



**HAL**  
open science

**Corrosion sous contrainte de mono et polycristaux  
d'aciers inoxydables austenitiques en milieu MgCl<sub>2</sub> :  
analyse microfractographique et recherche  
d'améliorations du comportement**

Agnès Chambreuil-Paret

► **To cite this version:**

Agnès Chambreuil-Paret. Corrosion sous contrainte de mono et polycristaux d'aciers inoxydables austenitiques en milieu MgCl<sub>2</sub> : analyse microfractographique et recherche d'améliorations du comportement . Sciences de l'ingénieur [physics]. Ecole nationale supérieure des Mines de Saint-Etienne, 1997. Français. NNT : . tel-01774219

**HAL Id: tel-01774219**

**<https://hal.science/tel-01774219>**

Submitted on 23 Apr 2018

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

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

Numéro d'ordre : 163 TD

**Thèse**  
présentée par

**Agnès CHAMBREUIL-PARET**

pour obtenir le titre de

**docteur**

de l'Ecole Nationale des Mines de Saint Etienne  
et de l'Institut Polytechnique de Grenoble  
(spécialité : Sciences et Génie des Matériaux)

**CORROSION SOUS CONTRAINTE DE MONO ET  
POLYCRISTAUX D'ACIERS INOXYDABLES  
AUSTENITIQUES EN MILIEU  $MgCl_2$  : ANALYSE  
MICROFRACTOGRAPHIQUE ET RECHERCHE  
D'AMELIORATIONS DU COMPORTEMENT.**

soutenue à Saint-Etienne le 19 septembre 1997.

composition du jury :

Mr François LOUCHET, professeur à l'INP de Grenoble.

Président

Mr Didier DESJARDINS, professeur à l'université de Bordeaux I

Rapporteur

Mr Roland OLTRA, directeur de recherche CNRS.

Rapporteur

Mr Pierre COMBRADE, ingénieur de recherche Framatome.

Mr Lionel COUDREUSE, ingénieur Creusot Loire Industrie.

Mr Thierry MAGNIN, professeur EMSE.

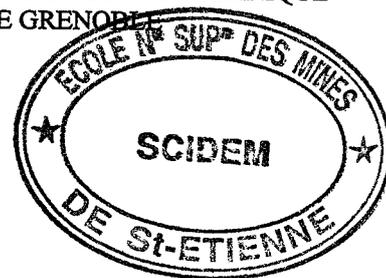
Directeur de thèse



ECOLE NATIONAL SUPERIEURE DES  
MINES DE SAINT ETIENNE

INSTITUT POLYTECHNIQUE  
DE GRENOBLE

Numéro d'ordre : 163 TD



**Thèse**  
présentée par

**Agnès CHAMBREUIL-PARET**

pour obtenir le titre de  
**docteur**  
de l'Ecole Nationale des Mines de Saint Etienne  
et de l'Institut Polytechnique de Grenoble  
(spécialité : Sciences et Génie des Matériaux)

**CORROSION SOUS CONTRAINTE DE MONO ET  
POLYCRISTAUX D'ACIERS INOXYDABLES  
AUSTENITIQUES EN MILIEU  $MgCl_2$  : ANALYSE  
MICROFRACTOGRAPHIQUE ET RECHERCHE  
D'AMELIORATIONS DU COMPORTEMENT.**

soutenue à Saint-Etienne le 19 septembre 1997.

composition du jury :

Mr François LOUCHET, professeur à l'INP de Grenoble.

Président

Mr Didier DESJARDINS, professeur à l'université de Bordeaux I

Rapporteur

Mr Roland OLTRA, directeur de recherche CNRS.

Rapporteur

Mr Pierre COMBRADE, ingénieur de recherche Framatome.

Mr Lionel COUDREUSE, ingénieur Creusot Loire Industrie.

Mr Thierry MAGNIN, professeur EMSE.

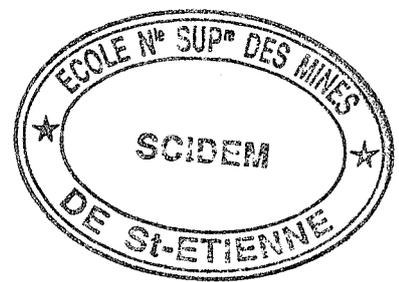
Directeur de thèse



the records  
of the  
of the

CONTENTS

1. Introduction	1
2. The first part	10
3. The second part	20
4. The third part	30
5. The fourth part	40
6. The fifth part	50
7. The sixth part	60
8. The seventh part	70
9. The eighth part	80
10. The ninth part	90
11. The tenth part	100



le 11 décembre 1997

**ECOLE NATIONALE SUPERIEURE DES MINES  
DE SAINT-ETIENNE**

**PROFESSEURS DE 1ère CATEGORIE**

MM.	BISCONDI	Michel	Matériaux
	CAMPAGNE	Jean-Pierre	Productique
	COURNIL	Michel	Génie des procédés
	DAVOINE	Philippe	Environnement
	LALAUZE	René	Génie des procédés
	LANCELOT	Francis	Génie Industriel
	LE COZE	Jean	Matériaux
	MAGNIN	Thierry	Matériaux
	MATHON	Albert	Gestion
	PEROCHE	Bernard	Informatique
	RIEU	Jean	Matériaux
Mme	SAYETTAT	Claudette	Informatique
	SOUSTELLE	Michel	Génie des procédés
	THOMAS	Gérard	Génie des procédés
	VAUTRIN	Alain	Mécanique et Matériaux

**DIRECTEURS DE RECHERCHE**

MM.	DRIVER	Julian	Matériaux
	GUILHOT	Bernard	Génie des procédés
	THEVENOT	François	Génie des Matériaux
	GRAILLOT	Didier	Environnement

**MAITRES DE RECHERCHE**

MM.	BOURGOIS	Jacques	Environnement
	GIRARDOT	Jean-Jacques	Informatique
Mme.	GOEURIOT	Dominique	Matériaux
	GOEURIOT	Patrice	Matériaux
	GREDIAC	Michel	Matériaux
	GUY	Bernard	Géologie
	GUYONNET	René	Génie des Procédés
	KOBYLANSKI	André	Matériaux
	MONTHEILLET	Frank	Matériaux
	PIJOLAT	Christophe	Génie des procédés
Mme.	PIJOLAT	Michèle	Génie des procédés
	SURREL	Yves	Mécanique et Matériaux
	TRAN MINH	Cahn	Génie Bio-Procédés

**PERSONNALITES HABILITEES OU DOCTEURS D'ETAT**

MM.	BIGOT	Jean-Pierre	Génie Bio-Procédés
	BILAL	Assaid	Géologie
	BRODHAG	Christian	Environnement
	DECHOMETTS	Roland	Environnement
	FOREST	Bernard	Matériaux
	LONDICHE	Henry	Environnement
	MICHELUCCI	Dominique	Informatique





*A Pilo et à ma petite crevette, Antoine,  
qui a vu le jour le 29 septembre 1997.*

1952.  
1953.  
1954.

1955.  
1956.  
1957.  
1958.  
1959.  
1960.  
1961.  
1962.  
1963.  
1964.  
1965.  
1966.  
1967.  
1968.  
1969.  
1970.  
1971.  
1972.  
1973.  
1974.  
1975.  
1976.  
1977.  
1978.  
1979.  
1980.  
1981.  
1982.  
1983.  
1984.  
1985.  
1986.  
1987.  
1988.  
1989.  
1990.  
1991.  
1992.  
1993.  
1994.  
1995.  
1996.  
1997.  
1998.  
1999.  
2000.  
2001.  
2002.  
2003.  
2004.  
2005.  
2006.  
2007.  
2008.  
2009.  
2010.  
2011.  
2012.  
2013.  
2014.  
2015.  
2016.  
2017.  
2018.  
2019.  
2020.  
2021.  
2022.  
2023.  
2024.  
2025.

## REMERCIEMENTS

Ce travail a été conduit dans le laboratoire Mécanismes Physiques et Interfaces (MPI) du Centre Matériaux de l'Ecole Nationale des Mines de Saint-Etienne (EMSE), sous la direction de Mr Thierry MAGNIN, professeur à l'EMSE. Je lui adresse mes plus vifs remerciements pour avoir toujours su être disponible malgré un planning très chargé et pour m'avoir fait partager son expérience et son enthousiasme. Je lui suis également très reconnaissante d'avoir su créer un esprit d'équipe et de m'avoir permis de rencontrer de nombreux spécialistes de la corrosion sous contrainte (nationaux ou internationaux) avec lesquels les échanges ont été particulièrement enrichissants.

J'exprime toute ma gratitude à :

- Mr François LOUCHET, professeur à l'INP de Grenoble, qui a accepté de juger ce travail et de présider le jury.
- Mr Didier DESJARDINS, professeur à l'université de Bordeaux I et Mr Roland OLTRA, directeur de recherche CNRS, qui ont bien voulu accepter d'être rapporteurs de cette étude.
- Mr Pierre COMBRADE, ingénieur Framatome, pour sa disponibilité et ses conseils avisés concernant l'aspect électrochimique de cette étude.
- Mr Lionel COUDREUSE, ingénieur Creusot Loire Industrie pour sa présence au sein du jury.

Je tiens sincèrement à remercier Messieurs Pierre RIEUX, Bernard BAYLE et André GIRINON pour leurs compétences et leur expérience dont ils m'ont largement fait bénéficier mais également pour tous les moments que nous avons partagés aux Essais Mécaniques.

Mes remerciements vont également à toutes les personnes qui, de près ou de loin, ont contribué à ce travail :

- Messieurs George TRIBOULET, Marcel VARILLON et Claude VARILLON qui m'ont aidé pour l'élaboration et les traitements thermiques des échantillons.
- Mr Paul JOUFFREY pour son aide et sa bonne humeur lors des observations au Microscopique Electronique à Balayage.
- Mme Florence AVONDO pour la réalisation des photographies de cette thèse.
- Mme Huguette BRUAS pour son aide aux rayons X.

Bien évidemment, cette thèse eut été tout autre sans mon collègue de bureau, Jean-Philippe CHATEAU. Aussi je le remercie pour nos très nombreuses conversations, qu'elles aient eu un rapport ou non avec la corrosion sous contrainte.

J'adresse également un merci tout particulier à nos deux secrétaires, Pierrette et Christelle, pour leur écoute et aide au quotidien.

Enfin parce que la recherche avance plus vite dans la bonne humeur, je remercie toutes les personnes (qui sauront se reconnaître) qui m'ont permis de me ressourcer autour d'un café ou d'un thé...

1. 1911  
2. 1912  
3. 1913  
4. 1914  
5. 1915  
6. 1916  
7. 1917  
8. 1918  
9. 1919  
10. 1920  
11. 1921  
12. 1922  
13. 1923  
14. 1924  
15. 1925  
16. 1926  
17. 1927  
18. 1928  
19. 1929  
20. 1930  
21. 1931  
22. 1932  
23. 1933  
24. 1934  
25. 1935  
26. 1936  
27. 1937  
28. 1938  
29. 1939  
30. 1940  
31. 1941  
32. 1942  
33. 1943  
34. 1944  
35. 1945  
36. 1946  
37. 1947  
38. 1948  
39. 1949  
40. 1950  
41. 1951  
42. 1952  
43. 1953  
44. 1954  
45. 1955  
46. 1956  
47. 1957  
48. 1958  
49. 1959  
50. 1960  
51. 1961  
52. 1962  
53. 1963  
54. 1964  
55. 1965  
56. 1966  
57. 1967  
58. 1968  
59. 1969  
60. 1970  
61. 1971  
62. 1972  
63. 1973  
64. 1974  
65. 1975  
66. 1976  
67. 1977  
68. 1978  
69. 1979  
70. 1980  
71. 1981  
72. 1982  
73. 1983  
74. 1984  
75. 1985  
76. 1986  
77. 1987  
78. 1988  
79. 1989  
80. 1990  
81. 1991  
82. 1992  
83. 1993  
84. 1994  
85. 1995  
86. 1996  
87. 1997  
88. 1998  
89. 1999  
90. 2000  
91. 2001  
92. 2002  
93. 2003  
94. 2004  
95. 2005  
96. 2006  
97. 2007  
98. 2008  
99. 2009  
100. 2010  
101. 2011  
102. 2012  
103. 2013  
104. 2014  
105. 2015  
106. 2016  
107. 2017  
108. 2018  
109. 2019  
110. 2020  
111. 2021  
112. 2022  
113. 2023  
114. 2024  
115. 2025  
116. 2026  
117. 2027  
118. 2028  
119. 2029  
120. 2030

1911-2025

# SOMMAIRE

<b>INTRODUCTION : LE BUT DE NOTRE ETUDE .....</b>	<b>5</b>
<b>1 - LE CONTEXTE DE NOTRE ETUDE : LES RECHERCHES ACTUELLES EN CSC DANS LES MATERIAUX CFC .....</b>	<b>9</b>
<b>1.1 - Corrosion sous contrainte et interactions corrosion-déformation .....</b>	<b>11</b>
1.1.1 - Corrosion sous contrainte des aciers inoxydables austénitiques .....	13
1.1.2 - Interactions corrosion-déformation .....	13
a - Influence d'une dissolution anodique généralisée sur le fluage du 304L	
b - Variation des paramètres électrochimiques lors d'une sollicitation de fatigue	
<b>1.2 - Mécanismes de fissuration en corrosion sous contrainte .....</b>	<b>15</b>
1.2.1 - Mécanismes basés sur la dissolution seule .....	17
a - Dissolution anodique et film passif	
b - Mobilité des atomes de surface	
c - Modèle de dissolution anodique	
1.2.2 - Modèles basés sur l'interaction dissolution-plasticité .....	25
a - Modèle lié à l'effet de lacunes	
b - Clivage induit par rupture du film	
c - Quasi-clivage assisté par la corrosion	
d - Quasi-clivage induit par adoucissement localisé ou 'corrosion enhanced plasticity model'	
1.2.3 - Mécanismes liés à la fragilisation par hydrogène .....	33
a - Réduction de la cohésion du réseau	
b - Formation d'hydrures métalliques	
c - Fissuration assistée par l'hydrogène	
d - Augmentation de la plasticité locale par l'hydrogène	
e - Plasticité induite par l'hydrogène adsorbé	
<b>1.3 - Cristallographie de rupture .....</b>	<b>41</b>
<b>1.4 - Mécanismes de déformation de l'austénite .....</b>	<b>43</b>
1.4.1 - Dislocations et fautes d'empilement dans l'austénite .....	43
1.4.2 - Déformation monotone des aciers inoxydables .....	45
a - Contrainte critique de glissement	
b - Durcissement lors de la déformation plastique	
c - Transformation martensitique des aciers inoxydables austénitiques	
<b>2 - METHODES EXPERIMENTALES .....</b>	<b>55</b>
<b>2.1 - Techniques expérimentales .....</b>	<b>57</b>
2.1.1 - Matériaux utilisés .....	57

2.1.2 - Fabrication des monocristaux .....	59
2.1.3 - Préparation des éprouvettes .....	61
2.1.4 - Dispositif d'essai de corrosion sous contrainte .....	63
2.1.5 - Dispositif de fatigue .....	67
<b>2.2 - Détermination de l'orientation cristallographique des facettes de rupture de CSC</b>	
2.2.1 - Figures d'attaques .....	69
2.2.2 - Méthodes géométriques d'analyse .....	71
a - Mesure de l'angle entre facettes	
b - Analyse des traces de glissement	
2.2.3 - Méthode utilisant l'EBSD (Electron Back Scattering Diffraction) .....	75
2.2.4 - Méthode de la projection dans des plans cristallographiques .....	77
a - Principe	
b - Cas concret	
c - Limites et avantages de la méthode	
<b>3 - MICROFRACTOGRAPHIE DE LA CORROSION SOUS CONTRAINTE .....</b>	<b>89</b>
<b>3.1 - Description des orientations monocristallines testées .....</b>	<b>91</b>
3.1.1 - Orientation <100> .....	91
3.1.2 - Orientation <110> .....	93
3.1.3 - Orientation <111> .....	93
3.1.4 - Orientation <149> .....	93
<b>3.2 - Résultats expérimentaux .....</b>	<b>95</b>
3.2.1 - Orientation <100> .....	95
3.2.2 - Orientation <110> .....	101
a - Direction de propagation [001]	
b - Direction de propagation [1 $\bar{1}$ 0]	
3.2.3 - Orientation <111> .....	109
3.2.4 - Orientation <149> .....	111
3.2.5 - Synthèse des résultats obtenus sur monocristaux .....	117
<b>3.3 - Comparaison avec la fractographie des polycristaux .....</b>	<b>119</b>
<b>3.4 - Discussion .....</b>	<b>125</b>
3.4.1 - Energie de surface des différents plans de glissement .....	125
3.4.2 - Comparaison des résultats expérimentaux avec les différents modèles de CSC.	
3.4.3 - Influence des espèces produites par dissolution anodique .....	135
a - Interactions hydrogène-dislocation	
b - Interactions dissolution anodique-déformation	
<b>3.5 - Conclusion .....</b>	<b>145</b>

<b>4 - INFLUENCE D'UN PREECROUISSAGE SUR LA RESISTANCE A LA CORROSION SOUS CONTRAINTE .....</b>	<b>149</b>
<b>4.1- Précrouissage monotone .....</b>	<b>153</b>
4.1.1 - Résultats obtenus sur polycristaux .....	153
4.1.2 - Résultats obtenus sur monocristaux .....	155
a - Orientation <110>	
b - Orientation <149>	
c - Orientation <111>	
<b>4.2 - Précrouissage cyclique .....</b>	<b>163</b>
4.2.1 - Résultats obtenus sur polycristaux .....	163
a - acier inoxydable de type 316L.	
b - Uranus B66	
4.2.2 - Résultats obtenus sur monocristaux .....	169
a - Orientation <110>	
b - Orientation <149>	
c - Orientation <111>	
d - Orientation <100>	
<b>4.3 - Discussion .....</b>	<b>173</b>
4.3.1 - Amorçage des fissures .....	175
4.3.2 - Propagation des fissures .....	181
a - Augmentation des interactions corrosion-plasticité suite à un précrouissage monotone .....	181
b - Influence d'une transformation martensitique .....	185
c - Niveaux de contrainte et obstacle mobile .....	189
<b>4.4 - Conclusion : pistes pour améliorer la résistance à la CSC des aciers inoxydables austénitiques .....</b>	<b>195</b>
 <b>CONCLUSION.....</b>	 <b>197</b>
 <b>REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES .....</b>	 <b>203</b>
 <b>ANNEXE A .....</b>	 <b>219</b>



## INTRODUCTION : LE BUT DE NOTRE ETUDE.

Les aciers inoxydables sont caractérisés par une relative facilité de fabrication et de mise en oeuvre, une bonne aptitude à la déformation et une grande résistance à la corrosion. C'est pourquoi ils sont utilisés dans des domaines aussi variés que l'agro-alimentaire, l'industrie nucléaire et les industries chimiques et pétrolières. Or l'ensemble de ces secteurs industriels est concerné par les problèmes de corrosion sous contrainte (CSC), ce qui explique que la compréhension des mécanismes d'endommagement en CSC soit de première importance.

Ces alliages sont ductiles à l'air ambiant et ont un allongement à rupture qui avoisine les 50%. Lorsqu'ils sont testés en traction en milieu corrosif, la rupture peut intervenir en dessous de la limite d'élasticité (exemple : 316L sollicité en traction lente dans  $MgCl_2$  à  $153^\circ C$  à potentiel libre et pour une vitesse de déformation de  $10^{-6} s^{-1}$ ). Elle est alors discontinue et les faciès de rupture sont macroscopiquement fragiles et composés de facettes cristallographiques. L'interprétation de ces faciès de rupture et de leur caractère cristallographique constitue une des clés de la compréhension des mécanismes d'endommagement en CSC. Aussi le premier objectif de ce travail sera de confronter les résultats microfractographiques obtenus sur monocristaux d'aciers inoxydables austénitiques aux prévisions des différents modèles de CSC.

Par ailleurs la plupart des cas industriels de CSC sont observés sur des matériaux écrouis. Les contraintes correspondantes sont liées soit aux contraintes de mise en oeuvre (tubes roulés, soudés, dressés, coudés, sertis, plaques embouties...), soit à l'écrouissage par déformation à froid (tréfilage, étirage, laminage..) destiné à augmenter les caractéristiques mécaniques de ces aciers. Le deuxième objectif de notre étude est double : recherche d'une parade contre la CSC et étude de l'influence d'un précrouissage en déformation sur les mécanismes d'endommagement en CSC. Le cas d'un précrouissage monotone sera tout d'abord analysé. Parallèlement, le cas d'un précrouissage en fatigue sera traité car ses conséquences sont particulièrement prometteuses pour la tenue en CSC.

Le premier chapitre décrit le contexte actuel des recherches en CSC des matériaux cubiques à faces centrées. Les principaux modèles de CSC sont décrits : modèles fondés sur la dissolution, modèles basés sur les interactions corrosion-déformation. Les mécanismes de fragilisation par l'hydrogène sont également abordés. Enfin les mécanismes élémentaires de déformation de l'austénite sont rappelés.



Le deuxième chapitre concerne les méthodes expérimentales qui nous ont permis de mener cette étude. Les matériaux utilisés y sont décrits et une attention particulière est portée au cas des monocristaux. Puis les dispositifs de CSC et de fatigue sont détaillés. Les principales techniques permettant de déterminer la cristallographie de rupture sont passées en revue. Une nouvelle méthode, spécialement destinée aux monocristaux est expliquée. Elle est basée sur la projection d'une même plage de rupture dans différents plans cristallographiques.

Le troisième chapitre a pour objectif la confrontation des résultats microfractographiques aux différents modèles de CSC. Les résultats de CSC obtenus pour les différentes orientations cristallographiques testées sont décrits. Les principales caractéristiques fractographiques sont alors comparées à la CSC des polycristaux. Elles sont ensuite confrontées aux modèles de CSC et plus particulièrement au 'corrosion enhanced plasticity model', développé au laboratoire depuis plusieurs années. L'importance des interactions corrosion-déformation est soulignée et nous conduit à détailler les interactions possibles entre les dislocations mobiles et les espèces chimiques produites en fond de fissure : hydrogène et lacunes.

Le quatrième et dernier chapitre est destiné à la recherche d'améliorations sur la résistance à la CSC. Pour cela l'influence de deux types de précrouissage sur la tenue en CSC sera analysée. Un précrouissage en traction est tout d'abord étudié car son intérêt industriel est de première importance. De nombreux aciers inoxydables sont précrouis à froid avant utilisation et l'effet néfaste de ce type de traitement sur la tenue en CSC a déjà été souligné. L'explication de cet endommagement prématuré est donc donnée. Parallèlement une grande attention est donnée à l'influence d'un précrouissage cyclique. En effet celui-ci est particulièrement prometteur et ses effets bénéfiques sur la tenue en CSC sont examinés.



## **Chapitre 1 :**

**Le contexte de notre étude :**

**les recherches actuelles en CSC des matériaux c.f.c.**



La corrosion sous contrainte (CSC) des alliages cubiques à faces centrées (c.f.c.), et plus particulièrement des aciers inoxydables austénitiques, se traduit par une forte diminution de l'allongement à rupture. Ces alliages, ductiles à l'air, sont macroscopiquement fragiles dans certains milieux corrosifs. La rupture est discontinue à l'échelle du micron et elle est composée de facettes cristallographiques [Magnin 96 (1)]. Les tentatives de compréhension de ce changement radical de comportement et les modèles de CSC qui lui sont liés sont nombreux. Ainsi l'objectif de notre travail est de discriminer parmi les principaux modèles de CSC celui qui décrit au mieux la CSC des aciers inoxydables austénitiques. Pour cela, l'interprétation des faciès de rupture et de leur caractère cristallographique constitue un outil particulièrement performant. C'est pourquoi nous avons choisi de travailler sur monocristaux orientés, de façon à décrire le plus précisément possible la cristallographie de rupture en correspondance avec les conditions de glissement. Ce chapitre est donc destiné à donner un aperçu de l'ensemble des modèles en insistant plus particulièrement sur le 'corrosion enhanced plasticity model' qui nous servira de cadre de pensée pour l'ensemble de notre travail.

Dans un premier temps, les éléments de base de la CSC des aciers inoxydables austénitiques et la terminologie employée seront rappelés. Quelques exemples d'interactions corrosion-déformation seront alors donnés pour montrer l'importance de cet effet et la nécessité de sa prise en compte dans la modélisation de la CSC. Après un bref rappel des processus électrochimiques élémentaires, nous donnerons ensuite un aperçu de l'ensemble des modèles. Les limites de ceux qui sont basés sur la dissolution anodique seule seront soulignées pour décrire plus en détails ceux qui s'appuient sur les interactions corrosion-déformation. Nous expliquerons alors pourquoi la fragilisation par hydrogène doit être prise en compte malgré le faible coefficient de diffusion de l'hydrogène dans la structure austénitique et décrirons les principaux modèles de fragilisation par l'hydrogène. Comme notre travail s'appuie sur une étude détaillée de la cristallographie de rupture, nous reviendrons sur les études qui concernent cette question. Enfin analyser la CSC en s'appuyant sur les interactions corrosion-déformation nécessite une bonne connaissance des processus de déformation. Nous concluons donc ce chapitre en revenant sur les mécanismes élémentaires de déformation plastique de l'austénite.

## **1.1 - Corrosion sous contrainte et interactions corrosion-déformation.**

Les principales caractéristiques de la corrosion sous contrainte des aciers inoxydables austénitiques sont rappelés ici. Puis quelques faits expérimentaux d'interactions corrosion-déformation sont donnés pour montrer l'importance de celles-ci et la nécessité de leur prise en compte dans toute modélisation de la CSC.

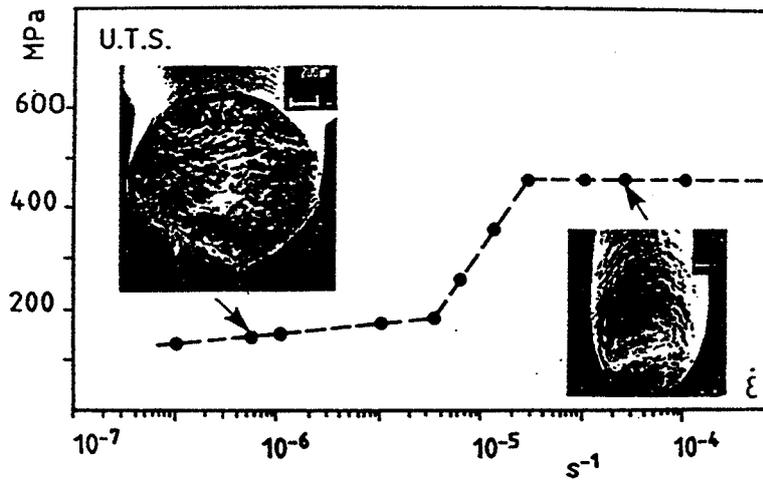


Figure 1.1 : Influence de la vitesse de déformation,  $\dot{\epsilon}$ , sur la contrainte maximale à rupture et le type de rupture.

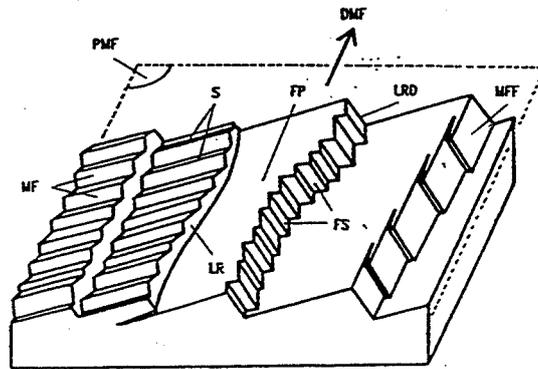


Figure 1.2 : Schéma des principaux détails microfractographiques de la CSC, présentant des facettes primaires (FP), des stries (S), des rivières (LR), des rivières dentelées LRD), des facettes secondaires (FS), des microfacettes (MF) et des microfacettes en feuillets (MFF). Le plan moyen et la direction moyenne de fissuration sont notés PMF et DMF respectivement [Dickson 92].

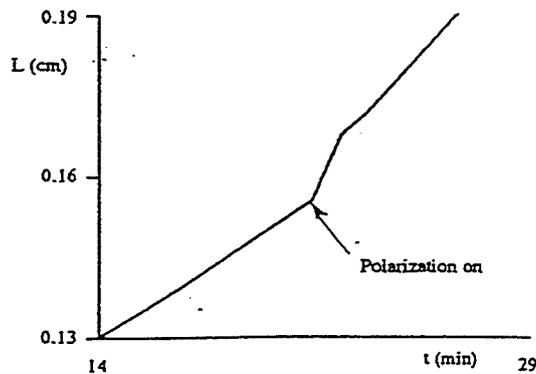


Figure 1.3 : Effet d'une polarisation sur le fluage du 304L dans une solution électrolytique (10% d'acide perchlorique dilué dans du monobutyl d'éthylène glycol) à 5°C [Olive 92].

### **1.1.1 - Corrosion sous contrainte des aciers inoxydables austénitiques.**

Les alliages cubiques à faces centrées sont connus pour être ductiles quelle que soit la température. C'est effectivement le cas des aciers inoxydables austénitiques lorsqu'ils sont sollicités en traction à l'air. Ces aciers présentent le même type de rupture, avec une forte striction, en milieu corrosif aux fortes vitesses de déformation. Par contre la fissuration par CSC présente un tout autre aspect dans  $MgCl_2$  à  $153^\circ C$  pour des vitesses de déformation inférieures ou égales à  $3.10^{-5} s^{-1}$  (figure 1.1). La fissuration est alors majoritairement transgranulaire, bien que la proportion d'intergranulaire augmente considérablement pour de fortes sollicitations mécaniques [Magnin 90 (1), Russel 79] ; elle est macroscopiquement fragile et discontinue à l'échelle du micron. La surface de rupture est composée de microfacettes cristallographiques qui sont caractéristiques de la façon dont la fissure s'est propagée (figure 1.2). Une des caractéristiques principales commune à la majeure partie des faciès de rupture est la présence de rivières ou ligaments. Ils apparaissent toujours parallèlement à la direction locale de propagation. Ils constituent des marches entre les facettes primaires et sont composés de microfacettes secondaires qui suivant leur disposition confèrent aux ligaments un aspect soit dentelé, soit en feuillets. Les facettes primaires peuvent être relativement planes et étendues (leur orientation est alors proche du plan moyen de fissuration) ou bien composées de microfacettes.

Il apparaît clairement que **l'interprétation de ces faciès et de leur caractère cristallographique constitue une des clés de la compréhension des phénomènes de CSC** et explique que notre travail expérimental soit basé sur la CSC de monocristaux orientés pour déterminer avec le plus de précision possible la cristallographie de rupture.

### **1.1.2 - Interactions corrosion-déformation.**

Dans ce paragraphe, nous allons voir, au travers de quelques exemples, que les interactions corrosion-déformation sont primordiales. En effet les endommagements mécaniques et électrochimiques ne sont pas seulement additifs mais il y a synergie entre eux. La dissolution anodique modifie la plasticité de surface et parallèlement la plasticité influe sur les réactions électrochimiques. En voici deux exemples pour les aciers inoxydables austénitiques.

#### **a - Influence d'une dissolution anodique généralisée sur le fluage du 304L**

Suite aux travaux de Desjardins [Desjardins 78], Olive et Sarrazin [Olive 92 (1)] ont testé le comportement de fils de 304L en les maintenant à charge constante dans une solution électrolytique contenant 10% d'acide perchlorique dilué dans du monobutyl d'éthylène glycol à  $5^\circ C$ . En début d'essai aucune polarisation n'est appliquée puis une différence de potentiel de

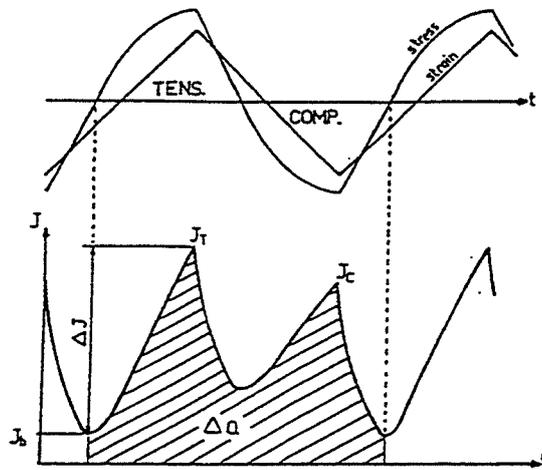


Figure 1.4 : Evolution des paramètres électrochimiques au cours d'un cycle de fatigue [Lardon 86].

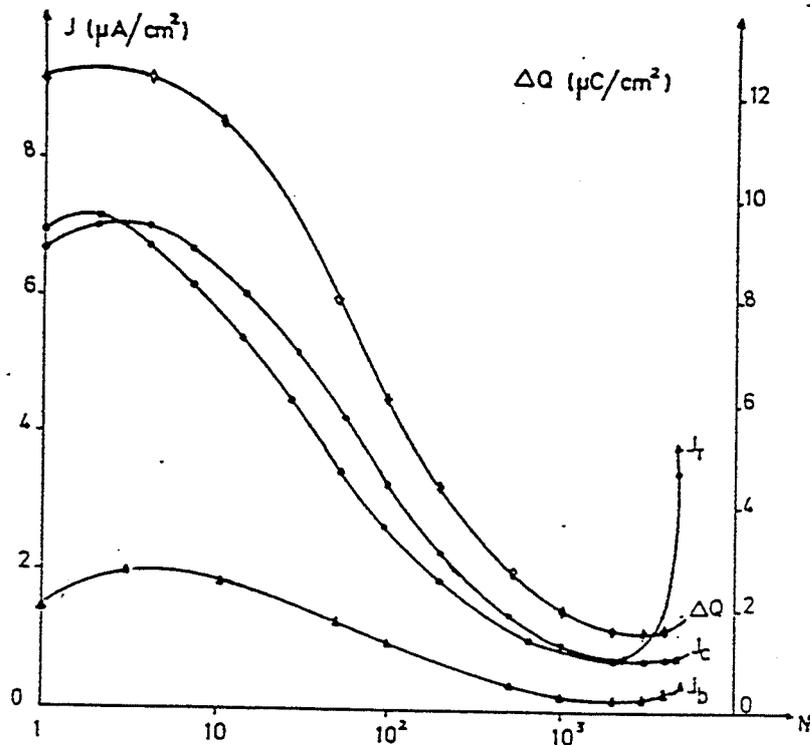


Figure 1.5 : Variation des paramètres électrochimiques  $J_T$ ,  $J_C$ ,  $J_b$  et  $\Delta Q$ . 316L sollicité dans NaCl 3% à  $\Delta\epsilon_p/2 = 4.10^{-3}$ ,  $\dot{\epsilon} = 10^{-2} s^{-1}$  à potentiel libre imposé [Lardon 86].

14V est établie pendant 20 min. Cette polarisation induit une augmentation nette du fluage (figure 1.3). Cette modification de la vitesse de déformation du 304L est attribuée par les auteurs à la dissolution anodique qui affecte le mouvement des dislocations dans la matrice car l'adoucissement n'est dû ici ni à une diminution de section, ni à la formation de fissures. Le même style de phénomène a été observé dans le cuivre. Au cours d'un test de fluage dans une solution désaérée d'acétate, on observe un adoucissement quand on impose le passage d'un courant anodique [Van der Wekken 92]. Il est donc clair que la dissolution anodique influe sur la plasticité.

### **b - Variations des paramètres électrochimiques lors d'une sollicitation de fatigue.**

L'évolution des paramètres électrochimiques du 316L sollicité en fatigue-corrosion à déformation plastique imposée ( $\Delta\varepsilon_p/2 = 4.10^{-3}$ ) dans NaCl 3% à potentiel libre imposé a été analysée [Lardon 86].  $J_T$  et  $J_C$  sont les valeurs des pics de courant anodique en traction et compression (figure 1.4),  $J_b$  caractérise l'activité électrochimique au moment de l'inversion du signal.  $\Delta Q$  est la quantité d'électricité consommée par cycle. La formation de nombreuses lignes de glissement en surface a pour conséquence un endommagement du film passif qui se traduit par une forte augmentation de l'amplitude de ces paramètres électrochimiques car la surface dépassivée augmente (figure 1.5). On a ensuite localisation de la déformation plastique au sein de bandes de glissement. La surface dépassivée est donc moins importante, ce qui provoque une chute du courant global (alors que localement le courant continue à croître). Enfin l'augmentation finale du courant s'explique par l'apparition de microfissures de taille suffisante pour rendre la repassivation plus difficile.

Nous n'avons donné ici que deux exemples mais un panel beaucoup plus complet des interactions corrosion-déformation est donné dans [Magnin 96 (2)]. Il montre que les endommagements électrochimique et mécanique ne sont pas simplement additifs mais qu'il y a synergie entre ces deux paramètres : une dissolution anodique peut modifier la plasticité de surface d'un matériau et cette plasticité peut également intervenir sur les réactions électrochimiques.

La CSC est un phénomène complexe qui se traduit par une fissuration macroscopiquement fragile, discontinue à l'échelle du micron et composée de facettes cristallographiques. Toute modélisation de la CSC devra donc décrire ces aspects fractographiques. Pour y parvenir une étude détaillée de la cristallographie de rupture sera précieuse, ainsi que la prise en compte des interactions corrosion-déformation.

## **1.2 - Mécanismes de fissuration en corrosion sous contrainte.**

Nous décrivons ici les principaux modèles susceptibles de rendre compte des processus d'endommagement en CSC. Nous abordons dans un premier temps les mécanismes

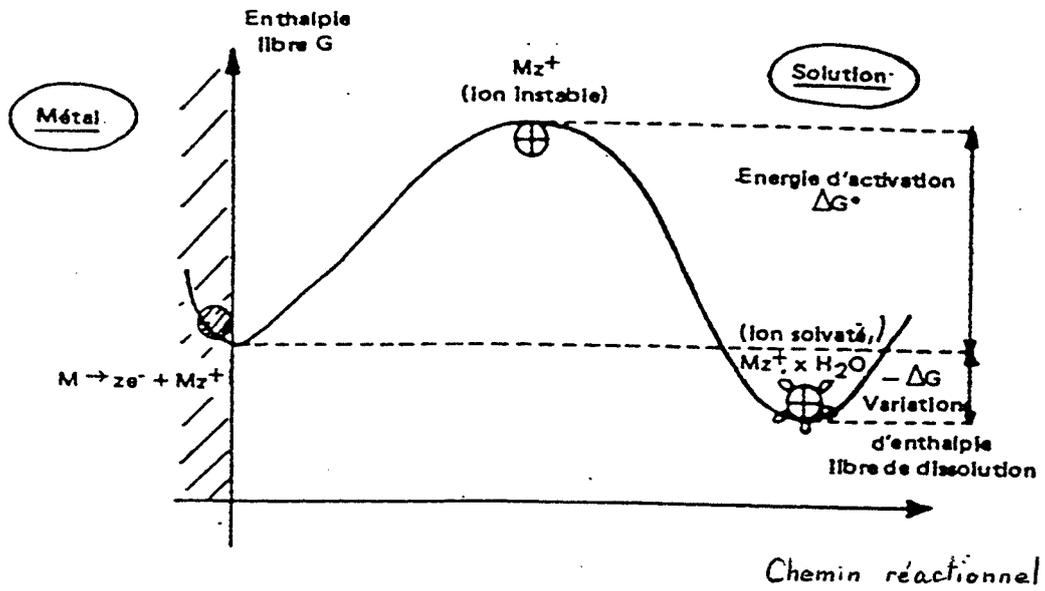


Figure 1.6 : Schématisation de la dissolution anodique d'un métal.

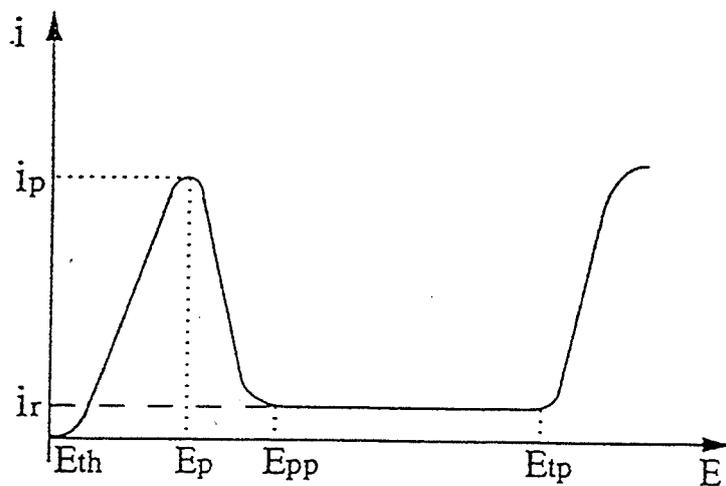


Figure 1.7 : Evolution du courant anodique en fonction du potentiel électrochimique.

fondés sur la dissolution, puis nous détaillons plus largement les modèles qui intègrent les interactions corrosion-déformation. Enfin les modèles de fragilisation par hydrogène sont passés en revue en expliquant pourquoi ils doivent être considérés dans le cas des aciers inoxydables austénitiques.

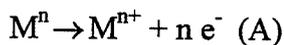
### 1.2.1 - Mécanismes basés sur la dissolution seule

Dans ce paragraphe nous rappelons les mécanismes élémentaires de dissolution anodique et de formation du film passif. Puis nous décrivons deux modèles qui s'appuient sur le concept d'enlèvement de matière par dissolution. Enfin nous concluons sur les limitations de telles approches pour expliquer la CSC.

#### a - Dissolution anodique et film passif

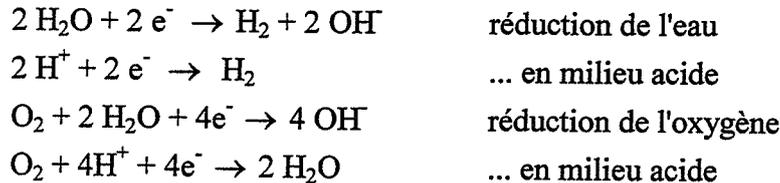
La corrosion électrochimique peut-être schématisée comme une 'pompe à électrons' fonctionnant en circuit fermé, liée aux réactions d'oxydation et de réduction.

La réaction de dissolution s'écrit :



où n est la valence de l'ion stable.

Pour se poursuivre cette réaction nécessite l'existence d'une réaction cathodique consommatrice des électrons ainsi créés. Cette réaction (K) peut être :



L'ensemble de ces deux réactions est caractérisé par deux grandeurs électrochimiques :

- Le potentiel électrochimique E est l'écart au potentiel d'équilibre, il est créé par la variation d'enthalpie libre,  $-\Delta G$ , des atomes du métal qui passent à l'état d'ions solvatés (figure 1.6)

$-\Delta G = n.E.F$  où n est la valence, F le faraday

- Le courant de dissolution I correspond à la quantité d'atomes dissous par unité de temps, il est lié à l'énergie d'activation  $\Delta G^*$  :  $I \propto \exp(-\Delta G^* / RT)$ .

Ainsi E caractérise l'énergie disponible pour la dissolution à l'interface métal / milieu alors que I représente la cinétique de cette dissolution.

Les réactions (A) et (K) se traduisent par des courants électriques anodique ( $i_A$ ) et cathodique ( $i_K$ ) fonction de la différence de potentiel E entre le métal et la solution aqueuse. A l'état stationnaire la somme  $i_G = i_A + i_K$  est nulle, ce qui détermine le potentiel de corrosion  $E_{corr}$  (également appelé potentiel libre ou potentiel d'abandon). Par contre si on s'éloigne de cette valeur de potentiel, on favorise l'une ou l'autre des réactions. La figure 1.7 donne l'évolution du courant anodique en fonction du potentiel électrochimique d'un matériau

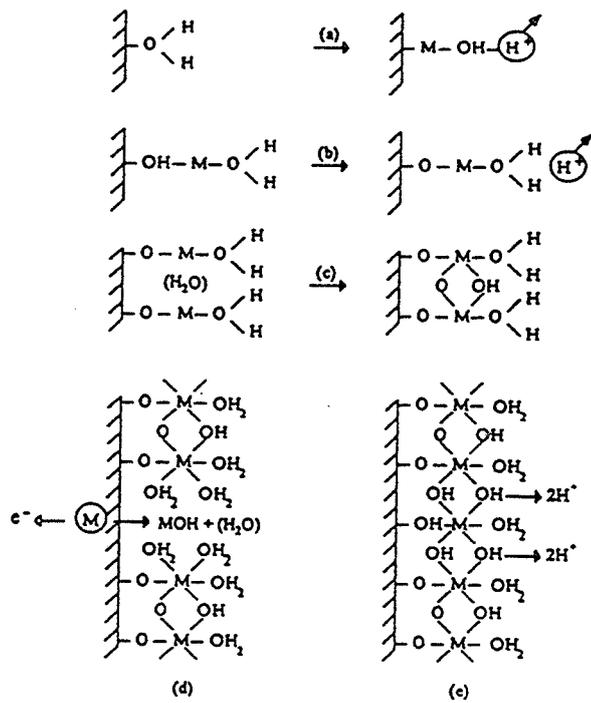


Figure 1.8 : Formation du film passif par déprotonation de l'eau :  
 a- dissolution d'un cation et déprotonation de l'eau  
 b- répétition du processus  
 c- pontage entre sites voisins  
 d- film partiellement formé  
 e- film consolidé par déprotonation.

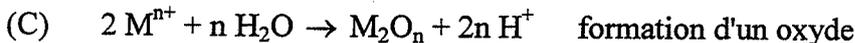
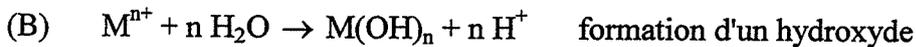
passivable. La relation  $E = f(I)$  donne pour un métal dans une solution donnée les différents domaines de corrosion.

Il est intéressant de considérer le pic d'activité qui correspond au maximum de  $i_p$  ou courant critique de passivation :

- si  $E < E_{th}$ , la réaction  $H^+ + e^- + M \rightarrow MH_{ads}$  est favorisée
- si  $E_{th} < E < E_p$ , la réaction de dissolution généralisée (A) est prépondérante
- si  $E_p < E < E_{pp}$  (domaine prépassif), on observe un début de passivation
- si  $E_{pp} < E < E_{tp}$ , un film stationnaire et protecteur s'établit
- si  $E_{tp} < E$ , on est dans le domaine transpassif où apparaissent les piqûres.

Ces différents domaines sont d'une grande importance dans les mécanismes d'endommagement en CSC et en fatigue-corrosion (pour plus de détails voir [Magnin 95]).

La réaction de dissolution anodique (A) est généralement suivie de l'hydrolyse des cations :



Ces deux réactions libèrent des protons (ce qui entraîne une chute du pH) qui seront réduits et pourront par adsorption puis absorption pénétrer dans le matériau, mais nous reviendrons sur ces processus dans le paragraphe 1.2.3.

Par ailleurs il se forme des oxydes et hydroxydes à l'interface métal/solution qui sont suffisamment bien organisés pour constituer un film protecteur vis à vis de la dissolution anodique, grâce à la résistance qu'ils offrent au passage des cations (figure 1.8). Pour des raisons cinétiques, la 'corrosion' du métal en milieu aqueux devient alors pratiquement négligeable et on dit que l'interface entre le métal et la solution est passivée. Il y a déprotonation du film passif. Il est riche en hydroxydes ou en oxyhydroxydes plus ou moins hydratés et se transforme peu à peu en oxyde par déprotonation (réaction (B) et (C)).

Le film passif est composé d'oxyhydroxydes complexes. Il peut être considéré comme un film composite comprenant une couche interne de nature oxyde et une couche externe d'hydroxydes [Marcus 88]. Il est généralement très mince. Les films formés sur les aciers inoxydables en milieu acide ont une épaisseur de 10 à 30 Å [Marcus 90]. Le plus souvent, on note pour ces alliages un enrichissement marqué en chrome oxydé dans les films passifs, enrichissement généralement considéré comme étant à l'origine de leur bonne résistance à la corrosion. Pour une concentration nominale en Cr dans l'alliage de 17 à 21%, la concentration dans le film passif peut atteindre 50 à 96% [Marcus 90]. Pour les aciers inoxydables, le nickel participe directement à la composition du film passif. Il semble avoir un rôle modérateur lors de la corrosion généralisée par dissolution anodique en régime actif [Baroux 90]. Plusieurs résultats ont montré la présence de molybdène dans le film mais son rôle exact dans les mécanismes de passivation fait encore l'objet de discussions.

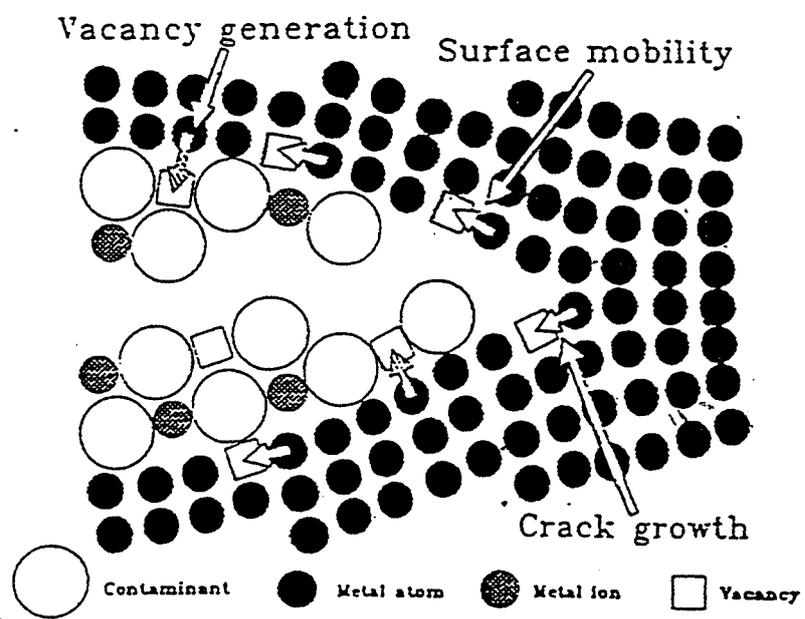


Figure 1.9 : Illustration du modèle de Galvele [Galvele 87].

En fait, la connaissance de ces films est importante car une majorité de cas de corrosion sous contrainte, en particulier pour les aciers inoxydables, se produit en présence d'un film protecteur [Combrade 90 (1)]. En fait tout événement susceptible de l'endommager localement permet une localisation de la dissolution anodique et de la réaction cathodique, et induit une localisation des dommages notamment par l'hydrogène [Coudreuse 90].

C'est pourquoi la corrosion sous contrainte des aciers inoxydables est particulièrement marquée en milieu chloruré, car la présence d'ions chlorures a tendance à favoriser les réactions de déstabilisation du film [Baroux 90]. De même l'endommagement des films par déformation et leur aptitude à se reformer est de la première importance dans la plupart des cas de CSC, en particulier pour les aciers inoxydables [Combrade 90 (2)].

### **b - Mobilité des atomes de surface**

Ce premier modèle, proposé par Galvele [Galvele 87], n'est pas basé sur les interactions corrosion-déformation mais il propose une interprétation intéressante du rôle joué par les lacunes. Il suppose que la propagation des fissures en CSC est basée sur la capture de lacunes au niveau du fond de fissure, là où la concentration de contrainte est élevée (figure 1.9). Le rôle de l'environnement corrosif est double : il augmente l'autodiffusion de surface du métal et il assure un apport de lacunes à la surface du métal. Suite à la concentration de contrainte de fond de fissure, il y a réduction de l'énergie libre de formation de lacunes et l'échange entre l'atome du fond de fissure qui est le plus contraint (et donc le moins stable chimiquement) et une lacune est favorisé. Il y a ensuite migration des lacunes le long des lèvres de la fissure. Cette diffusion de surface est d'autant plus élevée que la température de fusion du film protecteur est basse et que la contrainte est localement importante. La cinétique du processus est contrôlée par la diffusion des lacunes le long des lèvres de la fissure.

La vitesse de propagation des fissures est donnée par :

$$\frac{da}{dt} = \frac{D_s}{L} \left[ \exp\left(\frac{\sigma a^3}{kT}\right) - 1 \right]$$

$D_s$  : coefficient d'autodiffusion de surface     $L$  : distance de diffusion

$a$  : distance atomique

$\sigma$  : contrainte maximale en pointe de fissure

$k$  : constante de Boltzmann

$T$  : température

Ce modèle permet d'estimer la durée de vie des échantillons. Cependant il ne prend pas en compte les effets de l'hydrogène, il prévoit que la fissure est toujours perpendiculaire à l'axe de traction et n'est pas en accord avec l'aspect discontinu de la propagation.

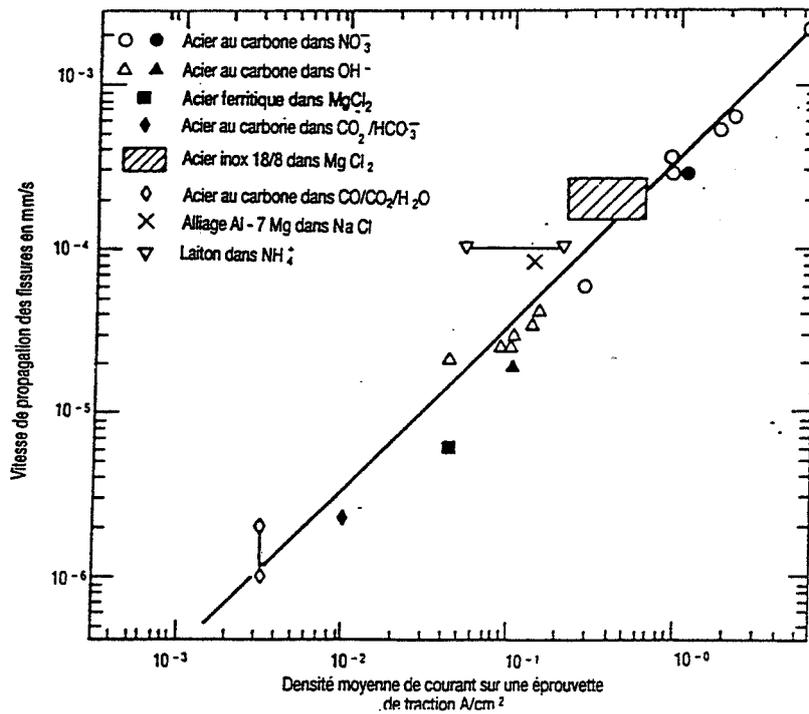


Figure 1.10 : Corrélation entre les vitesses de fissuration observées sur différents systèmes et les courants de dissolution anodique mesurés lors d'essais de traction à potentiel imposé [Parkins 79].

### **c - Modèle de dissolution anodique.**

La propagation d'une fissure résulte de l'endommagement périodique du film protecteur consécutif à une déformation continue du substrat. Il y a donc dissolution du métal mis à nu, d'où l'idée du 'slip dissolution model' proposée par Ford [Ford 84]. La vitesse de propagation s'exprime par :

$$\bar{V}_t = \frac{M}{\rho z F} \cdot \frac{Q_f}{t_f} = \frac{M}{\rho z F} \cdot \frac{Q_f}{\epsilon_f} \dot{\epsilon}_{CT} \quad , \quad t_f = \frac{\epsilon_f}{\dot{\epsilon}_{CT}}$$

$t_f$  : temps à la rupture du film

$r$  : densité atomique du métal

$\epsilon_f$  : déformation à la rupture du film

$F$  : constante de Faraday

$M$  : masse atomique du métal

$z$  : nombre d'électrons mis en jeu dans la réaction

$Q_f$  : quantité de charge échangée pendant

d'oxydation du métal

le transitoire dissolution-repassivation

$\dot{\epsilon}_{CT}$  : vitesse de propagation en pointe de fissure

Les paramètres fondamentaux qui gouvernent la propagation sont donc :

- la vitesse de propagation en pointe de fissure,  $\dot{\epsilon}_{CT}$ , qui gouverne notamment la fréquence de rupture du film.

- la cinétique de dissolution et de repassivation du métal.

Parkins est à l'origine de ce modèle [Parkins 79]. Il fut le premier à mettre en évidence la proportionnalité qui existe entre les cinétiques de dissolution-repassivation et les vitesses moyennes de propagation de fissures comme le montre la figure 1.10. La difficulté majeure d'application de ce modèle est la détermination de  $\dot{\epsilon}_{CT}$  et de  $Q_f$ .

Ce modèle a été un des premiers à être développé mais il ne permet pas de décrire l'ensemble de l'endommagement en CSC. Il faut cependant garder à l'esprit l'idée de proportionnalité entre la vitesse de propagation et la densité de courant. Il donne l'image d'un processus limitant de la CSC et permet d'accéder à un modèle quantitatif, ce qui explique qu'il reste largement utilisé par de nombreux industriels.

Les modèles basés sur le concept d'enlèvement de matière ont le mérite de proposer une quantification de la vitesse de fissuration,  $da/dt$ , ce qui reste le but à atteindre dans toute modélisation de la CSC. De plus le premier permet de garder à l'esprit les problèmes de diffusion et le deuxième l'idée de proportionnalité entre les vitesses de fissuration et la densité de courant anodique. Cependant cette approche purement électrochimique ne peut être retenue car elle n'explique ni la discontinuité de la fissuration, ni l'aspect cristallographique de la rupture. Enfin elle paraît insuffisante face aux nombreuses preuves expérimentales qui soulignent l'effet majeur des interactions corrosion-déformation.

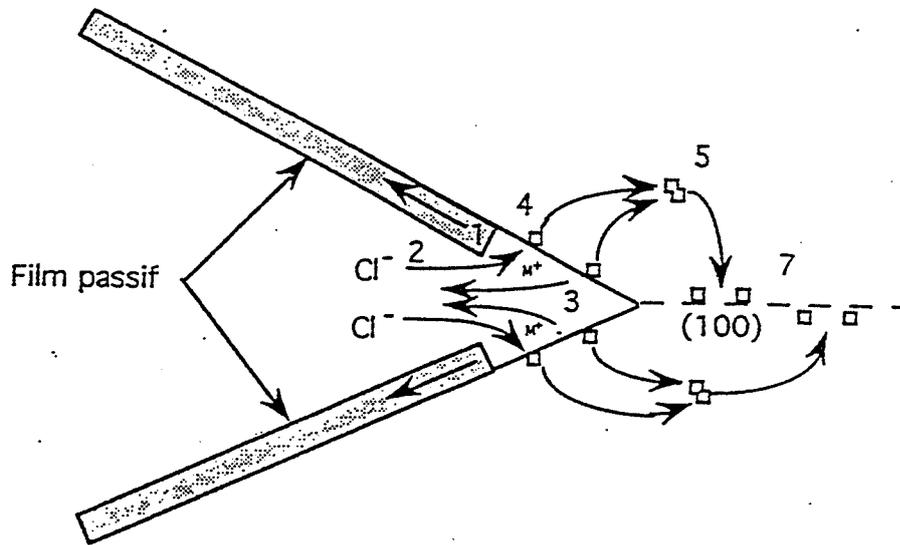


Figure 1.11 : Schéma des différentes étapes mises en jeu dans le modèle de Jones [Jones 85].

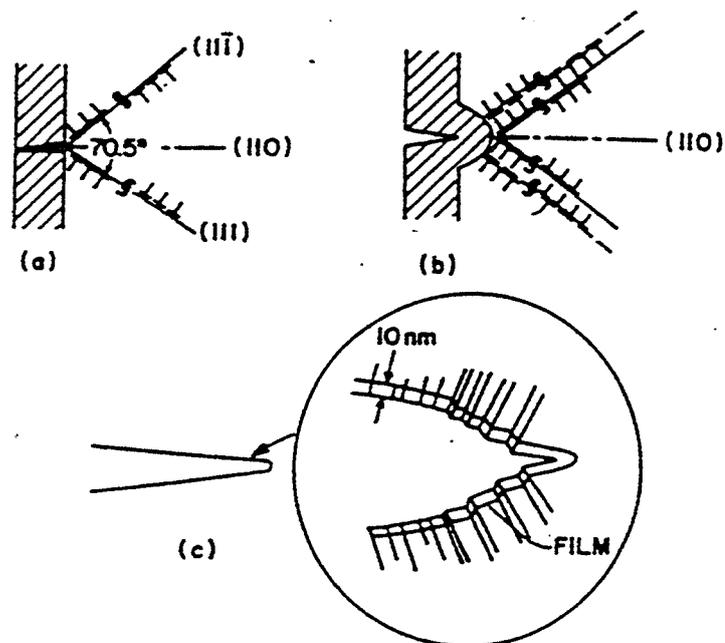


Figure 1.12 : Clivage induit par rupture du film [Sieradski 85].

## **1.2.2 - Modèles basés sur l'interaction dissolution-plasticité**

### **a - Modèle lié à l'effet de lacunes**

Ce modèle proposé par Jones [Jones 85] a pour but de rendre compte du quasi-clivage observé en CSC et en fatigue corrosion. Il s'applique à des matériaux recouverts d'un film passif protecteur sollicités dans un domaine de potentiel où il y a compétition entre dépassivation et repassivation. Jones suggère que la dissolution anodique provoque un adoucissement local du matériau sur les sites où le film passif se rompt, réduisant ainsi la contrainte nécessaire à la fissuration.

Les différentes étapes sont (figure 1.11) :

- 1 - rupture du film protecteur par émergence des plans de glissement lors de l'accommodation plastique en fond de fissure.
- 2 - retard de la repassivation du métal à cause de l'adsorption d'ions  $\text{Cl}^-$ .
- 3 - dissolution anodique localisée en fond de fissure, accentuée par un effet de couplage galvanique entre le métal mis à nu et le film protecteur.
- 4 - formation de lacunes en sous couche qui atténuent le durcissement en surface et augmentent la mobilité des dislocations. De plus, d'après l'auteur, les possibilités de glissement sont restreintes à cause de la triaxialité de contrainte en fond de fissure. Cette restriction du glissement combinée à l'atténuation du durcissement favorise la rupture fragile.
- 5 - formation de bilacunes dont la diffusion est plus rapide que celle des lacunes.
- 6 - accumulation des bilacunes sur les plans prismatiques  $\{100\}$  et  $\{110\}$ .
- 7 - amorçage des fissures sur ces plans. Les possibilités de glissement étant restreintes, propagation par clivage puis arrêt. La séquence peut alors recommencer.

C'est un des premiers modèles à proposer une interaction entre corrosion et déformation. Il rend bien compte de l'effet du film en CSC et de la proportionnalité entre vitesse de fissuration et amplitude de dissolution. Son inconvénient majeur est le rôle qu'il attribue aux bilacunes. En effet leur diffusion massive n'a jusqu'alors jamais été observée expérimentalement. De plus les orientations cristallographiques prévues par le modèle ne sont pas en accord avec la cristallographie de rupture des aciers inoxydables austénitiques.

### **b - Clivage induit par rupture du film.**

Ce modèle a été proposé et développé par Sieradski et Newman [Sieradski 85], suite à de nombreux travaux sur les alliages de cuivre. Il s'applique aux alliages ductiles dont la dissolution sélective d'un des éléments chimiques provoque la formation d'une couche déalliée, poreuse et fragile, à la surface du métal.

D'après les auteurs, les étapes de propagation d'une fissure sont les suivantes (figure 1.12) :

- formation en surface d'un film fragile par dissolution sélective.

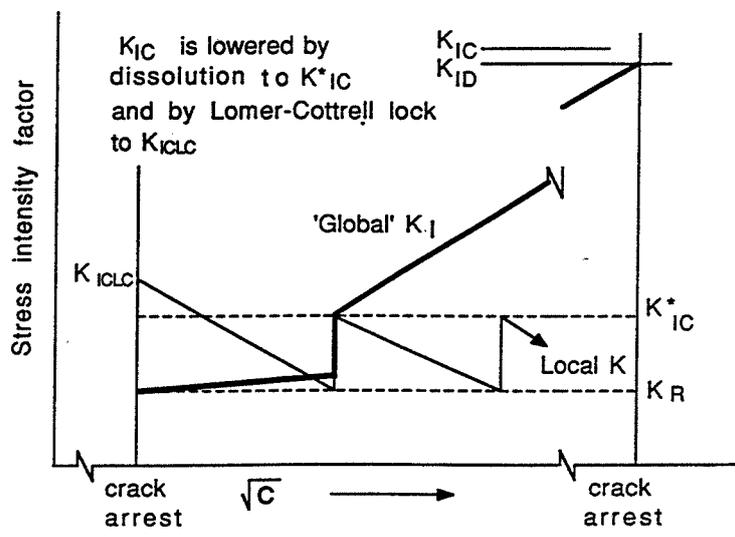


Figure 1.13 : Représentation schématique du changement du facteur d'intensité de contrainte quand la fissure se propage. Le trait fin représente la situation en fond de fissure et le trait épais celle loin du fond de fissure [Flanagan 93].

- amorçage d'une fissure dans ce film.
- propagation de la fissure dans le métal à travers l'interface film-métal sur une distance de quelques micromètres.
- arrêt et émoussement de la fissure par émission de dislocations.

Le phénomène de propagation de la fissure dans le substrat est d'autant plus marqué que le film est cohérent avec le métal. De plus le comportement du matériau dépend du rapport des vitesses de la fissure et des dislocations émises pendant la propagation.

Les auteurs ont pu corréliser les arrêts de la fissuration discontinue avec des mesures d'ultrasons et de transitoires de courant. Ils ont étudié le comportement mécanique d'un matériau recouvert d'un film mince et soumis à une charge constante en effectuant une modélisation numérique de l'ensemble matériau-film. En utilisant les calculs de Rice et Thomson [Rice 74], ils ont ainsi pu établir un lien entre la rupture par clivage du film et les caractéristiques de ce dernier, c'est à dire : paramètre de maille par rapport à celui du substrat, son caractère fragile ou ductile, sa cohérence avec le substrat, son module d'élasticité par rapport à celui du substrat et enfin son épaisseur [Sieradski 87].

Ce modèle est particulièrement performant pour expliquer la fissuration discontinue des alliages possédant une couche déalliée (Au-Ag, Au-Cu, laiton  $\alpha$ ). Cependant, il est difficilement transposable aux métaux purs (Cu pur) ou aux alliages tels que les aciers inoxydables.

### c - Quasi-clivage assisté par la corrosion.

Flanagan et Lichter ont proposé ce modèle [Flanagan 93] qui est en concurrence avec le précédent. Il s'appuie sur des travaux réalisés sur des monocristaux de Cu-25Au sollicités dans NaCl 0,6M. D'après les auteurs, la gamme de potentiel choisie interdit toute fragilisation par l'hydrogène.

Les fissures de corrosion sous contrainte se forment par ouverture soudaine d'une barrière de Lomer-Cottrel suite à la dissolution active qui a lieu le long des lignes de glissement dans lesquelles la barrière s'est formée.

Les auteurs ont constaté que la fissuration était différente suivant le sens de propagation de la fissure. La fissuration est continue dans le plan  $\{110\}$  dans toutes directions autres que  $\langle 001 \rangle$ . Dans ces cas là, les plans de glissement n'ont pas d'arête commune avec le fond de fissure et l'état de contrainte du verrou est modifié par le processus de corrosion qui a lieu en fond de fissure. En effet la dissolution sélective d'atomes à la pointe de la fissure a pour effet de réduire le facteur d'intensité de contrainte critique  $k_{IC}$  (figure 1.13) [Flanagan 93]. De plus cette dissolution accrue le long des bandes de glissement a pour conséquence d'augmenter la contrainte agissant pour rompre la barrière sans augmenter la contrainte de cisaillement [Flanagan 95]. Les effets combinés sont localement suffisants pour induire une fissure fragile sur  $\{110\}$ .

