



FR0400971

Mécanisme de microfluage du tungstène

RICHARD LEVOY
ISABELLE HUGON
(DCC/DTE/SIM- CEA PIERRELATTE)
HÉLÈNE BURLET
XAVIER BAILLIN
LAURE GUETAZ
(DTA/DEM/SGM- CEREM GRENOBLE)

RICHARD LEVOY
ISABELLE HUGON
HÉLÈNE BURLET
XAVIER BAILLIN
LAURE GUETAZ



OBJECTIF DE L'ÉTUDE

Le tungstène possède la température de fusion la plus élevée de tous les métaux (3410°C). Il est utilisé pour différentes applications industrielles à haute température dans la mesure où le milieu n'est pas oxydant (écran thermique de four sous vide, filaments de lampe à incandescence, de canon à électrons,...). Le comportement en fluage du tungstène est bien connu dans le domaine de température de 1200° à 2800°C et pour des déformations relatives ($\epsilon = \Delta L/L$) comprises entre 10^{-3} et $3 \cdot 10^{-1}$. Pour certaines applications particulières, lorsque la stabilité dimensionnelle des composants est impérative, il est nécessaire de connaître le comportement des matériaux dans le domaine des microdéformations (10^{-6} et 10^{-4}) dues à l'application de contraintes mécaniques de tension ou de compression peu élevées (1 à 20 MPa).

Cette étude, basée sur les microdéformations de fluage du tungstène vers 1000°C en longue durée (>1000 heures) a pour objectif d'identifier les mécanismes physiques responsables du microfluage puis de proposer des solutions pour réduire ce dernier.

MÉTHODES DÉVELOPPÉES POUR LA MESURE DES MICRODÉFORMATIONS DE FLUAGE

Pour obtenir des mesures fiables de déformations à un niveau de 10^{-6} , une méthode permettant d'accéder à des taux de 10^{-7} a été développée. Cette méthode est basée sur un essai de fluage en flexion à l'aide d'une éprouvette de 200 mm de longueur. Les déformations sont déterminées à partir de la mesure de la flèche (mesure différentielle sans contact avec un capteur capacitif dont la précision se situe entre 0,1 et 1µm). Dans ces conditions, une déformation du matériau de 10^{-7} correspond à la mesure d'une flèche de l'ordre de 1µm sur la partie utile de l'éprouvette.

LOIS DE FLUAGE DU TUNGSTÈNE CORROYÉ, "DÉTENSIONNÉ" OU RECRISTALLISÉ

Des lois de fluage de type Norton ou de type Chaboche ont été établies pour du tungstène élaboré par frittage de poudre puis corroyé.

Norton :

$$\epsilon = A \cdot \exp(-Q/RT) \cdot \sigma^n \cdot t^m$$

Chaboche :

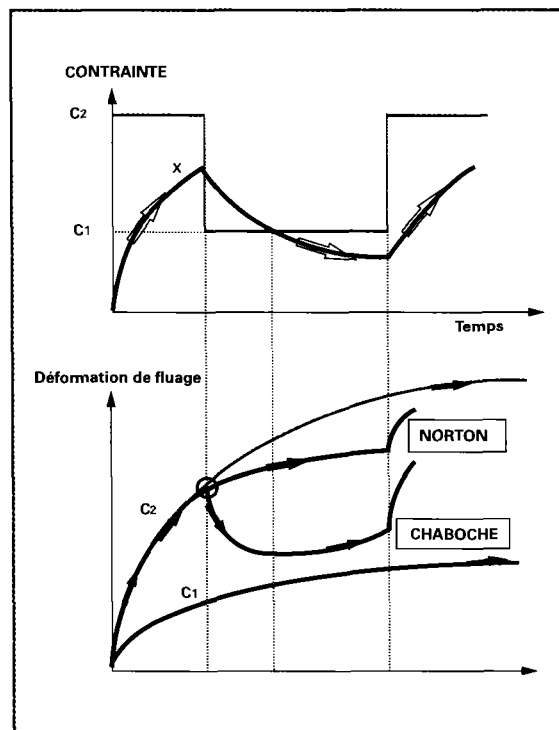
$$\frac{\partial \epsilon}{\partial t} = \epsilon_0 \cdot (|\sigma - X|/K)^n \cdot \text{signe}(\sigma - X) \cdot \exp(-Q/RT)$$

$$\text{et } \frac{\partial X}{\partial t} = (C \cdot \frac{\partial \epsilon}{\partial t}) - D X |\frac{\partial \epsilon}{\partial t}| - (X/M)^p \text{signe}(X)$$

(ϵ : déformation de fluage, Q : énergie d'activation des mécanismes mis en jeu lors du fluage, T : température absolue, σ : contrainte appliquée, n : exposant de contrainte de Norton, X : contrainte interne, D et M : coefficients liés aux termes de restauration dynamique et statique, t : temps, A , C , K , m et p : coefficients).

