>Figure 3.8. Exemple de mesure de la part de rupture transgranulaire sur un faciès de rupture - alliage 52M rompue à 1050°C, les zones transgranulaires sont entourées en rouge.</i>	55
<i>Figure 3.9. Schéma de l'essai semi-Varestraint utilisé à EDF.</i>	56
<i>Figure 3.10. Schéma des types de fissurations possible lors d'un essai Varestraint.</i>	58
<i>Figure 3.11. Représentation du déplacement du faisceau à travers un joint de grains, a) et d) - schématisation du déplacement relatif du joint par rapport à une zone d'interaction carrée, b) et e) – schématisation du signal mesuré, c) et f).</i> .	60

<i>Figure 4.1. Résultats des essais de ductilité à chaud pour les alliages 152 a) et 52M b). La ligne discontinue est un guide pour les yeux. L'essai de traction à la température considérée est précédé par un passage à $T_{\text{solidus}} - 100^{\circ}\text{C}$ Les croix correspondent à la réduction de section à rupture d'essais de traction conventionnelle. Part de rupture transgranulaire des faciès de rupture en fonction de la température pour les alliages 152 c) et 52M d).</i>	66
<i>Figure 4.2. Photographies MEB de faciès de rupture d'éprouvettes rompues à : a) 500°C, b) 1000°C et c) 1280°C, alliage 52M, électrons secondaires.</i>	67
<i>Figure 4.3. Photographies MEB de faciès de rupture d'éprouvettes rompues à : a) 600°C, b) 900°C et c) 1150°C, alliage 152, électrons secondaires.</i>	68
<i>Figure 4.4. Exemple d'un faciès de rupture à 700°C après passage à 1265°C, alliage 152, électrons secondaires.</i>	71
<i>Figure 4.5. Réduction de section en fonction a) du temps d'attente à 850°C avant traction à 850°C, b) du temps d'attente à 1220°C avant descente vers la température de traction à 850°C – alliage 52M.</i>	72
<i>Figure 4.6. Longueur de fissures cumulée de DDC et de solidification plus liquation pour les essais Varestraint.</i>	74
<i>Figure 4.7. Lien entre déformation appliquée et longueur de fissures cumulée mesurée après essai Varestraint pour l'alliage 152.</i>	75
<i>Figure 4.8. Observation MEB de fissures après essais Varestraint sur l'alliage 152 – électrons secondaires, fissure de solidification.</i>	75
<i>Figure 4.9. Observation MEB de fissures après essais Varestraint sur l'alliage 52M - électrons secondaires, fissure de DDC.</i>	76
<i>Figure 4.10. Schéma du dispositif expérimental pour l'essai de refusions.</i>	79
<i>Figure 4.11. Position des passes à la surface de l'éprouvette de test RCT.</i>	80
<i>Figure 4.12. Position des thermocouples lors de la passe 3 de l'essai sur l'alliage 52M.</i>	81

- Figure 4.13. Longueur de fissures cumulée en fonction du nombre de passes ; la ligne est un guide pour les yeux ; les barres d'erreur représentent deux fois l'écart type sur la mesure de la longueur de fissures cumulée lorsque plusieurs mesures ont été réalisées. 82*
- Figure 4.14. Exemple de l'évolution de différentes fissures en fonction du nombre de refusions, alliage 52M. 82*
- Figure 4.15. a) Longueur maximale et b) longueur moyenne mesurées pour l'alliage 52M sur le test RCT. La ligne est un guide pour les yeux. 83*
- Figure 4.16. Schéma de la projection de la position des thermocouples pour la simulation. Les croix bleues schématisent la position des thermocouples sur la surface de l'éprouvette. Seules les distances au bord droit de l'éprouvette (dans le sens de soudage) sont retenues (croix rouges). 85*
- Figure 4.17. Simulation numérique (ligne pointillée) de la température maximale atteinte en fonction de la position à la surface de l'éprouvette (distance au bord droit de l'éprouvette) lors de l'opération de soudage et comparaison avec les températures maximales mesurées par les thermocouples lors de la passe 4 sur l'alliage 52M. Les cercles correspondent aux températures maximales mesurées par les thermocouples et les carrés correspondent à la température du solidus mesurée par ATD. Les croix rouges désignent la température maximale atteinte à la position des fissures les plus éloignées et les plus proches de la ligne de fusion observées pour la passe 4 sur l'alliage 52M. 85*
- Figure 4.18. Cartographie de la température de surface de l'éprouvette à un instant donné au cours d'une passe de l'essai RCT (a) et profils de température calculé et mesuré par thermocouple au point rouge (b). Il s'agit du deuxième thermocouple le plus proche de la ligne de fusion utilisé sur l'éprouvette de l'alliage 52M. 88*
- Figure 4.19. Déformation plastique cumulée en fin de passes et température maximale atteinte au cours d'une passe, en fonction de la position à la surface de l'éprouvette. L'encadré a) présente les résultats dans la largeur de toute l'éprouvette ; la zone rouge au centre correspond à la zone fondue. L'encadré b)*

représente la moitié de la largeur de l'éprouvette ; les lignes en tirets noirs représentent l'intervalle spatial dans lequel des fissures sont observées. 89

Figure 4.20. Position des points P0, P1 et P2 vis-à-vis de la zone fondue. La ligne rouge foncé marque le bord de la zone fondue. Cartographie de la température maximale atteinte en cours de passe. 90

Figure 4.21. Température pendant une passe de refusions pour les trois points considérés, P0, P1 et P2, le segment vert marque le début du refroidissement.. 90

Figure 4.22. Déformation plastique cumulée pendant la première passe (tirets) et à la cinquième passe (lignes continues) pour les trois points considérés, P0 (lignes noires), P1 (lignes bleues) et P2 (lignes rouges). La ligne verte marque le début du refroidissement. 91

Figure 4.23. Déformation plastique cumulée pendant la cinquième passe pour les trois points considérés, P0, P1 et P2. Pour une meilleure lisibilité, la déformation plastique des points P0 et P2 est lisible sur l'axe de gauche, la déformation plastique cumulée de P1 sur l'axe de droite. La ligne verte marque le début du refroidissement. 92

Figure 4.24. Comparaison du calcul de la température et de la déformation plastique cumulée lors des passes de refusions de l'essai RCT a) et de l'essai « l'EPRI » b) (adapté de (20)). Le calcul est réalisé en un point situé à une distance de la zone fondue telle que la température maximale atteinte est de 1340°C. Alliage 52M. 93

Figure 4.25. Température (pointillés) et contrainte selon la direction \vec{y} pour les trois points P0 (lignes noires), P1 (lignes bleues) et P2 (lignes rouges), à la 1^{er}e (tirets) et 5^e passe (lignes continues). P0 et P2 sont sur la même isotherme, P0 et P1 sont sur la même verticale. La ligne verte marque le début du refroidissement. 95

Figure 4.26. Contrainte selon la direction \vec{y} pour les trois points pour les trois points P0 (lignes noires), P1 (lignes bleues) et P2 (lignes rouges), à la 1^{er}e (tirets) et 5^e passe (lignes continues). P0 et P2 sont sur la même isotherme, P0 et P1 sont sur la même verticale. La ligne verte marque le début du refroidissement..... 96

