

Etude des hétérogénéités des champs mécaniques dans un acier bainitique à l'aide de la diffraction des neutrons

R. DAKHLAOU^a, V. KLOSEK^b, M.H. MATHON^b, L. VINCENT^a, B. MARINI^a

a. CEA, DEN, SRMA, 91191 Gif-sur-Yvette Cedex, France

b. CEA, IRAMIS, Laboratoire Léon Brillouin, 91191 Gif-sur-Yvette Cedex, France

Résumé :

Nous avons développé une méthodologie qui associe détermination de texture cristallographique et mesures de déformations élastiques par diffraction de neutrons afin d'analyser les contraintes dans des familles de grains de même orientation cristallographique au sein d'un matériau polycristallin. Nous présentons ici son application sur un acier bainitique constitutif des cuves des centrales nucléaires. Cette méthode semble être très prometteuse pour tester et valider les modèles de comportement mécanique.

Abstract :

We developed a methodology associating texture determination and elastic strains measurements by neutron diffraction in order to analyse stresses in a families of grains with the same crystallographic orientation within a polycrystalline material. Its application on a bainitic steel used for nuclear reactor pressure vessels is shown here. This method seems promising to test and validate mechanical or crystalline plasticity models.

Mots clefs : hétérogénéité de déformation, contraintes, diffraction de neutrons, plasticité cristalline

1 Introduction

Les mécanismes de la rupture fragile par clivage des aciers ferritiques ont fait l'objet de nombreuses études mécaniques expérimentales. Les modèles macroscopiques actuellement disponibles ne peuvent reproduire correctement les résultats expérimentaux qu'en postulant une dépendance en température de la contrainte critique de clivage dans le domaine de la transition fragile-ductile. Dans ce domaine de température, il n'est pas possible de mesurer directement cette contrainte et à plus basse température où la mesure est possible, aucune dépendance en température significative ne peut être mise en évidence. Pour tenter de lever cette difficulté, un modèle mécanique fin est en cours de développement. Tout comme les modèles macroscopiques, il s'agit d'un modèle de milieu continu mais dans lequel la morphologie et la cristallographie des grains est utilisée. La loi de comportement est écrite pour chaque système de glissement. Les variables internes sont les glissements plastiques et les densités de dislocations sur chaque famille de système de glissement. La paramétrisation de ce modèle est rendue délicate par le nombre important de paramètres à identifier et il est nécessaire d'exploiter le maximum de données expérimentales afin d'enrichir la base de données qui sert dans l'identification des paramètres. L'originalité de l'approche proposée dans cette étude est d'étendre la base expérimentale d'ajustement en se basant sur des mesures de contraintes internes, de plusieurs familles de grains préalablement choisies, par la méthode de diffraction des neutrons.

2 Détermination des champs de contraintes par diffraction de neutrons

Un matériau polycristallin consiste en un très grand nombre de cristallites appartenant à une ou plusieurs phases chimiques et ayant différentes orientations cristallographiques distribuées plus au moins aléatoirement. Les matériaux polycristallins peuvent donc être décrits comme des matériaux multiphasés si on définit une phase par tous les grains ayant la même orientation cristallographique, mais pouvant naturellement avoir des voisinages différents d'un grain à l'autre. Le champ de contraintes internes dans de tels agrégats polycristallins peut être décrit selon plusieurs échelles : **contrainte de premier ordre**, (moyenne sur un grand volume de l'échantillon, contenant de nombreux cristallites) ; **contraintes de second ordre** ou **intergranulaires** (écart entre la contrainte de 1er ordre et la contrainte dans chaque cristallite, lié,

par exemple, à l'anisotropie des constantes d'élasticité ou à l'anisotropie de l'écoulement plastique dans les grains) ; **contraintes de troisième ordre** (hétérogénéité intragranulaire).

La diffraction des neutrons est un outil unique non destructif pour la mesure des déformations et donc des contraintes internes. Les champs de contrainte du premier et du deuxième ordre sont liés à une déformation élastique uniforme des grains et une modification de leurs caractéristiques cristallographiques. Cet effet peut être vu par la diffraction par un déplacement des raies de Bragg. La diffraction des neutrons permet l'analyse des contraintes en profondeur, au sein d'échantillons relativement massifs. Malheureusement, les volumes de matière analysés doivent être relativement grands (de l'ordre du mm³) pour être compatibles avec des durées raisonnables de mesures. Ceci constitue malgré tout un avantage important car un grand nombre de grains peuvent être analysés, fournissant ainsi une **moyenne statistiquement représentative**. Cette information statistique fait de la diffraction des neutrons un puissant outil permettant de valider les modèles de comportement.