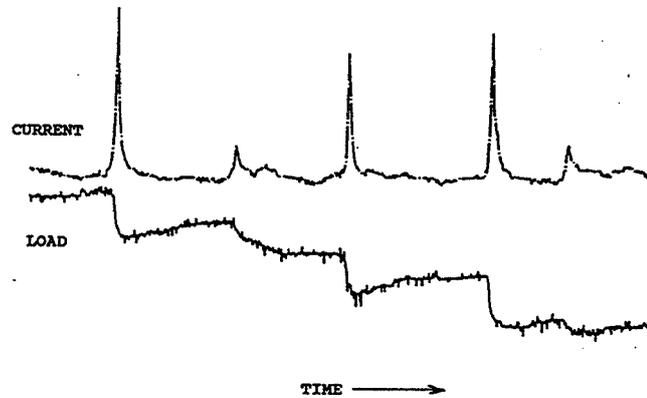


Figure 1.14 : Enregistrement de la force et du courant en fonction du temps pour des monocristaux de Cu-25Au sollicités dans NaCl 0,6M à 380mV (SCE) [Flanagan 94].

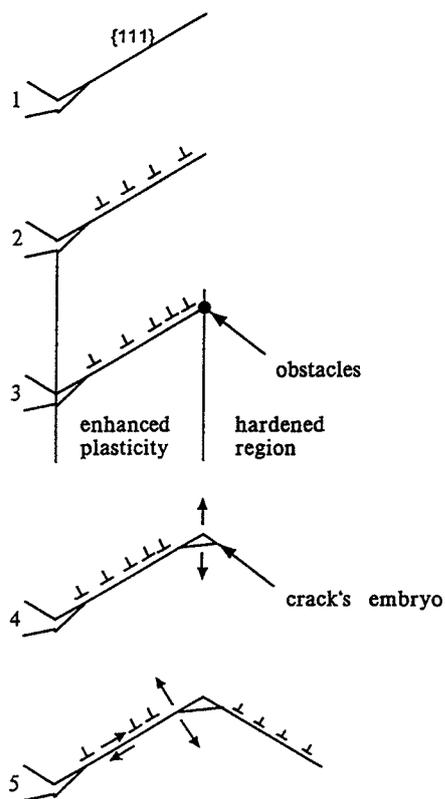


Figure 1.15 : Schéma des différentes étapes du 'corrosion enhanced plasticity model' [Magnin 90].

Par contre dans la direction  $\{110\} \langle 001 \rangle$ , la fissuration est discontinue. En effet les plans de glissement sont en zone avec le fond de fissure. L'émission de dislocations et la relaxation par formation de bandes de cisaillement favorisent l'émoussement de la fissure et donc la possibilité qu'elle soit arrêtée.

Les auteurs ont enregistré une très bonne corrélation entre les transitoires de courant et ceux de la force (figure 1.14) [Flanagan 94]. Ils montrent que la CSC est le fruit de plusieurs microclivages dont chacun permet d'augmenter la contrainte en fond de fissure et stimule l'émission de dislocations. La fissure croît jusqu'à ce qu'une source externe de dislocations soit activée et ceci se traduit par l'émoussement puis l'arrêt de la fissure. L'amplitude des chutes de force sur les enregistrements est une mesure de l'avancée des fissures et la pente représente la vitesse de fissuration.

Ce modèle est performant pour expliquer l'absence ou non de discontinuité de fissuration suivant le sens de propagation. Il est en très bon accord avec les résultats expérimentaux de l'alliage Cu-25Au et des alliages de laiton  $\alpha$  [Lichter 96]. La principale limite du modèle est le rôle qu'il attribue à la dissolution, qui doit agir fortement et rapidement pour que la propagation des fissures soit assurée, d'où sa limitation aux alliages concernés par la dissolution sélective de l'un des éléments. Enfin, comme le souligne Jones dans [Jones 95], il est difficile d'imaginer que la corrosion n'affecte que les liaisons atomiques du fond de fissure et maintienne une fissure étroite.

#### **d - Quasi-clivage induit par adoucissement localisé ou 'corrosion enhanced plasticity model'.**

Ce modèle, proposé par T. Magnin [Magnin 90 (2)], est applicable à tous les alliages ductiles, passivables et de structure cubique à faces centrées. Il s'appuie sur les effets d'adoucissement observés en fatigue-corrosion en condition de dissolution anodique.

Les différentes étapes du modèle sont les suivantes (figure 1.15) :

- 1 - L'émergence en surface des plans de glissement  $\{111\}$  provoque la rupture du film passif et conduit à une dissolution anodique localisée sur ces plans, accentuée par l'effet de couplage galvanique entre le métal mis à nu et le film passif. La présence d'ions  $\text{Cl}^-$  en solution peut accentuer ce phénomène en retardant la repassivation.
- 2 - La localisation de la dissolution, couplée à l'absorption d'hydrogène sur les plans de glissement, conduit localement à une augmentation de la plasticité sur ces plans et à une diminution de la contrainte critique de cisaillement. L'injection de lacunes en sous couche, suite à la dissolution, et l'adsorption ainsi que l'absorption d'hydrogène rendent les dislocations de type A (figure 1.16) plus mobiles, de telle sorte que l'émoussement de la fissure (dislocations B) est réduit. Ainsi le rôle de la corrosion est essentiel mais indirect : elle provoque une augmentation locale de la plasticité.

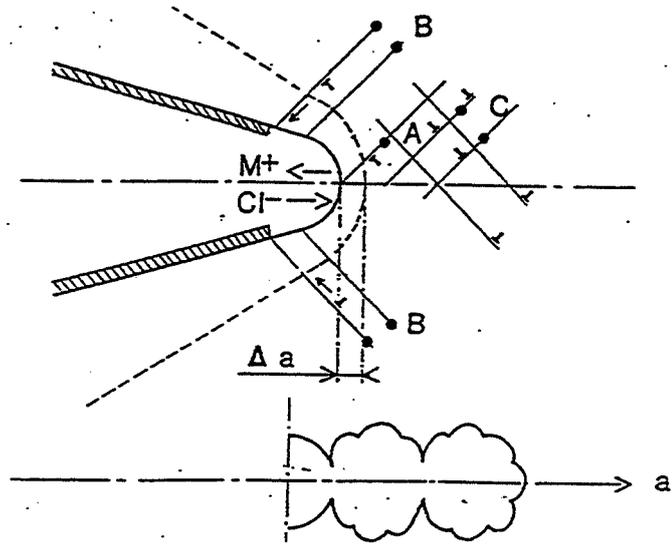


Figure 1.16 : Arrangement des dislocations en fond de fissure.

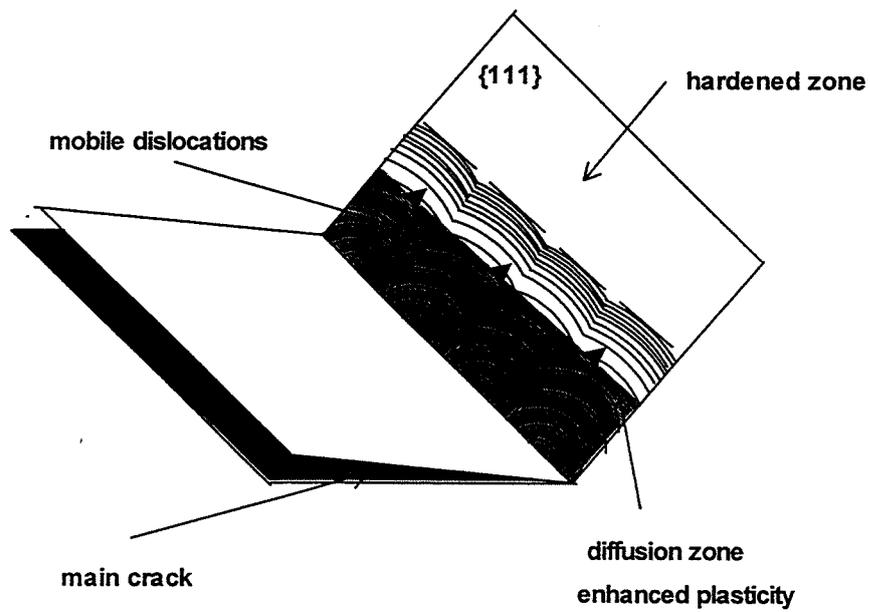


Figure 1.17 : Formation d'empilements à l'interface existant entre la zone durcie et la zone adoucie [Magnin 96].

3 - Les dislocations précédemment émises interagissent avec les obstacles présents en avant de la fissure tels que les précipités, les joints de grains ou les configurations de dislocations formées lors de la mise en charge (amas de dislocations, barrières de Lomer... ). Il se forme un empilement de dislocations sur l'obstacle. On distingue donc deux zones : une proche de la surface où la plasticité est localement augmentée, et une autre zone préalablement durcie par plasticité en avant du fond de fissure.

4 - Si l'obstacle est suffisamment fort, la valeur locale du facteur d'intensité de contrainte,  $k_{IC}$ , peut être atteinte, en particulier si cette valeur est réduite par l'absorption d'hydrogène. Un embryon de fissure se forme alors sur l'obstacle par le mécanisme de Stroh [Stroh 56].

5 - L'énergie de décohésion des microfacettes  $\{111\}$  pouvant être diminuée par l'hydrogène, il peut se produire une rupture suivant ces plans. Des dislocations sont alors émises sur le plan de glissement symétrique pour écranter la nouvelle pointe de fissure, comme démontré par le calcul [Magnin 92].

6 - Le processus peut alors recommencer et on assiste à des changements réguliers des plans de fissuration.

Ce modèle rend bien compte des effets possibles de synergie entre la corrosion et la déformation. Cette synergie a pour effet de localiser la déformation sur les plans de glissement à la pointe de la fissure, empêchant l'émoussement et la rupture ductile. La rupture macroscopiquement fragile s'explique par une limitation de l'activité des dislocations de type B au profit de celles de type A, ce qui en empêchant l'émoussement maintient une fissure toujours aiguë. De plus le modèle permet de bien comprendre que la fissuration soit discontinue alors que la sollicitation est monotone. Cette discontinuité a été observée à l'échelle du micron et cette distance correspond à celle qui sépare les amas de dislocations observés par microscopie électronique à transmission sur du 316L [Magnin 90 (2)].

Un point faible de ce modèle était qu'il suppose l'existence d'obstacles suffisamment forts pour atteindre localement  $k_{IC}$ . Ceci est cependant tout à fait réaliste pour les alliages cubiques à faces centrées à faible valeur de  $\Gamma/\mu b$  comme les aciers inoxydables austénitiques pour, lesquels le glissement dévié est restreint. De plus, le fait que H diminue  $k_{IC}$  permet de comprendre que la valeur locale de  $k_{IC}$  soit atteinte.

Une autre difficulté est liée à l'aspect rectiligne des arêtes des microfacettes, qui n'est pas en accord avec des obstacles quasi ponctuels tels que les précipités ou les barrières de Lomer. Une réponse a récemment été apportée à ce problème [Magnin 96 (2)]. On considère que l'obstacle correspond en fait à l'interface existant entre la zone où la plasticité est accrue et celle préalablement durcie. Cette interface est liée à la zone de diffusion de l'hydrogène (et/ou des lacunes) comme le montre la figure 1.17. Dans cette zone de diffusion, la mobilité des dislocations est accrue, ce qui conduit à la formation d'empilements en avant du front de diffusion. Le processus de rupture est lié à la compétition entre les cinétiques d'émission de dislocations et de diffusion de l'hydrogène (et/ou des lacunes) (pour plus de détails sur les

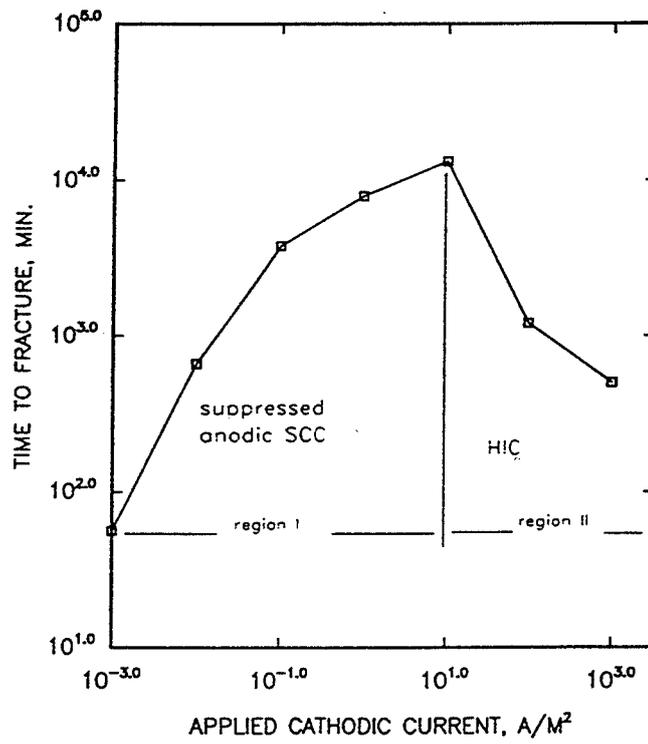


Figure 1.18 : Effet d'une polarisation cathodique sur le temps à rupture en CSC d'un acier 321 dans LiCl bouillant à 143°C [Qiao 95].

calculs et simulations concernant cette compétition se référer aux travaux de J.P. Chateau [Magnin 97]).

Enfin le modèle permet d'intégrer les observations cristallographiques de la rupture des aciers inoxydables austénitiques en milieu chloruré.

Les caractéristiques majeures de la fractographie des aciers inoxydables en CSC sont les suivantes : discontinuité à l'échelle du micron, fissuration sur des facettes cristallographiques de type  $\{111\}$  et  $\{100\}$  [Dickson 89, Olive 90 (2)]. Aussi parmi tous les modèles qui considèrent les interactions corrosion-déformation, le dernier modèle présenté est celui qui est le plus en accord avec les résultats obtenus sur notre alliage. C'est pourquoi il nous servira de base de réflexion tout au long de cette étude et nous le confronterons à nos propres résultats expérimentaux. En fait tout au long de ce travail, nous utiliserons ce modèle comme un cadre de pensée qui nous suggérera les expériences les plus pertinentes à réaliser.

### **1.2.3 - Modèles liés à la fragilisation par hydrogène**

Les aciers inoxydables austénitiques ont la réputation de présenter une bonne résistance aux phénomènes de fragilisation par l'hydrogène [Coudreuse 90]. En effet le coefficient de diffusion de l'hydrogène dans la structure compacte c.f.c. est faible (coefficient de diffusion dans le fer g :  $D_{25^\circ\text{C}} = 2.10^{-16} \text{ m}^2/\text{s}$  [Chêne 90]). Ceci interdit toute diffusion massive à longue distance de l'hydrogène dans la structure austénitique. Pourtant il faut garder à l'esprit que la quantité d'hydrogène en fond de fissure est loin d'être négligeable puisque le pH d'une solution de  $\text{MgCl}_2$  à  $117^\circ\text{C}$  est inférieur à 1 [Russell 79]. En fait les données sur la fragilisation par l'hydrogène des aciers inoxydables austénitiques sont très contradictoires et ceci s'explique grâce notamment aux travaux de Qiao [Qiao 95]. Il montre en effet que la corrosion sous contrainte est gouvernée par la dissolution anodique, ce qui est en accord avec la relation de proportionnalité entre vitesse de fissuration et courant anodique [Parkins 79], mais que la fragilisation par hydrogène ne peut être écartée. Si on polarise cathodiquement dans  $\text{LiCl}$  à  $143^\circ\text{C}$  un acier inoxydable de type 321 (figure 1.18), la CSC est tout d'abord stoppée car on diminue la réaction de dissolution anodique et la concentration en hydrogène est trop faible pour induire un effet. Par contre, au delà d'une valeur de courant cathodique critique ( $i > 100 \text{ A/m}^2$ ), la fragilisation par l'hydrogène intervient car sa concentration est telle qu'elle joue sur la cohésion du réseau. En fait, l'hydrogène semble intervenir dans deux domaines de potentiel : à potentiel cathodique par fragilisation par l'hydrogène et à potentiel libre en CSC. C'est pourquoi après un bref rappel des propriétés de l'hydrogène nous listerons les principaux modèles de fragilisation par hydrogène.

L'hydrogène est le plus petit des atomes et son rayon ( $0,53\text{\AA}$ ) est de l'ordre de grandeur des sites interstitiels des métaux. Les sites privilégiés pour les c.f.c. sont les sites octaédriques. De part sa taille et sa masse, l'hydrogène a une mobilité dans les métaux de dix ordres de



grandeurs supérieure à celle des autres interstitiels, même si la structure compacte des c.f.c. fait qu'elle y est beaucoup plus faible que dans les c.c.

L'adsorption d'hydrogène gazeux se fait par dissociation de la molécule. L'absorption d'hydrogène en présence d'un milieu aqueux ionisé est associée à un mécanisme de décharge cathodique. En fond de fissure, il y a généralement une baisse de pH due à l'hydrolyse des cations. L'adsorption de l'hydrogène sur l'interface métal-milieu s'écrit :

$$H^+ + e^- + M \Leftrightarrow MH_{ads}$$

Le passage au travers de l'interface correspond alors au transfert de l'atome d'hydrogène d'un site d'adsorption à un site interstitiel. La diffusion se fait ensuite par sauts d'un site interstitiel à un site voisin.

Trois grandes catégories de modèles de la fragilisation par l'hydrogène s'affrontent : celles basées sur une diminution de la cohésion du réseau, celle considérant la formation d'hydrures en pointe de fissure et celles s'appuyant sur une augmentation de la plasticité par l'hydrogène. Nous allons maintenant les décrire.

#### **a - Réduction de la cohésion du réseau**

Trois théories vont dans le sens d'une diminution de la cohésion du réseau de par la présence d'hydrogène.

Zaffe propose le processus suivant : la recombinaison de l'hydrogène moléculaire sous forme gazeuse dans des défauts de la microstructure (cavités, interfaces...) conduit à des pressions élevées en hydrogène ( $>10^5$  atm) qui induisent la fissuration [Zaffe 40].

Ce modèle est apparemment bien adapté pour expliquer les cas de fissuration interne tels que cloquages et fissures de ségrégation. Cependant, dès que l'activité en hydrogène est faible, il ne permet pas d'expliquer la fissuration transgranulaire discontinue observée en CSC [Coudreuse 90].

Troiano propose que l'hydrogène influence la rupture des liaisons atomiques en pointe de fissure [Troiano 60]. Sa théorie est à la base de celle de Oriani [Oriani 84] qui suggère que la présence d'hydrogène soluble réduit les forces de cohésion et que la rupture fragile intervient quand les contraintes locales dépassent les contraintes de liaisons interatomiques. Ceci suppose des concentrations locales en hydrogène dissout élevées. Le site privilégié d'enrichissement en hydrogène est la pointe de fissure du fait de la triaxialité des contraintes.

Petch suggère que la fragilisation par l'hydrogène peut s'expliquer par une réduction de l'énergie de surface due à l'hydrogène adsorbé [Petch 56]. En effet d'après la théorie de Griffith, la contrainte à rupture est proportionnelle à la racine carrée de l'énergie de surface ; une diminution de cette dernière conduit à une augmentation de la fragilité du matériau.

Cependant on peut faire plusieurs objections à ce modèle [Coudreuse 90] :

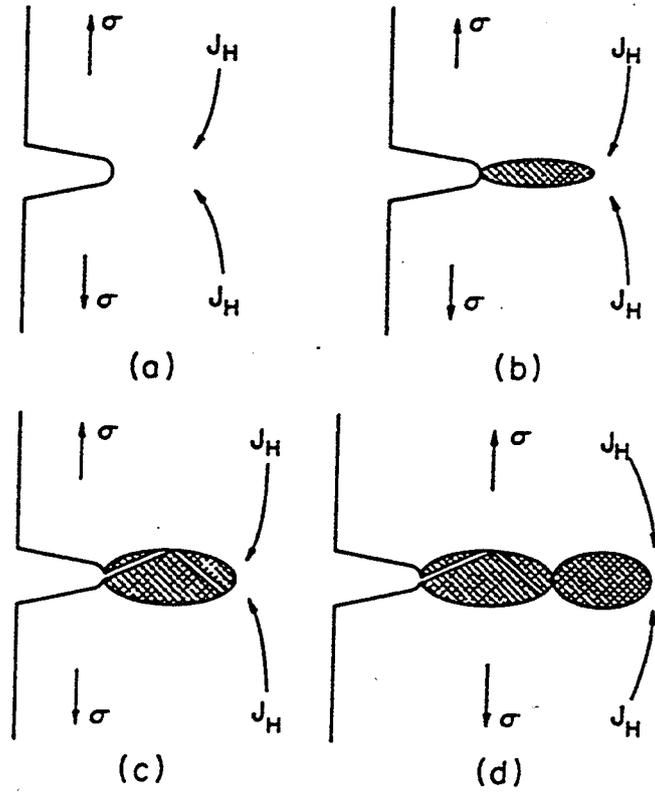


Figure 1.19 : Schématisation du mécanisme de fragilisation par formation d'hydrures métalliques.

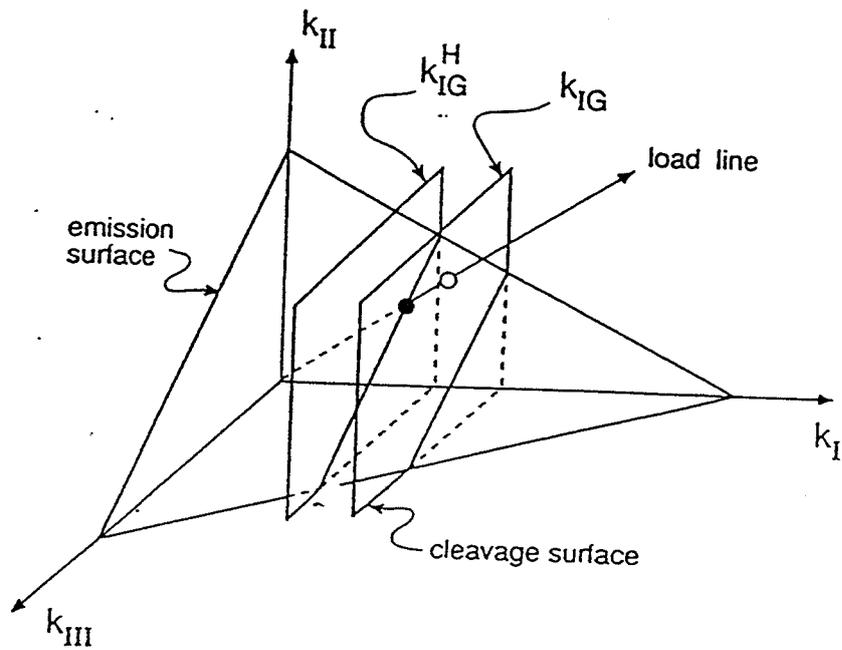


Figure 1.20 : Surfaces de clivage et d'émission de dislocations au voisinage du fond de fissure [Gerberich 92].

- l'énergie de surface  $\gamma$  qui caractérise la rupture est généralement nettement plus élevée que l'énergie de surface thermodynamique  $\gamma_s$  :  $\gamma = \gamma_s + \gamma_p$ . L'adsorption d'hydrogène affectant principalement  $\gamma_s$  ne doit pas affecter de façon importante la contrainte de rupture.
- d'autres gaz ont des énergies d'adsorption plus élevées que l'hydrogène tels que  $O_2$ ,  $N_2$ ,  $H_2O$  et devraient dans ces conditions avoir un effet fragilisant alors qu'il est admis que des traces d'oxygène ou de vapeur d'eau dans l'hydrogène réduisent les risques de fragilisation par l'hydrogène.

Enfin aucune preuve expérimentale de cette approche n'a jusqu'alors été apportée [Turnbull 85].

### **b - Formation d'hydrures métalliques**

Dans plusieurs alliages, il a été montré que la fragilisation par l'hydrogène résultait de la formation d'hydrures métalliques (ou de phases fragiles) et de la rupture fragile de ces phases. Ces transformations de phases sont favorisées par la présence d'hydrogène et l'existence d'un champ de contrainte en fond de fissure.

Le mécanisme de fragilisation s'effectue en quatre stades (figure 1.19) [Birnbaum 84] :

- diminution des potentiels chimiques de l'hydrogène dissout et de l'hydrure dans les zones de forte concentration de contrainte sous l'effet d'un effort de traction.
- diffusion d'hydrogène et précipitation d'hydrures
- fissuration amorcée dans l'hydrure (phase fragile) pour une valeur de  $K < K_{IC}$  du matériau de base.
- arrêt de la fissuration dans le métal de base ( $K_{IC}$  élevé)
- formation d'hydrures à nouveau en pointe de fissure. Les étapes précédentes peuvent recommencer.

### **c - Fissuration assistée par l'hydrogène**

Gerberich [Gerberich 92] a proposé une représentation intéressante du procédé de fissuration assistée par l'hydrogène à partir du modèle de Rice et Thomson [Rice 74]. Cette représentation se rapproche des travaux de Birnbaum [Birnbaum 90]. L'idée de base est qu'il existe une compétition en fond de fissure entre le clivage et l'émission de dislocations. La figure 1.20 représente les 'surfaces' de clivage et d'émission de dislocations au voisinage du fond de fissure. La surface de clivage est prise perpendiculaire à l'axe en mode I avec une amplitude égale à la valeur de Griffith du facteur global d'intensité de contrainte  $K_{IG}$ . Si l'on considère que la valeur locale du facteur d'intensité de contrainte en fond de fissure,  $k_{tip}$  augmente avec la contrainte appliquée,  $k_{tip}$  peut atteindre  $k_{IC}$  ou  $k_e$ , valeur d'émission des dislocations. Si  $k_e < k_{IG}$  il y a émoussement alors que si  $k_{IG} < k_e$  on a clivage. Cette représentation suggère que l'environnement peut affecter la valeur de  $k_{tip}$ . Par exemple en présence d'hydrogène on peut avoir  $k_{IG}^H < k_{IC}$ . Ainsi en mode I, un matériau donné peut avoir  $k_e < k_{IG}$  et la rupture est ductile ; mais si  $k_e > k_{IG}^H$  en milieu corrosif, la rupture est fragile.

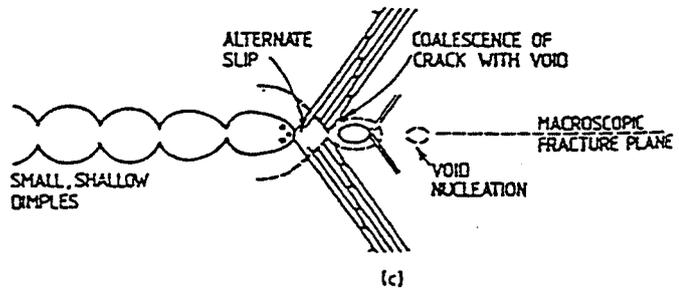
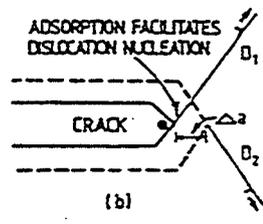
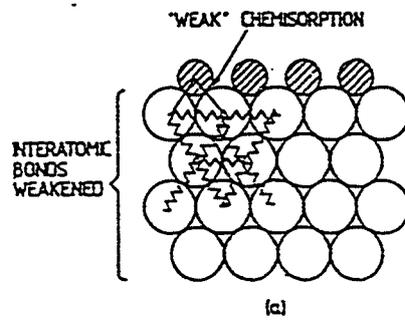


Figure 1.21 : Illustration de l'adsorption d'hydrogène et de son interaction avec les microcavités situées en avant de la fissure [Lynch 88].

#### **d - Plasticité induite par l'hydrogène adsorbé**

Le modèle de Lynch est appuyé par de nombreux travaux concernant des alliages d'aluminium, de nickel, de fer-silicium, de titane ainsi que pour des aciers à haute résistance [Lynch 88]. L'auteur a observé des fissurations très semblables pour des matériaux sollicités en CSC, fragilisation par un métal liquide ou par l'hydrogène, ce qui laisse supposer que les mécanismes mis en jeu font principalement intervenir l'hydrogène dans tous ces cas.

Le mécanisme proposé est basé sur une localisation du glissement en pointe de fissure par adsorption d'hydrogène. Les étapes sont les suivantes (figure 1.21) :

- l'hydrogène adsorbé (et absorbé dans les premières couches atomiques) affaiblit les liaisons interatomiques et facilite l'émission des dislocations en plus de celles émises pour accommoder la déformation en extrême pointe de fissure.
- émission de ces dislocations sur un plan  $D_1$  puis sur un plan  $D_2$ , ce qui produit un incrément d'avancée de la fissure.
- formation de microcavités liées à l'accommodation de la plasticité en fond de fissure puis coalescence de ces microcavités avec la fissure. Le plan bissecteur des plans de cisaillement  $D_1$  et  $D_2$  constitue ainsi le plan de rupture macroscopique.

Le modèle présente l'avantage de s'appliquer non seulement à la CSC mais aussi à la fragilisation par un métal liquide et à celle par hydrogène. Cependant la présence de microcavités peut se justifier dans un alliage à précipités mais leur observation n'a pas été faite dans les métaux purs ou les aciers inoxydables par exemple. De plus, ce modèle ne peut pas rendre compte de la proportionnalité qui existe entre le courant de dissolution et la vitesse de propagation des fissures.

#### **e - Augmentation de la plasticité par l'hydrogène.**

Bastien et Azou furent les premiers à suggérer que les dislocations pouvaient avoir une mobilité accrue en présence d'hydrogène qui diffuse [Bastien 51]. Leur idée de base est que l'hydrogène (sous forme de proton) peut être transporté par les dislocations et contribue à la formation d'une microfissure au niveau d'un empilement de dislocations. Ceci suppose alors que la vitesse de diffusion de l'hydrogène doit être supérieure ou égale à la vitesse de déplacement des dislocations.

En ce qui concerne l'influence de l'hydrogène sur la plasticité, deux théories opposées s'affrontent :

- Stroh postule que la fragilisation par l'hydrogène est due à un durcissement en pointe de fissure, le mouvement des dislocations étant bloqué par l'hydrogène [Stroh 57].
- Beachem suggère au contraire que l'enrichissement en hydrogène en pointe de fissure facilite les mécanismes de déformation plastique conduisant à la rupture du matériau [Beachem 72].

Cette dernière idée a été reprise par Birnbaum [Birnbaum 90] : l'hydrogène entraîne une chute locale de la contrainte d'écoulement, ce qui induit une plasticité localisée et, par

Alliages	Milieux	Technique d'analyse des facettes	Orientation cristallographique	References
Fe-20Cr-20Ni Fe-20Cr-12Ni 304	MgCl <sub>2</sub> à 154°C	2 surfaces trace analysis	{100}+ petites facettes cristallographiques	Reed & Paxton (1962)
304	MgCl <sub>2</sub> à 154°C	paires stéréo sur répliques en oxyde	{110} ou {100}	Nielsen (1964)
304 et 304L	MgCl <sub>2</sub> à 154°C		{111}	Louthan (1965)
316	MgCl <sub>2</sub> à 154°C	étude MET de répliques d'oxyde	{110} ou {100} et alternance sur {111}	Nielsen (1970)
304	H <sub>2</sub> SO <sub>4</sub> / NaCl MgCl <sub>2</sub> à 154°C	2 surfaces trace analysis	{111} {110}	Harston & Scully (1970)
316	MgCl <sub>2</sub> à 154°C	2 surfaces trace analysis		Marek & Hochmann (1971)
310 316	MgCl <sub>2</sub> à 154°C & LiCl à 150°C	MEB	amorçage: <111>{110}	Scamans & Swann (1978)
Fe-25Cr-20Ni monocristaux	MgCl <sub>2</sub> à 154°C	2 surfaces trace analysis	{100}	Ahlers & Riecke (1978)
304	MgCl <sub>2</sub> à 154°C	figures d'attaque	proche de {100}	Mukai (1978)
310 304	MgCl <sub>2</sub> à 154°C	photogrammétrie	{100} {211} & {110}	Liu et al. (1980)
304	MgCl <sub>2</sub> à 154°C	figures d'attaque	{110}<110> parfois {111} & {100}	Kuwano et coll. (1980)
304	MgCl <sub>2</sub> à 154°C		{100} ou {110}	Nakayama & Takano
310 316	MgCl <sub>2</sub> à 154°C		{100} {210} & {310}	Silcock (1981)
304L	MgCl <sub>2</sub> à 154°C	photogrammétrie	facettes primaires {100} & facettes secondaires {110}	Meletis & Hochmann(1986)
310 faible K 310 K élevé	MgCl <sub>2</sub> à 154°C	figures d'attaque	{100}<110> parfois {100}<001> {111}	Dickson et coll. (1987)
316 faible K 316 K élevé	MgCl <sub>2</sub> à 154°C	figures d'attaque	{100}, parfois {111} microfeuillets {111}	Shiquiong et coll. (1989)
316	MgCl <sub>2</sub> à 154°C	figures d'attaque	facette primaire {100} & cisaillement sur {111}	Magnin et (1990) coll.
304L 316L	MgCl <sub>2</sub> à 154°C acide borique + chlorures	figures d'attaque	{100}<100> {100}<110> {110}<110> facettes secondaires {111}	Olive (1992)

Tableau 1 : Revue bibliographique des différentes facettes cristallographiques observées sur les faciès de CSC des aciers inoxydables austénitiques.

suite, une rupture ductile fortement localisée alors que la déformation macroscopique reste faible. La localisation du cisaillement résulte d'une absorption locale d'hydrogène, ce qui se traduit par une rupture macroscopique fragile, alors qu'à l'échelle microscopique on a une déformation très localisée.

Le problème essentiel de ce modèle est que le mécanisme exact de rupture n'est pas clairement énoncé. Cependant l'idée d'une augmentation très localisée de la plasticité par l'hydrogène est appuyée par de nombreuses et récentes preuves expérimentales dont il faudra tenir compte dans la modélisation de la CSC [Abraham 95, Brass 97, Engelmann 97, Birnbaum 97].

En d'autres termes, ce qu'il faut retenir de l'ensemble de ces modèles de fragilisation par l'hydrogène, c'est que, au delà d'une concentration critique en hydrogène, les interactions dislocations-hydrogène peuvent l'emporter. Elles doivent rester présentes à l'esprit pour la compréhension des mécanismes d'endommagement par CSC des matériaux c.f.c.

### **1.3 - Cristallographie de rupture**

Nous avons vu au paragraphe 1.1.1 que la CSC des aciers inoxydables austénitiques se traduit par une rupture macroscopiquement fragile, discontinue à l'échelle du micron et que le faciès de rupture est composé de facettes cristallographiques. Pour discriminer parmi tous les modèles de CSC celui qui s'adapte le mieux aux aciers inoxydables austénitiques, nous avons choisi de procéder à une étude microfractographique détaillée en nous basant sur la CSC de monocristaux orientés. Aussi, avant de décrire nos propres résultats sur la cristallographie de rupture, il est nécessaire de faire la synthèse des études qui ont déjà été réalisées dans ce domaine ; c'est le but de ce paragraphe.

Avant d'entreprendre une étude microfractographique détaillée, certaines règles doivent être respectées. Il est très utile, voire même essentiel, d'effectuer une grande partie des observations sur des paires stéréographiques de micrographies ayant une différence d'inclinaison de l'ordre de  $6^\circ$ . En effet les surfaces de rupture produites par CSC sont beaucoup plus accidentées qu'il n'y paraît et ces paires stéréographiques permettent de visualiser la microtopographie de la surface de rupture [Dickson 90]. De plus pour visualiser les détails à l'échelle du micron, il est préférable d'observer les échantillons avec une distance de travail au MEB la plus faible possible (Working Distance, WD = 10 est recommandée).

De nombreuses études ont été menées sur la cristallographie des surfaces de rupture de CSC des alliages cubique à faces centrées. Meletis et Hochman en proposent une revue détaillée [Meletis 86], ainsi que Dickson et al. [Dickson 90]. L'ensemble des facettes cristallographiques identifiées sur les aciers inoxydables austénitiques en milieu chloruré est donné dans le tableau 1.

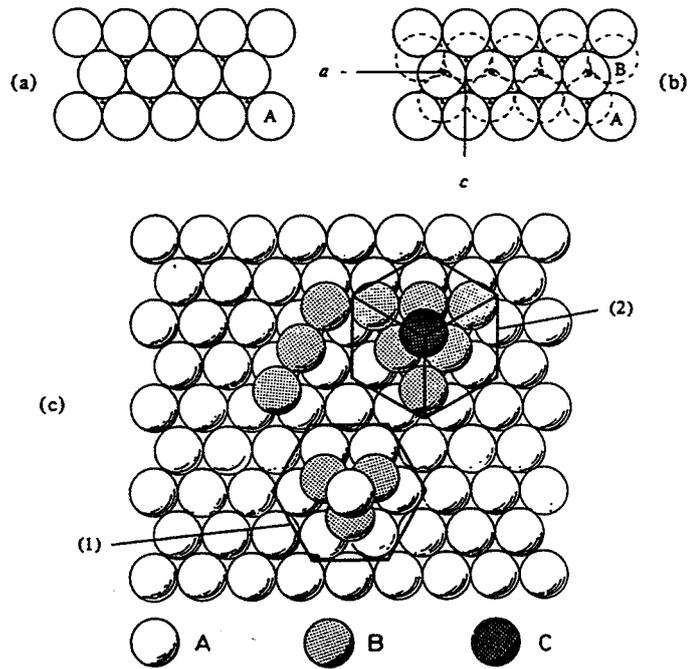


Figure 1.22 : Schéma de l'empilement compact de l'austénite  
 (1) empilement compact du type AB : structure hexagonale  
 (2) empilement compact du type ABC (ou CBA) : structure c.f.c.

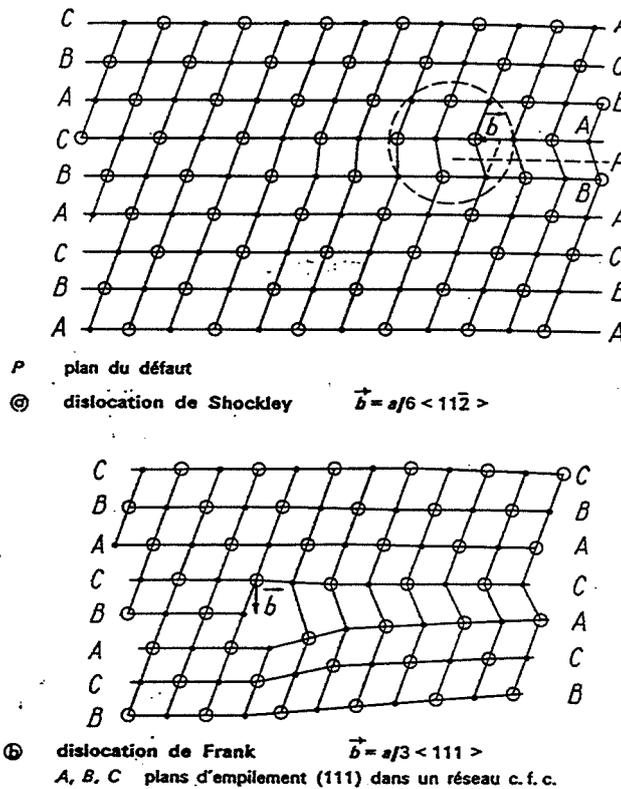


Figure 1.23 : Exemple de dislocations imparfaites.

Il ressort de l'ensemble de ces études que les résultats les plus variés ont été obtenus. La technique utilisée pour déterminer l'orientation cristallographique des facettes est primordiale. En effet certaines ne donnent accès qu'à des renseignements à l'échelle macroscopique et ne permettent pas de discuter de l'orientation des facettes à l'échelle du micron. C'est par exemple le cas de l'analyse des traces de glissement qui s'appuie sur des facettes de grande taille [Meletis 86]. Or c'est précisément à l'échelle du micron que s'effectue la discontinuité de fissuration en CSC. Les études plus récentes [Shiqiong 89, Magnin 90, Olive 92], effectuées à partir de l'analyse des figures d'attaque, montrent que la CSC des aciers inoxydables austénitiques en milieu chloruré se caractérise le plus souvent par des facettes primaires de type  $\{100\}$  et la présence plus ou moins marquée de microfacettes de type  $\{111\}$  (tableau 1). En effet Dickson et coll. [Shiqiong 89] montrent clairement que ces microfacettes de type  $\{111\}$  ne sont visibles qu'à l'échelle du micron mais surtout que leur nombre augmente considérablement aux fortes valeurs du facteur d'intensité de contrainte, ce qui explique qu'elles ne soient pas toujours visibles.

Ces résultats devront être confrontés à notre travail expérimental.

## **1.4 - Mécanismes de déformation plastique dans l'austénite**

La CSC est le fruit de l'interaction entre la corrosion et la déformation. Aussi avant toute étude des processus gouvernant la CSC, il est nécessaire de bien connaître les mécanismes de déformation du matériau. C'est pourquoi nous rappelons ici quels sont les mécanismes élémentaires de déformation de l'austénite.

### **1.4.1 - Dislocations et fautes d'empilement dans l'austénite**

L'austénite a un réseau de type cubique à faces centrées (c.f.c.). Les plans denses ont une structure de plans compacts dont la superposition donne un empilement compact. Les centres des atomes des plans suivants sont à l'aplomb du vide du plan précédent, c'est à dire à l'aplomb du centre de gravité de ces triangles. Trois positions sont possibles, comme le montre la figure 1.22. L'empilement compact est du type ABC (ou CBA). L'autre empilement compact est la structure hexagonale (phase  $\epsilon$ ) : elle est du type AB. Les parentés entre les structures c.f.c. et h.c. sont décrites dans [Blanc 90].

Les dislocations parfaites du réseau c.f.c. ont pour vecteur de Burgers  $a/2 \langle 110 \rangle$ . Chaque dislocation peut glisser dans le plan qui contient son vecteur de Burgers. Une dislocation parfaite peut se dissocier en deux ou plusieurs partielles dont les vecteurs de Burgers ne sont pas des translations élémentaires du réseau. On parle aussi de dislocations imparfaites. Des exemples de ces dislocations sont donnés par la figure 1.23. La dislocation imparfaite observée sur la figure 23a bordant une faute d'empilement intrinsèque est appelée dislocation de Shockley, son vecteur de Burgers, de type  $a/6 \langle 112 \rangle$  et d'amplitude  $a/\sqrt{6}$ . Elle

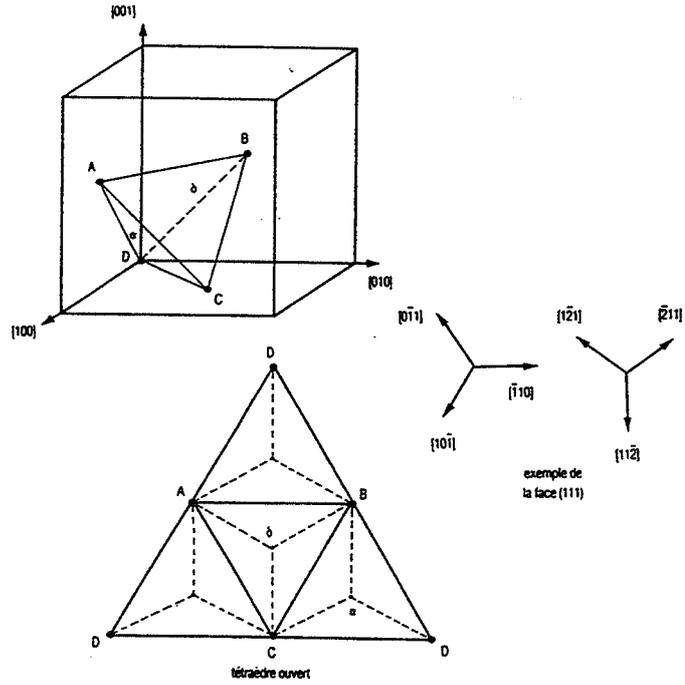
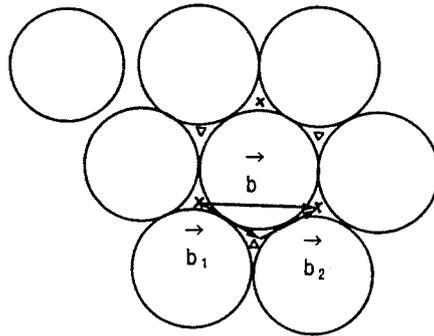


Figure 1.24 : Notation de Thompson.



• (•) Position A. (x) Position B. (∇) Position C.

Figure 1.25 : Passage d'une dislocation parfaite à deux imparfaites.

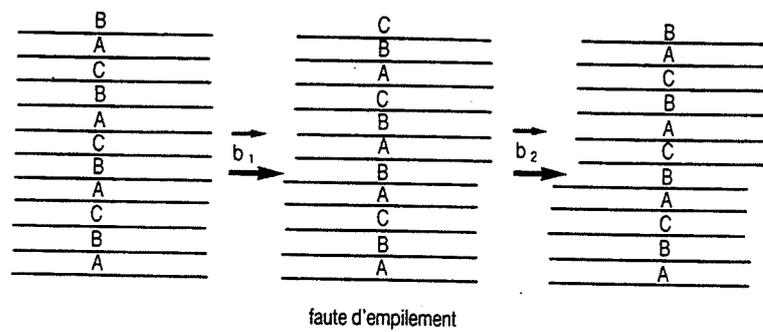


Figure 1.26 : Faute d'empilement.

est parallèle au plan de la faute. La même faute d'empilement intrinsèque peut être bordée par une dislocation imparfaite dite de Franck de vecteur de Burgers  $a/3 \langle 111 \rangle$ , perpendiculaire au plan de la faute.

On utilise souvent la notation de Thompson (figure 1.24) pour décrire les dislocations, parfaites ou non, de l'austénite.

AB représente une dislocation parfaite

A $\delta$  représente une dislocation imparfaite de Shockley

D $\delta$  représente une dislocation imparfaite de Franck

Lors du passage d'une dislocation parfaite, les atomes balayés par la dislocation effectuent le déplacement  $b = a/2 \langle 110 \rangle$ . Ce déplacement est plus facile à faire en ligne brisée selon  $b = b_1 + b_2$  (figure 1.25). En effet l'énergie cumulée des deux dislocations imparfaites est inférieure à l'énergie de la dislocation parfaite.

$$b = \frac{a}{2} [\bar{1}10] \rightarrow \frac{a}{6} [\bar{2}11] + \frac{a}{6} [\bar{1}2\bar{1}]$$

$$E = ka^2/2 > ka^2/6 + ka^2/6$$

La dissociation est donc naturelle. Elle est limitée par l'énergie de faute d'empilement ainsi créée. L'équilibre est atteint lorsque la force de répulsion entre  $b_1$  et  $b_2$  est compensée par la force de rappel due à l'augmentation de l'énergie de la faute avec la largeur.

Le déplacement des atomes suivant ces dislocations imparfaites les conduit vers une position en principe interdite mais qui ne mène pas à une très grande distorsion. Elle perturbe simplement localement l'ordre d'empilement normal. La figure 1.26 montre que le déplacement suivant  $b_1$  conduit à la création d'une faute d'empilement séparée par deux dislocations de Shockley [Blanc 90]. Cette dissociation est observable dans les aciers inoxydables lorsque la phase hexagonale peut être rencontrée. On observe localement au niveau de la faute elle-même une courte séquence d'empilement hexagonal compact.

#### **1.4.2 - Déformation monotone des aciers inoxydables**

Une dislocation parfaite peut se déplacer par glissement sur un cylindre de glissement défini par sa ligne (directrice) et son vecteur (génératrice). Dans la pratique, il s'agit le plus souvent de plan de glissement  $\{111\} \langle 110 \rangle$  (L et b sont coplanaires). Le glissement est un mouvement conservatif, c'est à dire qu'il se fait sans transport de matière (donc sans nécessiter de diffusion).

Nous avons vu qu'une dislocation parfaite peut se dissocier en partielles qui sont alors bordées par un défaut plan d'énergie  $\Gamma$  dite 'énergie de défaut d'empilement'. La valeur  $\Gamma/\mu b$ , où  $\mu$  est le module de cisaillement, est un paramètre très important pour analyser le mouvement des dislocations et le mode de déformation plastique des c.f.c. [Magnin 90 (1)]. Les dislocations parfaites peuvent contourner les obstacles car elles peuvent choisir l'autre

$$\tau = \sigma \cos \lambda \cos \Phi$$

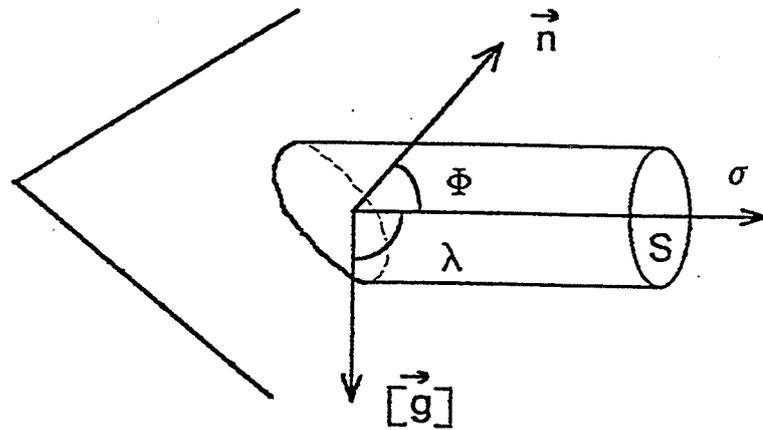


Figure 1.27 : Contrainte critique de glissement.

plan de glissement correspondant à leur vecteur de Burgers : ex: AB dans ABC et ABD (figure 1.24). On parle alors de glissement dévié.

Par contre une dislocation dissociée dans un plan doit rester confinée dans ce plan : ex: Ad dans ABC. Pour contourner l'obstacle et changer de plan de glissement, il lui faut se recombinaison avec une autre partielle :  $A\delta + \delta B$  dans ABC  $\rightarrow$  AB  $\rightarrow$   $A\gamma + \gamma B$  dans ABD [Blanc 90].

Or plus  $G/mb$  est élevée, plus la recombinaison des dislocations partielles est facilitée. Il s'en suit que la mobilité des dislocations est favorisée. Le glissement prend un caractère dévié, les dislocations peuvent changer aisément de plan de glissement. Ce comportement est caractéristique des matériaux à forte énergie de défaut d'empilement comme l'aluminium  $\Gamma = 170 \text{ mJ/m}^2$ . Par contre pour une faible valeur de  $\Gamma$  le glissement dévié est inhibé et la déformation est accommodée par un glissement planaire. C'est le cas des aciers inoxydables austénitiques, tels que le 316L,  $\Gamma = 28 \text{ mJ/m}^2$  [Gerland 89]. Plus  $\Gamma$  est faible, plus la recombinaison des partielles est difficile et plus la déformation par maclage est favorisée.

D'un point de vue géométrique le maclage peut se décrire comme résultant du glissement de dislocations dites dislocations de macle, dont le vecteur de Burgers est celui d'une dislocation de Shockley. Une faute d'empilement peut donc être considérée comme un embryon de macle. Une superposition de fautes d'empilement identiques conduira à la formation d'une macle mécanique.

En fait, une dislocation de Shockley  $\delta C$  fait passer les atomes d'un plan  $\{111\}$  (figure 1.22) de la position A à la position B  
de la position B à la position C  
de la position C à la position A.

Une macle mécanique peut donc se former :

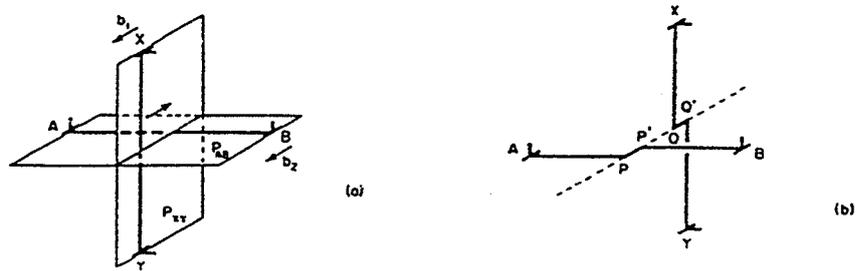
- soit par cisaillement direct de l'austénite (dans la direction  $\langle 112 \rangle$ )
- soit par superposition de fautes d'empilement.

### **a - Contrainte critique de glissement**

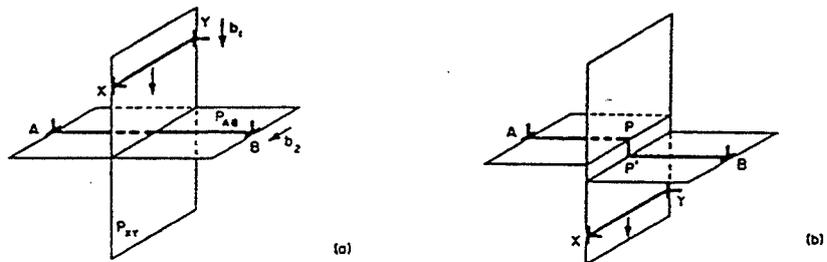
La déformation plastique d'un monocristal par glissement s'effectue par le cisaillement de plans cristallographiques suivant certaines directions. Dans les c.f.c., ces systèmes de glissement sont  $\{111\}\langle 110 \rangle$ . L'effort qui provoque le glissement est donné par la contrainte de cisaillement appliquée (figure 1.27) :

$$\tau = \sigma \cos \lambda \cos \Phi$$

où  $\sigma$  est la contrainte de traction  
 $\lambda$  est l'angle entre la direction de  $\sigma$  et la direction de glissement  
 $\Phi$  est l'angle entre la direction de  $\sigma$  et la normale au plan de glissement



Interaction entre 2 dislocations coins de vecteur de Burgers parallèles.



Interaction entre 2 dislocations coins de vecteur de Burgers perpendiculaires.

Figure 1.28 : Formation de crans.



Figure 1.29 : Observation en microscopie électronique à transmission de jonctions attractives dans un acier 316 à froid (77K). :

Si plusieurs systèmes de glissement sont possibles, ceux qui interviendront seront ceux pour lesquels le cisaillement critique sera atteint en premier, c'est à dire ceux pour lesquels le facteur de Schmid ( $\cos \lambda \cos \Phi$ ) est maximal.

### **b - Durcissement lors de la déformation plastique**

Lors de l'écoulement plastique en pointe de fissure, intervient généralement un durcissement correspondant à l'interaction entre dislocations et entre les dislocations et les défauts du réseau cristallin. Ainsi la présence d'obstacles dans le plan de glissement des dislocations mobiles gêne leur progression et produit ce durcissement. Ces obstacles peuvent être des atomes étrangers, des précipités, les joints de grains des polycristaux mais surtout d'autres dislocations qui coupent le plan de glissement.

Ce dernier type d'obstacles évolue au cours de la déformation et permet de comprendre que le mouvement de dislocations soit de plus en plus difficile lorsque la déformation plastique augmente. La contrainte d'écoulement est donnée par :

$$\tau_c = 0.4 \mu b \sqrt{\rho} \quad \text{où } \mu \text{ est le module de cisaillement}$$

$b$  est le vecteur de Burgers

$\rho$  est la densité de dislocations

Plus la densité de dislocations augmente, plus le mouvement des dislocations mobiles est difficile. Les interactions entre dislocations à l'origine de ce durcissement impliquent différents mécanismes. Parmi ceux-ci il y a la formation de crans : si une dislocation  $L_1$  de vecteur de Burgers  $b_1$  coupe une dislocation  $L_2$  de vecteur de Burgers  $b_2$  et que  $L_1$  n'est pas parallèle à  $b_2$ , il se forme sur un cran de longueur  $b_2$  (figure 1.28). Ce cran freine le mouvement de  $L_1$  car il n'appartient pas à son plan de glissement.

Un autre exemple d'interactions entre dislocations est la formation de jonctions. Si deux dislocations  $L_1$  et  $L_2$  sont telles que  $b_1 \cdot b_2 > 0$ , il faudra fournir une énergie en plus de celle nécessaire pour la création de crans pour vaincre cette répulsion : on parle de jonction répulsive. Par contre si  $L_1$  et  $L_2$  sont telles que  $b_1 \cdot b_2 < 0$ , elles se déplacent l'une vers l'autre et se combinent pour former une autre dislocation. On parle de jonction attractive qui constitue un obstacle fort.

Un cas particulier de ce type de jonction est la barrière de Lomer : soit deux dislocations ( $b_1 = \frac{a}{2}[0\bar{1}1]$  et  $b_2 = \frac{a}{2}[10\bar{1}]$ ) sur deux plans de glissement différents parallèles à  $[110]$ . Les dislocations peuvent se séparer en dislocations imparfaites (figure 1.24) :

$$\frac{a}{2}[0\bar{1}1] \rightarrow \frac{a}{6}[1\bar{2}1] + \frac{a}{6}[\bar{1}\bar{1}2]$$

$$\frac{a}{2}[10\bar{1}] \rightarrow \frac{a}{6}[11\bar{2}] + \frac{a}{2}[2\bar{1}\bar{1}]$$

Les dislocations  $\frac{a}{6}[1\bar{2}1]$  et  $\frac{a}{6}[2\bar{1}\bar{1}]$  s'attirent et se recombinent en une dislocation  $\frac{a}{6}[1\bar{1}0]$  qui repousse les deux partielles restantes, contrebalançant leur attraction. Or la dislocation  $\frac{a}{6}[1\bar{1}0]$

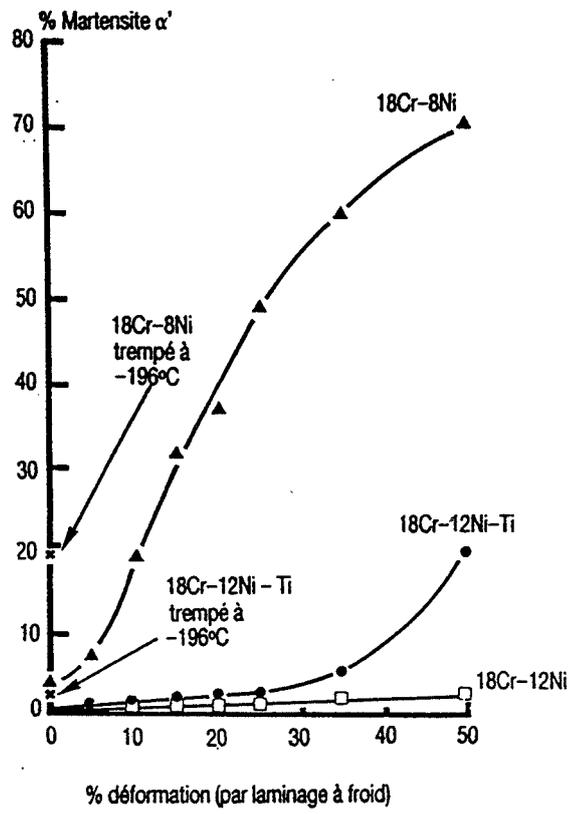


Figure 1.30 : Influence de la composition chimique sur la transformation martensitique.

ne peut glisser sur aucun plan de glissement passant par [110]. Cette barrière est donc immobile et stable : elle constitue un obstacle particulièrement fort (figure 1.29).

### **c - Transformation martensitique des aciers inoxydables austénitiques**

Les aciers inoxydables peuvent être le siège de transformation martensitique avec apparition de deux phases :

- $\epsilon$  hexagonale compacte non ferromagnétique ;
- $\alpha'$  cubique centrée ferromagnétique.

Ces phases peuvent apparaître par transformation spontanée à des températures inférieures à  $M_s$ . Cette température est variable suivant la composition chimique des alliages. Au dessus de  $M_s$ , les transformations peuvent encore apparaître au cours de la déformation plastique du matériau jusqu'à une température limite  $M_d$  au dessus de laquelle aucune phase martensitique n'apparaît.

$(-M_{d30} (^{\circ}\text{C}) = 497 - 462 (\%C + \%N) - 9,2 (\%Si) - 8,1 (\%Mn) - 13,7 (\%Cr) - 20 (\%Ni) - 18,5 (\%Mo)$   
où  $M_{d30}$  est la température à laquelle 50% de martensite est formée sous l'effet d'une déformation vraie de 30% [Pickering 84].)

Enfin la déformation au dessus de  $M_d$  fera apparaître, dès que le mouvement des dislocations devient difficile, des macles mécaniques [Magnin 90 (1)].

A température ambiante, l'influence de la composition chimique de l'alliage sur la transformation martensitique est illustrée par la figure 1.30. On voit que, pour les alliages sans titane l'augmentation de la teneur en nickel inhibe la formation de martensite d'écroutissage  $\alpha'$ . L'énergie de faute d'empilement joue un rôle essentiel dans les transformations martensitiques induites par déformation à froid. La martensite  $\epsilon$  est formée dans les aciers inoxydables austénitiques à basse énergie de défaut d'empilement. Elle est obtenue par trempe ou écroutissage à température ordinaire si  $\Gamma < 30 \text{ mJ.m}^{-2}$  [Marshall 84].

La déformation des aciers inoxydables austénitiques met en jeu des mécanismes complexes. Pour les alliages à faible énergie de défaut d'empilement, on favorise le glissement planaire des dislocations dissociées car le glissement dévié est inhibé. En conséquence pour accommoder la déformation si la recombinaison des partielles est impossible, les mécanismes suivants pourront intervenir :

- formation de phase hexagonale ( $T < M_d$ )
- formation de macle mécanique ( $T > M_d$ )
- formation de martensite  $\alpha'$  par l'un des mécanismes suivants  $\gamma \rightarrow \epsilon \rightarrow \alpha'$  ou  $\gamma \rightarrow \alpha'$

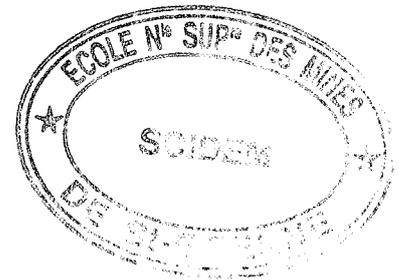
L'ensemble de ces mécanismes de déformation devra rester présent à l'esprit lors de l'étude de la CSC du 316L, bien que cet alliage ait une phase austénitique relativement stable de par son faible taux de carbone et sa teneur en molybdène.



Ce chapitre nous a donc permis de rappeler les bases indispensables à la compréhension des mécanismes d'endommagement en CSC. Les notions élémentaires d'électrochimie et de plasticité ont été rappelées. Nous avons également donné un aperçu des principaux modèles de CSC, car notre objectif est de trouver celui qui décrit au mieux la CSC des aciers inoxydables austénitiques. De l'ensemble de ces modèles on peut retenir plusieurs éléments :

- il y a proportionnalité entre la vitesse de fissuration et le courant de dissolution sous déformation.
- les interactions corrosion-déformation ne doivent pas être oubliées.
- les interactions hydrogène-dislocations doivent être prises en compte.

Les caractéristiques fractographiques sont également importantes à prendre en compte, à savoir : rupture macroscopiquement fragile, discontinue et résultant d'une microfissuration sur des facettes cristallographiques. L'interprétation de la microfractographie et de son caractère cristallographique est une des clés de la compréhension de l'endommagement en CSC. C'est pourquoi nous avons choisi d'axer notre travail expérimental dans ce sens. Le prochain chapitre sera consacré à la description des dispositifs expérimentaux qui nous ont permis de mener à bien cette étude.





## **Chapitre 2 :**

### **Méthodes expérimentales.**

Eléments	Cr	Ni	Mo	N	C	S	P
% polycristal	18	13	2.5	0.004	0.02	0.002	<0.002
% monocristal	17	14.6	2.5		<0.002		

*Tableau 1 : Composition chimique de l'acier inoxydable austénitique poly et monocristallin (% en poids).*

Eléments	C	Mn	Si	S	P	Ni	Cr	Mo	N	Cu	W
%	0.02	2.997	0.106	0.0005	0.016	21.62	23.69	5.68	0.482	1.569	1.98

*Tableau 2 : Composition chimique de l'URANUS B66 (% en poids).*

	$R_{p0,2}$ (MPa)	$R_m$ (MPa)	A (%)
316L (117°C)	128	650	45
UB66 (20°C)	420	750	50

*Tableau 3 : Propriétés mécaniques en traction du 316L et de l'UB66.*

## **2.1 -Techniques expérimentales.**

Au cours de ce chapitre nous allons présenter les matériaux étudiés. Puis nous décrirons le processus d'élaboration des cristaux et la fabrication des éprouvettes. Nous détaillerons ensuite les moyens expérimentaux mis en oeuvre au cours de ce travail. Enfin nous passerons en revue les différentes techniques d'identification de l'orientation cristallographique des facettes de rupture de corrosion sous contrainte en insistant sur les avantages et les limites de chacune dans le cadre de notre étude. Dans cette dernière partie, nous insisterons plus particulièrement sur la méthode de la projection que nous avons mise au point au cours de ce travail.

### **2.1.1-Matériaux utilisés**

Les alliages utilisés lors de cette étude sont tous des aciers inoxydables austénitiques. Ils possèdent à température ordinaire une structure  $\gamma$  qui est cubique à faces centrées [Bavay 90]. Leur relative facilité de fabrication et de mise en oeuvre, leur aptitude à la déformation et une grande résistance à la corrosion expliquent leur emploi dans des domaines d'application très variés. Ils sont utilisés dans des domaines tel que l'agro-alimentaire, l'industrie nucléaire et les industries chimiques et pétrolières [Lefevre 90]. Il est clair que l'ensemble de ces secteurs industriels est concerné par les problèmes de corrosion sous contrainte, ce qui a motivé notre étude.

Par ailleurs ces aciers possèdent un rapport limite d'élasticité/résistance à la rupture assez faible : 0,3-0,4. En contrepartie il est possible de les durcir par transformation à froid (tréfilage, étirage, laminage, forgeage) [Rouby 90]. Ceci explique qu'une partie de notre travail soit consacré à l'influence d'un précrouissage avant corrosion sous contrainte.

Enfin un autre moyen d'augmenter la limite d'élasticité de ces aciers est le durcissement par solution solide. Le durcissement par les interstitiels N, C et B est considérable. C'est en fait l'addition d'azote qui constitue le moyen le plus efficace d'accroître la limite d'élasticité des aciers inoxydables austénitiques. A titre d'exemple, un ajout de 0,1 % d'azote augmente la limite d'élasticité de 50MPa [Bavay 90]. C'est pourquoi quelques essais ont été consacrés au rôle de cet élément d'addition sur le comportement en CSC.