Figure 5.1. Résultats des essais RCT sur les alliages modèles « base » (11 ppm de carbone et 4,7 ppm de soufre) et « base + S » (16 ppm de carbone et 52 ppm de soufre). a) longueur de fissures cumulée en fonction du nombre de passes de refusions, et b) nombre de fissures en fonction du nombre de passes. Les lignes sont des guides pour les yeux. 103

Figure 5.2. Résultats des essais RCT sur les alliages modèles « base » (11 ppm de carbone et 4,7 ppm de soufre) et « base + C » (404 ppm de carbone et 3,1 ppm de soufre). a) longueur de fissures cumulée en fonction du nombre de passes de refusions, et b) nombre de fissures en fonction du nombre de passes. Les lignes sont des guides pour les yeux. 104

Figure 5.3. Résultats des essais RCT sur les alliages modèles « base » (11 ppm de carbone et 4,7 ppm de soufre), « base + S » (16 ppm de carbone et 52 ppm de soufre), « base + C » (404 ppm de carbone et 3,1 ppm de soufre) et « base + CS » (418 ppm de carbone et 56 ppm de soufre). Longueur de fissures cumulée (a) et nombre de fissures (b) en fonction du nombre de passes. Les lignes sont des guides pour les yeux. 105

Figure 5.4. Rang prédit en fonction du rang observé à l'aide de l'équation 5.1. Le rang correspond au classement des alliages selon de leur sensibilité à la fissuration par chute de ductilité mesurée par l'essai RCT. Plus le rang est élevé, plus l'alliage est sensible. 106

Figure 5.5. Résultats des essais RCT sur les alliages modèles (cf. figure 5.3) et sur l'alliage industriel 52M (130 ppm de carbone, 9,2 ppm de soufre et 0,84% en masse de niobium). Longueur de fissures cumulée en fonction du nombre de passes. Les lignes sont des guides pour les yeux. 107

Figure 5.6. Rang prédit en fonction du rang observé à l'aide de l'équation 5.2. Le rang correspond au classement des alliages en fonction de leur sensibilité à la fissuration par chute de ductilité mesurée par l'essai RCT. Plus le rang est élevé, plus l'alliage est sensible. 108

Figure 5.7. Résultats des essais RCT sur les alliages modèles (cf. figure 5.3) et sur les alliages industriels 52M (130 ppm de carbone, 9,2 ppm de soufre et 0,84% en masse de niobium) et 152 (370 ppm de carbone, 51 ppm de soufre et 2,1% en

masse de niobium). Longueur de fissures cumulée en fonction du nombre de passes. Les lignes sont des guides pour les yeux..... 108

Figure 5.8. Températures maximales atteintes calculées à la surface de l'éprouvette en fonction de la distance au bord de la ligne de fusion (position dans la largeur perpendiculaire au sens de soudage). Les températures maximales enregistrées par les thermocouples au cours d'une passe sont reportées pour chaque alliage. Les positions de bords des bains fondus (les lignes de fusion) sont également placées sur le graphe. La zone fondue est schématisée par le rectangle rose. La position moyenne de la zone fissurée (de gauche) est représentée par la ligne et les croix rouges..... 110

Figure 5.9. Observations au MEB par électrons secondaires, à trois grossissements différents, d'un faciès de rupture d'une fissure de l'essai RCT sur l'alliage « base + S » après quatre passes..... 112

Figure 5.10. Exemples de micrographies sur coupe polie de l'alliage « base + S » après un essai RCT (quatre passes) à trois grossissements. Observation au microscope optique après attaque à l'acide oxalique..... 113

Figure 5.11. Exemples de micrographies sur coupe polie de l'alliage « base + CS » après un essai RCT (passe huit) à quatre grossissements. Observation au microscope optique après attaque à l'acide oxalique. 114

Figure 5.12. Images MEB d'une coupe polie de l'alliage « base + S » après RCT (quatre passes)..... 115

Figure 5.13. Exemple de l'évolution d'une zone fissurée pour l'alliage modèle « base + CS » pour les passes 3 à 6. Les ellipses orange donnent l'exemple d'une fissure qui se forme entre la passe 3 et la passe 4. Les ellipses vertes montrent un exemple d'une fissure qui se referme partiellement entre la passe 4 et la passe 5, et une autre entre la passe 5 et la passe 6..... 116

Figure 5.14. Exemple de l'évolution d'une zone fissurée pour l'alliage modèle « base + S » pour les passes 2 à 4. Les ellipses vertes montrent une fissure qui se referme petit à petit, de la passe 2 à 3 et de la passe 3 à 4. 117

Figure 5.15. Longueur moyenne des fissures en fonction du nombre de passes et nombre de fissures pour les alliages modèles et l'alliage 52M. Les lignes sont des guides pour les yeux. La longueur moyenne des fissures et le nombre de fissures augmentent avec le nombre de passes. Pour les alliages « base » et « base + S » il se peut qu'un palier en nombre de fissures ait été atteint..... 118

Figure 5.16. Exemple d'un joint de grains dans l'échantillon témoin de nickel à 5,4 ppm de soufre, à trois grossissements. Sur l'encadré c), il est possible de voir les premier et dernier points de la ligne d'analyse, ainsi que le point du milieu. 120

Figure 5.17. Profils de concentration acquis par analyse WDS à travers treize joints de grains, sur une coupe polie de l'échantillon témoin de nickel à 5,4 ppm de soufre (100 jours à 550°C). Chaque point correspond à un temps d'analyse de 60 s..... 122

Figure 5.18. Concentrations apparentes en soufre aux joints de grains pour les treize joints analysés par WDS sur l'échantillon de nickel témoin. 123

Figure 5.19. Analyses MEB+WDS et STEM+EDS sur un même joint de grains de l'échantillon témoin de nickel. a) et b) sont des photographies MEB de la coupe polie, et c) le profil de concentration mesuré par WDS sur la coupe polie. L'encadré d) est une photographie MEB de la lame FIB utilisée pour l'analyse EDS au STEM. Encadrés e) : cartographie du soufre et f) : profil de concentration du soufre déduit de la cartographie. Les largeurs des pics indiquées dans les encadrés c) et f) sont les largeurs à mi-hauteur..... 127

Figure 5.20. Profils de concentration acquis par analyses WDS sur une coupe polie de l'échantillon « base + S ». Quinze joints de grains ont été analysés ; la ligne en tirets bleus représente la position du joint de grains. 131

Figure 5.21. Analyses MEB+WDS et STEM+EDS sur un même joint de grains dans l'alliage modèle « base + S ». a) est une photographie MEB de la coupe polie et b) le profil de concentration mesuré par WDS sur la coupe polie. L'encadré c) est une photographie MEB de la lame FIB utilisée pour la cartographie EDS au STEM, encadré d). L'encadré e) est un profil issu de la cartographie de l'encadré d)..... 133

Figure 5.22. Analyses MEB+WDS et STEM+EDS sur un même joint de grains (joint *k*) dans l'alliage modèle « base + S ». a) est une photographie MEB de la coupe polie et b) le profil de concentration mesuré par WDS sur la coupe polie. L'encadré c) est une photographie MEB de la lame FIB utilisée pour la cartographie EDS au STEM, encadré d) ; les flèches repèrent les extrémités du joint de grains. L'encadré e) est un profil issu de la cartographie de l'encadré d).
 134

Figure 5.23. Schémas illustrant un possible mode d'action du soufre par ségrégation hors d'équilibre. L'encadré a) représente la température en fonction du temps lors d'une passe de soudage. L'encadré b) présente la densité de lacunes thermiques, l'encadré c), la quantité de soufre dans le joint de grains en fonction du temps et l'encadré d) la cohésion du joint de grains et les contraintes dues au soudage. Les lignes en pointillés rouges marquent le maximum de température.
 138