Des avancées significatives ont été réalisées ces dernières années afin d'analyser quantitativement des contraintes intergranulaires par diffraction des neutrons : mesure de l'évolution des déformations élastiques de différentes raies $\{hkl\}$ [1,2] ; mesure des figures de pôles de déformations et calcul de fonctions de distribution des contraintes par orientations [3]. Ces méthodes sont particulièrement bien adaptées aux sources de neutrons pulsées. Dans ce contexte, nous avons développé récemment une méthodologie alternative permettant une estimation quantitative de l'anisotropie et de l'hétérogénéité de déformation entre des cristallites caractérisés par des orientations cristallographiques différentes, en utilisant la technique de diffraction des neutrons à longueur d'onde constante (i.e. avec une source de neutrons continue) [4,5]. Cette méthode est appliquée ici afin d'analyser le comportement mécanique élastique et élasto-plastique d'un acier faiblement allié de type 16MND5 au cours d'un chargement de traction *in situ*.

Les détails de cette méthode d'analyse des déformations / contraintes par familles de grains de mêmes orientations cristallographiques sont exposés dans les références [4,5]. Il s'agit d'une adaptation à la diffraction des neutrons sur les matériaux polycristallins de la méthode d'analyse monocristalline développée à l'origine par Ortnier [6] pour la diffraction des rayons X. Nous avons considéré l'hypothèse selon laquelle les hétérogénéités de déformation le long d'une direction donnée $[hkl]$ entre tous les grains orientés avec ce même axe de zone $[hkl]$ restent faibles : chaque déformation mesurée à partir du déplacement du pic (hkl) (correspondant à un pôle donné de la composante de texture $\{HKL\}\langle UVW \rangle$) peut ainsi être considérée comme parfaitement représentative de la famille de grains d'orientation $\{HKL\}\langle UVW \rangle$. Cette hypothèse repose sur des travaux récents montrant que l'élargissement d'un pic n'était que très faiblement influencé par l'amplitude des déformations intergranulaires [7]. Nos observations confirment cette hypothèse. De plus, afin de minimiser les erreurs, le plus grand nombre possible de pôles a été mesuré par composante de texture. De cette manière, les résultats obtenus constituent une information statistiquement représentative et caractéristique du tenseur des déformations de chaque phase considérée.

3 Matériau étudié, conditions expérimentales, et modèle de comportement

Le matériau étudié est un acier de type 16MND5, de référence commerciale A 508 C13. Cet acier faiblement allié est utilisé dans les cuves des réacteurs à eau pressurisée (REP) des centrales nucléaires. Les grains ferritiques ont une taille moyenne de 20 μm et contiennent des carbures et de la cémentite (type Fe_3C) sous forme de lamelles de taille 300 nm. La fraction volumique des carbures Fe_3C est estimée à environ 2 % (+/- 0,2%) déterminé par un affinement Rietveld en utilisant le diffractomètre de poudre 2 axes G4.1 ($\lambda = 2.41 \text{ \AA}$) du LLB. L'acier a été usiné afin d'obtenir une éprouvette de géométrie haltère adaptée à la machine de traction (section carrée de $5 \times 5 \text{ mm}^2$, la région utile est de longueur 20 mm) (Fig. 1). Les composantes du tenseur de rigidité de la ferrite (constantes élastiques du monocristal) utilisées dans le calcul des contraintes ont été prises dans la littérature [8]: $C_{11} = 231 \text{ GPa}$; $C_{12} = 134,4 \text{ GPa}$; $C_{44} = 116,4 \text{ GPa}$.

La texture et les déformations ont été déterminées par diffraction des neutrons sur le diffractomètre 4-cercles 6T1 au LLB ($\lambda = 1,159 \text{ \AA}$) [9]. La texture cristallographique a été analysée à l'aide du logiciel LaboTex [10].

