

Chapitre II : Matériaux

Dans ce chapitre, nous allons présenter les soudures en alliages base nickel 182 et 82 qui sont utilisées dans le circuit primaire des REP pour assembler les différents composants. Actuellement, celles-ci sont réparées ou remplacées par des soudures en alliages base nickel à plus haute teneur en chrome (52 ou 152) et présentant une meilleure résistance à la CSC.

Différentes techniques de soudage à l'arc sont employées en centrale. De plus les variations de composition chimique du métal d'apport peuvent induire des hétérogénéités de composition (enrichissements ou appauvrissements locaux, précipitation), microstructurales (morphologie des grains, cristallographie).

Dans cette partie, nous allons présenter les techniques de soudage utilisées et voir en quoi elles peuvent avoir un impact sur les caractéristiques des métaux déposés. Dans une seconde partie, seront présentés les moules étudiés ainsi que les différents travaux de caractérisation réalisés.

I) Description générale d'un moule de soudure et comparaison du soudage à l'électrode enrobée et du procédé Tungsten Inert Gas (TIG)

1) Description des moules de soudure étudiés

Dans les REP, le procédé de soudage utilisé est le soudage à l'arc, procédé qui consiste à créer un arc électrique entre la pièce à souder et une électrode. L'énergie calorifique dissipée par l'arc électrique fait fondre le métal d'apport contenu dans l'électrode et crée un bain de fusion.

Le choix de la technique de soudage utilisée dépend de la forme du joint, de sa localisation au sein de la structure et donc de l'espace disponible pour le dispositif de soudage, de l'épaisseur des pièces à souder et du métal d'apport (alliage 182 ou 82). Pour un alliage 82, un soudage par électrode réfractaire (communément appelé TIG pour Tungsten Inert Gas), automatisable est privilégié à la technique de l'électrode enrobée (manuelle) afin de réduire l'exposition aux substances dangereuses potentiellement dégagées pendant l'opération de soudage.

Au cours de ce travail, 3 moules de soudure ont été étudiés : deux moules en alliages 182 (notés D1054 et D1156) et un moule en alliage 82 (noté D1072) soudés respectivement à l'électrode enrobée (manuel) et par TIG (automatique). Dans tous les cas, le métal d'apport a été déposé entre deux plaques en alliage 600 comme illustré sur la Figure 32.

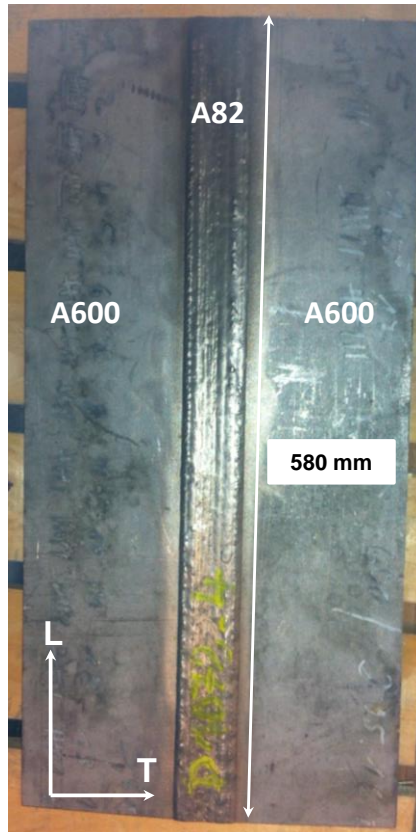


Figure 32 –Vue de dessus d’un moule de soudure étudié (soudure repérée D1072)

Il s’agit de moules en V (Figure 33 (a)) dont les dimensions sont comparables. Le remplissage par le métal d’apport nécessite de réaliser plusieurs passes de soudage, celles-ci n’apparaissent pas sur la Figure 33 (b) mais peuvent être mises en évidence par un polissage miroir suivi d’une attaque électrochimique.

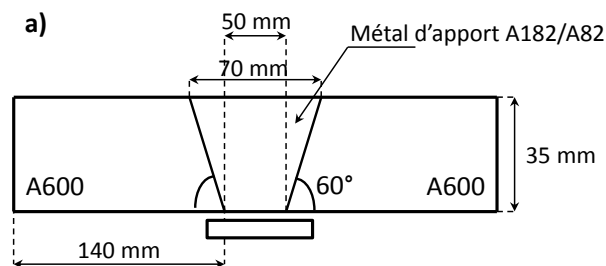


Figure 33 – Coupe dans le plan TS d’une soudure (a) représentation schématique avec indication des dimensions (en mm) et (b) image du moule D1072 étudié

Au cours du soudage, le mouvement des plaques en métal de base peut être autorisé ce qui rend alors possible le retrait des plaques ou encore une distorsion angulaire de l’ordre de 1° à 4°.

Les deux procédés de soudage utilisés pour la fabrication des moules ainsi que l'influence des différents paramètres de soudage sur la microstructure des alliages déposés sont présentés dans la partie suivante.

2) Description des procédés de soudage à l'électrode enrobée et TIG

Le procédé de soudage regroupe toutes les étapes qui sont appliquées à une ou plusieurs pièces métalliques et qui visent à obtenir un assemblage soudé remplissant un certain nombre de critères (bonne liaison avec le métal de base, inclusions et porosités limitées).

Le schéma de principe du soudage à l'électrode enrobée et TIG est représenté sur la Figure 34.

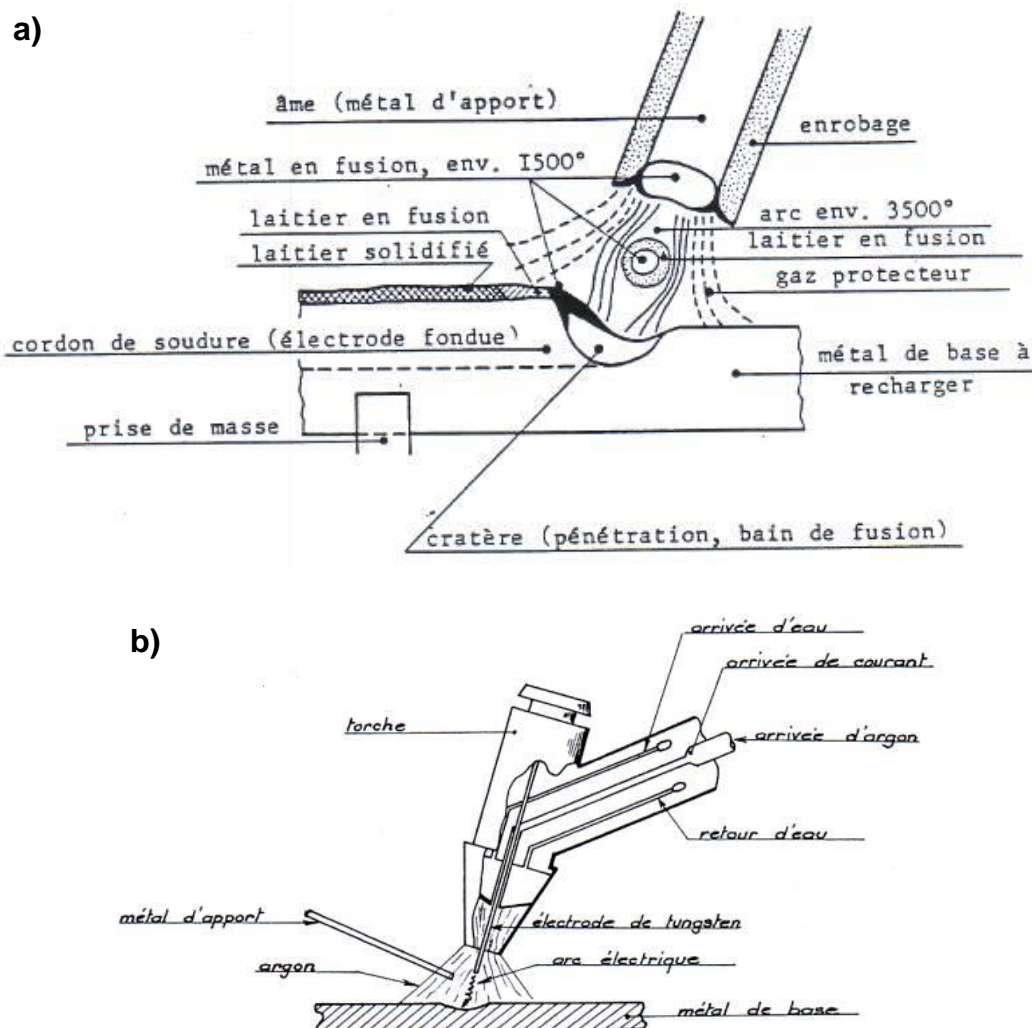


Figure 34 – Schémas de principe des techniques de soudage à l'arc (a) à l'électrode enrobée et (b) Tungsten Inert Gas [92]

La principale différence entre les deux techniques réside dans le fait que le métal d'apport provient directement de l'électrode dans le cas du soudage à l'électrode enrobée (Figure 34 (a)). Lors du soudage TIG, le métal d'apport est amené manuellement par l'intermédiaire d'une baguette ou automatiquement par le biais d'un fil déroulé, l'électrode réfractaire en tungstène étant quant à elle infusible. Le fil contient directement les éléments d'alliage permettant d'obtenir une soudure possédant la microstructure et les propriétés mécaniques souhaitées. Celui-ci peut être recouvert

d'une fine couche de cuivre dans le but de garantir un bon contact électrique lors du soudage, ce qui peut expliquer que du cuivre soit parfois retrouvé dans les soudures [74].

Dans le cas de l'électrode enrobée, la fusion de l'enrobage crée une atmosphère gazeuse et un laitier protégeant la soudure de l'oxydation alors que cette protection est assurée par l'intermédiaire d'un gaz inerte (argon ou mélange argon/hydrogène) lors du soudage TIG.

Un comparatif des deux procédés de soudage à l'arc utilisés dans les cas étudiés, électrode enrobée et TIG est proposé dans le Tableau 8 [93, 94].

Tableau 8 – Comparaison des principales caractéristiques des procédés de soudage à l'arc (électrode enrobée et TIG) [93, 94]

Caractéristique	Electrode enrobée	TIG
Epaisseur des pièces à souder (mm)	5 à 20	0,5 à 10
Procédé	Manuel	Manuel ou automatique
Courant (A)	50 à 250	2 à 400
Protection du bain de fusion	Enrobage	Gaz (argon, argon + hydrogène, ou autres)
Vitesse opératoire (mm/min)	60 à 420 (en fonction de l'électrode)	~ 200
Mise en œuvre	Simple	Complicquée

D'après le Tableau 8, des épaisseurs plus importantes peuvent être soudées avec des électrodes enrobées. Ce procédé est exclusivement manuel tandis que le soudage TIG est automatisable. En revanche, la mise en œuvre du soudage TIG est plus compliquée du fait de l'espace nécessaire puisqu'il requiert un flux de gaz protecteur.

Le choix du diamètre de l'électrode ou du fil déroulé, de la vitesse de soudage, de l'intensité (I) et de la tension (U) de l'arc dépendent de la géométrie de la zone à souder (écartement, régularité de l'espace entre les pièces). Plus l'écartement entre les pièces à souder est faible, plus la vitesse de soudage est élevée [94]. Lors du soudage de deux pièces bout à bout, plusieurs configurations illustrées en Figure 35 peuvent être envisagées.

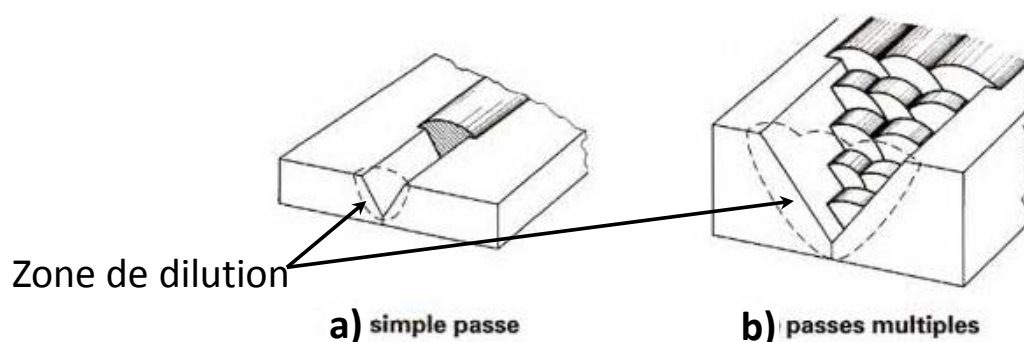


Figure 35 – Illustration de différentes configurations de soudage de deux pièces : (a) simple passe (b) passes multiples [93]

Elles sont fonction de l'épaisseur des pièces à souder, de la forme du joint et de son accessibilité. En Figure 35 (a), la liaison métallique est assurée par une simple passe, un seul cordon est déposé. En revanche, dans la configuration de la Figure 35 (b), le remplissage est garanti au moyen de passes multiples superposées. C'est la configuration de la Figure 35 (b) qui sera étudiée au cours de ce travail. Lors d'un soudage constitué de multiples passes, chaque nouvelle passe agit comme un

« traitement thermique » sur la passe précédente pouvant modifier les propriétés du joint final (caractéristiques mécaniques ou contraintes internes, modifications microstructurales).

3) Influence des différents paramètres de soudage dans les techniques utilisées

Dans cette partie, nous allons présenter différents paramètres de soudage et voir en quoi ceux-ci peuvent affecter la microstructure finale de la soudure.

a) Influence de l'enrobage de l'électrode

Dans le cas du soudage par électrode enrobée, on distingue plusieurs types d'enrobage : cellulosique, basique, rutile. Ceux-ci diffèrent par leur composition chimique. Le type d'enrobage peut conditionner la vitesse de soudage accessible, la quantité d'hydrogène présent dans le bain fondu, ce qui peut modifier la qualité de la soudure et imposer des précautions à prendre lors de l'opération de soudage. Ces conditions sont résumées pour les trois types d'enrobage évoqués dans le Tableau 9.

Tableau 9 – Synthèse des caractéristiques de soudage en fonction de l'enrobage de l'électrode d'après [94]

Enrobage	Vitesses de soudage accessibles (mm/min)	Quantité d'hydrogène diffusant dans le métal déposé
Cellulosique	180 à 420	>10 cm ³ par 100 g de métal fondu
Basique	60 à 120	2 à 10 cm ³ par 100 g de métal fondu en fonction du type d'électrode
Rutile	180	>10 cm ³ par 100 g de métal fondu

La vitesse de soudage influence directement l'énergie calorifique linéique dissipée par l'arc E_a (en kJ/cm). Elle est donnée par l'Équation 8 (U est exprimée en V, I en A et V_{soudage} est donnée en cm/min).

$$E_a = \frac{60 * U * I}{10^3 * V_{\text{soudage}}} \quad \text{Équation 8}$$

Une valeur de E_a élevée peut occasionner une fragilisation de l'assemblage. Par ailleurs, la quantité d'hydrogène susceptible de diffuser dans le métal déposé est plus importante lorsque la vitesse de soudage est élevée. Ceci est aussi indirectement lié à l'enrobage d'après le Tableau 9.

b) Influence de la vitesse de soudage

Différentes gammes de vitesse de soudage sont accessibles. Celles-ci peuvent notamment varier en fonction du procédé de soudage sélectionné, de l'enrobage de l'électrode ou encore de l'écartement entre les pièces à souder. Ce paramètre affecte directement l'énergie calorifique linéique dissipée par l'arc suivant l'Équation 8.

D'un point de vue microstructural, la vitesse de soudage a un impact sur la morphologie des grains dans un cordon comme illustré sur la Figure 36 [95].

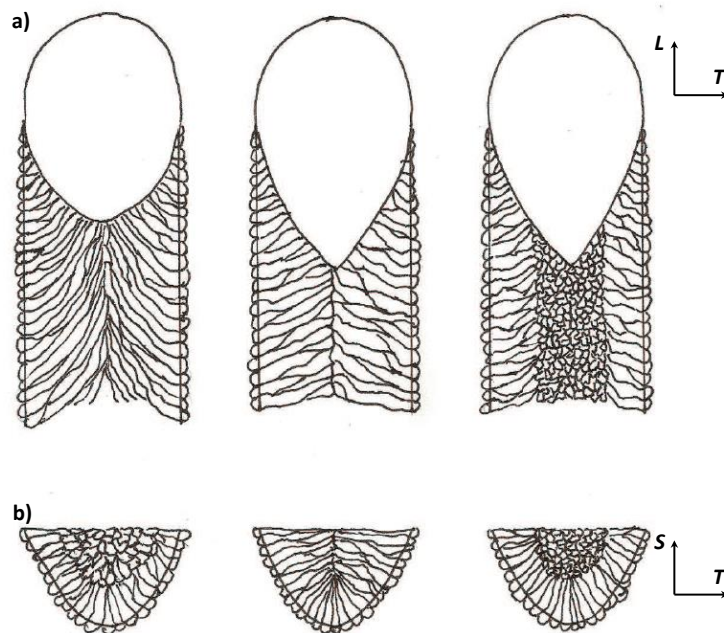


Figure 36 – Vues en coupe (a) longitudinale et (b) transversale de la microstructure de la soudure pour une vitesse de soudage croissante (de la gauche vers la droite) [95]

Quelle que soit la vitesse de soudage (Figure 36), la solidification du bain se fait à partir des grains situés sur la bordure du bain fondu et la croissance des grains se fait en épitaxie depuis la Zone Affectée Thermiquement (suivant le plus fort gradient thermique).

Pour une vitesse de soudage lente (Figure 36, à gauche), les grains ont une morphologie colonnaire et la direction de leur grande orientation est différente en fonction de leur position dans la soudure.

Pour des vitesses de soudage intermédiaires (Figure 36, au centre), les grains colonnaires se rejoignent au centre du cordon qui constitue une zone de ségrégation privilégiée des espèces pendant la solidification. Cette configuration est la plus défavorable vis-à-vis de la fissuration à chaud.