Figure 5.24. Cycles de température calculés, pour les deux positions qui encadrent la zone fissurée en surface. $D_{max} = 1,98$ mm est le point le plus éloigné, $D_{moy} = 1,01$ mm le point à la distance moyenne et $D_{min} = 0,25$ mm le plus proche de la ligne de fusion ; valeurs communes pour tous les alliages. 139

Figure 5.25. Distance parcourue par les couples lacune-soufre pendant le refroidissement. 140

Figure 5.26. Taux de recouvrement d'équilibre, en fonction de la température, pour deux valeurs de ΔG 143

Figure 5.27. Distance de rétrodiffusion du soufre pendant le refroidissement pour les cycles extrêmes et le cycle moyen de la zone fissurée ; calculs issus de nos simulations de l'essai RCT. 145

Figure 5.28. Schéma d'explication du phénomène possible d'abaissement de l'enthalpie de ségrégation du soufre aux joints de grains par le champ de contraintes. 147

- Figure 5.29. Lien entre vitesse de déformation plastique et cinétique de ségrégation du soufre aux joints de grains dans le nickel pur à 550°C, adapté de (91). 149*
- Figure 5.30. Vitesse de déformation au cours de la passe de soudage pour les distances minimale (rouge) et maximale (noire) à la ligne de fusion pour lesquelles des fissures sont observées. La ligne en pointillés bleus marque le début du refroidissement. 150*
- Figure 5.31. Ségrégation du soufre au joint de grains depuis la fissure, et fragilisation des liaisons métal-métal. Les disques verts représentent les atomes de deux grains. Les disques jaunes représentent les atomes de soufre. Les segments rouges représentent les liaisons métal-métal affectées par les atomes de soufre au joint de grains. Les disques bleus représentent la surface libre. 152*
- Figure 5.32. Diagrammes d'équilibre de phases pour deux des alliages modèles « base » a) et « base + C » b) calculés à l'aide de MatCalc® version 5.62. Les phases considérées sont le liquide, la matrice cubique à faces centrées, les carbures $M_{23}C_6$ et les carbonitrures de titane..... 154*
- Figure 5.33. Photographies MEB de coupes polies des alliages modèles « base + CS » a) et « base + S » b) après respectivement huit et quatre passes au test RCT. 155*
- Figure 5.34. Diagrammes d'équilibre de phase pour quatre alliages, a) alliage modèle « base », b) alliage modèle « base + C », c) alliage industriel 52M et d) alliage industriel 152..... 157*
- Figure 5.35. Carbone libre dans l'austénite à l'équilibre thermodynamique en fonction de la température pour quatre alliages, calculé à l'aide de MatCalc 5.62. 158*
- Figure 5.36. Carbone libre dans l'austénite à l'équilibre thermodynamique en fonction de la température pour quatre alliages hypothétiques, basés sur l'alliage 52M, calculé à l'aide de MatCalc 5.62..... 159*

- Figure 7.1. Composition et valeurs du test (absolue et normalisée) des alliages relatifs au 2.2.5. Essais STF : seuil de déformation pour les premières fissures (28, 31, 33, 40, 49, 53, 56)..... 170*
- Figure 7.2. Composition et valeurs du test (absolue et normalisée) des alliages relatifs au 2.2.5. Essais STF : seuil de déformation pour les premières fissures. Maquette de soudage de Young : nombre de fissure par inches carrés (19, 28, 31, 33, 40, 49, 53, 56)..... 171*
- Figure 7.3. Composition et valeurs du test (absolue et normalisée) des alliages relatifs au 2.2.5. Maquette de soudage de Young : nombre de fissures par inches carrés. Essais PVR : nombre de fissures à une certaine position de l'éprouvette. DTR par Varestraint : largeur de la DTR (en kelvin) estimée à partir d'essais Varestraint (19, 68). 172*
- Figure 7.4. Composition et valeurs du test (absolue et normalisée) des alliages relatifs au 2.2.5. DTR par Varestraint : largeur de la DTR (en kelvin) estimée à partir d'essais Varestraint. STF in situ : seuil de déformation pour les premières fissures. Réduction de section à rupture : minimum de la réduction de section à rupture dans la DTR (26, 40, 51, 67, 68, 89). 173*
- Figure 7.5. Maillage considéré pour la simulation des éprouvettes de l'essai RCT. 175*
- Figure 7.6 : Répartition spatiale de la puissance de la source thermique équivalente..... 177*
- Figure 7.7. Évolution de la température à la position des thermocouples. 178*

9 Liste des tableaux

<i>Tableau 2.1. Récapitulatif des essais de simulation thermomécanique.</i>	<i>12</i>
<i>Tableau 2.2. Récapitulatif des essais avec sollicitation mécanique extérieure. .</i>	<i>14</i>
<i>Tableau 2.3. Tableau récapitulatif des essais de soudage bridés ou autobridés.</i>	<i>17</i>
<i>Tableau 2.4. Synthèse des essais de sensibilité à la fissuration par chute de ductilité.</i>	<i>18</i>
<i>Tableau 2.5. Synthèse des explications du phénomène de DDC.</i>	<i>40</i>
<i>Tableau 3.1. Paramètres de soudage pour la fabrication du dépôt de l'alliage 152.</i>	<i>44</i>
<i>Tableau 3.2. Paramètres de soudage pour la fabrication du dépôt de l'alliage 52M.</i>	<i>44</i>
<i>Tableau 3.3. Composition des alliages industriels étudiés.</i>	<i>46</i>
<i>Tableau 3.4. Composition des alliages modèles étudiés.</i>	<i>47</i>
<i>Tableau 3.5. Températures de solidus et de liquidus pour les alliages 152 et 52M. Comparaison entre les mesures ATD et les calculs MatCalc.</i>	<i>50</i>
<i>Tableau 3.6. Présentation des épaisseurs des éprouvettes Varestraint en alliage 152.</i>	<i>56</i>
<i>Tableau 3.7. Paramètres de soudage TIG utilisés lors des essais Varestraint. ..</i>	<i>57</i>
<i>Tableau 4.1. Intervalle de température de chute de ductilité, minimum de réduction de section dans cet intervalle, profondeur relative du creux de réduction de section par rapport à la température ambiante pour les alliages et part de la rupture transgranulaire dans le creux de ductilité pour les alliages 152 et 52M.</i>	<i>70</i>
<i>Tableau 4.2. Comparaison entre les résultats obtenus avec le test RCT sur le 52M avec les résultats obtenus par l'EPRI grâce à leur maquette de soudage.</i>	<i>83</i>
<i>Tableau 4.3. Contraintes en fin de passe et contraintes minimales pour les trois points aux première et cinquième passes.</i>	<i>97</i>