La majorité des essais de corrosion sous contrainte est réalisée sur un acier inoxydable austénitique élaboré à l'Ecole des Mines. Par commodité de langage nous l'appellerons acier de

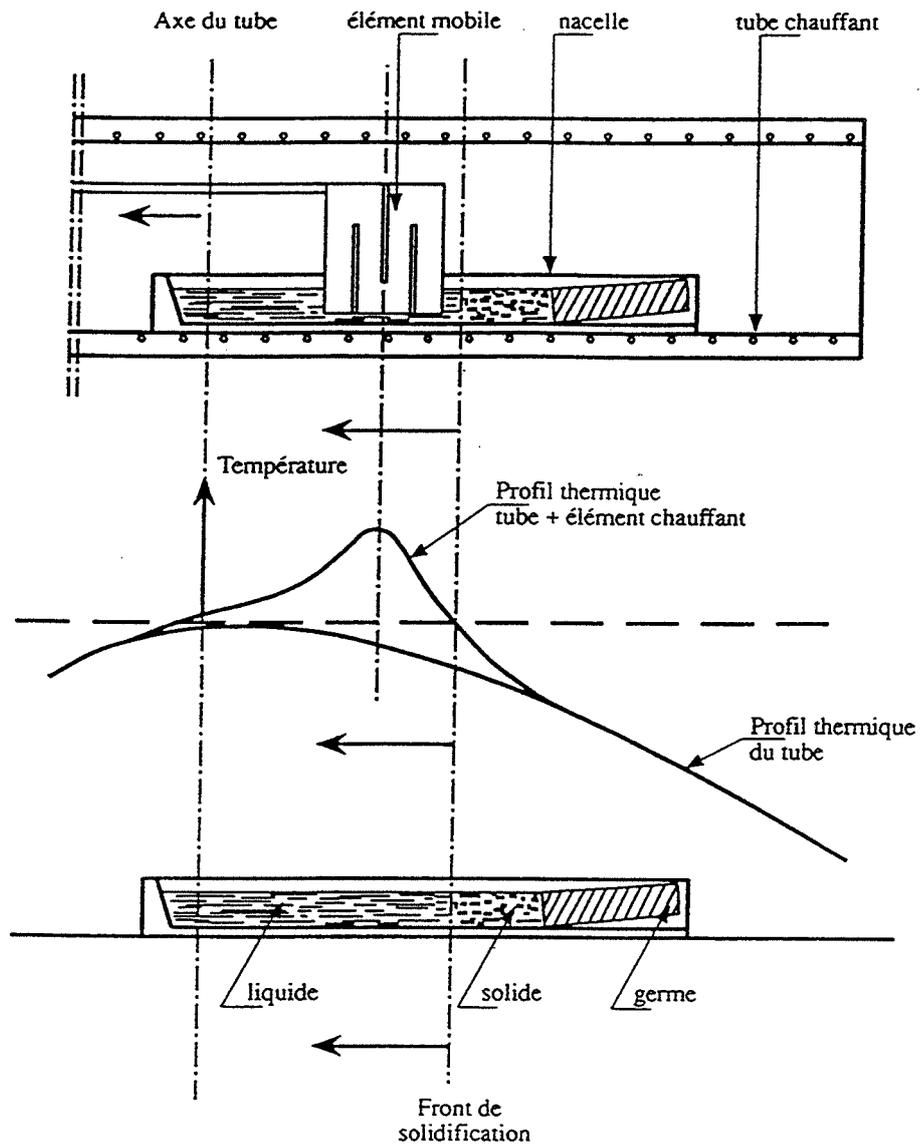


Figure 2.1 : Profil thermique du four de fabrication des monocristaux.

type 316L mais c'est un abus de langage : il ne s'agit pas d'un alliage industriel. La composition des alliages sous forme mono et polycristalline est donnée dans le tableau 1. La teneur en nickel est légèrement supérieure pour les monocristaux de façon à faciliter la croissance cristalline [Gorlier 84].

Parallèlement, quelques essais concernent l'URANUS B66. Il s'agit d'un acier inoxydable austénitique dopé à l'azote ; il nous est fourni par Creusot Loire Industrie. Cet alliage possède des propriétés mécaniques excellentes. De plus l'azote stabilise l'austénite et augmente la planéité du glissement [Uggowitz 89 - Degallaix 89], ce qui permet de considérer ces deux paramètres en CSC. Les compositions chimiques de tous ces alliages sont données dans les tableaux 1 et 2. A titre indicatif les propriétés mécaniques en traction des polycristaux sont données dans le tableau 3.

### **2.1.2 - Fabrication des monocristaux**

L'essentiel de ce travail est réalisé sur des monocristaux : ils constituent un matériau modèle pour lequel les mécanismes de déformation et de CSC sont plus faciles à étudier. De plus un des premiers objectifs de ce travail est de déterminer avec précision la nature cristallographique des facettes de rupture de corrosion sous contrainte. Ce but est évidemment plus facile à atteindre sur monocristaux orientés que sur polycristaux. Enfin en utilisant des monocristaux, on maîtrise les conditions de glissement d'une orientation à l'autre, ce qui nous intéresse tout particulièrement pour comprendre l'influence de ce paramètre en CSC. Les orientations cristallographiques choisies sont  $\langle 100 \rangle$ ,  $\langle 110 \rangle$ ,  $\langle 111 \rangle$  et  $\langle 149 \rangle$ . Nous reviendrons plus en détails sur le choix de ces différentes orientations dans le chapitre suivant.

Les monocristaux sont réalisés par solidification dirigée en nacelle horizontale. Le principe est le suivant [Boos 71] (voir figure 2.1) :

- l'orientation cristallographique du germe est déterminée par la technique de Laue en retour qui donne une précision de l'ordre du degré.
- le germe est scellé dans la position désirée, en tête de nacelle à côté du barreau polycristallin. C'est grâce à l'orientation du germe et à la désorientation que l'on impose au scellement que l'on peut imposer une croissance cristalline dans la direction que l'on désire.
- l'ensemble germe-barreau-nacelle est placé dans le four dans lequel, grâce à un enroulement en molybdène, on effectue une montée en température sous vide ( $10^{-5}$  Torr) jusqu'à une température proche de la fusion.

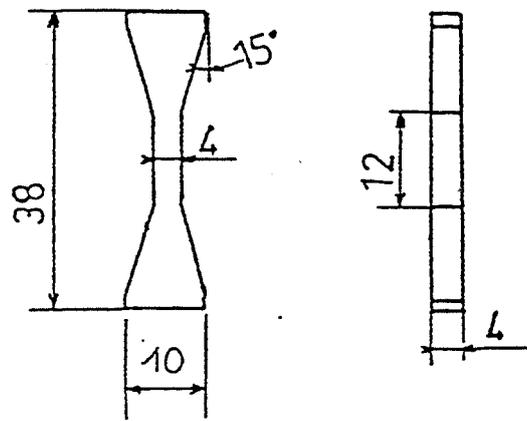


Figure 2.2 : Schéma des éprouvettes de CSC et de fatigue [Coudreuse 86].

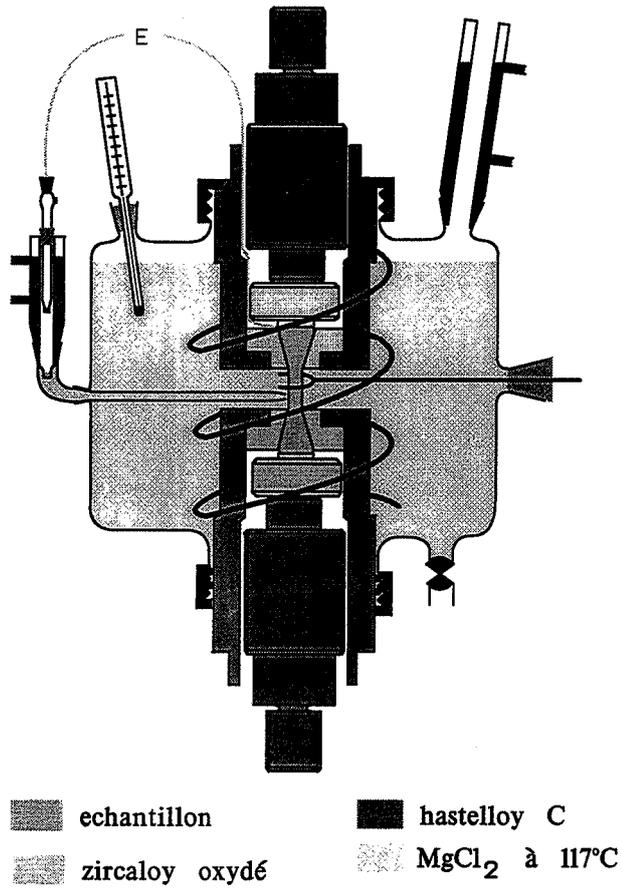
- Le barreau est fondu à l'aide d'un anneau chauffant mobile situé à l'intérieur de l'enroulement. La fusion a lieu jusqu'au niveau du germe de façon à réaliser la soudure entre le germe et le métal liquide.
- Les puissances dissipées dans l'enroulement et l'anneau sont réglées de manière à rendre solidaire le front de solidification et l'anneau mobile.
- La vitesse de déplacement de l'anneau fixe donc la vitesse de solidification. Elle est de 1,5mm/h et permet d'obtenir des barreaux monocristallins sur une longueur d'environ 10 cm (largeur 20mm, hauteur 15mm).

### **2.1.3-Préparation des éprouvettes**

La majorité des éprouvettes monocristallines est prélevée en tête de barreau de façon à éviter la ségrégation des éléments alphas, Cr et Mo, qui a lieu en queue de passage [Gorlier 84]. L'usinage des monocristaux est effectué par électroérosion par la société Forez Electro-Erosion en tenant compte des éventuelles corrections entre l'orientation cristallographique voulue et celle obtenue pour le barreau monocristallin. Pour chaque éprouvette, on connaît donc l'orientation cristallographique qui est parallèle à l'axe de traction ; on notera cette orientation entre  $\langle \ \rangle$ . L'analyse du cliché de Laue donne également accès à l'orientation cristallographique des faces du fût.

Après usinage, les éprouvettes subissent un traitement thermique d'une heure à 1050°C sous atmosphère d'argon, suivi d'une trempe à l'eau. Ce traitement thermique permet d'une part d'éliminer les contraintes résiduelles dues à l'électroérosion et d'autre part de figer la phase austénitique. Enfin chaque échantillon est poli mécaniquement jusqu'à la pâte diamantée de 1 micron.

Nous avons choisi de travailler sur éprouvettes lisses de façon à étudier au cours d'un même essai les conditions d'amorçage et de propagation des fissures de corrosion sous contrainte. Les dimensions finales de l'éprouvette sont données sur la figure 2.2. Pour quelques échantillons cependant, une entaille à la scie électrolytique (pour minimiser l'écrouissage en fond d'entaille) est effectuée et le reste du fût de l'éprouvette est couvert d'une laque protectrice. Ceci a pour but d'une part de forcer le sens de propagation à prendre une direction cristallographique bien précise et d'autre part de localiser le phénomène de CSC.



*Figure 2.3 : Schéma du dispositif de corrosion sous contrainte.*

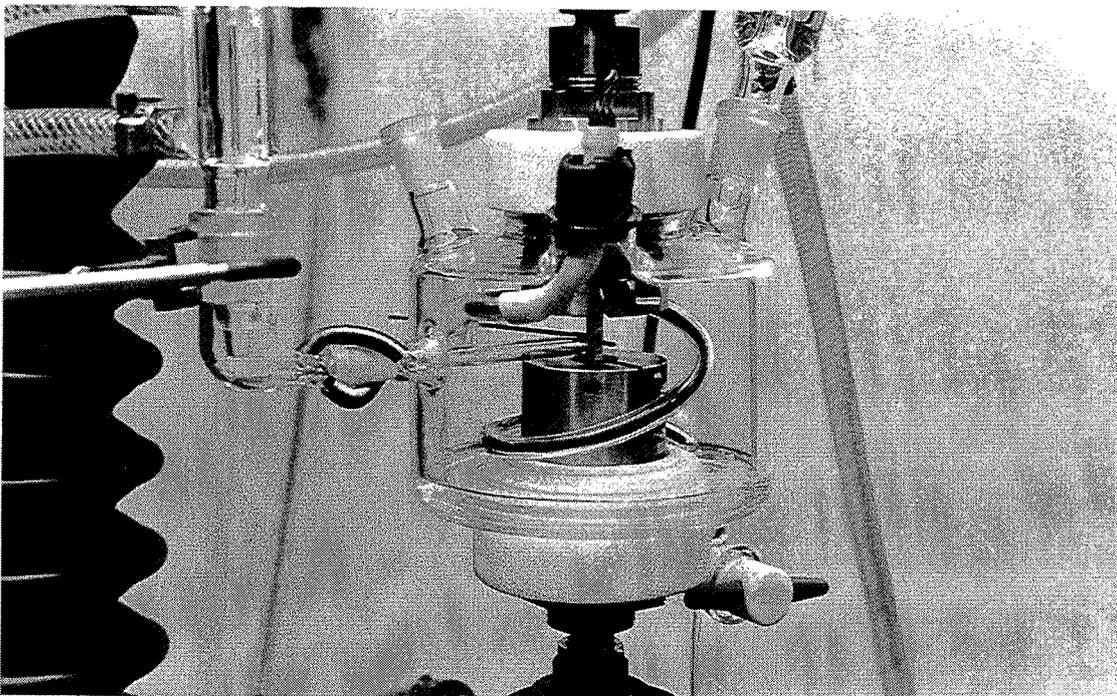
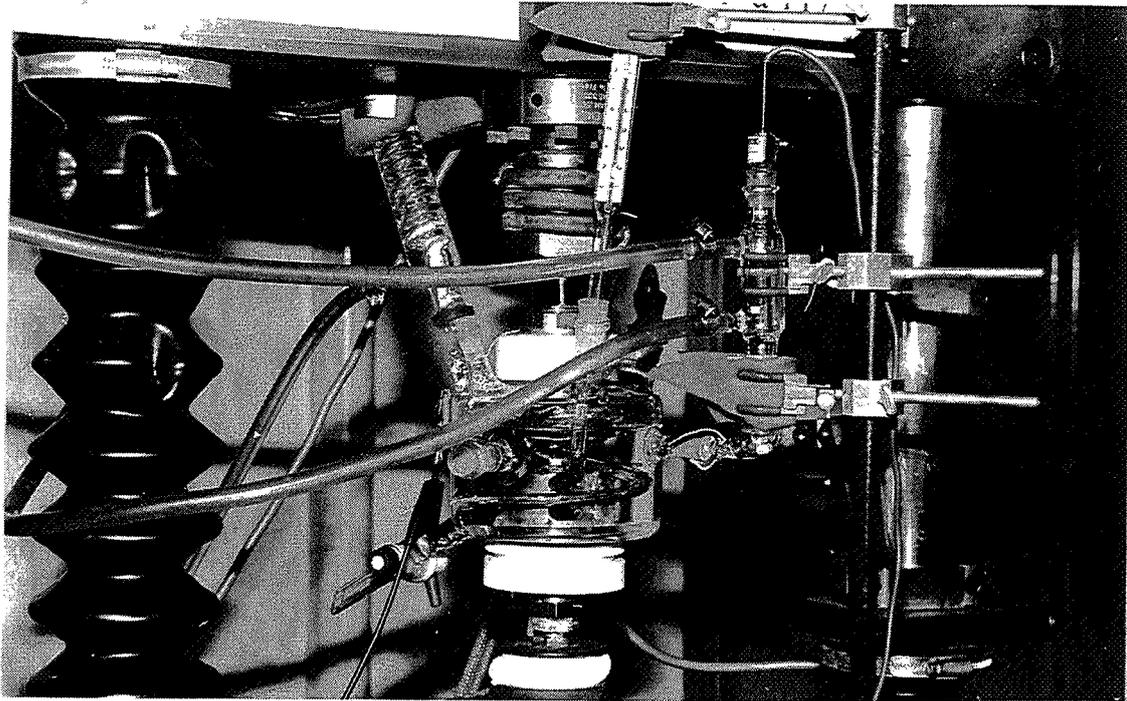
### **2.1.4 - Dispositif d'essai de corrosion sous contrainte**

Nous avons réalisé des essais de traction lente à vitesse d'allongement constante (Slow Strain Rate Technique : SSRT]). Ce type d'essai, initié dans les années 1960, est choisi car c'est la vitesse de déformation qui est le paramètre déterminant en CSC et non la contrainte en elle-même [Desjardins 88]. Si la vitesse de déformation est élevée le contact du milieu corrosif avec le métal mis à nu, suite à la rupture du film, est de trop courte durée pour induire un changement macroscopique sur le comportement du matériau. Dans le cas de notre alliage sollicité dans une solution bouillante de chlorure de magnésium, cette vitesse critique de déformation est égale à  $3.10^{-5} \text{ s}^{-1}$ . C'est à dire qu'au dessus de cette vitesse la rupture reste totalement ductile [Magnin 90 (1)]. C'est pourquoi nous avons choisi une vitesse de déformation bien inférieure à cette limite :  $4.10^{-7} \text{ s}^{-1}$ , vitesse minimale autorisée par notre dispositif de traction. Il s'agit d'une machine électromécanique fabriqué à l'Ecole des Mines, de charge nominale 2000 daN. La vitesse de traverse est imposée par l'intermédiaire d'une chaîne cinématique montée avec vérin à billes recyclables.

L'électrolyte choisi est une solution bouillante de chlorure de magnésium (117°C) concentrée à 30% en poids, car elle se prête bien à des essais rapides et reproductibles. De plus les aciers inoxydables sont connus pour être surtout sensibles à la CSC en milieu chloruré [Combrade 90 (1)]. Le film passif qui se forme dans des solutions de  $\text{MgCl}_2$  à 30% et pour des températures comprises entre 20°C et 130°C diffère peu de celui formé à l'air alors que dans le réactif de Scheil ( $\text{MgCl}_2$  à 154°C) le film passif est épais ( $\gg 10\text{nm}$ ) et hétérogène [Desjardins 88]. C'est pourquoi nous avons préféré travailler à 117°C.

La figure 2.3 schématise le dispositif d'essai. L'échantillon est isolé électriquement du reste du montage pour éviter tout couplage galvanique. En effet les coquilles sur lesquelles il est en appui sont en zircaloy oxydé. La couche d'oxyde de cet alliage, formée à 500°C à l'air pendant 500h, est épaisse (5  $\mu\text{m}$ ) et isolante. Le reste du montage est réalisé en Hastelloy C (~54% Ni, 17% Mo, 16%Cr, 4% W et 9% Fe) de façon à résister au mieux au milieu corrosif utilisé. L'échantillon est protégé par une résine acrylique qui conserve ses propriétés de protection jusqu'à 300°C. Ainsi, seule la partie utile de l'éprouvette est exposée au milieu corrosif.

Un fil de nickel, isolé du reste du montage par la résine, est soudé au monocristal. Le potentiel électrochimique du système est alors mesuré entre ce fil et une électrode de référence au calomel. L'électrode baigne dans du KCl saturé et l'ensemble est réfrigéré de façon à ce



*Figure 2.4 : Photographies du dispositif de corrosion sous contrainte.*

qu'elle ne dérive pas avec la température. Enfin les vapeurs sont condensées et repartent en solution grâce à un serpentin réfrigérant. Une contre électrode en platine et un potentiostat TACUSSEL ( de type PRT 20-2X) permettent de travailler à potentiel imposé.

La cellule de corrosion est en Pyrex. Elle est donc transparente ce qui permet de visualiser l'échantillon en cours d'essai. La montée en température du milieu est assurée par une résistance chauffante incluse dans un serpentin de quartz qui baigne directement dans le milieu. Cette résistance est reliée à un thermomètre à contact et à un système de régulation qui assure le maintien du milieu corrosif à 117°C. L'ensemble du montage est visualisé à la figure 2.4.

### **2.1.5-Dispositif de fatigue**

Deux types d'essais sont réalisés en fatigue au cours de cette étude :

- précrouissage cyclique avant corrosion sous contrainte pour étudier l'influence de la microstructure créée en fatigue sur le comportement en corrosion sous contrainte.
- essai de fatigue-corrosion dans  $H_2SO_4$  0,5 N pour mettre en évidence un éventuel adoucissement cyclique dû à la dissolution anodique (nous verrons plus tard l'intérêt de cet essai).

Les éprouvettes ainsi que le montage sont du même type que ceux employés en CSC. En effet, les mors qui maintiennent les têtes d'éprouvettes (figure 2.3 ou 2.5) permettent de travailler aussi bien en traction qu'en compression, tout en gardant le même montage. Il est donc possible d'effectuer le précyclage (cyclique ou monotone) puis l'essai de CSC sans démonter l'éprouvette entre les deux opérations, ce qui est particulièrement important dans le cas des monocristaux pour ne pas leur faire subir d'écrouissage non contrôlé.

Les essais de fatigue sont réalisés sur une machine électromécanique SCHENCK à 4 colonnes de charge nominale 100 kN (RMC 100), asservie en déformation plastique. Le système d'extensométrie est constitué de deux capteurs inductifs LVDT situés de part et d'autre de l'éprouvette. Ils sont fixés sur la partie mobile du montage (solidaires du vérin) et prennent appui sur la partie fixe du montage. Le signal transmis par les capteurs est traité électroniquement et permet un asservissement en déformation plastique. Le compensateur d'élasticité ajoute un signal linéaire dont la pente est de signe inverse à la pente élastique. Ainsi tant que la partie utile de l'éprouvette ne se déforme pas plastiquement, la déformation mesurée reste nulle. Le pilotage du vérin à amplitude de déformation plastique imposée

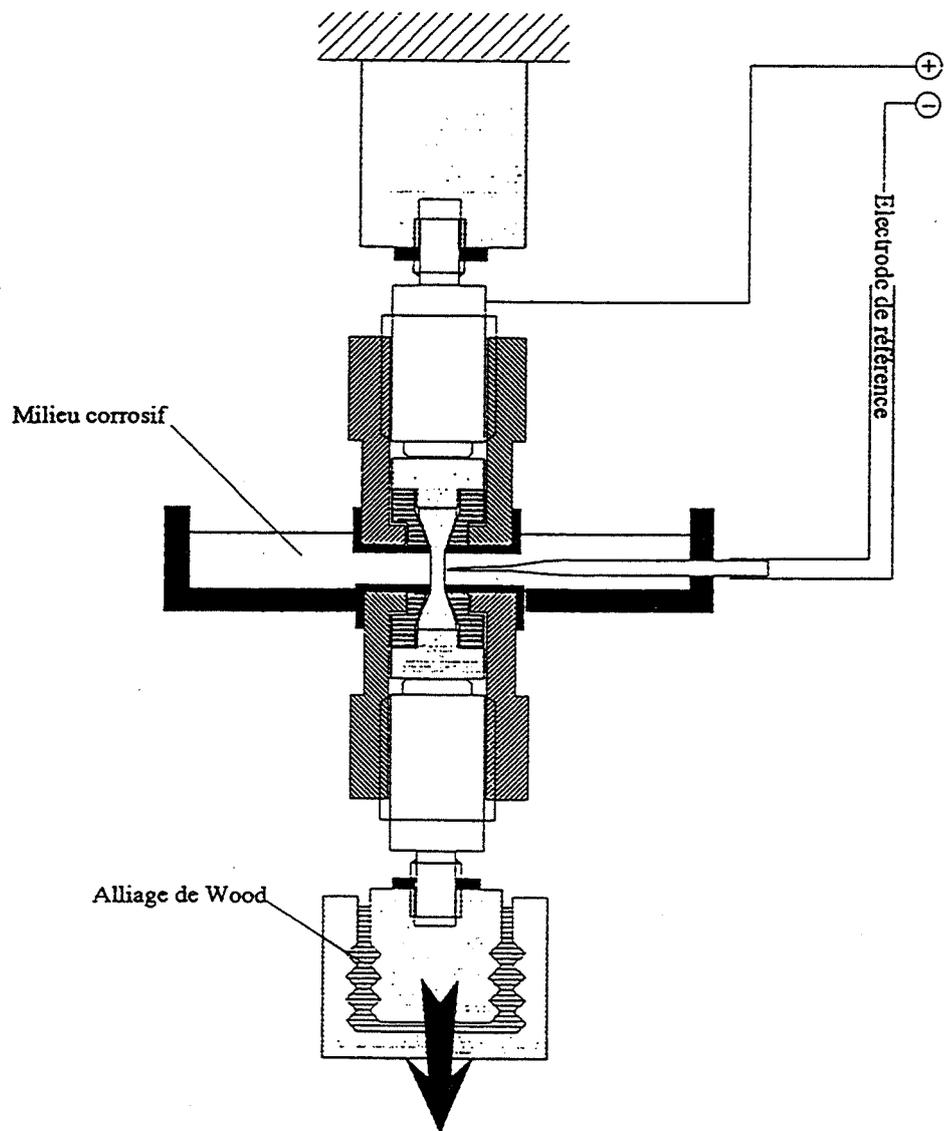


Figure 2.5 : Schéma du dispositif de fatigue-corrosion.

permet de s'affranchir des variations de la déformation élastique due à l'écroutissage ou à l'adoucissement cyclique. La déformation plastique imposée  $\Delta\varepsilon_p/2$  peut varier de  $10^{-4}$  à  $10^{-2}$ . Le générateur de fonctions délivre un signal triangulaire dont la pente est réglable. Ceci permet de contrôler la vitesse de déformation dans la gamme  $5.10^{-5} \text{ s}^{-1} / 10^{-2} \text{ s}^{-1}$ .

Une cellule de corrosion s'adapte au montage et permet de cycliser en milieu corrosif comme le montre la figure 2.5. Un montage potentiostatique permet de suivre l'évolution des paramètres électrochimiques au cours du cyclage. On peut ainsi mesurer le potentiel pris par l'échantillon dans le milieu corrosif par rapport à une électrode de référence ou imposer un potentiel constant à l'échantillon. Dans ce dernier cas, le potentiostat fonctionne en générateur de courant. Pour maintenir le potentiel constant, le courant délivré doit être exactement égal au courant de corrosion global à la surface de l'échantillon. La mesure de ce courant se fait dans le circuit d'une électrode auxiliaire.

### **2.1.6-Préparation des lames minces**

Une étude de base est réalisée au microscope électronique en transmission. L'objectif est de comparer les microstructures de dislocations créées lors des précrouissages monotones et cycliques.

Le microscope électronique à transmission (MET) permet des analyses très fines de la structure de dislocations. Pour cela, il est particulièrement intéressant d'observer le matériau dans un plan de type  $\{112\}$ . En effet ce plan est perpendiculaire au plan de glissement et il contient le vecteur de Burgers  $b$ . A partir d'éprouvettes d'orientation  $\langle 100 \rangle$ , écrouies en traction ou en fatigue, nous avons utilisé un étai goniométrique pour couper les lames dans ce type de plan à l'aide d'une scie à fil diamanté. Les tranches de 300  $\mu\text{m}$  environ ainsi obtenues sont ensuite poinçonnées pour obtenir des disques de 3 mm de diamètre. Ces disques sont alors polis au papier 1000 afin d'obtenir une épaisseur d'environ 100  $\mu\text{m}$ . Les lames sont enfin amincies à l'aide d'un appareil Tenupol dans les conditions suivantes :

- bain : 5% acide perchlorique + 95% acide acétique
- température 15°C
- tension 120V / 1.6A

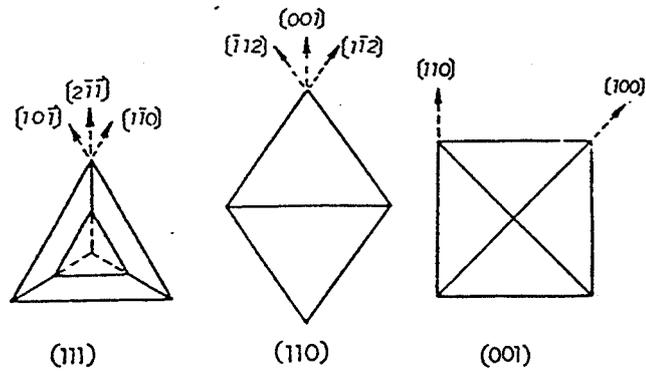


Figure 2.6 : Schéma de la forme des figures d'attaque formées sur les plans  $\{111\}$ ,  $\{110\}$  et  $\{001\}$  [Fong 88].

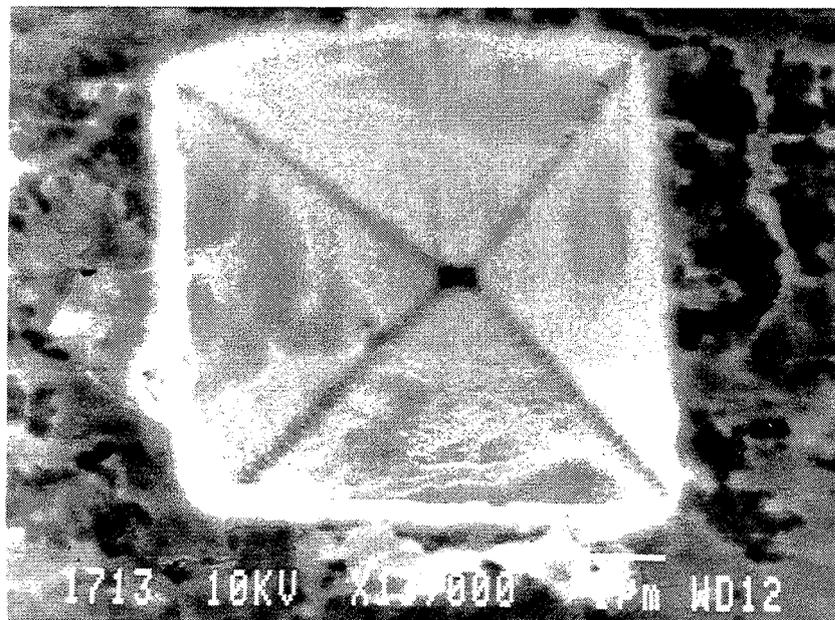


Figure 2.7 : Exemple de figures d'attaque formées sur du 316L sollicité en CSC [Olive 92].

## **2.2-Détermination de l'orientation cristallographique des facettes de rupture de CSC**

Nous avons vu que la corrosion sous contrainte des aciers inoxydables en milieu chloruré est le plus souvent d'aspect fragile et que le faciès de rupture est composé de facettes cristallographiques relativement planes. Aussi le premier objectif de notre étude est de déterminer avec le plus de précision possible la nature cristallographique des facettes ainsi que celle de la direction locale de propagation. En effet ces deux éléments sont caractéristiques de la façon dont la fissure s'est propagée et ils pourront permettre de préciser quels sont les mécanismes d'endommagement qui gouvernent la corrosion sous contrainte.

Dans ce paragraphe nous allons donc tout d'abord passer en revue les différentes méthodes (figures d'attaque, méthodes d'analyse géométrique, méthode utilisant l'EBSD) qui permettent d'atteindre cet objectif en détaillant leurs avantages et leurs limites. L'essentiel de nos essais est réalisé sur des monocristaux orientés qui se prêtent particulièrement bien à une analyse fine de la cristallographie. Aussi nous avons été amenés à développer une nouvelle technique d'analyse. Celle-ci s'appuie sur la projection dans différents plans cristallographiques d'une même plage de rupture observée au microscope électronique à balayage. Nous présenterons donc en détails cette nouvelle méthode d'analyse en nous appuyant sur des exemples concrets. Puis nous confronterons les résultats obtenus à partir de cette technique avec ceux issus de l'analyse des figures d'attaque pour montrer qu'il y a un parfait accord entre les deux types d'analyse.

### **2.2.1-Figures d'attaques.**

Cette technique présente le grand avantage d'être applicable aussi bien sur monocristaux que sur polycristaux. Par l'intermédiaire d'un réactif chimique, elle produit sur le faciès de rupture des figures d'attaque dont la forme est différente suivant le plan cristallographique où elles se forment, comme le montre la figure 2.6 [Fong 88]. Ce sont en fait des piqûres formées par dissolution préférentielle suivant certaines directions et plans cristallographiques. Un exemple est donné à la figure 2.7. Ces figures déterminent des directions cristallographiques bien précises qui peuvent être comparées aux directions du



faciés. Il est donc ensuite aisé de retrouver l'orientation des facettes si elles ont des indices simples.

Pour mettre au point la technique, il est préférable de faire des essais préliminaires sur de petites régions, le reste de la surface devant être protégé par une laque qui pourra être dissoute par un solvant. Il est toujours préférable de n'attaquer qu'une des surfaces de rupture. L'utilisation de micrographies stéréographiques est toujours utile car ces paires de micrographies permettent de mieux visualiser le relief du faciès [Dickson 90].

Pour être efficace, cette technique doit produire des figures d'attaque en nombre et dimensions convenables sur le matériau étudié. Parfois des réactifs sont disponibles mais ne fonctionnent pas correctement dans les régions fortement déformées plastiquement ou bien si les plans cristallographiques produits ne sont pas de bas indice. De plus l'échelle peut être trop microscopique pour permettre la formation clairement analysable des figures d'attaque [Li 89].

Pour obtenir ces figures, dans le cas des aciers inoxydables austénitiques sollicités en CSC dans  $MgCl_2$ , il faut tout d'abord bien nettoyer les surfaces de rupture à l'eau chaude afin de dissoudre le dépôt de chlorures. Ensuite les surfaces sont nettoyées dans un bain ultrasonique avec une solution aqueuse de 5% HCl, à laquelle 2g/l de hexaméthylènetétramine ont été ajoutés comme inhibiteur de corrosion [Li 89]. Les figures d'attaque sont ensuite obtenues à 40°C dans une solution de 0,5M  $H_2SO_4$  contenant 100 mg/l de thiocyanate d'ammonium ( $NH_4SCN$ ) à -150 mV<sub>SCE</sub> [Li 89, Dickson 90, Olive 92 (3)].

On voit donc que cette technique est relativement délicate à mettre au point. Or nos essais sont basés sur un nombre limité d'éprouvettes du fait de la difficulté d'obtention des monocristaux. Il nous a donc paru risqué d'utiliser cette méthode qui est parfois destructive mais qui reste cependant performante, en particulier dans le cas des polycristaux.

### **2.2.2-Méthodes géométriques d'analyse**

Ces méthodes sont basées sur l'analyse des propriétés géométriques caractéristiques des faciès de rupture cristallographiques : mesure de l'angle que forment deux facettes de rupture ou deux jeux de traces de glissement.

#### **a-Mesure de l'angle entre facettes**

Même si l'indexation cristallographique des facettes ne peut pas être réalisée directement, des mesures d'angles entre facettes peuvent permettre de déterminer leur

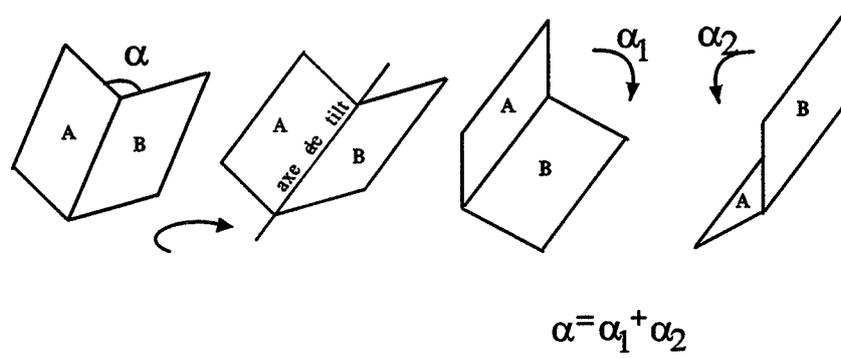


Figure 2.8 : Mesure de l'angle entre facettes.

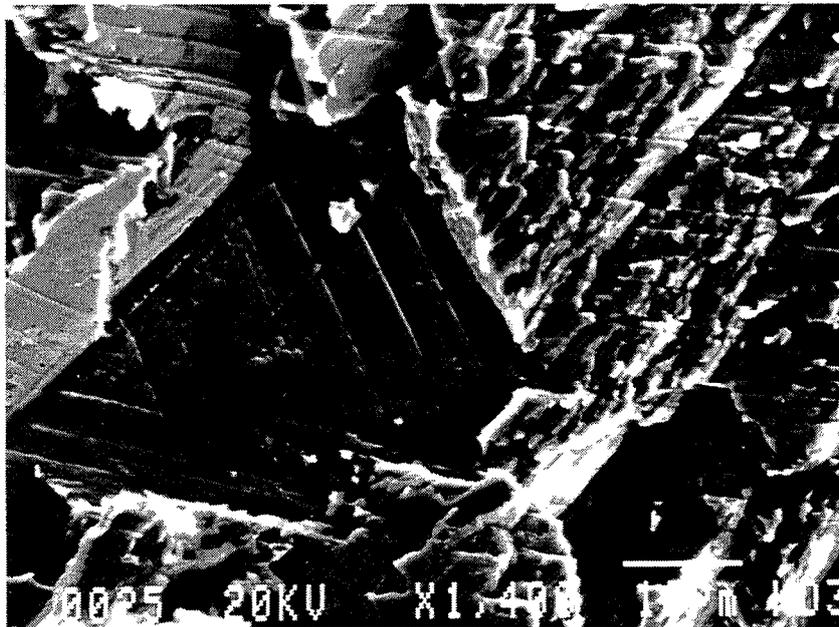


Figure 2.9 : Observation de lignes de glissement sur une facette de rupture de CSC. 316L sollicité dans  $MgCl_2$  à  $153^\circ C$ .

orientation probable [Lefevre 90]. De plus, cette mesure d'angle, couplée à la technique des figures d'attaque, permet de lever le doute sur les différentes orientations possibles.

Pour réaliser cette mesure au microscope électronique à balayage, il faut tout d'abord faire une rotation de l'échantillon afin que l'arête commune aux deux facettes considérées soit parallèle à l'axe de tilt du microscope (figure 2.8). Puis l'échantillon est incliné jusqu'à ce que la longueur projetée d'une facette devienne nulle (facette parallèle au faisceau d'électrons) ou passe par un maximum (facette perpendiculaire au faisceau d'électrons). Cet angle de tilt est repéré et la même procédure est répétée pour la deuxième facette. La somme de ces deux angles d'inclinaison est alors égale à l'angle entre les deux facettes étudiées. La mesure des angles entre les différentes facettes permet de limiter le nombre possible de combinaisons [Dickson 90].

Ce calcul ne permet pas à lui seul d'identifier la nature cristallographique des facettes de rupture, d'autant que la précision de la mesure est faible. Cependant il permet de confirmer les orientations obtenues par d'autres méthodes. L'idée du tilt sera réutilisée dans notre propre technique de détermination de l'orientation cristallographique.

### **b-Analyse des traces de glissement**

Les traces de glissement sur le faciès de rupture sont généralement des marques d'arrêt correspondant à un émoussement par déformation plastique du fond de fissure. Suivant le plan cristallographique sur lequel elles apparaissent, l'angle entre ces jeux de lignes diffère. Un exemple de ces lignes de glissement est donné à la figure 2.9. Lorsque la facette est ramenée dans un plan perpendiculaire au faisceau d'électrons, la simple mesure de l'angle entre lignes de glissement permet d'accéder à la nature cristallographique de la facette. L'inconvénient majeur de cette analyse est que ces lignes ne sont que rarement visualisables. De plus il est très difficile de différencier les plans  $\{111\}$  et  $\{110\}$ . Sur le plan  $\{111\}$ , elles forment un triangle équilatéral alors que sur le plan  $\{110\}$  elles donnent un triangle isocèle dont l'angle à la base est de  $54,5^\circ$  et l'angle au sommet de  $71^\circ$ . La différence ne peut donc être faite au microscope électronique à balayage que si la facette est strictement perpendiculaire au faisceau d'électrons. De plus, pour mesurer ces angles, il faut que plusieurs jeux de lignes soient identifiables. Enfin, ici encore, la taille des facettes doit être largement supérieure au micron pour que la mesure des angles soit réalisable. Toutes ces conditions expliquent que nous n'ayons pas retenu l'analyse des traces de glissement comme seule méthode

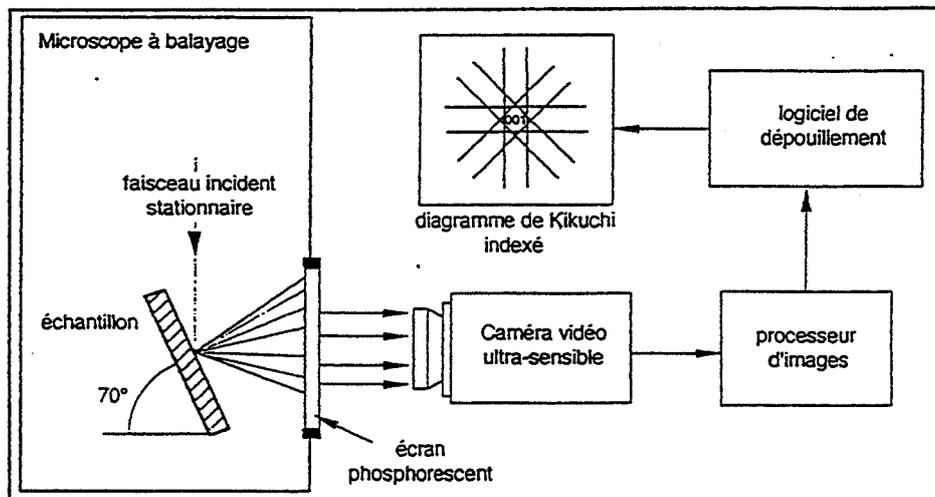


Figure 2.10 : Principe de la technique EBSD.

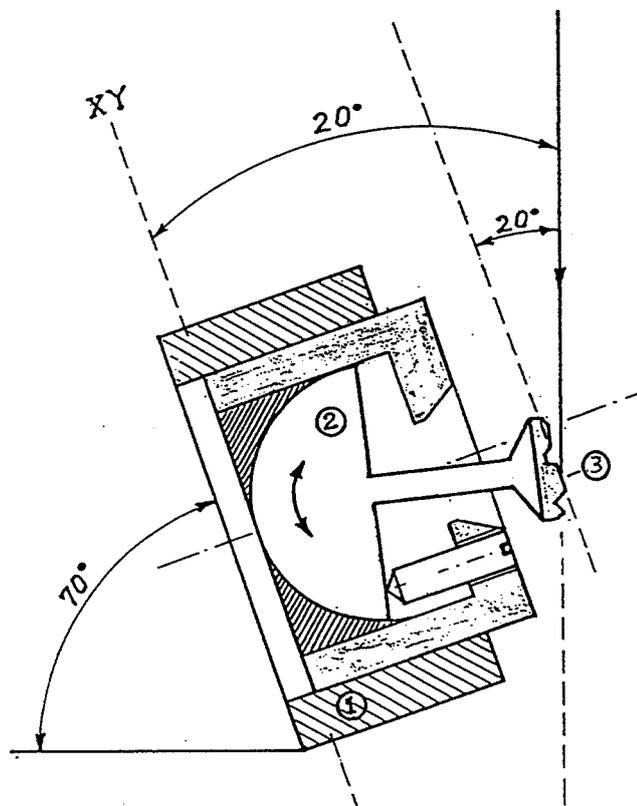


Figure 2.11 : Système correctif permettant de corriger la position de la facette analysée.  
1 - porte échantillon du microscope, 2 - système correctif, 3 - échantillon.

d'identification des facettes. Cependant nous l'avons utilisée dès que possible comme moyen de confirmation.

### **2.2.3-Méthode utilisant l'EBSD (Electron Back Scattering Diffraction)**

Cette technique nécessite un microscope électronique à balayage équipé d'un système permettant l'analyse des pseudo-lignes de Kikuchi. Le principe d'analyse est le suivant : on envoie sur la facette de rupture un faisceau d'électrons stationnaire et on recueille les électrons diffractés sur un écran phosphorescent comme le montre la figure 2.10. Une caméra vidéo ultra sensible reçoit l'image ainsi formée et celle-ci est analysée à l'aide d'un logiciel de dépouillement très performant qui calcule le diagramme de Kikuchi indexé de la facette analysée. Cette technique est généralement utilisée pour l'analyse locale de texture, mais elle a été employée avec succès pour l'analyse des surfaces de rupture dans le cas du cuivre [Meletis 84] et du Fe-3%Si [Kaczorowski 86]. Elle est applicable aussi bien aux polycristaux qu'aux monocristaux. Nous l'avons utilisée avec succès sur une facette de CSC obtenue sur un monocristal de 304L dans  $MgCl_2$  à  $153^\circ C$  et la description des différentes étapes est donnée dans [Tacikowski 98]. Nous ne présenterons donc ici que les grandes lignes de l'ensemble de la technique.

Le système d'analyse et de traitement de l'image formée sur l'écran phosphorescent part de l'hypothèse suivante : la facette à analyser est initialement horizontale, elle est ensuite tiltée de  $70^\circ$  de façon à recueillir un maximum d'électrons diffractés. Si la technique est appliquée à une facette initialement inclinée, on obtiendra quand même un diagramme de Kikuchi indexé mais cet indexation sera totalement arbitraire. Il est donc impératif de connaître avec précision la position de référence de la facette de façon à être sûr des résultats obtenus.

La première étape consiste à positionner la facette que l'on souhaite analyser dans un plan parallèle au plan xy du porte échantillon du microscope. Ceci est réalisé à l'aide d'un système correctif à trois degrés de liberté qui s'insère dans le porte échantillon du microscope (figure 2.11). Trois repères sur la facette à analyser sont nécessaires pour s'assurer qu'elle est horizontale ; ceci se traduit par une distance maximale entre ces repères. Quand la facette est mise en position, l'ensemble est tilté de  $70^\circ$  pour l'analyse des électrons rétrodiffusés.

Lors de cette opération, plusieurs problèmes peuvent apparaître. Si le faciès de rupture possède un relief important (ce qui a souvent été le cas pour nos échantillons), il n'est pas rare

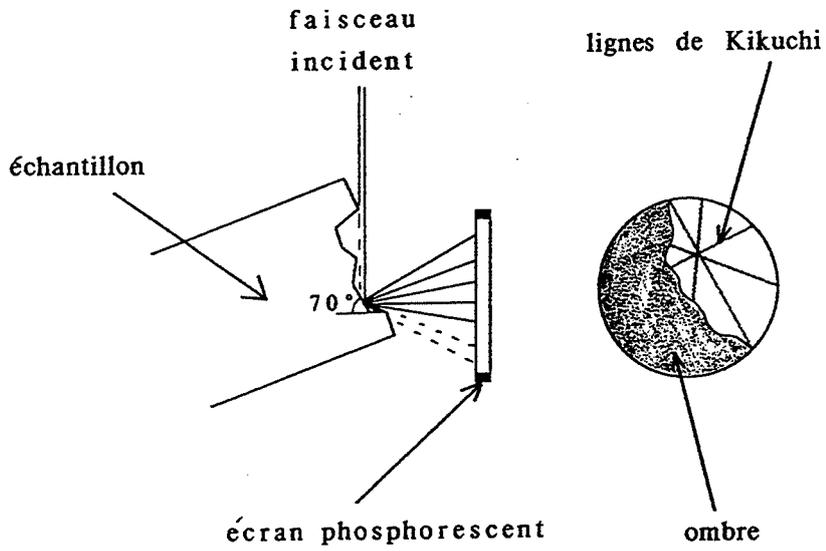


Figure 2.12 : Application de la technique EBSD à l'identification des facettes de CSC.

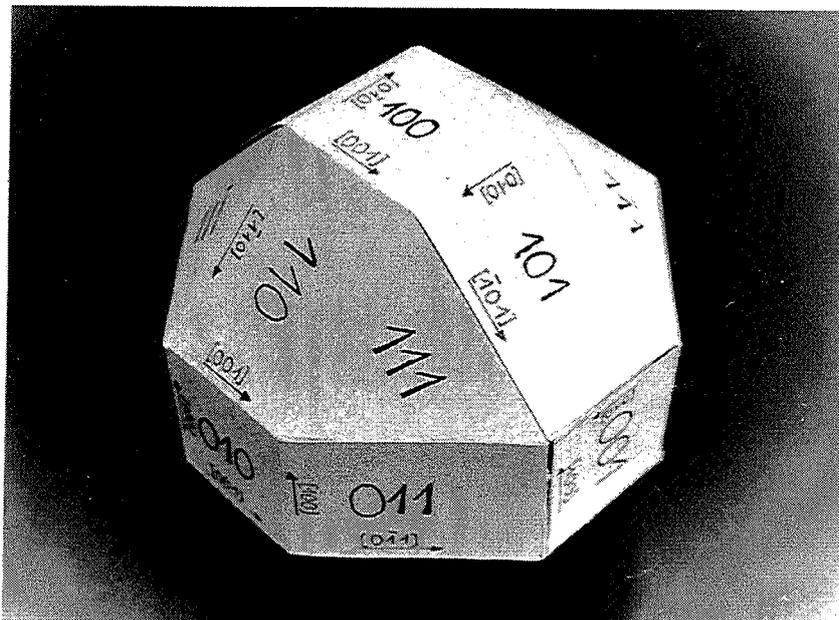


Figure 2.13 : Polyèdre représentant les plans {100}, {110} et {111}.

que le tilt de  $70^\circ$  fasse disparaître la facette, comme on le voit sur la figure 2.12. Cependant même si l'on s'affranchit de ce problème, il est très fréquent que le relief masque une partie des électrons diffractés. On obtient alors un diagramme de Kikuchi incomplet (figure 2.12) qui ne permet pas une indexation correcte.

La limite de résolution de la technique EBSD est de l'ordre du micron. Compte tenu du tilt de  $70^\circ$  et des problèmes d'ombre dès que le faciès a un fort relief, l'analyse des facettes à partir de l'EBSD a en fait une limite de résolution supérieure au micron. Ce point constitue donc une limitation de cette technique comme nous le verrons au cours de l'étude expérimentale.

De plus tout film d'oxyde présent sur la surface interdit la formation des lignes de pseudo-Kikuchi [Taciowski 98]. Enfin dans le cas des monocristaux orientés, connaître la position spatiale d'une facette revient à connaître sa nature cristallographique. C'est pourquoi nous n'avons pas retenu cette technique d'analyse bien qu'elle s'avère compétitive vis à vis des figures d'attaque en particulier de par le fait qu'elle n'est pas destructive.

#### **2.2.4-Méthode de la projection dans des plans cristallographiques**

On voit donc que les méthodes d'analyse précédemment décrites possèdent divers inconvénients. La première (figures d'attaque) est délicate à mettre en oeuvre et le risque de dégradation du faciès est toujours présent. Les méthodes d'analyse géométriques servent surtout comme moyen de contrôle à l'appui des autres techniques. L'EBSD est une technique très lourde à mettre en place et elle ne se justifie pas dans le cas des monocristaux. C'est pourquoi nous avons pensé à une nouvelle méthode d'analyse dans le cadre de notre étude. En effet la majorité des essais a été effectuée sur des éprouvettes monocristallines orientées. Ceci signifie que pour les faciès de rupture de ces éprouvettes, on connaît à la fois le plan de la photo et les directions cristallographiques dans ce plan. C'est cette situation que nous avons exploitée.

Cette technique nécessite une bonne connaissance de la cristallographie. Aussi durant toute notre réflexion, nous nous sommes aidés d'un polyèdre représentant les plans  $\{100\}$ ,  $\{110\}$  et  $\{111\}$  dans l'espace, dont la photographie est donnée à la figure 2.13 (voir plan en annexe A).

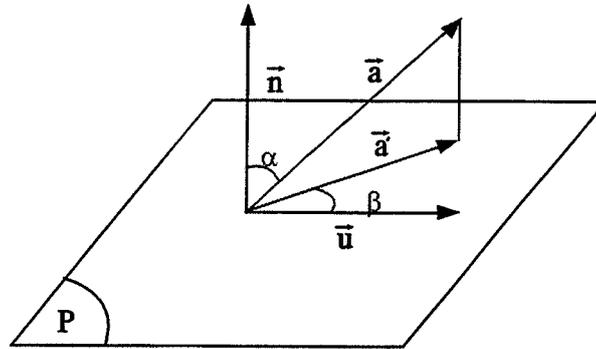


Figure 2.14 : Principe de calcul de la position de la direction projetée.

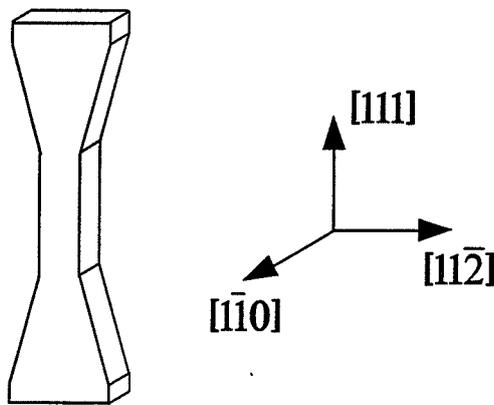


Figure 2.15 : Orientation de l'éprouvette monocristalline [111].

**a- Principe**

Le principe général de détermination de la cristallographie des facettes de rupture obtenues en CSC est le suivant : connaissant l'orientation des monocristaux sur lesquels nous travaillons, nous observons les faciès de rupture dans différentes projections réalisées en tiltant l'échantillon dans le microscope électronique à balayage (MEB). Pour chaque projection, la direction des arêtes sur les photographies prises au MEB est comparée aux projections dans ce plan des directions cristallines de bas indice telles que  $\langle 100 \rangle$ ,  $\langle 110 \rangle$ ,  $\langle 111 \rangle$  ou  $\langle 112 \rangle$ . En confrontant les résultats dans les différentes projections, on détermine sans ambiguïté l'orientation cristallographique des arêtes. Il est ensuite aisé de remonter à la nature cristallographique des facettes et également d'identifier les directions locales de propagation.

Pour chaque projection il faut donc connaître la position des directions projetées par rapport à une direction repère dans le plan de projection. Un programme en Pascal, réalisé en collaboration avec J.P. CHATEAU, permet d'effectuer ce calcul. Son principe est le suivant (fig. 2.14) :

soit  $\vec{a}$  une direction cristallographique quelconque

$\vec{n}$  la normale au plan de projection P

$\vec{a}'$  la projetée de  $\vec{a}$  dans P

$\vec{u}$  une direction de référence dans P

$$\alpha = (\vec{n}, \vec{a})$$

$$\vec{a} = \|\vec{a}\| \cdot \cos \alpha \cdot \vec{n}$$

donc on a :  $\vec{a}' = \vec{a} - (\vec{a} \cdot \vec{n}) \vec{n}$  où tous les vecteurs sont normés

Il est ensuite aisé de calculer l'angle  $\beta = \arccos\left(\frac{\vec{u} \cdot \vec{a}'}{\|\vec{u}\| \|\vec{a}'\|}\right)$

et de le comparer aux angles mesurés sur les photographies prises au MEB.

Aussi, avant toute identification des facettes, il est indispensable de connaître la nature cristallographique des faces du fût de l'éprouvette que l'on observe. Pour les monocristaux d'orientation  $\langle 111 \rangle$  et  $\langle 149 \rangle$ , le type cristallographique de la facette ne suffit pas, il faut connaître sa nature avec précision. Pour cela une analyse de l'émergence des glissements sur

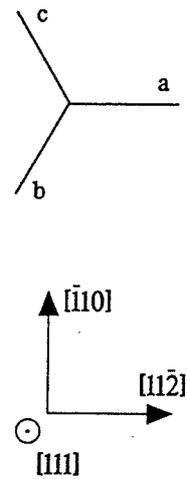
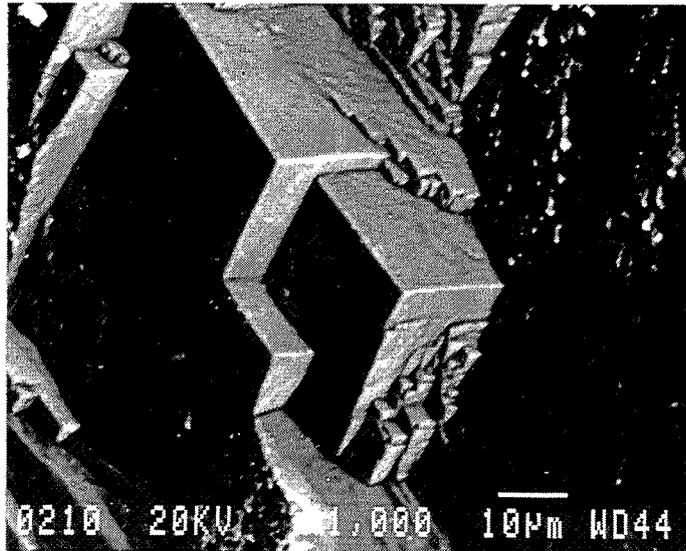


Figure 2.16 : Faciès de rupture d'un monocristal en 304L sollicité dans  $MgCl_2$  à  $117^\circ C$   
Plan d'observation : (111).

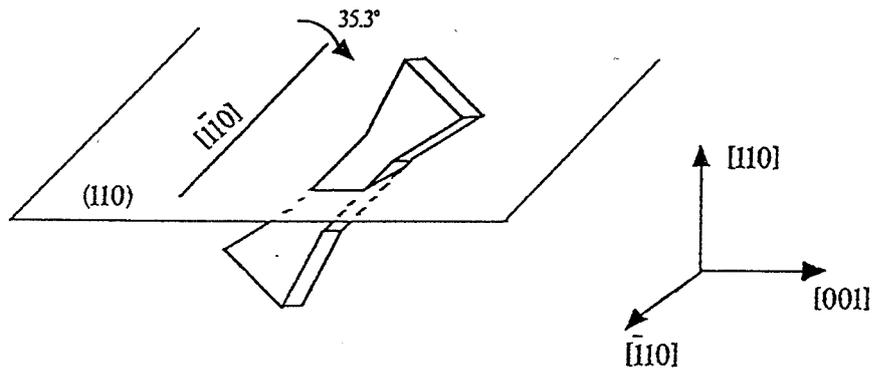


Figure 2.17 : Tilt de l'échantillon pour changer de plan de projection.

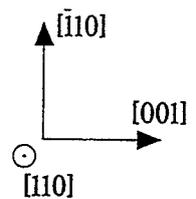
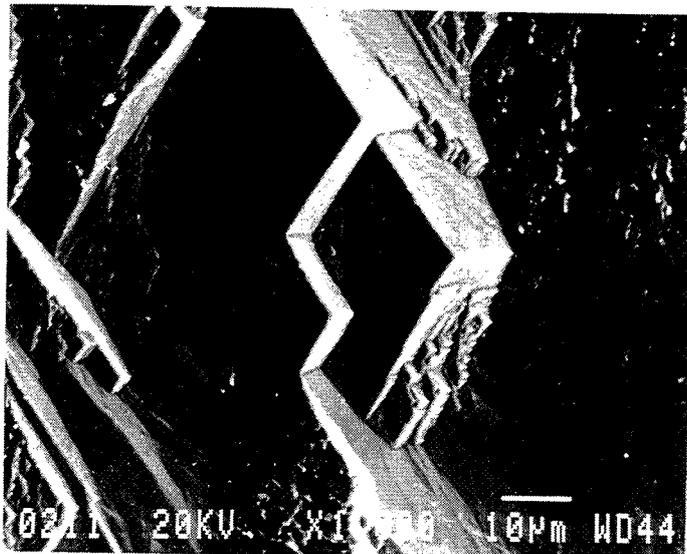


Figure 2.18 : Faciès de rupture d'un monocristal en 304L sollicité dans  $MgCl_2$  à  $117^\circ C$   
Plan d'observation : (110).

deux faces perpendiculaires du fût est indispensable. Pour illustrer ces propos on peut par exemple considérer un monocristal d'orientation  $[111]$  dans l'axe de traction. Si l'on prend comme axe de tilt  $[1\bar{1}0]$  et que l'on incline l'échantillon de  $+35^\circ$ , on obtient comme nouveau plan de projection le plan  $(110)$ . Par contre, si ce tilt est réalisé avec  $[\bar{1}10]$  comme axe, on aura comme plan de projection  $(114)$ . C'est pourquoi il est essentiel avec cette technique de connaître la nature cristallographique du monocristal au signe près, même si l'objectif reste de déterminer le type de facettes de rupture.

### **b- Cas concret**

Pour la description de ce cas concret nous avons pris l'exemple d'un monocristal d'orientation  $\langle 111 \rangle$  dans l'axe de traction ; en effet ce cristal sollicité en CSC dans  $\text{MgCl}_2$  à  $117^\circ\text{C}$  casse de façon très fragile et les arêtes entre facettes sont très bien définies. L'éprouvette que nous avons testée est orientée comme le décrit la figure 2.15.

La photo 2.16 a été prise sans tilt, c'est à dire que le plan macroscopique moyen d'observation est le plan  $(111)$ . On sait, d'après l'orientation du monocristal (cliché de Laue + lignes de glissement), que dans cette vue la direction horizontale est  $[11\bar{2}]$ . Les angles entre les arêtes a, b et c et l'horizontale sont respectivement  $0^\circ$ ,  $125^\circ$  et  $-125^\circ$ . Si l'on considère l'ensemble des projections dans ce plan, les arêtes peuvent avoir les orientations suivantes (seules les directions de type  $\langle 100 \rangle$ ,  $\langle 110 \rangle$ ,  $\langle 111 \rangle$  et  $\langle 112 \rangle$  sont envisagées) :

- arête a :  $[11\bar{1}]$ ,  $[112]$ ,  $[11\bar{2}]$ ,  $[110]$  ou  $[001]$
- arête b :  $[101]$ ,  $[121]$ ,  $[1\bar{1}1]$ ,  $[010]$  ou  $[1\bar{2}1]$
- arête c :  $[\bar{1}11]$ ,  $[211]$ ,  $[\bar{2}11]$ ,  $[100]$  ou  $[011]$

On voit clairement par cet exemple qu'une seule photo n'est jamais suffisante car le nombre d'orientations possibles est important.

Avant de poursuivre l'analyse de cette plage, il faut savoir que tout tilt dans le MEB est réalisé par l'intermédiaire d'une tige filetée. C'est pourquoi le tilt s'accompagne obligatoirement d'une rotation de l'échantillon (fonction de la hauteur d'observation) qu'il faut impérativement corriger. Pour commettre le moins d'erreur possible, il est donc conseillé de prendre comme axe de tilt une direction appartenant à une face du fût de l'éprouvette. En effet, ces faces sont initialement invisibles au MEB, puisqu'elles sont parallèles au faisceau d'électrons ; avec ce type de tilt elles doivent le rester. L'inconvénient de cette précaution est qu'elle aboutit parfois à des configurations cristallographiques peu simples .... Comme nous

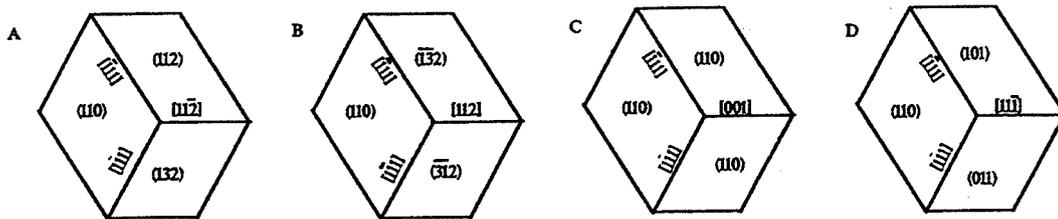


Figure 2.19 : Différentes orientations possibles à partir des précédentes projections.

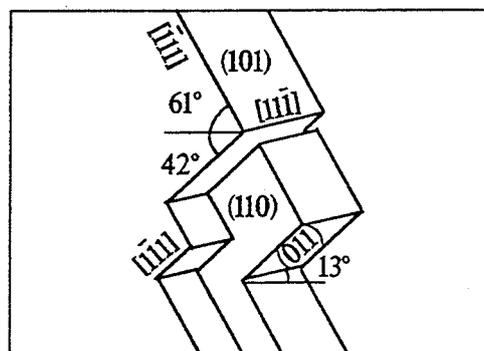
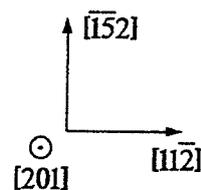
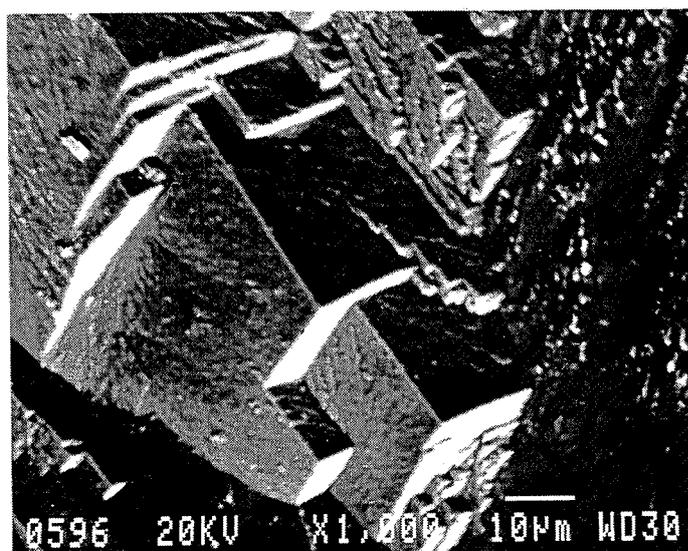
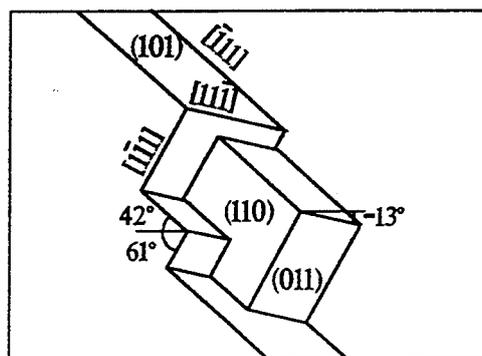
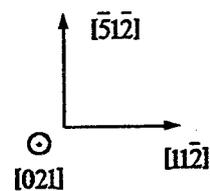
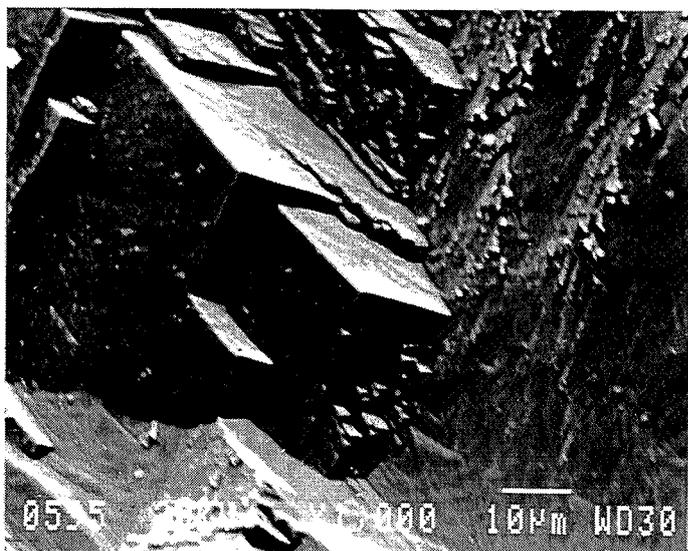


Figure 2.20 : Projection de la plage analysée dans les plans : a-(021), b- (201).

avons travaillé sur des éprouvettes de section carrée, il est également commode de prendre la diagonale du carré comme axe de tilt.

Prenons par exemple l'axe  $[1\bar{1}0]$  comme axe de tilt. Un tilt de l'échantillon de  $35,3^\circ$  suivant cet axe donne (110) comme plan macroscopique moyen de projection (figure 2.17). La nouvelle projection est alors donnée à la figure 2.18 pour laquelle l'axe horizontal est cette fois-ci [001]. Les arêtes a, b et c forment avec l'horizontale des angles de  $0^\circ$ ,  $120^\circ$  et  $-120^\circ$ . Dans cette nouvelle projection, on a alors les possibilités suivantes :

- arête a :  $[11\bar{1}]$ ,  $[112]$ ,  $[11\bar{2}]$ ,  $[111]$  ou  $[001]$
- arête b :  $[1\bar{1}1]$
- arête c :  $[\bar{1}11]$

Les arêtes b et c sont donc respectivement  $[\bar{1}11]$  et  $[1\bar{1}1]$  ; ce qui implique que la facette qu'elles délimitent est (110). Par contre il reste 4 possibilités pour l'arête a et elles sont données à la figure 2.19.

Il nous a paru raisonnable, lors de l'analyse des facettes, de retenir les orientations de bas indices préférentiellement aux autres. Nous n'avons donc pas gardé les cas A et B de la figure 2.19. Le cas C n'est évidemment pas à retenir. C'est donc la solution D qui est correcte.

On voit ainsi qu'une simple réflexion sur la position relative des facettes dans l'espace permet de trancher. Cette réflexion est toujours utile pour valider les orientations trouvées. Ainsi deux projections d'une même plage sont suffisantes. Dans la pratique nous avons toujours travaillé sur un minimum de trois projections avec deux axes de tilt différents et des angles de tilt de  $30^\circ$  au minimum pour augmenter la précision des résultats. Dans l'exemple ci-dessus, la confirmation des résultats est illustrée par les figures 2.20 a et b qui représentent les projections de la plage analysée dans les plans (021) et (201) (axe de tilt  $[11\bar{2}]$ , angles de tilt  $-39,2^\circ$  et  $+39,2^\circ$ ).