Pour une vitesse de soudage élevée (Figure 36, à droite), une microstructure mixte est observée avec des grains colonnaires sur les bords du cordon et des grains équiaxes dans la partie centrale de la soudure. La germination et la croissance des grains de la zone centrale seraient favorisées par la présence d'impuretés de composition différente ainsi que par les conditions thermiques. Ce type de configuration est à privilégier d'un point de vue mécanique. De plus, la ségrégation au centre du cordon est limitée.

c) Influence du diamètre de l'électrode / du fil

Ce paramètre dépend de la géométrie des pièces à souder, en particulier de leur écartement et de leur épaisseur. Le Tableau 10 indique le diamètre de l'électrode/fil à utiliser en fonction de la dimension du joint à souder suivant l'axe S.

Tableau 10 – Diamètre de l'électrode en fonction de l'épaisseur des pièces à souder [93]

Epaisseur de joint (mm)	Diamètre de l'électrode (mm)
1 à 2	2
2 à 4	2,5 à 3,2
5 à 30	4 à 5
>30	5 à 6,3

La puissance électrique ($U * I$) augmente avec le diamètre de l'électrode ce qui, d'après l'Équation 8 donne lieu à une augmentation de l'énergie de soudage dissipée par l'arc et peut donc abaisser les propriétés (notamment mécaniques) de la soudure.

d) Influence de l'intensité du courant de soudage

La gamme d'intensités utilisées pour le soudage des alliages base nickel doit être relativement faible [96] afin de réduire l'énergie calorifique. L'effet de l'intensité sur la zone ionisée dans la pièce à souder est illustré par la Figure 37.

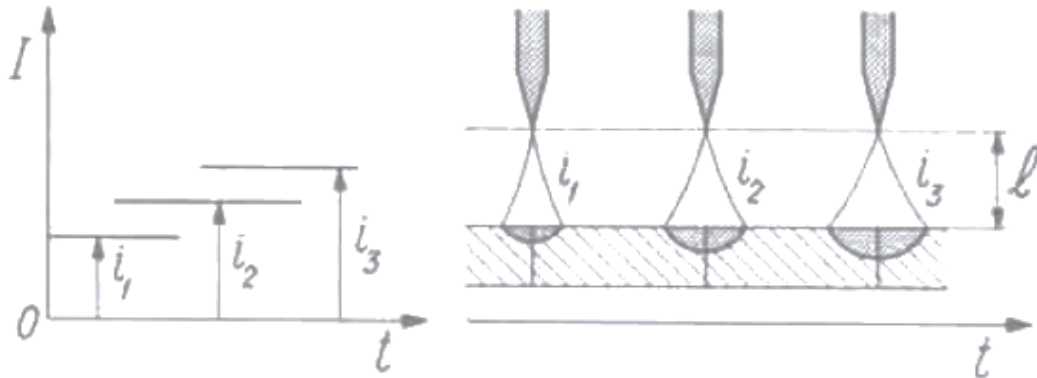


Figure 37 – Effet de l'intensité sur l'espace ionisé [97]

Pour une distance entre l'électrode et la pièce à souder constante, on note sur la Figure 37 que la dimension du bain fondu augmente avec l'intensité de soudage I.

4) Paramètres de soudage utilisés pour les alliages base nickel 182 et 82 étudiés

Dans cette partie, sont présentés les différents paramètres pouvant être modifiés au cours de l'opération de soudage, ceux-ci peuvent avoir une influence sur les propriétés (microstructure, précipitation, présence d'inclusions ou d'impuretés, comportement mécanique) du moule de soudure.

D'après le Tableau 9, les vitesses de soudage pratiquées pour des enrobages basiques sont faibles. Ce type d'enrobage est plus adapté au soudage d'alliages base nickel car il limite l'énergie calorifique linéique dissipée pendant le soudage. Cela évite un grossissement des grains trop important [98] et réduit l'hydrogène pouvant diffuser dans le métal déposé. Il assure également une haute pureté de la soudure (peu de soufre, phosphore, oxygène et d'inclusions solides) et de bonnes caractéristiques mécaniques (limite d'élasticité, allongement à la rupture, résilience) [94].

D'un point de vue microstructural, la proportion des différents types de joints de grains (CSL, LAGB ou HAGB) peut également être affecté par la vitesse de soudage [99]. Des analyses par Electron Back Scattered Diffraction (EBSD) réalisées sur différents cordons réalisés avec le même alliage de soudure 182 (D1054) ont mis en évidence une augmentation de la proportion de LAGB lorsque l'on s'éloigne d'une vitesse nominale de 15 cm/min (vitesse nominale pour la soudure D1054 étudiée).

Des électrodes de diamètre 4 mm ont été utilisées pour les soudures en alliage 182 (électrode enrobée) alors que pour l'alliage 82 (TIG), le diamètre du fil est compris entre 1 et 2 mm.

Des analyses EBSD effectuées sur des cordons de soudures réalisés pour différentes intensités de soudage ont montré une augmentation de la proportion de joints de grains faiblement désorientés (LAGB) pour une augmentation de l'intensité de soudage [99].

Pour les trois moules de soudure étudiés pendant la thèse, les paramètres de soudage sont regroupés dans le Tableau 11.

**Tableau 11 – Conditions de soudage des alliages base nickel 182 et 82 étudiés -
* : condition inconnue**

Soudure	I (A)	U (V)	T _{interpasse} (°C)	V _{soudage} (mm/min)	E _a (kJ/mm)	Procédé
D1054 (182)	110	28	128	150 à 170	1,09 à 1,23	Electrode enrobée
D1156 (182)	140	25	*	203 à 229	0,92 à 1,03	
D1072 (82)	*	*	*	*	*	Tungsten Inert Gas (TIG)

D'après les données du Tableau 11, la vitesse de soudage est proche de 15 cm/min pour la soudure D1054 tandis qu'elle est supérieure à 20 cm/min pour la soudure D1156, ce qui peut potentiellement se traduire par une plus forte proportion de joints faiblement désorientés. Toutefois, les gammes d'énergies de soudage développées bien que légèrement plus faible pour la soudure D1156 que pour la soudure D1054 restent assez proches entre les deux soudures en alliage 182. Les paramètres de soudage sont inconnus pour la soudure en alliage 82.

Nous rappelons que les métaux déposés étudiés sont constitués de plusieurs passes de soudage, il est fortement probable que les cycles thermiques occasionnés par le soudage aient un impact sur la microstructure finale ainsi que sur les contraintes résiduelles introduites dans le métal déposé du fait du bridage des pièces à souder ou encore du meulage des soudures. Ces aspects n'ont toutefois pas été analysés au cours de cette étude.

II) Description des métaux déposés en alliages 182 et 82 étudiés

Dans cette partie vont être présentées les résultats des caractérisations réalisées à une échelle plus fine (étude de la chimie locale et de la précipitation intergranulaire).

1) Présentation générale des matériaux de l'étude

Compositions chimiques des soudures :

Les compositions chimiques des métaux déposés repérés D1054, D1156 et D1072 évaluées par fluorescence X sont regroupées dans le Tableau 12.

Tableau 12 – Composition chimique des métaux déposés étudiés (% mass.) – comparaison avec les spécifications du code RCC-M

Mat.	C	S	P	Si	Mn	Ni	Cr	Mo	N	Co	Cu	Ti	Nb	Ta	Al	Fe	O
D1054	0,026	0,003	<0,02	0,35	6,2	69,2	15,0	<0,05	0,03	<0,07	<0,05	0,05	2,0		<0,07	6,9	0,035
D1156	0,045	0,013	0,013	0,4	6,4	68,99	14,4	-	0,014	0,08	0,033	0,14	1,7	<0,037	-	7,7	0,037
RCC-M (A182)	≤0,1	≤0,015	≤0,03	≤10,6	5,0 à 9,5	>59	13 à 17	-	-	≤0,1	≤0,5	≤1	1,8		-	6 à 10	-
D1072	<0,005	<0,005	<0,01	0,1	3,2	71,39	20,8	0,02	0,03	<0,01	0,02	0,4	2,8	-	0,1	1,1	<0,01
RCC-M (A82)	≤0,1	≤0,015	≤0,03	≤0,5	2,5 à 3,5	>67	18 à 22	-	-	≤0,1	≤0,5	≤0,75	2 à 3		-	≤3	-

Les soudures étudiées ont des compositions chimiques respectant les spécifications françaises (RCC-M).

La teneur en chrome des matériaux D1054 et D1156 (alliages 182) est d'environ 15 % en masse tandis que la teneur en chrome de l'alliage 82 étudié (D1072) est supérieure à 20 % massique. Ceci est dû à l'utilisation d'un métal d'apport plus riche en chrome dans les alliages 82 par rapport aux alliages 182. Le chrome est un élément d'addition qui augmente la résistance à la corrosion et à l'oxydation des soudures.

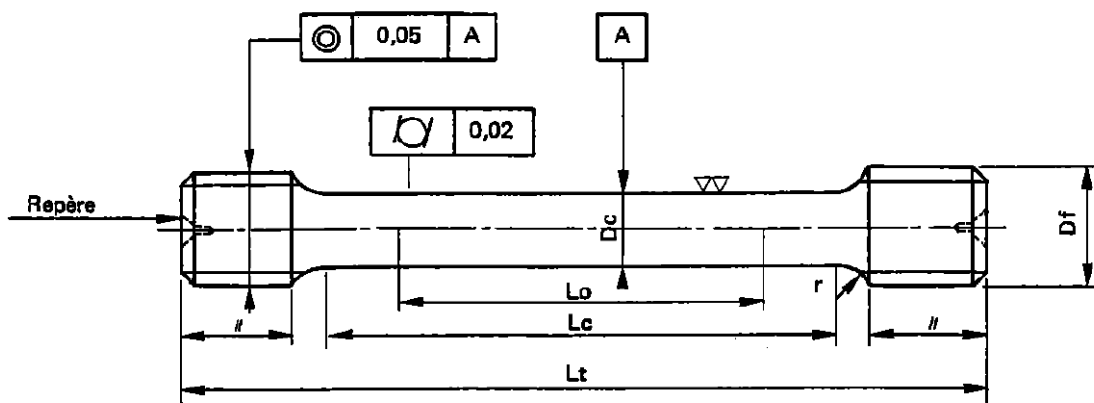
La teneur en carbone des soudures étudiées est de 0,045 % en masse dans la soudure D1156 contre 0,026 et 0,005 % en masse dans les soudures repérées D1054 et D1072. Une augmentation de la teneur en carbone peut favoriser une précipitation de carbures, et notamment de carbures de chrome, ce qui serait bénéfique pour l'amorçage et la propagation de la CSC.

La teneur en silicium est quant à elle de 0,35 et 0,40 % en masse dans les soudures D1054 et D1156 tandis que celle-ci n'est que de 0,1 % en masse sur le matériau repéré D1072. D'après le chapitre précédent, une augmentation de la teneur en silicium peut légèrement retarder l'amorçage de la CSC. Toutefois, l'influence de la variation de la teneur en Si entre l'alliage 82 et les alliages 182 étudiés reste minime devant l'effet de la teneur en chrome.

Le molybdène accroît la résistance à chaud et à l'abrasion et enfin le manganèse permet de neutraliser l'éventuelle fragilisation de la soudure engendrée par le soufre [100].

Propriétés mécaniques des soudures :

Des essais de traction monotone ont été réalisés sur des éprouvettes axisymétriques prélevées dans la partie centrale des moules de soudure (Figure 38).



D_c	L_c	L_0	L_t	r	D_f	Φ	S	Tolérance
6 +/- 0,06	42	30	66	5	M9x125	2,5	28,8	+/- 0,1

Figure 38 – Schéma et dimensions (en mm) des éprouvettes de traction axisymétrique servant à identifier les propriétés mécaniques des matériaux étudiés – M9 x 125 correspond à la référence du filetage des têtes d'éprouvette

Le Tableau 13 regroupe les différentes propriétés mécaniques mesurées au cours des essais de traction réalisés sur les différentes soudures. Celles-ci respectent les spécifications françaises (RCC-M) de l'alliage 182 à température ambiante et à 360°C. A noter qu'il n'existe pas de spécification RCC-M pour l'alliage 82.

Tableau 13 – Propriétés mécaniques en traction des différentes soudures étudiées - * : valeur inconnue – l'état métallurgique des éprouvette est indiqué BS : Brut de Soudage et TTD : Traitement Thermique de Détensionnement

soudure	20 °C				360 °C			
	$Rp_{0,2}$ (MPa)	Rm (MPa)	All. %	E (GPa)	$Rp_{0,2}$ (MPa)	Rm (MPa)	All. %	E (GPa)
D1054 (L) État BS	386	627	33	158	347	568	46	144
D1156 (L) Etat TTD	352	707	35	203	307	653	40	169
RCC-M (182)	≥ 250	≥ 550	≥ 30	*	> 190	*	*	*
D1072 (T) Etat BS	436	646	*	191	377	486	*	177
D1072 (L) Etat BS	421	665	43	172	357	563	44	161

Dans le Tableau 13, $Rp_{0,2}$ est la limite d'écoulement plastique, Rm la contrainte à rupture, All. représente l'allongement final et E le module de Young. Les soudures en alliage 182 ont été testées suivant l'axe L de la soudure tandis que le moule D1072 (alliage 82) a été testé suivant les axes L et T.

Les différences observées, notamment en ce qui concerne l'amplitude de variation des limites d'élasticité peuvent être reliées à l'état métallurgique dans lequel se trouvent les soudures. En effet, la soudure D1054 est dans un état dit brut de soudage et la soudure D1156 a subi un traitement thermique dit de détensionnement, effectué pour éliminer les contraintes résiduelles de l'acier. Les

essais suivant les orientations L, et T de la soudure D1072, laissent apparaître une anisotropie de comportement notamment avec un écrouissage plus important suivant L que suivant T, et cela quel que soit la température d'essai. Aucun essai n'a en revanche pu être réalisé suivant l'axe S étant donné la dimension des moules suivant cet axe, trop petite comparée à la longueur totale des éprouvettes. On peut toutefois suspecter une limite d'élasticité plus faible suivant cet axe de sollicitation du fait des grains plus gros suivant S.

Notons enfin, que la limite d'élasticité à froid est plus élevée dans la soudure repérée D1072.

Compte tenu de la taille de grains qui est millimétrique suivant S et du diamètre des éprouvettes d'environ 4 mm, il est possible que la zone utile de l'éprouvette ne comprenne que quelques grains suivant cette direction et entre 50 et 100 grains dans les deux autres directions en fonction du type de prélèvement choisi. La zone utile de l'éprouvette ne contiendrait donc qu'environ 30000 grains, ce qui reste faible vis-à-vis des hypothèses de volume élémentaire représentatif. On peut toutefois estimer que si le prélèvement des éprouvettes de traction dans le milieu de la soudure permet de caractériser le comportement mécanique, ce dernier ne sera pas représentatif des éventuelles hétérogénéités associées au comportement au niveau de la racine, du sommet ou proche des lignes de fusion.

Résistance à la CSC des alliages base nickel étudiés :

Comme évoqué précédemment, parmi les métaux déposés étudiés, les soudures D1054 et D1072 sont à l'état Brut de Soudage (BS) tandis que la soudure D1156 a subi un Traitement Thermique de Détensionnement (TTD) de 10 h à 610°C (Tableau 14).

Tableau 14 – Soudures étudiées au cours de la thèse [29, 36, 39, 101]

Matériau	N° du moule	Etat	Sensibilité à la CSC (amorçage et propagation)
Alliage 182	D1054	Brut de Soudage	Très sensible à la CSC
	D1156	Traité Thermiquement 10 heures à 610°C puis refroidissement à l'air	Résistant à la CSC
Alliage 82	D1072	Brut de Soudage	

Des essais de laboratoire menés sur des éprouvettes de type U-bends sur les soudures D1054 et D1156 [36, 101] ainsi que des essais de propagation [102] ont mis en évidence une meilleure résistance à la CSC de la soudure D1156 par rapport à la soudure D1054. En revanche, aucun essai d'amorçage ou de propagation de la CSC n'a été mis en œuvre sur la soudure en alliage 82 repérée D1072. Toutefois, le retour d'expérience d'essais de laboratoire et du parc international fait état d'une meilleure résistance à la CSC des soudures en alliages base nickel 82 par rapport aux alliages 182 [8, 36].

III) Caractérisations microstructurales des soudures étudiées

Dans cette partie vont être présentées les différentes caractérisations locales par EBSD, microsonde de Castaing, Microscopie Electronique à Balayage (MEB) ou Microscopie Electronique en Transmission (MET) qui ont été réalisées sur les trois soudures étudiées. L'objectif est d'étudier en quoi la composition chimique, la technique de soudage ou encore le traitement thermique de détensionnement influent sur la microstructure et affectent potentiellement la résistance à la CSC.

1) Présentation des caractéristiques microstructurales générales des soudures étudiées

La morphologie et la taille des grains dans les plans TS et TL ont été étudiées par EBSD pour chaque soudure (Figure 39).