<i>Tableau 5.1. Températures maximales atteintes pour les fissures observées après la quatrième refusions.</i>	111
<i>Tableau 5.2. Moyenne des mesures par WDS de la ségrégation intergranulaire du soufre dans l'échantillon de nickel recuit 100 jours à 550°C et conversion en fraction de monocouche.</i>	124
<i>Tableau 5.3. Fraction molaire des couples lacune-soufre produits et niveau maximal possible de la ségrégation hors d'équilibre du soufre, en fonction de la température maximale atteinte :</i>	142
<i>Tableau 5.4. Teneur en carbone et en niobium des alliages hypothétiques de la figure 5.36.</i>	158
<i>Tableau 7.1. Résultats des essais mécaniques et comparaison au RCC-M.</i>	174
<i>Tableau 7.2. Paramètres caractérisant les conditions aux limites du problème thermique.</i>	176
<i>Tableau 7.3. Paramètres de la source thermique pour la simulation de l'essai RCT.</i>	178
<i>Tableau 7.4. Conductivité thermique considérée en fonction de la température pour l'alliage 52M.</i>	180
<i>Tableau 7.5. Capacité calorifique volumique considérée en fonction de la température pour l'alliage 52M.</i>	180
<i>Tableau 7.6. Conductivité thermique et capacité calorifique volumique considérées en fonction de la température pour l'acier 316L (plaque support).</i>	181
<i>Tableau 7.7. Paramètres thermoélastiques de l'acier 316L (plaque support).</i> ..	182
<i>Tableau 7.8. Paramètres thermoélastiques de l'Inconel 82 (éprouvette).</i>	183
<i>Tableau 7.9. Paramètres de l'érouissage mixte, Inconel 82 (comportement plastique de l'éprouvette).</i>	184
<i>Tableau 7.10. Paramètres du comportement visqueux, Inconel 82 (éprouvette).</i>	184

10 Liste des références

1. DUPONT, J. N., LIPPOLD, J. C. et KISER, S. D. Microstructural Evolution in the Fusion Zone. Dans : *Welding metallurgy and weldability of nickel-base alloys*. John Wiley & Sons, 2009. pp. 57-80. ISBN 978-0-470-08714-5.
2. ISO (éd.). NF EN ISO 17641-1. ISO (éd.). 2004.
3. BENGOUGH, G. D. A study of the properties of alloys at high temperatures. Dans : *The journal of the Institute of Metals*. G. Shaw Scott, 1912. pp. 123–174.
4. LIPPOLD, J.C. Solid-State Cracking. Dans : *Welding Metallurgy and Weldability*. First Edistion. John Wiley & Sons, 2015. pp. 130-212.
5. HEUSCHKEL, J. WELD METALS IN NICKEL-BASE ALLOYS. *Welding J. (N.Y.)*. 39. 1960.
6. WEISS, B., GROTKE, G. E. et STICKLER, R. Physical Metallurgy of Hot Ductility Testing. *Welding Journal*. 1970. pp. 471s–487s.
7. ARATA, Y., MATSUDA, F. et KATAYAMA, S. Solidification Crack Susceptibility in Weld Metals of Fully Austenitic Stainless Steels (Report II) : Effect of Ferrite, P, S, C, Si and Mn on Ductility Properties of Solidification Brittleness. *Transactions of JWRI*. 1977. Vol. 6, n° 1, pp. 105–116.
8. MATSUDA, F., NAKAGAWA, H., OGATA, S. et KATAYAMA, S. Fractographic Investigation on Solidification Crack in the Vareststraint Test of Fully Austenitic Stainless Steel. *Transactions of JWRI*. 1978. Vol. 7, n° 1, pp. 59–70.
9. LUNDIN, C. D., LEE, C. H. et MENON, R. Hot Ductility and Weldability of Free Machining Austenitic Stainless Steel. *Welding Journal*. 1988. pp. 119s–130s.
10. MATSUDA, F., NAKAGAWA, H., MINEHISA, S., SAKABATA, N., EJIMA, A. et NOHARA, K. Weldability of Fe-36% Ni Alloy (Report II). *Transactions of JWRI*. 1984. Vol. 13, n° 2, pp. 69-75.
11. ZHANG, Y. C., NAKAGAWA, H. et MATSUDA, F. Weldability of Fe-36%Ni Alloy (Repot III). *Transaction of JWRI*. 1985. Vol. 14, n° 1, pp. 107–114.
12. NAKAO, Y., SHINOZAKI, K., OGAWA, T. et SAKURAI, Hideo. Effects of Cr and S on Ductility-dip Cracking Susceptibilities in the Reheated Weld Metals of Ni-Cr-Fe Ternary Alloys. *Transactions of the Japan Welding Society*. 1993. Vol. 24, n° 2.
13. COLA, M.J. et TETER, D.F. Optical and Analytical Electron Microscopy of Ductility-Dip Cracking In Ni-base Filler Metal 52 - Intial Studies. Dans : *5th international Conference on Trends in Welding Research*. Callaway Gardiens Resort Pine Mountain, Georgia, 1998.

14. KIKEL, J. M. et PARKER, D. M. MAO-T--98-0233, MER--98-2, 661678: *Ductility dip cracking susceptibility of Inconel Filler Metal 52 and Inconel Alloy 690* [en ligne]. 1998. [Consulté le 20 mars 2017].
15. WU, W. et TSAI, C. H. Hot Cracking Susceptibility of Fillers 52 and 82 in Alloy 690 Welding. *Metallurgical and materials transaction A*. 1999. Vol. 30A, pp. 417–426.
16. VITO, S. De. *Influence de la composition chimique et des conditions de refroidissement sur la fissuration à chaud d'alliages de nickel*. Institut National Polytechnique de Lorraine, 2000.
17. ISO. *ISO/TR 17 641-3:2005(F)*. ISO, 2005.
18. YOUNG, G. A., CAPOBIANCO, T. E., PENIK, M. A., MORRIS, B. W. et MCGEE, J. J. The Mechanism of Ductility Dip Cracking in Nickel-Chromium Alloys. *Welding Journal*. février 2008. Vol. 87, pp. 31s-43s.
19. YOUNG, G. A., CAPOBIANCO, T. E., ETIEN-III, R. A., MULLEN, J. V., LEVEILLEE, S. et SANDER, P. C. Development of a highly weldable and corrosion resistant nickel-chromium filler metal. Dans : *13th Conference on Environmental Degradation of Materials in Nuclear Power Systems*. Wisthler, BC, Canada, août 2007.
20. MCCRACKEN, S., TATMAN, J., MATSUOKA, T., ABE, D. et MASUDA, S. *Welding and Repair Technology Center : Screening Test for High-Chromium Nickel-Base Weld Metals - Preliminary Studies*. Electric Power Research Institute, Palo Alto, CA, 2015.
21. NOECKER, F. F. et DUPONT, J. N. Metallurgical Investigation into Ductility Dip Cracking in Ni-Based Alloys : Part I. *Welding Journal*. janvier 2009. Vol. 88, pp. 7s-20s.
22. YAMAGUCHI, S., KOBAYASHI, H., MATSUMIYA, T. et HAYAMI, S. Effect of minor elements of hot workability of nickel-base superalloys. *Metals Technology*. 1979. pp. 170-175. DOI 10.1179/030716979803276110.
23. CALVO, J., REZAEIAN, A., CABRERA, J. M. et YUE, S. Effect of the thermal cycle on the hot ductility and fracture mechanisms of a C-Mn Steel. *Anales de mecanica de la fractura*. 2005. Vol. 22, pp. 184–189.
24. DAVÉ, V. R., COLA, M. J., KUMAR, M., SCHWARTZ, A. J. et HUSSEN, G. N. A. Grain Boundary Character in Alloy 690 and Ductility-Dip Cracking Susceptibility. *Welding Journal*. 2004.
25. NISHIMOTO, K., SAIDA, K. et OKAUCHI, H. Microcracking in multipass weld metal of alloy 690 Part 2 – Microcracking mechanism in reheated weld metal. *Science and Technology of Welding and Joining*. 2006. Vol. 11, n° 4, pp. 462-470. DOI <http://dx.doi.org/10.1179/174329306X94309>.