Une petite machine de traction uniaxiale adaptée au berceau d'Euler du diffractomètre 6T1 a été utilisée pour les mesures de diffraction *in situ* [11]. La zone utile de l'éprouvette était complètement immergée dans le faisceau de neutron incident de section $10 \times 10 \text{ mm}^2$. Les acquisitions ont été effectuées après la stabilisation complète de la charge appliquée, la déformation (mesurée par un extensomètre LVDT) étant maintenue constante.

Le modèle de comportement utilisé dans ce travail est dérivé de celui de Tabourot et al. [12], qui a été par la suite adapté par Arizmendi et Hoc aux métaux de structure bcc dans le régime athermique. Des modifications ont été entreprises par la suite sur ce modèle dans le cadre de la thèse de M. Libert [13] et ont portées d'une part sur la prise en compte des mécanismes d'activation thermique dans la description de l'écoulement plastique et de l'écroutissage. D'autre part, une dépendance en température des différents termes de la loi d'évolution des densités de dislocations est introduite, les mécanismes de production et d'annihilation des dislocations étant également fortement dépendants de la température. La détermination des champs de contraintes internes par ce modèle est réalisée par homogénéisation auto-cohérente de type Berveiller-Zaoui [14].

4 Résultats et discussion

La texture cristallographique du matériau à l'état initial est extrêmement faible (indice de texture ~ 1) et, après déformation de l'échantillon jusqu'à $\varepsilon \sim 11\%$, aucune évolution significative de la texture n'a été observée (indice de texture $\sim 1,1$). Donc, le matériau peut être considéré comme globalement isotrope de son état initial jusqu'à 11% de déformation appliquée. Les orientations des grains sélectionnées pour l'analyse de champs de contraintes par diffraction des neutrons sont : $\{-100\}\langle 001 \rangle$ (A, Cube, orientation qui favorise la rupture par clivage) ; $\{-110\}\langle 111 \rangle$ (B, l'angle entre le système de glissement $\{110\}\langle 111 \rangle$ et la direction de chargement $\langle 111 \rangle$ est égal à 0°) ; $\{11-2\}\langle 111 \rangle$ (C, l'angle entre le système de glissement $\{112\}\langle 111 \rangle$ et la direction de chargement $\langle 111 \rangle$ est égal à 0°) ; $\{111\}\langle -211 \rangle$ (D, l'angle entre le système de glissement $\{112\}\langle 111 \rangle$ et la direction de chargement $\langle 211 \rangle$ est égal à 90°) ; $\{-110\}\langle 112 \rangle$ (E, orientation intermédiaire pour laquelle le plan de glissement $\{110\}$ est colinéaire à la direction de chargement $\langle 211 \rangle$ et le plan de glissement $\{112\}$ est perpendiculaire à la direction de chargement). Pour chaque composante de texture sélectionnée, environ 11 pôles ont été choisis parmi les familles $\{110\}$, $\{200\}$ et $\{211\}$, pour lesquels les pics de Bragg sont enregistrés in situ au cours de l'essai de traction.

La Fig. 1 comporte une comparaison des contraintes axiales $\langle \sigma_{11} \rangle_c$ de chaque famille de grains en fonction de la déformation appliquée. La Fig. 2 représente les composantes diagonales des tenseurs des contraintes (obtenus à partir des déformations élastiques mesurées) en fonction de la déformation macroscopique appliquée pour les 5 orientations étudiées. Dans tous les cas $\langle \sigma_{11} \rangle_c$ est positive et plus élevée que les autres composantes du tenseur des contraintes des grains analysés, en accord avec l'orientation du chargement macroscopique selon l'axe 1.