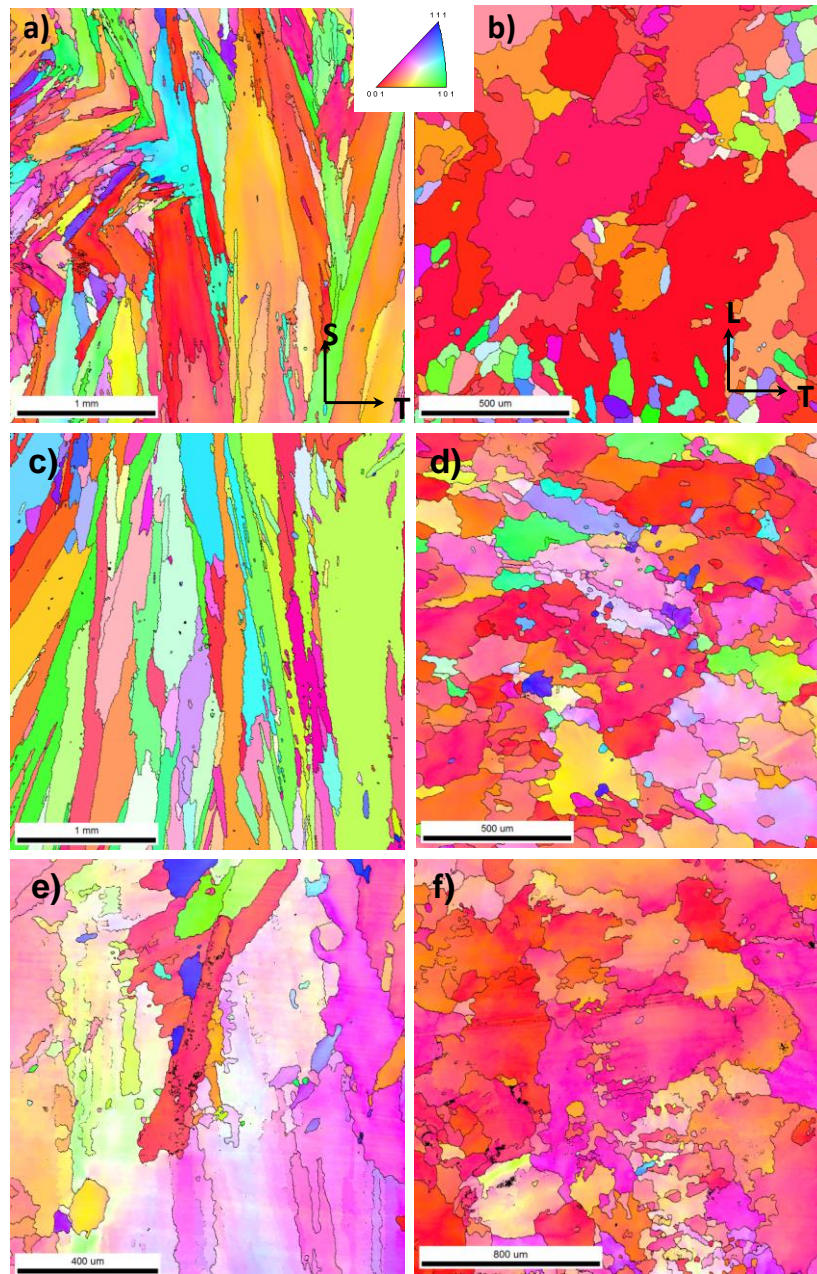


Figure 39 – Figures de pôles inverses obtenues par EBSD dans les soudures repérées D1054 (a) plan d'analyse : TS (axe : L), (b) plan d'analyse : TL (axe : S) ; D1156 (c) plan d'analyse : TS (axe : L), (d) plan d'analyse : TL (axe : S) et D1072 (e) plan d'analyse : TS (axe : L), (f) plan d'analyse : TL (axe : S)

Les cartes d'orientations cristallographiques présentées sur les Figure 39 et Figure 40 ont été tracées à partir du logiciel TSL OIM™. Sur ces images, chaque couleur du triangle standard correspond à une orientation cristallographique précise déterminée par les trois angles d'Euler (φ_1 , Φ et φ_2). Les cartes EBSD réalisées dans les plans TS et TL (Figure 39) mettent également en exergue les hétérogénéités morphologiques et de taille des grains. Dans le plan TS, les grains sont colonnaires (plusieurs

millimètres suivant S et jusqu'à quelques centaines de μm suivant T). En revanche, dans le plan TL, les grains sont relativement équiaxes avec une hétérogénéité dans les tailles des grains, pouvant atteindre plusieurs centaines de μm suivant L et T. A partir des cartographies de la Figure 39, des tailles de grains moyennes (diamètre équivalent au sens de la surface de grains ramenée à celle d'un cercle équivalent) (Tableau 15) ont été évaluées par la méthode des intercepts.

Tableau 15 – Comparaison des tailles de grains estimées par la méthode des intercepts sur les soudures D1054, D1156 et D1072

Soudure	T	L	S
D1054	110 μm	120 μm	430 μm
D1156	120 μm	70 μm	530 μm
D1072	150 μm	170 μm	310 μm

Les dimensions moyennes des grains suivant les directions T et S (Tableau 15) sont équivalentes dans les soudures repérées D1054, D1156 et D1072. En revanche, la taille de grains déterminée suivant la direction L est plus petite dans la soudure repérée D1156 par rapport aux deux autres alliages analysés. Cette observation est très certainement liée à la forte proportion de petits grains observés sur la figure de pôles inverses de la Figure 39 (d).

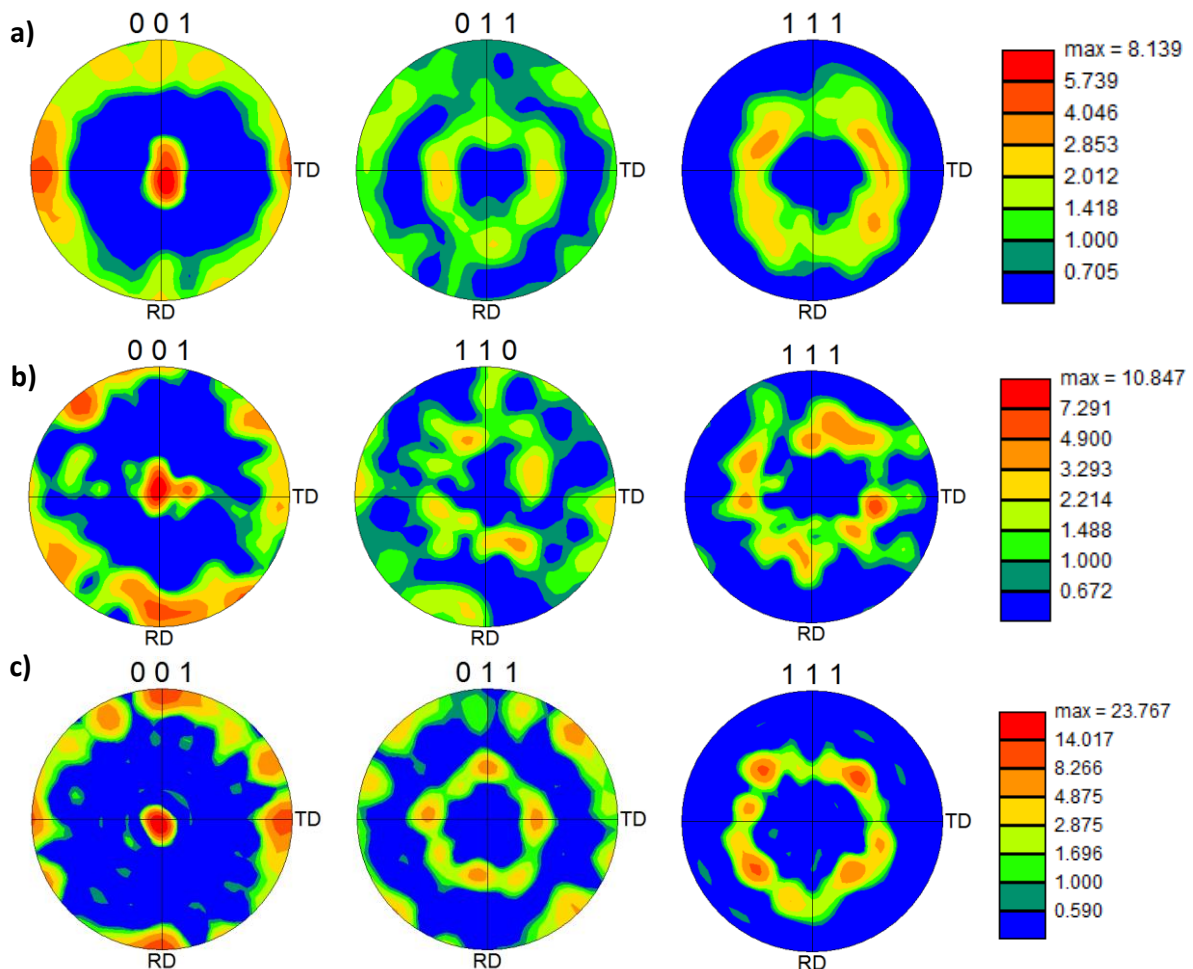


Figure 40 – Figures de pôles obtenues par EBSD dans les soudures (a) D1054 (alliage 182) dans le plan d'analyse TL pour un axe d'analyse S (b) D1156 (alliage 182) dans le plan d'analyse TS pour un axe d'analyse L (c) D1072 (alliage 82) dans le plan d'analyse TL pour un axe d'analyse S

Les Figure 40 (a), (b) et (c) correspondent aux figures de pôles dans le plan TS des soudures D1054, D1156 et D1072. Celles-ci indiquent une orientation préférentielle des directions $\langle 001 \rangle$ suivant l'axe S

de la soudure. La texture semble être plus marquée pour la soudure D1072 et D1156 que pour la soudure D1054.

La morphologie colonnaire des grains rencontrés dans les soudures est issue d'une croissance dendritique. Les dendrites sont mises en évidence par des micrographies en microscopie optique (MO) dans le plan TS de la soudure après un polissage mécanique soigné jusqu'à la pâte diamantée de 1 μm suivi d'une attaque électrolytique à l'acide oxalique (3 minutes à 1,7 V et à température ambiante).

Les micrographies de la Figure 41 ont été prises près de la ligne de fusion entre la soudure (soudure en alliage 182 repérée D1054) et le métal de base (alliage 600). Les axes de croissance des dendrites sont indiqués par des flèches rouges. Il apparaît, de plus, des alignements de précipités le long de ces dendrites. Cette précipitation provient du rejet des solutés tels que le niobium ou le chrome en phase liquide au cours de la solidification de la soudure [103].

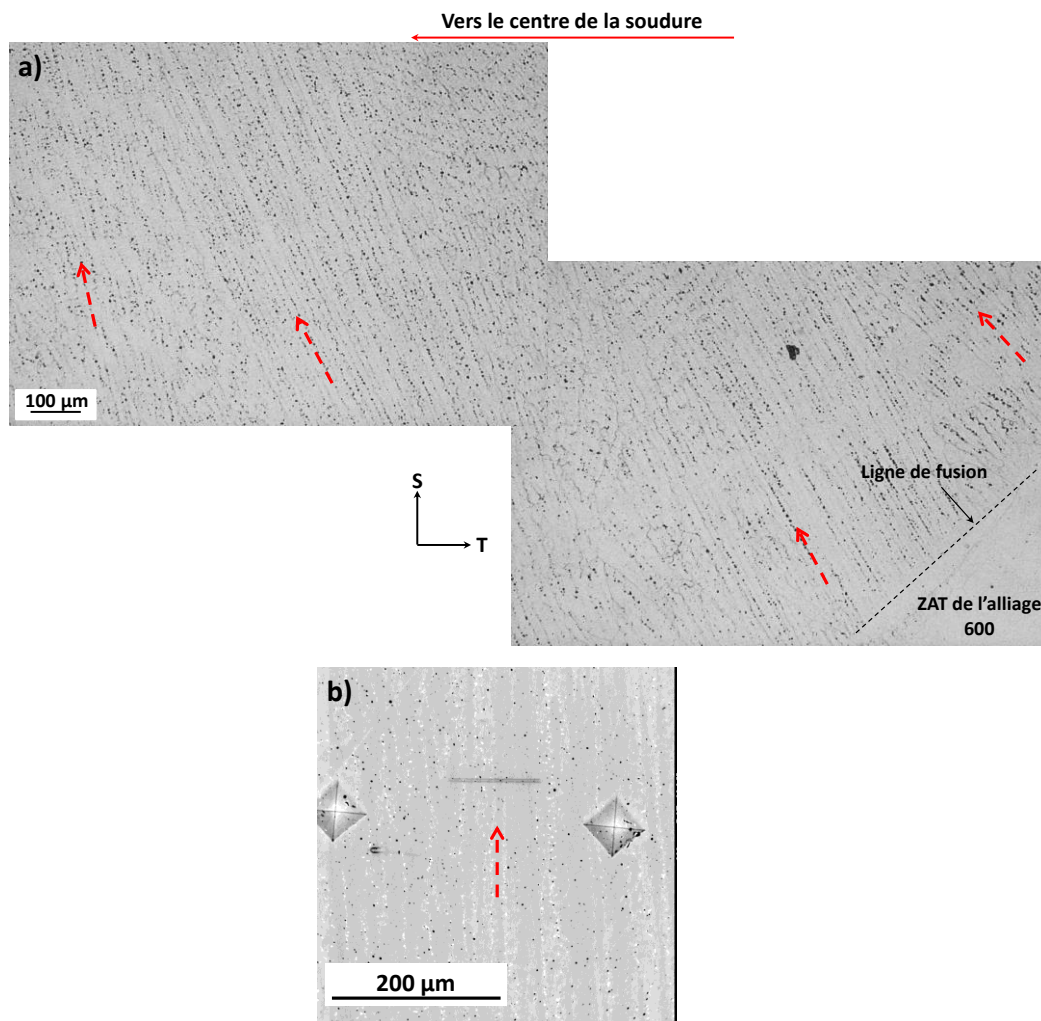


Figure 41 – Micrographies en (a) MO dans le plan ST de l'alliage 182 (noté D1054) et (b) MEB en mode électrons rétrodiffusés – les flèches rouges indiquent les axes de croissance des dendrites

On note qu'à proximité de la ligne de fusion, les dendrites croissent perpendiculairement à celle-ci. Lorsque l'on se dirige vers le centre de la soudure, l'axe de croissance des dendrites devient parallèle à la direction S de la soudure (Figure 41 (b)). L'orientation des dendrites provient des conditions de refroidissement et notamment de l'anisotropie du gradient thermique. Le gradient thermique étant plus

important suivant l'axe S ceci explique que l'on observe des dendrites majoritairement orientées suivant cet axe. Dans le cas des procédés de soudage multi-passes (plusieurs cordons de soudures sont déposés suivant l'axe L), la direction de croissance des dendrites semble être conservée entre deux passes successives dans la plupart des cas [104] et la croissance des dendrites se poursuit d'une passe à l'autre.

2) Caractérisation des différents types de joints de grains

Comme cela a été détaillé dans la partie de [synthèse bibliographique](#). De nombreuses études ont mis en évidence une plus grande résistance des joints de coïncidence à l'amorçage ou à la propagation de la CSC [15, 16, 84]. Ainsi, des analyses EBSD ont été mises en œuvre sur les trois soudures étudiées afin de caractériser la proportion des différents types de joints de grains présents dans nos matériaux.

Etant donné la taille de grains importante, plusieurs cartographies ont été réalisées de manière à couvrir une zone d'analyse englobant un nombre suffisant de grains (supérieur à 100 grains). Les surfaces analysées sur les soudures repérées D1054, D1156 et D1072 sont respectivement de 25 mm², 10 mm² et 10 mm². Les analyses ont été effectuées dans la partie centrale des joints soudés (plans d'analyse TS et TL), la distinction entre les deux plans n'a pas été regardée.

Les fractions linéiques de joints de coïncidence (CSL), faiblement désorientés (LAGB) et fortement désorientés (HAGB) ont été caractérisées dans les trois soudures. Un critère de désorientation de 20° a été utilisé pour distinguer LAGB et HAGB. En comparaison de la fraction en nombres de joints, la fraction linéique permet de mieux traduire le poids sur la sensibilité à la CSC d'un long joint de type HAGB par rapport à un joint de coïncidence plus court.

Les fractions linéiques ont été calculées comme il suit :

$$f_{CSL} = \frac{l_{CSL}}{l_{CSL} + l_{LAGB} + l_{HAGB}} \quad \text{Équation 9}$$

Dans l'Équation 9, la fraction en longueur de joints de coïncidence (f_{CSL}) est exprimée en fonction de la longueur totale de joints de coïncidence (l_{CSL}), de la longueur totale de joints de grains généraux faiblement désorientés (l_{LAGB}) et de la longueur totale de joints de grains généraux fortement désorientés (l_{HAGB}), dans la zone d'analyse.

A noter que nous avons uniquement considéré les joints de coïncidence $\Sigma 3$, $\Sigma 5$, $\Sigma 7$, $\Sigma 9$, $\Sigma 11$ et $\Sigma 27$ dans le calcul de f_{CSL} étant donné la très faible présence des autres joints de coïncidence. Au-delà ($\Sigma > 29$), les joints de grains sont considérés comme appartenant à la catégorie des joints généraux [105].

La Figure 42 représente les fractions en longueurs f_i des CSL, des HAGB et des LAGB dans nos matériaux.

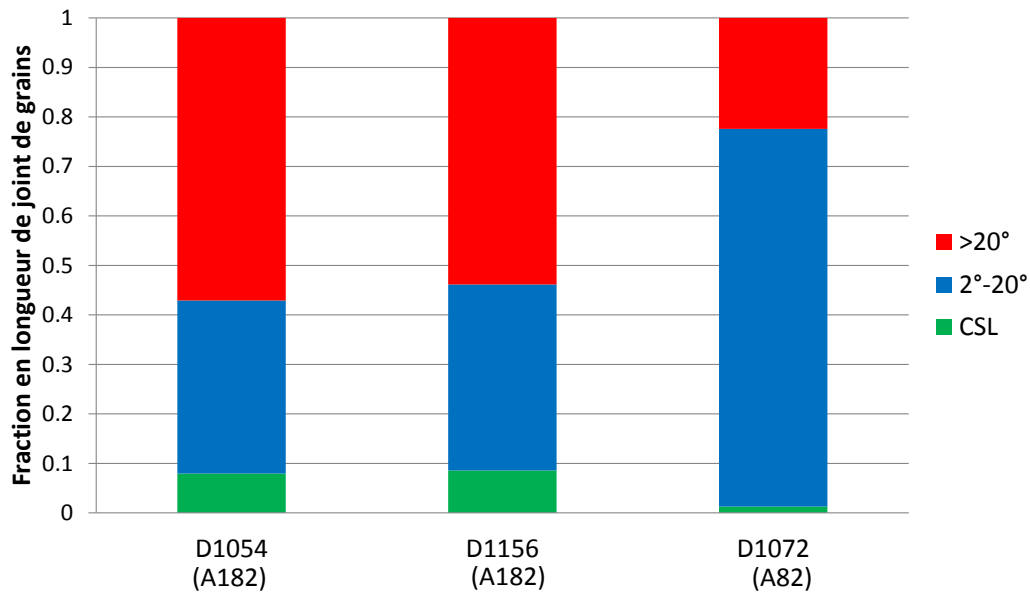


Figure 42 – Fractions linéiques de joints de coïncidence (CSL), de joints de généraux de type LAGB ($\Delta\theta < 20^\circ$) et HAGB ($\Delta\theta > 20^\circ$) dans les matériaux D1054, D1156 et D1072

Il apparaît que les fractions linéiques de CSL, LAGB et HAGB sont similaires dans les soudures D1054 et D1156 (alliages 182). Ces métaux déposés présentent en effet, une forte proportion de joints de grains fortement désorientés (~ 60 %) et une faible quantité de joints de coïncidence (< 10 %). En revanche, les analyses par EBSD du moule de soudure D1072 (alliage 82) montrent une plus forte proportion de joints généraux faiblement désorientés (~ 75 %), réduisant la grandeur f_{HAGB} à 20 % et très peu de joints de coïncidence.