26. NOECKER, F. F. et DUPONT, J. N. Metallurgical Investigation into Ductility Dip Cracking in Ni-Based Alloys : Part II. *Welding Journal*. mars 2009.
27. NISSLEY, N. E. *Development of the strain-to-fracture test to study ductility-dip cracking in austenitic alloys*. Graduate School of The Ohio State University, 2002.
28. HOPE, A. T. et LIPPOLD, J.C. Development and testing of a high-chromium, Ni-based filler metal resistant to ductility dip cracking and solidification cracking. *Welding in the World*. 2017. Vol. 61, n° 2, pp. 325-332. DOI <https://doi.org/10.1007/s40194-016-0417-6>.
29. SJÖSTRÖM, Julia et ÅKESSON, Helena. *Investigation of Ductility Dip at 1000°C in Alloy 617* [en ligne]. Student thesis. 2017. [Consulté le 25 juin 2017]. DiVA
30. COLLINS, M. G. et LIPPOLD, J. C. An Investigation of Ductility Dip Cracking in Nickel-Based Filler Materials - Part I. *Welding Journal*. 2003.
31. LIPPOLD, J. C. et NISSLEY, N. E. Further investigations of ductility-dip cracing in high chromium Ni-base filler metals. *Welding in the World*. 2007. Vol. 51, pp. 24–30.
32. LIPPOLD, J. C. et NISSLEY, N. E. Ductility-Dip Cracking in High Chromium, Ni-Base Filler Metals. Dans : *Hot Cracking Phenomena in Welds II*. Springer, 2008. pp. 409–425. ISBN 978-3-540-78627-6.
33. KISER, S. D., ZHANG, R. et BAKER, B. A. A New Welding Material for Improved resistance to Ductility Dip Cracking. Dans : *Proceedings of the 8th International Conference on Trends in Welding Research*. Pine-Mountain, 2008. pp. 639–644.
34. TORRES, E. A., PETERNELLA, F. G., CARAM, R. et RAMIREZ, A. J. In Situ Scanning Electron Microscopy High Temperature Deformation Experiments to Study Ductility Dip Cracking of Ni–Cr–Fe Alloys. Dans : *In-situ Studies with Photons, Neutrons and Electrons Scattering*. Springer, 2010. pp. 27–39.
35. RABENSTEINER, G., TOSCH, J. et SCHABEREITER, H. Hot Cracking Problems in Different Fully Austenitic Weld Metals. . *Weldgin Research Supplement*. 1983. pp. 21s-27s.
36. MO, W., LU, S., LI, D. et LI, Y. Effects of filler metal composition on the microstructure and mechanical properties for ER NiCrFe-7 multi-pass weldments. *Materials Science and Engineering A*. 2013. Vol. 582, pp. 326–337. DOI 10.1016/j.msea.2013.06.038.
37. MCCRACKEN, Steven L. et TATMAN, Jonathan K. Prediction of Ductility-Dip Cracking in Narrow Groove Welds Using Computer Simulation of Strain Accumulation. Dans : BOELLINGHAUS, Thomas, LIPPOLD, John C. et CROSS, Carl Edward (éd.), *Cracking Phenomena in Welds IV* [en ligne]. Cham : Springer International Publishing, 2016. pp. 119-141. ISBN 978-3-319-28434-7.

38. LUNDIN, C. D., LEE, C. H., MENON, R. et OSORIO, V. Weldability Evaluations of Modified 316 and 347 Austenitic Stainless Steels : Part I - Preliminary Results. *Welding Journal*. 1988. pp. 35s–46s.
39. NORTON, S. J. *Development of a Gleeble based test for post weld heat treatment cracking in nickel alloys*. Graduate School of The Ohio State University, 2002.
40. CHEN, J. Q., LU, H., CUI, W., CHEN, J. M. et HUANG, Y. F. Effect of grain boundary behaviour on ductility dip cracking mechanism. *Materials Science and Technology*. 2014. Vol. 30, n° 10, pp. 1189–1196. DOI 10.1179/1743284713Y.0000000431.
41. COLLINS, M. G., RAMIREZ, A. J. et LIPPOLD, J. C. An Investigation of Ductility Dip Cracking in Nickel-Based Filler Materials - Part II. *Welding Journal*. 2003. pp. 348– s–354– s.
42. COLLINS, M. G., RAMIREZ, A. J. et LIPPOLD, J. C. An Investigation of Ductility Dip Cracking in Nickel-Based Filler Materials - Part III. *Welding Journal*. 2004. pp. 39– S–49– S.
43. NISSLEY, N. E. et LIPPOLD, J. C. Development of the Strain-to-Fracture Test. *Welding Journal*. 2003.
44. RAMIREZ, A. J. et LIPPOLD, J. C. High temperature behavior of Ni-base weld metal Part II. Insight into the mechanism for ductility dip cracking. *Materials Science and Engineering A*. 2004. Vol. 380, pp. 245–258. DOI 10.1016/j.msea.2004.03.075.
45. RAMIREZ, A. J. et LIPPOLD, J. C. High temperature behavior of Ni-base weld metal Part I. Ductility and microstructural characterization. *Materials Science and Engineering A*. 2004. Vol. 380, pp. 259–271.
46. RAMIREZ, A. J. et LIPPOLD, J. C. New Insight into the Mechanism of Ductility-Dip Cracking in Ni-base Weld Metals. Dans : . Springer, 2005. pp. 19–41. Hot Cracking Phenomena in Welds. ISBN 978-3-540-22332-0.
47. NISSLEY, N. E. *Intermediate temperature grain boundary embrittlement in nickel-base weld metals* [en ligne]. The Ohio State University, 2006.
48. RAMIREZ, A. J., SOWARDS, J. W. et LIPPOLD, J. C. Improving the ductility-dip cracking resistance of Ni-base alloys. *Materials Science and Engineering A*. 2006. N° 179, pp. 212–218.
49. NISSLEY, N. E. et LIPPOLD, J. C. Ductility-Dip Cracking Susceptibility of Nickel-Based Weld Metals Part 1 : Strain-to-Fracture Testing. *Welding Journal*. 2008. Vol. 87.
50. NISSLEY, N. E. et LIPPOLD, J. C. Ductility-Dip Cracking Susceptibility of Nickel-Based Weld Metals Part 2 : Microstructural Characterization. *Welding Journal*. 2009. Vol. 88.