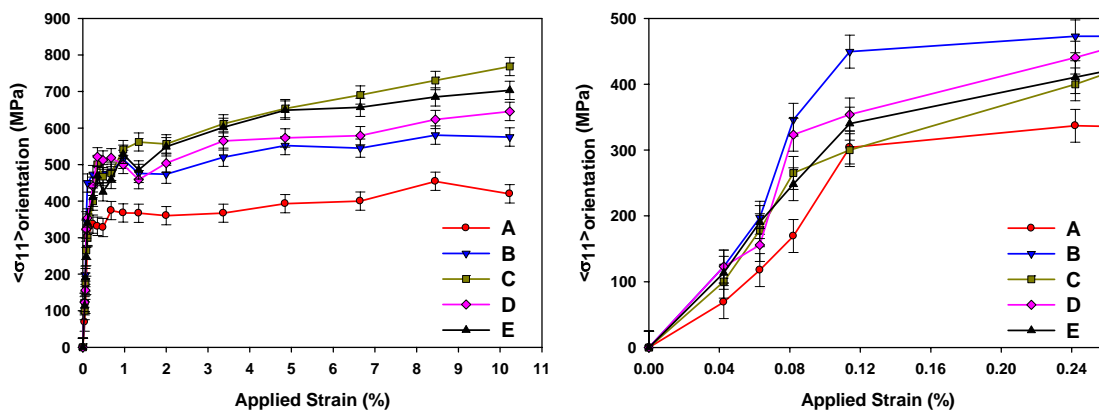


FIG. 1. (a) comparaison des $\langle \sigma_{11} \rangle_c$ pour les 5 orientations étudiées ; (b) zoom sur la partie élastique.

Considérons d'abord les courbes expérimentales de $\langle \sigma_{11} \rangle_c$ en début de déformation dans le domaine élastique (jusqu'à 0,1 %). L'anisotropie élastique entre les grains est plutôt faible. A part pour les grains orientés « cube » (phase A), pour lesquels $\langle \sigma_{11} \rangle_c$ est la plus faible, toutes les autres orientations sont caractérisées par quasiment la même rigidité élastique. Pour une famille de grains d'axe $\langle hkl \rangle$ parallèle à la direction de chargement, la rigidité résolue dépend du facteur d'anisotropie élastique pour la structure cubique de l'acier, défini par : $A_{hkl} = (h^2k^2 + k^2l^2 + l^2h^2) / (h^2 + k^2 + l^2)^2$. Pour la ferrite, un facteur A_{hkl} plus élevé implique une rigidité plus élevée [15]. Dans la direction de chargement axiale, pour les aciers cubiques les normales aux plans $\{200\}$ (i.e. les directions $\langle 200 \rangle$) sont les directions cristallographiques les moins rigides ($A_{hkl} = 0$) tandis que les directions $\langle 111 \rangle$ et $\langle 211 \rangle$ sont les plus rigides ($A_{hkl} = 0.33$ et 0.25

respectivement). L'anisotropie élastique de la ferrite permet donc de bien expliquer pourquoi les contraintes mesurées pour l'orientation cube (A) sont les moins élevées dans le régime élastique. De plus, les rigidités des directions $\langle 111 \rangle$ et $\langle 211 \rangle$, qui correspondent aux phases B, C, D et E, apparaissent bien comme très voisines, comme on pouvait s'y attendre compte tenu des facteurs d'anisotropie élastique voisins pour ces familles de grains.

Après le régime de déformation élastique, une hétérogénéité importante de la déformation plastique entre les cristaux analysés peut alors être observée (Fig. 1a) : en effet, une grande différence des amplitudes de contraintes axiales est obtenue (jusqu'à 350 MPa), traduisant le développement de contraintes intergranulaires entre les cinq familles de grains considérées.

Si on analyse les résultats de contraintes par orientations, des fluctuations des contraintes axiales $\langle \sigma_{11} \rangle_c$ peuvent être observées clairement à partir de la fin du régime élastique et jusqu'à à peu près $\varepsilon=1,5$ %) qui peuvent être attribuées à une initiation et propagation de bandes de Lüders. Dans le cas des composantes de contraintes perpendiculaires à l'axe de chargement ($\langle \sigma_{22} \rangle_c$ et $\langle \sigma_{33} \rangle_c$), les courbes présentent aussi des fluctuations plutôt plus importantes à partir du début de plasticité et jusqu'à une déformation macroscopique de 2 % environ (Fig. 1). Ces fluctuations peuvent aussi être interprétées comme des instabilités causées par le phénomène de Lüders à l'échelle des grains. A partir de $\varepsilon \sim 2$ %, ces contraintes restent quasiment constantes, à des valeurs relativement basses.