A partir de ces mêmes analyses (Figure 42), il est possible de tracer les distributions détaillées pour les trois matériaux inspectés (Figure 43).

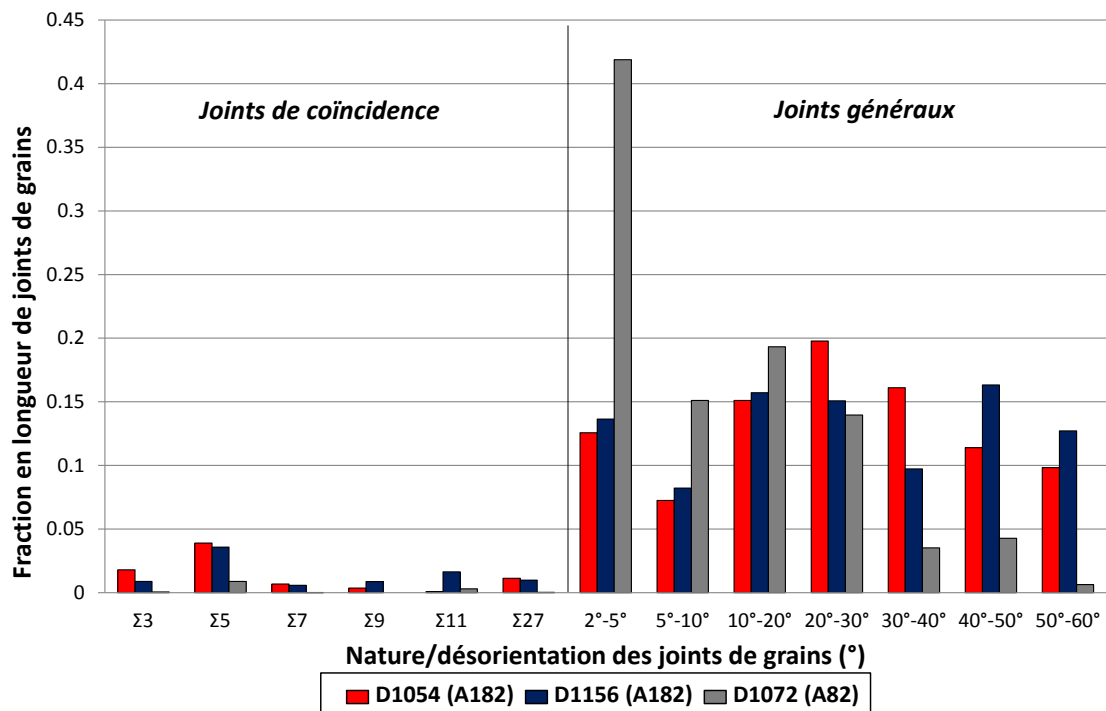


Figure 43 – Distributions détaillées des fractions linéiques des joints de grains en fonction de la nature du joint et de la désorientation (en °) dans les matériaux D1054, D1156 et D1072

D'après les analyses réalisées sur les soudures en alliages 182 (D1054 et D1156), mises en œuvre par des procédés de soudage comparables (soudage manuel à l'électrode enrobée), les distributions des fractions linéiques de joints de nature ou de désorientations différentes sont similaires. Ces résultats semblent indiquer que la variation de E_a entre la soudure D1054 et D1156 ou le TTD n'impliquent pas de modifications notables en termes de nature et de désorientation des joints de grains.

Au contraire, les résultats obtenus sur la soudure en alliage 82 (D1072) montrent une fraction 4 fois plus élevée de joints de très faible désorientation (angle $\leq 5^\circ$) en comparaison des alliages 182 repérés D1054 et D1156. Ceci met en évidence un potentiel effet de la technique de soudage utilisée sur la proportion de joints de grains faiblement désorientés. A la lumière des points détaillés précédemment, ceci pourrait être relié à une augmentation de l'intensité de soudage ou une variation de la vitesse de soudage par rapport aux conditions sur les soudures en alliages 182.

3) Caractérisation de la chimie locale

Le soudage peut induire des hétérogénéités chimiques notamment par une ségrégation de certains éléments dans les espaces inter-dendritiques [100]. Des analyses réalisées par microsonde de Castaing, MEB et MET sur les moules de soudure D1054, D1156 et D1072 ont permis de mettre en évidence la ségrégation de certains éléments dans les métaux déposés (dendrites, espaces inter-dendritiques) mais également de mieux caractériser la précipitation et notamment la précipitation intergranulaire dans ce type de matériaux.

Dans cette partie, les résultats ne sont présentés que pour une seule soudure à chaque fois. Sauf indication spécifique, des résultats similaires ont été obtenus sur les autres soudures étudiées.

Des analyses à la microsonde de Castaing ont été réalisées sur les métaux déposés en alliage base nickel étudiés. Dans le Tableau 16 sont indiqués les plans d'analyse (TS ou TL) ainsi que les éléments quantifiés.

Tableau 16 – Plans d’observation et éléments quantifiés lors des analyses à la microsonde de Castaing sur les alliages base nickel 182 et 82

Soudure	Plan d’analyse	Ni	Cr	Fe	Mn	Si	Nb	Ti	O
D1054 (A182)	TS et TL	√	√	√	√	√	√	X	√
D1156 (A182)	TS	√	√	√	√	√	√	X	√
D1072 (A82)	TL	√	√	√	√	√	√	√	√

a) Analyse de l’hétérogénéité de la chimie locale à la microsonde de Castaing

Cartographies semi-quantitatives :

La Figure 44 présente une image MEB (plan TL) en mode BSE (électrons rétrodiffusés) de la zone analysée à la microsonde de Castaing sur la soudure en alliage 82 repérée D1072.

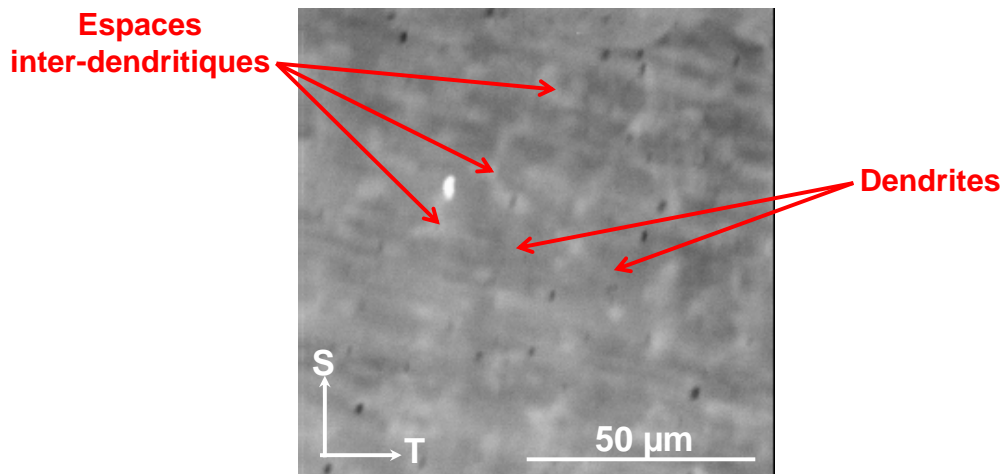


Figure 44 – Zones d’analyse à la microsonde de Castaing sur la soudure D1072 (alliage 82) dans le plan TL

On note, la présence de zones de contraste plus ou moins grises. Il s’agit de précipités et de phases enrichies en éléments d’addition faisant quelques microns de diamètre. Les cartographies de la Figure 45 (surface : 100 µm x 100 µm) sont issues de l’analyse semi-quantitative élémentaire du Ni, Cr, Fe, Mn, Si, Nb, O et Ti.

Les analyses réalisées couvrent des surfaces de 0,01 mm² ce qui reste relativement faible compte tenu des dimensions des grains.

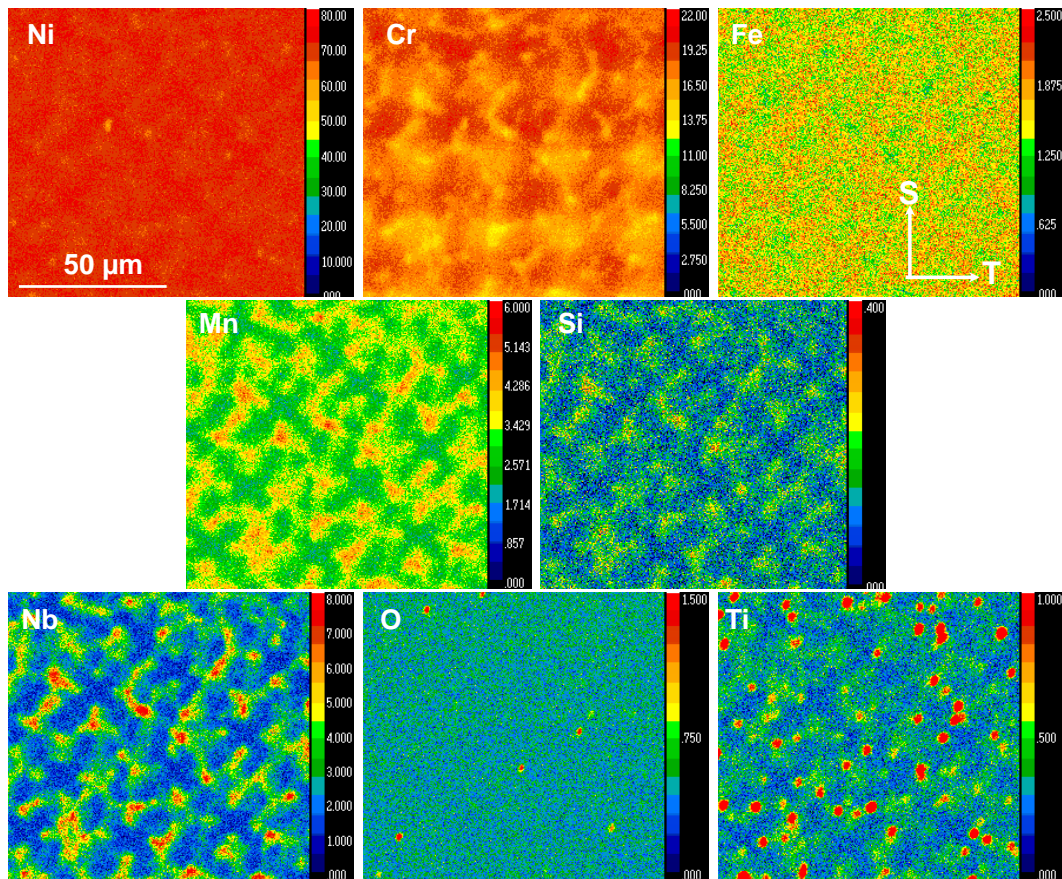


Figure 45 – Cartographies élémentaires obtenues à partir des analyses semi-quantitatives à la microsonde de Castaing réalisées sur la soudure D1072 (alliage 82)

Les cartographies présentées sur la Figure 45 mettent en évidence les hétérogénéités de composition chimiques dans les métaux déposés. D'après les Figure 44 et Figure 45 les espaces inter-dendritiques sont enrichis en Mn, Si, Nb et Ti alors que les dendrites sont enrichies en Fe et Cr. La cartographie du Ni ne présente, quant à elle, que très peu d'hétérogénéités. Des précipités riches en Mn, Si, Ti et Nb sont mis en évidence dans les espaces inter-dendritiques (zones rouges sur les cartographies correspondantes de la Figure 45) tandis que quelques inclusions riches en O semblent être distribuées aléatoirement dans le matériau. Il est à noter que la résolution spatiale de la technique est de l'ordre du μm^3 . Seuls les précipités possédant une taille suffisante au regard de la résolution utilisée sont observés sur les cartographies élémentaires.

Profils de composition quantitatifs :

Des profils quantitatifs ont été réalisés sur une longueur de 100 µm (éléments : Ni, Cr, Fe, Mn, Si, Nb et Ti) sur les soudures repérées D1054, D1156 et D1072. La quantification élémentaire le long d'un balayage réalisé sur l'alliage 82 repéré D1072 est présentée sur la Figure 46. Les observations faites sur les cartographies de la Figure 45 ont mis en évidence un enrichissement en Mn et un appauvrissement en Cr des espaces inter-dendritiques. Sur la Figure 46, les limites entre dendrites et espaces inter-dendritiques ont donc été placées aux points d'inflexion entre les profils du Mn et du Cr.

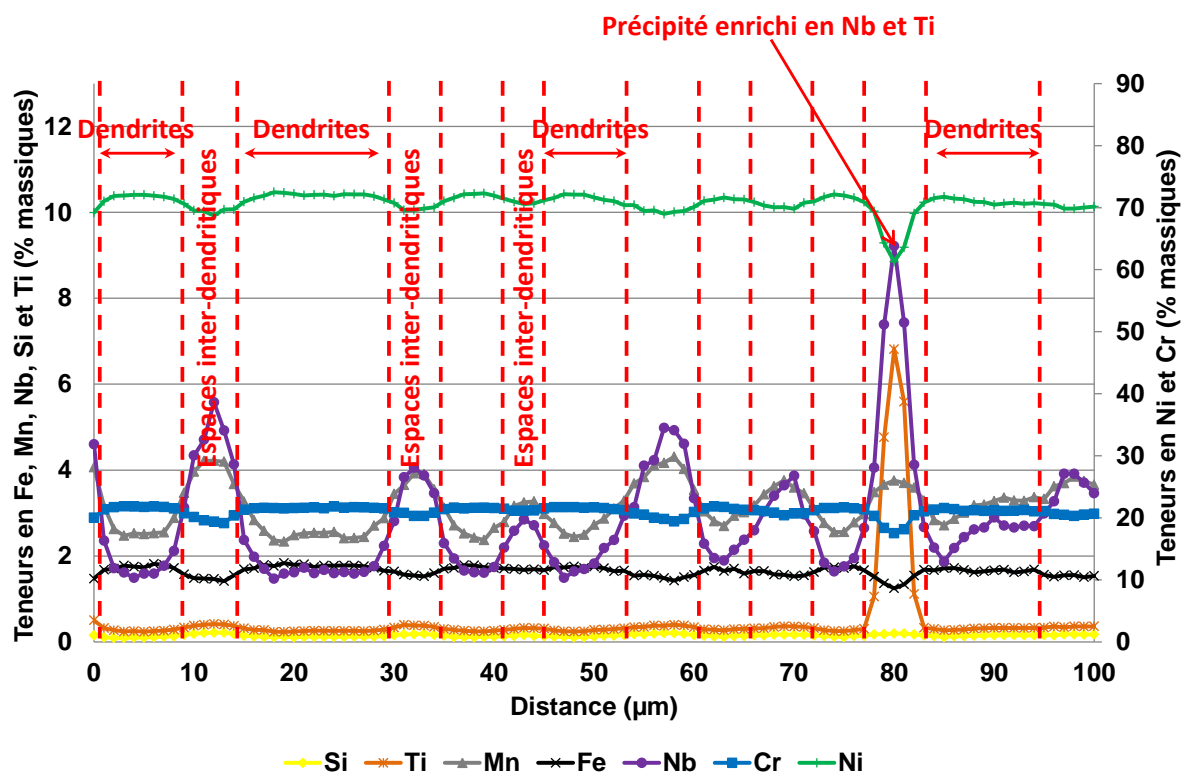


Figure 46 – Analyse quantitative à la microsonde de Castaing le long d'un profil de composition sur la soudure D1072 (alliage 82)

Ce profil confirme l'enrichissement en Fe et en Cr des dendrites tandis que l'on observe un enrichissement en éléments mineurs (Mn, Nb et Si) et un léger appauvrissement en Ni des espaces inter-dendritiques. Un précipité enrichi en Ti et Nb est observé au niveau d'un espace inter-dendritique, la teneur en Mn est quant à elle, similaire à celle des autres espaces inter-dendritiques.

La teneur moyenne de la soudure repérée D1072 en chaque élément quantifié a été évaluée le long du profil. Les valeurs obtenues sont comparées dans le Tableau 17 à celles mesurées par fluorescence X sur un volume de quelques cm³ et effectué sur la soudure D1072.

Tableau 17 – Comparaison des teneurs moyennes élémentaires (% mass.) évaluées par deux techniques différentes

Soudure	Technique d'analyse	Ni	Fe	Cr	Mn	Si	Nb	Ti
D1072 (alliage 82)	Microsonde	71,4	1,5	20,5	3,2	0,2	2,9	0,3
	Fluorescence X	71,4	1,1	20,8	3,2	0,1	2,8	0,4

Les différences observées entre les deux méthodes d'analyse ne semblent pas être significatives compte-tenu de l'incertitude des techniques de mesure qui est de l'ordre de 1%. La même comparaison a été réalisée pour les soudures repérées D1054 et D1156 et donne des résultats similaires (voir [Annexe II](#)). L'évaluation de la composition à partir des analyses à la microsonde a donc été validée car les différences de compositions moyennes élémentaires observées sont du même ordre de grandeur que l'incertitude des techniques expérimentales.

Analyse de la composition des dendrites et des espaces inter-dendritiques :

A partir de l'analyse présentée sur la Figure 46, les teneurs en chaque élément dans les dendrites et les espaces inter-dendritiques ont été évaluées. Les teneurs locales ont été obtenues en calculant la moyenne sur tous les points de mesure localisés respectivement dans les dendrites (Figure 47) et dans les espaces inter-dendritiques (Figure 48). Elles ont été normalisées par la composition élémentaire moyenne (valeurs indiquées dans le Tableau 17). Les résultats obtenus confirment les tendances déjà observées sur les cartographies élémentaires et sur les profils.