### c- Limites et avantages de la méthode

La principale source d'imprécision est la mesure précise des angles sur les photographies prises au MEB, en particulier lorsque les détails observés sont petits. Nous verrons lors de la description de nos résultats expérimentaux que c'est souvent le cas puisque les facettes obtenues en CSC sont le plus souvent de l'ordre du micron. Mais cette source d'imprécision n'est pas propre à cette méthode et elle se retrouve dans les autres techniques précédemment décrites.

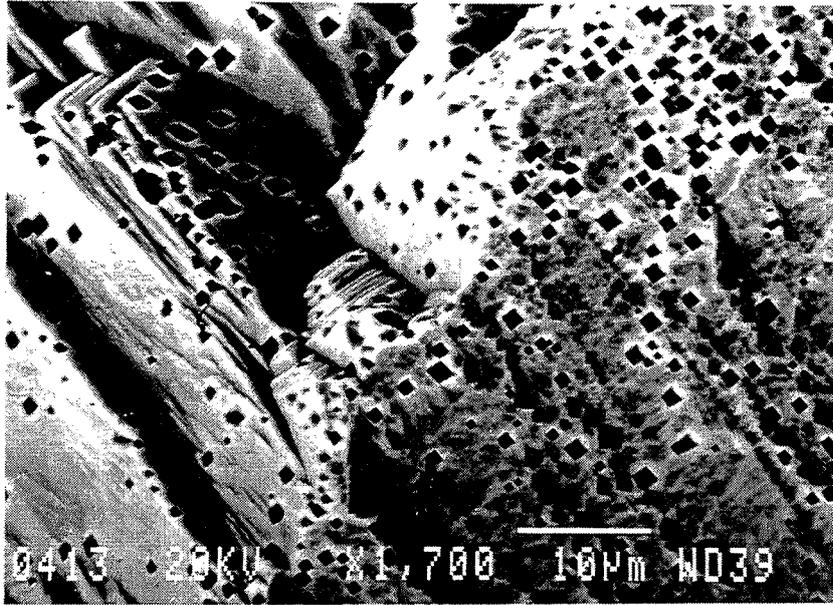


Figure 2.21 : Exemple de figures d'attaque formées sur un monocristal de 316L d'orientation  $[100]$ .

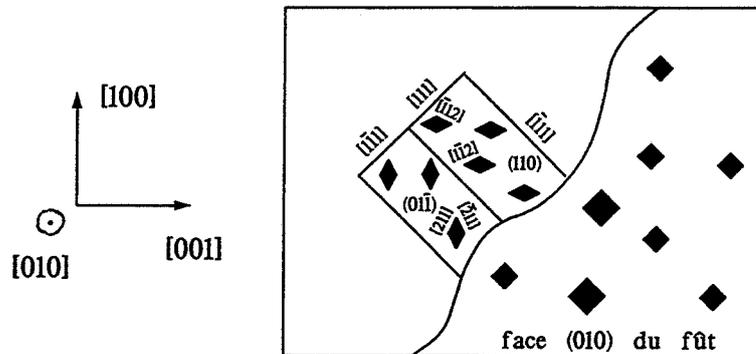
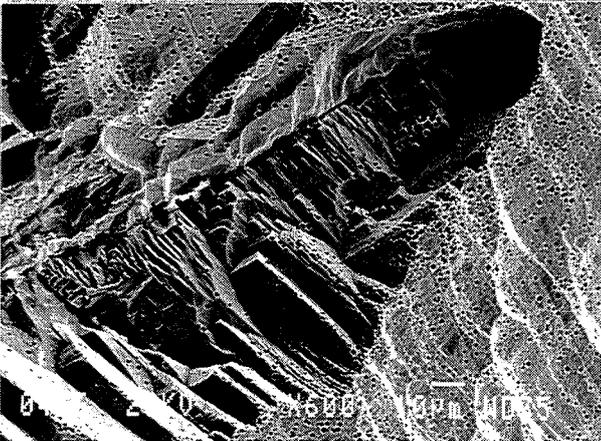
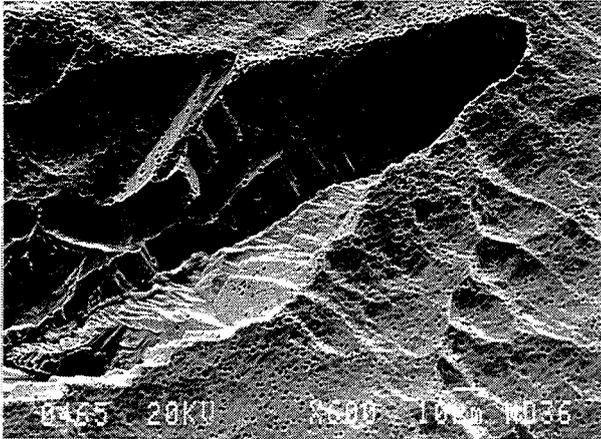
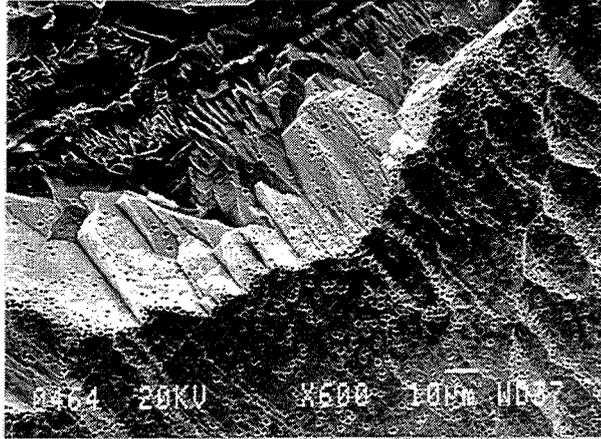


Figure 2.22 : Identification des directions cristallographiques de la figure 2.21.

Il nous a cependant paru indispensable de valider notre technique d'analyse cristallographique en comparant les résultats à ceux obtenus à l'aide des figures d'attaque. La figure 2.21 montre, sur le fût d'un monocristal d'orientation [100], la transition entre les faces de type {100} (à droite) et l'amorçage d'une fissure de CSC (à gauche). Nous reviendrons plus en détails lors de la description des résultats expérimentaux sur les conditions particulières de sollicitation de ce monocristal. La présence de figures d'attaque carrées confirme que la face du fût qui est observé est bien de type {100}, comme nous l'avions déterminé par la méthode de Laüe avant l'essai. Les figures formées sur les facettes de rupture sont en forme de losanges ce qui indique que ces facettes sont de type {110}. Ceci est tout à fait cohérent avec les informations cristallographiques qui sont résumées sur la figure 2.22. Nous avons donc projeté cette zone dans 4 plans cristallographiques différents de façon à valider notre méthode d'analyse. Les résultats obtenus sont donnés à la figure 2.23 (a à d). Il est net que les résultats obtenus à partir des projections sont en parfait accord avec les résultats des figures d'attaque, ce qui confirme bien la validité de notre méthode d'analyse.

En conclusion, la principale limite de la méthode de la projection est qu'elle n'est actuellement applicable qu'aux monocristaux. De plus, elle nécessite une bonne vision dans l'espace et demande une bonne maîtrise de la cristallographie géométrique. Par contre elle est simple à mettre en oeuvre puisqu'il suffit d'avoir un microscope électronique à balayage à sa disposition. D'autre part, contrairement à la technique des figures d'attaque, où il faut trouver le réactif qui convient à chaque matériau, elle peut être appliquée quel que soit le matériau. Enfin, elle n'est pas destructive et surtout toutes les plages peuvent être analysées. En effet, malgré le fort relief de nos échantillons, il nous a toujours été possible d'observer les plages qui nous intéressaient dans trois projections différentes.



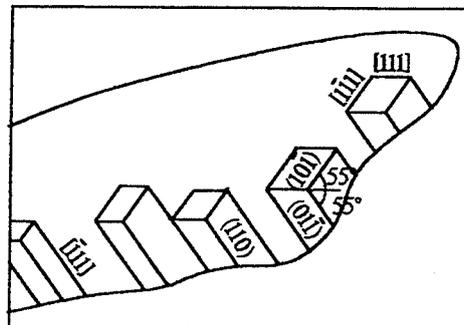
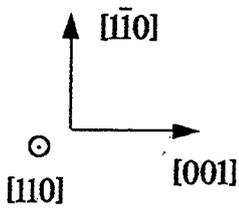
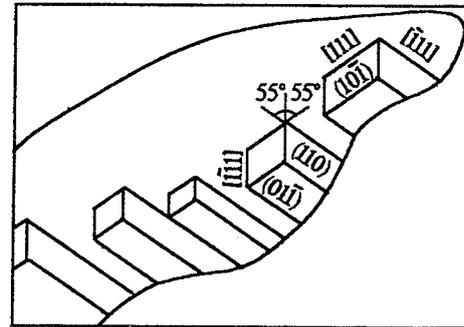
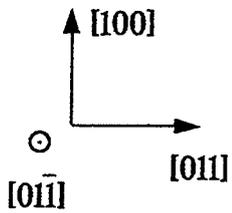
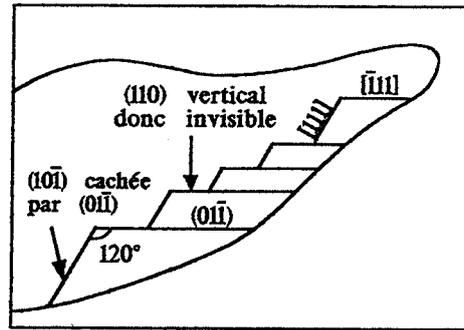
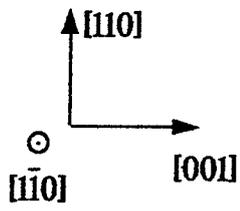
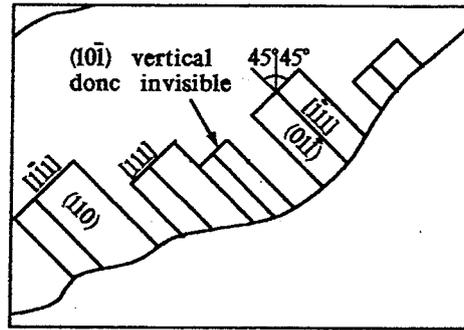
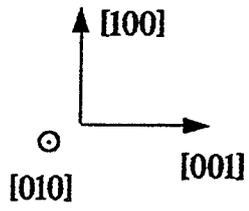


Figure 2.23 : Validation des résultats obtenus par les figures d'attaque par la méthode des projections.



## **Chapitre 3 :**

### **Microfractographie de la corrosion sous contrainte.**

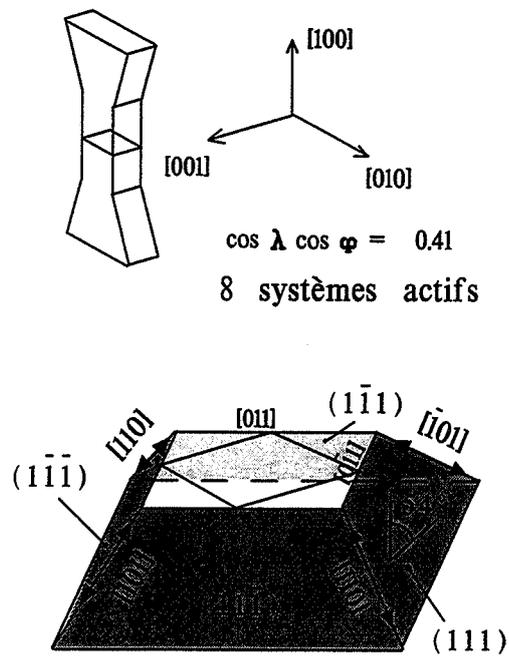


Figure 3.1 : Schéma des plans de glissement actifs de l'orientation  $\langle 100 \rangle$ .

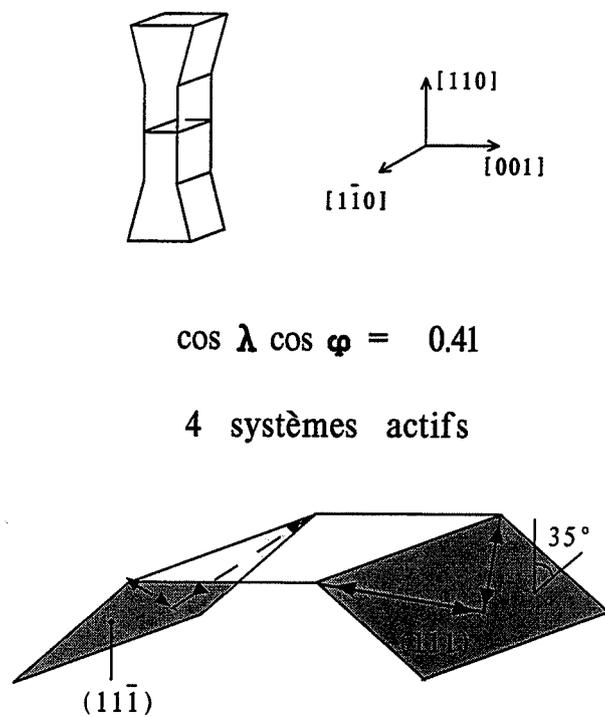


Figure 3.2 : Schéma des plans de glissement actifs de l'orientation  $\langle 110 \rangle$ .

Notre objectif est de discriminer, parmi les principaux modèles de CSC, ceux qui décrivent au mieux la fractographie en CSC des aciers inoxydables austénitiques. Plus particulièrement, nous allons tester les idées principales du ‘corrosion enhanced plasticity model’ et les confronter à l’analyse microfractographique du 316L en CSC. Pour tout cela, l’interprétation des faciès de fissuration et de leur caractère cristallographique constitue une des clés de la compréhension des mécanismes d’endommagement par CSC. Aussi, nous avons choisi d’étudier en détails la cristallographie de rupture d’un acier inoxydable austénitique dans  $MgCl_2$  à 117°C à potentiel libre. La majorité de nos essais est réalisée sur monocristaux orientés car cela présente de multiples intérêts :

- il est possible de contrôler les orientations cristallographiques de l’axe de traction et de la direction de propagation, donc de modifier les interactions corrosion-déformation.
- on peut vérifier si la cristallographie de rupture diffère suivant l’orientation de l’axe de traction.
- les monocristaux permettent de déterminer la cristallographie de rupture avec plus de précision.

Dans ce chapitre, nous présentons les orientations monocristallines testées. Puis nous décrivons les résultats expérimentaux obtenus sur les monocristaux d’orientation  $\langle 100 \rangle$ ,  $\langle 110 \rangle$ ,  $\langle 111 \rangle$  et  $\langle 149 \rangle$  et nous comparons ces résultats à ceux obtenus sur polycristaux. Ils sont ensuite discutés au regard des interactions dislocations-hydrogène et dislocations-lacunes et sont enfin confrontés aux principaux modèles de CSC et plus particulièrement au ‘corrosion enhanced plasticity model’.

Nous invitons tout lecteur désireux de suivre les détails cristallographiques à se confectionner un polyèdre identique à celui de la figure 2.13 (voir annexe A) .

### **3.1 - Description des orientations testées.**

Quatre orientations cristallographiques correspondant à l’axe de traction des éprouvettes ont été testées. De plus, pour certaines orientations, la direction macroscopique de propagation a été imposée en créant une entaille sur la face perpendiculaire à la direction souhaitée. Notre but est ici de changer les positions relatives des plans de glissement et du front de fissure, de façon à modifier d’un essai à l’autre les interactions corrosion-plasticité.

#### **3.1.1 - Orientation $\langle 100 \rangle$ .**

Quand l’axe de traction est de type  $\langle 100 \rangle$ , huit systèmes de glissement sont actifs :

$$\begin{aligned} & (111)[\bar{1}\bar{1}0] ; (111)[10\bar{1}] \\ & (1\bar{1}\bar{1})[1\bar{1}0] ; (1\bar{1}\bar{1})[101] \\ & (\bar{1}\bar{1}1)[110] ; (\bar{1}\bar{1}1)[10\bar{1}] \\ & (\bar{1}11)[110] ; (\bar{1}11)[101] \end{aligned}$$



Ils ont un facteur de Schmid de 0,41. La figure 3.1 donne une schématisation des plans de glissement qui sont actifs et permet de voir quelle est l'orientation des faces du fût du monocristal (le trait gras en noir représente les bords de l'éprouvette à la fois sur le schéma de l'échantillon et sur celui des plans de glissement). Les quatre plans sur lesquels le glissement a lieu forment un angle de  $54^\circ$  avec le plan horizontal et ils sont tous équivalents entre eux. Quatre systèmes ne glissent pas car les directions de glissement appartiennent au plan (100) qui est horizontal.

### 3.1.2 - Orientation $\langle 110 \rangle$ .

Si l'axe de traction est  $\langle 110 \rangle$ , seuls quatre systèmes de glissement sont actifs :

$$(111)[01\bar{1}] ; (111)[10\bar{1}] \\ (11\bar{1})[011] ; (11\bar{1})[101]$$

Le facteur de Schmid de ces systèmes a la même valeur que pour l'orientation précédente. Les deux plans sur lesquels il y a glissement forment un angle de  $35^\circ$  avec l'axe de traction (figure 3.2) ; les quatre autres plans de type  $\{111\}$  ne glissent pas car ils sont verticaux. Il est dès à présent intéressant de noter que les deux faces du fût de nos éprouvettes ne sont pas identiques vis à vis des plans de glissement : la face (001) contient l'arête  $[1\bar{1}0]$  qui est en zone avec les deux plans de glissement actifs alors que la face  $(1\bar{1}0)$  n'a aucune direction commune avec les plans de glissement actifs. Mais nous reviendrons sur l'intérêt d'une telle dissymétrie lors de la description des résultats expérimentaux de cette orientation.

### 3.1.3 - Orientation $\langle 111 \rangle$ .

Lorsque l'axe de traction est  $\langle 111 \rangle$ , six systèmes de glissement sont actifs (figure 3.3):

$$(11\bar{1})[011] ; (11\bar{1})[101] \\ (1\bar{1}1)[110] ; (1\bar{1}1)[011] \\ (\bar{1}11)[110] ; (\bar{1}11)[101]$$

Ici le glissement est beaucoup plus difficile car le facteur de Schmid de ces systèmes est plus faible : 0,27. En d'autres termes, les plans  $\{111\}$  sont mal orientés pour glisser car l'un d'entre eux est horizontal et les trois autres font un angle de  $70^\circ$  avec l'axe de traction.

### 3.1.4 - Orientation $\langle 149 \rangle$

Cette orientation est souvent appelée 'orientation pour glissement simple'. En effet si l'on a  $[\bar{1}49]$  comme axe de traction, le système de glissement  $(111)[10\bar{1}]$  a un facteur de Schmid proche de 0,5, c'est à dire que le glissement est maximal sur ce système car le plan (111) est incliné à  $45^\circ$  par rapport à l'axe de traction. Cependant ceci ne signifie pas que les autres systèmes ne sont pas actifs. En effet le système  $(\bar{1}11)[101]$  a un facteur de Schmid de 0,47 qui permet un glissement aisé. Par contre les autres systèmes participent moins au

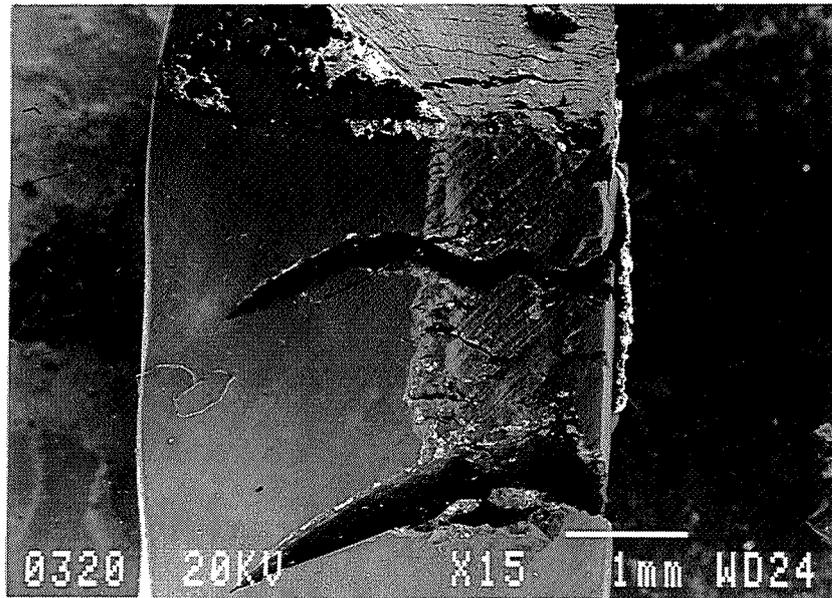


Figure 3.5 : Vue d'ensemble du monocristal d'orientation  $\langle 100 \rangle$ .

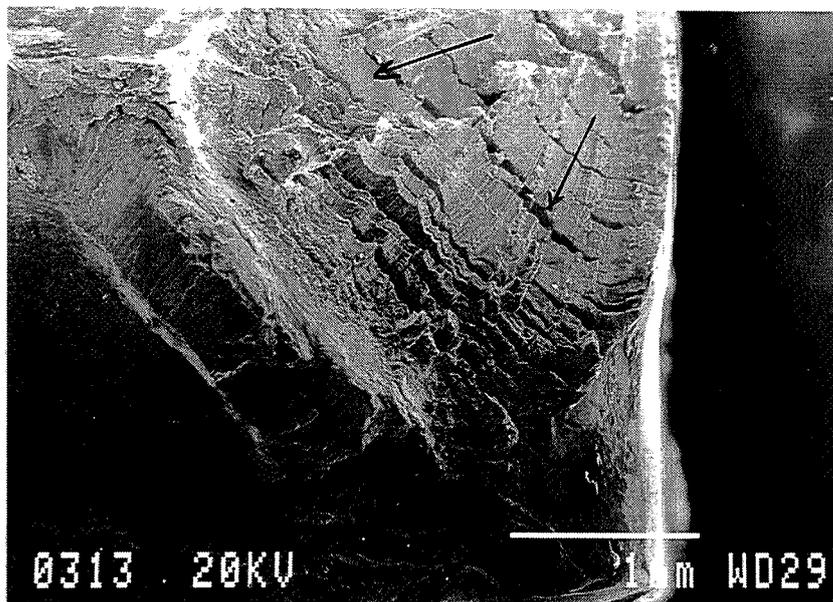


Figure 3.6 : Faciès de rupture du monocristal d'orientation  $\langle 100 \rangle$ .

glissement car leur facteur de Schmid sont voisins de 0,2 ou 0,3. En fait dans cette orientation deux plans sont faiblement inclinés : (111) à 45,6° et  $(\bar{1}11)$  à 35°. Deux autres plans contiennent des systèmes de glissement à faible facteur de Schmid car leur désorientation par rapport à l'axe de traction est plus forte : 77° pour  $(1\bar{1}1)$  et 70° pour  $(11\bar{1})$ .

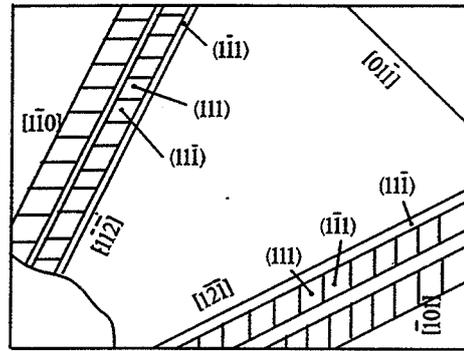
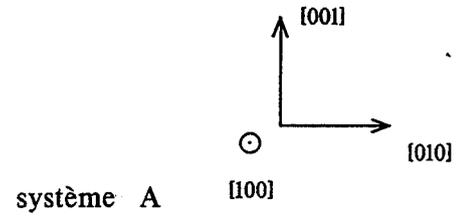
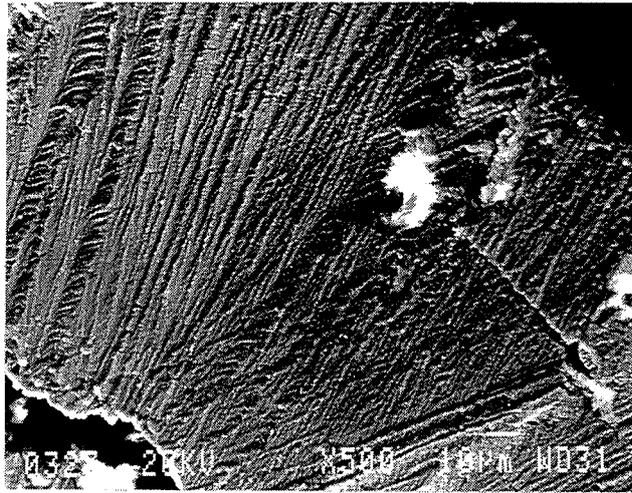
## **3.2 - Résultats expérimentaux.**

### **3.2.1 - Orientation <100>.**

L'orientation <100> est particulièrement intéressante à tester car pour les aciers inoxydables austénitiques, le plan de quasiclavage le plus souvent cité dans la littérature est le plan de type {100} [Meletis 86, Dickson 87, Shiqiong 89, Magnin 90, Olive 92(1)]. On peut donc s'attendre en testant cette orientation à une rupture fragile sur ce plan. La cristallographie des échantillons de cette orientation est donnée à la figure 3.1.

L'ensemble du faciès est macroscopiquement fragile et dû à la CSC (la même orientation testée à l'air est totalement ductile). Toutes les fissures se sont amorcées au coin de l'éprouvette, c'est à dire à l'intersection des faces (010) et (001). Il est clair à la vue de la figure 3.5 que le plan macroscopique de fissuration n'est pas (100), puisqu'il coupe les faces suivant des directions qui forment un angle d'environ 25° avec les lignes de glissement. Les fissures secondaires sont nombreuses, ce qui souligne l'aspect discontinu de la fissuration. La propagation à l'échelle macroscopique a lieu dans ce plan suivant la diagonale de l'éprouvette. En fait à plus fort grossissement (figure 3.6), on distingue deux directions privilégiées de propagation qui sont les bissectrices de l'angle formé par le côté de l'éprouvette et par sa diagonale. A l'échelle macroscopique, on voit clairement que la multifissuration est forte (figure 3.5) et il est important de noter que, quelle que soit la fissure, l'inclinaison du plan de fissuration est toujours la même.

Si l'on observe le faciès à l'échelle de la centaine de microns, on constate que l'on retrouve une multitude de sous systèmes tous identiques. Deux d'entre eux (systèmes A et B) sont illustrés à la figure 3.7. Chaque système résulte de la fissuration sur un plan moyen de type {110} accolé à un plan de type {111}. La direction locale de propagation est donc toujours de type <112>. Le plan moyen {110} est le résultat de la fissuration alternée sur deux microfacettes de type {111}. Il est important de noter que la discontinuité de fissuration a lieu à l'échelle du micron. A très fort grossissement on s'aperçoit que ces microfacettes sont disposées en feuillets qui se superposent. Bien que la fissuration soit toujours le résultat de la rupture sur trois plans {111}, elle prend différents aspects suivant l'endroit où l'on se situe sur l'éprouvette. Entre les directions <112> et le bord de l'éprouvette, un des systèmes est plus présent : système A à l'extérieur de  $[1\bar{1}\bar{2}]$  et système B à l'extérieur de  $[1\bar{2}\bar{1}]$  (voir figure 3.7 et 3.8). On peut d'ailleurs remarquer sur la figure 3.6, que les deux fissures qui se sont amorcées



système B

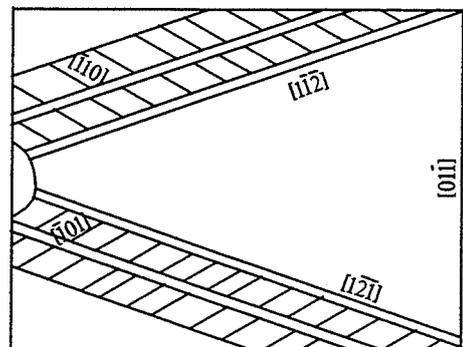
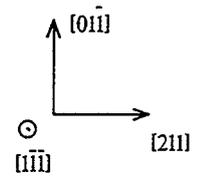
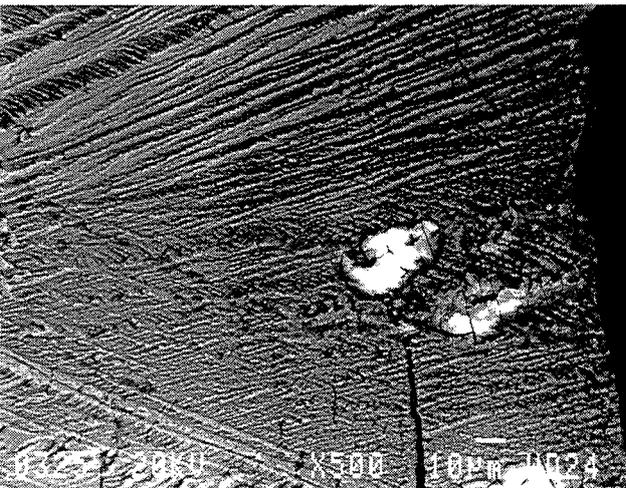
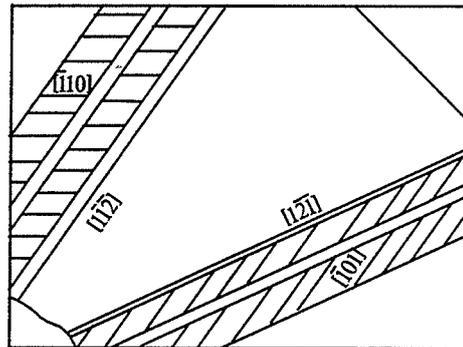
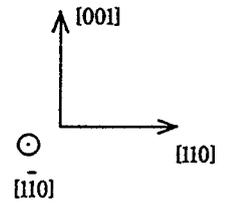
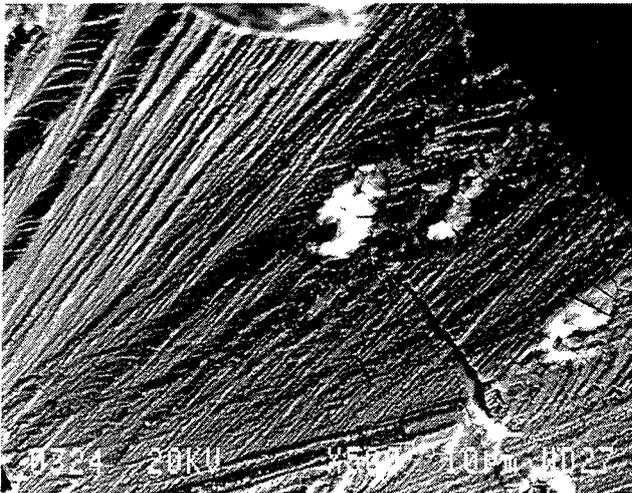


Figure 3.7 : Faciès de rupture du monocristal d'orientation  $\langle 100 \rangle$  vu dans trois plans de projection différents.

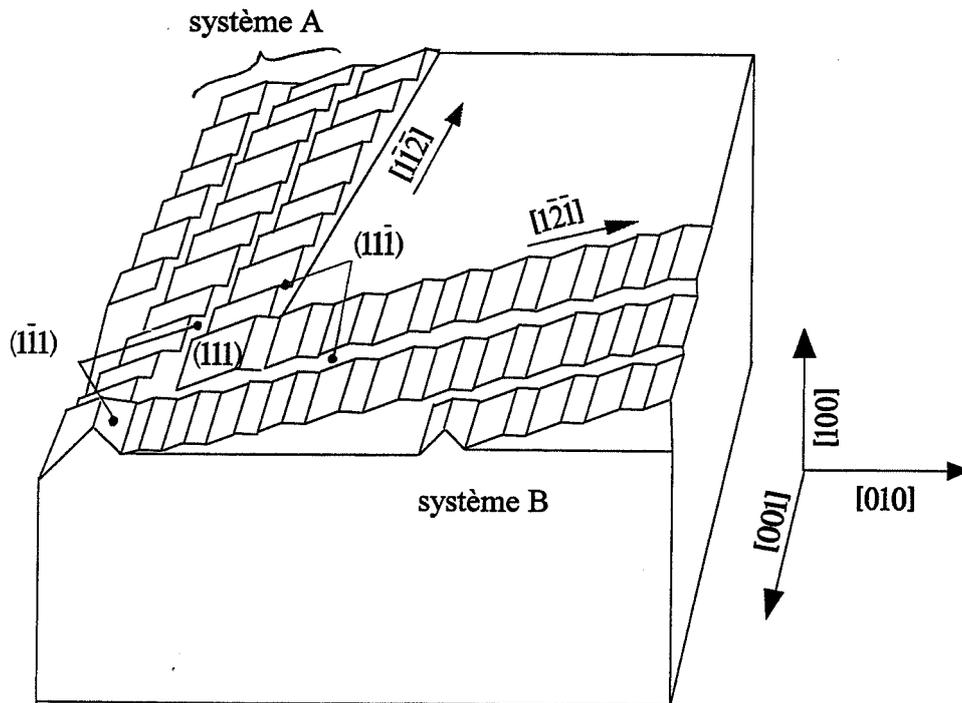
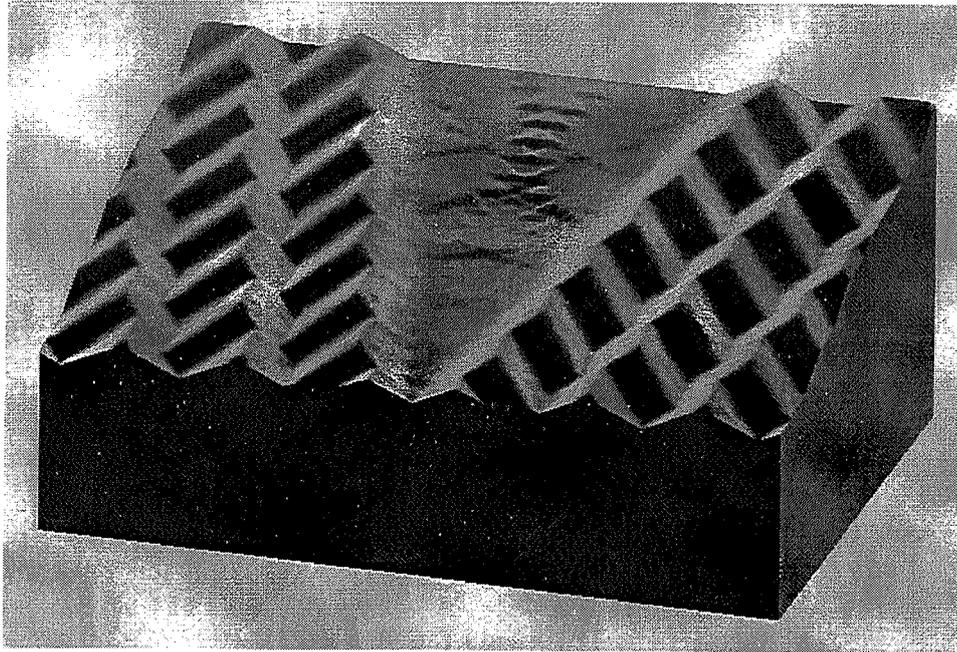


Figure 3.8 : Représentation schématique du faciès de rupture du monocristal d'orientation  $\langle 100 \rangle$ .

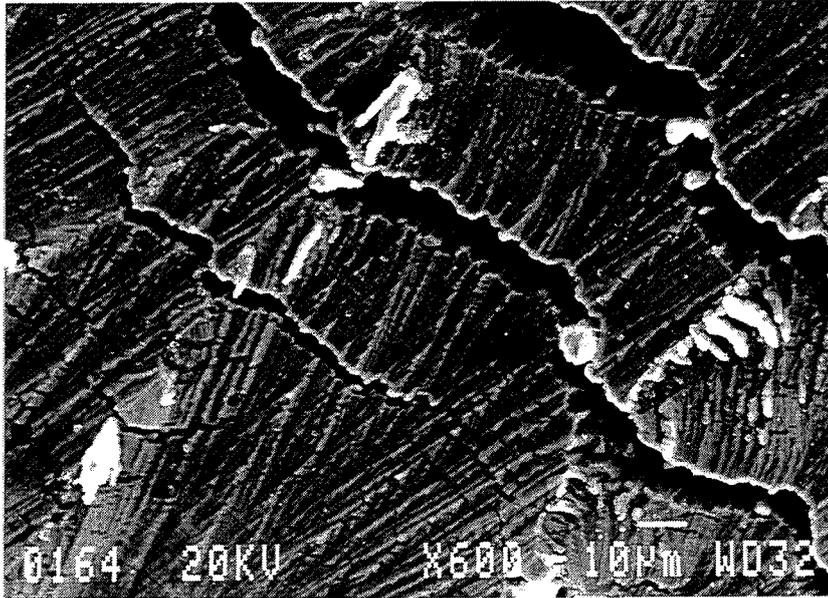


Figure 3.9 : Aspect de la fissuration du monocristal d'orientation  $\langle 100 \rangle$  quand deux systèmes sont imbriqués.



Figure 3.10 : Faciès en arête de poisson. Monocristal d'orientation  $\langle 100 \rangle$ .

aux deux coins opposés n'ont pas pu atteindre les deux autres coins de l'éprouvette car elles ont suivi les directions de propagation  $\langle 112 \rangle$ . Dans ces deux derniers coins, la rupture a eu lieu par striction, ce qui explique la forte déformation de l'éprouvette à ces endroits. Plus près du centre de l'échantillon, la fissuration est beaucoup plus complexe et difficile à dépouiller car les deux systèmes s'imbriquent l'un dans l'autre. Le plus souvent on observe alors des chevrons délimités par des directions de type  $\langle 112 \rangle$  (figure 3.9). Par endroit l'intersection des deux systèmes a une tout autre allure comme on peut le voir sur la figure 3.10. Ce type de faciès est généralement appelé en 'arête de poisson' ou 'faciès en éventail'. Dans notre exemple l'arête centrale est de type  $\langle 110 \rangle$ . Il est caractéristique de la fissuration par CSC du 316L dans  $\text{MgCl}_2$  bouillant et a été observé par différents auteurs [Dickson 90, Olive 92 (1)]. Il a d'ailleurs été confirmé grâce à l'utilisation de paires stéréographiques que les microfacettes en feuillets étaient de type  $\{111\}$  [Dickson 90].

L'ensemble des informations à l'échelle microscopique explique celles obtenues à l'échelle macroscopique. Le plan moyen de fissuration est de type  $\{311\}$  car il contient deux directions de type  $\langle 112 \rangle$ . Dans l'exemple que nous avons étudié, il s'agit du plan  $(311)$  et son inclinaison semble être dictée par le plan  $(111)$  qui est commun aux deux systèmes symétriques A et B. Ce plan coupe les faces  $(010)$  et  $(001)$  suivant des directions de type  $\langle 103 \rangle$  inclinées de  $26,5^\circ$  par rapport aux lignes de glissement. De plus les directions locales de propagation de type  $\langle 112 \rangle$  forment un angle de  $27^\circ$  avec les bords de l'éprouvette, ce qui est proche de ce que nous avons observé à l'échelle macroscopique.

Les fissures secondaires sont nombreuses. Si l'on considère celles qui apparaissent sur le plan macroscopique de fissuration  $(311)$ , elles ont toutes pour plan moyen de rupture le plan  $(\bar{3}11)$  dont l'inclinaison est dictée par  $(\bar{1}11)$  : c'est le plan de glissement commun aux deux systèmes symétriques de ces fissures secondaires.

A première vue il peut paraître surprenant que le plan macroscopique de fissuration soit si incliné par rapport à  $(100)$ . Cependant nous avons vu qu'à l'échelle microscopique, la fissuration résulte de la rupture sur trois plans de glissement et implique une direction locale de propagation de type  $\langle 112 \rangle$ . Le plan macroscopique de fissuration contient donc deux directions de ce type. On trouve comme plans possibles :  $\{012\}$ ,  $\{311\}$ ,  $\{135\}$  et  $\{011\}$ . Or ceux qui subissent la contrainte normale la plus forte sont ceux de type  $\{311\}$ .

En résumé le faciès de rupture résulte de la microfissuration sur trois plans de type  $\{111\}$  qui définissent une direction locale de propagation de type  $\langle 112 \rangle$ . Le plan moyen de fissuration est celui qui subit la contrainte normale la plus forte tout en contenant deux directions de type  $\langle 112 \rangle$ . Le plan de glissement commun aux deux systèmes symétriques  $((111)$  dans la figure 3.8) possède plusieurs particularités :

- il semble imposer l'inclinaison du plan macroscopique de fissuration.
- il contient le front de fissuration.

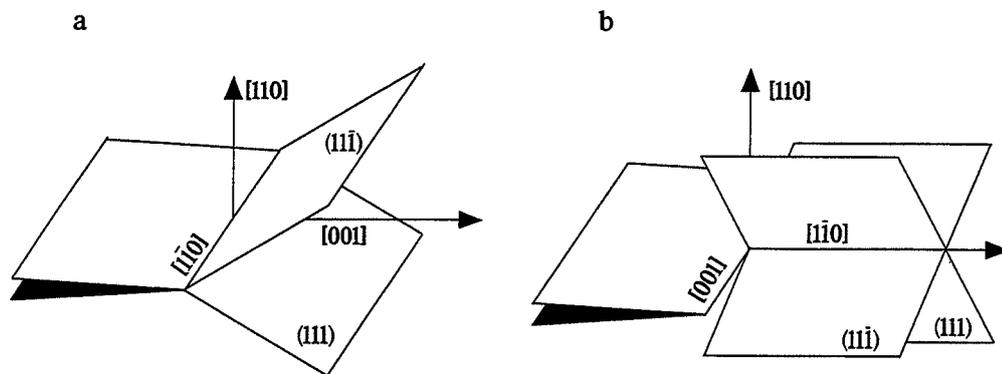


Figure 3.11 : Position des plans de glissement par rapport au fond de fissure dans le monocristal d'orientation  $\langle 110 \rangle$  :  
 a - direction de propagation  $(110)[001]$   
 b - direction de propagation  $(110)[1\bar{1}0]$

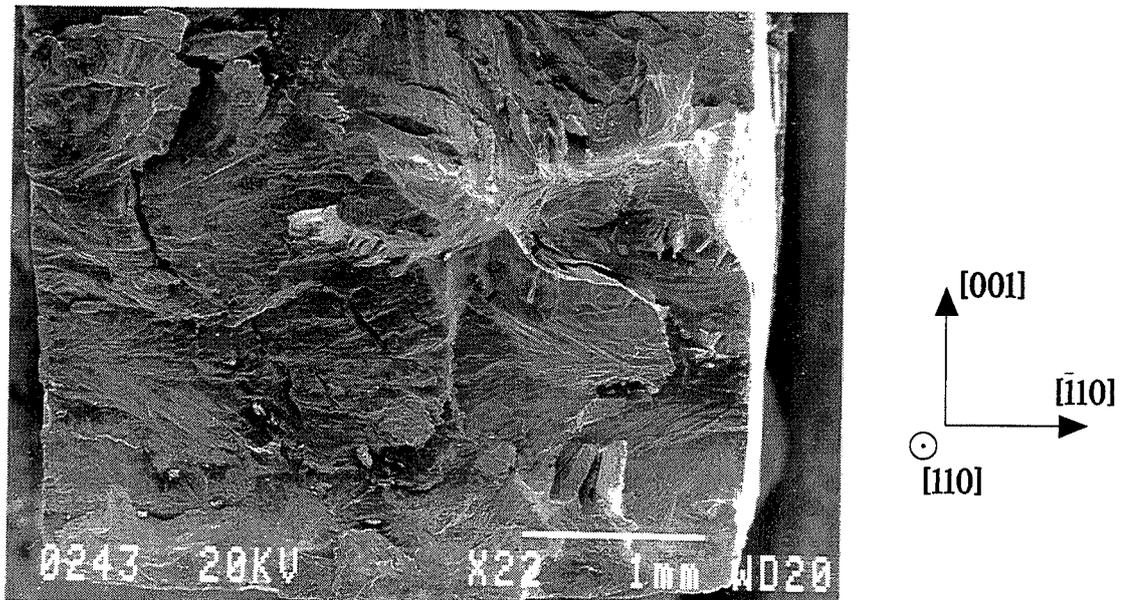


Figure 3.12 : Vue d'ensemble du faciès de rupture du monocristal d'orientation  $\langle 110 \rangle$ .  
 Direction de propagation  $[001]$ .

Nous reviendrons sur la grande importance de ce dernier paramètre lors de la description de l'orientation  $\langle 110 \rangle$ .

### **3.2.2 - Orientation $\langle 110 \rangle$ .**

Nous venons de voir avec l'orientation  $\langle 100 \rangle$  que les plans de glissement sont fortement impliqués dans la rupture, ce qui est en bon accord avec le 'corrosion enhanced plasticity model'. Pour tester ce dernier, l'orientation  $\langle 110 \rangle$  est particulièrement intéressante car deux plans de glissement sont disposés de façon symétrique par rapport à l'axe de traction. De plus, ces plans possèdent un facteur de Schmid égal à 0.41 (comme pour l'orientation  $\langle 100 \rangle$ ), c'est à dire que le glissement est facile. Par contre, la totale symétrie qui existait pour l'orientation  $\langle 100 \rangle$  est ici absente. Les monocristaux possèdent des faces d'orientation (001) et  $(1\bar{1}0)$  comme le montre la figure 3.2. La position des plans de glissement par rapport au fond de fissure sera donc différente selon que la fissure s'amorce sur la face (001) ou sur la face  $(1\bar{1}0)$ . C'est pourquoi nous avons testé deux directions macroscopiques de propagation :

a - la direction [001] place les plans de glissement en zone avec le fond de fissure (figure 3.11a).

b - si on impose la direction  $[1\bar{1}0]$ , les plans  $\{111\}$  actifs n'ont pas d'arête commune avec le fond de fissure (figure 3.11b).

#### **a - Direction de propagation [001].**

Cette direction macroscopique de propagation est imposée en créant une entaille sur la face  $(1\bar{1}0)$  et en protégeant le reste de l'échantillon avec de la laque. Le plan macroscopique de fissuration est alors quasiment perpendiculaire à l'axe de traction et l'aspect général du faciès est donné à la figure 3.12.

Fort des observations obtenues pour l'orientation  $\langle 100 \rangle$ , c'est à l'échelle du micron que l'essentiel des microfractographies a été étudié. La figure 3.13 montre clairement que c'est à cette échelle que s'effectue la discontinuité de fissuration. L'analyse de l'orientation cristallographique des microfacettes donne des résultats identiques à ceux obtenus pour l'orientation  $\langle 100 \rangle$ . La direction locale de propagation est de type  $\langle 112 \rangle$  : elle est le résultat de la fissuration alternée sur les deux plans de glissement actifs. Ceux-ci forment alors un plan moyen de type  $\{110\}$  qui est accolé à un troisième plan de type  $\{111\}$ . Ce troisième plan est peu visible sur la figure 3.13, en particulier pour les projections dans les plans  $(1\bar{1}0)$  et  $(11\bar{1})$  car il est, soit vertical par rapport au plan de projection, soit fortement incliné ( $70^\circ$ ). Cependant il est important de regarder plus précisément l'aspect de cette troisième facette. En effet il pourrait s'agir d'une facette primaire due à du quasiclavage et dont la rupture s'expliquerait par des champs de contrainte locaux très différents de ceux imposés à l'échelle de l'échantillon. C'est pourquoi nous avons tilté l'éprouvette de  $45^\circ$  avec comme axe de tilt l'axe [112] (figure 3.14). La troisième facette est en fait mal définie, c'est un plan moyen de

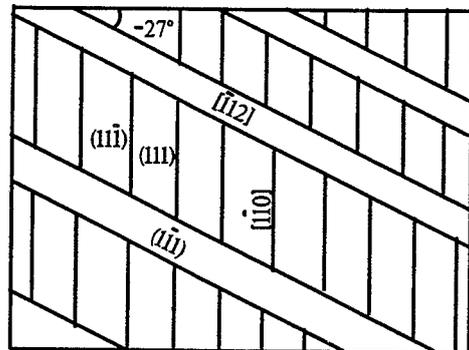
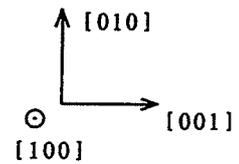
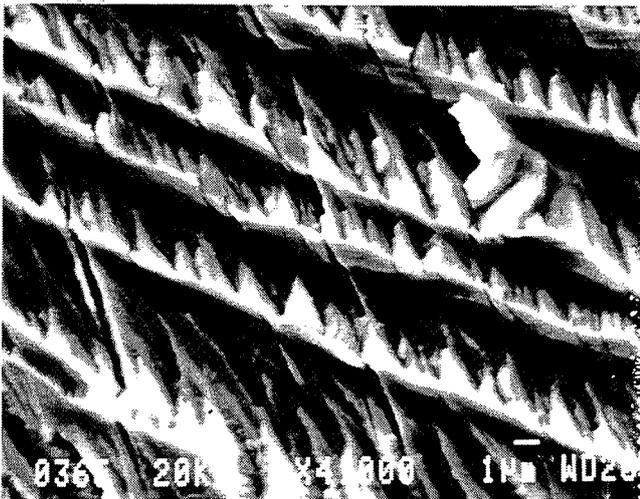
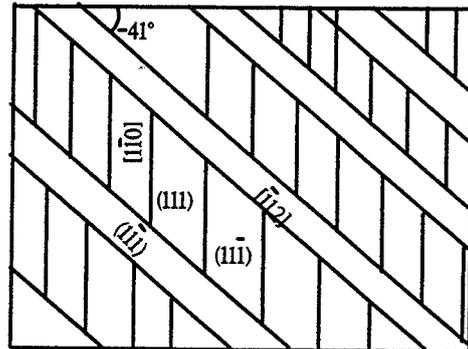
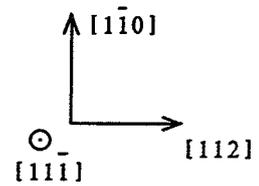
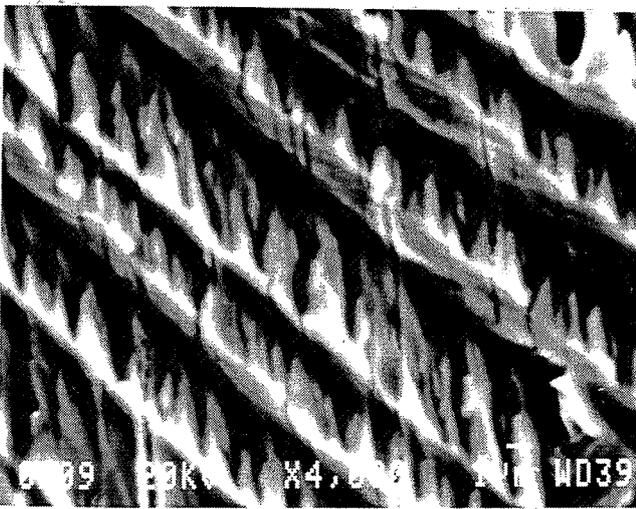
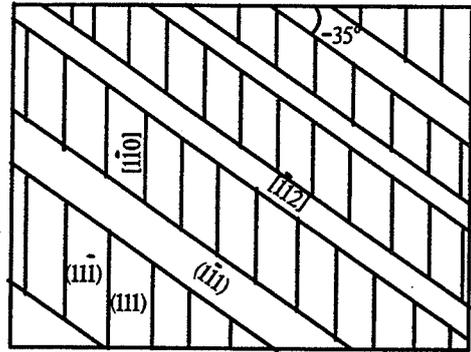
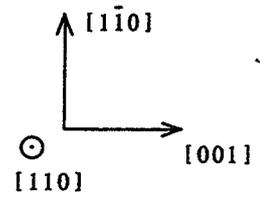
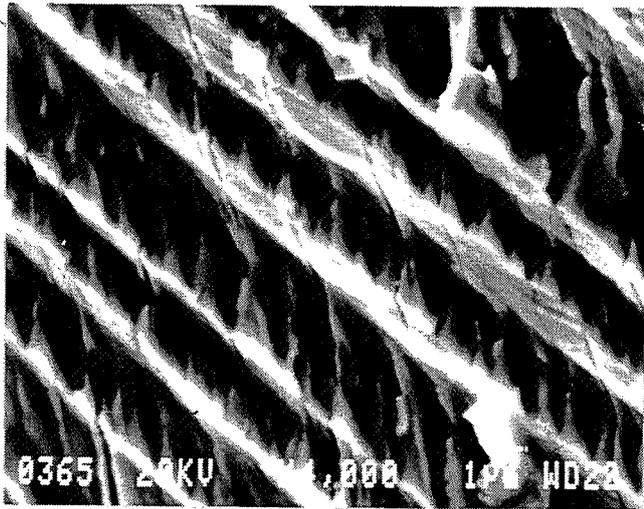
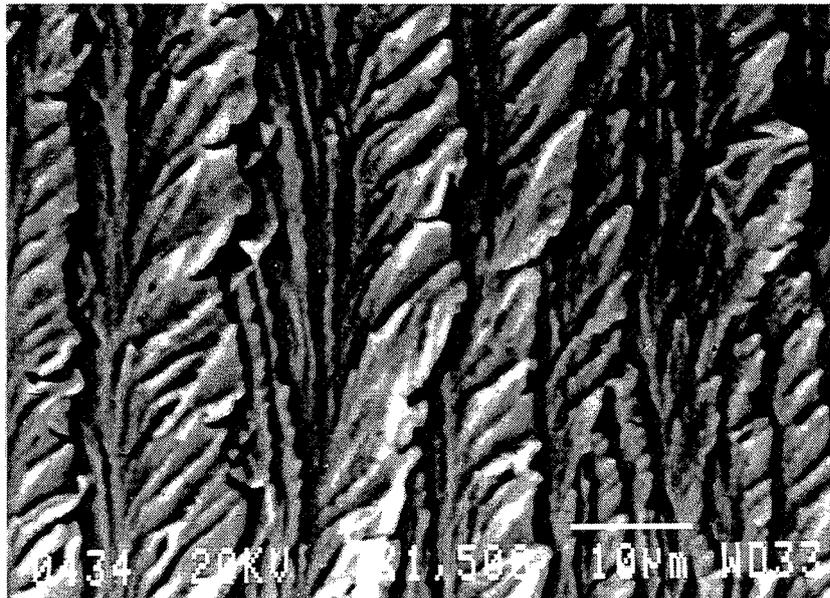


Figure 3.13 : Faciès de rupture du monocristal  $\langle 110 \rangle$  vu dans trois plans de projections.  
 Direction macroscopique de propagation :  $[001]$ .



*Figure 3.14 : Aspect de la troisième facette d'orientation {111}.*

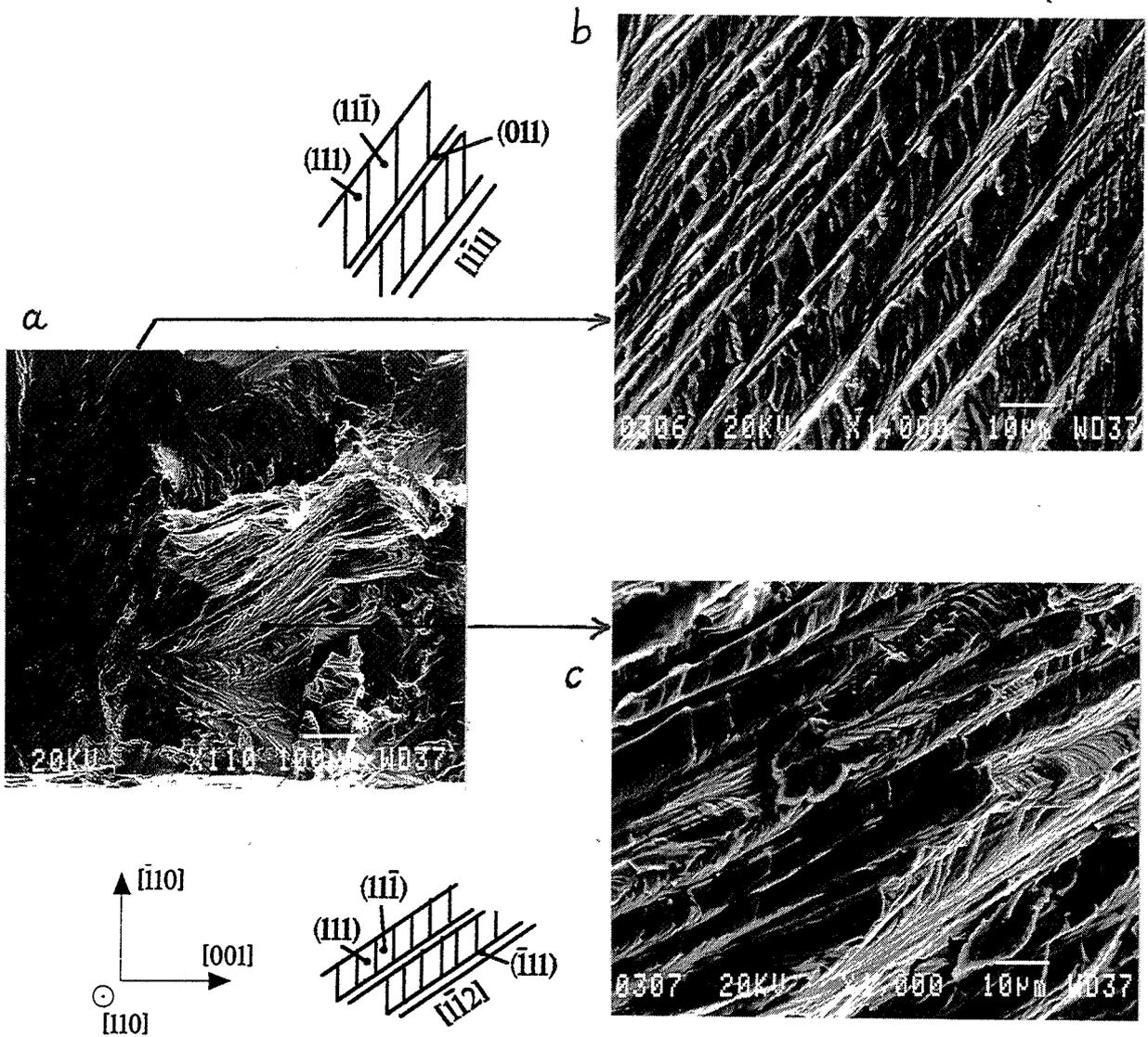


Figure 3.15 : Aspect du faciès de rupture du monocristal d'orientation  $\langle 110 \rangle$  en fonction de la direction locale de propagation. Direction macroscopique de propagation :  $[001]$ .

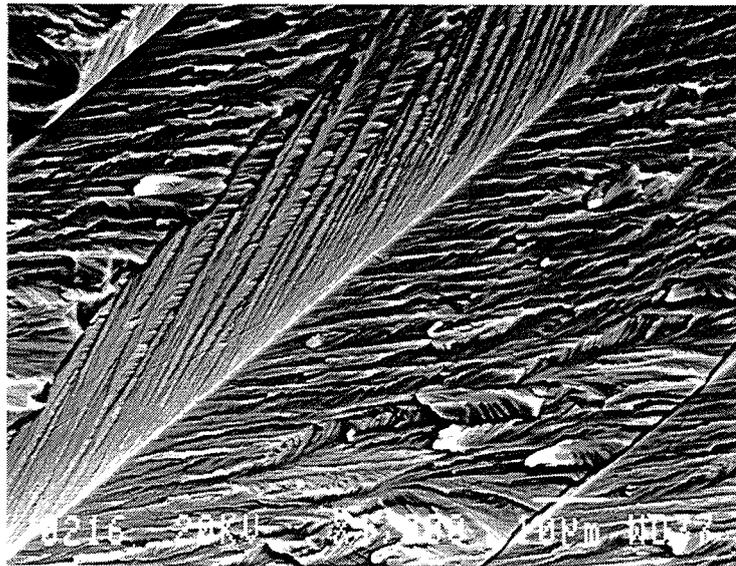


Figure 3.16 : Faciès en arête de poisson. Monocristal d'orientation  $\langle 110 \rangle$ .

type  $\{111\}$  issu de la continuité des microfeuillets. On ne peut pas parler ici de facette primaire car son aspect est plus rugueux, ce qui est le signe d'une grande ductilité associée au processus de rupture. Ces résultats sont en accord avec ceux obtenus par Qiao [Qiao 96 (2)] sur des monocristaux de 310 sollicités dans  $MgCl_2$  à  $143^\circ C$  : lors d'une observation au MEB perpendiculairement à la surface de rupture, ce sont les feuillettes qui apparaissent nettement, alors que la troisième facette est quasiment parallèle au faisceau d'électrons.

Quand on impose  $[001]$  comme direction de propagation, deux directions locales sont possibles :  $[1\bar{1}2]$  et  $[\bar{1}12]$ , ce qui conduit à un plan macroscopique de fissuration  $(110)$  et explique que le plan moyen de rupture soit perpendiculaire à l'axe de traction. En combinant ces deux directions de type  $\langle 112 \rangle$ , la fissure se propage dans la direction  $[001]$ , comme nous l'avons imposée. Cependant pour accommoder les champs de contrainte locaux, la situation peut être différente comme le montre la figure 3.15a. Sur la figure 3.15b, on a bien  $\langle 112 \rangle$  comme direction locale de propagation. Par contre sur la figure 3.15c, la direction de propagation est de type  $\langle 111 \rangle$ , c'est à dire qu'elle résulte toujours de la fissuration alternée sur deux plans  $\{111\}$ , mais ici la troisième facette est de type  $\{011\}$ . Quand les deux systèmes de rupture qui se propagent suivant  $\langle 112 \rangle$  et  $\langle 111 \rangle$  se rencontrent, on retrouve l'aspect en arête de poisson dont nous avons déjà parlé (figure 3.16). Il faut souligner que, quelle que soit la direction de propagation adoptée, elle est toujours telle que le fond de fissure est contenu par deux plans de glissement qui forment un plan moyen de type  $\{110\}$ , comme nous l'avons observé pour l'orientation  $\langle 100 \rangle$ .

### **b - Direction de propagation $[1\bar{1}0]$ .**

Si on réalise une entaille parallèle à  $[001]$ , on force le sens de propagation à être  $[1\bar{1}0]$  et les plans de glissement n'ont plus alors d'arête commune avec le fond de fissure (figure 3.11b). Dans ce cas-là, le faciès de rupture a un aspect très particulier : il est plus fragile et la taille des facettes est supérieure au micron. Notre méthode de calcul nous a permis d'identifier ces facettes comme étant d'orientation  $(110)$ ,  $(211)$  et  $(121)$  (figure 3.17). Pour comprendre pourquoi la rupture impliquait ces orientations, nous avons calculé la contrainte de décohésion sur ces facettes.

Soit  $\beta$  l'angle entre le plan étudié et l'axe de traction. Les composantes de la contrainte qui s'applique sur ce plan sont les suivantes ( $\theta = \Pi - \beta$ ) :

$$\sigma_{xx} = \frac{K_I}{\sqrt{2\pi r}} \cos \frac{\theta}{2} \left(1 - \sin \frac{\theta}{2} \sin \frac{3\theta}{2}\right)$$

$$\sigma_{yy} = \frac{K_I}{\sqrt{2\pi r}} \cos \frac{\theta}{2} \left(1 + \sin \frac{\theta}{2} \sin \frac{3\theta}{2}\right) \quad \text{où } K_I \text{ est le facteur d'intensité de contrainte en mode I}$$

$$\sigma_{xy} = \frac{K_I}{\sqrt{2\pi r}} \cos \frac{\theta}{2} \sin \frac{\theta}{2} \cos \frac{3\theta}{2}$$

Pour obtenir les contraintes de cisaillement et de décohésion dans le plan, on procède à une rotation de  $\theta$  des contraintes précédentes :

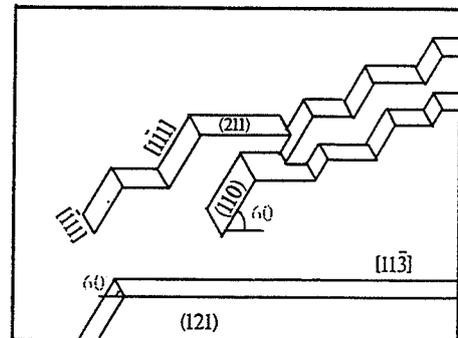
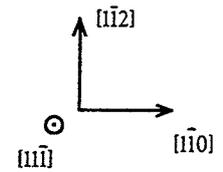
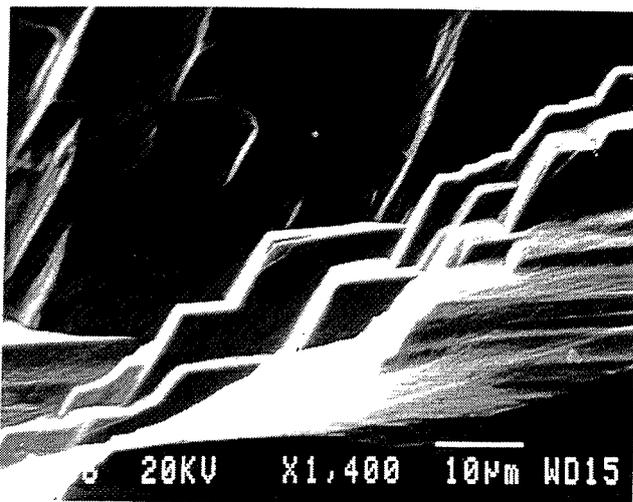
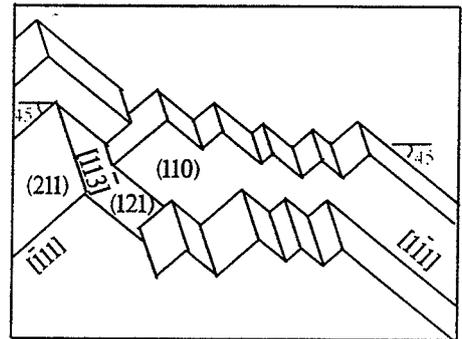
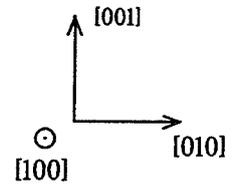
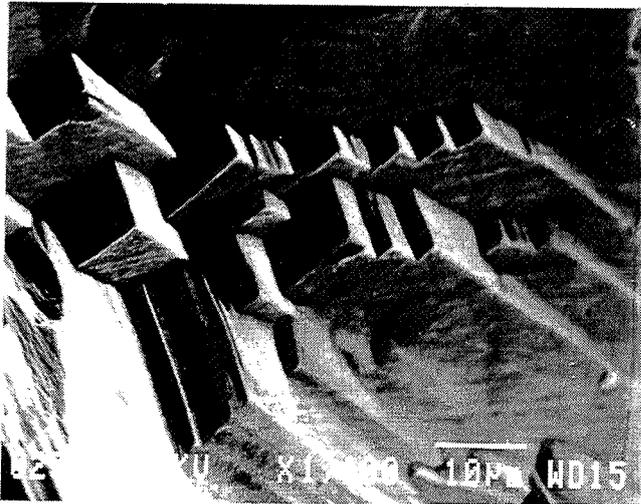
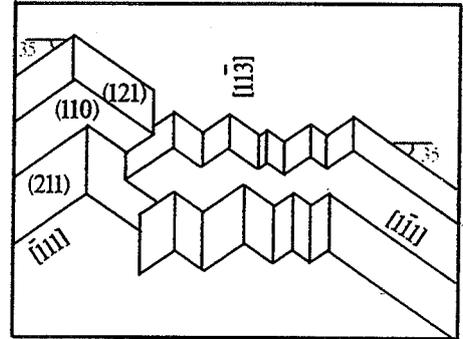
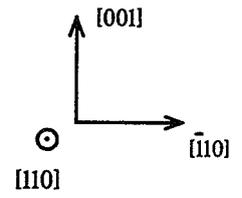
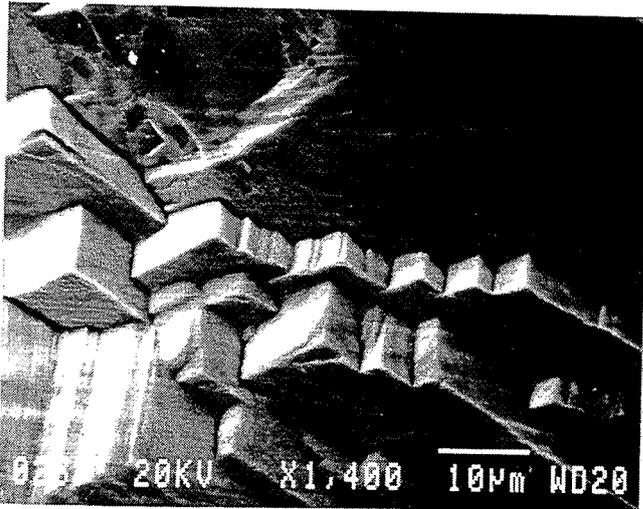


Figure 3.17 : Faciès de rupture du monocristal d'orientation  $\langle 110 \rangle$  vu dans trois projections différentes. Direction macroscopique de propagation  $[1\bar{1}0]$ .

$$\sigma_{\pi} = \sigma_{xx} \cos^2 \theta + \sigma_{yy} \sin^2 \theta + \sigma_{xy} \sin 2\theta$$

$$\sigma_{\theta\theta} = \sigma_{xx} \sin^2 \theta + \sigma_{yy} \cos^2 \theta - \sigma_{xy} \sin 2\theta$$

$$\sigma_{r\theta} = -\frac{1}{2}(\sigma_{xx} - \sigma_{yy}) \sin 2\theta + \sigma_{xy} \cos 2\theta$$

En combinant les deux systèmes d'équation on obtient :

$$\sigma_{\pi} = \frac{K_I}{\sqrt{2\pi r}} \cos \frac{\theta}{2} (1 - \sin^2 \frac{\theta}{2})$$

$$\sigma_{\theta\theta} = \frac{K_I}{\sqrt{2\pi r}} \cos^3 \frac{\theta}{2}$$

$$\sigma_{r\theta} = \frac{K_I}{\sqrt{2\pi r}} \cos^2 \frac{\theta}{2} \sin \frac{\theta}{2}$$

On voit donc que la contrainte de décohesion,  $\sigma_{\theta\theta}$ , est fonction de  $\cos^3 \frac{\theta}{2}$ . Or pour (110)

$\cos^3 \frac{\theta}{2} = 1$ , puisque le plan est horizontal, et  $\cos^3 \frac{\theta}{2} = 0,9$  pour (121) et (211). C'est à dire que

ces trois plans sont fortement sollicités en décohesion.