On notera que l'orientation Cube (A) entre en plasticité la première (Fig.1a) et paraît avoir l'écroutissage le plus faible comparé aux autres orientations étudiées : les grains de cette phase Cube sont même caractérisés par un comportement proche d'un comportement de type plastique parfait (sans écroutissage). A l'opposé, les grains appartenant à l'orientation C présentent l'écroutissage le plus important. La loi de Schmid peut être utilisée afin d'analyser le comportement des orientations par le calcul du facteur de Schmid et de sa variation entre les orientations. Selon la loi de Schmid et en considérant une ou deux familles de systèmes de glissement ($\{110\} \langle 111 \rangle$ et $\{211\} \langle 111 \rangle$), le facteur de Schmid maximal est le plus élevé (0,408 ou 0,471) pour un plus grand nombre de systèmes de glissement (8 ou 4) pour la direction de chargement $\langle 100 \rangle$. L'orientation Cube est donc la moins dure et on peut raisonnablement s'attendre à ce que l'écoulement plastique commence tout d'abord dans les cristallites correspondants. Ainsi, les résultats expérimentaux sont en bon accord avec la loi de Schmid. Malheureusement, à cause des fluctuations relativement importantes des contraintes $\langle \sigma_{11} \rangle_c$ en début d'écoulement plastique, il nous est difficile d'interpréter les comportements plastiques des phases B, C, D, E sur la base des facteurs de Schmid.

Pour les orientations A, B et C, les composantes perpendiculaires et de cisaillement du tenseur des contraintes sont quasiment nulles, exceptée $\langle \sigma_{33} \rangle_c$ pour la phase A qui reste constante à 100 MPa, traduisant probablement une influence prépondérante du voisinage sur les grains Cube selon la direction 3. Mais pour les orientations D et E, on peut remarquer que $\langle \sigma_{22} \rangle_c$ et $\langle \sigma_{33} \rangle_c$ sont de signes contraires, avec des amplitudes quasiment constantes proches de 100 MPa. De plus, contrairement aux phases A, B et C, ces deux phases se distinguent par des contraintes de cisaillement significatives de l'ordre de 100 MPa en valeurs absolues. Ce phénomène peut s'expliquer qualitativement par de simples considérations de symétrie. En effet, d'après la loi de Schmid, seuls 2 systèmes de glissement $\{110\} \langle 111 \rangle$ doivent être activés préférentiellement dans ces deux phases, pour lesquelles la direction de chargement est $\langle 211 \rangle$. Or ces systèmes sont soit symétriques par rapport à un plan perpendiculaire à l'axe 2, soit par rapport à un plan perpendiculaire à l'axe 3. L'activation de ces 2 systèmes doit donc logiquement induire des déformations plastiques différentes selon les directions 2 et 3, accommodées par des contraintes élastiques différentes. Ainsi, dans l'orientation D, les deux plans de glissement $\{110\}$ sont parallèles à l'axe 2 et symétriques par rapport à un plan perpendiculaire à cet axe, et les deux directions de glissement $\langle 111 \rangle$ sont également symétriques par rapport à ce même plan. Par conséquent, si les deux systèmes s'activent simultanément, un grain d'orientation D doit tendre à s'allonger plastiquement selon la direction 3, et plutôt à se contracter selon la direction 2. Dans l'agrégat polycristallin, cet effet entraîne l'apparition de contraintes élastiques d'accommodation de compression selon la direction 2 et de traction selon la direction 3, comme ce que l'on observe expérimentalement. La même interprétation est valable pour l'orientation E, avec toutefois une situation tournée de 90° autour de la direction de chargement, entraînant le développement de contraintes élastiques de traction selon la direction 2 et de compression selon la direction 3. Bien sûr cette interprétation qualitative ne doit pas masquer l'effet des hétérogénéités de déformation plastique entre un grain et son voisinage.