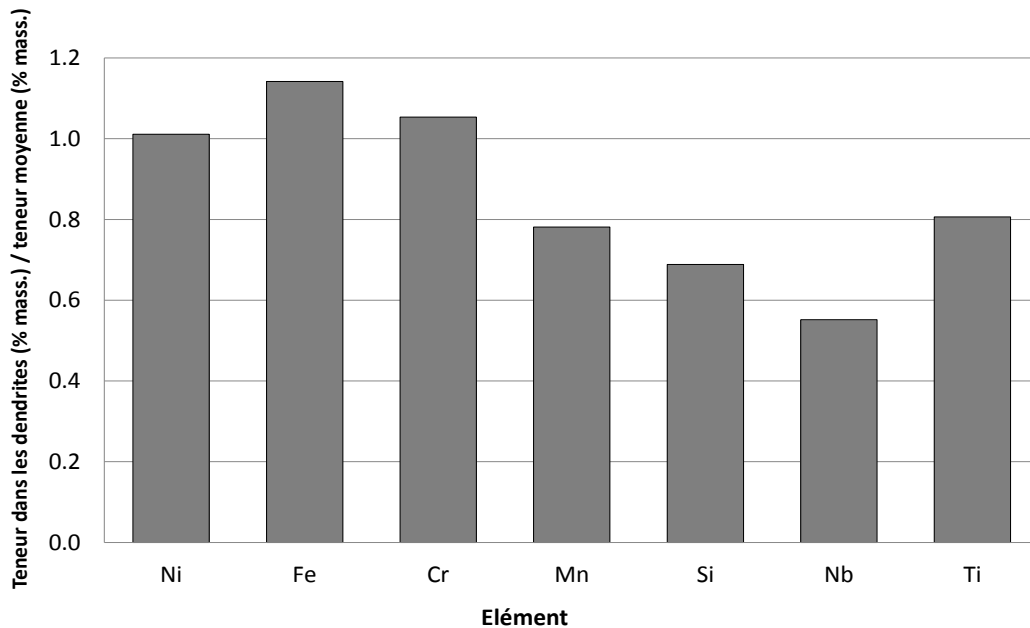


Figure 47 – Analyse élémentaire des dendrites de la soudure repérée D1072 (alliage 82)

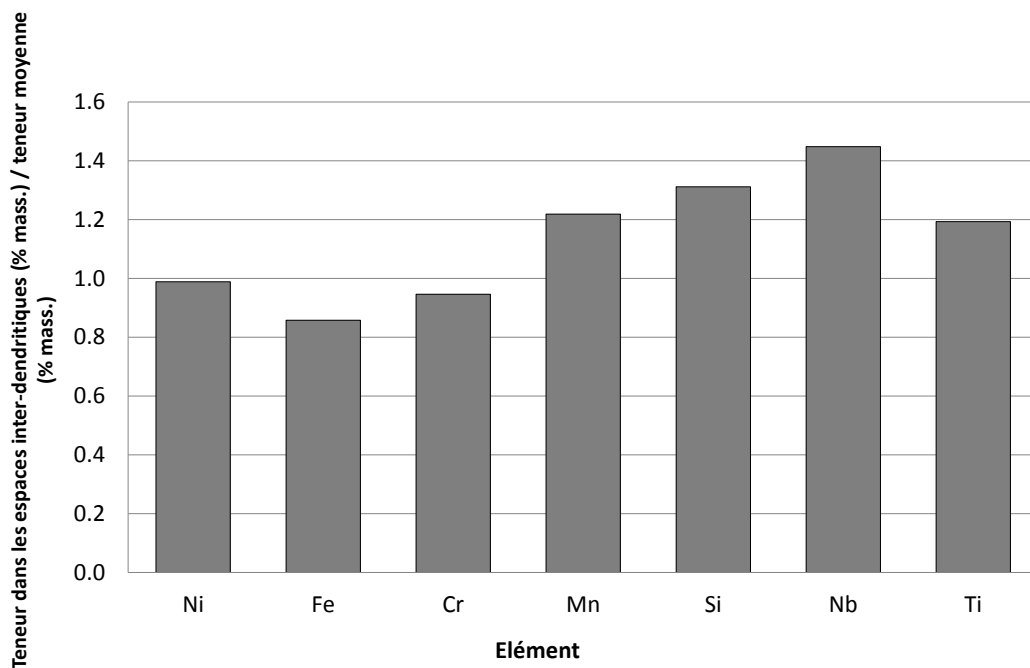


Figure 48 – Analyse élémentaire des espaces inter-dendritiques de la soudure repérée D1072 (alliage 82)

Les analyses élémentaires présentées sur les Figure 47 et Figure 48 permettent de quantifier les éventuels enrichissements ou appauvrissements locaux par rapport à la composition moyenne de la soudure. Les mêmes analyses ont été réalisées sur les soudures D1054 et D1156 ([Annexe I](#)).

Les résultats obtenus sur les différentes soudures sont comparés sur les Figure 49 et Figure 50.

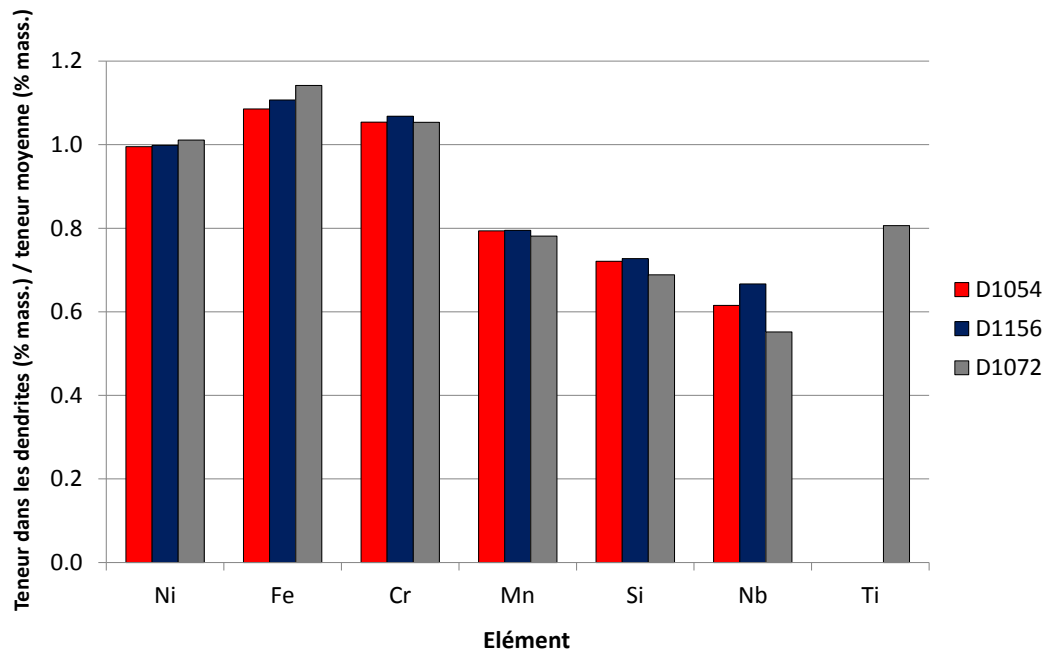


Figure 49 – Analyse élémentaire des dendrites des soudures D1054 et D1156 (alliage 182) et D1072 (alliage 82)

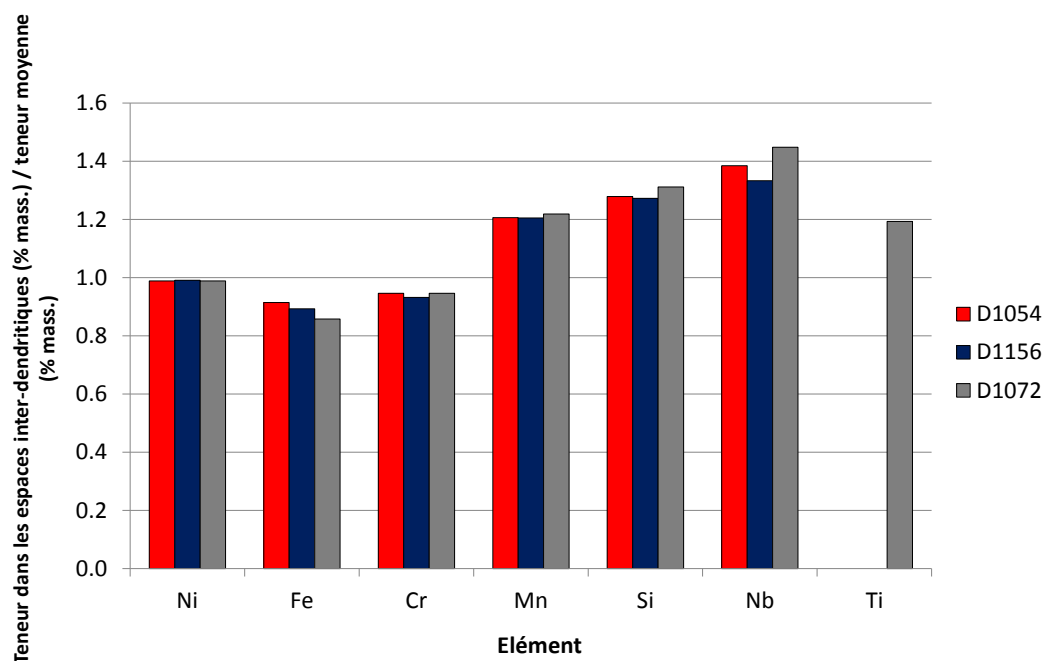


Figure 50 – Analyse élémentaire des espaces inter-dendritiques des soudures D1054 et D1156 (alliage 182) et D1072 (alliage 82)

La Figure 49 met en évidence un enrichissement en Fe et Cr des dendrites tandis qu'un rejet des éléments mineurs tels que le Mn, le Si, le Nb et le Ti est observé dans les espaces inter-dendritiques.

Les informations du Ti sont manquantes pour les soudures D1054 et D1156 car cet élément n'a pas été inspecté lors des premières analyses effectuées.

La comparaison des teneurs élémentaires normalisées au niveau des dendrites (Figure 49) ou des espaces inter-dendritiques (Figure 50) ne met pas en évidence de différences notables entre les trois soudures. Les résultats similaires observés sur les soudures en alliages 182 repérées D1054 (BS) et D1156 (TTD) mettent en évidence le fait que le TTD n'affecte pas les enrichissements ou appauvrissements détaillés précédemment. Le constat est le même en ce qui concerne la technique de soudage utilisée (manuelle avec électrodes enrobées ou TIG automatique) ou la composition chimique globale.

Quantification de la précipitation dans les soudures étudiées :

Pour toutes les soudures, des précipités ont été mis évidence par les images MEB (mode rétrodiffusé) et les cartographies semi-quantitatives du Mn, du Si, du Nb, de l'O acquises à la microsonde de Castaing. Des précipités riches en Ti ont également été révélés sur la soudure D1072 et sont probablement présents dans les autres soudures (cartographies non faites pour les soudures D1054 et D1156). Les précipités peuvent être localisés aux joints de grains ou à l'intérieur des grains comme le montrent les analyses réalisées sur la soudure en alliage 182 repérée D1054 (Figure 51).

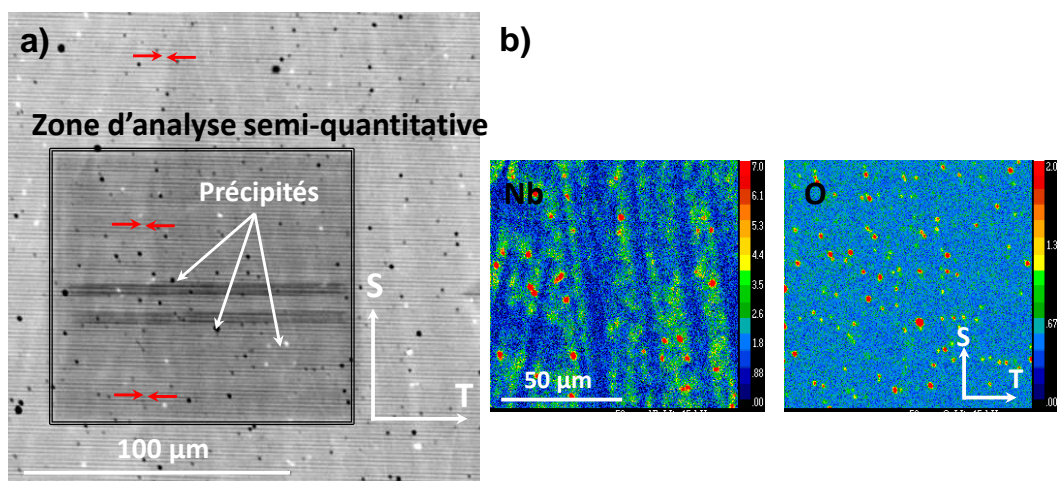


Figure 51 – Mise en évidence de la précipitation dans le plan TS de la soudure D1054 (alliage 182) (a) micrographie MEB en mode rétrodiffusé (b) cartographies semi-quantitatives du Nb et de l'O – la position du joint de grains est mise en évidence par des flèches rouges

A partir des cartographies semi-quantitatives, les densités surfaciques des précipités enrichis en Mn, Si, Nb ou O ont été évaluées à l'aide du logiciel ImageJ[®] en suivant la procédure présentée sur la Figure 52 (exemple donné pour le Nb dans la soudure D1054) et en faisant l'hypothèse que les pixels rouges correspondent à des précipités.

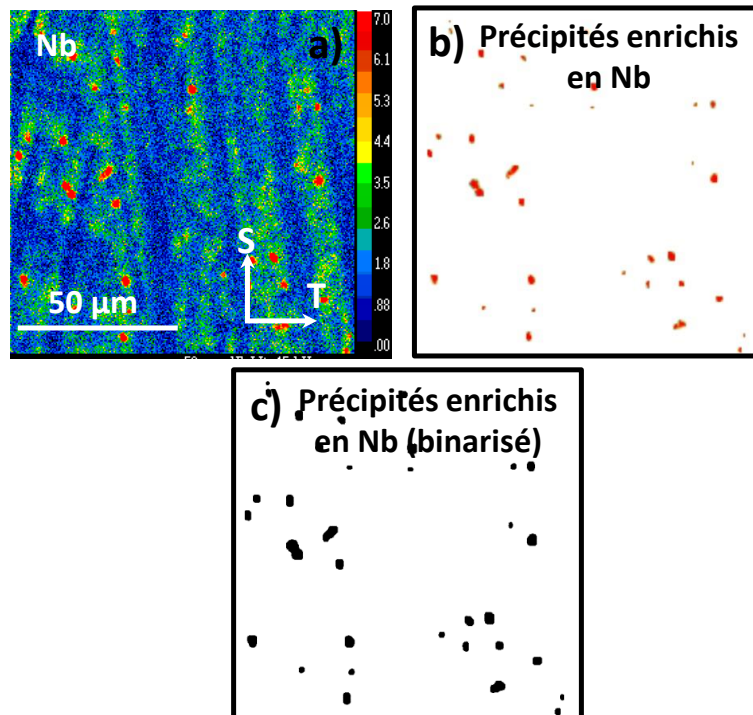


Figure 52 – Evaluation de la densité surfacique des précipités enrichis en Nb – (a) cartographie élémentaire du Nb, (b) seuillage sur les précipités enrichis en Nb et (c) image binarisée des précipités enrichis en Nb (soudure D1054)

Sur la Figure 52(b), un seuillage sur la couleur des pixels (Threshold du logiciel ImageJ®) a permis de n'extraire que les pixels rouges. Puis cette image a été binarisée pour donner la Figure 52 (c) à partir de laquelle le nombre de précipités a été calculé par ImageJ®. L'analyse d'image indique la présence de 35 précipités enrichis en Nb. Si le seuil sur la valeur des pixels est compris entre 245 et 255, l'analyse d'image compte 38 précipités ce qui conduit à une erreur négligeable de 0,0003 précipités/ μm^2 .

Les densités surfaciques des différents précipités enrichis en Mn, Si, Nb ou O ont été déterminées à partir des cartographies élémentaires en divisant le nombre de précipités identifiés par l'aire analysée ($100 \times 100 \mu\text{m}^2$).

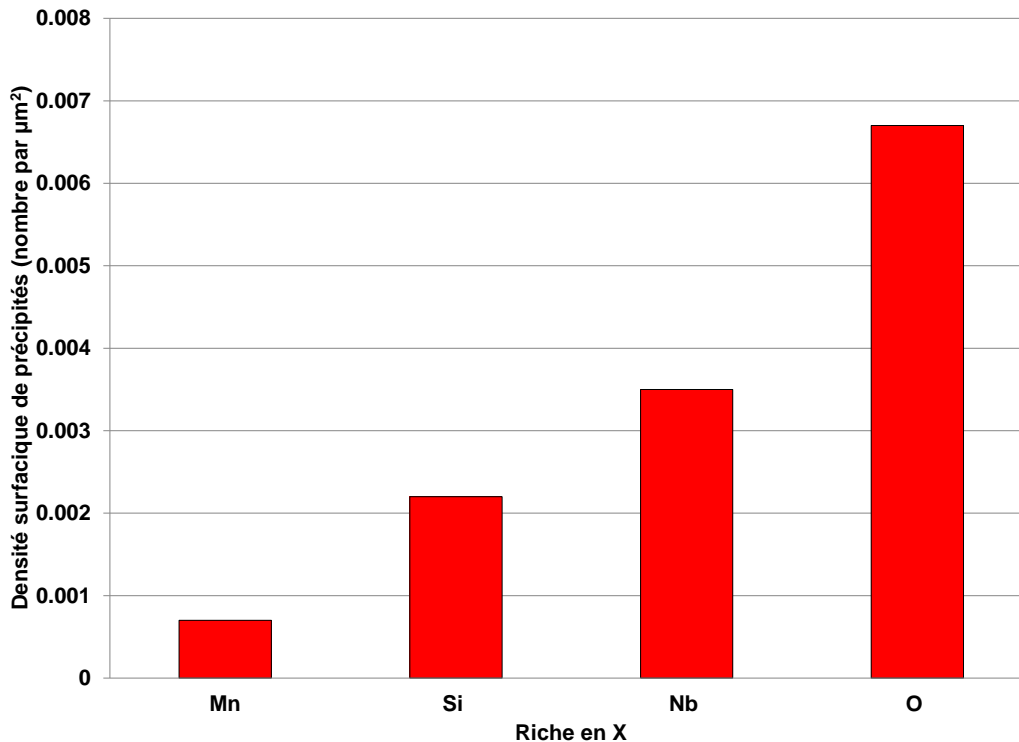


Figure 53 – Densités surfaciques des différents précipités dans la soudure D1054 (alliage 182)

Sur la Figure 53 sont représentées les densités surfaciques des différents précipités rencontrés dans le matériau D1054. Parmi les différents précipités identifiés, ceux enrichis en Mn sont en plus faible proportion dans la soudure D1054 tandis que les précipités enrichis en Nb et Si présentent des densités plus importantes. Enfin, sur la surface d'analyse, on remarque que la proportion d'inclusions riches en O est supérieure à celle des autres types de précipités.