51. UNFRIED, J. S., TORRES, E. A. et RAMIREZ, A. J. In Situ Observation of Ductility-Dip Cracking Mechanism in Ni-Cr-Fe Alloys. Dans : *Hot Cracking Phenomena in Welds III*. Springer, 2011. pp. 295–315. ISBN 978-3-642-16863-5.
52. AFONSO, C. R., LIPPOLD, J. C. et RAMIREZ, A. J. Influence of Mo and Nb Additions on Microstructure and Ductility Dip Cracking of High Chromium, Nickel-base Weld Metal. [en ligne]. 2015. DOI 10.13140/RG.2.1.1754.6400.
53. QIN, Renyao, WANG, Huang et HE, Guo. Investigation on the Microstructure and Ductility-Dip Cracking Susceptibility of the Butt Weld Welded with ENiCrFe-7 Nickel-Base Alloy-Covered Electrodes. *Metallurgical and Materials Transactions A*. 2015. Vol. 46, n° 3, pp. 1227-1236. DOI 10.1007/s11661-014-2699-x.
54. FINK, C. An investigation on ductility-dip cracking in the base metal heat-affected zone of wrought nickel base alloys—part I: metallurgical effects and cracking mechanism. *Welding in the World*. 2016. Vol. 60, n° 5, pp. 939-950. DOI <https://doi.org/10.1007/s40194-016-0370-4>.
55. FINK, Carolin, ZINKE, Manuela et JÜTTNER, Sven. An investigation of ductility-dip cracking in the base metal heat-affected zone of wrought nickel base alloys—part II: correlation of PVR and STF results. *Welding in the World*. 2016. Vol. 60, n° 5, pp. 951-961. DOI 10.1007/s40194-016-0352-6.
56. KADOI, K., UEGAKI, T., SHINOZAKI, K. et YAMAMOTO, M. New measurement technique of ductility curve for ductility-dip cracking susceptibility in Alloy 690 welds. *Materials Science and Engineering A*. 2016. Vol. 672, pp. 59-64. DOI <http://dx.doi.org/10.1016/j.msea.2016.06.062>.
57. KREUTER, V. V. C. et LIPPOLD, J. C. Ductility-Dip Cracking Susceptibility of Commercially Pure Ni and Ni-Base Alloys Utilizing the Strain-to-Fracture Test. Dans : *Cracking Phenomena in Welds IV* [en ligne]. Th. Boellinghaus et al. 2016. pp. 145-159. ISBN 978-3-319-28434-7.
58. SHANKAR, V., GILL, T. P. S., MANNAN, S. L. et RODRIGUEZ, P. A *review of Hot Cracking in Austenitic Stainless Steel Weldments*. Indira Gandhi Centre fo Atomic Research Kalpakkam - 603102 Tamilnadu, India : Government of India - Atomic Energy Commission, 1991.
59. FARRAR, J. C. M. The Route to International Standadization. Dans : *Hot Cracking Phenomena in Welds*. Berlin, 2005. pp. 291–304. ISBN 3-540-22332-0.
60. YUSHCHENKO, K., SAVCHENKO, V., CHERVTAKOV, N., ZVYAGINTSEVA, A. et GUYOT, E. Comparative hot cracking evaluation of welded joints of alloy 690 using filler metals INCONEL 52 and 52MSS. *Welding in the World*. 2011. Vol. 55, pp. 28–35.
61. FINK, C., KEIL, D. et ZINKE, M. Evaluation of hot crackind susceptibility of nickel-based alloys by the PVR test. *Welding in the World*. 2012. Vol. 56.

62. TIRAND, G., PRIMAULT, C. et ROBIN, V. Sensibilité à la fissuration à chaud des alliages base nickel à haute teneur en chrome. *Matériaux & Techniques*. 2014. Vol. 102, n° 403. DOI 10.1051/mattech/2014035.
63. DUPONT, J. N., ROBINO, C. V. et MARDER, A. R. Solidification and Weldability of nb-Bearing Superalloys. *Welding Journal*. 1998. pp. 417s–431s.
64. MCCRACKEN, S. *Welding and Repair Technology Center : Evaluation of High-Chromium Nickel-Base Welding Alloys*. Palo Alto, CA : Electric Power Research Institute, Palo Alto, CA, 2013.
65. OGURA, T., MORIKAWA, Y. et SAIDA, K. Evaluation of Ductility-Dip Cracking Susceptibility in Alloy 690 Laser Multipass Weld Metal by Varestraint Test. . 2016. Vol. 34, pp. 181-188. DOI <http://doi.org/10.2207/qjws.34.181>.
66. CAPOBIANCO, T. E. et HANSON, M. E. Auger Spectroscopy Results from Ductility Dip Cracks Opened Under Ultra-High Vacuum. Dans : *7th International Conference on Trends in Welding Research*. 2005.
67. TORRES, E. A., MONTORO, F., RIGHETTO, R. D. et RAMIREZ, A. J. Development of high-temperature strain instrumentation for in situ SEM evaluation of ductility dip cracking. *Journal of Microscopy*. 2014. Vol. 254, pp. 157–165.
68. SAIDA, K., NOMOTO, Y., OKAUCHI, H., OGIWARA, H. et NISHIMOTO, K. Influence of phosphorus and sulphur on ductility dip cracking susceptibility in multipass weld metal of alloy 690. *Science and Technology of Welding and Joining*. 2012. Vol. 17, n° 1.
69. ZHANG, Y.C., NAKAGAWA, H. et MATSUDA, F. Weldability of Fe-36%Ni Alloy (Report VI). *Transactions of JWRI*. 1985. Vol. 14, n° 2, pp. 325-334.
70. EILERS, A., NELLESEN, J., ZIELKE, R. et TILLMANN, W. Analysis of the ductility dip cracking in the nickel-base alloy 617mod. *IOP Conference Series: Materials Science and Engineering*. 2017. Vol. 181, n° 1, pp. 012020.
71. ZHENG, L., SCHMITZ, G., MENG, Y., CHELLALI, R. et SCHLESIGER, R. Mechanism of Intermediate Temperature Embrittlement of Ni and Ni-based Superalloys. *Critical Reviews in Solid State and Materials Sciences*. 2012. Vol. 37, pp. 181–214. DOI 10.1080/10408436.2011.613492.
72. UNFRIED-SILGADO, J. et RAMIREZ, A. J. Modeling and Characterization of As-Welded Microstructure of Solid Solution Strengthened Ni-Cr-Fe Alloys Resistant to Ductility-Dip Cracking Part I: Numerical modeling. *Metals and Materials International*. 2014. Vol. 20, n° 2, pp. 297–305. DOI 10.1007/s12540-014-1023-z.
73. FINK, C., LIPPOLD, J. C., HOPE, A. T. et MCCRACKEN, S. Elevated temperature cracking resistance of Ta-Bearing high chromium Ni-base filler metals. Dans : *Pressure Vessels and Piping Conference*. Waikoloa, Hawaii, USA, 2017.