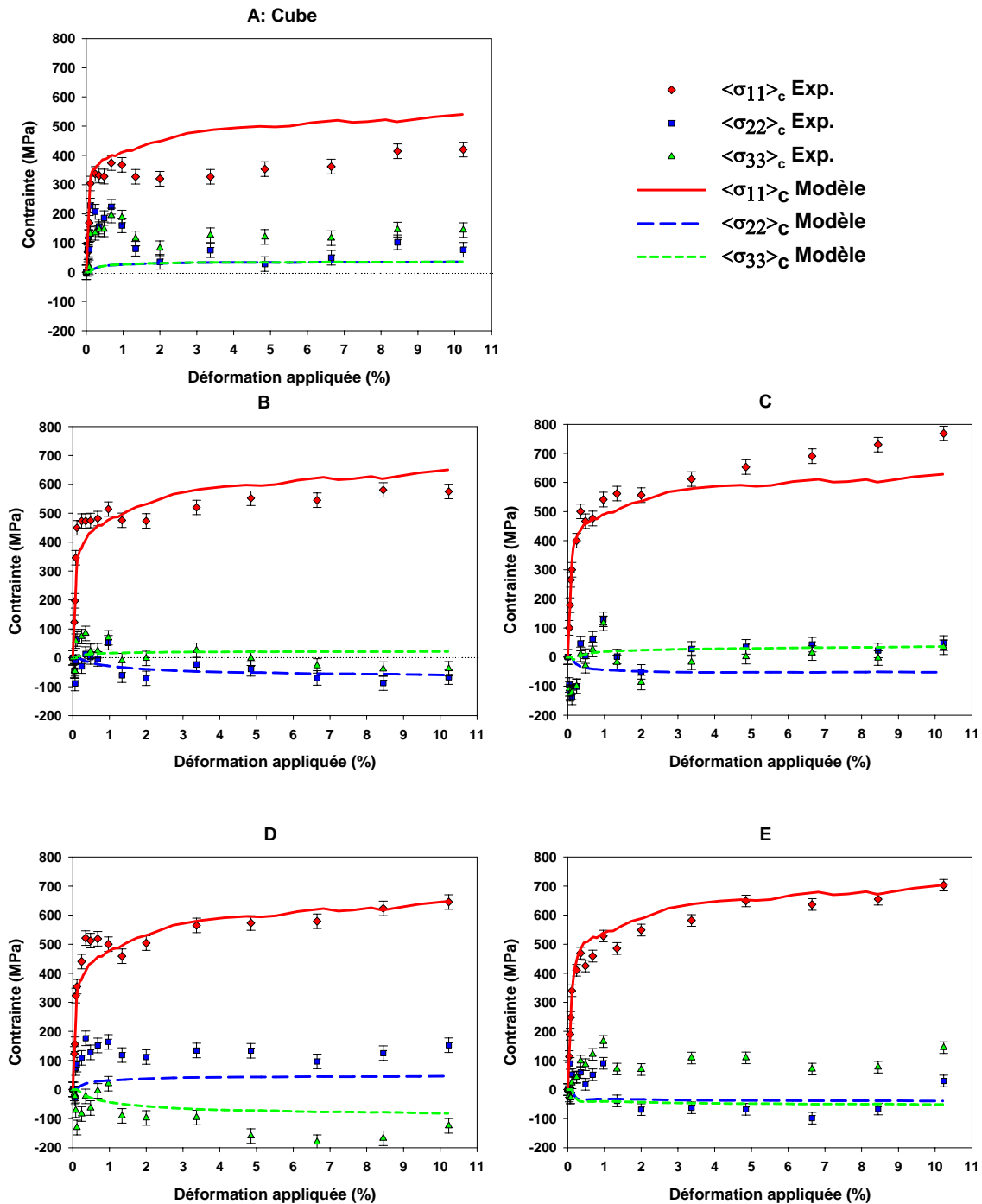


FIG. 2. Termes diagonaux des tenseurs des contraintes des 5 familles de grains déterminées par la diffraction des neutrons et comparaison avec le modèle auto-cohérent.

Il est à noter que l'évolution des déformations élastiques des grains orientés de telle façon qu'un de leurs plans $\{110\}$ soit perpendiculaire à l'axe de chargement en traction a également été déterminée (i.e. le comportement des familles de grains d'orientations $\{hkl\}\langle 110 \rangle$ avec h, k, l quelconques). Cette donnée (non montrée ici) permet d'enrichir d'avantage la base utilisée dans la validation et l'identification du modèle de plasticité cristalline.

5 Identification des paramètres du modèle de comportement

Afin d'identifier les paramètres matériau du modèle de comportement, le logiciel d'identification SiDoLo [16] a été utilisé. La base de données utilisée dans l'identification est constituée de la courbe macroscopique, de la courbe d'évolution de la déformation élastique de la famille de grains $\{hkl\}\langle 110 \rangle$ mesurée par la

diffraction des neutrons et des comportements des 5 orientations cristallographiques (contraintes $\langle\sigma_{11}\rangle_c$, $\langle\sigma_{22}\rangle_c$ et $\langle\sigma_{33}\rangle_c$).