Ce type d'analyse présente l'inconvénient de ne pas donner d'information sur les éventuels appariements entre plusieurs éléments différents dans un même précipité. Il y a alors un risque de prendre en compte au moins deux fois un même précipité au cours de l'évaluation de la densité surfacique.

Comparaison de la précipitation dans les différentes soudures étudiées :

De manière similaire, les densités surfaciques des différents précipités ont été quantifiées pour les soudures D1156 et D1072 (Figure 54).

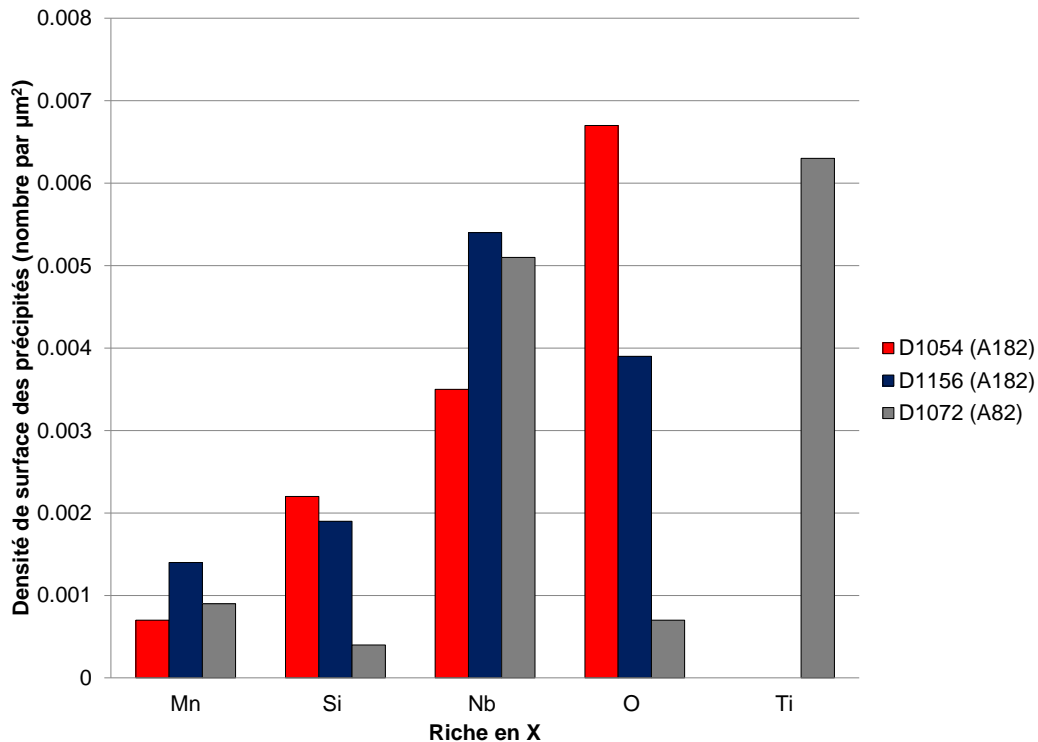


Figure 54 – Densités surfaciques des différents types de précipités analysés par microsonde dans les soudures D1054, D1156 (alliages 182, plans d’analyse : TS) et D1072 (alliage 82, plan d’analyse : TL)

D’après les analyses réalisées sur des surfaces de 100 μm x 100 μm , les densités surfaciques en précipités enrichis en Mn observées dans les différents matériaux sont similaires. L’alliage 82 présente une densité surfacique de précipités enrichis en Si moins importante que les alliages 182. Par rapport à la soudure D1054, les alliages D1156 et D1072 présentent tous deux une plus forte proportion de précipités enrichis en Nb et une plus faible densité d’inclusions riches en O. Il semble que les densités en Si et O suivent les mêmes tendances pour chaque alliage ce qui pourrait indiquer la présence d’inclusions conjointement enrichies en Si et en O. Le taux d’inclusions riches en O est particulièrement faible ($< 0,001$ précipité/ μm^2) pour la soudure en alliage 82.

On note aussi la présence de précipités riches en Ti sur la soudure D1072. Cet élément a uniquement été analysé sur la soudure D1072. Un enrichissement en Ti peut être observé dans des précipités intragranulaires de type $\text{Ti}(\text{C}, \text{N})$ (Figure 55) mais également dans certaines inclusions de type core-shell [54] comme celle observée dans la soudure D1156 (Figure 56).

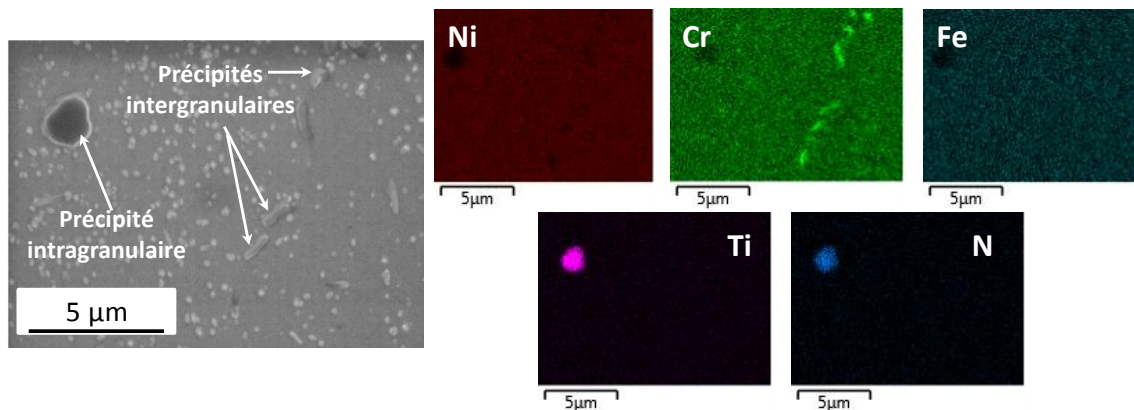
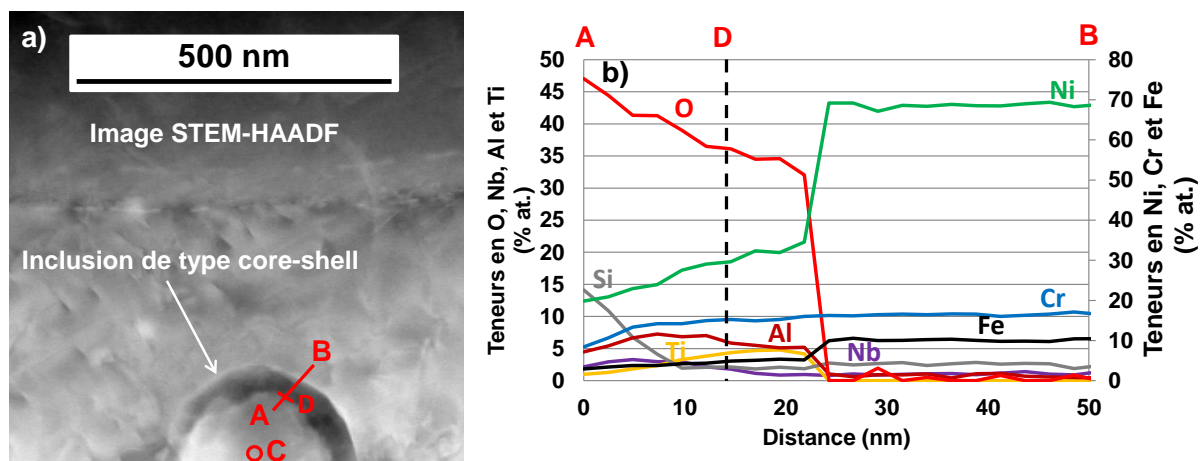


Figure 55 – Analyse de la précipitation par MEB-EDS sur la soudure D1156 (alliage 182)

Les cartographies de la Figure 55 ont été obtenues par analyse EDS au MEB et mettent en évidence la présence de précipités intragranulaires enrichis en Ti et N dans la soudure repérée D1156 (alliage 182). Des précipités intergranulaires riches en Cr sont également observés.



c) Analyse STEM-EDX au point C

Élément Teneur (% at.)	Ni	Fe	Cr	Si	Al	Ti	Nb	O
C (centre du précipité)	25,4	4,0	8,8	18,7	3,3	1,4	0,4	38,0
D (coquille du précipité)	30,1	5,0	15,4	1,2	4,7	4,3	1,8	37,4

Figure 56 – Analyse STEM-EDS d’une inclusion intragranulaire de type core-shell dans la soudure D1156 (alliage 182) – (a) image STEM-HAADF, (b) profil de composition à travers la « coquille » de l’inclusion et (c) pointé EDS en partie centrale et en coquille

Le profil de composition chimique STEM-EDS (allant de A vers B en suivant la ligne rouge) présenté sur la Figure 56 (a) montre un enrichissement significatif en Ti, Al, Nb et Cr de la « coquille » de ce type d’inclusion circulaire. L’analyse chimique issue d’un pointé EDS réalisé dans la zone centrale est donnée en Figure 56 (b). Celle-ci met en évidence un enrichissement conjoint en O et Si du centre du précipité (pointé C) par rapport à la coquille (pointé D).

D’autres types de précipités intragranulaires ont été observés dans les soudures étudiées comme notamment des carbures de niobium (NbC, Figure 57) mais aussi des carbures de chrome (Cr_xC_y,

Figure 58). Le profil du carbone n'est pas tracé sur les Figure 57 et Figure 58 en raison des effets d'absorption et de contamination qui affectent la quantification de cet élément.

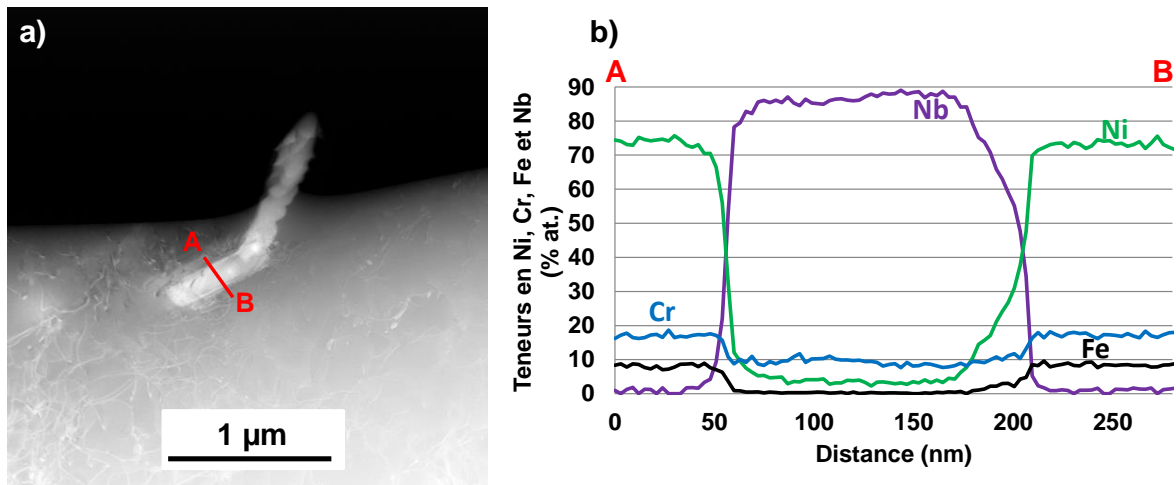


Figure 57 – Analyse STEM-EDS d'un carbure de niobium intragranulaire dans la soudure D1156 (alliage 182) – (a) image STEM-HAADF (b) profil de composition à travers le précipité

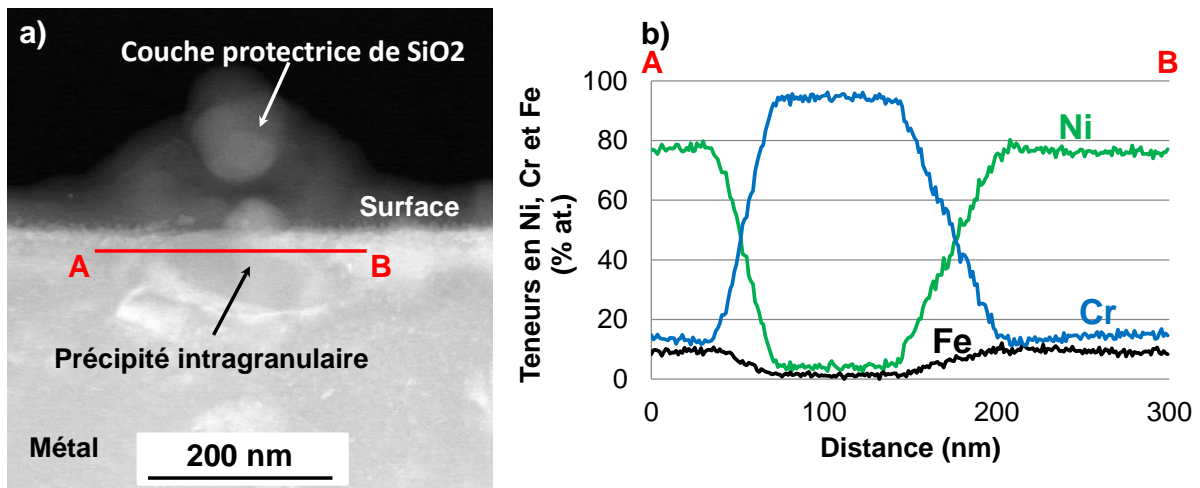


Figure 58 - Analyse STEM-EDS d'un carbure de chrome intragranulaire dans la soudure D1156 (alliage 182) – (a) image STEM-HAADF (b) profil de composition à travers le précipité

Si la présence de NbC dans les soudures étudiées a déjà pu être mise en évidence par les cartographies élémentaires, ce n'est pas le cas des Cr_xC_y. Ceci peut notamment être dû à leur dimension réduite (entre 30 nm et plusieurs centaines de nm) devant celle des NbC (entre plusieurs centaines de nm à quelques µm).

Les analyses réalisées sur la soudure D1054 et D1072 ont mis en évidence des résultats identiques.

b) Analyse de la précipitation intergranulaire en microscopie électronique à balayage et en transmission

Les travaux présentés dans la [synthèse bibliographique](#) ont fait état d'une précipitation de carbures de chrome. Si nombres de travaux [13, 46, 56, 80, 85] ont fait état d'un effet bénéfique de la précipitation des carbures de chrome aux joints de grains sur la résistance (amorçage et propagation) à la CSC en milieu primaire REP, l'impact des NbC sur l'amorçage et la propagation de la CSC n'a pas vraiment été étudié.

Analyses de la précipitation intergranulaire en microscopie électronique en transmission :

Dans les soudures en alliages base nickel, des analyses par STEM-EDS ont été mises en œuvre afin de caractériser la composition des précipités intergranulaires. Les inspections mettent en évidence la présence de précipités de NbC (Figure 59 c) ainsi que de précipités présentant un enrichissement conjoint en Cr et en Nb comme observé sur la Figure 59 (b).

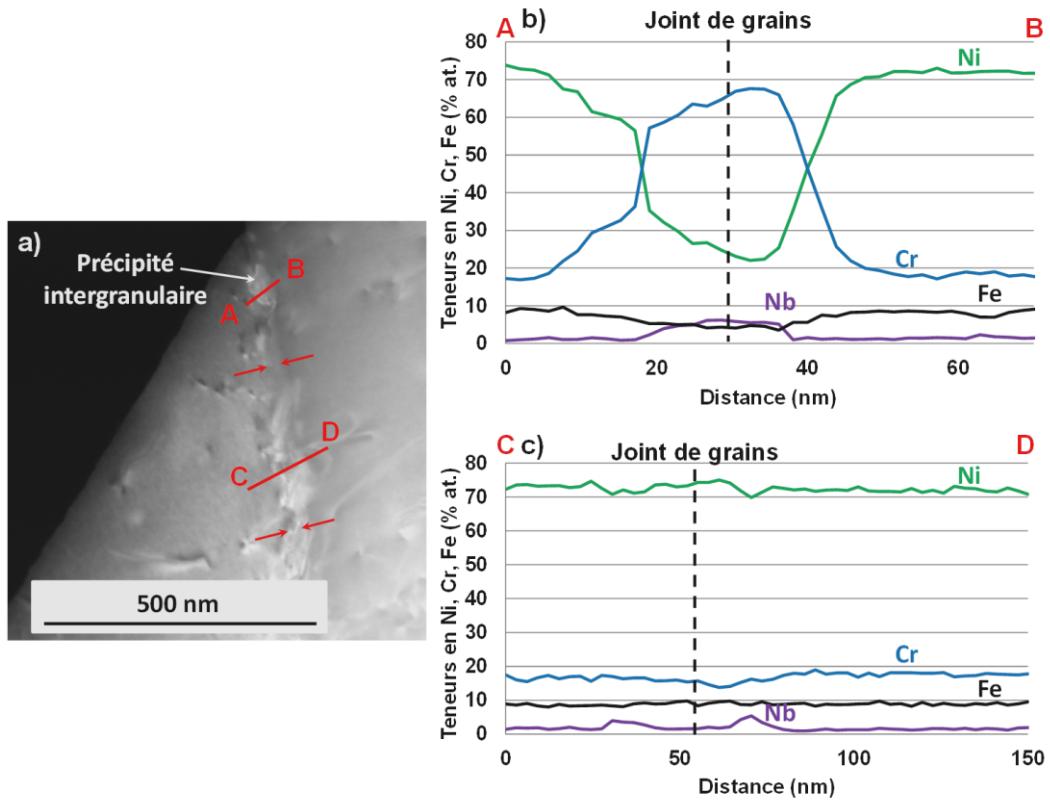


Figure 59 – (a) image STEM-HAADF d'un joint de grains de la soudure D1156 (b) et (c) profils de composition au niveau de précipités intergranulaires – la position du joint de grains est mise en évidence par des flèches rouges

De la même façon, la présence de carbures de chrome aux joints de grains est mise en évidence dans les différentes soudures étudiées, comme illustré sur la Figure 60. Ces précipités ont une taille qui varie entre quelques dizaines de nm et quelques centaines de nm.