Il semblerait donc que, quand on impose  $[1\bar{1}0]$  comme direction de propagation, la rupture ait lieu sur les plans de bas indices subissant la plus forte contrainte normale.

On doit cependant préciser que la direction macroscopique de propagation  $[1\bar{1}0]$  peut être atteinte en combinant les deux directions locales  $[1\bar{1}1]$  et  $[\bar{1}11]$  (cf. paragraphe a). Ceci est observé en particulier lorsque la fissure s'est déjà propagée de plus d'un millimètre. C'est à dire que la rupture fragile est observée aux faibles valeurs du facteur d'intensité de contrainte critique, K. Mais quand K augmente, la probabilité d'observer des microfacettes  $\{111\}$  est plus élevée.

L'importance de la direction macroscopique de propagation avait déjà été soulignée sur des monocristaux de Cu-25%Au d'axe de traction  $\langle 110 \rangle$  et sollicités dans NaCl 0,6N [Flanagan 93]. En effet, les auteurs ont montré que la fissuration était continue dans toutes directions autres que  $\langle 001 \rangle$ . Par contre, si la direction de propagation est de type  $\langle 001 \rangle$ , ils observent des arrêts de fissuration bien marqués qu'ils attribuent à l'émoussement du fond de fissure par cisaillement sur les plans  $\{111\}$ . Il est intéressant de noter que, pour cette direction macroscopique de propagation, les directions locales observées sont de type  $\langle 112 \rangle$ . Cette direction est le résultat de la fissuration sur un plan  $\{110\}$  avec une rivière  $\{111\}$ . Dans le cas de l'alliage Cu-25%Au, le plan  $\{110\}$  est adopté directement car ce type de facette est observée couramment sur les alliages base Cu [Meletis 86] alors que pour les aciers inoxydables austénitiques, le plan  $\{110\}$  est un plan moyen de fissuration qui est le résultat de la fissuration alternée sur deux plans  $\{111\}$ .

Cette orientation nous a donc permis de mettre en évidence la grande importance de la direction de propagation. En fait, la position relative des plans de glissement et du fond de

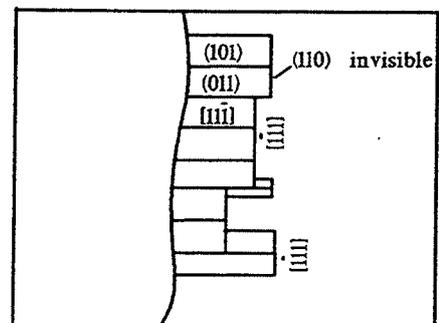
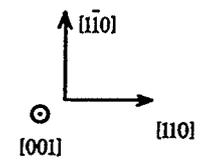
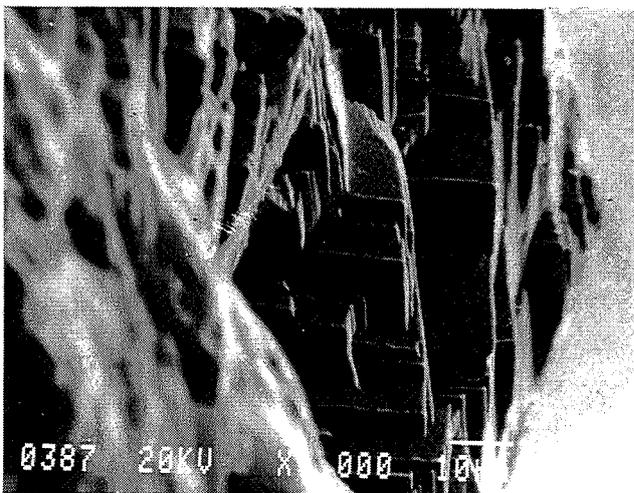
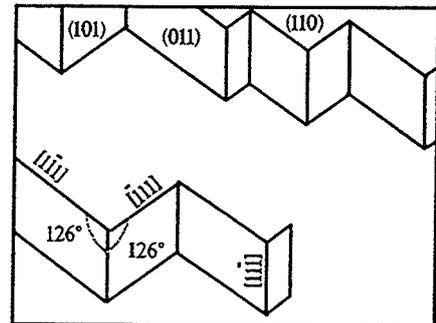
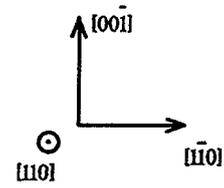
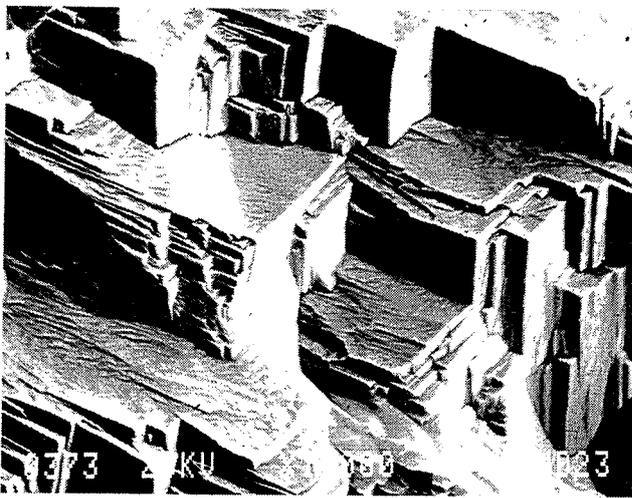
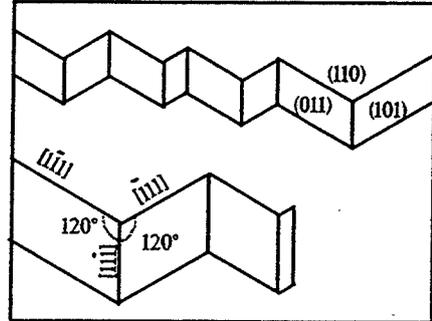
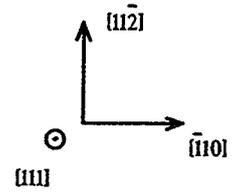


Figure 3.18 : Faciès de rupture du monocristal d'orientation  $\langle 111 \rangle$  vu dans trois projections différentes.

fissure influe directement sur les interactions corrosion-déformation et conditionne le mode de rupture.

### 3.2.3 - Orientation <111>.

Cette orientation ne s'apparente pas aux deux décrites auparavant, car les systèmes de glissement actifs ont un facteur de Schmid de 0,27, c'est à dire que les plans {111} sont mal orientés pour glisser (figure 3.3). Il s'en suit que la fissuration implique difficilement les plans de glissement. Le faciès de rupture ressemble à celui décrit pour l'orientation <110> dans la direction  $[1\bar{1}0]$ . Il a un aspect très fragile et la taille des facettes de rupture est bien supérieure au micron. Il est difficile de déterminer un plan moyen de fissuration, car le relief est plus important, la discontinuité de fissuration ayant plutôt lieu à l'échelle de la dizaine de microns. Les facettes de rupture ont été identifiées comme étant toutes de type {110}, comme on peut le voir sur la figure 3.18. Soulignons au passage qu'un monocristal de même orientation sollicité à l'air présente un allongement à rupture de 80 % et un faciès totalement ductile. Le milieu corrosif induit donc une fragilisation des liaisons interatomiques importante.

Il est tout à fait compréhensible que les plans {110} soient impliqués dans la rupture. Si on reprend le calcul de la contrainte de décohésion sur ces plans, on a  $\cos^3 \frac{\theta}{2} = 0,86$  pour les plans {110} alors que  $\cos^3 \frac{\theta}{2} = 0,54$  pour les plans {111} actifs. En effet ces derniers sont inclinés de 70° par rapport à l'horizontale et subissent une contrainte normale plus faible que celle des plans {110} (figure 3.19).

La direction de propagation est ici plus délicate à déterminer car il n'y a pas de rivières. Or ces dernières sont généralement parallèles au sens de propagation [Dickson 90]. Nous nous sommes donc servis des fissures secondaires pour répondre à cette question, car elles sont généralement perpendiculaires à la direction de propagation. La direction locale de propagation est là encore de type <112> (figure 3.20) et elle est telle que le fond de fissure se trouve en zone avec deux plans de glissement qui forment un angle de 70° entre eux. Mais aucun d'eux ne rompt. Celui qui glisse est incliné de 70° par rapport à l'axe de traction ; il est donc faiblement sollicité en décohésion. De plus son facteur de Schmid est faible. L'autre plan est le plan (111), il est donc fortement sollicité en décohésion mais son facteur de Schmid est nul. Il semble donc que, pour que la rupture implique directement les plans de glissement, il faut que ceux-ci soient en zone avec le fond de fissure et qu'ils soient sollicités à la fois en décohésion et en cisaillement.

En résumé, pour l'orientation <111>, la rupture s'effectue sur les plans de bas indice qui subissent la contrainte normale la plus forte, comme nous l'avons observé pour l'orientation <110> dans la direction  $[1\bar{1}0]$ .



### 3.2.4 - Orientation <149>.

Nous venons de voir avec les précédentes orientations que la position relative des plans de glissement et du fond de fissure était de première importance. L'orientation <149> présente un intérêt particulier pour confirmer cette conclusion. En effet, de par la position des plans de glissement par rapport à l'axe de traction, dans les premiers stades de la déformation on a glissement simple sur le système  $(111)[\bar{1}01]$  dont le facteur de Schmid est de 0,5 (figure 3.4). L'orientation <149> présente des similitudes avec l'orientation <100> car 8 systèmes de glissement peuvent être activés. Mais elle peut également être comparée à l'orientation <110>, car sur ces 8 systèmes, deux sont activés préférentiellement de par la forte valeur de leur facteur de Schmid. Ceci induit une dissymétrie par rapport aux bords de l'éprouvette qui rend la situation comparable à celle de l'orientation <110>. Nous avons vu que la discontinuité de fissuration se matérialise par des arrêts à l'échelle du micron qui sont parallèles aux directions de type <110>, intersection de plans  $\{111\}$ . Aussi pour visualiser cette dissymétrie, il est intéressant de considérer la projection de ces directions <110> dans le plan  $(\bar{1}49)$  (figure 3.21). Les deux systèmes de glissement qui seront activés prioritairement concernent les plans  $(111)$  et  $(\bar{1}11)$ . On voit sur la figure 3.21 que ces plans se coupent suivant une arête  $[0\bar{1}1]$  dont la projection est quasiment parallèle à un bord de l'éprouvette. On peut supposer que le faciès de rupture prendra un aspect différent suivant la direction macroscopique de propagation qui sera imposée.

Cependant dans un premier temps nous avons choisi de tester l'orientation <149> sans imposer de direction de propagation particulière. Le plan moyen de fissuration est alors quasiment perpendiculaire à l'axe de traction. Il est intéressant de noter que cette fois-ci les fissures s'amorcent au centre des faces de l'éprouvette et non dans les coins comme nous l'avons observé pour l'orientation <100>. Ceci s'explique par le respect des directions locales de propagation, comme nous allons le voir par la suite. Par ailleurs, on peut souligner qu'il existe une parfaite complémentarité entre les deux parties du faciès de rupture (voir figure 3.22). Si on observe la fissuration à l'échelle du micron, on retrouve le type de rupture qui a déjà été décrit quand les plans de glissement sont impliqués directement dans la fissuration. La direction locale de propagation est de type <112> (figure 3.23). Elle résulte de la rupture sur un plan moyen de type  $\{110\}$ , accolé à une troisième facette de type  $\{111\}$ . Le plan moyen  $\{110\}$  est issu de la fissuration en alternance sur deux microfacettes de type  $\{111\}$  qui ont l'aspect de feuillets.

On peut souligner que le faciès de rupture de cette orientation est plus délicat à dépouiller. Tout d'abord les orientations cristallographiques de l'éprouvette ne sont pas de bas indice, il en est donc de même des plans de projection... Mais surtout les systèmes de fissuration impliquant trois plans  $\{111\}$  sont souvent imbriqués les uns dans les autres, ce qui rend difficile l'identification individuelle des facettes.

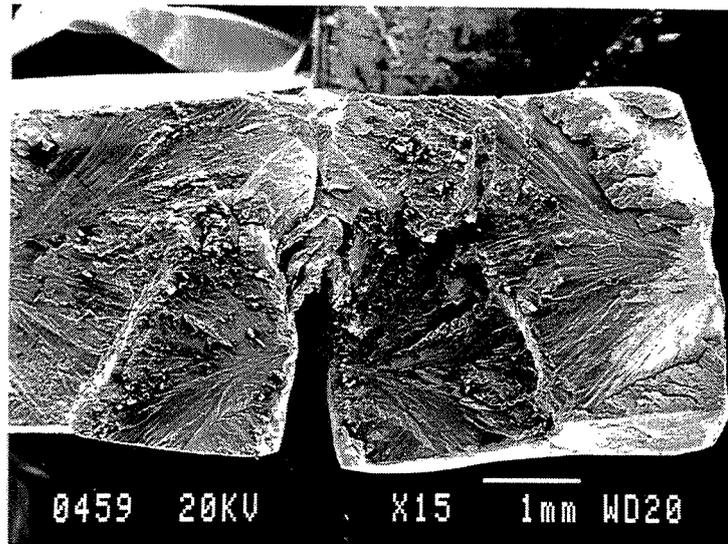


Figure 3.22 : Aspect général du faciès de rupture du monocristal d'orientation  $\langle 149 \rangle$ .

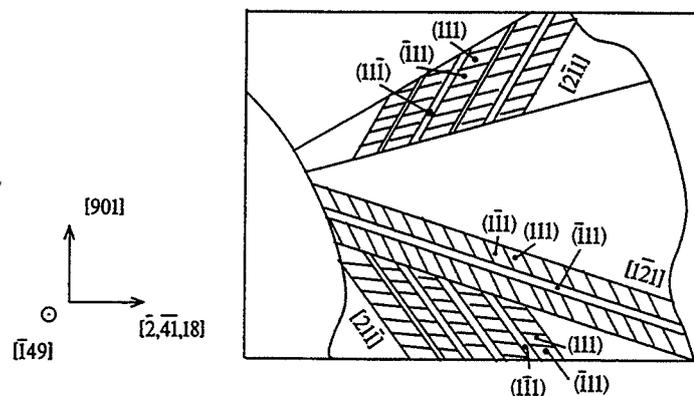
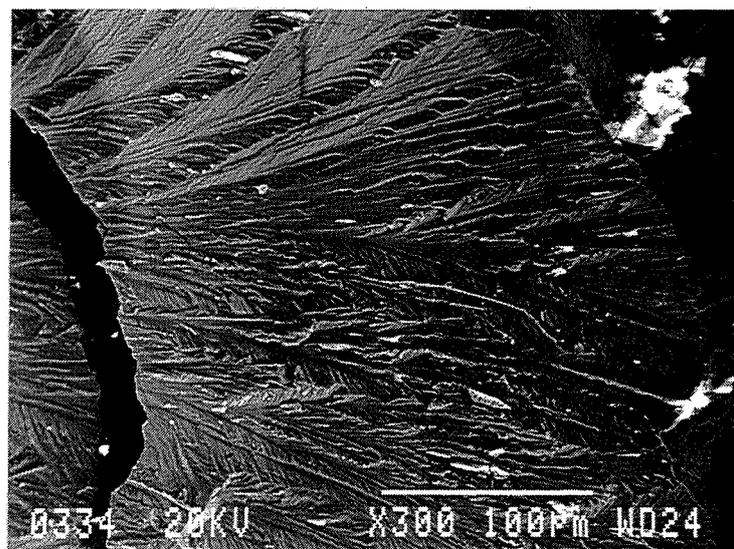


Figure 3.23 : Faciès de rupture du monocristal d'orientation  $\langle 149 \rangle$ .

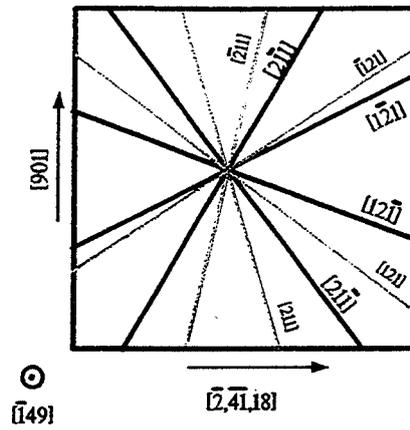


Figure 3.24 : Directions de type  $\langle 112 \rangle$  dans le monocristal d'orientation  $\langle 149 \rangle$ .

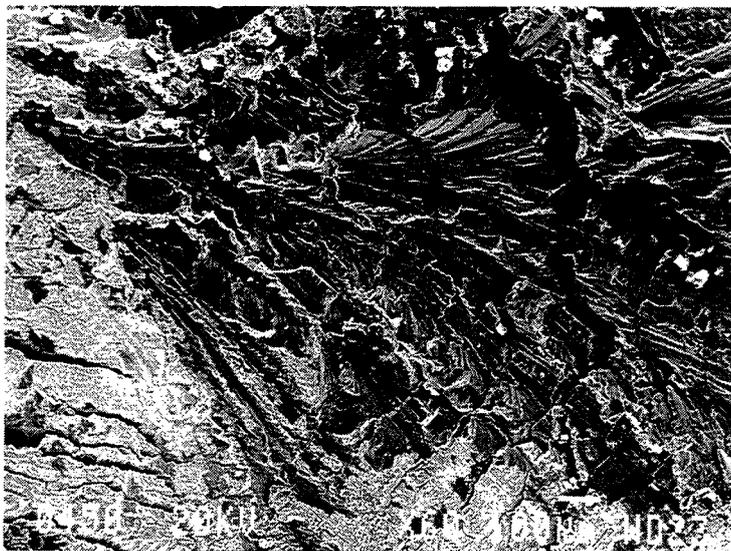


Figure 3.25 : Transition entre la propagation suivant la direction  $[21\bar{1}]$  et un autre mode de fissuration.

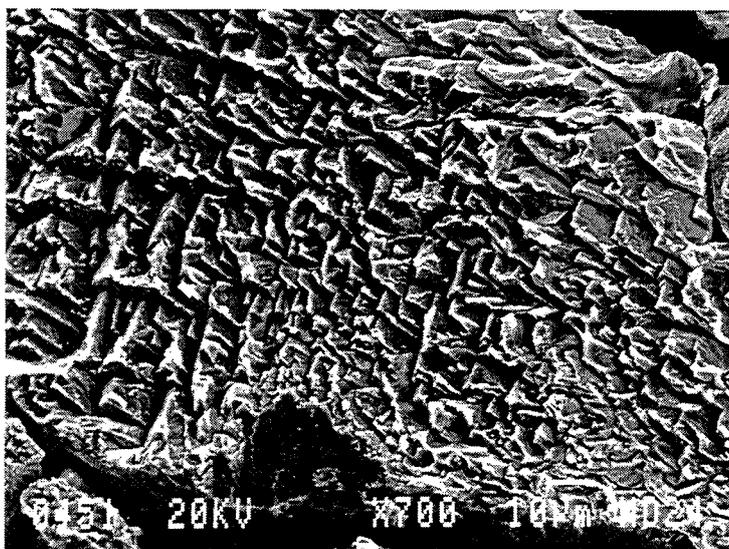


Figure 3.26 : Faciès de rupture du monocristal d'orientation  $\langle 149 \rangle$  quand la direction de propagation est parallèle à  $[901]$ .

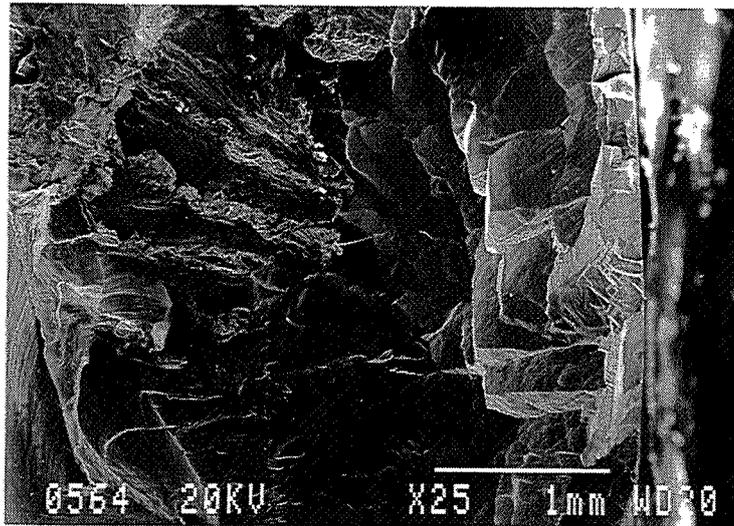


Figure 3.27 : Faciès de rupture du monocristal d'orientation  $\langle 149 \rangle$  quand on impose la direction de propagation  $[901]$ .

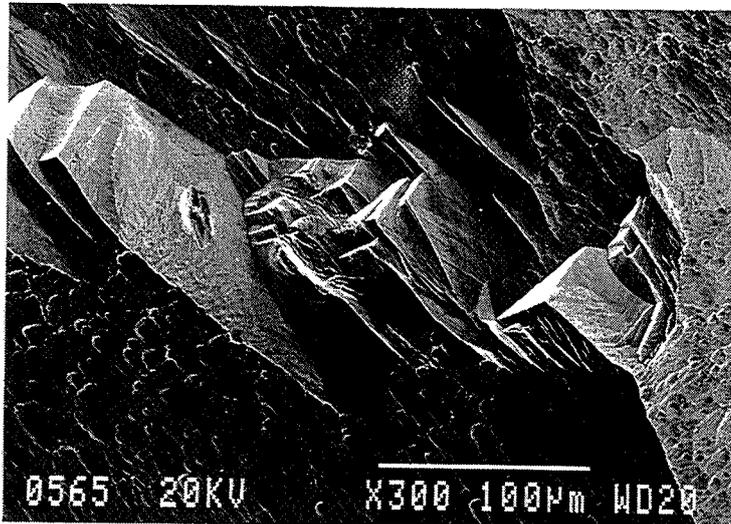


Figure 3.28 : Facettes de quasiclissage d'orientation  $(011)$  observées sur le monocristal d'orientation  $\langle 149 \rangle$  quand on impose la direction de propagation  $[901]$ .

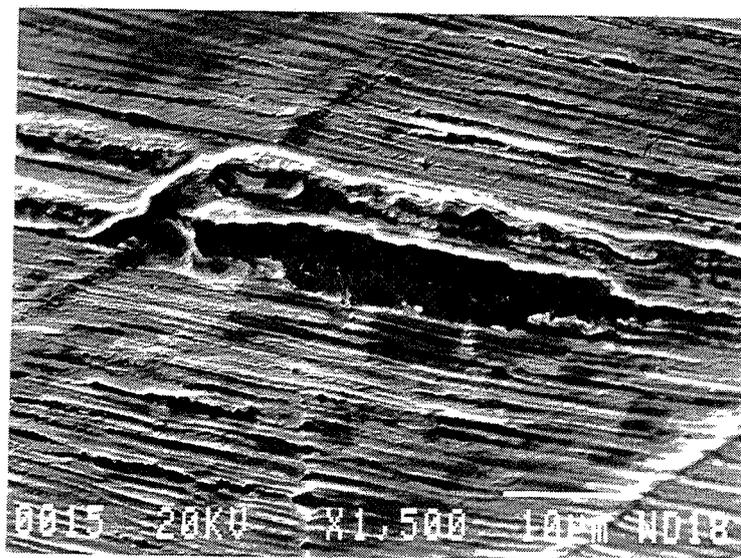


Figure 3.29 : Amorçage d'une fissure de CSC à l'émergence d'une ligne de glissement.

Les directions  $\langle 112 \rangle$  correspondant à une fissuration alternée sur trois plans  $\{111\}$  sont au nombre de 8 (figure 3.24). Or, expérimentalement, nous n'avons observé que 4 directions parmi ces 8. Ces 4 directions de type  $\langle 112 \rangle$  sont en fait le résultat d'une fissuration qui implique les deux plans  $\{111\}$  les moins inclinés, c'est à dire  $(111)$  et  $(\bar{1}11)$ . On comprend que les 4 autres directions ne soient pas observées car elles concernent les deux plans de glissement qui forment un angle de  $70^\circ$  avec l'axe de traction. Et nous avons vu avec l'orientation  $\langle 111 \rangle$  que la rupture sur ce type de plan était peu probable. Parmi les 4 directions  $\langle 112 \rangle$  observées, celles qui sont majoritaires sont les directions  $[1\bar{2}1]$  et  $[12\bar{1}]$ . Le plan moyen de fissuration est alors  $(012)$  et il n'est incliné que de  $6^\circ$  par rapport au plan  $(\bar{1}49)$ . On retrouve donc le résultat que nous avons déjà souligné : le plan de fissuration est le résultat de la rupture sur des microfacettes  $\{111\}$ , mais, parmi tous les plans possibles, celui que l'on observe est celui qui subit la plus forte contrainte normale. Par ailleurs la combinaison des deux directions  $[1\bar{2}1]$  et  $[12\bar{1}]$  donne une direction macroscopique de fissuration parallèle à  $\langle 2,41,18 \rangle$ . Il nous a donc paru intéressant de regarder quel était l'aspect de la rupture quand la fissure devait se propager parallèlement à  $[901]$ .

La figure 3.25 nous permet d'observer une zone de transition entre la fissuration décrite jusqu'à présent (en sombre) et une zone qui apparaît différente et dont la direction de propagation est parallèle à  $[901]$  (voir fissures secondaires). A plus fort grossissement (figure 3.26), il est net que la rupture est plus fragile et des facettes  $(011)$  ont été identifiées. Pour vérifier que ceci n'était pas le fruit du hasard, nous avons sollicité l'orientation  $[\bar{1}49]$  en imposant  $[901]$  comme direction de propagation. La rupture a un tout autre aspect et ceci est visible même à l'échelle macroscopique (figure 3.27). Pour adopter la direction de propagation  $[901]$  en impliquant les plans de glissement il faudrait que la fissure se propage suivant les directions  $[21\bar{1}]$  et  $[2\bar{1}1]$ . Le plan moyen de fissuration serait alors  $(011)$ , or c'est justement les facettes de quasi clivage qui ont été observées (figure 3.28). On peut supposer qu'une fissuration combinant plusieurs plans de glissement de sorte que le plan moyen de fissuration soit  $(011)$  nécessite une énergie de création de surface bien plus importante que si la fissure adopte directement le plan  $(011)$ .

En résumé, les résultats de l'orientation  $\langle 149 \rangle$  confirment ceux obtenus pour les autres orientations. On réaffirme l'importance de la direction macroscopique de propagation car elle conditionne les interactions corrosion-déformation en fond de fissure. La direction locale de propagation est de type  $\langle 112 \rangle$ , de sorte que le fond de fissure se trouve en zone avec deux plans de glissement formant un angle de  $70^\circ$  entre eux. Ces plans sont impliqués dans la rupture et ils apparaissent sous la forme de microfeuillets. A l'échelle macroscopique, le plan moyen de fissuration qui est adopté par la fissure est celui qui subit la contrainte normale la plus forte.

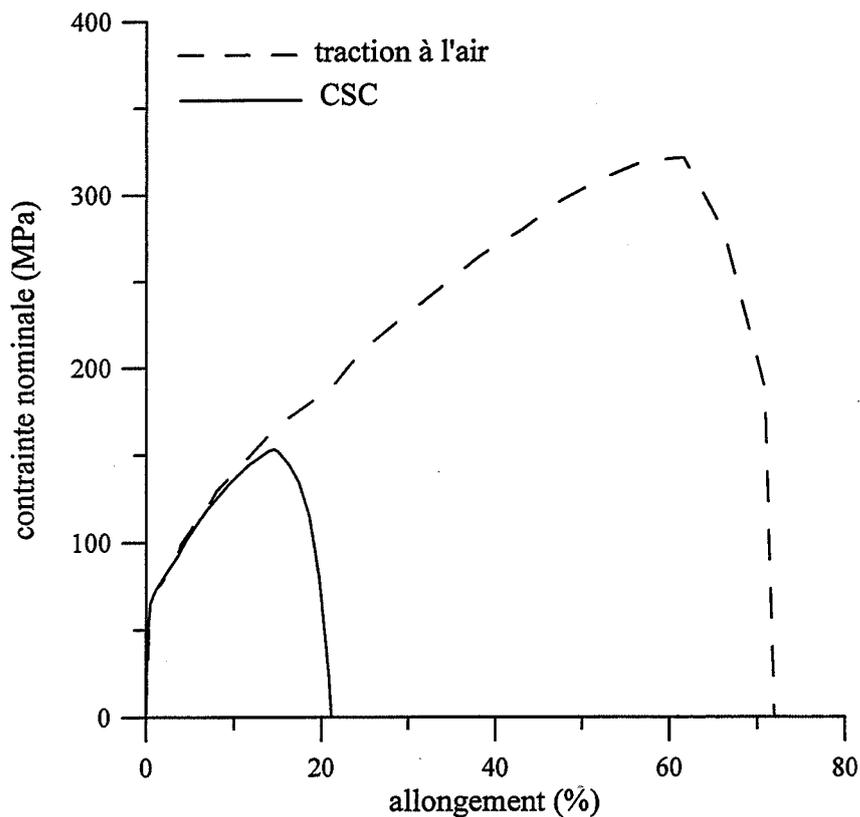


Figure 3.30 : Courbe contrainte allongement du monocristal d'orientation  $\langle 100 \rangle$  à l'air et dans  $\text{MgCl}_2$  à  $117^\circ\text{C}$ .

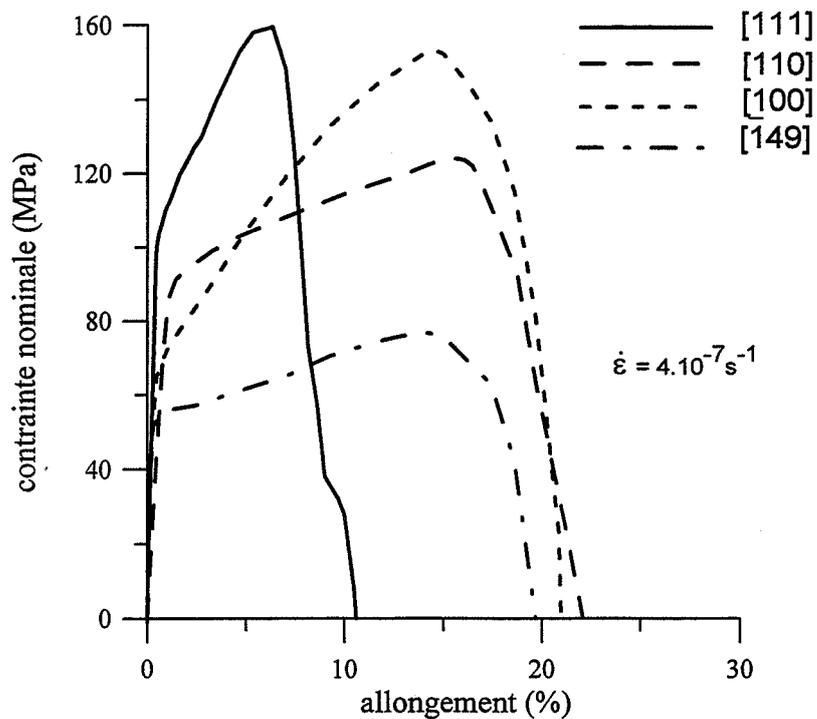


Figure 3.31 : Courbes contrainte-allongement des différents monocristaux.

### **3.2.5 - Synthèse des résultats obtenus sur monocristaux.**

Le mode d'amorçage des fissures est commun à toutes les orientations et peut conditionner la propagation. Il intervient dès le début de la plasticité et a toujours lieu à l'émergence des lignes de glissement, comme on peut le voir sur la figure 3.29.

En ce qui concerne la propagation des fissures de CSC, nous avons mis en évidence l'importance de l'orientation de l'axe de traction mais aussi de celle de la direction de propagation. Celle-ci, en modifiant les interactions corrosion-déformation du fond de fissure, influe directement sur les processus d'endommagement en CSC. Ainsi on distingue deux modes de rupture :

- si le facteur de Schmid est supérieur à 0.4 et si au moins un des plans de glissement contient le fond de fissure,

Les plans de glissement sont impliqués directement dans le processus de fissuration. On observe une discontinuité de fissuration à l'échelle du micron et il y a une parfaite symétrie entre les deux parties du faciès de rupture. Ce dernier se décompose en systèmes des trois plans de glissement  $\{111\}$  : deux d'entre eux sont disposés en alternance et forment un plan moyen de type  $\{110\}$ , le troisième est accolé à ce plan  $\{110\}$  de sorte que la direction de propagation est de type  $\langle 112 \rangle$ . La troisième facette est mal définie et semble résulter de la continuité des microfacettes  $\{111\}$  disposées en feuillets. L'aspect rugueux de cette facette confirme que, bien que la rupture soit macroscopiquement fragile, on observe des traces de ductilité très localisée. Enfin, le plan moyen de fissuration correspond à une combinaison de plans  $\{111\}$  qui subissent la contrainte normale la plus forte.

- si le facteur de Schmid est inférieur à 0,4 ou s'il n'existe pas d'arête commune entre le fond de fissure et les plans de glissement :

La rupture a un aspect très fragile, la taille des facettes de fissuration est irrégulière et toujours supérieure au micron. On distingue trois facettes d'orientations différentes dont une est souvent de type  $\{011\}$ . Il semble que la rupture ait lieu par décohésion sur les plans de bas indices qui subissent la contrainte normale la plus forte. Cette situation souligne que même dans des conditions où les glissements jouent un rôle minimal, le milieu fissurant affaiblit les liaisons interatomiques.

Ces résultats fractographiques sont en bon accord avec les courbes contrainte-allongement. Quel que soit le type de rupture, la CSC se traduit par une forte diminution de la durée de vie par rapport à la courbe à l'air, comme le montre les résultats de l'orientation  $\langle 100 \rangle$  (figure 3.30). Les deux grands types de rupture peuvent être corroborés par les courbes contrainte-allongement (figure 3.31). Les trois orientations caractérisées par une fissuration sur les plans de glissement ont un allongement à rupture de 20%, alors que la

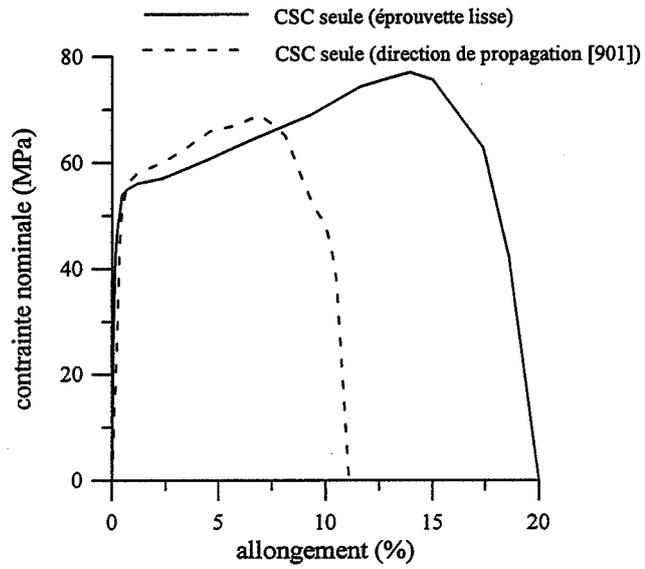


Figure 3.32 : Courbes contrainte-allongement des monocristaux d'orientation  $\langle 149 \rangle$ .

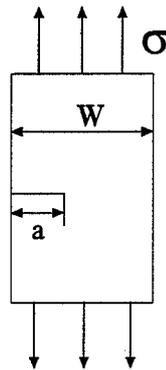


Figure 3.33 : Géométrie de l'éprouvette considérée pour l'estimation du facteur d'intensité de contrainte.

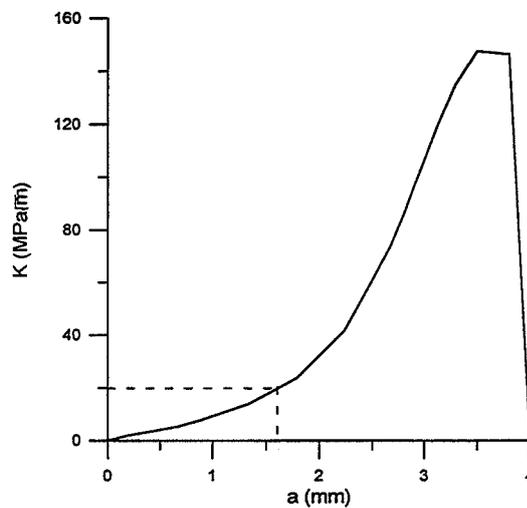


Figure 3.34 : Estimation du facteur d'intensité de contrainte en fonction de la longueur de fissure.

rupture d'aspect plus fragile ( $\langle 111 \rangle$ ) se traduit par un allongement deux fois plus faible. Le même type de réduction de la durée de vie s'observe quand, pour une même orientation de l'axe de traction, la direction de propagation est modifiée et que l'on passe d'une rupture sur les plans  $\{111\}$  à une rupture plus fragile (figure 3.32). Les niveaux de contrainte à rupture sont directement liés aux valeurs des facteurs de Schmid des différentes orientations. Plus il est faible, plus le glissement est difficile, plus la contrainte est élevée. De même, pour une même valeur du facteur de Schmid (orientation  $\langle 100 \rangle$  et  $\langle 110 \rangle$ ), le niveau de contrainte est plus élevé pour l'orientation  $\langle 100 \rangle$  pour laquelle le nombre de systèmes de glissement actifs est double. En effet plus le nombre de système de glissement est important, plus on crée d'enchevêtrements de dislocations qui s'opposent ensuite au mouvement des dislocations mobiles, ce qui a pour conséquence d'augmenter la contrainte interne.

Avant de confronter les résultats expérimentaux aux divers modèles de CSC, il est important de les comparer aux résultats généralement obtenus sur les polycristaux d'aciers inoxydables austénitiques sollicités en milieu chloruré. Ceci a pour but de mettre en évidence les caractéristiques fractographiques fondamentales que tout modèle de CSC devra intégrer pour décrire au mieux la réalité.

### **3.3 - Comparaison avec la fractographie des polycristaux.**

De nombreuses études de CSC ont été effectuées pour déterminer la cristallographie de rupture des aciers inoxydables en milieu chloruré. Une synthèse des principaux résultats est donnée dans le tableau 1 du chapitre 1. Si l'on considère l'ensemble de ces travaux, il apparaît que les résultats les plus variés ont été obtenus. Par contre si l'on s'intéresse aux études les plus récentes, basées sur l'emploi des figures d'attaque [Meletis 86, Dickson 87, Shiqiong 89, Magnin 90 (2), Olive 92(1)], le résultat le plus souvent cité est : fissuration sur des facettes primaires de type  $\{100\}$  associées à des facettes secondaires  $\{111\}$ . Toutefois Dickson souligne que la fissuration du 316 est plus complexe que celle du 310 et que, pour le premier alliage, les facettes de type  $\{111\}$  sont plus souvent présentes [Dickson 87]. Cependant on peut s'interroger sur le fait que, pour nos monocristaux, nous n'ayons pas observé de facettes primaires de type  $\{100\}$ , même pour l'orientation  $\langle 100 \rangle$ .

Cette absence, et les différences entre publications, peut s'expliquer par la forte variation du faciès de rupture avec  $K$ , où  $K$  est le facteur d'intensité de contrainte. Pour le 316 sollicité dans  $MgCl_2$  à  $153^\circ C$ , trois régimes sont à distinguer [Shiqiong 89] :

- pour  $K < 15 \text{ MPa}\sqrt{m}$ , on observe de larges facettes d'orientation moyenne  $\{100\}$  se propageant dans la direction  $\langle 110 \rangle$ . A fort grossissement on voit que certaines de ces facettes sont le résultat d'une fissuration alternée sur deux plans  $\{111\}$ .
- pour  $15 < K < 20 \text{ MPa}\sqrt{m}$ , les faciès en arête de poisson sont plus nombreux et les facettes primaires sont associées à des rivières de type  $\langle 100 \rangle$  et  $\langle 110 \rangle$ , les premières résultant de la

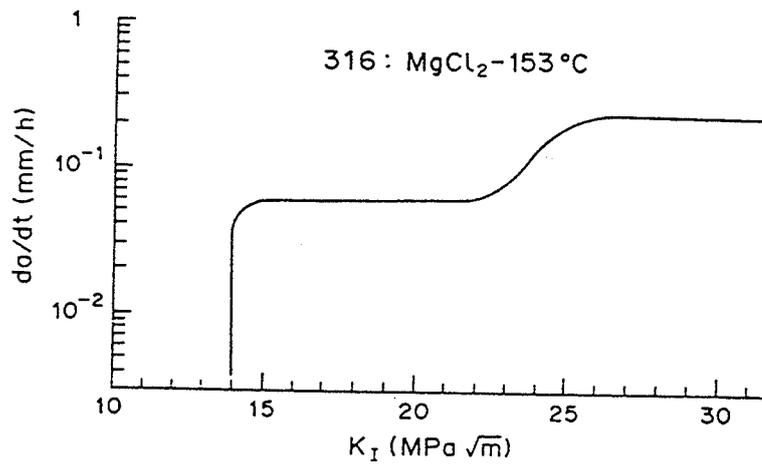


Figure 3.35 :  $da/dt = f(K)$  d'après [Magnin 90].

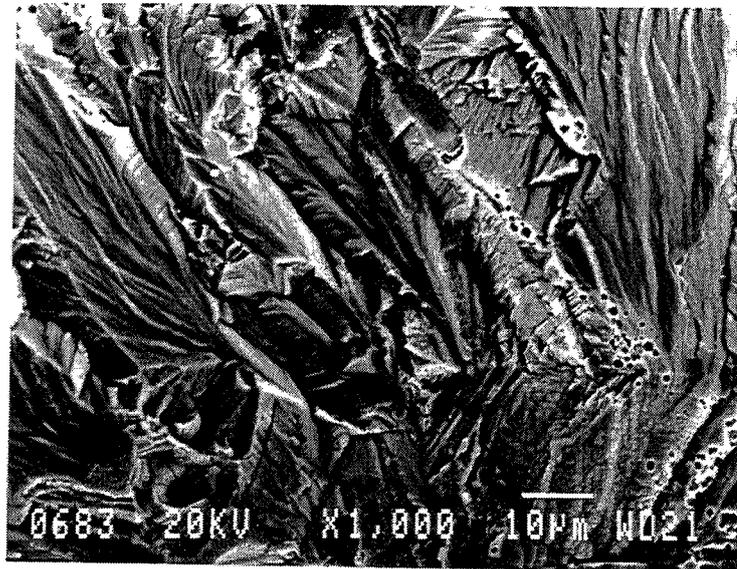


Figure 3.36 : Faciès de rupture de polycristaux de 316L sollicités dans  $MgCl_2$  à 117°C.

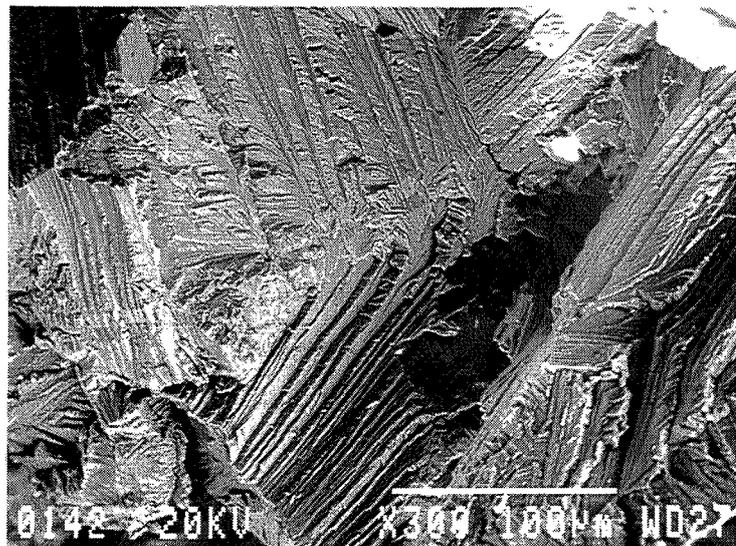


Figure 3.37 : Faciès de rupture de l'Uranus B66 sollicité dans  $MgCl_2$  à 153°C.

fissuration sur un jeu de 4 plans {111}. Ce même type de résultat a été mis en évidence par Nakayama [Nakayama 81] : il montre par une étude au MET sur des répliques de 304, sollicité dans  $MgCl_2$ , que les plans moyens de type {100} ou {110} sont souvent le résultat d'une microfissuration sur les plans de glissement.

- pour  $K > 20 \text{ MPa}\sqrt{m}$ , les microfacettes {111} sont plus larges, plus nombreuses et en forme de microfeuillets. Sur polycristaux, le plan moyen de fissuration s'éloigne de {100} pour être perpendiculaire à l'axe de traction.

A la vue de ces résultats il est clair qu'il nous fallait évaluer  $K$  au cours de nos essais. Pour cette estimation nous considérons qu'une seule fissure se propage (bien qu'expérimentalement on observe toujours une fissuration multiple) et que la vitesse de propagation est constante au cours de l'essai. L'expression de  $K$  est donnée par [Broek 74] :

$$K = Y\sigma\sqrt{a} \quad \text{avec} \quad Y = 1,99 - 0,41\frac{a}{W} + 18,7\left(\frac{a}{W}\right)^2 - 38,48\left(\frac{a}{W}\right)^3 + 53,85\left(\frac{a}{W}\right)^4$$

$a$  longueur de la fissure (figure 3.33)

$W$  largeur totale de l'éprouvette

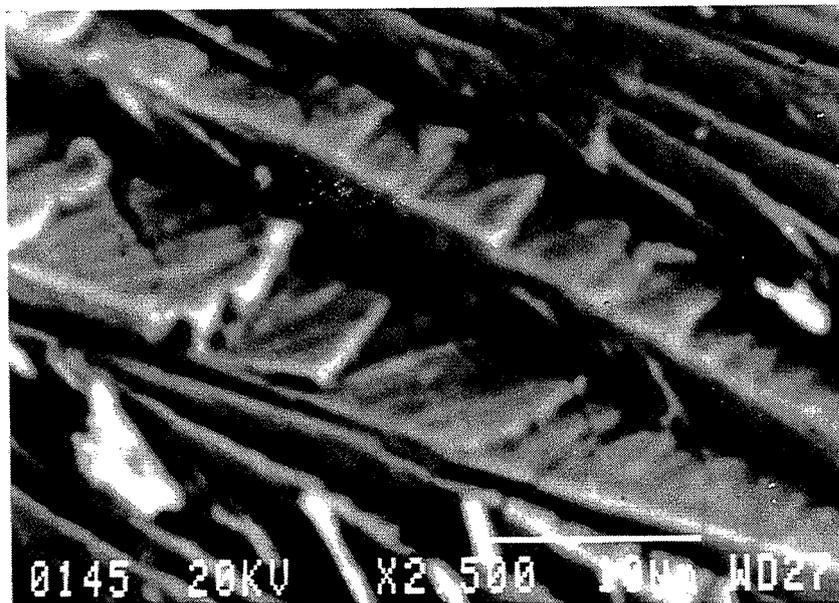
$\sigma$  contrainte appliquée

Cette formule est valable pour des  $a/W$  petits. L'objectif est de donner une estimation de  $K$  et non sa valeur exacte.  $\sigma$  est issue des résultats expérimentaux de l'orientation  $\langle 100 \rangle$ , orientation pour laquelle la probabilité d'observation des facettes primaires {100} est la plus grande.  $a$  est estimée en considérant que l'amorçage a lieu dès le début de la plasticité (observé expérimentalement) et que  $a = 4 \text{ mm}$  à la rupture.  $W$  est égal à  $4 \text{ mm}$ . Nous faisons l'hypothèse d'une vitesse de propagation  $da/dt$  constante pendant l'essai. L'estimation de  $K$  en fonction de  $a$  est donnée à la figure 3.34.

On voit que très rapidement on se situe aux valeurs intermédiaires ou fortes de  $K$  ( $K > 15 \text{ MPa}\sqrt{m}$ ). De plus il est faux de considérer que  $da/dt$  est constant car  $da/dt = f(K)$  (figure 3.35). Aux faibles valeurs de  $K$ , la vitesse de propagation est très lente, notre calcul sous estime donc  $\sigma$ , et par conséquent  $K$ , pour les faibles valeurs de  $a$ .

En résumé pour nos monocristaux, nous sommes en conditions de moyens et forts  $K$ . Ceci est confirmé par la multifissuration qui est observée quand  $K$  est élevé [Dickson 87] et par l'aspect des microfacettes en feuillets [Shiqiong 89]. De plus, pour nos propres essais sur polycristaux, on observe une fissuration analogue à celle obtenue sur monocristaux (figure 3.36) et par endroit une fissuration intergranulaire, qui apparaît en général pour cet alliage pour  $K > 22 \text{ MPa}\sqrt{m}$  [Magnin 90 (2)] (d'où là encore confirmation des valeurs élevées de  $K$  pour nos essais).

Nous avons également testé un alliage polycristallin industriel : l'Uranus B66 dans  $MgCl_2$  à  $153^\circ\text{C}$ . Il s'agit d'un acier inoxydable austénitique fortement dopé en azote (0,48% en poids). Le faciès de rupture en CSC de cet alliage est semblable à ce qui a été observé sur le 316L comme le montre la figure 3.37. La fissuration est discontinue et résulte d'une



*Figure 3.38 : Faciès de rupture de l'Uranus B66 sollicité dans  $MgCl_2$  à  $153^\circ C$ .  
Détail des microfeuillets.*

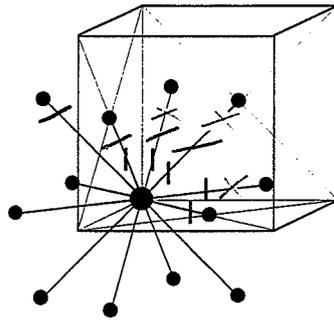
multitude de microfacettes de type  $\{111\}$ . Si l'on observe le faciès à plus fort grossissement, on remarque que les microfeuillets présentent des traces de ductilité localisée moins marquées que dans le cas du 316L (figure 3.38).

L'azote a d'abord été utilisé comme élément d'alliage pour stabiliser la phase austénitique [Pickering 89]. C'est l'élément de renforcement par solution solide le plus efficace [Levey 95] et il permet d'augmenter considérablement la limite d'élasticité et la contrainte d'écoulement [Pickering 89, Degallaix 90] (voir chapitre 2). L'azote est connu pour augmenter la planéité du glissement [Vogt 91, Soussan 91]. Le mécanisme exact par lequel le glissement plan est favorisé n'est pas clairement établi. Certains évoquent une diminution de l'énergie de défaut d'empilement [Pickering 89, Levey 95] ; il semble plus probable que ce soit l'existence d'ordre à courte distance qui explique le caractère plan du glissement [Soussan 91, Taillard 89]. La planéité du glissement est plutôt néfaste pour la résistance à la CSC [Combrade 90 (2)] . D'ailleurs ceci se traduit pour l'Uranus B66 par un allongement à rupture qui passe de 80% à l'air à 7% en milieu corrosif... Ceci peut s'expliquer par la tendance de la déformation à rester confinée sur les plans de glissement, ce qui a pour conséquence de localiser l'endommagement sur ces plans. On peut imaginer que la déformation locale associée à la rupture est moins prononcée, ce qui explique que les microfeuillets soient mieux définis que dans le cas du 316L.

Nous avons vu que la CSC des monocristaux de 316L dans  $MgCl_2$  à  $117^\circ C$  se traduisait par deux types de rupture en fonction des interactions corrosion-déformation :

- dans la majorité des cas les plans de glissement sont impliqués dans la fissuration.
- pour des configurations cristallographiques particulières, la rupture a un aspect plus fragile et elle concerne des facettes de type  $\{011\}$ .

Le premier type de rupture décrit très bien ce qui se passe sur polycristaux aux valeurs intermédiaires et fortes de  $K$ . En effet, sur monocristaux, le glissement multiple, responsable d'une microfissuration plus complexe, intervient plus tôt que sur polycristaux. Travailler sur monocristaux est donc équivalent à une augmentation de  $K$  car celle-ci est liée à un nombre de systèmes de glissement activés plus important. En d'autres termes, la CSC des aciers inoxydables en milieux chlorurés est caractérisée par une multifissuration sur des facettes de type  $\{111\}$  mais aux faibles valeurs de  $K$  la présence de facettes primaires de type  $\{100\}$  est probable. Par contre la rupture de type décohésion sur  $\{011\}$  est moins représentative de la CSC des polycristaux car il y a toujours un plan de glissement bien orienté pour être impliqué dans la fissuration. Aussi dans notre recherche du modèle qui décrit au mieux les résultats expérimentaux, nous n'attacherons pas autant d'importance à la fissuration de type fragile sur  $\{011\}$ . Cette fissuration est propre à des configurations cristallographiques bien particulières et apparaît plus rarement sur polycristaux.



- liaisons coupées pour séparer 2 plans {100}
- | liaisons coupées pour séparer 2 plans {110}
- liaisons coupées pour séparer 2 plans {111}

Figure 3.39 : Schéma des liaisons qui sont coupées suivant le plan cristallographique que l'on considère.

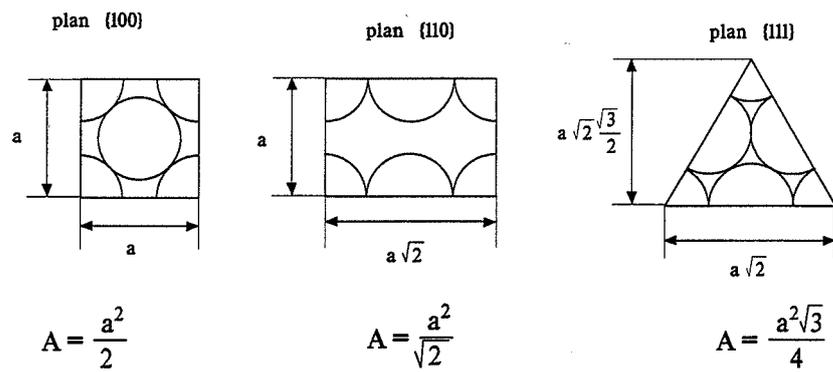


Figure 3.40 : Aire par atome.

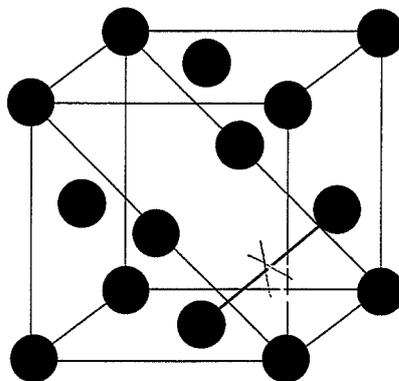


Figure 3.41 : Liaison supplémentaire qu'il faut couper quand on sépare deux plans {110}.

### 3.4 - Discussion

Notre objectif est ici de dégager quels sont les processus d'endommagement en CSC qui sont compatibles avec nos résultats expérimentaux. Nous avons vu qu'en fonction des interactions corrosion-déformation certains types de facettes étaient plus impliqués dans la rupture. Nous commencerons donc cette discussion par le calcul de l'énergie de surface des différents plans cristallographiques pour montrer que ce paramètre ne peut à lui seul expliquer les résultats expérimentaux. Puis, pour discriminer parmi tous les modèles de CSC ceux qui décrivent au mieux la CSC des aciers inoxydables austénitiques, nous reprendrons les caractéristiques fractographiques que nous venons de détailler et les confronterons aux différents modèles. Le 'corrosion enhanced plasticity model' sera plus particulièrement examiné.

#### 3.4.1 - Energie de surface des différents plans cristallographiques

La tension superficielle, ou énergie de surface,  $\gamma$  ( $J/m^2$ ) peut être définie comme le travail réversible nécessaire pour créer une unité d'aire de surface. Elle peut être estimée à l'aide d'un modèle de liaisons chimiques entre proches voisins ou modèle des liaisons coupées. Le travail à fournir pour créer deux surfaces en coupant un cristal c.f.c. en 2 selon un plan (hkl) est :

$$2\gamma_{(hkl)} = -\frac{n\Phi}{A} \quad \text{où } \gamma_{(hkl)} \text{ est l'énergie de surface du plan (hkl)}$$

n est le nombre de liaisons coupées par atomes

$\Phi$  est l'énergie d'une liaison

A est l'aire par atome

La figure 3.39 schématise un atome et ses proches voisins (si l'on se limite à l'ordre 1) ainsi que les liaisons qui sont coupées suivant le plan que l'on considère. L'aire par atome pour les plans (100), (110) et (111) est donnée à la figure 3.40.

plan {100} :  $n = 4$  ;  $A = \frac{a^2}{2}$  où a est le paramètre de la maille c.f.c.

$$\Rightarrow \gamma_{\{100\}} = -4 \frac{\Phi}{a^2}$$

plan {110} :  $n = 5$ , en plus de ces 5 liaisons, la séparation de 2 plans (110) implique la rupture d'une liaison supplémentaire comme le montre la figure 3.41 ;  $A = \frac{a^2}{\sqrt{2}}$

$$\Rightarrow \gamma_{\{110\}} = -\frac{3\sqrt{2}\Phi}{a^2}$$

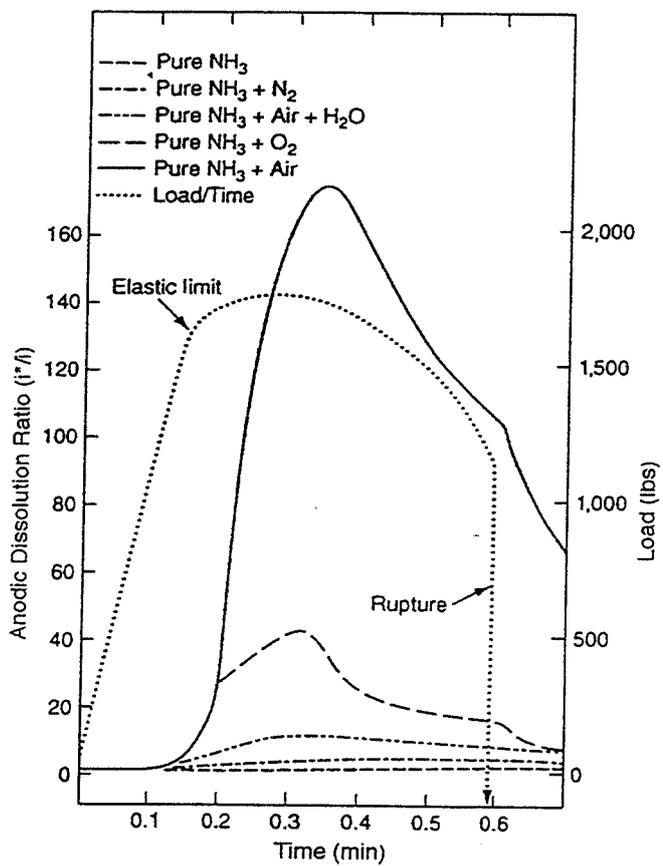


Figure 3.42 : Transitoires de courant anodique obtenus après traction rapide du fer dans NH<sub>3</sub> [Jones 96].

$$\text{plan } \{111\} : n = 3 ; A = \frac{a^2 \sqrt{3}}{4}$$
$$\Rightarrow \gamma_{\{111\}} = -\frac{2\sqrt{3}\Phi}{a^2}$$

$\gamma_{\{111\}} < \gamma_{\{100\}} < \gamma_{\{110\}}$ , mais la différence entre  $\gamma_{\{111\}}$  et  $\gamma_{\{110\}}$  n'est que de 22%, ce qui est faible. En d'autres termes les plans  $\{100\}$ ,  $\{110\}$  et  $\{111\}$  ont des énergies de surface assez proches. Une fragilisation par l'hydrogène, par exemple, concernerait tous ces plans de façon quasiment identique. Le fait que les plans  $\{111\}$  soient les plus observés en fissuration ne peut s'expliquer que par ce seul paramètre. En particulier, dans le cas de l'orientation  $\langle 110 \rangle$ , le changement de la direction de propagation induit un changement du mode de rupture qu'il est impossible d'expliquer si l'on se base uniquement sur l'énergie de surface.

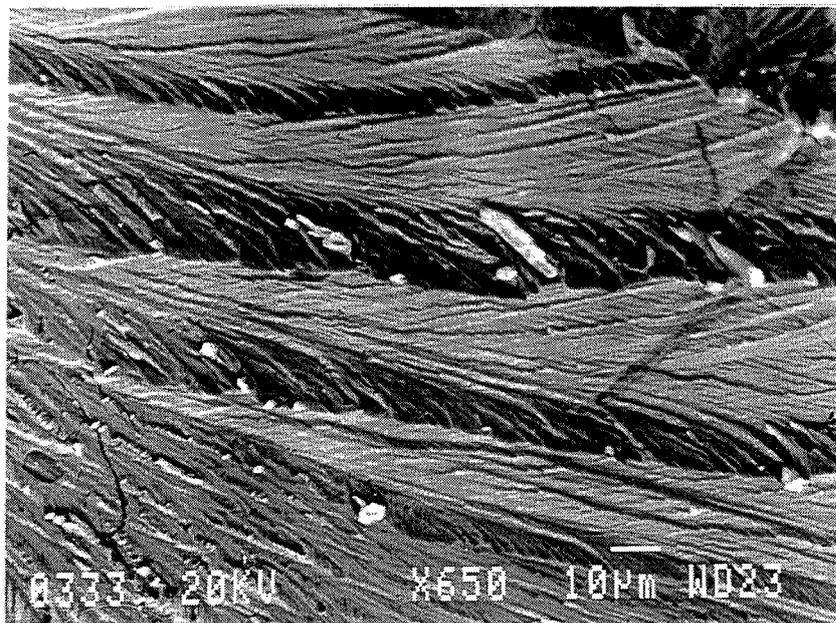
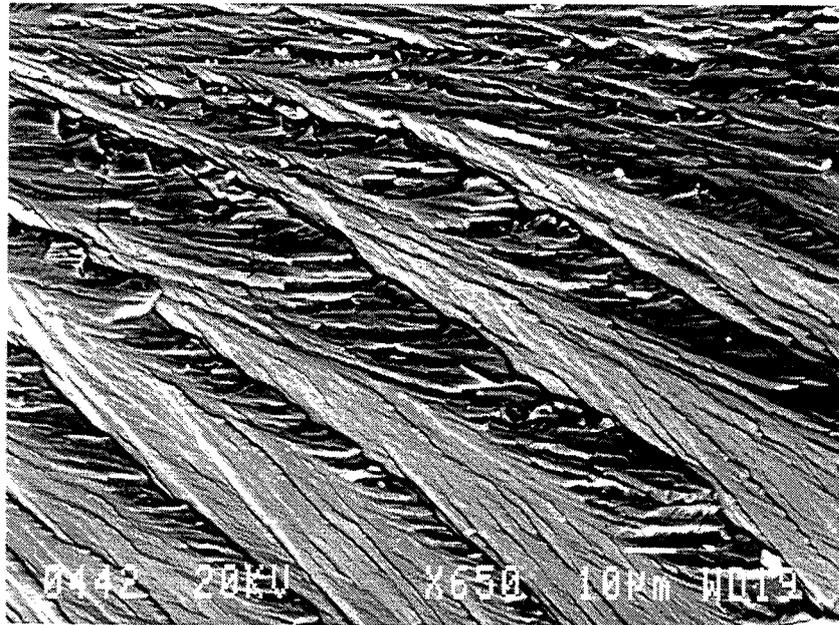
### **3.4.2 - Comparaison des résultats expérimentaux avec les différents modèles de CSC.**

De nos résultats expérimentaux sur monocristaux il ressort que les principales caractéristiques fractographiques du 316L dans  $\text{MgCl}_2$  à  $117^\circ\text{C}$ , qui sont en accord avec la CSC des polycristaux, sont les suivantes :

- a - amorçage des fissures au niveau des lignes de glissement.
- b - parfaite symétrie entre les deux parties du faciès de rupture.
- c - plans de glissement impliqués dans la fissuration.
- d - discontinuité de fissuration à l'échelle du micron.
- e - rupture alternée sur deux plans  $\{111\}$ , formant un plan moyen de type  $\{110\}$ .
- f - importance de la direction de propagation :  
direction locale qui est toujours telle que les plans de glissement sont en zone avec le fond de fissure et direction macroscopique qui influe directement sur le mode de rupture adopté.
- g - rupture macroscopiquement fragile, mais traces de ductilité très localisée.
- h - le plan moyen de fissuration résulte de toutes les informations précédentes tout en étant celui qui subit la contrainte normale la plus forte.