74. LEWIS, M. H. et HATTERSLEY, B. Precipitation of M23C6 in austenitic steels. *Acta metallurgica*. 1965. Vol. 13, pp. 1159–1168.
75. HONG, H. U., RHO, B. S. et NAM, S. W. Correlation of the M23C6 precipitation morphology with grain boundary characteristics in austenitic stainless steel. *Materials Science and Engineering A*. 2001. N° 318, pp. 285–292.
76. LIM, Y. S., KIM, J. S., KIM, H. P. et CHO, H. D. The effect of grain boundary misorientation on the intergranular M23C6 carbide precipitation in thermally treated Alloy 690. *Journal of Nuclear Materials*. 2004. Vol. 335, pp. 108–114.
77. MO, W., LU, S., LI, D. et LI, Y. Effects of M23C6 on the High-Temperature Performance of Ni-Based Welding Material NiCrFe-7. *Metallurgical and materials transaction A*. 2014. Vol. 45A, pp. 5114–5126. DOI 10.1007/s11661-014-2439-2.
78. WEI, X., XU, M., WANG, Q., ZHANG, M., LIU, W., XU, J., CHEN, J., LU, H. et YU, C. Effect of local texture and precipitation on the ductility dip cracking of ERNiCrFe-7A Ni-based overlay. *Materials and Design*. 2016. Vol. 110, pp. 90-98. DOI <http://dx.doi.org/10.1016/j.matdes.2016.07.130>.
79. SAINDRENAN, Guy, LE GALL, René et CHRISTIEN, Frédéric. *Génie des matériaux: endommagement interfacial des métaux : ségrégation interfaciale et conséquences*. Paris : Ellipses, 2002.
80. MCLEAN, D. *Grain boundaries in metals*. Oxford University Press. 1957.
81. ALLART, M., CHRISTIEN, F., GALL, R. Le, NOWAKOWSKI, P. et GROVENOR, C. R. M. A multi-technique investigation of sulfur grain boundary segregation in nickel. *Scripta Materialia*. 2013. Vol. 68, pp. 793–796. DOI 10.1016/j.scriptamat.2013.01.028.
82. PHILIBERT, J. *Atom movements: diffusion and mass transport in solids*. Les Ulis, France : Editions de Physique, 1991. Monographies de physique. QD543 .P5813 1991
83. VLADIMIROV, A.B., KAJGORODOV, V.N., KLOTSMAN, S.M. et TRAKHTENBERG, I.Sh. Diffusion of sulphur in nickel. *Fizika Metallov i Metallovedenie*. 1975. Vol. 39, n° 2, pp. 319-323.
84. HIPPSLEY, C.A., BUTTLE, D.J. et SCRUBY, C.B. A study of the dynamics of high temperature brittle intergranular fracture by acoustic emission. *Acta Metallurgica*. 1988. Vol. 36, n° 2, pp. 441-452. DOI 10.1016/0001-6160(88)90019-3.
85. MIYAHARA, T., STOLT, K., REED, D.A. et BIRNBAUM, H.K. Sulfur segregation on nickel. *Scripta Metallurgica*. 1985. Vol. 19, n° 1, pp. 117-121. DOI 10.1016/0036-9748(85)90276-5.
86. BEN MOSTEFA, L., SAINDRENAN, G., SOLIGNAC, M.P. et COLIN, J.P. Effect of interfacial sulfur segregation on the hot ductility drop of Fe-Ni36 alloys.

- Acta Metallurgica et Materialia*. 1991. Vol. 39, n° 12, pp. 3111-3118. DOI 10.1016/0956-7151(91)90044-2.
87. PERROT-SIMONETTA, M. T. et KOBYLANSKI, A. Influence of Trace Elements on Hot Ductility of an Ultra High Purity Invar Alloy. *Le Journal de Physique IV*. 1995. Vol. 05, n° C7, pp. C7-323-C7-334. DOI 10.1051/jp4:1995739.
88. FOURNIER DIT CHABERT, Florent. Spectroscopie des électrons Auger. Dans : *Rechargement laser d'un superalliage à base de nickel : étude expérimentale et modélisation de l'endommagement* [en ligne]. 2007. pp. 103-105.
89. NISHIMOTO, K., SAIDA, K. et OKAUCHI, H. Microcracking in multipass weld metal of alloy 690 Part 1 – Microcracking susceptibility in reheated weld metal. *Science and Technology of Welding and Joining*. 2006. Vol. 11, n° 4, pp. 455-461. DOI <http://dx.doi.org/10.1179/174329306X94291>.
90. OKAUCHI, H., NOMOTO, Y., OGIWARA, H., SAIDA, K. et NISHIMOTO, K. Metallurgical mechanism of ductility-dip cracking in multipass welds of alloy 690. *Transaction of JWRI*. 2010. Vol. 39, n° 2, pp. 221–223.
91. ALLART, M., CHRISTIEN, F. et GALL, R. Le. Ultra-fast sulphur grain boundary segregation during hot deformation of nickel. *Acta Materialia*. 2013. Vol. 61, pp. 7938–7946. DOI 10.1016/j.actamat.2013.09.035.
92. HUA, C., LU, H., YU, C., CHEN, J-M, WEI, X. et XU, J-J. Reduction of ductility-dip cracking susceptibility by ultrasonic-assisted GTAW. *Journal of Material Processing Technology*. 2017. Vol. 239, pp. 240-250. DOI <https://twin.sci-hub.io/d4b89a5b68c3781de1f3cc08228ef52f/dx.doi.org/10.1016/j.jmatprotec.2016.08.018>.
93. QIAN, D., XUE, J., ZHANG, A., LI, Y., TAMURA, N., SONG, Z. et CHEN, K. Statistical study of ductility-dip cracking induced plastic deformation in polycrystalline laser 3D printed Ni-based superalloy. *Scientific Reports*. 2017. Vol. 7. DOI 10.1038/s41598-017-03051-x.
94. AFCEN. 173: *Règles de conception et de construction des matériels mécaniques des îlots nucléaires REP*. 2016.
95. DESPUJOLS, Jacques. Spectrométrie d'émission des rayons X. Fluorescence X. *Techniques de l'Ingénieur*. 2000.
96. CHARTIER, Frédéric et TABRANT, Michel. Spectrométrie de masse à décharge luminescente GDMS. *Techniques de l'Ingénieur*. 2008.
97. CONTRIBUTEURS DE WIKIPEDIA. Microsonde de Castaing. *Wikipédia, l'encyclopédie libre* [en ligne]. 2016. [Consulté le 14 décembre 2017].
98. CONTRIBUTEURS DE WIKIPEDIA. Analyse thermodifférentielle. *Wikipedia, l'encyclopédie libre* [en ligne]. 2017.

99. CROSS, Carl E., CONIGLIO, N., SCHEMPP, P. et MOUSAVI, M. Critical Conditions for Weld Solidification Crack Growth. Dans : BÖLLINGHAUS, Thomas, LIPPOLD, John et CROSS, Carl E. (éd.), *Hot Cracking Phenomena in Welds III* [en ligne]. Berlin, Heidelberg : Springer Berlin Heidelberg, 2011. pp. 25-41. [Consulté le 10 janvier 2018]. ISBN 978-3-642-16863-5.
100. CEN. *EN 1011_1:2009*. AFNOR, 2009.
101. CHRISTIEN, F. et RISCH, P. Cross-sectional measurement of grain boundary segregation using WDS. *Ultramicroscopy*. 2016. Vol. 170, pp. 107-112. DOI 10.1016/j.ultramic.2016.08.005.
102. CHRISTIEN, F., DOWNING, C., MOORE, K. L. et GROVENOR, C. R. M. Quantification of grain boundary equilibrium segregation by NanoSIMS analysis of bulk samples. *Surface and Interface Analysis*. 2012. Vol. 44, n° 3, pp. 377-387. DOI 10.1002/sia.4806.
103. BOLIVAR, J., FRÉGONÈSE, M., RÉTHORÉ, J., DURET-THUAL, C. et COMBRADE, P. Evaluation of multiple stress corrosion crack interactions by in-situ Digital Image Correlation. *Corrosion Science*. 2017. Vol. 128, pp. 120-129. DOI 10.1016/j.corsci.2017.09.001.
104. Sonde ionique focalisée. *Wikipédia* [en ligne]. 2016. [Consulté le 26 février 2018]. Page Version ID: 123602241
105. OUDAR, J. Sulphur-metal interactions. *Materials Science and Engineering*. 1980. Vol. 42, pp. 101-109. DOI 10.1016/0025-5416(80)90017-8.
106. TINGDONG, Xu et BUYUAN, Cheng. Kinetics of non-equilibrium grain-boundary segregation. *Progress in Materials Science*. 2004. Vol. 49, n° 2, pp. 109-208. DOI 10.1016/S0079-6425(03)00019-7.
107. LOMAEV, I.L., NOVIKOV, D.L., OKATOV, S.V., GORNOSTYREV, Yu.N., CETEL, A., MALONEY, M., MONTERO, R. et BURLATSKY, S.F. On the mechanism of sulfur fast diffusion in 3-D transition metals. *Acta Materialia*. 2014. Vol. 67, pp. 95-101. DOI 10.1016/j.actamat.2013.12.021.
108. KAI, Wang, TINGDONG, Xu, YANQING, Wang et JINHUI, Du. Intermediate-temperature embrittlement induced by non-equilibrium grain-boundary segregation of sulfur in Ni–Cr–Fe alloy. *Philosophical Magazine Letters*. 2009. Vol. 89, n° 11, pp. 725-733. DOI 10.1080/09500830903277180.
109. SEEGER, A., SCHOTTKY, G. et SCHUMACHER, D. The Contribution of Multiple Vacancies to Self-Diffusion. *physica status solidi (b)*. 1965. Vol. 11, n° 1, pp. 363-370. DOI 10.1002/pssb.19650110134.
110. SEEGER, A. et MEHRER, H. *Vacancies and Interstitials in Metals*. North-Holland Publishing Company. Amsterdam, 1970. pp. 1.