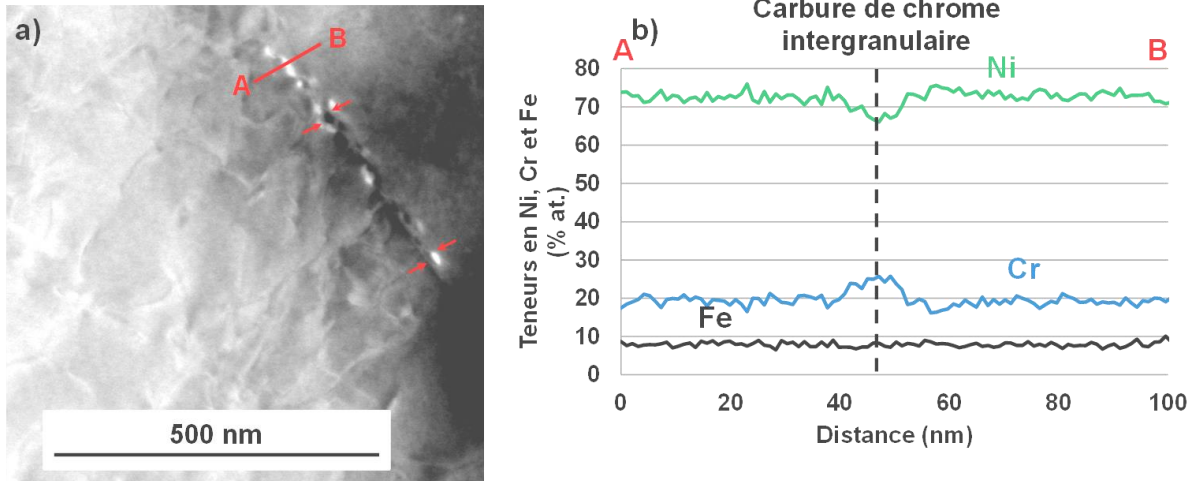


Figure 60 – (a) image STEM-HAADF d'un joint de grains de la soudure D1054 (b) profil de composition au niveau d'un précipité intergranulaire – la position du joint de grains est mise en évidence par des flèches rouges

Comme cela a déjà été rapporté dans le chapitre de synthèse bibliographique, la précipitation de carbures de chrome intergranulaires est susceptible d'engendrer un appauvrissement en Cr des joints de grains environnants. Ce phénomène a notamment été constaté sur la soudure D1054 qui est brute de soudage (Figure 61).

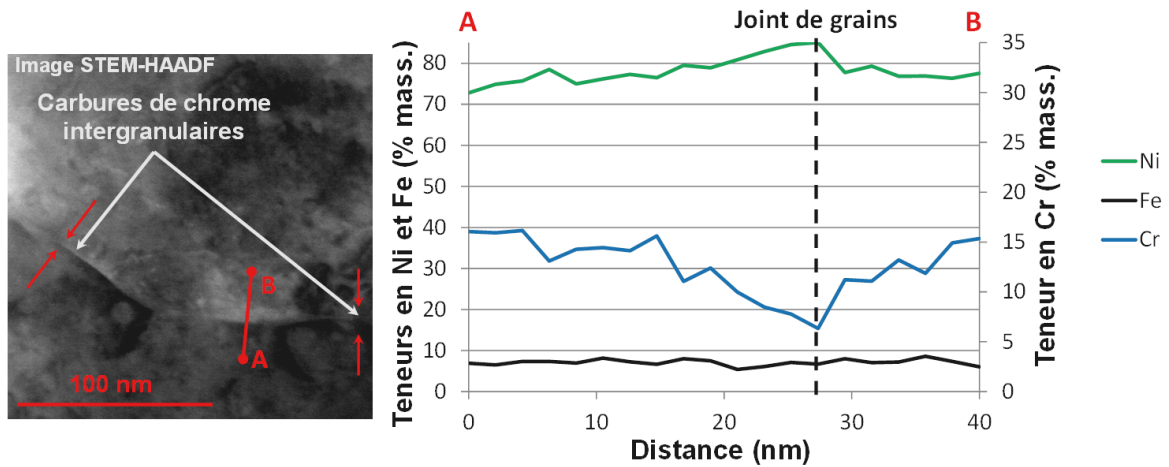


Figure 61 – Analyse STEM-EDX de l'appauvrissement en Cr d'un joint de grains de la soudure D1054 – la position du joint de grains est mise en évidence par des flèches rouges

La Figure 61 présente un profil d'analyse effectué sur un joint de grains entre deux carbures de chrome intergranulaires. Le profil de composition chimique obtenu montre une forte diminution de la teneur en Cr au joint de grains (jusqu'à $\sim 7 \pm 1$ % mass.). Cet appauvrissement en Cr du joint de grains est probablement provoqué par la précipitation de carbures de chrome à proximité de la zone d'analyse. De plus, l'appauvrissement en chrome est observé sur la soudure repérée D1054 (BS) et sur la soudure D1156 (TTD), dans une moindre mesure (sur la base des analyses réalisées la teneur en chrome locale descend jusqu'à $\sim 12 \pm 1$ % mass.). Il apparaît donc que l'appauvrissement ne soit pas systématiquement lié au traitement thermique de détensionnement mais que celui-ci pourrait plutôt ré-homogénéiser la teneur en chrome locale. La base des inspections STEM-EDS réalisées sur

la soudure D1072 est quant à elle trop réduite pour mettre en évidence un appauvrissement en chrome des joints de grains dû à la précipitation de carbures.

Comparaison de la précipitation intergranulaire dans les différentes soudures :

Les taux de couverture des joints de grains (noté ensuite GBC pour Grain Boundary Coverage) par les précipités ont été quantifiés dans les différents alliages étudiés au cours de la thèse par le biais d'analyses MEB couplées à de l'EBSD afin d'avoir l'information sur le nombre de carbures, la longueur des joints de grains et sur la nature des joints de grains inspectés (type de joint et désorientation). Ces travaux ont été mis en œuvre sur des lames minces MET de sorte à avoir accès aux dimensions et à l'analyse chimique des précipités intergranulaires à plus petite échelle si besoin.

Les tailles minimales des précipités intergranulaires observés au MET en mode STEM-HAADF (Scanning TEM – High Angle Annular Dark Field) sont d'environ 10 à 30 nm comme observé sur la Figure 62 (a). Le contraste obtenu en mode STEM-HAADF est un contraste chimique (contraste de numéro atomique Z).

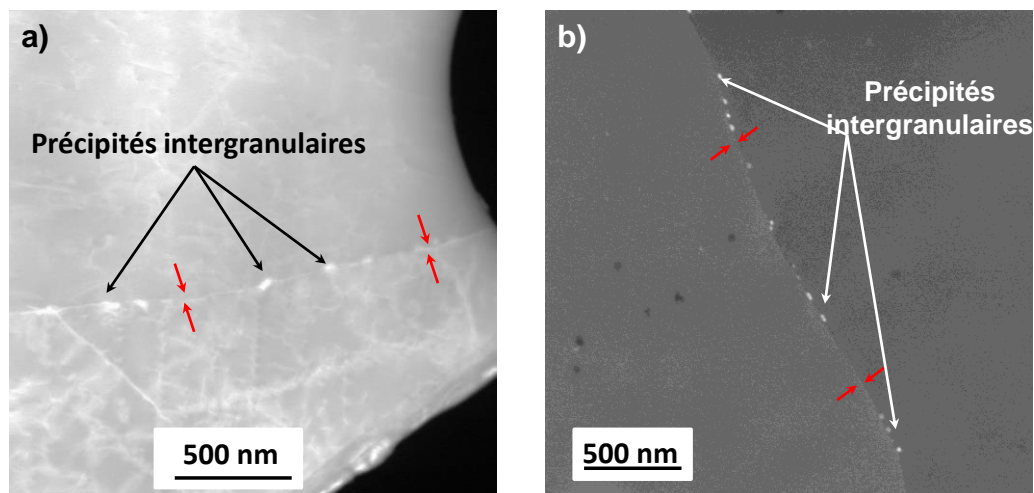


Figure 62 – Analyses de la précipitation intergranulaire dans la soudure en alliage 182 repérée D1054 (a) image STEM-HAADF et (b) image MEB (mode rétrodiffusé) – la position des joints de grains est mise en évidence par des flèches rouges

Les tailles minimales des précipités intergranulaires observés au MEB en électrons rétrodiffusés (Figure 62 (b)) sont de quelques dizaines de nanomètres et sont similaires à celles obtenues au MET. Le choix a donc été fait de prendre uniquement en compte les images MEB pour la quantification de la précipitation intergranulaire puisqu'on a ainsi accès à une surface d'analyse plus grande et donc plus représentative que la partie mince des lames MET. Toutefois le choix de cette technique présente l'inconvénient de ne pas nous renseigner sur la chimie des précipités observés. Les taux de couverture des joints de grains présentés par la suite prennent donc en compte tous les précipités intergranulaires (Cr_xC_y mais également NbC) et pas seulement les carbures de chrome.

La méthode utilisée pour quantifier le taux de couverture des joints de grains par les précipités est la suivante, une cartographie EBSD (taille : 700 μm x 700 μm et un pas d'échantillonnage de 2 μm) est réalisée autour de la zone mince de la lame MET afin d'identifier la nature et la désorientation des joints de grains comme présenté sur la Figure 63. La cartographie EBSD (Figure 63 (a)) de la zone d'analyse est inclinée de 70° par rapport à l'image MEB (Figure 63 (b)) ce qui explique les distorsions observées entre les deux images (trou et forme des grains).

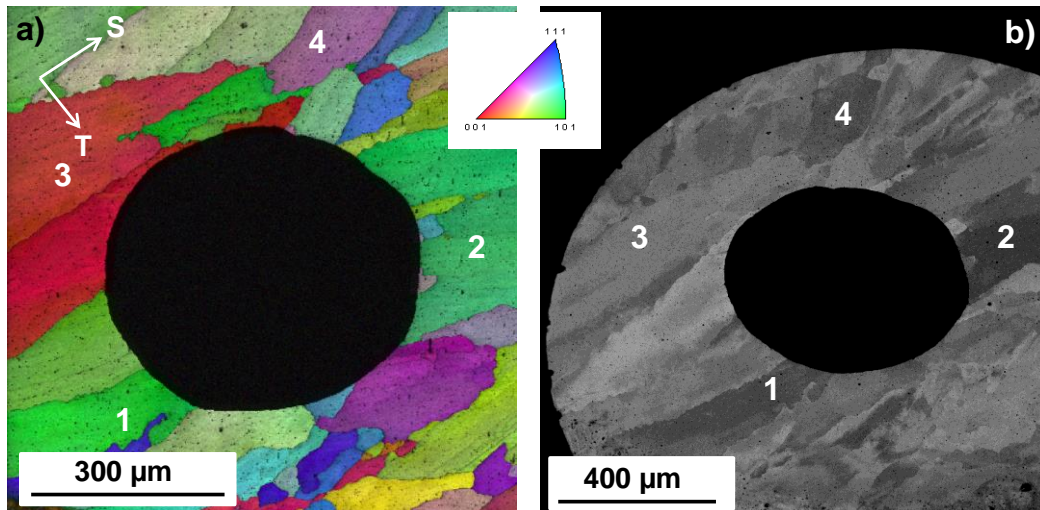


Figure 63 – Analyse sur une lame mince de la précipitation intergranulaire sur la soudure repérée D1156 (a) superposition de la figure de pôles inverse (axe : L) et de l'image en indice de qualité obtenue par EBSD (b) image MEB en électrons rétrodiffusés correspondante

Les différents grains sont identifiés sur une image MEB en électrons rétrodiffusés puis la précipitation intergranulaire est quantifiée sur des images des joints de grains acquises à plus fort grandissement (x 50 000). Plusieurs images comme celle présentée sur la Figure 64 sont prises de manière à couvrir une longueur totale de joint d'environ 5 μm.

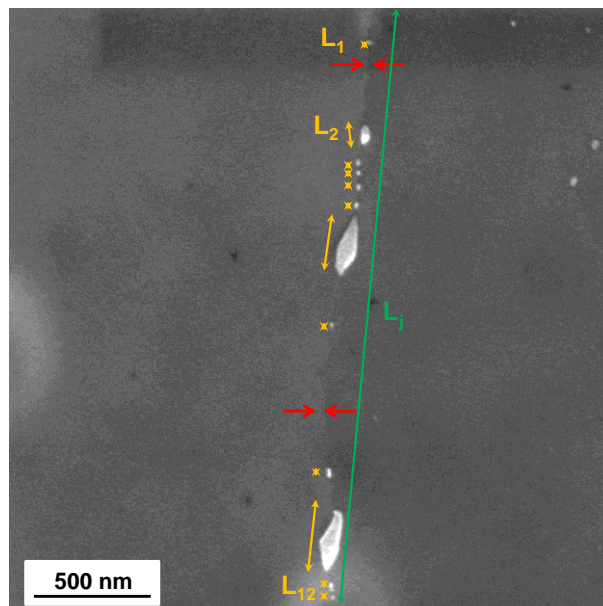


Figure 64 – Estimation de la distance moyenne entre précipités le long d'un joint de grains du moule de soudure repérée D1054

A partir des images MEB acquises le long d'un joint de grains (Figure 64), la longueur du joint de grains (L_j) inspectée est évaluée, le nombre de précipité (n_{pcp}) ainsi que leur taille moyenne dans la longueur du joint (nommée $\overline{l_{pcp}}$) sont également estimés à partir de ces analyses. A partir de ces mesures, il est possible de calculer la distance moyenne entre précipités (d_{pcp}) comme il suit :

$$d_{pcp} = \frac{L_j - (n_{pcp} * \overline{l_{pcp}})}{(n_{pcp} + 1)} \quad \text{Équation 10}$$

Dans l'exemple donné en Figure 64, $\overline{l_{pcp}}$ est calculé comme indiqué dans l'Équation 11.

$$\overline{l_{pcp}} = \frac{L_1 + L_2 + \dots + L_{12}}{n_{pcp}} \quad \text{Équation 11}$$

Le même type d'analyse a été réalisé sur 9 lames minces prélevées dans la soudure D1054, 7 lames minces de la soudure D1156 et 4 lames minces de la soudure D1072. Pour chaque joint de grains inspecté, une longueur comprise entre 3 μm et 62 μm a été couverte au MEB afin de collecter les informations sur une longueur de joints suffisante.

Sur la Figure 65 sont présentées des images MEB prises le long de joints de grains des soudures D1054, D1156 et D1072 pour une désorientation similaire.

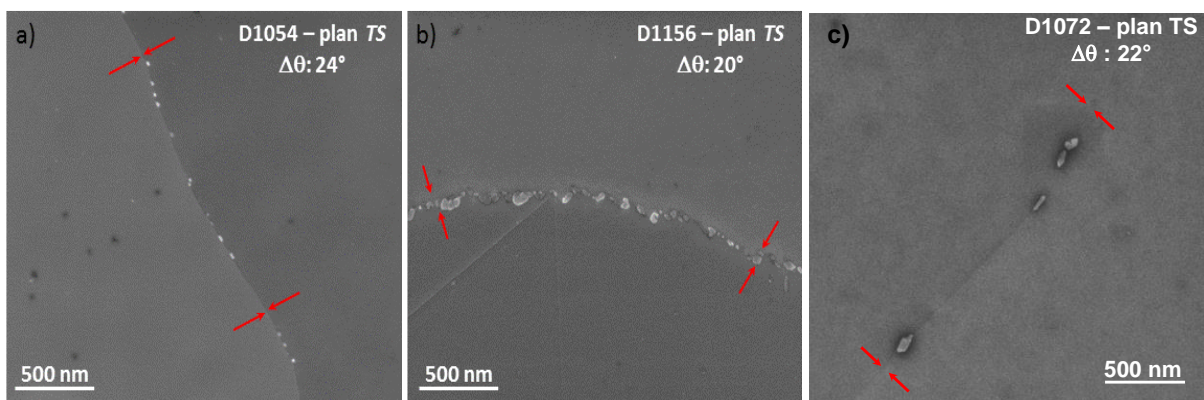


Figure 65 – Images MEB des précipités intergranulaires dans les alliages 182 (a) D1054 et (b) D1156 – la position des joints de grains est mise en évidence par des flèches rouges

Les images MEB présentées sur la Figure 65 sont représentatives des tendances qui se dégagent. En effet, pour une désorientation similaire, la précipitation intergranulaire semble plus importante dans la soudure D1156 par rapport aux deux autres soudures. À la lumière des images MEB présentées, la soudure en alliage 82 (D1072) est celle qui semble présenter le plus faible taux de couverture.

52 joints de grains de la soudure D1156 (longueur totale de joints inspectés : 1050 μm), 44 joints de grains de la soudure D1054 (longueur totale de joints inspectés : 1500 μm) et 30 joints de grains de la soudure D1072 (longueur totale de joints inspectés : 550 μm) ont été analysés.