Nous allons donc reprendre ces caractéristiques pour les confronter aux différents modèles de CSC et plus particulièrement au 'corrosion enhanced plasticity model'.

a - L'amorçage des fissures au sein des lignes de glissement est en parfait accord avec la première étape du 'corrosion enhanced plasticity model' [Magnin 96 (2)]. L'émergence des lignes de glissement en surface provoque la déstabilisation du film passif ; il y a alors accélération de la dissolution anodique, favorisée par le couplage galvanique qui peut exister entre le métal mis à nu et les lèvres de la fissure. Ce phénomène a souvent été mis en évidence. Il a été clairement établi que le courant de dissolution augmente de façon



*Figure 3.43 : Observation du même faciès de rupture sur les deux faces opposées de la fissure.*

significative dès que l'on dépasse la limite d'élasticité (figure 3.42) [Jones 96]. Cette première étape, qui conduit à l'amorçage de la fissure par dissolution sur un plan de glissement, est admise par plusieurs auteurs [Meletis 84, Lichter 96, Jones 96, Qiao 96 (2)].

b - La parfaite symétrie qui existe entre les deux parties du faciès de rupture (figure 3.43) et la discontinuité de fissuration ne vont pas dans le sens d'un modèle de CSC basé sur la dissolution seule mais sont tout à fait compatibles avec les modèles basés sur les interactions corrosion-déformation.

c - Le fait que les plans de glissement soient impliqués dans la fissuration est un argument en faveur du 'corrosion enhanced plasticity model'. En effet c'est le seul modèle (avec celui proposé par Birnbaum pour l'hydrogène [Birnbaum 90]) basé sur les interactions corrosion-déformation qui prévoit la rupture sur ce type de plan cristallographique.

d - La discontinuité de fissuration (alors que la sollicitation est monotone) se comprend aisément quand on considère l'ensemble des étapes du modèle. L'échelle de la discontinuité est importante à considérer. L'observation au microscope électronique à transmission du 316L révèle des amas de dislocations distants du micron [Magnin 90 (1)]. On comprend donc que les dislocations mobiles puissent être bloquées par ces amas, former des empilements et entraîner une fissuration discontinue. De plus l'échelle du micron est importante, car sur cette distance il est facile d'envisager que la diffusion des espèces produites par dissolution anodique telle que l'hydrogène soit possible même si le coefficient de diffusion de cet élément est faible dans la matrice austénitique. Ceci valide en particulier la possibilité d'interactions entre hydrogène et dislocations mobiles. Les simulations numériques de ces interactions confortent cette vue [Magnin 97]. Pour une fissure chargée en mode I, on a émission de dislocations sur deux plans de glissement symétriques qui écrantent la fissure et provoque une diminution du facteur d'intensité de contrainte locale,  $k$ . Simultanément l'hydrogène diffuse à partir du fond de fissure et entraîne une diminution de la cohésion du matériau (diminution de  $k_{IC}$ ). Le calcul consiste à tester le critère de rupture suivant :

$$k(t) = K_{app} - K_{écran}(t) \geq k_{IC}(r=0, t)$$

où  $K_{app}$  est le facteur d'intensité de contrainte appliqué

$K_{écran}(t)$  est le facteur d'intensité de contrainte dû à l'écrantage de la fissure.

La simulation montre alors que la fissuration est discontinue car le critère de rupture n'est satisfait que sur une distance finie  $\Delta a_c$  comme le montre la figure 3.44.

e - Il est intéressant de noter que la discontinuité de fissuration sur les plans de glissement a toujours été observée sur deux plans  $\{111\}$  formant un angle de  $70^\circ$  entre eux, c'est à dire formant un plan moyen de type  $\{110\}$ . Ceci est expliqué par plusieurs auteurs. En effet, si on

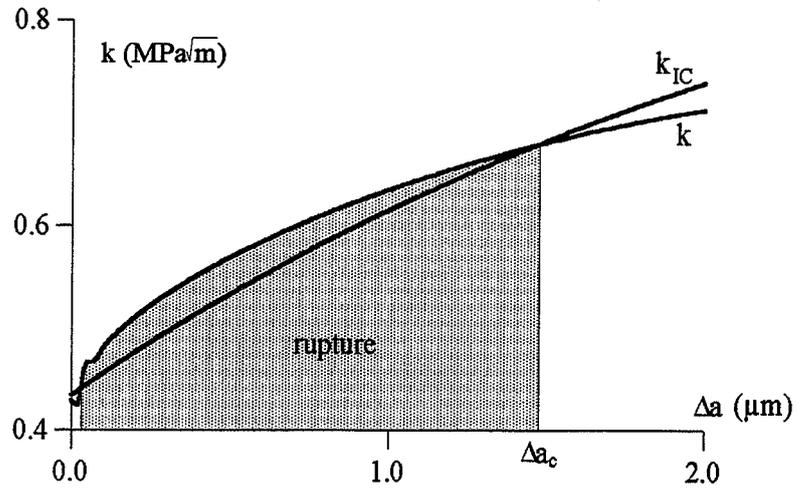


Figure 3.44 : Evolution des facteurs d'intensité de contrainte locaux liés à l'écrantage et à la possibilité de fissuration [Magnin 97].



Figure 3. 45 : Micromacles visualisées sur le monocristal d'orientation  $\langle 100 \rangle$  sollicité en traction jusqu'à 5% d'allongement.

considère un empilement de dislocations sur un plan de glissement faisant un angle de  $35^\circ$  avec le fond de fissure, alors le plan qui fait un angle de  $-70^\circ$  avec le plan de l'empilement est celui qui subit la contrainte de décohésion maximale [Stroh 54]. Ce résultat est conforme aux calculs de Lin et Thomson [Lin 86] et de Lepinoux [Lepinoux 92]. Meletis [Meletis 92] et Magnin [Magnin 96 (3)] ont également montré que la direction où la contrainte normale est maximale n'est pas normale au plan de glissement mais forme un angle de  $70^\circ$  avec ce plan.

f - Nos essais sur monocristaux ont permis de mettre en évidence le rôle majeur de la direction de propagation. En effet, quelle que soit l'orientation de l'axe de traction, si aucune direction macroscopique de propagation n'est imposée, la direction locale de propagation est toujours telle que deux plans de glissement se trouvent en zone avec le fond de fissure. Ce résultat souligne le rôle primordial des interactions corrosion-déformation. Quand les plans de glissement contiennent le fond de fissure, les interactions entre les dislocations mobiles émises du fond de fissure et les espèces chimiques produites lors de la dissolution anodique (hydrogène, lacunes) sont favorisées et conduisent à la rupture sur les plans de glissement. Ce résultat est en très bon accord avec le 'corrosion enhanced plasticity model' puisque ce dernier est basé sur un adoucissement en fond de fissure qui repose sur les interactions corrosion-déformation.

Par ailleurs on peut se demander pourquoi la direction locale de propagation est toujours de type  $\langle 112 \rangle$ . Cette direction correspond à l'intersection entre un plan moyen de type  $\{110\}$  et d'un plan de type  $\{111\}$ . Nous venons d'expliquer pourquoi la rupture en alternance sur deux plans  $\{111\}$  donnant un plan moyen  $\{110\}$  était favorisée. Parallèlement il faut savoir que le 316L a une énergie de défaut d'empilement de  $28 \text{ mJ/m}^2$ . C'est à dire, que dans cet alliage, on favorise le glissement plan. En d'autres termes, pour accommoder la déformation, si la recombinaison des partiels est impossible, on favorisera des mécanismes de déformation tel que le maclage. Ceci a été confirmé expérimentalement : la figure 3.45 montre une lame mince prélevée sur le monocristal d'orientation  $\langle 100 \rangle$  sollicité en traction monotone jusqu'à 5% d'allongement. On peut voir que les micromacles sont nombreuses. Or le maclage se traduit par un cisaillement de l'austénite dans la direction  $\langle 112 \rangle$ . Il n'est donc pas surprenant que la fissuration sur le plan moyen  $\{110\}$  délimite, au croisement de ces micromacles, des directions de type  $\langle 112 \rangle$ . L'implication des micromacles dans le processus de rupture par CSC a déjà été mise en évidence par Kaufman [Kaufman 88] sur du laiton  $\alpha$  sollicité dans  $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2$ .

g - La rupture en CSC est macroscopiquement fragile. Cependant à l'échelle du micron on distingue des traces de ductilité très localisée. Cet effet est un point très intéressant à considérer car de nombreux modèles de CSC tentent d'expliquer le quasiclavage, caractéristique de la CSC des alliages c.f.c., en évoquant une rupture par décohésion pure. Les



cas de rupture fragile sont cohérents avec cette idée. Par contre quand les plans de glissement sont impliqués directement dans la fissuration, nos résultats ne semblent pas aller dans le sens de cette hypothèse. Ils supportent plutôt l'idée que la décohésion et le cisaillement sont impliqués dans la rupture. L'orientation  $\langle 111 \rangle$  illustre bien cette nécessité. Le fond de fissure se trouve en zone avec deux plans de glissement formant un angle de  $70^\circ$  de sorte que les interactions corrosion-déformation sont favorisées (figure 3.19). Par contre aucun des deux plans n'est sollicité fortement à la fois en cisaillement et en décohésion et ceci se traduit par un autre mode de rupture.

Ce résultat valide deux étapes du modèle. Les plans de glissement doivent être sollicités en cisaillement de façon à ce que les dislocations de type A (voir figure 1.16) de la zone adoucie soient rendues mobiles et parallèlement une composante en décohésion semble nécessaire pour qu'il y ait propagation de l'embryon de fissure formé à partir de l'empilement. Cependant il est très difficile d'être catégorique en ce qui concerne le mode exact de rupture sur le plan  $\{111\}$ . Si on considère une fissure chargée en mode I et un plan de glissement faisant un angle  $\theta$  avec la fissure, alors le plan de glissement est sollicité à la fois en décohésion et en cisaillement. Mais ceci ne donne aucun renseignement sur le processus de rupture qui l'emporte. Si l'on observe les facettes de rupture à très fort grossissement, l'aspect très rugueux de celles-ci ne fait pas pencher en faveur de la décohésion pure. D'ailleurs plusieurs auteurs pensent qu'une extrême localisation de la déformation peut être à l'origine de la fissuration. En particulier d'après Birnbaum [Birnbaum 97], dans les systèmes où la formation d'hydrures stables n'a pas lieu, la rupture est due à un procédé de localisation du cisaillement sur des surfaces de rupture de l'ordre du micron ; mais le mécanisme exact de rupture n'est pas précisé. Il attribue cette localisation de la déformation aux interactions hydrogène-dislocations. De même Lian et Meletis proposent le 'Environment Induced Deformation Localization model' [Lian 96] et supposent que ce sont les interactions du métal et de l'environnement corrosif qui sont à l'origine de cette localisation de la déformation. Nous reviendrons plus en détails sur les interactions hydrogène-dislocations et lacunes-dislocations au cours du prochain paragraphe.

h - Il existe toujours une organisation des microfacettes de rupture à l'échelle mésoscopique. C'est à dire que la fissuration suit une combinaison de microfacettes de type  $\{111\}$  ; mais le plan moyen de fissuration correspond toujours à une combinaison de plans de glissement qui subissent la contrainte normale la plus forte. On retrouve ici les résultats de Qiao [Qiao 96 (2)] qui montre sur éprouvettes monocristallines en U (321 dans  $\text{MgCl}_2$  à  $143^\circ\text{C}$ ) que la contrainte normale joue un rôle particulier en CSC : elle détermine la position de l'amorçage des fissures et dicte l'inclinaison du plan macroscopique de fissuration. De même, quand la rupture est liée à l'hydrogène, elle a lieu en alternance le long des plans de glissement où se



localise le cisaillement ; le plan moyen de rupture est celui qui subit la contrainte de traction maximale [Lynch 88, Eastman 80, Matsumoto 80].

Suite à cette analyse, de nombreuses étapes du modèle ont été confirmées. Nous avons surtout mis en évidence le rôle primordial des interactions corrosion-déformation. Aussi il nous a paru intéressant d'élargir la discussion au sujet des interactions lacunes-dislocations et hydrogène dislocations dans le paragraphe suivant.

### **3.4.3 - Influence des espèces produites par dissolution anodique.**

Nous avons vu que la direction de propagation est toujours telle que deux plans de glissement contiennent le fond de fissure, ce qui favorise fortement les interactions entre les dislocations mobiles émises du fond de fissure et les espèces produites par dissolution anodique. Ce paragraphe a donc pour objectif de discuter quels sont les mécanismes d'interaction possibles entre les dislocations et l'hydrogène ainsi qu'avec les lacunes.

#### **a - Interactions hydrogène-dislocations.**

Les aciers inoxydables austénitiques ont la réputation de présenter une bonne résistance aux phénomènes de fragilisation par l'hydrogène [Coudreuse 90]. Pourtant il a été clairement établi que dans le chlorure de magnésium la décharge de l'hydrogène est thermodynamiquement possible [Russell 81, Qiao 94]. En particulier dans  $MgCl_2$  à  $117^\circ C$ , suite à l'hydrolyse des cations, le pH en fond de fissure est égal à 0,2 [Russell 79]. La diffusion de l'hydrogène sur de longues distances est cependant à écarter dans ces alliages car le coefficient de diffusion de l'hydrogène dans la structure austénitique est faible ( $10^{-12} \text{ cm}^2/\text{s}$ ). Mais nous avons vu que l'échelle de la fissuration était celle du micron. Sur cette distance, les interactions hydrogène-plasticité sont tout à fait envisageables. Plus le coefficient de diffusion est faible, plus le volume affecté est petit. Ceci se concrétise par une probabilité plus forte d'atteindre une concentration critique en hydrogène pour un volume donné. Or la notion de concentration critique en hydrogène est primordiale, comme nous l'avons déjà souligné au chapitre 1 (figure 1.18, [Qiao 96 (1)]). Les différences de sensibilité à l'hydrogène suivant les auteurs peuvent souvent s'expliquer par le fait que l'on est au dessus ou au dessous de la concentration critique en hydrogène.

Une autre notion très importante à considérer est celle de défaut critique. En effet des résultats contradictoires ont été obtenus suite à une polarisation cathodique des aciers inoxydables austénitiques. Plusieurs auteurs ont montré qu'il existe pour cet alliage un

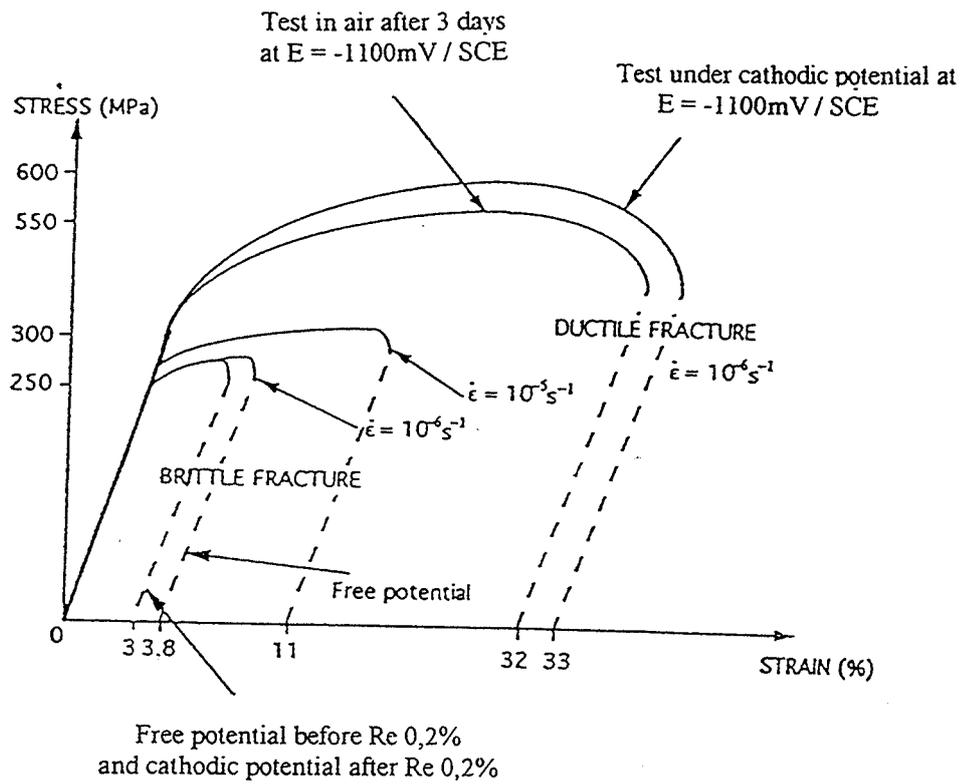


Figure 3.46 : Influence du potentiel électrochimique sur le comportement du 317LN dans  $\text{MgCl}_2$  à  $153^\circ\text{C}$  [Magnin 96].

potentiel critique de fissuration qui est proche du potentiel de piqûration [Shamakian 77, Russell 79, Hehemann 85]. C'est à dire que la CSC est observée pour des potentiels plus anodiques que ce potentiel de fissuration. Ces auteurs montrent qu'en effectuant une polarisation cathodique d'environ 50 mV par rapport au potentiel de fissuration, on stoppe la CSC car on diminue l'acidification et la concentration en chlorures en fond de fissure.

Cependant des résultats inverses ont été obtenus quand la polarisation cathodique est beaucoup plus importante. La figure 3.46 [Magnin 96 (2)] montre les résultats de CSC du 317LN dans  $MgCl_2$  à 153°C à différents potentiels. On remarque que :

- la courbe à potentiel cathodique est quasiment similaire à celle obtenue à l'air, même si l'échantillon est maintenu à potentiel cathodique pendant trois jours avant l'essai.
- il y a une nette diminution de la durée de vie quand on laisse l'échantillon à potentiel libre jusqu'à la limite d'élasticité et que l'on passe à potentiel cathodique ensuite.

Ces résultats montrent que la dissolution anodique est une étape nécessaire : elle crée un défaut de surface qui permet ensuite à l'hydrogène de pénétrer localement dans le matériau. Ce défaut peut également être créé mécaniquement (par une préfatigue par exemple).

En résumé, pour les aciers inoxydables austénitiques dans le chlorure de magnésium, dès que l'on a formation d'un défaut de surface (donc dès que la première étape du modèle est vérifiée) et que la concentration en hydrogène dépasse une concentration critique, le rôle de l'hydrogène ne doit pas être négligé.

L'hydrogène possède une faible solubilité qui est la cause de sa tendance à ségréger sur les sites microstructuraux tels que les défauts et les interfaces [Chêne 90]. Son volume partiel molaire, qui représente son aptitude à distordre le réseau, est très élevé. En conséquence il a tendance à ségréger dans les champs de contrainte hydrostatique de traction, en particulier autour des dislocations. Aussi on a possibilité de traînage de l'hydrogène par le coeur des dislocations mobiles [Magnin 97]. Ce phénomène a reçu de nombreuses preuves expérimentales [Hasmimoto 88], en particulier le transport de l'hydrogène par les dislocations mobiles a été observé sur de l'aluminium pur par microscopie autoradiographique [Goroth 96]. En conséquence on a une augmentation de la vitesse de diffusion de l'hydrogène le long du plan de glissement.

L'hydrogène, en ségrégeant là où la distorsion du réseau est la plus forte, atténue cette distorsion et diminue ainsi le champ de contrainte de la dislocation. Il a donc pour effet de

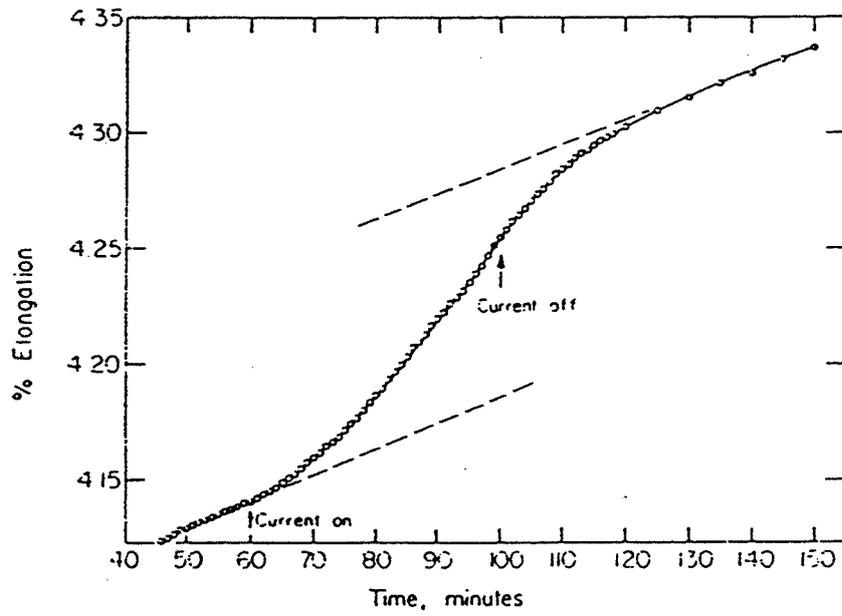


Figure 3.47 : Effet d'une polarisation anodique ( $0,9 \text{ mA/cm}^2$ ) sur le fluage du cuivre dans une solution d'acétate [Revie 74].

diminuer les interactions de paires entre dislocations [Birnbaum 97]. Ceci permet aux dislocations d'un même plan de glissement d'être plus proches [Rozenak 90]. En conséquence, en présence d'hydrogène, la densité de dislocations en tête d'empilement augmente, d'où une ouverture de fissure favorisée. De plus l'hydrogène est plus fortement lié aux champs de contrainte d'une dislocation coin que d'une dislocation vis. En effet quand la dislocation vis n'est pas dissociée, elle n'induit pas de contrainte hydrostatique pouvant interagir avec l'hydrogène. L'ensemble de ces interactions hydrogène-dislocations fait actuellement l'objet de la thèse de J.P. Chateau à l'Ecole des Mines de Saint-Etienne.

Par ailleurs il a été montré dans les aciers inoxydables que la rupture par effet d'hydrogène se fait par une extrême localisation du glissement [Ulmer 91, Abraham 95]. Le principal effet de l'hydrogène est qu'il diminue les niveaux de contrainte auxquels a lieu la déformation plastique [Rozenak 90]. Il diminue donc les barrières s'opposant au mouvement des dislocations, augmentant ainsi leur mobilité. Ceci induit des régions où la localisation de la déformation est très forte [Birnbaum 97]. Ces effets n'ont jusqu'à présent pas été vérifiés à l'échelle macroscopique ; c'est un des objectifs de la thèse de N. Renaudot à l'Ecole des Mines.

L'hydrogène a donc pour double effet d'augmenter la planéité du glissement et de provoquer sa localisation. La densité de dislocations sur un nombre restreint de plans de glissement est donc plus forte, ce qui explique que l'hydrogène conduise à une fragilisation des liaisons le long des plans de glissement.

#### **b - Interactions dissolution anodique-déformation.**

L'influence de la dissolution anodique sur les propriétés mécaniques a d'abord été observée lors d'essais de fluage du cuivre dans l'acide acétique [Revie 74]. Dès que l'on applique un courant anodique la vitesse de fluage est augmentée comme le montre la figure 3.47 et le processus est réversible. Les auteurs attribuent cette modification du comportement aux lacunes produites lors de la dissolution anodique et qui diffusent dans le matériau. Les lacunes semblent aider la montée des dislocations sessiles, ce qui favorise le glissement à proximité des obstacles qui autrement auraient gêné le mouvement des dislocations [Revie 74, Meletis 92, Gao 97]. La même augmentation de la vitesse de fluage a été observée sur du 304L dans H<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> [Olive 92(1)].

Nous avons souhaité vérifier que la dissolution anodique puisse être à l'origine d'un adoucissement sur le 316L comme le suppose le modèle. Une des difficultés consiste à

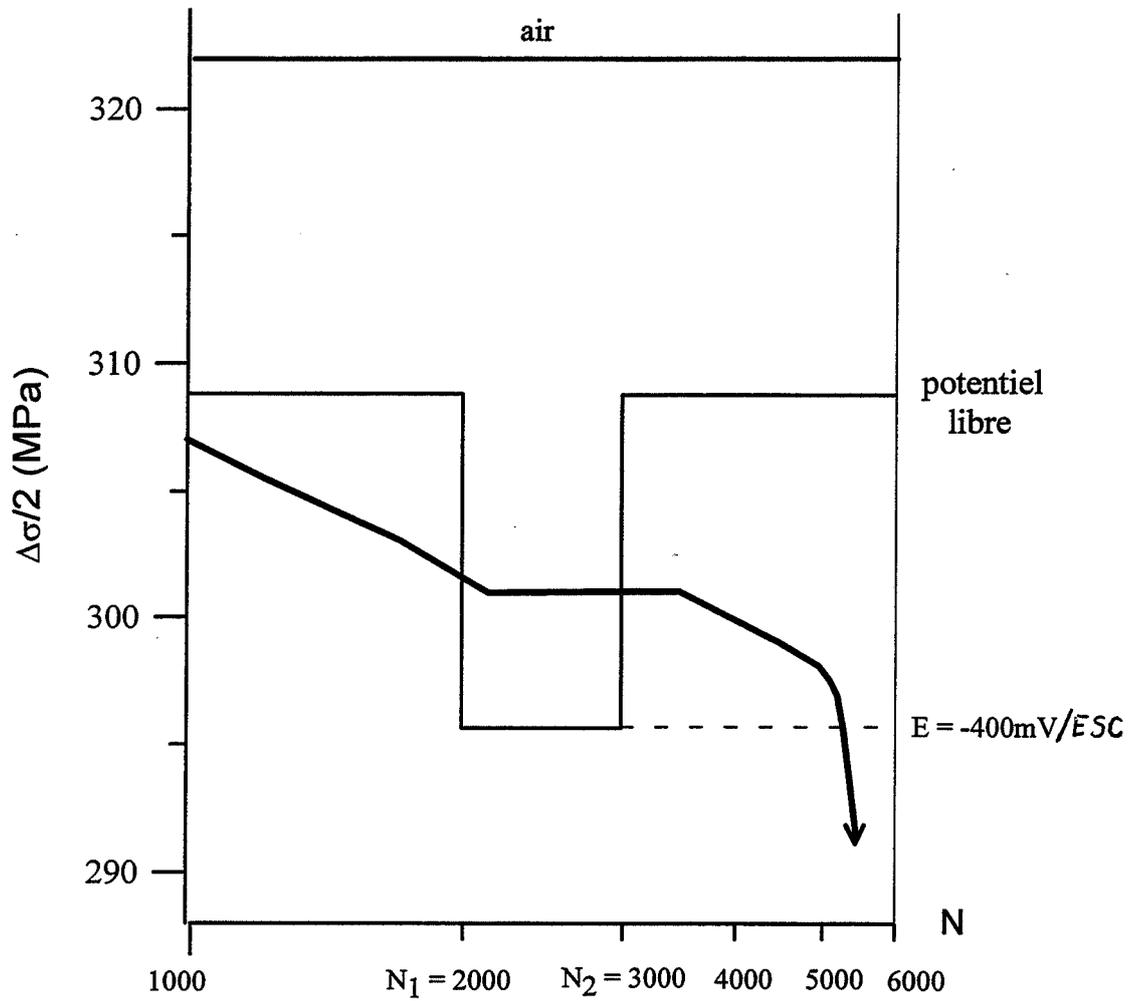


Figure 3.48 : Evolution de la contrainte à saturation en fatigue-corrosion du 316L polycristallin à l'air et dans  $H_2SO_4$  à potentiel libre avec maintien à  $-400mV/ESC$  de 2000 à 3000 cycles.

$$\Delta\mathcal{E}_p/2 = 4.10^{-3} ; \dot{\epsilon} = 10^{-2} s^{-1}.$$

reproduire à l'échelle macroscopique l'augmentation locale de plasticité qui est attendue en fond de fissure. C'est pourquoi nous avons choisi d'effectuer des essais de fatigue-corrosion. La forte localisation de la déformation en fatigue permet en effet d'observer à une échelle macroscopique la somme d'événements locaux.

L'essai est réalisé sur du 316L dans  $H_2SO_4$  0,5N à  $\Delta\epsilon_p/2 = 4.10^{-3}$  ( $\dot{\epsilon} = 10^{-2} s^{-1}$ ). La figure 3.48 montre l'évolution de la contrainte à saturation en fonction du nombre de cycles à l'air et en milieu corrosif pour différents potentiels. On observe que :

- on a un adoucissement en milieu corrosif par rapport à l'air.
- l'adoucissement disparaît quand on passe à potentiel cathodique
- l'adoucissement réapparaît à potentiel libre.
- il y a toujours un léger retard entre le changement de potentiel et l'arrêt ou la reprise de l'adoucissement.

Il ressort donc que l'adoucissement peut être attribué à la dissolution anodique, puisqu'il est stoppé lorsqu'on diminue celle-ci en imposant un potentiel cathodique. Le retard entre l'imposition du potentiel et l'arrêt de l'adoucissement correspond au temps pendant lequel les lacunes produites par dissolution continuent à interagir avec les dislocations. A l'inverse, quand on rétablit le potentiel libre, il faut un certain délai pour que de nouvelles lacunes jouent un rôle sur le déplacement des dislocations.

Les interactions entre lacunes et dislocations ont été étudiées par Meletis et al. [Meletis 92]. D'après ces auteurs, les lacunes produites par dissolution anodique aux marches de glissement sont injectées dans le matériau et interagissent avec les dislocations du fond de fissure pour changer leur configuration. L'énergie de liaison entre les lacunes et la matrice avoisinant la dislocation est positive (de 0,2 à 0,7 eV [Balluffi 79]). Comme elle est positive aussi bien dans la région en traction que dans la région en compression autour d'une dislocation coin, les lacunes migrent aisément vers le coeur des dislocations. Ainsi l'injection des lacunes est immédiatement suivie de leur attraction par les dislocations du fond de fissure. L'incorporation de ces lacunes dans le coeur des dislocations diminue l'énergie requise pour le mouvement des dislocations, c'est à dire que les lacunes favorisent la mobilité des dislocations. Une étude au MET in situ sur des échantillons de Ti-24 Al- 11 Nb a d'ailleurs montré que la dissolution anodique dans le méthanol favorisait l'émission, la multiplication ainsi que le mouvement des dislocations [Gao 97]. Ces résultats sont en accord avec [Kramer 64] : l'énergie d'activation pour la déformation plastique est moins importante quand il y a



dissolution du métal. Le rôle de l'environnement est donc de réduire la barrière énergétique s'opposant au mouvement des dislocations de surface [Meletis 92]. Ceci se traduit par une augmentation de la localisation du glissement et, d'après Kaufmann, la rupture du laiton  $\alpha$  et de 304L est due à cette extrême localisation de la déformation plastique [Kaufmann 88]. De plus Jani et al. [Jani 91] ont montré par une étude au MET sur du 304 que les lacunes modifiaient la configuration de dislocations et favorisaient une déformation plane en avant du fond de fissure. Tout ceci reste cependant encore imprécis. Une étude plus fine, utilisant des simulations numériques, est nécessaire.

Nos résultats expérimentaux ont montré que les interactions corrosion-déformation étaient primordiales en CSC. Ceci nous a poussés à étudier plus en détails ces interactions. De cette étude il ressort que l'hydrogène et les lacunes, produits par les réactions électrochimiques du fond de fissure, ont certains effets communs :

- tous deux peuvent être transportés par les dislocations mobiles car leur énergie de liaison avec ces dislocations est positive.
- ils contribuent à diminuer les barrières énergétiques qui s'opposent au mouvement des dislocations et ont donc pour conséquence d'augmenter la mobilité des dislocations proches de la surface.
- ils rendent le glissement plus plan et localisent la déformation.

Tout ceci va dans le sens d'une augmentation de la plasticité de surface et donc dans le sens du 'corrosion enhanced plasticity model' qui repose sur l'existence de deux zones : une zone de surface où la plasticité est localement augmentée et une zone durcie par la mise en charge en avant du fond de fissure. On imagine donc que plus la différence entre ces deux zones sera prononcée, plus il sera facile de créer des empilements forts et plus la rupture aura lieu tôt. A l'inverse, en atténuant la différence de durcissement entre les deux zones, on peut envisager que l'on gagnera sur la durée de vie. Ce sont ces deux hypothèses que nous testerons au cours du quatrième chapitre.



### 3.5 - Conclusion

A partir des résultats sur monocristaux, nous avons pu mettre en évidence qu'il existait deux types de rupture en fonction des interactions corrosion-déformation. Le premier cas de rupture est de type décohésion : il est rencontré moins fréquemment que le type de fissuration qui implique les plans de glissement.

- si le facteur de Schmid est inférieur à 0,4 ou s'il n'existe pas d'arête commune entre les plans de glissement et le fond de fissure, la rupture a un aspect très fragile. Elle semble due à la décohésion sur les plans de bas indices qui subissent la contrainte normale la plus forte. Cependant ce type de fissuration n'a lieu que dans des conditions cristallographiques bien particulières qui ne sont rencontrées que sur monocristaux. Aussi nous n'avons pas cherché à interpréter ces résultats plus en détails. Notons cependant qu'ils soulignent la possibilité d'une fragilisation des liaisons interatomiques induites par le milieu corrosif, ceci même quand le glissement joue un rôle minimal.

- si le facteur de Schmid est supérieur à 0,4 et que les plans de glissement contiennent le fond de fissure, alors plusieurs caractéristiques fractographiques peuvent être dégagées :

- \* on a amorçage des fissures au sein des lignes de glissement.
- \* les plans de glissement sont impliqués dans la rupture.
- \* la discontinuité de fissuration a lieu à l'échelle du micron.
- \* il y a parfaite symétrie entre les deux parties du faciès de rupture.
- \* la rupture alternée sur deux plans {111} donne un plan moyen de type {110}.
- \* l'importance de la direction de propagation est mise en évidence :

la direction locale est toujours telle que les plans de glissement contiennent le fond de fissure ; la direction macroscopique influe directement sur le mode de rupture ceci souligne le rôle majeur des interactions corrosion-déformation

- \* la rupture est macroscopiquement fragile mais on note des traces de ductilité extrêmement localisée à l'échelle microscopique.
- \* le plan moyen de fissuration est toujours celui qui subit la plus forte contrainte normale.

Ces caractéristiques fractographiques retracent bien ce que l'on observe sur polycristaux, en particulier aux moyennes et fortes valeurs du facteur d'intensité de contrainte.

En confrontant ces résultats aux différents modèles de CSC, il ressort que le 'corrosion enhanced plasticity model' est celui qui prévoit le mieux l'ensemble des caractéristiques fractographiques des aciers inoxydables austénitiques. En particulier il repose sur les interactions corrosion-déformation sur les plans {111} qui apparaissent comme primordiales en CSC. De plus nous avons vu que la direction de propagation était telle que ces interactions étaient favorisées le long des plans de glissement. Ceci nous a amené à discuter des interactions hydrogène-dislocations et lacunes-dislocations. Ces deux éléments ont certains



effets communs : ils vont tous les deux dans le sens d'une augmentation de la plasticité de surface, ce qui conforte le modèle qui repose sur l'existence de deux zones. La différence de durcissement entre ces deux zones délimite un obstacle virtuel sur lequel viennent s'empiler les dislocations.

Pour modifier la résistance de cet obstacle, deux moyens sont possibles. On peut jouer sur les conditions électrochimiques de façon à changer la plasticité de surface. Cependant en modifiant le potentiel électrochimique on privilégie les réactions de décharge cathodique ou celles de dissolution anodique. Or nous avons vu que l'hydrogène et les lacunes avaient des effets communs, ce moyen n'est donc pas le meilleur pour modifier de façon contrôlée la plasticité de surface. Par contre il est possible de jouer sur la plasticité de la zone durcie en créant des obstacles plus ou moins forts par le biais d'un précrouissage avant CSC. C'est donc cette stratégie que nous adopterons dans le prochain chapitre.



## **Chapitre 4 :**

### **Influence d'un précrouissage**

### **sur la résistance à la corrosion sous contrainte**



L'objectif de ce chapitre est de trouver une parade à la CSC en nous basant sur les idées du 'corrosion enhanced plasticity model'.

Nous avons déjà établi que celui-ci était en bon accord avec la fissuration en CSC des aciers inoxydables austénitiques en milieu chloruré. La première étape du modèle prévoit l'amorçage des fissures par dissolution au sein des lignes de glissement. On peut donc supposer, qu'en jouant sur la répartition de celles-ci par le biais d'un précrouissage, on modifiera les conditions d'amorçage. De plus, le modèle repose sur l'existence de deux zones de plasticité différentes. Un précrouissage aura donc comme conséquence de modifier la différence de durcissement entre ces deux zones, ce qui pourra influencer la propagation des fissures. Aussi, nous étudierons en parallèle l'influence d'un précrouissage en traction et celle d'un précrouissage en fatigue sur l'amorçage et la propagation des fissures de CSC. Nous montrerons que ce dernier est particulièrement intéressant pour améliorer la tenue en CSC.

De nombreux aciers inoxydables austénitiques subissent un précrouissage par déformation à froid destiné à améliorer leurs caractéristiques mécaniques. L'influence de ce traitement mécanique sur la résistance à la CSC est donc de première importance. Il a déjà été établi qu'un précrouissage en traction accélérerait aussi bien l'amorçage que la propagation des fissures de CSC [Cassagne 93, Magdowski 96]. L'augmentation de la vitesse de fissuration pouvait être prévue avec l'idée de l'obstacle mobile car le précrouissage monotone, en augmentant la densité de dislocations de la zone durcie, facilite la formation d'obstacles forts qui conduisent à la rupture. Nous confirmerons cette hypothèse et verrons, en nous appuyant sur des essais réalisés sur polycristaux et monocristaux, que les conditions d'amorçage et de dissolution sont également modifiées. Parallèlement les interactions corrosion-déformation sont amplifiées, ce qui ajoute à l'effet néfaste de ce type de précrouissage.

Forts de ces résultats, notre but est donc de trouver une forme de précrouissage qui, tout en améliorant les niveaux de contrainte, ne dégrade pas la tenue en CSC. Nous verrons qu'un précrouissage en fatigue permet de répondre à cette attente. Non seulement il allonge la durée de vie, mais de plus l'amorçage des premières fissures est retardé et les contraintes à rupture sont plus élevées. Aussi la deuxième partie de ce chapitre sera destinée à analyser les raisons de ces améliorations.

En fait les deux types de précrouissage seront traités en parallèle. Après une description des résultats expérimentaux, obtenus sur polycristaux et monocristaux, nous nous intéresserons à l'influence des deux types de précrouissage sur le mode d'amorçage des fissures. Nous verrons que l'état de surface induit par les deux types de précrouissage permet d'expliquer les différences observées expérimentalement. L'évolution du potentiel libre au cours des essais sera également considérée. Nous nous intéresserons ensuite à la propagation des fissures. L'influence d'un précrouissage monotone sur les interactions corrosion-déformation sera analysée. De plus l'éventualité d'une transformation martensitique sera traitée en particulier dans le cas d'un précrouissage en traction. Enfin nous verrons que l'idée

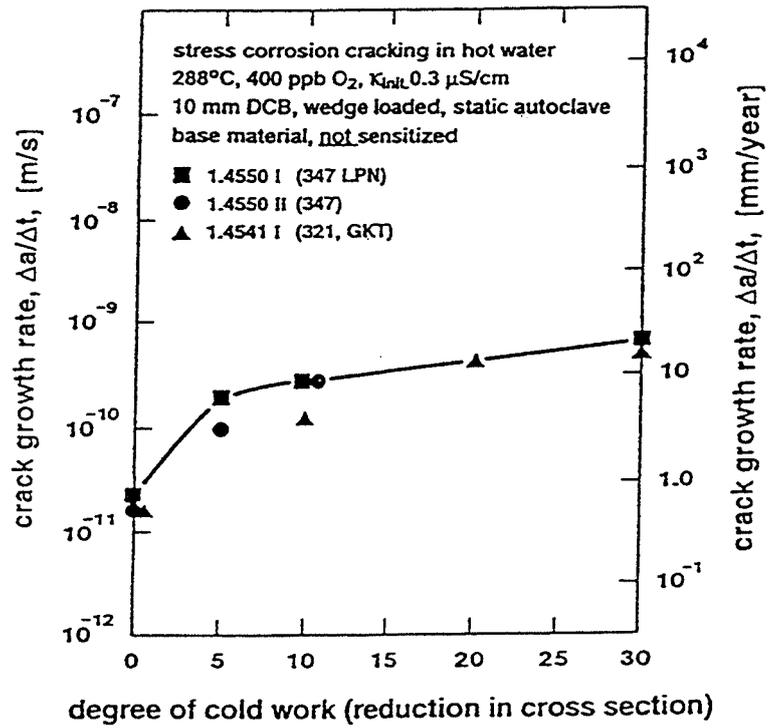


Figure 4.1 : Effet de l'écrouissage sur la vitesse de fissuration en CSC pour 3 aciers inoxydables austénitiques [Magdowski 96].

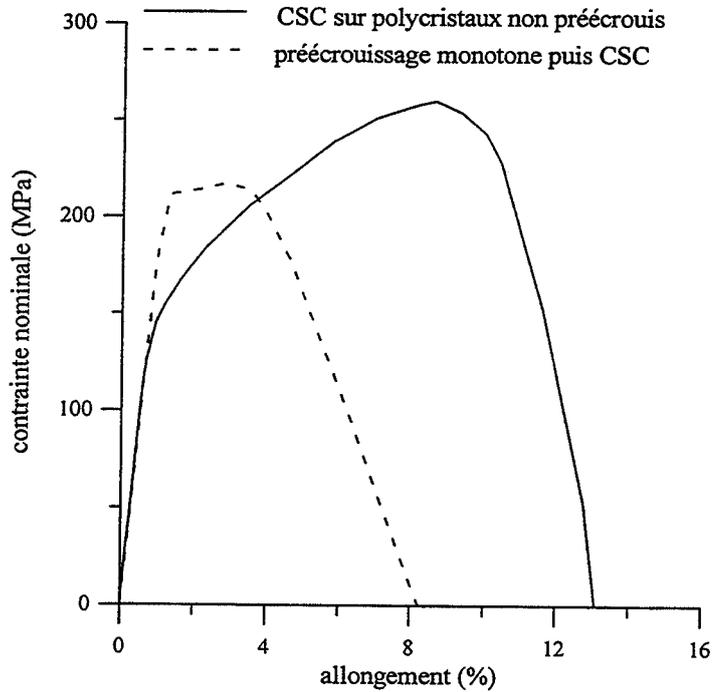


Figure 4.2 : Courbes contrainte allongement du 316L polycristallin sur échantillons non préécrouis et préécrouis en traction.

de l'obstacle mobile est en bon accord avec les conséquences des deux précrouissages sur la tenue en CSC.

## **4.1 - Précrouissage monotone.**

Les aciers inoxydables austénitiques présentent une limite d'élasticité et une résistance à la rupture relativement faibles, respectivement inférieures à 300 MPa et 650 MPa. Par contre ces caractéristiques mécaniques peuvent être fortement accrues notamment par un durcissement par écrouissage [Bavay 90]. L'origine de ce durcissement est lié au mouvement de plus en plus difficile des dislocations dont la densité augmente avec la déformation. La réduction de section en %, appelée ici taux d'écrouissage, est obtenue le plus souvent par laminage à froid (tôles) ou par tréfilage (fils). Les contraintes résiduelles liées à cet écrouissage viennent s'ajouter aux contraintes de mise en oeuvre. Il est particulièrement intéressant d'étudier leur influence sur les mécanismes d'endommagement en CSC car les exemples industriels où ces deux types de contraintes s'additionnent sont nombreux.

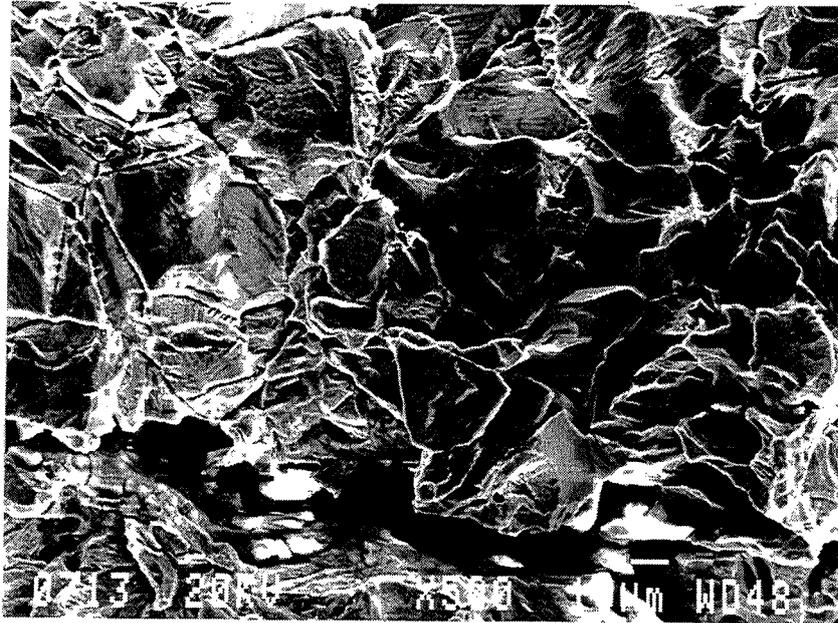
Nous avons choisi d'analyser ces effets en réalisant un précrouissage en traction, puis en testant l'éprouvette précrouie (non polie) en CSC dans  $MgCl_2$  à 117°C à potentiel libre. L'écrouissage monotone est réalisé à  $\dot{\epsilon} = 10^{-4} s^{-1}$  jusqu'à 5% d'allongement et correspond à une réduction de section de l'éprouvette voisine de 5%. Magdowski et Speidel ont montré que les 5 premiers pour-cents de déformation se traduisent par une augmentation significative de la vitesse de propagation de fissures de CSC alors que des taux de déformation plus élevés ont peu d'effet supplémentaire comme le montre la figure 4.1 [Magdowski 96].

### **4.1.1 - Résultats obtenus sur polycristaux.**

Un écrouissage en traction avant CSC est particulièrement néfaste. Non seulement la durée de vie est divisée par deux, mais de plus, cet écrouissage ne se traduit pas par une augmentation significative des niveaux de contraintes à rupture (figure 4.2), ce qui est pourtant le but recherché par le durcissement par écrouissage. Le fait de considérer la contrainte nominale pourrait minimiser les vrais niveaux de contrainte. La diminution de section au cours des essais est importante de par le fort taux de dissolution. Cependant même si on tient compte de ce paramètre, la contrainte à rupture ne varie pas énormément (10 MPa). On voit donc que la rupture prématurée ne peut pas être expliquée par le simple fait que l'écrouissage en traction permette d'atteindre la contrainte critique de rupture en CSC plus tôt.

Les deux conséquences les plus visibles du précrouissage monotone sont :

- l'accélération de l'amorçage des premières microfissures qui a lieu dès la mise en charge de l'éprouvette.
- l'augmentation du taux de dissolution qui se traduit par une chute de potentiel plus marquée que pour les échantillons non précrouis. De plus le chlorure de magnésium de la cellule de



*Figure 4.3 : Fût du 316L polycristallin précroui en traction après CSC.*



*Figure 4.4 : Faciès de rupture du 316L après écouissage monotone et CSC.*

corrosion, qui était généralement transparent ou légèrement jaune en fin d'essai, prend ici une belle couleur verte, qui traduit une mise en solution des éléments tels que le chrome ou le nickel. Enfin les marques intenses de dissolution anodique sont visibles aussi bien sur le fût de l'éprouvette, que sur le faciès de rupture comme le montre la figure 4.3.

La fractographie des polycristaux écrouis ne diffère pas vraiment de celle des polycristaux non précrouis. On retrouve de nombreuses facettes en forme de microfeuillets comme l'illustre la figure 4.4 ; par contre nous n'avons pas observé de facettes primaires. Ces résultats sont en bon accord avec ceux obtenus par Dickson et al. qui montrent que l'écrouissage a tendance à rendre la fractographie du 316 plus complexe car les facettes en feuillets sont plus nombreuses et la ramification de la fissure est plus prononcée [Dickson 80]. L'auteur constate également que la proportion de faciès intergranulaire est plus grande, ce qui rejoint les résultats de Magnin et al. [Magnin 90 (1)]. Cependant cette tendance n'est pas très nette sur nos propres échantillons, ce qui s'explique peut-être par la faible augmentation des contraintes de fissuration.

Le peu de différence observé entre les faciès de rupture des polycristaux précrouis ou non n'est pas riche en enseignements sur les processus d'endommagement liés à l'écrouissage monotone. C'est pourquoi nous avons entrepris le même type d'étude sur monocristaux.

#### **4.1.2 - Résultats obtenus sur monocristaux.**

##### **a - Orientation <110>**

Nous avons déjà constaté lors des essais de CSC que l'amorçage des fissures a toujours lieu à l'émergence des lignes de glissement en surface. Ceci reste vrai quand on procède à un précrouissage monotone avant CSC. Mais l'amorçage des premières microfissures a lieu plus tôt, le plus souvent avant la mise en charge de l'éprouvette. De plus il se produit préférentiellement à l'intersection des lignes de glissement. Pour cette orientation monocristalline, la très grande majorité des fissures s'est donc amorcée sur les faces  $(1\bar{1}0)$ . Or nous avons vu dans le chapitre 3 que le faciès peut être totalement différent en fonction de la direction macroscopique de propagation qui est imposée : rupture très fragile ou fissuration sur les plans  $\{111\}$ .

Ici les fissures s'amorçant sur les faces  $(1\bar{1}0)$ , c'est comme si on forçait la direction de propagation à être de type  $[001]$ . C'est à dire que les plans de glissement n'ont alors aucune arête commune avec le fond de fissure. Cette situation se concrétise en CSC sur monocristal non précroui par une rupture très fragile et c'est effectivement ce que nous avons observé pour ce monocristal précroui (figure 4.5). Les facettes de rupture identifiées sont les facettes  $(111)$ ,  $(101)$  et  $(01\bar{1})$ . De plus, cet essai de CSC est associé à une très forte dissolution et la diminution de section de l'éprouvette est conséquente. Ceci se confirme quand on observe le fût du monocristal (figure 4.6).

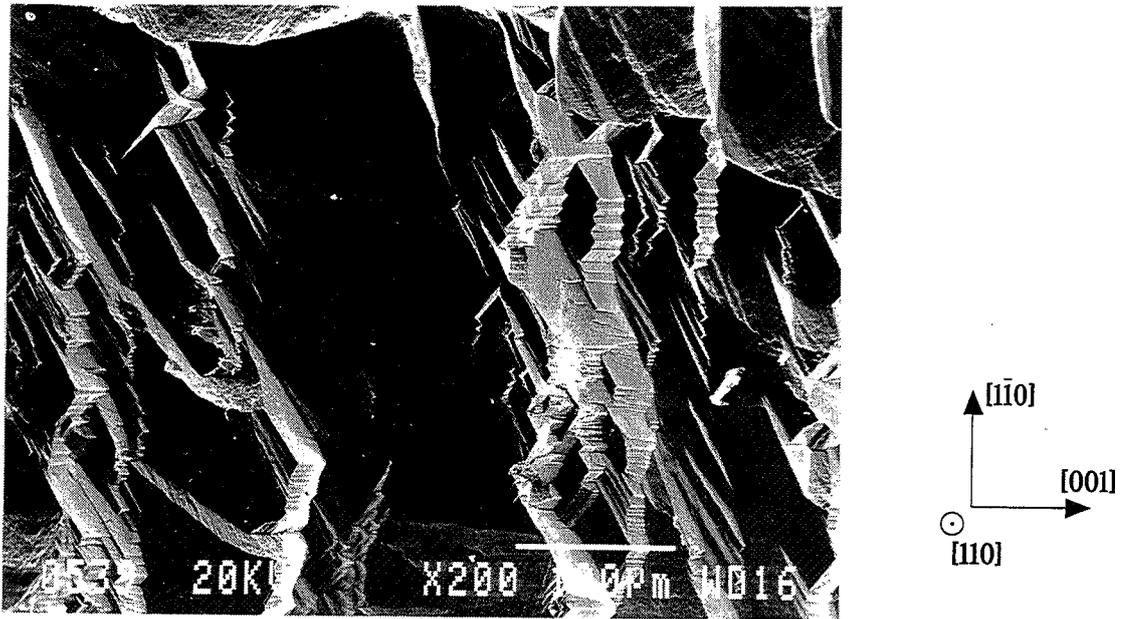


Figure 4.5 : Faciès de rupture du monocristal d'orientation  $\langle 110 \rangle$  précroui en traction. Vue près de la face  $(1\bar{1}0)$ .

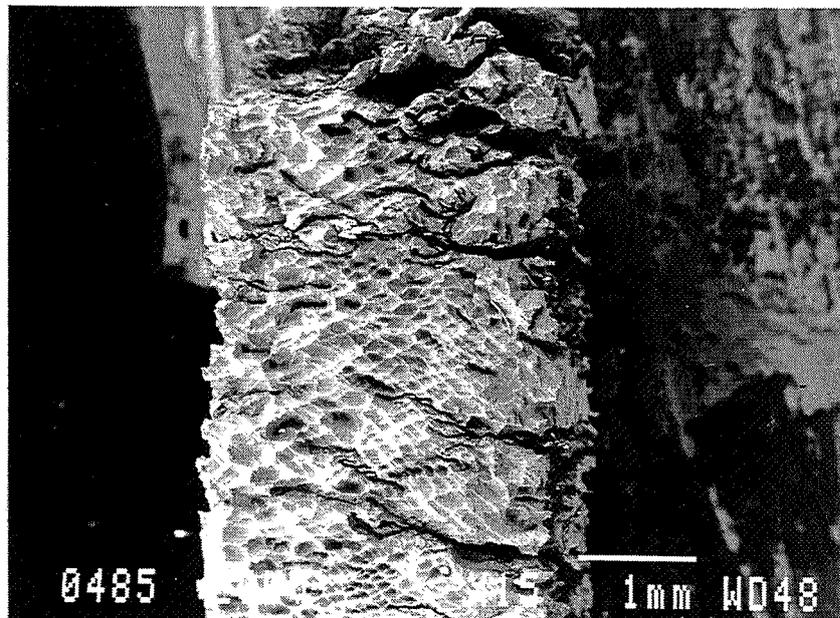


Figure 4.6 : Fût du monocristal d'orientation  $\langle 110 \rangle$  précroui en traction après CSC.

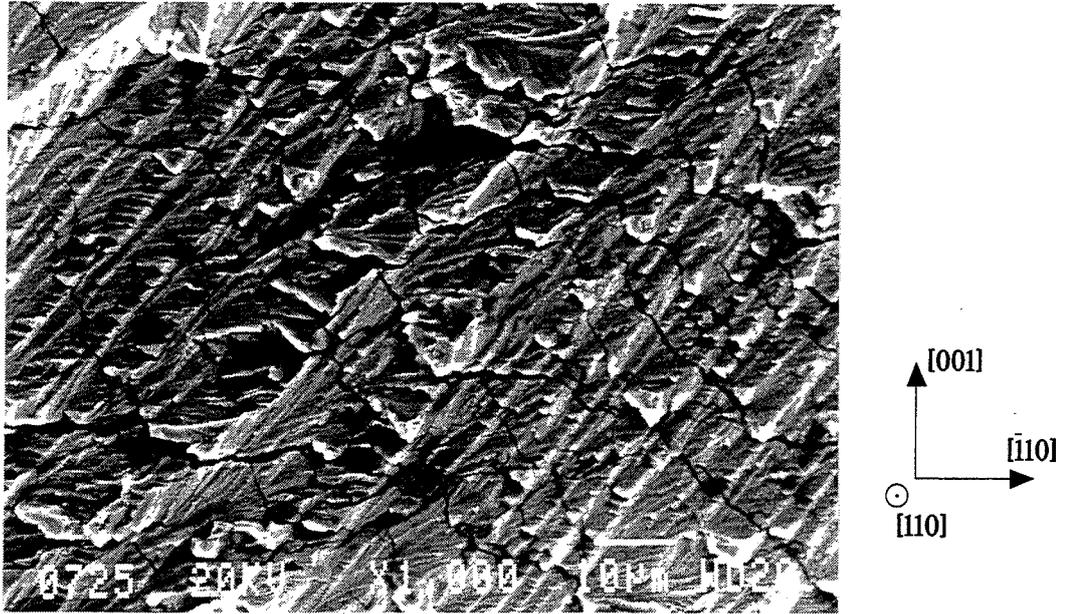


Figure 4.7 : Faciès de rupture du monocristal d'orientation  $\langle 110 \rangle$  précroui en traction. Vue au centre de l'éprouvette.

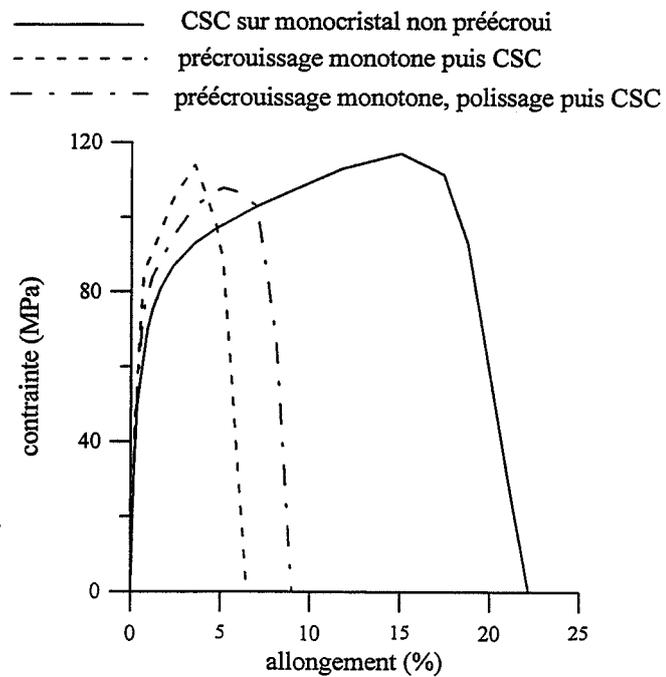


Figure 4.8 : Courbes contrainte allongement des monocristaux d'orientation  $\langle 110 \rangle$  non précrouis ou précrouis en traction.

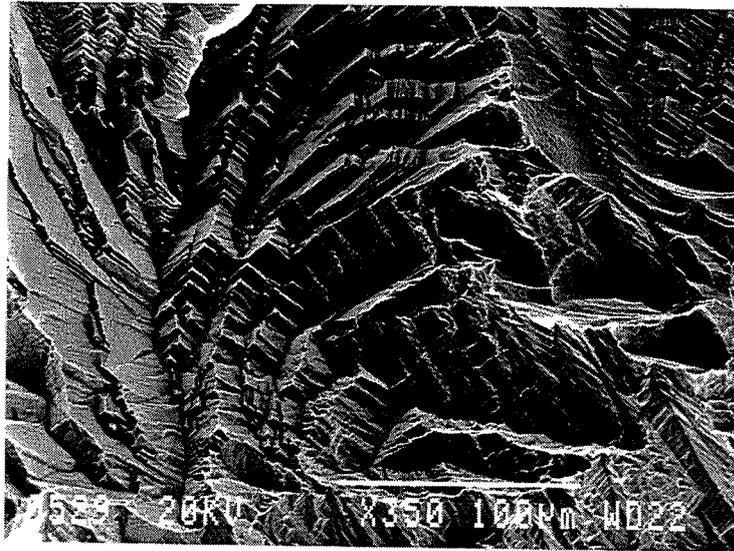


Figure 4.9 : Faciès de rupture du monocristal d'orientation  $\langle 110 \rangle$  préécroui en traction, poli puis sollicité en CSC.

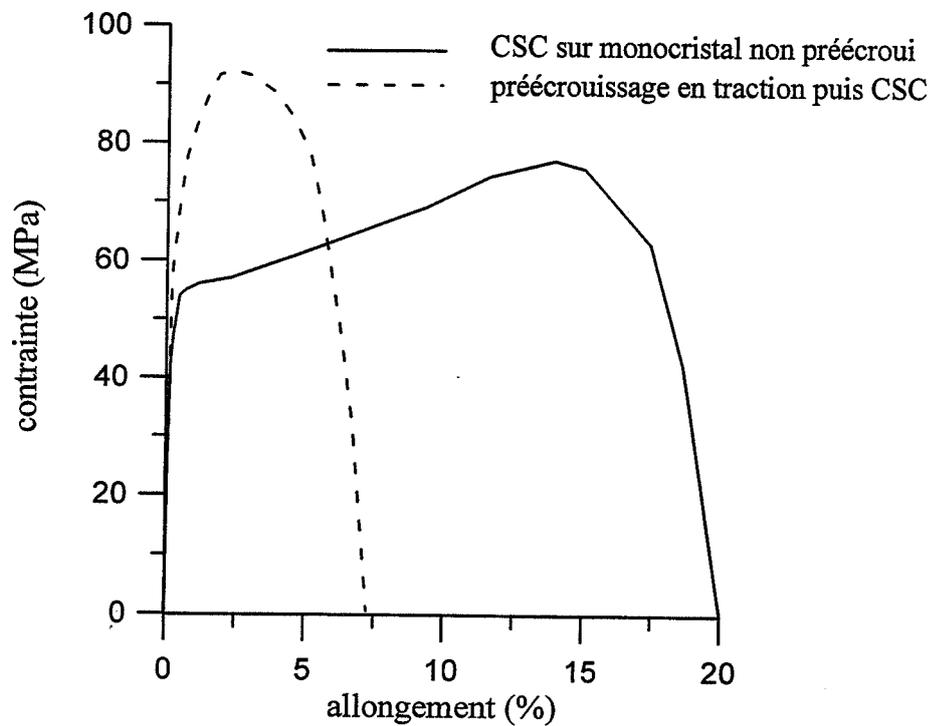


Figure 4.10 : Courbe contrainte allongement des monocristaux d'orientation  $\langle 149 \rangle$  non préécroui ou préécroui en traction.

Au centre de l'éprouvette, le faciès de rupture n'est plus aussi fragile car la direction macroscopique de fissuration peut localement varier. On retrouve alors les plans de glissement qui sont impliqués dans la rupture : ils sont disposés en alternance et la direction locale de propagation est de type  $\langle 112 \rangle$  (figure 4.7). Par contre la fissuration qui implique directement les plans  $\{111\}$  est loin d'être majoritaire par rapport à la fissuration de type décohésion.

Cet essai nous montre que le précrouissage monotone, en créant de nombreuses lignes de glissement en surface, accélère l'amorçage des fissures. De plus il conditionne le mode de fissuration, car l'amorçage à l'intersection des lignes de glissement impose la direction de propagation. Aussi, il nous a paru intéressant de procéder à un polissage de l'éprouvette entre la traction préalable et la CSC pour éliminer ces sites d'amorces de fissures.

Le résultat de cet essai est donné à la figure 4.8. Nous avons tenu compte pour le calcul des contraintes des monocristaux précrouis de la diminution de section due à la corrosion en considérant que l'on avait une dissolution continue au cours de l'essai. Cet essai confirme que les lignes de glissement dues au précrouissage en traction accélère l'amorçage des fissures. En effet, quand on poli les monocristaux précrouis en traction, les fissures s'amorcent au même moment que sur les monocristaux non précrouis, c'est à dire dès le début de la plasticité.

De plus le précrouissage monotone favorise l'amorçage sur les faces  $(1\bar{1}0)$ , que l'échantillon soit poli après traction ou non. Ceci conditionne le mode de propagation et implique une fissuration de type fragile comme le confirme la figure 4.9. Enfin le précrouissage monotone accélère la propagation des fissures : le monocristal précroui en traction et poli a une durée de vie plus faible que le monocristal non précroui alors que l'amorçage des fissures a lieu au même moment pour ces deux essais.

Cet essai nous permet également de conclure que l'augmentation du taux de dissolution anodique est lié au taux de déformation et pas uniquement aux irrégularités de surface que constituent les lignes de glissement, car on retrouve des traces intenses de dissolution sur le faciès de rupture. La figure 4.9 montre ainsi qu'il est constitué de facettes  $(111)$ ,  $(101)$  et  $(01\bar{1})$  (en haut et à gauche de la photo) ; plus près du bord de l'éprouvette, on distingue une forte dissolution (au milieu et en bas de la photo). Ceci nous permet d'ailleurs de bien faire la différence entre l'aspect du faciès de rupture et la corrosion après rupture : l'apparence de ce faciès est tout à fait identique à ce que l'on observe sur le fût de l'éprouvette.

Cette orientation monocristalline confirme qu'un précrouissage en traction est particulièrement néfaste sur la tenue en CSC. Il accélère l'amorçage des fissures. Ce dernier a lieu préférentiellement à l'intersection des lignes de glissement, ce qui a pour conséquence de conditionner le mode de propagation des fissures. Enfin le précrouissage monotone accélère aussi la propagation en CSC.

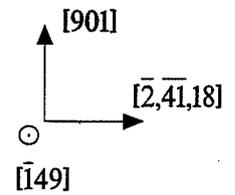
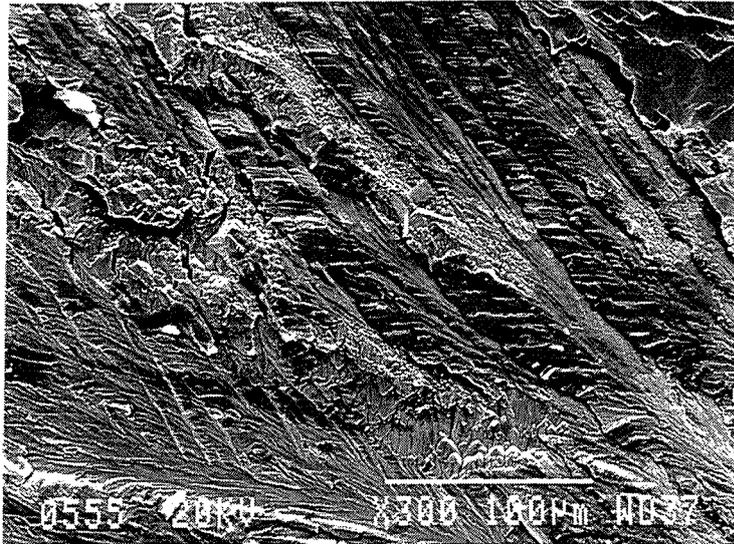


Figure 4.11 : Faciès de rupture du monocrystal d'orientation  $\langle 149 \rangle$  précroui en traction.

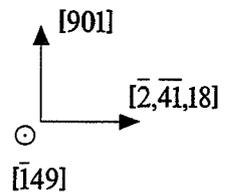
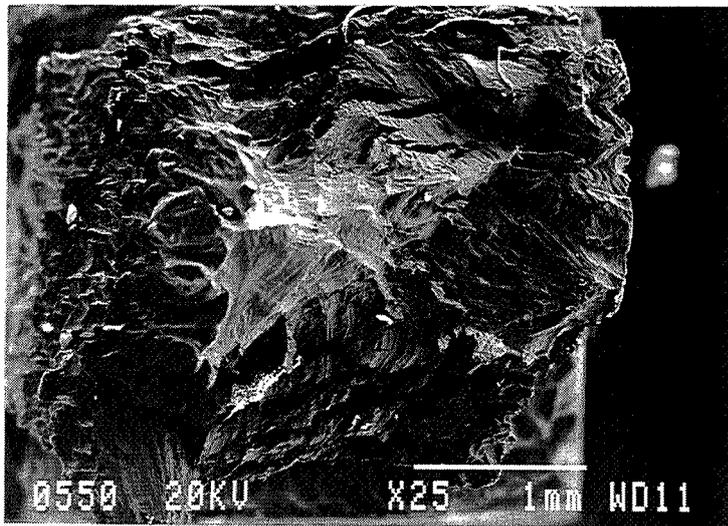


Figure 4.12 : Vue d'ensemble du faciès de rupture du monocrystal d'orientation  $\langle 149 \rangle$  précroui en traction.