Les paramètres d'activation thermique (ΔG_0 , p et q) sont issus de la bibliographie. Les paramètres laissés libre dans la procédures d'identification sont : $K(20^\circ)$, $\tau_{0,ss}$ et τ_R , les autres paramètres sont issus des résultats expérimentaux ou d'identification obtenus dans la thèse de M. Libert [13]. 100 itérations ont été effectuées lors de l'identification, et plus de poids a été donné aux résultats de la courbe macroscopique et à l'évolution des déformations élastiques de la famille des grains {110} et l'évolution de $\langle\sigma_{11}\rangle_c$ des 5 orientations étudiées. Puisque le modèle utilisé est incapable de décrire le phénomène de Lüders, la partie des courbes qui précède les 1,25% de déformation macroscopique appliquée n'a pas été utilisée dans l'identification (Tab. 1).

Globalement, le modèle reproduit correctement la tendance des courbes expérimentales (Fig. 1). Cependant, des écarts non négligeables sont observés entre les résultats de simulation et le niveau des contraintes obtenus pour l'orientation Cube, composante qui favorise la rupture par clivage : le modèle surestime les contraintes que peuvent subir ces grains. Des écarts modèle/expérience sont aussi obtenus pour les grandes déformations (à partir de ~5%) pour l'orientation C par exemple.

Paramètres associés à la loi d'écoulement :

$\dot{\gamma}_0$ (s ⁻¹) [17]	ΔG_0 (eV) [18]	p [18]	q [18]	τ_R (MPa)
10 ⁶	0,84	0,5	1	476,70

Paramètres liés à l'écroutissage:

τ_0 (MPa)	K (20°C)	a_{ss}	ρ_0 (m ⁻²) [13]
60,94	64,87	0,118	1,1014

TAB. 1 Paramètres utilisés et identifiés lors des simulations par le modèle auto-cohérent.

6 Conclusion

Cette approche originale permet de caractériser expérimentalement le comportement mécanique d'une famille de grains au sein d'un matériau polycristallin: les données sont moyennées sur tous les grains de même orientation cristallographique, ce qui permet une approche intermédiaire entre une caractérisation locale et une mesure plus globale. Ces informations permettent non seulement d'évaluer certains paramètres de modèles de plasticité cristalline, mais également de souligner les qualités et les défauts de tels modèles.

Références

- [1] CLAUSEN B et al., Mat. Sci. Eng. A 259, 17, 1999.
- [2] DAKHLAOUI R et al., Acta Mat. 54, 5027, 2006.
- [3] WANG YD et al., J. Appl. Cryst. 36, 14, 2003.
- [4] KLOSEK V et al., Mat. Sci. Forum 571-572, 89, 2008.
- [5] DAKHLAOUI R et al., soumis à Acta Mat.
- [6] ORTNER B, J. Appl. Cryst. 22, 216, 1989.
- [7] QUINTA DA FONSECA J et al., Mat. Sci. Eng. A 437, 26, 2006.
- [8] SIMMONS G, WANG H, Single elastic constants and calculated aggregate properties : a handbook, Cambridge 1971.
- [9] <http://www-llb.cea.fr/spectros/spectros.html>
- [10] PAWLIK K, OZGA P, LaboTex : the texture analysis software, in Göttinger Arbeiten zur Geologie und Paläontologie, SB4, 1999.
- [11] CHIRON R et al., French CNRS Patent 9305169, 1995.
- [12] TABOUROT L, Thèse, Institut National Polytechnique de Grenoble, 1992.
- [13] LIBERT M, Thèse, Ecole Centrale, Paris, 2006.
- [14] BERVEILLER M, ZAOUÏ A, J. Mech. Phys. Solids 26(5-6), 325, 1978.
- [15] NYE JF, Physical properties of crystals, Oxford, 1985.
- [16] PILVIN P, SiDoLo version 2.4495, 2003.
- [17] S. Bernbenni, micromechanical approach to model the bake hardening effect for low carbon steels. Scripta Materialia, vol.51, 2004
- [18] Naamane S., Thèse, Université Pierre et Marie Curie, Paris, 2008.