Les valeurs moyennes des distances entre précipités et les écarts-types ont été calculés pour des joints de grains de différentes natures (CSL ou joints généraux) ou pour différentes plages de désorientations dans le cas des joints généraux. Sur la Figure 66 sont comparées les distributions de d_{pcp} calculées sur les différentes soudures étudiées.

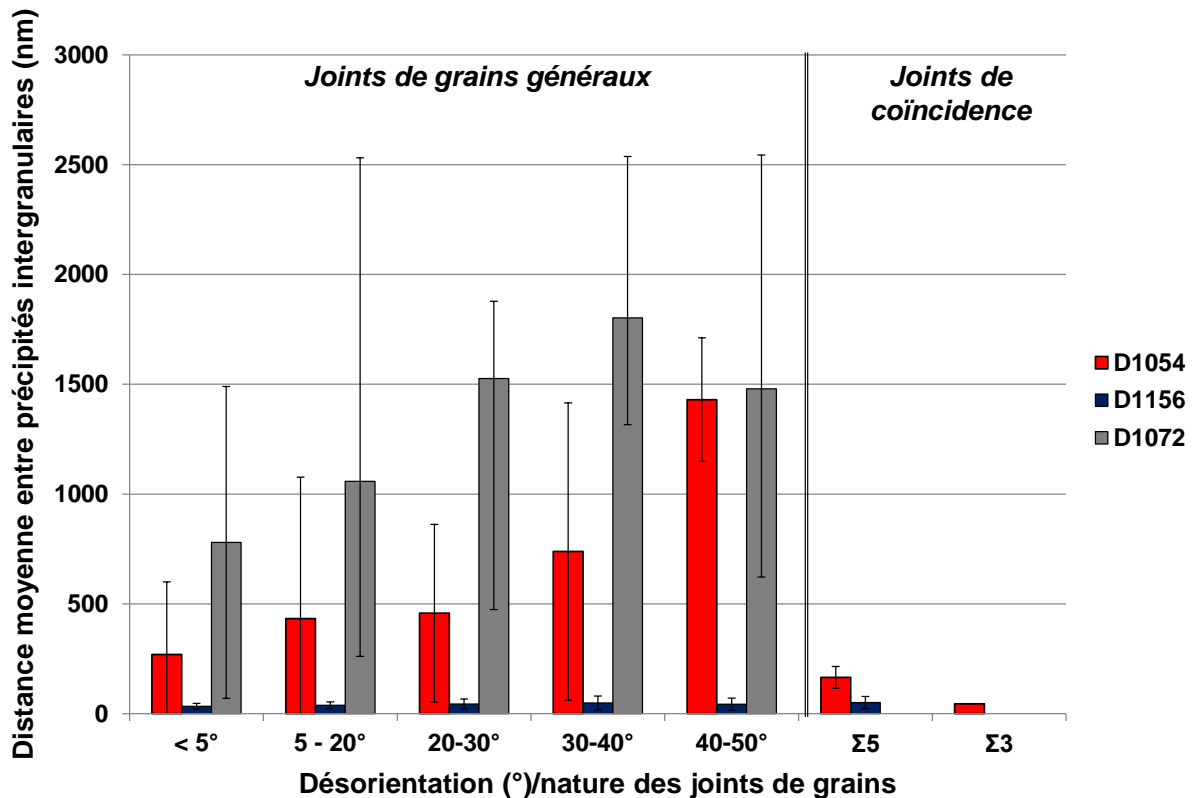


Figure 66 – Distance moyenne entre précipités intergranulaires (d_{pcp} en nm) en fonction de la nature ou de la désorientation (en °) des joints de grains

Les différences de précipitation intergranulaire des matériaux sont illustrées sur la Figure 66. Les observations suivantes sont faites :

- dans les soudures repérées D1054 et D1072, le taux de couverture des joints de grains généraux est plus faible que dans la soudure D1156 (la distance moyenne entre précipités intergranulaires d_{pcp} est plus importante). Le taux de couverture des joints de grains généraux est légèrement plus faible dans la soudure D1072 que dans la soudure D1054.
- La précipitation aux joints de grains généraux de la soudure D1156 est constante quelle que soit la plage de désorientation ou la nature (joints généraux ou CSL) du joint de grains avec une valeur moyenne de d_{pcp} comprise entre 33 et 43 nm. Il ne semble pas y avoir d'effet du joint dans ce cas.
- Inversement, la répartition des précipités aux joints de grains généraux dans les matériaux D1054 et D1072 semble très hétérogène avec des distances moyennes entre précipités comprises entre 269 et 1430 nm pour la soudure D1054 et entre 780 nm et 1800 nm pour la soudure D1072. Sur la base des observations effectuées, la valeur de d_{pcp} augmente avec la désorientation, et ce d'autant plus que les classes ne sont pas équivalentes.
- Dans la soudure D1054, la précipitation aux joints de coïncidence semble plus importante qu'aux joints généraux. Cependant, la base d'observation présente un nombre trop limité de joints CSL et ne nous permet pas réellement de conclure sur l'effet du type de joints sur la précipitation.

L'effet du traitement thermique uniquement réalisé sur la soudure D1156 pourrait expliquer la précipitation plus homogène dans ce matériau comparé aux soudures repérées D1054 et D1072 qui

sont brutes de soudage. La corrélation entre la distance moyenne entre précipités et la proportion des différents types de joints de grains est proposée dans le Tableau 18.

Tableau 18 – Corrélation entre les distances moyennes entre précipités et la proportion des différents types de joints de grains pour les soudures étudiées

Soudure	Gamme de désorientation	<5°	5-20°	20-30°	30-40°	40-50°	Σ3	Σ5
D1054	Proportion de joints de grains	<0,15	0,25	0,2	0,1	0,15	<0,05	<0,05
	$\overline{d_{pcp}}$ (nm)	270	430	460	740	1420	160	50
D1156	Proportion de joints de grains	0,15	0,25	0,15	0,1	0,15	<0,05	<0,05
	$\overline{d_{pcp}}$ (nm)	30	40	50	50	40	-	50
D1072	Proportion de joints de grains	0,4	0,35	0,15	<0,05	<0,05	0	<0,05
	$\overline{d_{pcp}}$ (nm)	780	1060	1520	1800	1480	-	-

La soudure repérée D1156 (TTD) présente une précipitation comparable quelle que soit la désorientation angulaire des joints de grains. En revanche, les soudures D1054 et D1072 (BS) présentent une précipitation plus importante le long des joints de grains faiblement désorientés ou des joints de coïncidence par rapport aux joints de grains fortement désorientés. La proportion de joints de coïncidence est faible dans les matériaux étudiés. La comparaison des soudures D1072 et D1054 met en évidence une fraction de joints faiblement désorientés ($\leq 20^\circ$) qui est plus importante dans la soudure D1072 par rapport à la soudure D1054.

Un taux de couverture moyen des joints de grains par les précipités a été déterminé à partir des analyses ci-dessus. Pour chaque soudure, une valeur de *GBC* a été estimée comme indiqué dans l'Équation 12.

$$GBC = \frac{\sum_{i=1}^n \left(\frac{\overline{n_{pcp_i}} * \overline{l_{pcp_i}}}{\overline{L_{GB_i}}} \right)}{n} \quad \text{Équation 12}$$

Dans l'Équation 12, pour un joint *i*, $\overline{n_{pcp_i}}$ représente le nombre moyen de précipité le long des joints de grains, $\overline{l_{pcp_i}}$ est la taille moyenne des précipités intergranulaires et $\overline{L_{GB_i}}$ est la longueur moyenne des joints de grains inspectés. Les valeurs de *GBC* sont respectivement de 0,2 pour la soudure D1054, de 0,5 pour le D1156 et de 0,1 pour le D1072.

IV) Synthèse

Une synthèse des différentes caractéristiques (procédé de soudage, chimie globale) et caractérisations locales (précipitation, fractions linéiques des différents types de joints) est proposée dans le Tableau 19.

Tableau 19 – Synthèse des caractéristiques des soudures étudiées au cours de la thèse - = : densités comparables, + : plus fortes densités, - : plus faibles densités

Paramètre		D1054 (A182)	D1156 (A182)	D1072 (A82)
Technique de soudage		Manuel avec électrodes enrobées	Manuel avec électrodes enrobées	TIG (automatique)
Traitement thermique		Non	Oui - 10 heures à 610°C puis refroidissement à l'air	Non
Composition globale (% mass.)	Cr	15,0	14,4	20,8
	C	0,026	0,045	≤ 0,005
	Si	0,35	0,4	0,1
Enrichissements / appauvrissements aux dendrites ou espaces inter-dendritiques		Comparables dans les trois matériaux étudiés		
Précipitation inter et intragranulaire (microsonde)	Mn	=	=	=
	Si	+	+	-
	Nb	-	+	+
	O	+	+	-
Taux de couverture des joints de grains (MEB/EBSD)		0,2	0,5	0,1
Nature des joints de grains (EBSD)	CSL (%)	8	9	1
	LAGB (%)	35	38	75
	HAGB (%)	57	53	24

Parmi les trois moules de soudure qui ont été étudiés au cours de la thèse, les deux soudures en alliage 182 (repérées D1054 et D1156) ont été soudées manuellement à l'électrode enrobée alors que le moule de soudure en alliage 82 (repéré D1072) a été soudé automatiquement à l'électrode réfractaire (TIG). L'énergie de soudage (E_a) qui est conditionnée par l'intensité, la tension et la vitesse de soudage est plus importante pour la soudure D1054 que pour la D1156 ce qui ne semble pas avoir d'effet sur la nature des joints de grains dans la gamme des variations pratiquées entre les deux soudures. En effet, les caractérisations de la nature et de la désorientation des joints sur les soudures D1054, brute de soudage (BS) et D1156 (ayant subi un traitement thermique de détensionnement) ont montrés des proportions en joints de grains faiblement désorientés (LAGB), fortement désorientés (HAGB) ou en joints de coïncidence (CSL) équivalentes d'un matériau à l'autre (voir Tableau 19).

En revanche, dans la soudure D1072, les inspections ont mis en évidence une nette augmentation de la proportion de LAGB et une plus faible proportion de HAGB, joints qui sont les plus sensibles à la CSC [16]. Bien que les paramètres de soudage soient inconnus, il est possible que la vitesse de soudage ou l'énergie de soudage soit à l'origine de cette différence microstructurale.

En dépit, des différentes techniques et/ou conditions de soudage utilisées pour les alliages 182 et 82 inspectés, les microstructures observées sont similaires dans les trois soudures avec des grains colonnaires faisant entre quelques dizaines jusqu'à une centaine de micromètres suivant les directions T et L et entre plusieurs centaines de microns jusqu'à quelques millimètres suivant S. Cette morphologie est issue du gradient thermique qui est développé au cours du soudage. De plus, les analyses par (EBSD) ont mis en évidence une orientation préférentielle <100> suivant l'axe S de la soudure.

Les compositions chimiques globales des trois soudures diffèrent par leurs teneurs en chrome respectives avec une teneur de 21 % massique pour le matériau repéré D1072 et de 15 % en masse pour les soudures D1054 et D1156. Les teneurs en carbone des soudures D1072, D1054 et D1156 sont respectivement de 0,005 %, 0,026 % et 0,045 % (% mass.).

Des analyses à la microsonde de Castaing ont mis en évidence des hétérogénéités chimiques locales avec des différences de composition entre le cœur des dendrites et les espaces inter-dendritiques. Celles-ci résultent de la solidification au cours de laquelle les éléments d'addition et les impuretés sont repoussées vers les régions inter-dendritiques donnant lieu à un enrichissement en éléments mineurs (Mn, Si, Nb et Ti) de ces zones par rapport aux dendrites. Ces observations sont en bon accord avec les résultats de la littérature [49, 100] et montrent des ségrégations dans les espaces inter-dendritiques comparables entre les différentes soudures analysées.

La caractérisation des densités surfaciques de précipités a mis en évidence une plus forte proportion de précipités enrichis en Nb et une plus faible densité d'inclusions riches en O dans les soudures repérées D1156 et D1072 par rapport à la soudure D1054. A noter que ces tendances sont issues de quantifications faites sur des surfaces relativement faibles (~ 0,01 mm²) par rapport aux dimensions des moules de soudure (~ 1750 mm²) ce qui peut avoir un impact sur l'évaluation des densités surfaciques de précipités si les précipités ne sont pas distribués de manière homogène dans les différentes régions de la soudure (racine de la soudure, cœur, sommet ou encore zones de dilution entre deux passes). De plus, ces analyses ne prennent pas en compte les enrichissements conjoints en différents éléments qui ont été mis en évidence sur la soudure D1156 avec l'observation de précipités de type core-shell enrichis en Si, Ti, Nb et O également observés par Sennour [54] dans les alliages 82.

La fissuration par CSC prenant place aux joints de grains, la précipitation intergranulaire a surtout été étudiée. Des inspections au MET sur les 3 soudures étudiées au cours de la thèse ont permis de mettre en évidence la présence de carbures de niobium et de chrome aux joints de grains ce qui est en accord avec la littérature sur les alliages 182 [36] et sur les alliages 82 traités thermiquement [54]. Comme présenté dans le chapitre de synthèse bibliographique, la précipitation intergranulaire de carbures de chrome joue un rôle prépondérant sur l'augmentation de la résistance à la CSC des alliages base nickel en milieu primaire REP.

La quantification des taux de couverture des différentes soudures a souligné un probable effet du TTD sur l'homogénéisation de la précipitation intergranulaire. La comparaison des taux de couverture par les précipités intergranulaires dans les soudures D1054, D1072 et D1156 met en évidence d'une part, une précipitation plus homogène entre les joints de grains de différentes nature et désorientation sur le matériau TTD par rapport aux soudures BS. D'autre part, sur la soudure TTD, la précipitation intergranulaire est systématiquement plus élevée que sur les soudures BS.

En termes de taux de couverture moyen (tous joints confondus) caractérisés, on observe : $GBC_{D1156} > GBC_{D1054} > GBC_{D1072}$.

D'après les analyses sur les soudures D1054 et D1072 (BS), il semble que la propension à la précipitation intergranulaire soit à relier à la teneur en C comme l'a montré Sennour [54] dans les

alliages 82. En effet, le plus faible GBC correspond bien à la soudure qui présente une teneur en C plus faible. Ces résultats peuvent être comparés à ceux obtenus par Vaillant [36] (Figure 46) sur des alliages 182 présentant différentes teneurs en C et dans les états TTD et BS.

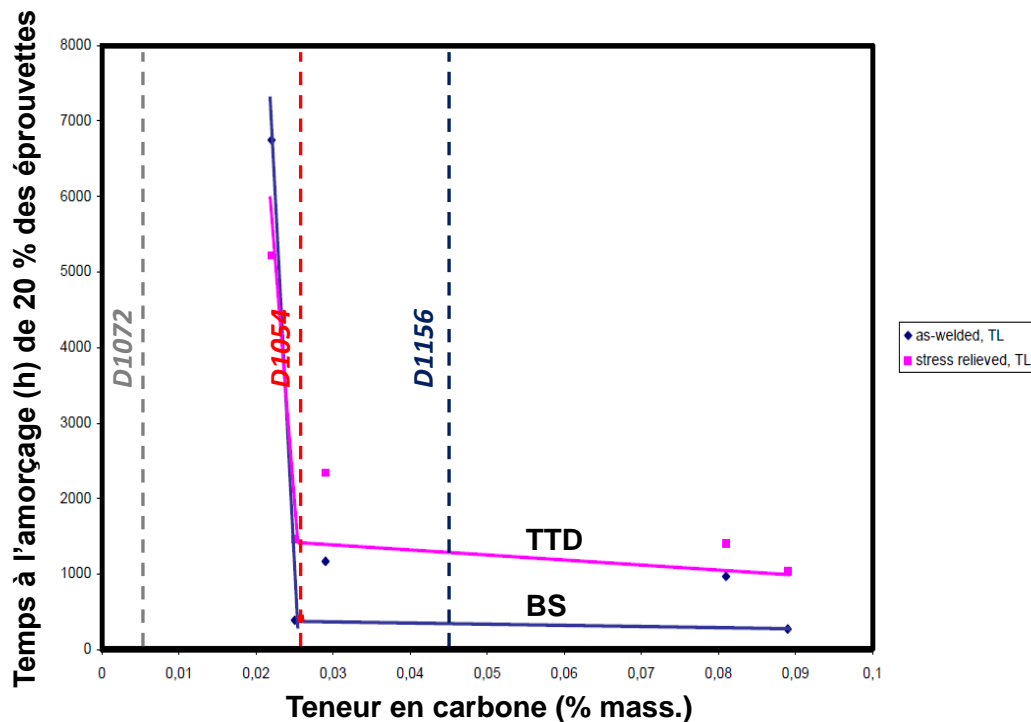


Figure 67 – Evolution du temps à l'amorçage en fonction de la teneur en carbone, impact d'un traitement thermique de détensionnement dans différents alliages 182 d'après [36]

D'après la Figure 67, il semble qu'un TTD ne soit bénéfique vis-à-vis de l'amorçage de la CSC que pour des teneurs en C supérieures à 0,025 % en masse.

Nous rappelons également que la présence de zones appauvries en chrome a été observée au niveau des joints de grains, à proximité des carbures de chrome intergranulaire. D'après les résultats présentés dans la synthèse bibliographique, la présence de portions de joints de grains appauvries en chrome suite à une précipitation de carbures de chrome intergranulaires n'est pas néfaste pour la résistance à la CSC en milieu primaire REP, ce qui semble être corroboré par les résultats de laboratoire sur des U-bends en alliages 182, qui montrent une plus grande résistance de la soudure repérée D1156 par rapport à la soudure D1054 [101].

En revanche, aucun essai d'amorçage n'a été réalisé sur la soudure D1072. Toutefois, le retour d'expérience international du parc et des essais de laboratoire montrent une plus grande résistance à la CSC des alliages 82 [8, 36, 37]. Cependant, en raison d'un GBC moyen encore plus faible que celui de la soudure D1054, la meilleure résistance à la CSC ne semble pas être due à la précipitation de carbures de chrome intergranulaires. En revanche, la teneur en chrome de la soudure D1072 est plus élevée que celle des soudures en alliages 182 étudiées ce qui constitue très probablement le facteur de premier ordre à l'origine de la meilleure résistance des alliages 82.