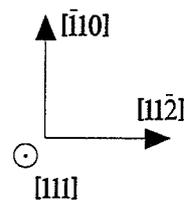
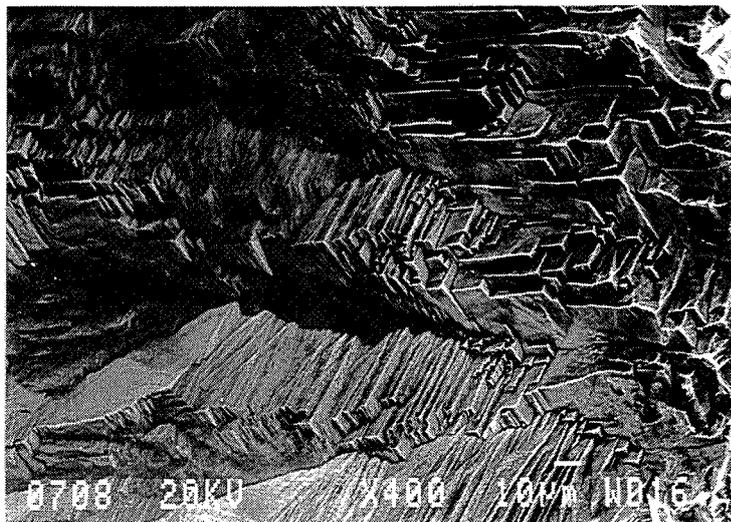


Figure 4.13 : Faciès de rupture du monocrystal d'orientation  $\langle 111 \rangle$  précroui en traction.

### **b - Orientation <149>.**

L'effet néfaste du précrouissage monotone est réaffirmé avec cette orientation (figure 4.10). Pendant les premiers stades de la déformation, pour cette orientation on a du glissement simple sur le système de glissement  $(111)[\bar{1}01]$ , mais rapidement plusieurs systèmes sont activés. Le précrouissage en traction active tout d'abord le glissement sur le système  $(111)[\bar{1}01]$ , puis le deuxième système  $(\bar{1}11)[101]$  est activé. On forme donc des intersections de glissement dans lesquelles l'amorçage des fissures se produit préférentiellement. Mais ici ces intersections peuvent avoir lieu sur les quatre faces du fût de l'éprouvette. La fissure est donc plus libre de se propager dans la direction qu'elle souhaite. Les zones de rupture fragile sont alors moins nombreuses par rapport aux zones où l'on identifie des microfiliers  $\{111\}$  disposés en alternance (figure 4.11). Là encore, la dissolution est très forte, comme en témoigne la vue d'ensemble du faciès de rupture de cette orientation (figure 4.12).

### **c - Orientation <111>.**

Le cas très particulier de cette orientation a été décrit en détails dans le précédent chapitre. Les systèmes de glissement actifs ont un facteur de Schmid faible qui explique que les interactions corrosion-plasticité sont minimisées (les dislocations mobiles subissent ici une contrainte de cisaillement plus faible). La fissuration du monocristal d'orientation <111> est fragile et a lieu sur trois facettes de type  $\{110\}$  car ces facettes subissent une forte contrainte normale. On retrouve exactement le même type de rupture sur le monocristal précroui en traction comme en témoigne la figure 4.13. Bien que le monocristal d'orientation <111> n'ait un allongement à rupture que de 10% en CSC (20% pour les autres orientations) sa durée de vie est encore diminuée par le précrouissage (figure 4.14). Les premières fissures s'amorcent plus tôt qu'en CSC seule. De plus la dissolution est plus forte. Enfin, si l'on estime la contrainte vraie, on voit que pour cette orientation la contrainte critique de rupture est atteinte plus tôt sur l'échantillon écroui et ceci peut expliquer la diminution de durée de vie.

En résumé, un précrouissage en traction est particulièrement néfaste : le gain en niveau de contrainte est insignifiant dans la majorité des cas en CSC et surtout la durée de vie est diminuée d'un facteur au moins égal à deux. L'amorçage des premières microfissures est accéléré et a lieu à l'intersection des lignes de glissement. Celui-ci conditionne le mode de propagation des fissures et l'accélère. Ces résultats confirment ceux obtenus au cours du chapitre 3, en particulier l'existence de deux types de rupture. Ils vont dans le sens du 'corrosion enhanced plasticity model'. L'amorçage est favorisé car le nombre d'intersections de lignes de glissement est augmenté. La propagation est accélérée car la différence de durcissement entre les deux zones qui sont proches du fond de fissure est renforcée. Dans le cadre du modèle on comprend donc bien que l'obstacle ainsi formé est plus fort, ce qui explique que la durée de vie soit diminuée.

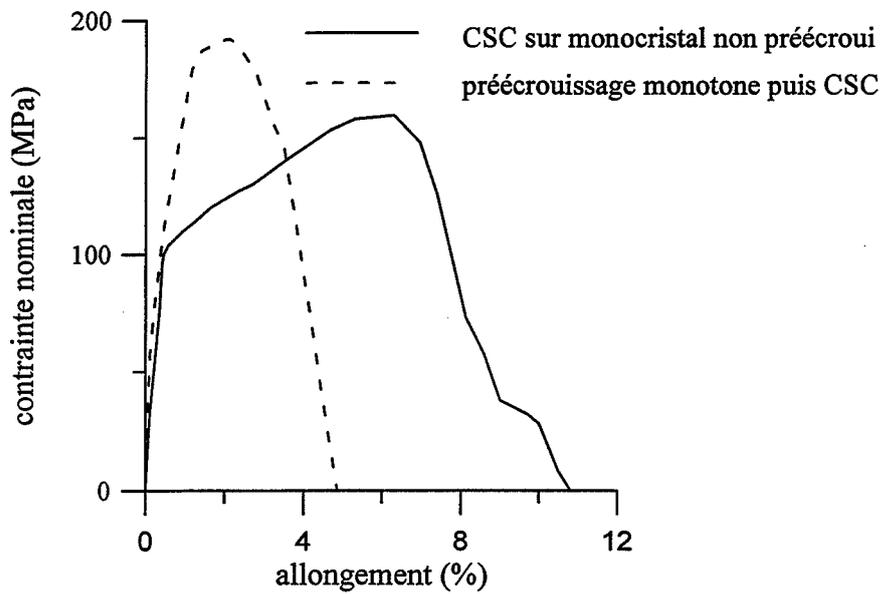


Figure 4.14 : Courbe contrainte allongement des monocristaux d'orientation  $\langle 111 \rangle$  non précroui ou précroui en traction.

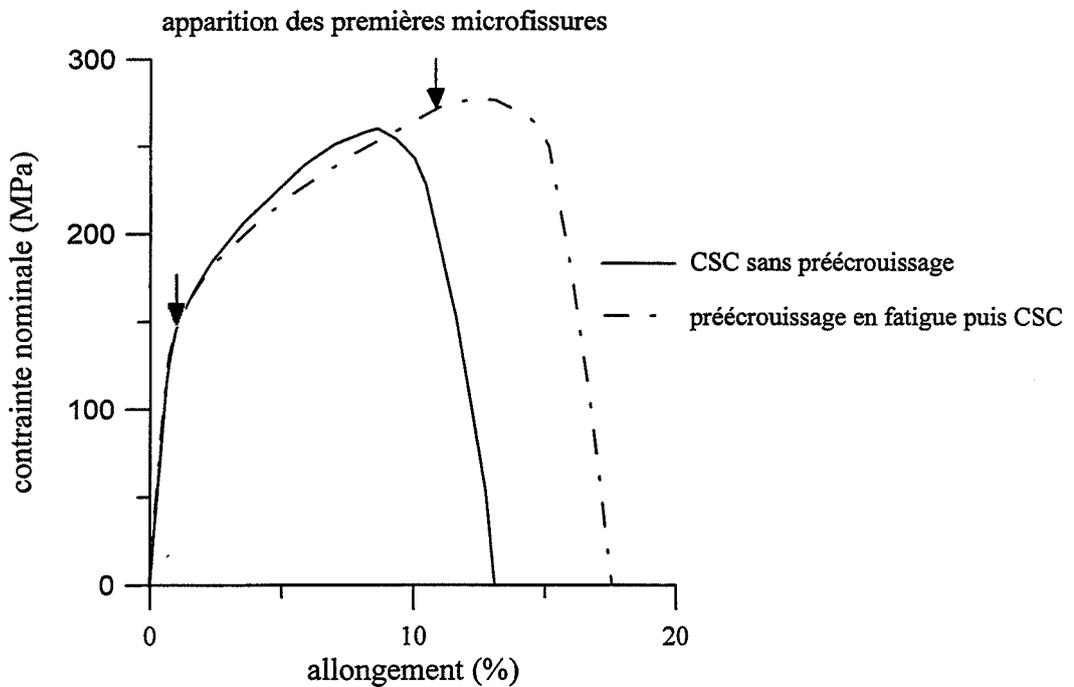


Figure 4.15 : Courbe contrainte allongement du 316L polycristallin non précroui ou précroui en fatigue.

Ainsi pour remédier à ce problème, nous avons pensé à un autre type d'écrouissage plus bénéfique : le précrouissage cyclique. Par cet intermédiaire, nous espérons que les intersections de lignes de glissement seront moins nombreuses et que l'amorçage des premières microfissures sera retardé. De plus en fatigue, la structure de dislocations créée est de basse énergie. On peut donc supposer que l'on minimisera la différence de durcissement entre les deux zones et que l'on gagnera sur la vitesse de propagation des fissures. C'est l'ensemble de ces hypothèses que nous allons vérifier dans le paragraphe suivant.

## **4.2 - Précrouissage cyclique.**

Au cours des premiers cycles de fatigue oligocyclique, le 316L subit un durcissement dû à la multiplication des dislocations. Puis on atteint un stade de saturation qui correspond à un équilibre entre l'émission de dislocations mobiles et l'annihilation de dislocations de signe opposé conduisant à des densités constantes de dislocations vis et coins. Cet état de saturation correspond à une contrainte constante et à un arrangement de dislocations stable. Nous avons donc cherché à l'atteindre par le biais d'un précrouissage en fatigue à déformation plastique imposée réalisé dans les conditions suivantes : 50 cycles à  $\Delta\varepsilon_p/2 = 10^{-3}$ ,  $\dot{\varepsilon} = 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ . La déformation plastique cumulée ainsi obtenue ( $\varepsilon_{p\text{cum}} = 0,2$ ) correspond de plus à la déformation plastique en fin d'essai de CSC sur éprouvettes non précrouies. Après cet écrouissage cyclique, chaque éprouvette est testée en CSC dans  $\text{MgCl}_2$  à  $117^\circ\text{C}$  sans être repolie.

### **4.2.1 - Résultats obtenus sur polycristaux.**

#### **a - acier inoxydable austénitique de type 316L.**

Le résultat de CSC sur polycristal après écrouissage cyclique est donné à la figure 4.15. On obtient avec ce type d'essai un gain en durée de vie puisque celle-ci est multipliée par un facteur 1,5 par rapport aux échantillons non précrouis et par un facteur 3 par rapport aux échantillons précrouis en traction. Cet effet bénéfique a été confirmé sur plusieurs échantillons. Par ailleurs, la limite d'élasticité est légèrement supérieure à celle obtenue en CSC sur polycristaux non précrouis car cet acier subit un durcissement en fatigue. Par contre quand on est dans le domaine plastique, le coefficient de durcissement est plus faible après écrouissage cyclique. On peut souligner que la contrainte d'amorçage passe de 150 MPa à plus de 250 MPa et les premières microfissures s'amorcent plus tard. En effet un examen visuel de l'éprouvette en cours d'essai indique que les premières microfissures se forment seulement après 12% d'allongement pour les polycristaux précrouis en fatigue alors qu'elles se forment dès le début de la plasticité sur les polycristaux non précrouis. Ceci est en accord avec le fait que la solution de chlorure de magnésium reste très longtemps transparente. De plus, le potentiel libre en début d'essai se stabilise vers -430 mV et remonte vers des valeurs

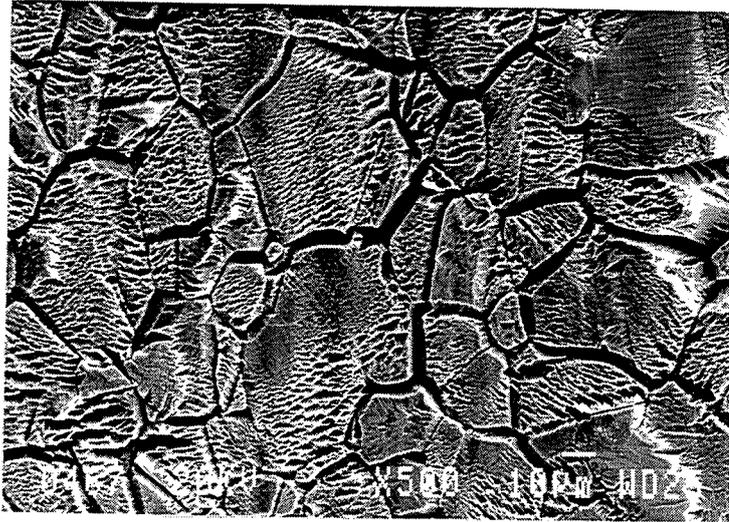


Figure 4.16 : Fût du 316L polycristallin précroui en fatigue.

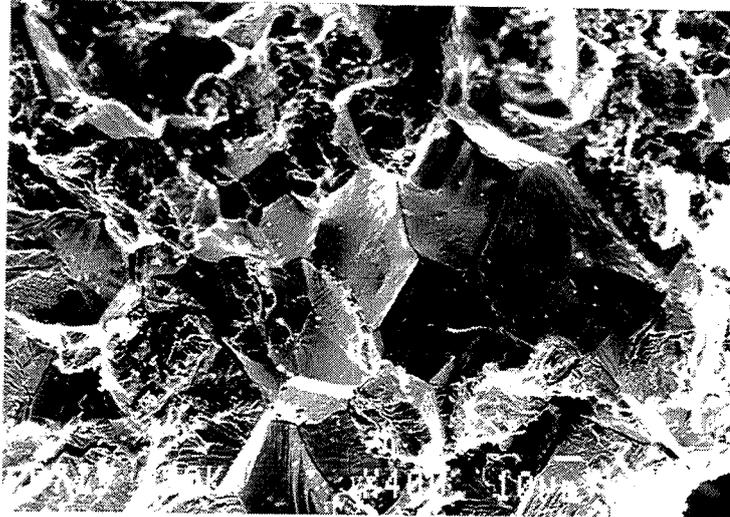


Figure 4.17 : Faciès de rupture du 316L polycristallin précroui en fatigue.

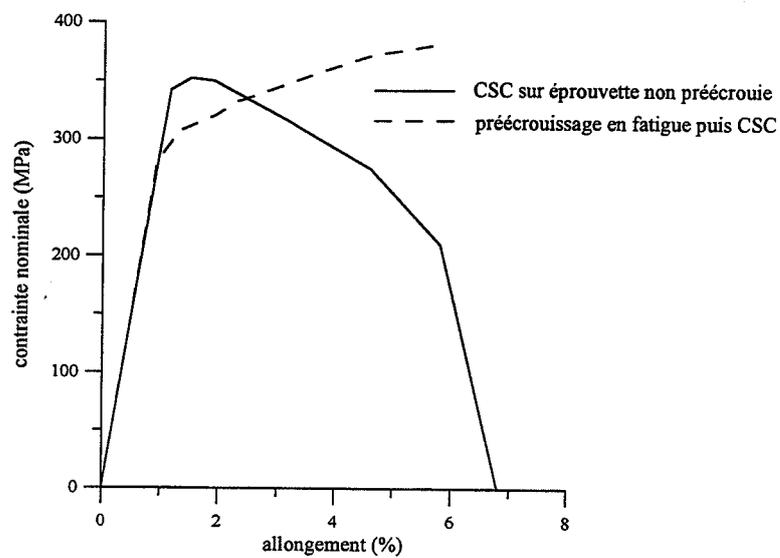


Figure 4.18 : Courbe contrainte allongement de l'Uranus B66 avec ou sans précrouissage cyclique (testé dans  $MgCl_2$  à  $153^\circ C$  à potentiel libre).

plus anodiques ( $\sim -340$  mV) quand on observe les premières microfissures (nous en reparlerons plus loin).

En ce qui concerne le fût de l'éprouvette en fin d'essai, il semble que l'on ait une attaque préférentielle des joints de grains (figure 4.16). Cependant nous n'avons pas observé d'amorçage intergranulaire sur le faciès de rupture. Celui-ci est quasiment identique à ceux obtenus en CSC seule et après écrouissage monotone. La proportion de faciès intergranulaire est cependant un peu plus importante (figure 4.17) et s'explique certainement par les niveaux de contrainte qui sont plus élevés.

Cet essai est particulièrement encourageant de par les gains en contrainte et en durée de vie que l'on obtient. C'est pourquoi avant de passer à l'étude sur monocristaux, pour mieux comprendre les mécanismes d'endommagement, nous avons souhaité présenter ici les premiers essais réalisés sur un autre acier inoxydable polycristallin : l'Uranus B66.

### **b- Uranus B66.**

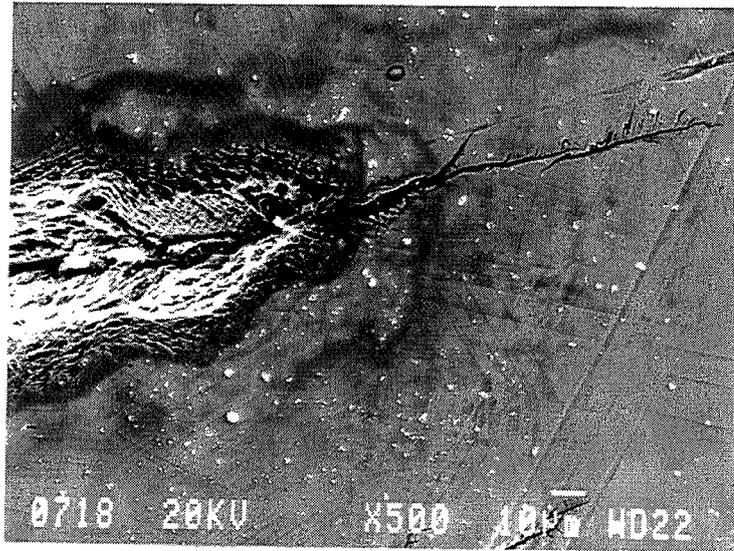
Pour cet alliage également le précrouissage en fatigue est réalisé à déformation plastique imposée :  $\Delta\varepsilon_p/2 = 10^{-3}$  ( $\dot{\varepsilon} = 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ ) jusqu'à saturation. Par contre le comportement de l'Uranus B66 en fatigue est différent de celui du 316L. On atteint la saturation beaucoup plus tard : 1100 cycles et après un adoucissement en contrainte.

Après écrouissage en fatigue jusqu'à saturation, l'éprouvette d'Uranus B66 est testée dans  $\text{MgCl}_2$  à  $153^\circ\text{C}$  ( $\dot{\varepsilon} = 10^{-6} \text{ s}^{-1}$ ), c'est à dire le même milieu que l'essai sans précrouissage. Pour des problèmes techniques nous avons été obligé d'interrompre l'essai bien avant la rupture. Les résultats sont donnés à la figure 4.18. Comme le précrouissage cyclique induit un adoucissement, il est normal que la limite d'élasticité de l'essai après fatigue soit plus faible que celle de CSC sans précrouissage. Mais pour cet alliage également, le précrouissage en fatigue est bénéfique. En effet, pour le même pourcentage d'allongement ( $\sim 7\%$ ) les éprouvettes non précrouies sont rompues alors que l'Uranus B66 précroui en fatigue présente des fissures qui ne semblent pas encore s'être propagées en volume.

L'effet bénéfique pour cet alliage est moins marqué que pour le 316L. A 6 % d'allongement, l'Uranus B66 précroui en fatigue présente de nombreuses microfissures (figure 4.19b). Il semble cependant que l'endommagement soit plus localisé sur l'Uranus B66 non précroui : les fissures sont moins nombreuses mais plus importantes (figure 4.19a).

Pour cet alliage également le précrouissage cyclique est globalement bénéfique puisqu'on obtient un gain en contrainte et en durée de vie. Cependant des essais complémentaires seraient utiles pour confirmer cet aspect positif. Aussi nous avons entrepris le même type d'étude sur monocristaux pour mieux comprendre les raisons de ces améliorations.

(a)



(b)

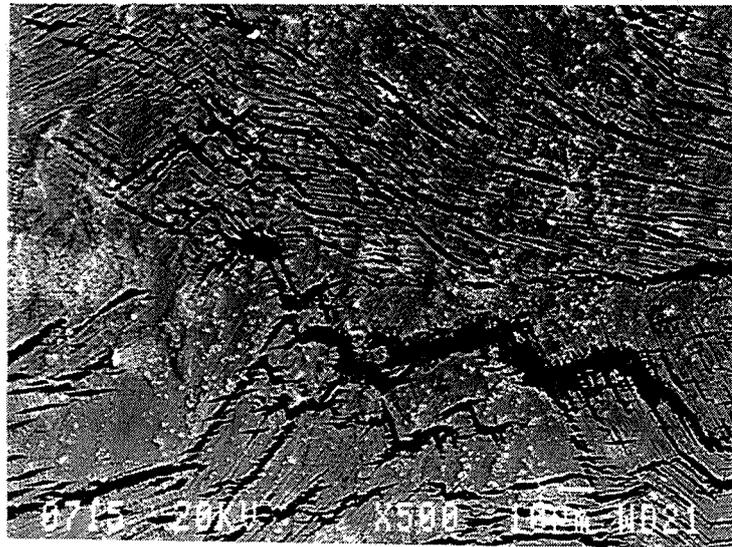


Figure 4.19 : Fût de l'Uranus B66 après CSC.  
(a) éprouvette non précrouie ; (b) éprouvette précrouie en fatigue.

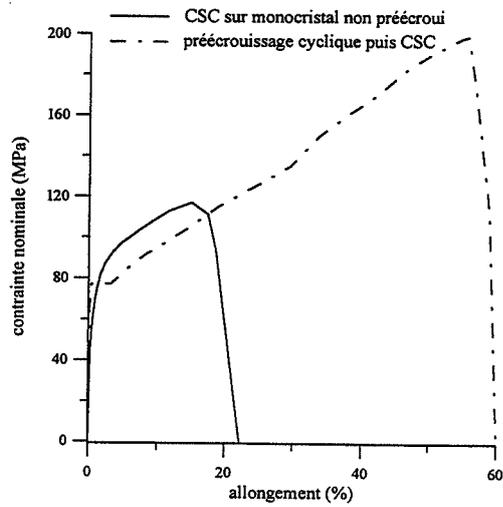


Figure 4.20 : Courbe contrainte allongement des monocristaux d'orientation  $\langle 110 \rangle$  non précroui ou précroui en fatigue.

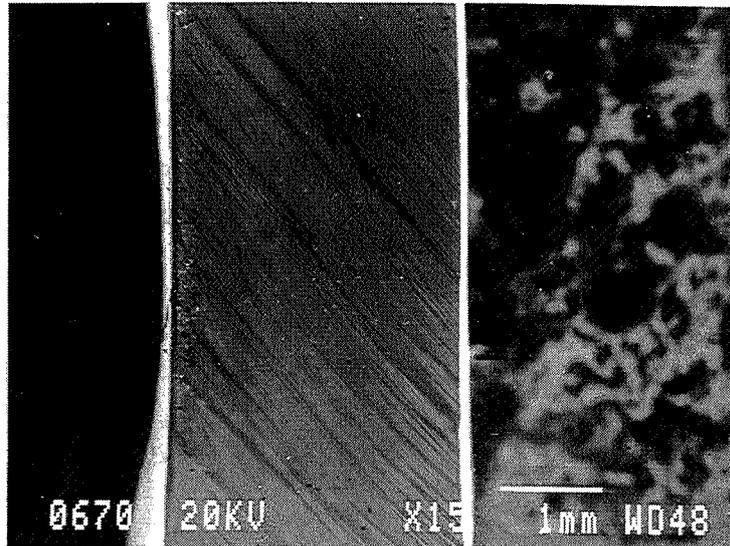


Figure 4.21 : Fût du monocristal d'orientation  $\langle 110 \rangle$  précroui en fatigue après CSC.

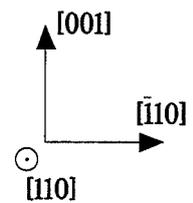
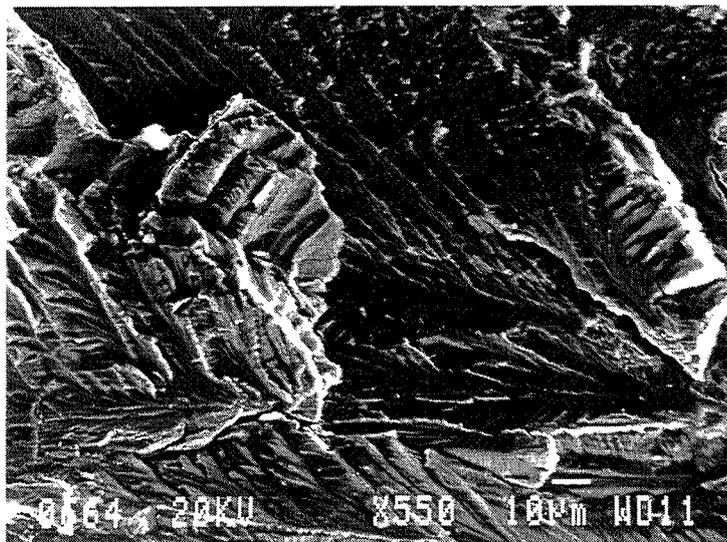


Figure 4.22 : Faciès de rupture du monocristal d'orientation  $\langle 110 \rangle$  après CSC et écouissage cyclique.

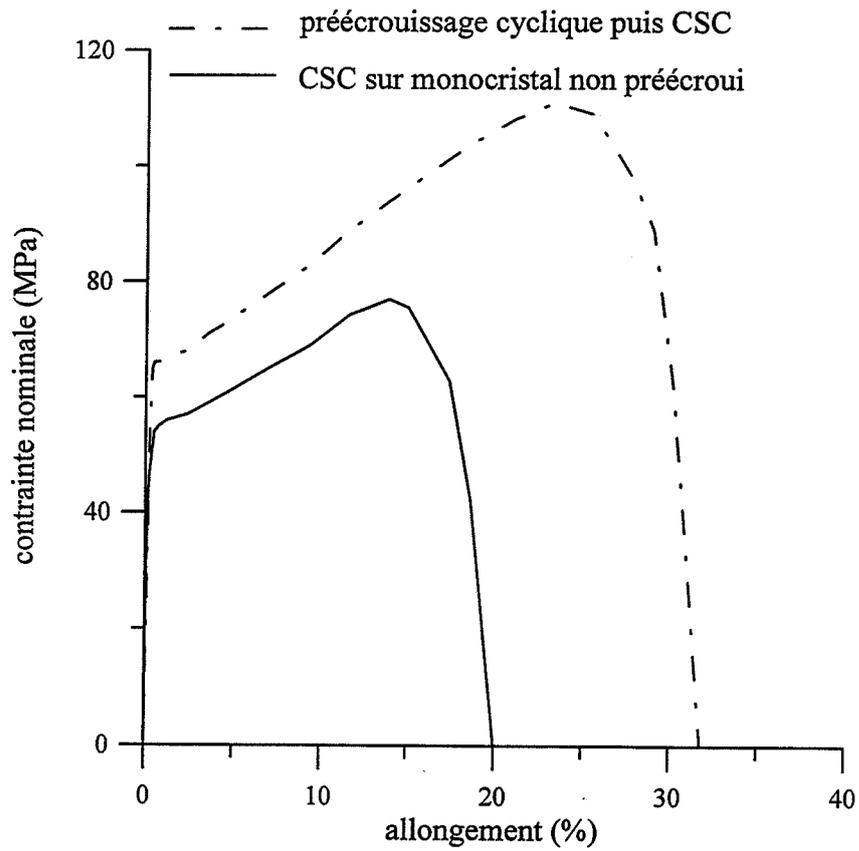


Figure 4.23 : Courbe contrainte allongement des monocristaux d'orientation  $\langle 149 \rangle$  non précroui ou précroui en fatigue..

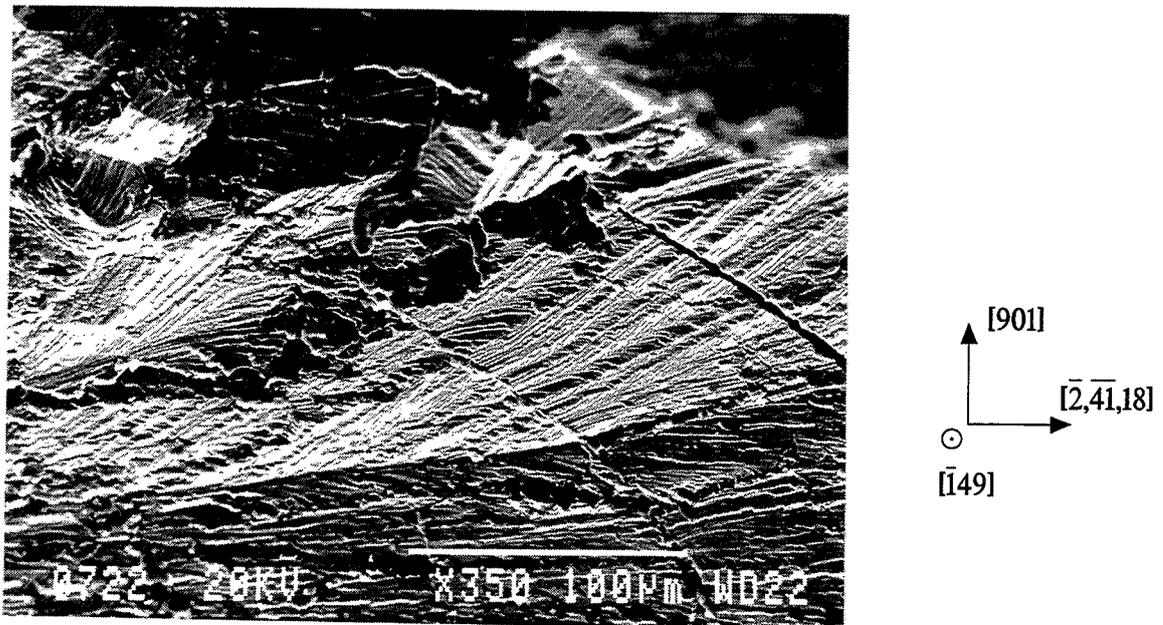


Figure 4.24 : Faciès de rupture du monocristal d'orientation  $\langle 149 \rangle$  précroui en fatigue. Détails des microfacettes  $\{111\}$ .

## **4.2.2 - Résultats obtenus sur monocristaux.**

### **a - Orientation <110>.**

L'aspect bénéfique du précrouissage cyclique est particulièrement marqué pour cette orientation puisque la durée de vie par rapport aux monocristaux non précrouis est multipliée par 3 (figure 4.20). Nous avons vu que cette orientation est très intéressante à tester, de par la position des plans de glissement par rapport à l'axe de traction et aux faces de l'éprouvette. Les quatre systèmes de glissement actifs sont disposés de façon totalement symétrique par rapport à l'axe de traction. Pourtant le précrouissage en fatigue n'induit l'activation du glissement que d'un seul plan {111} (en fatigue on active moins rapidement le glissement multiple). La première conséquence est donc, qu'avec ce type d'écrouissage, on ne favorise pas l'intersection des lignes de glissement et donc l'amorçage préférentiel sur les faces  $(1\bar{1}0)$ . Parallèlement les traces de dissolution sont quasiment inexistantes comme en témoigne la figure 4.21.

De plus pendant tout l'essai de CSC, il semble que la déformation plastique soit accommodée par le glissement sur un seul plan (figure 4.21). La rupture intervient suite à la propagation d'une seule fissure, alors qu'en CSC sur éprouvette non précrouie on a toujours observé de la multifissuration. Cette différence s'explique par le peu d'amorces de fissures créés lors de l'essai de CSC après le précrouissage cyclique.

Le faciès de rupture est identique à celui observé sur éprouvettes non précrouies, c'est à dire que les plans de glissement sont impliqués dans la fissuration (figure 4.22). Bien que la fissure se soit amorcée sur la face  $(1\bar{1}0)$  et donc propagée dans la direction macroscopique  $[001]$ , la rupture n'est pas d'aspect fragile. Elle implique directement les plans de glissement et les directions locales de propagation sont de type  $\langle 111 \rangle$  quand on se situe proche de la zone d'amorçage. Puis la fissure dévie et adopte des directions locales de propagation de type  $\langle 112 \rangle$ . La vérification rigoureuse des directions cristallographiques à l'aide de notre méthode d'identification est cependant impossible ici : l'allongement à rupture est tel que la rotation cristalline ne peut pas être négligée et que les repères cristallographiques sont faussés.

### **b - Orientation <149>.**

Comme on pouvait s'y attendre, pour cette orientation également, la fatigue active préférentiellement un seul système de glissement et ceci reste vrai pendant l'essai de CSC. Le gain en durée de vie est supérieur à 1,5 par rapport aux monocristaux non précrouis (figure 4.23). Il est de 4,5 par rapport aux monocristaux précrouis en traction. Les niveaux de contrainte sont ici encore fortement augmentés par rapport à la CSC sans précrouissage.

Il n'y a pas de différence significative entre les faciès de rupture des monocristaux non précrouis ou précrouis en fatigue (figure 4.24). La direction macroscopique de propagation est le résultat de directions locales de type  $\langle 112 \rangle$  et on identifie des microfacettes de type

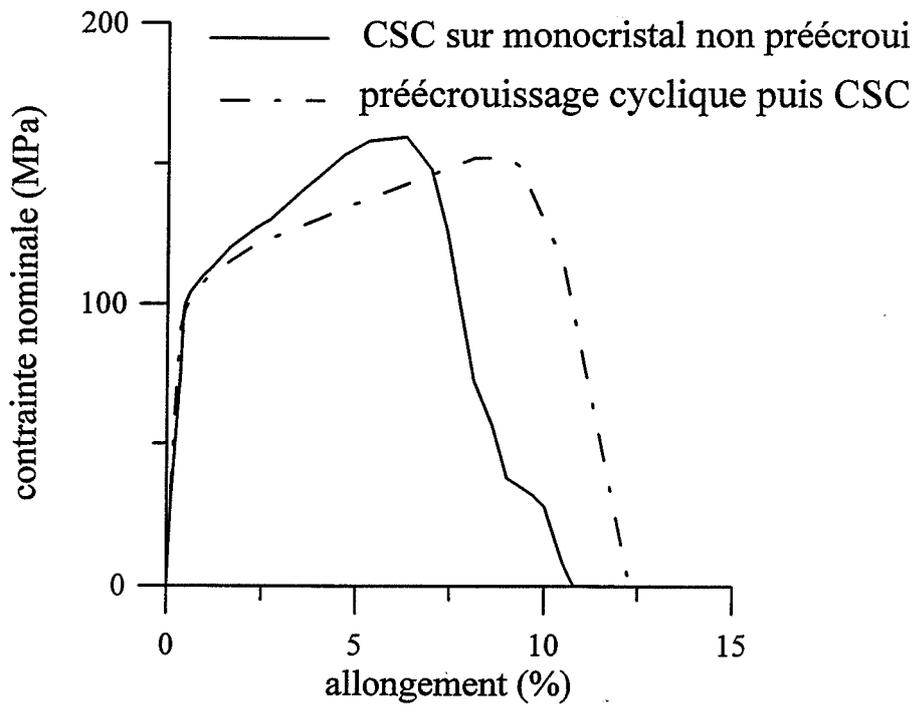


Figure 4.25 : Courbe contrainte allongement du monocristal d'orientation  $\langle 111 \rangle$  avec ou sans écrouissage cyclique préalable.

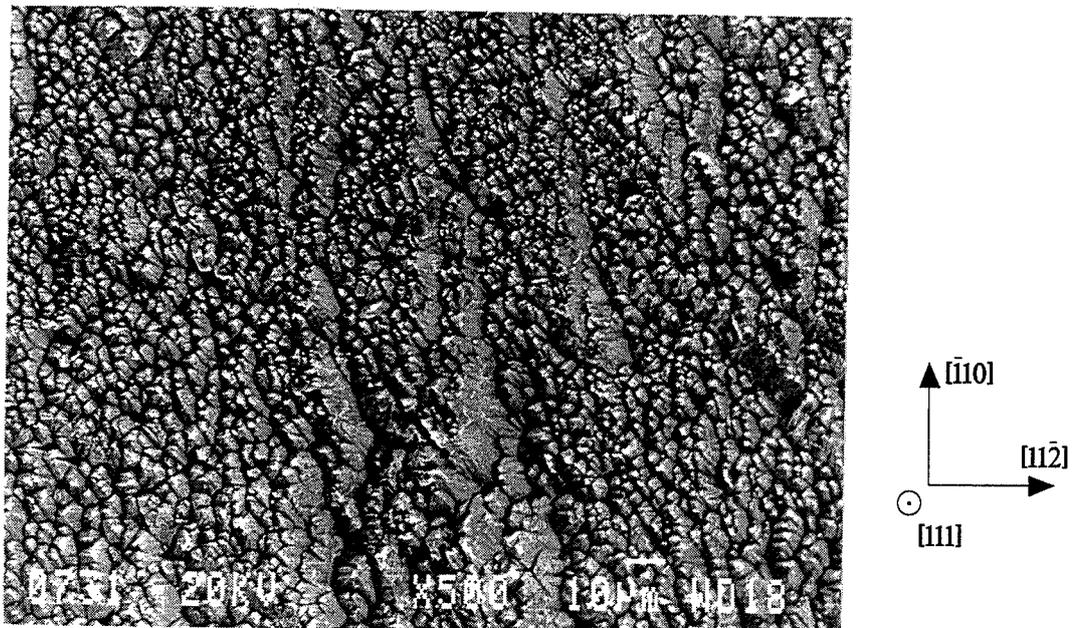


Figure 4.26 : Monocristal d'orientation  $\langle 111 \rangle$  préécroui en fatigue après CSC.

{111}. Cependant, contrairement à la CSC sur monocristaux non précrouis, nous n'avons pas observé de facettes de rupture de type {110}, quelle que soit la zone de fissuration analysée.

#### **c - Orientation <111>.**

L'orientation <111> vient confirmer l'effet bénéfique du précrouissage cyclique (figure 4.25). Le gain en durée de vie pour cette orientation est cependant moins marqué. Les premières microfissures se forment plus tard et ceci est lié à une évolution particulière du potentiel libre. Pour les monocristaux précrouis en traction ou non précrouis, le potentiel libre se stabilise aux environs de -330 mV. Pour le monocristal précroui en fatigue, on observe un long maintien du potentiel libre vers des valeurs d'environ -390 mV. Les premières microfissures n'apparaissent que lorsqu'il remonte vers des valeurs plus anodiques.

La propagation des fissures est plus difficile à interpréter. Le faciès de rupture se caractérise par de larges facettes qui semblent planes. A plus fort grossissement on découvre un relief important composé de nombreuses aspérités (figure 4.26). On devine en fait des arêtes qui pourraient correspondre aux directions <111> et donc définir des facettes de type {110} mais il est impossible d'être affirmatif sur ce point. En résumé, il semble que le mode de rupture soit identique à celui des essais précédents mais les traces de fragilité sont moins marquées.

Enfin on note que, comme dans le cas des polycristaux, le coefficient de durcissement pour l'essai après écrouissage en fatigue est plus faible qu'en CSC sur monocristaux non précrouis.

#### **d - Orientation <100>.**

Cette orientation ne nous donne pas beaucoup plus de renseignements que ce qui a déjà été souligné. Une fois de plus on observe un gain en durée de vie et en contrainte, grâce au précrouissage cyclique (figure 4.27). Le faciès de rupture est difficile à interpréter car il est fortement oxydé. On devine des directions locales de propagation de type <112> (figure 4.28) mais le faciès est beaucoup moins net qu'en CSC sans précrouissage.

Au travers de ces résultats il apparaît que les précrouissages monotone et cyclique conduisent à des résultats qui sont en opposition en ce qui concerne la durée de vie et les taux de dissolution anodique. Tous deux conditionnent fortement le mode d'amorçage des fissures. Leurs conséquences sur la propagation est moins nette. Le prochain paragraphe est destiné à analyser ces deux aspects de la fissuration.

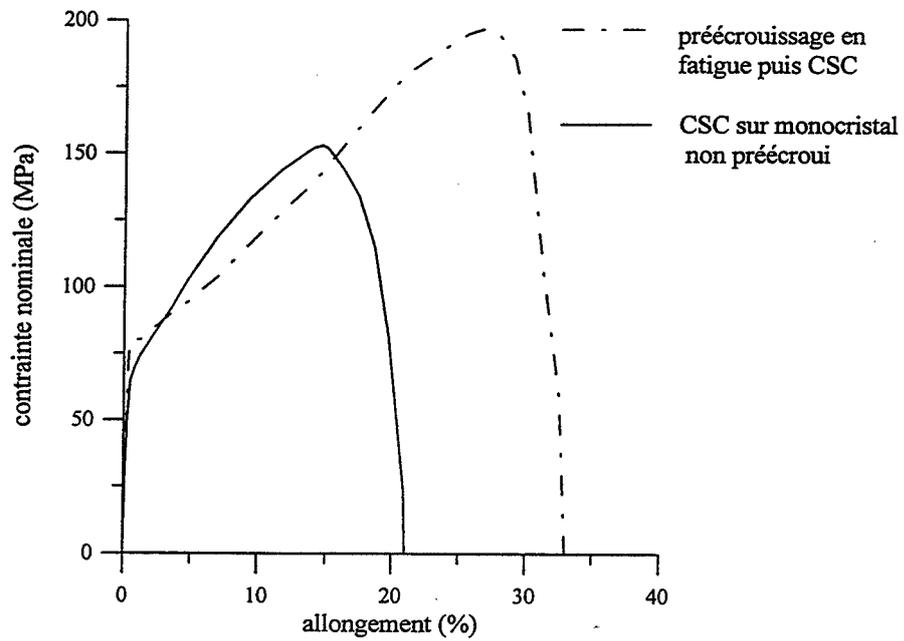


Figure 4.27 : Courbe contrainte allongement du monocristal d'orientation  $\langle 100 \rangle$  avec ou sans écrouissage cyclique préalable.

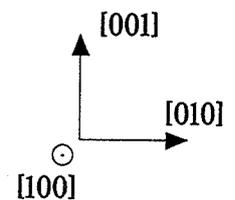
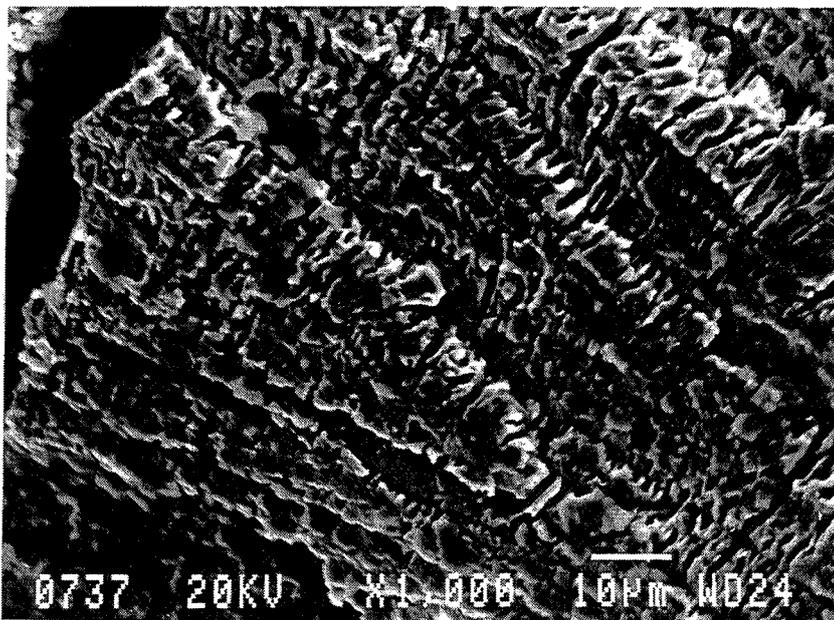


Figure 4.28 : Faciès de rupture du monocristal d'orientation  $\langle 100 \rangle$  après CSC et écrouissage cyclique.

### **4.3 - Discussion.**

Les résultats expérimentaux, obtenus sur polycristaux (316L, Uranus B66) et monocristaux, montrent qu'un précrouissage cyclique constitue une parade vis à vis de la CSC : non seulement la durée de vie est augmentée d'un facteur au minimum égal à 1,5, mais on a également une amélioration des contraintes à rupture, ce qui est très important pour les sollicitations en service. Les premières microfissures s'amorcent plus tard. Cet effet est à relier avec l'évolution du potentiel libre : il se stabilise vers des valeurs plus cathodiques qu'en CSC sur échantillons non précrouis et remonte vers des valeurs plus anodiques quand les premières fissures sont détectées à l'oeil. Cette évolution s'accompagne d'une quasi absence de traces de dissolution. Les résultats des orientations  $\langle 110 \rangle$  et  $\langle 149 \rangle$  suggèrent que la vitesse de propagation des fissures est également ralentie car un simple retard de l'amorçage des fissures ne permettrait pas d'expliquer le gain en allongement observé pour ces orientations (figure 4.21 et 4.23).

A l'inverse, nous avons confirmé qu'un précrouissage en traction était néfaste sur la tenue en CSC lors d'essais en traction lente : la durée de vie est au minimum divisée par deux et on n'obtient pas de gain sur les niveaux de contrainte à l'amorçage et à rupture. Les premières fissures sur éprouvettes précrouies en traction s'amorcent très tôt, avant même la mise en charge de l'éprouvette et cet amorçage se produit préférentiellement à l'intersection des lignes de glissement. Il faut également souligner que les essais sur échantillons précrouis en traction s'accompagnent toujours de très fortes conditions de dissolution que l'on observe au niveau des fûts des éprouvettes, ainsi que sur les faciès de rupture.

Enfin les résultats fractographiques sur échantillons précrouis (en traction ou en fatigue) confirment l'existence de deux grands types de rupture. Le précrouissage en traction favorise la rupture de type fragile. En effet l'amorçage préférentiel à l'intersection des lignes de glissement force le sens de propagation à être tel que le fond de fissure n'est pas contenu dans les plans de glissement, ce qui induit une fissuration fragile.

Nous allons maintenant discuter de l'ensemble de ces résultats en traitant en parallèle les deux types de précrouissage. Nous commencerons par l'amorçage des fissures car les différences entre les deux types d'écrouissage sont très marquées. Nous analyserons l'état de surface dû aux précrouissages et montrerons qu'il est à corréliser à l'évolution du potentiel libre.

La propagation des fissures sera ensuite traitée. Nous montrerons que l'augmentation du taux de dissolution dans le cas d'un précrouissage en traction peut être expliqué par l'intensification des interactions corrosion-plasticité. Pour ce même précrouissage, l'éventualité d'une transformation martensitique sera envisagée. Enfin en nous basant sur les structures de dislocations induites par les deux types de précrouissage, nous confronterons l'idée de l'obstacle mobile aux résultats expérimentaux.

*polycristal*

*monocristal*

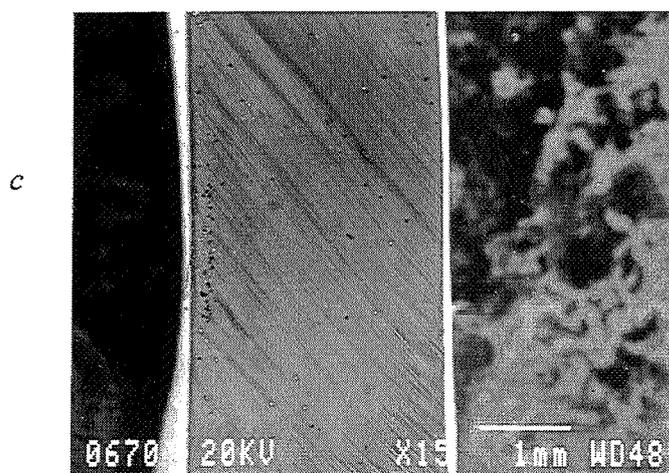
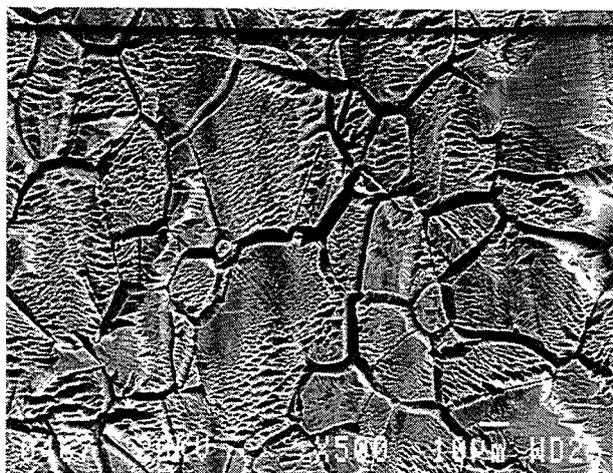
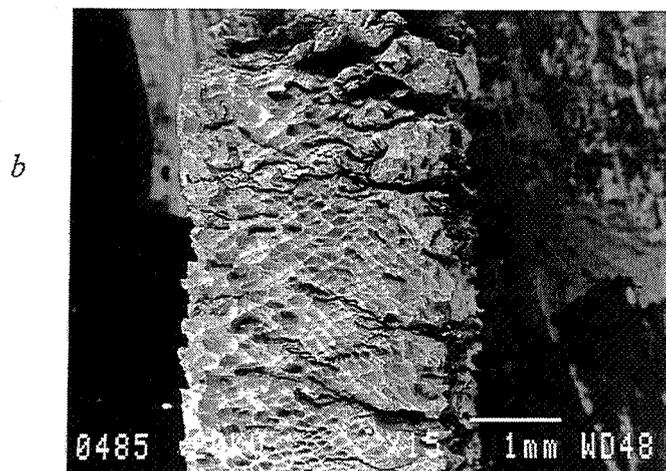
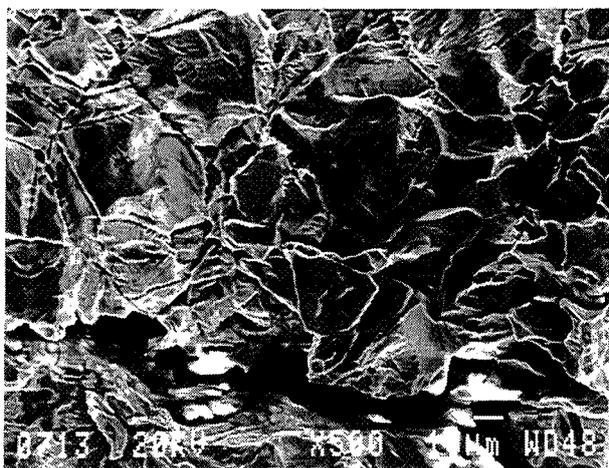
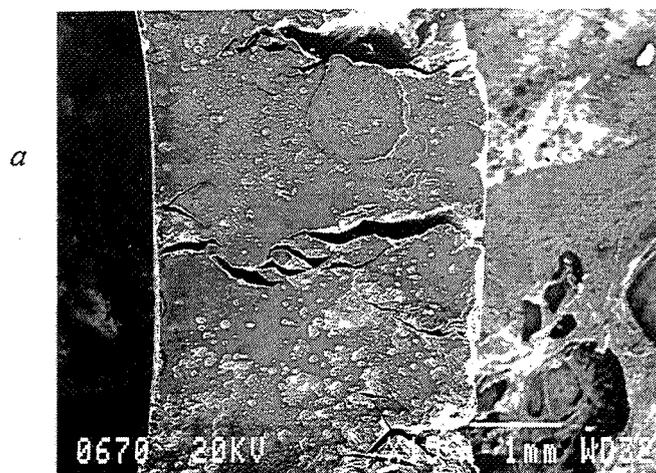
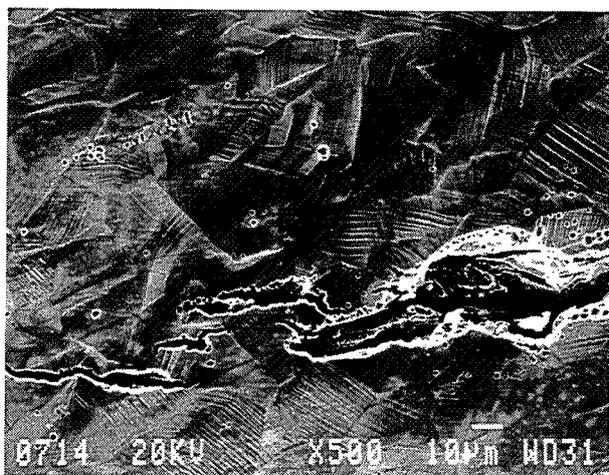


Figure 4.29 : Fûts du 316L polycristallin et monocristallin (orientation  $\langle 110 \rangle$ ) après les essais de : (a) CSC ; (b) écouissage monotone puis CSC ; (c) écouissage cyclique puis CSC

### **4.3.1. - Amorçage des fissures.**

Dans ce paragraphe, nous allons voir que les précrouissages monotones et cycliques influent sur les conditions d'amorçage des fissures de CSC. Ceci se traduit par une évolution particulière du potentiel libre au cours des essais de CSC. Celle-ci s'explique par l'analyse de l'état de surface qu'induisent les deux types de précrouissage.

Nous avons vu que les conditions de dissolution étaient très différentes suivant que l'on considère les échantillons non précrouis, précrouis en traction ou précrouis en fatigue. Il suffit pour s'en convaincre de comparer le fût des éprouvettes après chacun de ces essais (figure 4.29). On voit que les échantillons non précrouis ou précrouis en traction se caractérisent par une dissolution extrêmement localisée. On peut par exemple noter la présence de piqûres sur le fût (figure 4.29a). La dissolution localisée se double dans le cas du précrouissage en traction d'une forte corrosion quasiment généralisée. A l'inverse, les traces de dissolution sont fortement atténuées sur les éprouvettes précrouies en fatigue.

Pour mieux comprendre ces différences, il est particulièrement intéressant de considérer l'évolution du potentiel libre au cours des essais (figure 4.30). Nous n'avons représenté que l'évolution du potentiel libre des polycristaux, car celle-ci est représentative de ce que l'on observe sur monocristaux.

Le potentiel libre des éprouvettes non précrouies ou précrouies en traction évolue vers des valeurs quasiment identiques, c'est à dire qu'il est compris entre -350 et -320 mV/ECS. On peut cependant noter que le potentiel des polycristaux précrouis en traction est plus anodique que celui des échantillons non précrouis. En ce qui concerne les polycristaux précrouis en fatigue, la valeur de départ du potentiel est identique aux deux autres essais puis il se stabilise à une valeur plus cathodique. On observe ensuite qu'il remonte vers des mesures équivalentes à celles des deux autres types d'essais. Cette augmentation du potentiel coïncide avec l'apparition des premières fissures de CSC.

Avant d'interpréter ces résultats, il est particulièrement intéressant d'analyser, sur monocristaux, l'état de surface qu'induisent les deux types de précrouissage. En effet cette étude nous permettra de mieux comprendre l'évolution du potentiel libre. La figure 4.31 représente les fûts de monocristaux d'orientation  $\langle 100 \rangle$ , l'un après écrouissage en traction jusqu'à 5% d'allongement, l'autre après écrouissage en fatigue à  $\Delta \varepsilon_p / 2 = 10^{-3}$  jusqu'à  $\varepsilon_{pcum} = 0.2$ .

Le précrouissage monotone permet l'activation de plusieurs systèmes de glissement (figure 4.31a). Les intersections entre lignes de glissement sont donc nombreuses et elles constituent des sites privilégiés d'amorçage des fissures de CSC. Les lignes de glissement sont regroupées en bandes de glissement dont la hauteur est importante (mais nous ne l'avons pas quantifiée). Ceci explique qu'à l'intersection des bandes de glissement, on a une forte densité

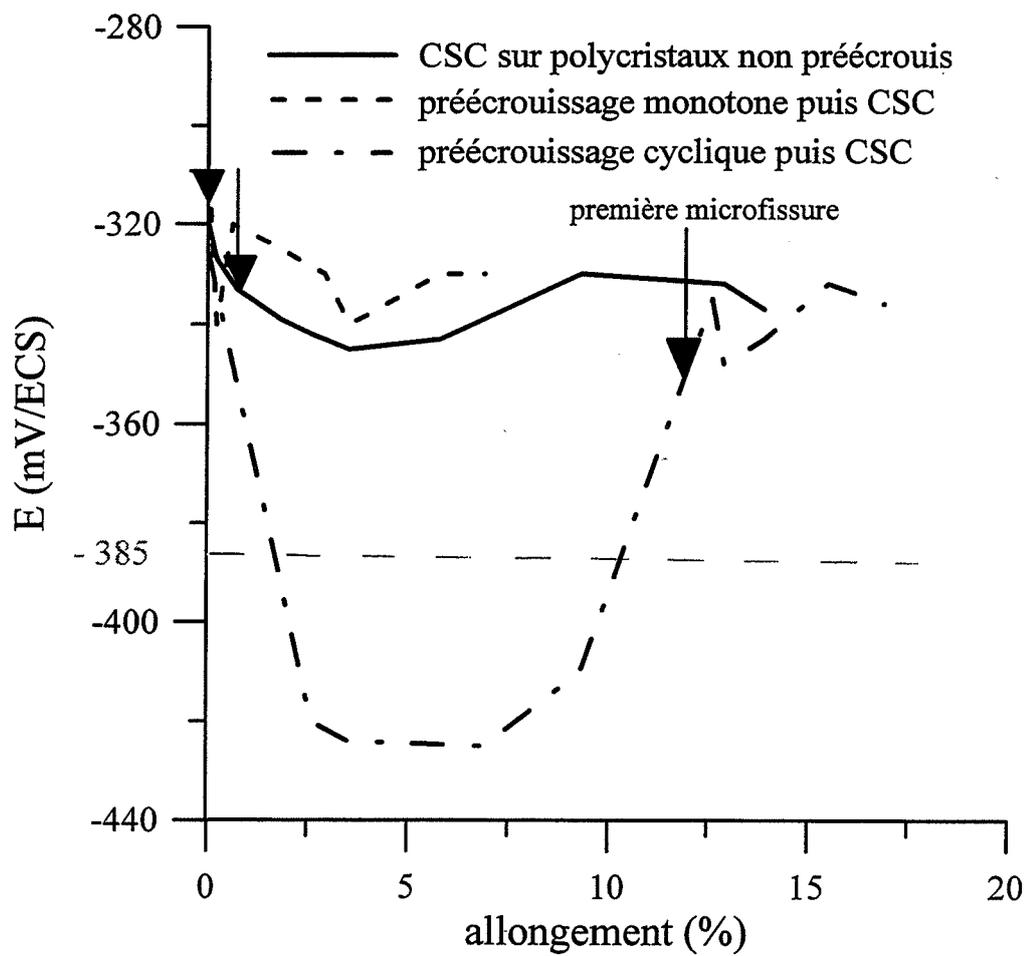
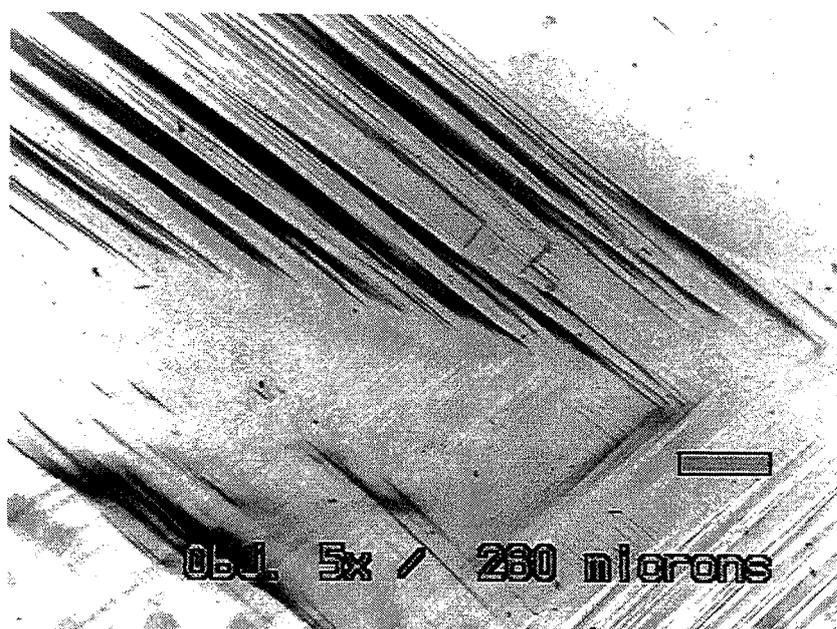


Figure 4.30 : Evolution du potentiel libre sur polycristaux au cours d'essais de CSC.

(a)



(b)

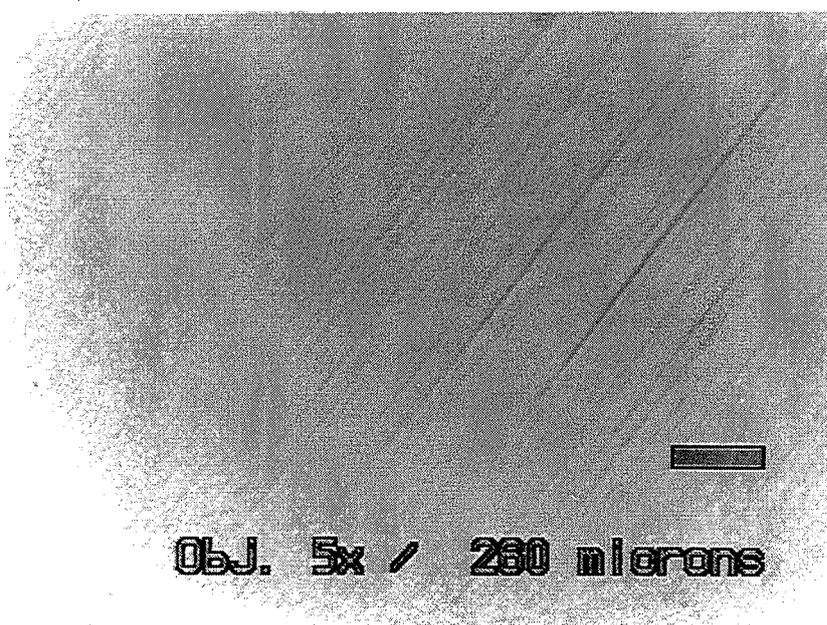
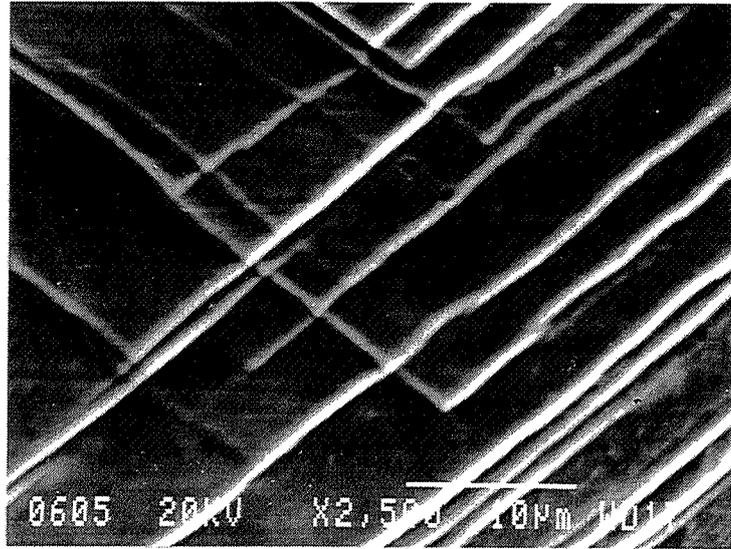
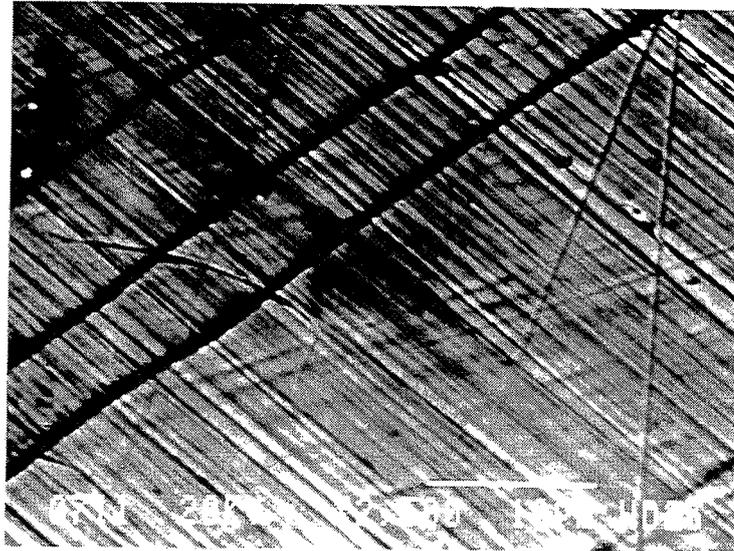


Figure 4.31 : Fût du 316L monocristallin (orientation  $\langle 100 \rangle$ ) après écouissage : (a) monotone ; (b) cyclique..

a



b



c

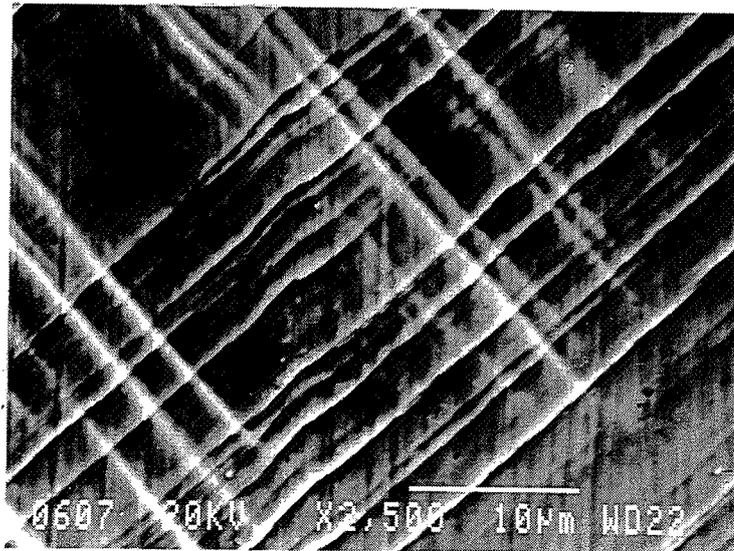


Figure 4.32 : Fût du 316L monocristallin (orientation  $\langle 100 \rangle$ ) :  
(a) après traction ; (b) après écouissage cyclique ; (c) après écouissage cyclique et CSC  
jusqu'à 10% d'allongement.

de défauts qui favorise la localisation de la dissolution anodique et implique un amorçage prématuré des premières fissures de CSC.

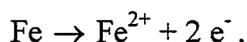
A l'inverse, au cours de l'écrouissage en fatigue, on active préférentiellement un seul système de glissement (figure 4.31b). En conséquence, les intersections de lignes de glissement sont plus rares. On comprend donc que l'amorçage des fissures ne soit pas favorisé. De plus on voit très bien sur la figure 4.32b que la densité de lignes de glissement est élevée, surtout si on la compare à l'écrouissage monotone (figure 4.32a). On a en fait création d'un réseau très homogène de fines lignes de glissement et la hauteur des marches de glissement semble peu importante. En immergeant cette surface en milieu corrosif, on augmente le nombre d'événements de dépassivation possible mais chacun est peu prononcé. La faible hauteur des marches de glissement ne crée pas une densité de défaut importante, propre à la localisation de la dissolution anodique. Le précrouissage cyclique se traduit donc, dans les matériaux à faible énergie de défaut d'empilement, par une déformation très homogène qui minimise la localisation de la dissolution et retarde l'amorçage des premières microfissures. L'augmentation du nombre d'événements de dépassivation explique que le potentiel se stabilise vers des valeurs plus cathodiques.