111. WYCISK, Wolfram et FELLER-KNIEPMEIER, Monika. Quenching experiments in high purity Ni. *Journal of Nuclear Materials*. 1978. Vol. 69-70, pp. 616-619. DOI 10.1016/0022-3115(78)90293-3.
112. JOHNSON, R. A. Point-Defect Calculations for an fcc Lattice. *Physical Review*. 1966. Vol. 145, n° 2, pp. 423-433. DOI 10.1103/PhysRev.145.423.
113. MAMALUI, A.A., OSTINSKAYA, T.D., PERVAKOV, V.A. et KHOTKEVICH, V. Determination of the energy of formation of vacancies in nickel by the technique of quenching in liquid helium. *Sov Phys Solid State*. 1969. Vol. 10, n° 9.
114. CHRISTIEN, Frédéric, LE GALL, René et SAINDRENAN, G. Influence of Stress on Intergranular Brittleness of a Martensitic Stainless Steel. *Defect and Diffusion Forum*. 2003. Vol. 216-217, pp. 275-284. DOI 10.4028/www.scientific.net/DDF.216-217.275.
115. COWAN, J. R. *The role of stress, microstructure and cooling rate on the grain boundary segregation of phosphorus and carbon in an Fe-P-C alloy*. University of Birmingham, 1997.
116. BEN MOSTEFA DAHO, LARBI. *Etude de la perte de ductilité à chaud des alliages Fe-Ni 36 en relation avec les segregations interfaciales*. 1990.
117. BIKA, D. et MCCMAHON, C. J. A kinetic model for dynamic embrittlement. *Physica Status Solidi (a)*. 1992. Vol. 131, n° 2, pp. 639-649. DOI 10.1002/pssa.2211310234.
118. BIKA, D., PFAENDTNER, J.A., MENYHARD, M. et MCCMAHON, C.J. Sulfur-induced dynamic embrittlement in a low-alloy steel. *Acta Metallurgica et Materialia*. 1995. Vol. 43, n° 5, pp. 1895-1908. DOI 10.1016/0956-7151(94)00388-X.
119. SUZUKI, S., TANII, S., ABIKO, K. et KIMURA, H. Site competition between sulfur and carbon at grain boundaries and their effects on the grain boundary cohesion in iron. *Metallurgical and Materials Transactions A*. 1987. Vol. 18, n° 6, pp. 1109-1115. DOI 10.1007/BF02668560.
120. LARERE, A., GUTTMANN, M., DUMOULIN, P. et ROQUES-CARMES, C. Auger electron spectroscopy study of the kinetics of intergranular and surface segregations in nickel during annealing. *Acta Metallurgica*. 1982. Vol. 30, n° 3, pp. 685-693. DOI 10.1016/0001-6160(82)90118-3.

Titre : Fissuration à chaud par chute de ductilité dans les métaux d'apport pour le soudage d'alliages à base de nickel

Mots clés : Ségrégation intergranulaire, Fissuration à chaud, Alliages à base de nickel, Soudage, Métallurgie

Résumé : Nous avons étudié la fissuration par chute de ductilité (ou DDC) pouvant intervenir durant le soudage d'alliages à base de nickel, pour en identifier le mécanisme métallurgique. Deux métaux d'apport pour le soudage de l'alliage Inconel 690™ ont été spécifiquement examinés, à savoir les alliages industriels Inconel 52M™ et Inconel 152™, utilisés pour la fabrication de certains éléments des composants du circuit primaire de centrales nucléaires de type « REP ».

Nous avons dans un premier temps cherché à identifier l'influence de la composition des alliages, en particulier l'influence des teneurs en soufre et carbone, sur la fissuration par chute de ductilité. L'étude de l'état de l'art, ainsi que la réalisation d'essais préliminaires, nous ont conduits à développer un nouvel essai de fissuration au soudage, que nous avons mis en œuvre sur quatre alliages modèles et deux alliages industriels.

Les résultats montrent qu'une augmentation de la teneur en soufre accroît la sensibilité à la fissuration, tandis que la présence de carbone la réduit. Nous avons également confirmé l'effet protecteur du niobium.

Nous avons ensuite réalisé des observations métallurgiques fines de fissures obtenues (métallographie, microscopies électroniques (« MEB » et « MET »), spectroscopies des rayons X (« WDS ») et des électrons Auger) pour proposer différentes hypothèses permettant d'expliquer les modes d'action de ces éléments sur le mécanisme de fissuration (ségrégation hors d'équilibre, ségrégation « dynamique » induite par les contraintes, les déformations ou la ségrégation sur les surfaces libres, proches du fond de fissure, compétition entre les ségrégations du soufre et du carbone).

Title : Ductility dip cracking during welding of nickel based alloys filler metals.....

Keywords : Sulphur, Intergranular segregation, Hot cracking, Nickel based alloy, Welding, Metallurgy

Abstract : The ductility dip cracking (DDC) phenomenon that may occur during the welding of nickel based alloys is studied in this work. Two welding filler metals of alloy Inconel 690™, Inconel 52M™ and Inconel 152™, used for the fabrication of some elements of primary circuit components of PWR nuclear power plants, are specifically considered. We tried to evaluate the influence of alloy composition, in particular the effect of sulfur and carbon contents, on the DDC sensitivity. Our literature review and our preliminary test results encouraged us to develop a specific testing method that we used to assess DDC susceptibility of four model alloys and two industrial alloys.

The results show that sulfur increases the sensitivity whereas carbon decreases it, within the limits of applicable specifications. We also confirmed that niobium has a beneficial effect against DDC.

We then observed the produced DDC cracks with advanced techniques (metallographic observations, scanning electron microscopy, transmission electron microscopy, wavelength dispersive X-ray spectrometry, Auger electron spectroscopy...) in order to propose several hypotheses on the effect of those elements on the DDC mechanism (non-equilibrium segregation, dynamic segregation induced by stresses or strains or free surfaces near crack tip, competitive segregation between sulfur and carbon).