Au cours de l'essai de CSC, les lignes de glissement sont de plus en plus nombreuses pour accommoder la déformation plastique. Progressivement, on retrouve un état de surface identique à celui créé par un précrouissage monotone (figure 4.32 a et c). Ceci se traduit alors par une remontée du potentiel vers des valeurs plus anodiques et par l'amorçage des premières microfissures. Cet amorçage est également à lier au fait que le potentiel redevient plus anodique que le potentiel de fissuration des aciers inoxydables austénitiques.

L'existence de ce potentiel critique a été mis en évidence par plusieurs auteurs. D'après Shamakian, il est de -385 mV/ECS pour le 304 sollicité dans  $MgCl_2$  à 120°C [Shamakian 77]. Brauns et Ternès ont trouvé des valeurs identiques (-385 à -395 mV/ECS) dans  $MgCl_2$  à 130°C [Brauns 68]. En ce qui concerne le 316, Russel et Tromans estiment que le potentiel de fissuration est de -350 mV/ECS dans  $MgCl_2$  à 154°C, soit de -380 mV/ECS dans  $MgCl_2$  à 117°C [Russell 79]. Ces mêmes auteurs ont montré que la CSC était stoppée pour des potentiels plus cathodiques que le potentiel de fissuration.

Pour comprendre ce phénomène, il faut savoir que, lié à l'amorçage des fissures on a développement d'un milieu confiné dans lequel se produisent des acidifications locales qui contrôlent le potentiel libre [Hehemann 85]. L'évolution de ce milieu est à rapprocher de celle d'une cavité telle que les piqûres ou les crevasses.

Les surfaces à l'extérieur de la cavité sont souvent passivées et se comportent comme des cathodes. A l'intérieur de la cavité, les surfaces sont actives et jouent le rôle d'anodes :



On a ensuite hydrolyse des cations :  $3 Fe^{2+} + 4 H_2O \rightarrow Fe_3O_4 + 8 H^+ + 2 e^-$ .



Cette réaction conduit à la production de protons et donc à une augmentation locale de l'acidité du milieu. Ce phénomène d'acidification ne se produit que s'il y a possibilité d'établissement d'un gradient de potentiel entre l'intérieur de la fissure et les surfaces libres. L'acidification possible est donc d'autant plus forte que le potentiel du matériau est élevé [Combrade 90 (1)]. En d'autres termes, la fissuration s'amorce quand le potentiel est suffisamment élevé, sur des sites où une rupture locale de passivité permet une acidification et une concentration locale de chlorures et de cations métalliques [Combrade 90 (1)]. Ces conditions ne sont pas remplies en début d'essai sur les éprouvettes précrouies en fatigue. C'est pourquoi les premières microfissures ne se forment que lorsqu'on dépasse le potentiel de fissuration, c'est à dire quand on atteint une acidification locale suffisante. Pour leur part, Russel et Tromans estiment que ce potentiel correspond à un potentiel critique en dessous duquel les ions  $\text{Cl}^-$  ne sont pas suffisamment nombreux à s'adsorber [Russell 79]. De plus, à ce potentiel, on a un pH de 4,5 et l'adsorption d'ions  $\text{OH}^-$  devient compétitive par rapport à celle des ions  $\text{Cl}^-$ . Ce processus favorise alors la précipitation de  $\text{Mg}(\text{OH})_2$  qui s'oppose ainsi au mouvement des cations et donc à l'acidification du milieu confiné.

En résumé le précrouissage cyclique diminue le nombre d'intersections de lignes de glissement et l'état de surface qu'il induit s'oppose à une forte localisation de la dissolution anodique. A l'inverse, les éprouvettes précrouies en traction se caractérisent par de nombreuses intersections de bandes de glissement qui sont des sites privilégiés de localisation de la dissolution.

#### **4.3.2 - Propagation des fissures.**

Dans ce paragraphe, nous allons discuter de l'influence des deux types de précrouissage sur la propagation des fissures. Le précrouissage monotone induit une augmentation de la vitesse de fissuration. Ceci peut s'expliquer par l'augmentation des interactions corrosion-déformation. La possibilité d'une transformation martensitique peut également jouer. L'influence du précrouissage cyclique est plus difficile à interpréter. Nous terminerons par la confrontation des résultats expérimentaux à l'idée de l'obstacle mobile et verrons que les structures de dislocations dues aux deux précrouissages permettent de comprendre le comportement mécanique en CSC.

##### **a - Augmentation des interactions corrosion-plasticité suite à un précrouissage monotone.**

La caractéristique la plus marquante des essais de CSC suite à un précrouissage en traction est la forte augmentation du taux de dissolution anodique au cours des essais de CSC. Nous avons placé des échantillons prédéformés en traction dans la cellule de corrosion pendant toute la durée d'un essai de CSC, mais sans leur appliquer de contrainte. Ceux-ci

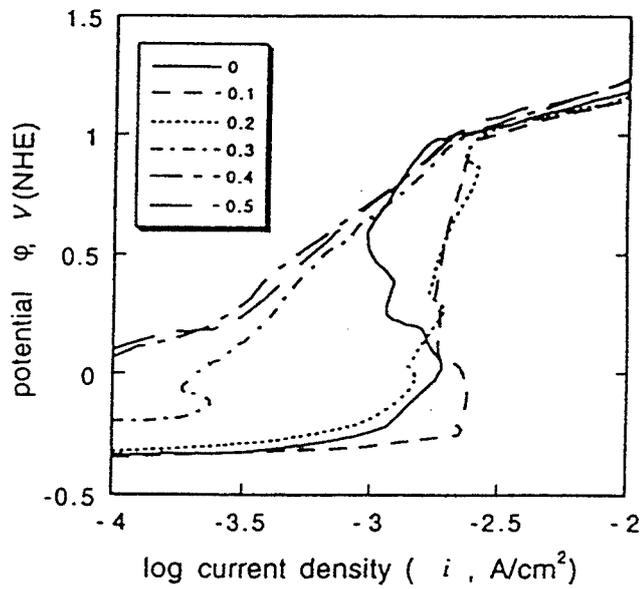


Figure 4.33 : Courbes potentiodynamiques sur échantillons non déformé et déformés de  $\epsilon = 0,1$  à  $0,5$  [Gutman 96].

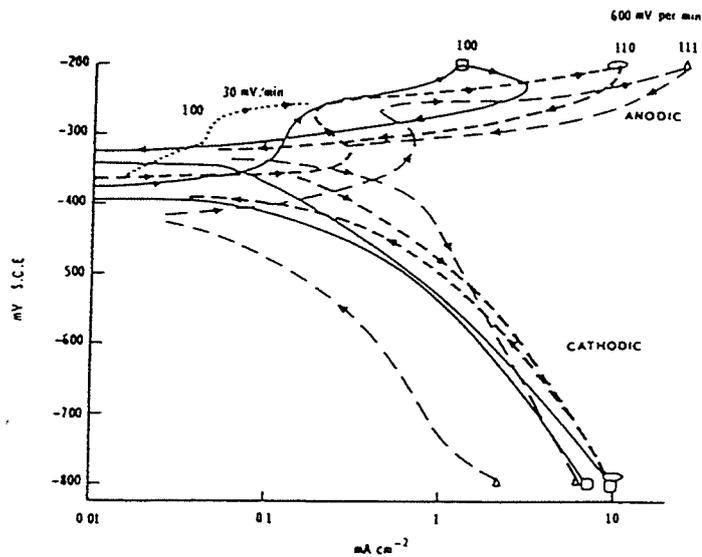


Figure 4.34 : Courbes intensité-potential des faces cristallographiques  $\{100\}$ ,  $\{110\}$  et  $\{111\}$  de monocristaux de 316L dans  $MgCl_2$  à  $150^\circ C$  [Silcock 81].

n'ont pas été particulièrement attaqués. Par contre nous allons montrer au cours de ce paragraphe que l'augmentation de la dissolution avec la déformation repose sur un aspect synergique (augmentation plus forte pendant la déformation qu'après celle-ci).

L'augmentation du pic anodique avec le taux de déformation préalable a été mis en évidence par Gutman et al. à partir des courbes potentiodynamiques du 316L dans  $\text{Na}_2\text{SO}_4$  0.1N +  $\text{H}_2\text{SO}_4$  5% (figure 4.33) [Gutman 96]. De même Hoar et Scully ont montré sur un fil d'acier inoxydable (18Cr-8 Ni) sollicité dans  $\text{MgCl}_2$  bouillant que le courant de dissolution pouvait être augmenté par un facteur  $10^2$  sur un échantillon déformé par rapport à un échantillon non déformé [Hoar 64]. Kaufman a d'ailleurs constaté que les matériaux les plus sensibles à la CSC étaient ceux dont le taux de dissolution anodique pouvait être augmenté par déformation [Kaufman 88].

L'augmentation de la dissolution est liée à l'émergence du glissement en surface et explique que les premières fissures de CSC apparaissent à l'intersection des lignes de glissement. Mais ceci n'est pas uniquement lié à la mise à nu du métal suite à la déstabilisation du film passif. Il a été montré en fatigue-corrosion, sur un monocristal de cuivre dans  $\text{NaClO}_4$  (on a ici absence de film passif) que les bandes persistantes de glissement (PSB) étaient le siège d'une dissolution préférentielle [Yan 85]. Par ailleurs, Silcock a montré que la dissolution anodique n'était pas équivalente suivant la face cristallographique exposée : les plans  $\{111\}$  sont les moins nobles (figure 4.34) [Silcock 81]. L'émergence des plans de glissement en traction monotone rend donc localement l'éprouvette moins noble et facilite le processus de dissolution. Divers facteurs expliquent donc l'augmentation de la dissolution suite à une prédéformation en traction.

Nous avons déjà souligné l'aspect synergétique de la dissolution en cours de déformation. Il repose sur l'interaction lacunes-dislocations [Meletis 92]. En effet les lacunes produites aux marches de glissement interagissent avec les dislocations mobiles. Or nous avons vu, dans le paragraphe 3.4.3b, que les lacunes augmentent la mobilité des dislocations ainsi que la planéité du glissement. La dissolution du métal semble donc augmenter la déformation plastique qui en retour favorise la formation de marches de glissement qui augmentent la dissolution localisée.

Qiao a évalué cet aspect synergétique [Qiao 96 (1)]. L'effet de la contrainte sur le courant de dissolution anodique peut être exprimé par [Dean 76] :

$$i(\sigma) = i_a \exp \left( \frac{M\sigma^2}{2E\rho RT} \right) \text{ avec } \sigma : \text{contrainte hydrostatique}$$

M : masse atomique

E : module d'Young

$\rho$  : densité

R : constante des gaz parfaits

T : température

$i(\sigma)$  et  $i_a$  sont les courants de dissolution respectivement avec et sans contrainte.

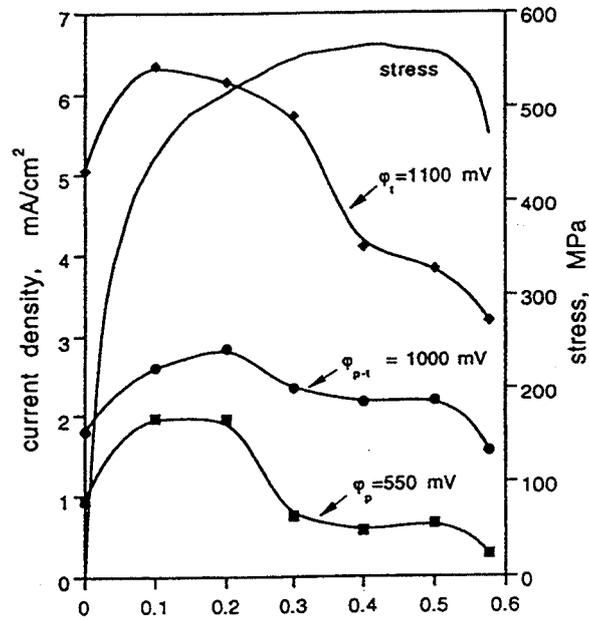


Figure 4.35 : Densité de courant en fonction de la déformation :  $\Phi_p$  courant passif ;  $\Phi_t$  courant transpassif ;  $\Phi_{t-p}$  courant dans la zone de transition passif-transpassif [Gutman 96].

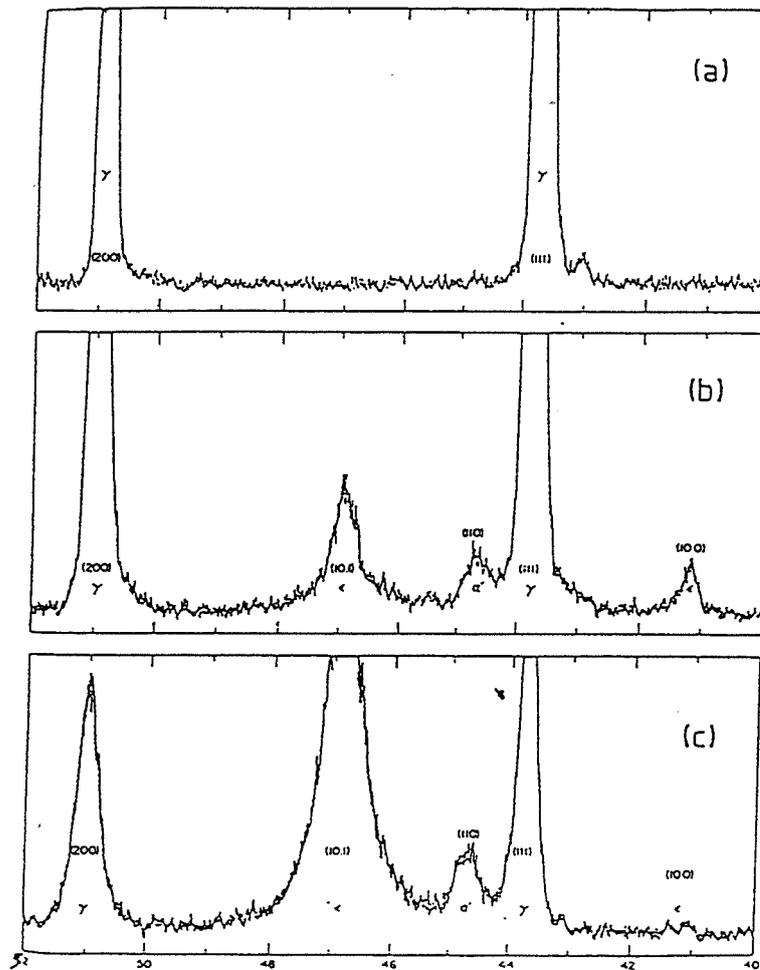


Figure 4.36 : Transformation de phase induite par chargement cathodique dans un acier inoxydable austénitique 304L. (a) non chargé ; (b) non chargé déformé à  $-196^\circ\text{C}$  ; (c) chargé à température ambiante pendant 24h sous  $0.1\text{A}/\text{cm}^2$ , non déformé [Coudreuse 90].

En ce qui concerne le précrouissage en fatigue, on peut penser qu'il ne soit pas favorable à de fortes interactions corrosion-plasticité. Gutman a montré, lors de l'étude de la déformation de fils de 316L dans  $MgCl_2$  bouillant, que l'augmentation du courant de dissolution avec la déformation n'était pas continue (figure 4.35) [Gutman 96]. La création de nouvelles dislocations et de nouveaux empilements implique une augmentation du courant du fait des interactions corrosion-plasticité. Par contre quand les dislocations se réarrangent en configurations de basse énergie (cellules) le courant diminue. Or l'écrouissage en fatigue se caractérise par une structure de dislocations de basse énergie (nous reviendrons sur cet aspect dans le paragraphe suivant).

L'ensemble de ce paragraphe nous a permis de mettre en évidence l'augmentation des interactions corrosion-plasticité suite à un précrouissage monotone. Ce facteur contribue à l'accélération des fissures de CSC. Le précrouissage cyclique induit une déformation mieux répartie. En conséquence la localisation de la dissolution est moins forte.

#### **b- Influence d'une transformation martensitique.**

Nous n'avons jusqu'alors jamais parlé de transformation martensitique. Pourtant cette possibilité doit être envisagée dans les aciers inoxydables austénitiques. Pour les alliages dont la phase austénitique est instable, ce type de transformation est fréquemment observée au cours de la mise en oeuvre : emboutissage, tréfilage, rectification ou polissage [Bavay 90]. De plus, que ce soit en CSC ou dans les cas de fragilisation par l'hydrogène, il y a possibilité de formation des phases martensitiques  $\alpha'$  (c.c.) et  $\epsilon$  (h.c.), soit par déformation plastique, soit par décharge d'hydrogène [Coudreuse 90]. Or nous avons vu que ces deux événements étaient le plus souvent couplés en CSC. Les spectres de diffraction X de la figure (fig 4.36) illustrent par exemple l'influence du chargement en hydrogène sur la transformation martensitique.

En fait la stabilité de la phase austénitique dépend de la composition chimique de l'alliage, du niveau de contrainte et de la présence ou non d'hydrogène en solution solide [Rozenak 90]. La stabilité de l'austénite augmente avec l'abaissement du point  $M_s$  de l'acier et la stabilité de cette même phase sous déformation plastique est améliorée par l'abaissement de la température de transformation martensitique  $M_d$  [Rouby 90]. Les formules empiriques de  $M_s$  et  $M_d$  en fonction de la composition chimique ont été établies par Pickering [Pickering 78] et montrent que l'addition de molybdène diminue  $M_s$  et  $M_d$  et donc stabilise la phase austénitique. C'est pourquoi l'acier 316L est beaucoup moins sensible à la transformation martensitique que l'acier 304L par exemple. En effet, plusieurs études montrent que pour les aciers 304 et 304L on a formation de martensite  $\alpha'$  en CSC et fragilisation par hydrogène [Jani 91, Hanninen 79, Hanninen 80]. Par contre le chargement en hydrogène avant traction du 316 dans  $H_2SO_4$  1N + 0,25g/l  $Na_2SO_3$  n'induit pas de transformation [Hanninen 79].

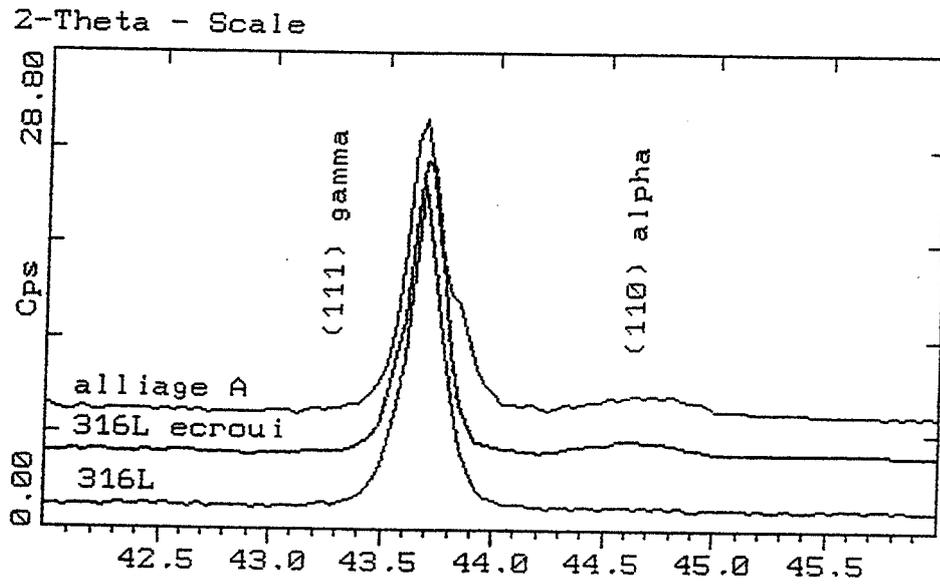


Figure 4.37 : Transformation de phase observée par diffraction des rayons X sur les alliages 316L, 316L écroui et alliage A.

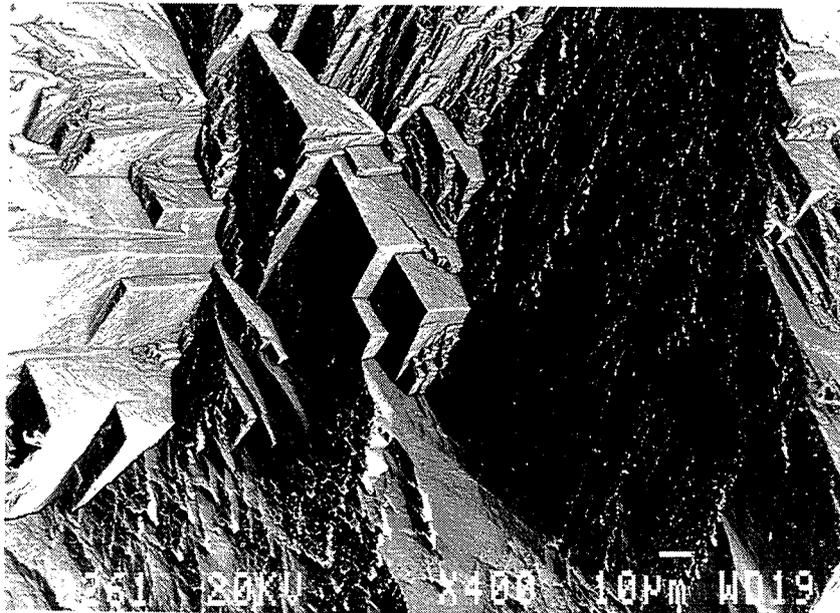


Figure 4.38 : Faciès de rupture en CSC dans  $MgCl_2$  à  $117^\circ C$  de l'alliage A. Combinaison de facettes  $\{110\}$ .

Cependant, quel que soit l'alliage, le rôle exact de la transformation martensitique dans les processus d'endommagement par CSC reste sans réponse nette. Jani et al. ont montré qu'on n'avait pas de formation de martensite sur la surface de rupture du 304 sollicité dans  $MgCl_2$  à  $153^\circ C$  mais que de la martensite  $\alpha'$  et  $\epsilon$  était observée en avant de la surface de rupture [Jani 91]. Ils concluent que la transformation martensitique pourrait être plutôt une conséquence qu'une cause de la rupture par CSC. De même Russell et Tromans ont comparé trois alliages plus au moins stables vis à vis de la transformation martensitique : le 310, le 316 et un acier austénitique instable [Russell 81]. Ils concluent que la propagation des fissures à travers la phase  $\alpha'$  est possible mais qu'elle n'est pas une condition nécessaire pour qu'il y ait CSC car le 310 rompt par CSC et sa phase austénitique est stable.

En ce qui concerne le 316L, nous n'avons pas parlé de ce problème au cours du chapitre précédent car lors d'une étude aux rayons X sur échantillons non précrouis aucune transformation de phase n'a pu être mise en évidence.

Cependant ce type de transformation doit être pris en compte quand on procède à un écrouissage avant CSC. En effet nous avons vu que sur monocristaux précrouis en traction, la rupture est majoritairement d'aspect fragile. On pourrait donc croire que cette rupture par décohésion est due à la formation de martensite  $\alpha'$  et à la fragilisation par l'hydrogène de cette phase. Pour vérifier ce qu'il en était sur nos échantillons, nous avons choisi de travailler sur l'orientation  $\langle 111 \rangle$  car nous disposons pour cette orientation d'échantillons sans molybdène, donc plus sensibles à la transformation martensitique. L'alliage ici considéré sera appelé alliage A. Sa composition est la suivante : 20% Cr, 15% Ni, 0,1% Si. Nous avons utilisé les rayons X pour évaluer l'importance de la transformation martensitique des alliages suivants : 316L, 316L écroui et alliage A ; les résultats sont donnés dans la figure 4.37. Pour cela nous avons évalué le rapport des intensités intégrées des pics  $\gamma$  et  $\alpha'$ . Les résultats sont les suivants :

$$\gamma/\alpha(316L) = 86 ; \quad \gamma/\alpha(316L \text{ écroui}) = 10 ; \quad \gamma/\alpha(\text{alliage A}) = 6,5.$$

Il ressort que le pic  $\alpha'$  du 316L est quasiment inexistant et que celui du 316L précroui en traction est plus faible que celui de l'alliage A. Or pour ces trois échantillons la fissuration est identique, c'est à dire que la rupture a lieu sur trois facettes de type  $\{110\}$  comme le montre la figure 4.38. Par contre l'échantillon précroui en traction présente une durée de vie deux fois plus faible que celle des échantillons sollicités en CSC seule. La diminution de durée de vie du 316L précroui ne peut pas être imputable uniquement à une transformation martensitique plus conséquente. De plus l'absence de transformation martensitique sur tous les monocristaux non précrouis montre que la rupture de type décohésion n'est pas due à une fragilisation par l'hydrogène de martensite  $\alpha'$ . En résumé une transformation martensitique n'est pas forcément synonyme d'augmentation de l'endommagement en CSC, ni de rupture fragile.

Cependant pour le 316L précroui en traction, une transformation martensitique est toujours décelable, aussi bien sur polycristaux que sur monocristaux. Ce fait doit être pris en

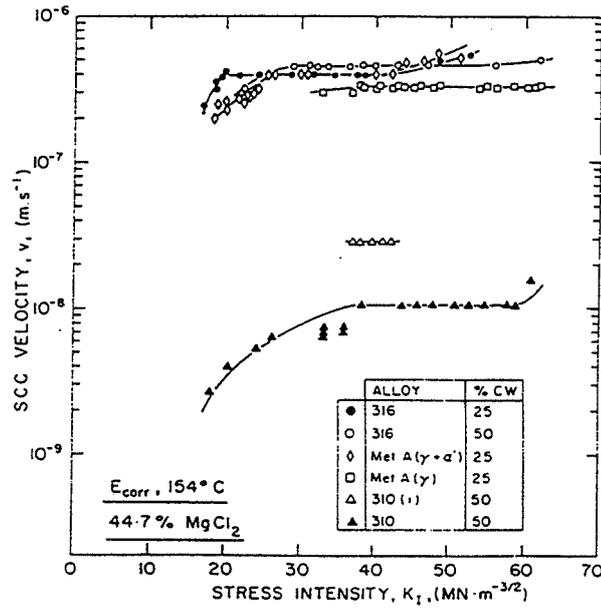


Figure 4.39 : Vitesse de fissuration en fonction du facteur d'intensité de contrainte pour différents alliages plus ou moins stables vis à vis de la transformation martensitique [Russel 79].

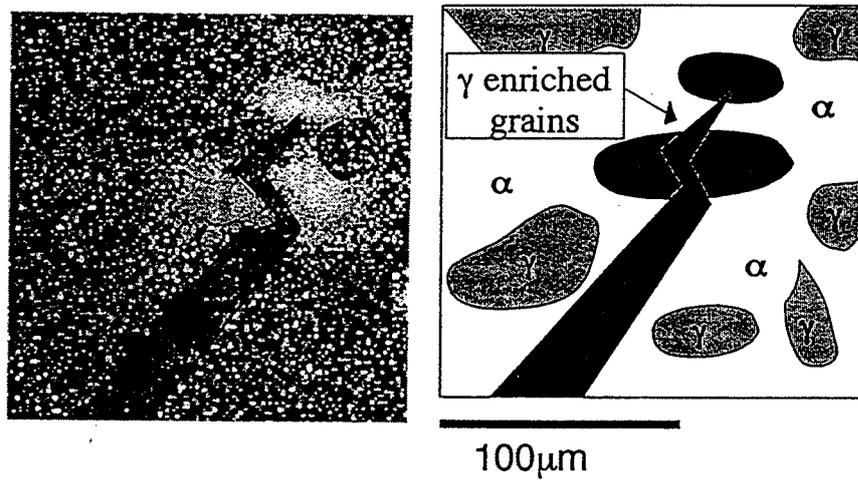


Figure 4.40 : Image par SIMS montrant les grains d'austénite enrichis en deutérium [Oltra 96].

considération. En effet Russel et Tromans concluent que, bien que la transformation martensitique ne soit pas une condition nécessaire pour qu'il y ait CSC, la présence de martensite  $\alpha'$  influe sur la vitesse de propagation des fissures en CSC [Russell 81]. En comparant trois aciers inoxydables austénitiques plus ou moins stables, ils ont constaté, que ceux qui présentaient une transformation martensitique avaient une vitesse de fissuration plus forte (figure 4.39). Ceci est en accord avec nos propres résultats et peut être expliqué par plusieurs conditions.

La précipitation de la phase  $\alpha'$  génère des hétérogénéités électrochimiques qui peuvent être à l'origine de l'augmentation de dissolution anodique que nous avons constatée. Plusieurs auteurs proposent que la proximité de la phase  $\alpha'$  du fond de fissure permette un transport accéléré de l'hydrogène à travers la phase c.c. [Russell 81, Huang 91]. Les phases induites par déformation plastique agissent comme des chemins de diffusion pour l'hydrogène. On a alors accumulation d'hydrogène à l'interface  $\alpha'/\gamma$  car il y a une différence entre les coefficients de diffusion de ces deux phases. Ceci pourrait faciliter la fragilisation par l'hydrogène de la phase  $\gamma$ . D'ailleurs Russell et Tromans ont mesuré des énergies d'activation lors de leur essais de CSC de l'ordre de 65 à 75 kJ/mol [Russell 81]. Cet ordre de grandeur est compatible avec le transport de l'hydrogène dans la matrice austénitique (60 kJ/mol) mais ne correspond pas avec le transport de l'hydrogène dans la phase  $\alpha'$  (36 kJ/mol). L'enrichissement en hydrogène de la phase  $\gamma$  suite à la diffusion de cet élément dans la phase  $\alpha$  a d'ailleurs été mis en évidence sur un acier austénitique duplex par la technique SIMS couplée à l'emploi de deutérium (figure 4.40) [Oltra 96].

En résumé la transformation martensitique n'est pas une condition nécessaire pour qu'il y ait CSC. Cependant, sur les échantillons écrouis en traction, une faible proportion de martensite  $\alpha'$  a toujours pu être décelée. Celle-ci peut contribuer à l'accélération de la vitesse de propagation des fissures en jouant un rôle de chemin de diffusion pour l'hydrogène.

### **c - Niveaux de contrainte et obstacle mobile.**

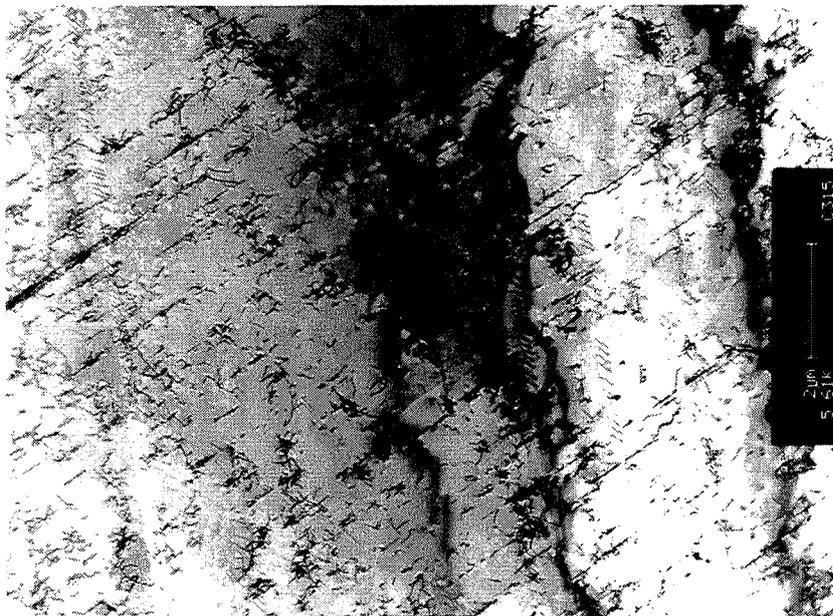
Cassagne et Gelpi ont montré qu'une prédéformation de 5% sur des tubes d'alliage 600 augmente la vitesse de fissuration d'un ordre de grandeur [Cassagne 93]. Des résultats analogues ont été trouvés sur les aciers inoxydables austénitiques tels que le 347 ou le 321 [Magdowski 96].

La vitesse de fissuration en CSC peut être exprimée par :  $\frac{da}{dt} = A\dot{\epsilon}^n$ , où A est une constante,  $\dot{\epsilon}$  est la vitesse de déformation en fond de fissure et n est un coefficient qui dépend de l'alliage considéré.

L'augmentation de la vitesse de fissuration avec le taux d'écrouissage pourrait être liée avec une augmentation de la vitesse de déformation en fond de fissure. Cependant il est peu probable que ce seul paramètre soit responsable du changement d'ordre de grandeur observé expérimentalement [Cassagne 91]. En effet, il faudrait que la vitesse de déformation soit



*Figure 4.41 : Structure de dislocations due à l'érouissage en traction.*



*Figure 4.42 : Structure de dislocations due à l'érouissage en fatigue.*

multipliée par 50 et par suite que la contrainte enregistrée lors du précrouissage soit augmentée d'un facteur 5. Il est clair qu'une telle augmentation est en désaccord avec nos résultats expérimentaux. A partir de ces données, il semble qu'un raisonnement basé uniquement sur les paramètres mécaniques ne suffise pas à expliquer l'augmentation de la vitesse de fissuration après écrouissage.

En fait, au cours du troisième chapitre, nous avons vu que les résultats fractographiques obtenus sur le 316L étaient en bon accord avec le 'corrosion enhanced plasticity model'. Nous avons déjà traité le cas de l'amorçage des fissures qui est lié à la première étape du modèle. En ce qui concerne la propagation des fissures, les deux précrouissages ont des effets inverses. Il est donc intéressant de voir si ces effets sont compatibles avec les autres étapes du modèle.

Celui-ci repose sur l'existence de deux zones : une zone proche de la surface où la plasticité est localement augmentée par les interactions corrosion-déformation et une zone en avant du fond de fissure qui est durcie. Le durcissement de cette dernière zone se trouve renforcé par le précrouissage monotone. En effet ce dernier induit de nombreux empilements de dislocations (figure 4.41) ainsi qu'un réseau plus dense d'enchevêtrements de dislocations. Les obstacles au mouvement des dislocations mobiles émises du fond de fissure sont donc plus nombreux. Parallèlement, il a été montré au cours du paragraphe 4.3.3.a, que les interactions corrosion-plasticité se trouvaient renforcées dans le cas d'échantillons déformés en traction (exemple figure 4.33). Ceci se traduit par une différence de durcissement entre les deux zones proches du fond de fissure plus marquée. Or l'interface entre ces deux zones définit un obstacle sur lequel vont s'empiler les dislocations mobiles. La force de cet obstacle se trouve renforcée par le précrouissage monotone. On comprend donc que les contraintes critiques de décohésion responsables de la formation d'un embryon de fissure seront atteintes plus tôt. En conséquence la rupture surviendra de manière prématurée.

En résumé, pour la propagation des fissures, un précrouissage monotone se traduit par une augmentation des interactions corrosion-plasticité. Or nous avons vu que celles-ci jouaient un rôle essentiel en CSC. Il est donc normal que leur renforcement ait un effet néfaste sur le tenue en CSC.

Nous avons souhaité observer en microscopie électronique en transmission la structure de dislocations induite par le précrouissage cyclique. En effet les données à ce sujet dans la littérature sont nombreuses mais elles concernent rarement un nombre de cycles aussi faible que 50. La figure 4.42 montre une photographie prise sur une lame mince extraite d'un monocristal d'orientation  $\langle 100 \rangle$  après écrouissage cyclique. Il apparaît nettement que pour  $\epsilon_{pcum} = 0.2$ , on a déjà une structure planaire de dislocations bien définie, c'est à dire que les dislocations coins sont alignées dans les plans de glissement. Cette structure est tout a fait représentative des matériaux à faible E.D.E. aux faibles amplitudes de déformation et pour un faible nombre de cycles.



Pendant les premiers stades de la déformation en CSC, cet arrangement planaire adapte une déformation plastique donnée avec une contrainte minimale. En fatigue on crée en fait une structure de dislocations de basse énergie qui est en équilibre. Une telle structure facilite la création et l'annihilation des dislocations: En conséquence la formation d'obstacles forts n'est pas facilitée quand l'arrangement de dislocations est de basse énergie. Au fur et à mesure de la déformation en CSC, cet arrangement est progressivement détruit : le retard de l'amorçage des premières microfissures correspond au temps qu'il faut pour détruire la structure de dislocations créée en fatigue.

Le précrouissage cyclique se traduit par une différence de durcissement entre les deux zones plus réduite que sur les échantillons non précrouis. Par conséquent la formation d'obstacles forts qui conduisent à la rupture est rendue plus difficile. Le précrouissage cyclique qui permet la formation d'une structure de dislocations de basse énergie contribue donc à minimiser les interactions entre la corrosion et la plasticité.

En résumé, l'idée de l'obstacle mobile est en bon accord avec les résultats expérimentaux. Les précrouissages cyclique et monotone induisent des structures de dislocations totalement différentes et ne contribuent pas de la même façon à la propagation des fissures. La structure enchevêtrée due au précrouissage monotone intensifie la zone durcie alors que parallèlement la zone adoucie est renforcée par l'augmentation des interactions corrosion-déformation. La formation d'obstacles forts est donc facilitée. A l'inverse, dans le cas du précrouissage cyclique, la structure de dislocations de basse énergie ne favorise pas la formation d'obstacles forts.



## 4.4 - Conclusion.

L'influence des deux types de précrouissage est totalement opposée.

- Le précrouissage en fatigue constitue une parade à la CSC : il augmente la durée de vie et permet d'atteindre des niveaux de contrainte à rupture supérieurs. Son principal effet est le retard de l'amorçage des premières microfissures : il n'apparaît qu'au delà de 10% d'allongement. Ces dernières ne sont observées que lorsque le potentiel libre, qui se stabilise vers -400 mV/ESC en début d'essai de CSC, redevient plus anodique que le potentiel de fissuration. Cette évolution particulière du potentiel s'explique par la structure de déformation de fatigue qui est très homogène. Elle contribue à multiplier les événements de dépassivation, rendant chacun d'entre eux moins nocif. La localisation de la dissolution anodique est ainsi retardée. En ce qui concerne la propagation des fissures, le précrouissage cyclique permet d'accommoder en CSC une même déformation plastique avec une contrainte plus faible. La formation d'obstacles forts est rendue plus difficile car la structure de dislocations créée en fatigue est une structure de basse énergie. Ces résultats confortent l'idée de l'existence d'un obstacle mobile proposé par le 'corrosion enhanced plasticity model'.

- A l'inverse le précrouissage en traction conduit à une diminution de la durée de vie en CSC, sans qu'il y ait d'augmentation significative des niveaux de contrainte à rupture. Il induit un amorçage prématuré des premières fissures de CSC, avant même la mise en charge de l'éprouvette. Cet amorçage conditionne alors la propagation des fissures. Il a lieu préférentiellement à l'intersection des lignes de glissement, ce qui force la direction de propagation à être telle que les plans de glissement ne contiennent pas le fond de fissure. C'est pourquoi le plus souvent on observe une fissuration de type fragile. Les échantillons précrouis se caractérisent tous par une forte dissolution. Ceci s'explique par l'augmentation des interactions corrosion-plasticité sur éprouvettes prédéformés en traction. Par ailleurs la possibilité de transformation martensitique suite au précrouissage monotone peut contribuer au renforcement de l'endommagement en CSC. En particulier les phases de martensite  $\alpha'$  peuvent jouer le rôle de chemins préférentiels de diffusion de l'hydrogène, augmentant ainsi la concentration locale en hydrogène à l'interface avec la phase austénitique. Enfin l'endommagement prématuré en CSC sur échantillons précrouis en traction est en bon accord avec l'idée de l'obstacle mobile car le renforcement de la zone durcie conduit à la formation d'obstacles forts qui peuvent induire une accélération de la fissuration.



## **CONCLUSION**



## CONCLUSION

Le premier objectif de ce travail était de déterminer, parmi les principaux modèles de CSC, celui qui décrivait au mieux la microfractographie des aciers inoxydables austénitiques en CSC. Pour cela une nouvelle technique de détermination de la cristallographie de rupture à l'échelle du micron a été mise au point dans le cas des monocristaux. Sa validité a été confirmée en la confrontant à la méthode des figures d'attaque.

La microfractographie des aciers inoxydables austénitiques dans  $MgCl_2$  à  $117^\circ C$  a ainsi été étudiée en détails en se basant sur des essais réalisés sur monocristaux. De ce travail, il ressort que deux grands types de rupture peuvent être mis en évidence :

- si les plans de glissement ont un facteur de Schmid faible ou bien si leur facteur de Schmid est supérieur à 0,4 mais qu'ils n'ont pas d'arête commune avec le fond de fissure, alors la rupture est de type fragile à l'échelle microscopique. Elle implique le plus souvent des facettes de type  $\{011\}$  et semble due à la décohésion sur les plans de bas indice qui sont soumis à une forte contrainte normale. Ce résultat souligne la possibilité d'un affaiblissement des liaisons interatomiques induit par le milieu corrosif. Mais ce cas est relativement rare sur polycristaux.
- si les plans de glissement dont le facteur de Schmid est supérieur à 0,4 contiennent le fond de fissure, alors les plans  $\{111\}$  sont directement impliqués dans la fissuration. La rupture a lieu en alternance sur deux plans de glissement qui définissent un plan moyen de type  $\{011\}$  accolé à un troisième plan  $\{111\}$ . La direction locale de propagation est alors  $\langle 112 \rangle$ . La fissuration est ici d'aspect moins fragile et des traces de ductilité extrêmement localisée sont observées. Ce cas correspond bien à celui de la fractographie observée sur polycristaux, en particulier aux moyennes et fortes valeurs du facteur d'intensité de contrainte.

Une synthèse des principales caractéristiques fractographiques est proposée et chacune d'entre elles est confrontée aux principaux modèles de CSC. De cette analyse, il ressort que le 'corrosion enhanced plasticity model' est en bon accord avec le comportement en CSC des aciers inoxydables austénitiques :

- la première étape du modèle est vérifiée, c'est à dire qu'on a amorçage des fissures par dissolution à l'émergence de lignes de glissement en surface.
- la discontinuité de rupture à l'échelle du micron est prise en compte par l'ensemble des étapes du modèle.
- le modèle prévoit la cristallographie de rupture observée expérimentalement, c'est à dire la



fissuration sur les plans  $\{111\}$  en alternance.

- il souligne enfin le rôle essentiel des interactions corrosion-déformation qui est particulièrement bien mis en évidence par l'effet de la direction de propagation sur le mode de rupture.

Plusieurs questions restent cependant sans réponse nette :

- quel est le mécanisme exact de rupture sur les plans de glissement : décohésion et/ou cisaillement ?

- le rôle des lacunes sur l'augmentation de plasticité doit-il être pris en compte au même titre que celui de l'hydrogène ?

- enfin le modèle n'explique pas la rupture de type fragile qui a été observée pour des configurations cristallographiques particulières.

Cependant, comme l'essentiel des résultats fractographiques est en bon accord avec les idées du modèle, nous nous sommes basés sur celles-ci pour chercher une parade contre la CSC. Pour cela, un précrouissage est réalisé avant CSC. D'une part, celui-ci influe sur la répartition des lignes de glissement et conditionne donc l'amorçage des fissures. D'autre part, le modèle repose sur l'existence de deux zones de plasticité différentes : le précrouissage, en modifiant la différence de durcissement entre ces deux zones, influe donc également sur la propagation.

Le rôle particulièrement bénéfique d'un précrouissage cyclique a été mis en évidence : la durée de vie en CSC est multipliée par un facteur au minimum égal à 1,5 et les niveaux de contrainte à rupture sont supérieurs. Le principal bienfait concerne l'amorçage des premières microfissures : il est considérablement retardé puisqu'elles n'apparaissent qu'après 10% d'allongement à  $\dot{\epsilon} = 4.10^{-7} \text{ s}^{-1}$ . Ceci s'explique par l'état de surface dû au précrouissage cyclique : pour les matériaux à faible énergie de défaut d'empilement, la répartition des lignes de glissement est homogène et s'oppose à la localisation de la dissolution anodique. Parallèlement, ce phénomène s'accompagne d'une stabilisation du potentiel libre en dessous du potentiel de fissuration et explique également le retard de l'amorçage des premières fissures. Les résultats concernant la propagation des fissures restent à approfondir. Le modèle permet d'expliquer la diminution de la vitesse de propagation : la fatigue implique une structure de dislocations de basse énergie qui défavorise la formation d'obstacles forts conduisant à la rupture. Tout ceci sera étudié plus en détails dans un prochain travail de thèse.

Nous avons confirmé qu'un précrouissage en traction est néfaste. La durée de vie est divisée au minimum par 2 et il n'y a pas d'amélioration des niveaux de contrainte à rupture.



L'état de surface qui lui est dû est associé à la présence de nombreuses intersections de lignes de glissement qui favorisent l'amorçage des fissures ainsi que la localisation de la dissolution anodique. Cet amorçage prématuré des premières microfissures s'accompagne d'une intensification des interactions corrosion-déformation et d'une augmentation de la vitesse de propagation. Cette dernière peut être influencée par la formation de martensite. De plus, elle est en accord avec l'idée de l'obstacle mobile : la zone durcie de la matrice écrouie est renforcée, ce qui facilite la formation d'obstacles forts conduisant à la rupture.

En résumé, nous avons pu trouver une parade à la CSC en nous basant sur les idées du modèle le plus en adéquation avec les résultats de CSC des aciers inoxydables austénitiques. Les bénéfices d'un précrouissage cyclique avant CSC sont surtout sensibles sur l'amorçage des fissures. L'influence de ce précrouissage sur la propagation reste à clarifier. De façon plus générale, il apparaît très intéressant d'analyser plus en détails quelle est l'influence de l'histoire du matériau sur la résistance à la CSC.



**REFERENCES**

**BIBLIOGRAPHIQUES.**



- ABRAHAM D.P. and ALTSTETTER C.J., Metallurgical and Materials Transactions A, **26A** (1995) 2849.
- AHLERS and RIEKE, Corrosion Science, **18** (1978) 21.
- BALLUFI R.W. and GRANATO A.V., Dislocations in Solids (North-Holland : Amsterdam, Holland, 1979).
- BAROUX B., BERANGER G. & LEMAITRE C., Les aciers inoxydables, Les Editions de Physique, P. LACOMBE, B. BAROUX, G. BERANGER, Les Ulis (1990) 163.
- BASTIEN P. and AZOU P., CR Acad. Sciences 232 (1951) 1545.
- BAVAY J.C., Les aciers inoxydables, P. LACOMBE, B. BAROUX, G. BERANGER, Les Editions de Physique, Les Ulis (1990) 567.
- BEACHEM C.D., Metallurgical Transactions A, **3A** (1972) 437.
- BERANGER, Les Editions de Physique, Les Ulis (1990) 111.
- BIRNBAUM H. K., Hydrogen Embrittlement and stress corrosion cracking, Eds. Gibala & R.F. Heleman, ASM (1984) 153.
- BIRNBAUM H.K., Environment induced cracking of metals, Ed. R.P. Gangloff and M.B. Ives, NACE, Houston (1990) 21.
- BIRNBAUM H.K., ROBERTSON I.M., SOFRONIS P. and TETER D., CDI 96, Institute of Materials, T. MAGNIN (1997) à paraître.
- BLANC G., Les aciers inoxydables, P. LACOMBE, B. BAROUX & G.B. BERANGER, Les Editions de Physique, Les Ulis (1990) 613.
- BOOS J.Y., DUQUAIRE B., FAURE F., LEROY F., RANSON C., RIEU J., Mem. Sci. Rev. Met., **6** (1971) 443.
- BRASS A.M. and CHENE J., CDI 96, Institute of Materials, T. MAGNIN (1997) à paraître.
- BRAUNS E. and TERNES H., Werkst. Korros., **19** (1968) 1.
- BROEK David, Elementary engineering fracture mechanics, Noordhoff international publishing, 1974.
- CASSAGNE T.B. and GELPI A., Fifth international symposium on environmental degradation of materials in nuclear power systems-water reactors, Monterey, Ca (1991) 518.
- CASSAGNE T.B. and GELPI A., Sixth international symposium on environmental degradation of materials in nuclear power systems-water reactors, R.E. GOLD and E.P. SIMONEN the Minerals, Metals and Materials Society (1993) 679.



- COMBRADE P., Les aciers inoxydables, P. LACOMBE, B. BAROUX, G. BERANGER, Les Editions de Physique, Les Ulis (1990) 333. (1)
- COMBRADE P., Corrosion sous contrainte : phénoménologie et mécanismes, Les Editions de Physique (1990) 539.
- CHENE J. and BRASS A.M., Corrosion sous contrainte : phénoménologie et mécanismes, Les Editions de Physique (1990) 159.
- COUDREUSE L., Thèse, Ecole des Mines de Saint-Etienne, 1986.
- COUDREUSE L., Corrosion sous contrainte : phénoménologies et mécanismes, Les Editions de Physique (1990) 397.
- DEAN JR. S. W., Review of recent studies on the mechanism of stress corrosion cracking in austenitic stainless steel, ASTM STP 610, West Conshohocken, PA :ASTM 1976, 308.
- DEGALLAIX S., DICKSON J.I. and FOCT J., High Nitrogen Steels 88, The Institute of Metals, J. FOCT and A. HENDRY (1989) 380.
- DEGALLAIX S. and SOUSSAN A., Mémoires et Etudes Scientifiques Revue de Métallurgie (1990) 443.
- DESJARDIN D., PUIGGALI M. and VAILLANT F., Mat. et Tech., 9 (1988) 7.
- DICKSON J. I., RUSSELL A.J. and TROMANS D., Canadian Metallurgical Quarterly, 19 (1980) 161.
- DICKSON J.I., GROULX D., SHIQIONG LI & TROMANS D., Materials Science and Engineering, 94 (1987) 155.
- DICKSON J.I., LI S.Q. & BAILON J.P., Corrosion sous contrainte : phénoménologie et mécanismes, Les Editions de Physique (1990) 425.
- EASTMAN J., MATSUMOTO T., NARITA N., HEUBAUM F. and BIRNBAUM H.K., Proc. of Int. Conf. on Hydrogen in Metals, I.M. Bernstein and A.W. Thomson, eds., AIME, New York (1980) 397.
- ENGELMANN H.J., MUMMERT K., SCHWARZ S. and UHLEMANN, CDI 96, Institute of Materials, T. MAGNIN (1997) à paraître.
- FLANAGAN W.F., ZHONG L. and LICHTER B.D., Metallurgical transactions A, 24A, 3 (1993) 553.
- FLANAGAN W.F., MIN WANG, ZHU M. & LICHTER B.D., Metallurgical transactions A, 25A (1994) 1391.
- FONG C. and TROMANS D., Metallurgical Transactions A, 19A (1988) 2765.



- FORD F.P., Embrittlement by Localised Crack Environment, ed by R.P. GANGLOFF, AIME 1984 (1984) 117.
- GALVELE J.R., Corrosion Science, **27** (1987) 1.
- GAO K.W., CHU W.Y., WANG Y.B. and HSIAO C.M., Scripta Materialia, **36**, 2 (1997) 259.
- GERBERICH W.W., MARSH P.G. & HUANG H., Parkins symposium, TMS (1992) 191.
- GERLAND M., MENDEZ J., VIOLAN P. and AIT SAADI B., Materials Science and Engineering, **A118** (1989) 83.
- GORLIER C., Thèse Saint-Etienne, 1984.
- GOROH I., KATSUMI K. and MOTOHIRO K., Scripta Materialia, **35**, 6 (1996) 695.
- GRUJICIC M., NILSSON WSOWEN J.O. and THORVALDSSON T., High Nitrogen Steels 88, The Institute of Metals, J. FOCT and A. HENDRY (1989) 151.
- GUTMAN E.M., SOLOVIOFF G. and ELIEZER D., Corrosion Science, **38**, 7 (1996) 1141.
- HANNINEN H.E. and HAKKARAINEN T., Metallurgical Transaction A, **10A** (1979) 1196.
- HANNINEN H.E. and HAKKARAINEN T., Corrosion, **36** (1980) 47.
- HARTON and SCULLY, Corrosion, **26** (1970) 387.
- HASMIMOTO M. and LATANISION R.J., Metallurgical transactions A, **19A** (1988) 2789.
- HEHEMANN R.F., Metallurgical Transaction A, **16A** (1985) 1909.
- HEHEMANN R.F., Metallurgical Transaction A, **22A** (1991) 2605.
- HOAR T.P. and SCULLY J.C., J. Electrochem. Soc., **111** (1964) 348.
- HUANG J.H., ALTSTETTER C.J., Metallurgical Transaction A, **22 A** (1991) 2605.
- JANI S., MAREK M., HOCHMANN R.F. and MELETIS E.I., Metallurgical transactions A, **22A** (1991) 1453.
- JONES D.A., Metallurgical Transactions A, **16A** (1985) 1133.
- JONES D.A., Corrosion 95, NACE, paper n°169.
- JONES D.A., Corrosion, **52**, 5 (1996) 356.
- KACZOROWSKI M., LEE C.S. and GERBERICH W., Material Science and Engineering, **81** (1986) 305.
- KAUFMANN M.J. and FINK J.L., Acta Metallurgica, **36**, 8 (1988) 2213.
- KRAMER I., Trans. Metall. Soc. AIME 230 (1964) 991.
- LARDON J. M., Thèse (Saint-Etienne, 1986).
- LEFEVRE J., Les aciers inoxydables, P. LACOMBE, B. BAROUX, G. BERANGER, Les Editions de Physique, Les Ulis (1990) 957.



- LEPINOUX J. and MAGNIN T., Parkins Symposium on fundamentals of SCC, TMS, Cincinnati S. Bruemmer et al. Ed; (1992) 323.
- LEVEY P.R. and van BENNEKOM A., Corrosion, **51**, 12 (1995) 911.
- LI S.Q., DICKSON J.I., BAILON J.P. and TROMANS D., Metallurgical transactions A, **1**, **A119**, 1-2 (1989) 59.
- LIAN K. and MELETIS E.I., Corrosion, **52**, 5 (1996) 347.
- LICHTER B. D. & FLANAGAN W.F., Corrosion 95, NACE, paper n°173.
- LICHTER B.D., FLANAGAN W.F., KIM J.S., ELKENBRACHT J.C. and van HUNEN M., Corrosion, **52**, 5 (1996) 453.
- LIN J.H. and THOMSON R., Acta Metallurgica, **34**, 2 (1986) 187.
- LIU et al., Metallurgical Transaction, **11A** (1980) 1563.
- LOUTHAN, Corrosion, **21** (1965) 288.
- LYNCH S.P., Acta Metallurgica, **20** (1988) 2639.
- MAGNIN & A. DESESTRET, Mémoires et Etudes scientifiques Revue de métallurgie, **11** (1983) 641.
- MAGNIN T. et BIGNONNET A., Matériaux et Techniques, **9** (1988) 37.
- MAGNIN T., Corrosion sous contrainte : phénoménologie et mécanismes, Les Editions de Physique (1990) 271. (1)
- MAGNIN T., CHIERRAGATTI R. & OLTRA R., Acta Metallurgica et materialia, **38**, 7 (1990) 1313. (2)
- MAGNIN T., ISIJ international, **35**, 3 (1995) 223.
- MAGNIN T., Advances in corrosion-deformation interactions, Trans. tech. publications Ltd, Zurich, 1996. (1)
- MAGNIN T., CHAMBREUIL A. and BAYLE B., Acta Materialia, **44**, 4 (1996) 1457. (2)
- MAGNIN T., CHAMBREUIL A. and CHATEAU J.P., International Journal of Fracture, **79** (1996) 147. (3)
- MAGNIN T., CHAMBREUIL-PARET A., CHATEAU J.P., DELAFOSSE D. and BAYLE B., CDI 96, Institute of Materials, T. MAGNIN (1997) à paraître.
- MARCUS P. & OLEFJORD I., Corrosion Science, **28**, 6 (1988) 589.
- MARCUS P., Corrosion sous contrainte : phénoménologie et mécanismes, Les Editions de Physique (1990) 101.
- MAREK and HOCHMAN, Corrosion, **27** (1971) 361.



- MARSHALL P., Austenitic stainless steels, Microstructure and mechanical properties (Elsevier Applied Science Publishers LTD) 1984.
- MATSUMOTO T. and BIRNBAUM H.K., Trans. of Japan Inst. of Metals, **21** (1980) 493.
- MELETIS E.I. and HOCHMAN R.F., J. Test. Eval., **12** (1984) 142.
- MELETIS E.I. & HOCHMAN R.F., Corrosion Science, **24** (1984) 843.
- MELETIS E.I. & HOCHMAN R.F., Corrosion Science, **26**, 1 (1986) 63.
- MELETIS E.I., LIAN K. and HUANG W., CDI, Corrosion Deformation Interaction, Les Editions de Physique (1992) 139.
- NAKAYAMA T. and TAKANO M., Corrosion, **4** (1981) 226.
- NIELSEN N.A., Corrosion, **20** (1964) 104.
- OBRTLK K., KRUML T. and POLAK J., Materials Science and Engineering, **A187** (1994) 1.
- OLIVE J.M., SARRAZIN C. & KASRI R., Corrosion Deformation Interaction, Les Editions de Physique (1992) 139. (1)
- OLIVE J.M. and SARRAZIN C., Corrosion Deformation Interaction, Les Editions de Physique (1992) 153. (2)
- OLIVE J.M., Thèse Bordeaux, 1992. (3)
- OLTRA R., BOUILLOT C. and MAGNIN T., Scripta Materialia, **35**, 9 (1996) 1101.
- ORIANI R.A., 'Hydrogen embrittlement and stress corrosion cracking', R. GIBALA and R.F. HEHEMAN Eds. ASM (1984) 43.
- PARKINS R.N., British Corrosion Journal, **14** (1979) 5.
- PETCH N.J., Philosophical Magazine, **1** (1956) 331.
- PICKERING F.B., Physical metallurgy and the design of steels, Applied Science Publishers Ltd London 1978.
- PICKERING F.B., Physical metallurgical development of stainless steels, Proc. of Conf. Stainless Steels, Göteborg, septembre 84, 2.
- PICKERING F.B., Proceed High Nitrogen Steels Conf., Lille 18-20Mai 1988, Ed. J. FOCT and A. HENRY, The Institute of Metals Pub. (1989) 10.
- QIAO L., MAO X. and CHU W., Metallurgical and Materials Transactions A, **25A** (1994) 1015.
- QIAO L., MAO X. & CHU W., , Metallurgical and Materials Transactions A, **26A**, (1995) 1777.



- QIAO L., CHU W. and MAO X., *Corrosion*, **52**, 4 (1996) 275. (1)
- QIAO L.J., MAO X. & LUO J.L., *Corrosion*, **52**, 12 (1996) 927. (2)
- REED and PAXTON, first congress on Metallic corrosion (1961) 301.
- REVIE R.W. and UHLIG H.H., *Acta Metall.*, **22** (1974) 619.
- RICE J.R. & THOMSON R., *Philosophical Magazine*, **29** (1974) 73.
- ROUBY M. et BLANCHARD P., *Les aciers inoxydables*, P. LACOMBE, B. BAROUX, G. BERANGER, Les Editions de Physique, Les Ulis (1990) 567.
- ROZENAK P., ROBERTSON I.M. and BIRNBAUM H.K., *Acta Metall. Mater.*, **38**, 11 (1990) 2031.
- RUSSELL A.J. and TROMANS D., *Metallurgical Transactions A*, **10A** (1979) 1229.
- RUSSELL A.J. and TROMANS D., *Metallurgical Transactions A*, **12A** (1981) 613.
- SCAMANS G.M. and SWANN P.R., *Corrosion*, **18** (1978) 983.
- SHAMAKIAN R.L., TROIANO A.R. and HEHEMANN R.F., *Environment sensitive fracture of engineering materials*, edited by Forioulis, Illinois, October 24-26 (1977) 116.
- SHIQIONG LI, DICKSON J.I., BAILON J.P., & TROMANS D., *Materials Science and Engineering*, **A119** (1989) 387.
- SIERADSKI K. and NEWMAN R.C., *Philosophical Magazine*, **A51**(1985), 95.
- SIERADSKI K. and NEWMAN R.C., *Chemistry and Physic of fracture*, Eds R.M. Latanison R.H. JONES NATO ASI Ser. E130 (1987) 597.
- SILCOCK J.M., *British Corrosion Journal*, **16**, 2 (1981) 78.
- SOUSSAN A., DEGALLAIX S. and MAGNIN T., *Materials Science and Engineering*, **A142** (1991) 169.
- STROH A.N., *Proc. Roy. Soc.*, **223** (1954) 404.
- STROH A.N., *Philosophical Magazine*, **1** (1956) 489.
- STROH A.N., *Adv. Phys.*, **6** (1957) 418.
- TACIKOWSKI M., CHAMBREUIL-PARET A. and MAGNIN T., soumis à *Matériaux et Technique*
- TAILLARD R. and FOCT J., *Proceed High Nitrogen Steels Conf.*, Lille 18-20Mai 1988, Ed. J. FOCT and A. HENRY, The Institute of Metals Pub. (1989) 10.
- TROIANO A.R., *Trans. ASM* **52** (1960) 54.
- TURNBULL A., *Corrosion science* (1985) 921.

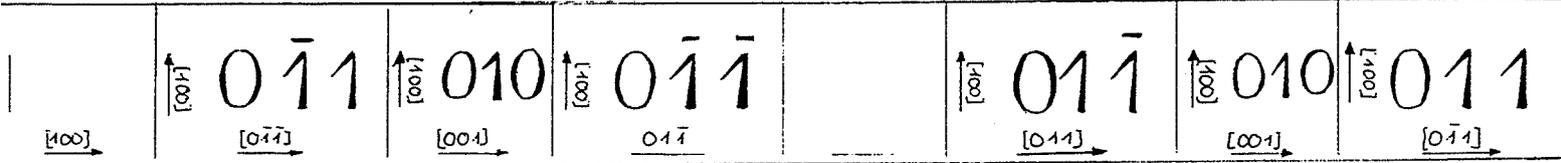
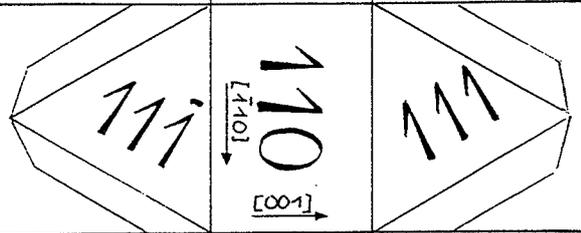
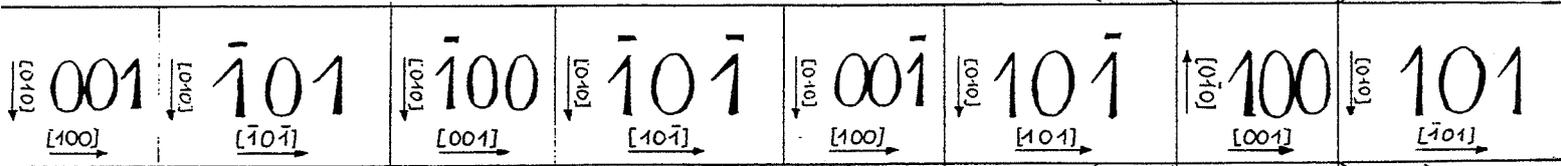
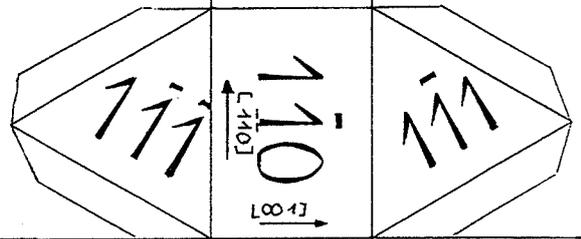
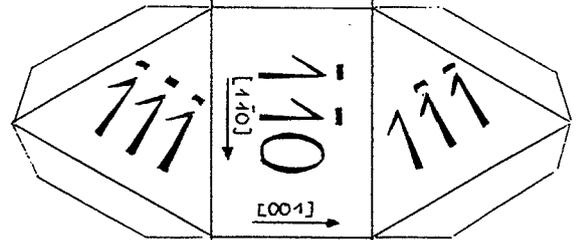
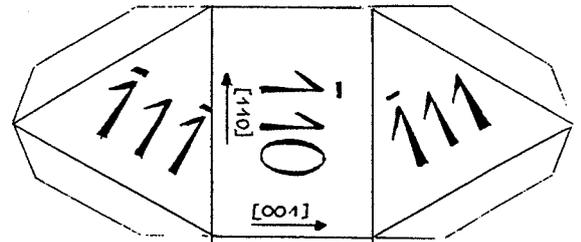


- UGGOWITZER P.J. and HARZENMOSER M., High Nitrogen Steels 88, The Institute of Metals, J. FOCT and A. HENDRY (1989) 174.
- ULMER D.G. and ALTSTETTER C.J., Acta Metall. Mater., **39**, 6 (1991) 1237.
- VAN DER WEKKEN C.J., Corrosion-Deformation Interactions, Les Editions de Physique (1992) 55.
- VEHOFF H. & NEUMANN P., Acta Metallurgica, **31** (1983) 1781.
- VOGT J.B., Thèse, Lille (1991).
- YAN B., FARRINGTON G. and LAIRD C., Acta Met., **33**, 8 (1985) 1533.
- ZAFFE C.A. and SIMS C.E., Met. Alloy II (1940) 145.



**ANNEXE A.**









Numéro d'ordre : 163 TD

Année : 1997

**Agnès CHAMBREUIL-PARET**

**Spécialité : Sciences et Génie des Matériaux**

**Titre : Corrosion sous contrainte de mono et polycristaux d'aciers inoxydables austénitiques en milieu  $MgCl_2$  : analyse microfractographique et recherche d'améliorations du comportement.**

**Mots clés : Corrosion sous contrainte, aciers inoxydables austénitiques, monocristaux, fractographie, précrouissage, dislocations, fissures, micropropagation.**

**RESUME :** Les aciers inoxydables austénitiques, ductiles à l'air, présentent en milieu chloruré à chaud une rupture macroscopiquement fragile, discontinue et composée de facettes cristallographiques. L'interprétation du caractère cristallographique de ces faciès constitue une des clés de la compréhension des mécanismes d'endommagement en corrosion sous contrainte (CSC). Aussi le premier objectif est d'étudier en détails la microfractographie sur mono et polycristaux d'aciers de type 316L sollicités en milieu  $MgCl_2$  à  $117^\circ C$  à potentiel libre ( $\dot{\epsilon} = 4.10^{-7} s^{-1}$ ). Deux grands types de rupture sont observés : une rupture très fragile qui souligne la possibilité de l'affaiblissement des liaisons interatomiques par le milieu corrosif et une rupture discontinue à l'échelle du micron sur les plans de glissement, représentative de la fractographie observée sur polycristaux et qui est en bon accord avec le 'corrosion enhanced plasticity model'.

A partir des idées de ce modèle, le deuxième objectif de ce travail est la recherche d'une parade à la CSC par le biais d'un précrouissage avant CSC. Deux types de précrouissage sont testés. Le rôle négatif d'un précrouissage en déformation monotone est réaffirmé : les premières fissures s'amorcent très tôt et la vitesse de propagation des fissures est augmentée. Ceci s'explique par le 'corrosion enhanced plasticity model', au travers de l'intensification des interactions corrosion-déformation locales. A l'inverse, un précrouissage cyclique est particulièrement bénéfique. Les premières microfissures s'amorcent beaucoup plus tard et les niveaux de contrainte à rupture sont augmentés. Le retard de l'amorçage des premières fissures s'explique par une structure de déformation de surface très homogène qui s'oppose à une forte localisation de la dissolution anodique. Enfin la structure de dislocations créée en fatigue à saturation est une structure planaire de basse énergie qui minimise les interactions corrosion-déformation à l'origine de la microfissuration.