Pour chaque état métallurgique étudié (brut de corroyage, "détensionné" ou recristallisé) les essais et les lois de fluage obtenues ont montré (en corrélation avec le domaine des faibles contraintes étudié) que les vitesses de fluage décroissaient de façon continue (fluage primaire) pendant des durées ≥ 1000 heures, que le tungstène fluait de façon symétrique en tension et en compression et enfin que ce métal était sujet au fluage inverse. Le fluage inverse (Figure 1) se manifeste (suite à une variation de contrainte ou de température), par une déformation visqueuse de signe opposé à celui de la contrainte appliquée. Dans ce cas les lois de type Chaboche (qui font intervenir une contrainte interne "X" en tant que mémoire de l'histoire thermomécanique du matériau) sont indispensables pour représenter le comportement réel du matériau. Toujours en relation avec les faibles niveaux de contraintes étudiés, il a été montré également que le tungstène présentait un exposant de contrainte voisin ou égal à 1 et qu'il n'y avait pas de "contrainte seuil" en dessous de laquelle le tungstène ne fluait pas.

Figure 1
Évolution de la déformation de fluage et de la contrainte interne X sous chargement variable (σ_2 puis σ_1)
Seule la loi de type CHABOCHÉ permet une représentation correcte de la déformation de fluage.



ÉVOLUTIONS MICROSTRUCTURALES ET MÉCANISMES DE DÉFORMATION LORS DU MICROFLUAGE DU TUNGSTÈNE

Les exposants de contrainte égaux à l'unité sont souvent observés à haute température (0,7 à 0,9 T_K de fusion) ; ils correspondent aux domaines de fluage où les déformations sont dues à la diffusion d'atomes et de lacunes (en volume ou aux joints de grains). Dans le cas du microfluage à basse température du tungstène (0,3 T_K de fusion) le mécanisme ne peut pas être diffusif compte tenu des résultats suivants :

- d'une part, les déformations sont indépendantes de la dimension des grains dès lors que celle-ci dépasse 10 μ m (dans le cas du

Mécanisme de microfluage

Figure 2
Tungstène à l'état "détensionné" (6h à 1000°C), aspect général de la microstructure observée en MET

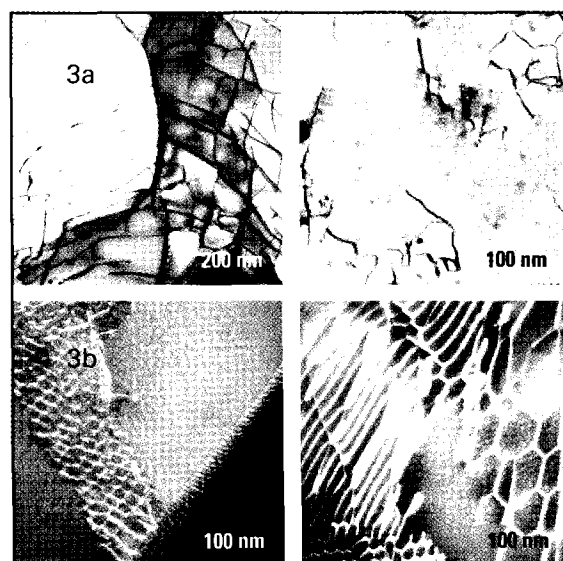


Figure 3
Tungstène à l'état "détensionné". Formation d'enchevêtrements de dislocations lors des maintiens à 975°C. Les enchevêtrements sont irréguliers lors du fluage (3-a) et sous forme de structures hexagonales régulières lors des maintiens sans contrainte (3-b)

fluage-diffusion la taille des grains intervient au cube ou au carré dans les relations donnant les vitesses de déformations),

- d'autre part, les énergies d'activation déterminées pour le tungstène dans les lois de fluage de type Norton sont 5 à 15 fois plus petites que l'énergie d'autodiffusion de ce métal.

Pour déterminer le mécanisme physique responsable du microfluage, la microstructure du tungstène a été étudiée à partir d'observations par MEB "Microscopie électronique à balayage", par analyse de texture par EBSD "Electron Back Scattering Diffraction" et par MET "Microscopie électronique en transmission". Trois états ont été analysés : l'état référence ("détensionné" ou recristallisé), l'état référence maintenu en température 400 h à 975°C et l'état référence flué pendant 400 h sous une contrainte de 26 MPa à 975°C. La comparaison des deux derniers états permet de différencier les évolutions liées à la déformation plastique de celles associées au maintien en température durant l'essai de fluage.

L'état "détensionné" est constitué de petits grains d'une taille de l'ordre de 1 à 5µm (Figure 2). Ces petits grains sont le plus souvent séparés entre eux par des sous joints de faible désorientation. La présence de nombreuses dislocations dans les petits grains montre que le traitement de "détensionnement" n'a pas conduit à une restauration totale du matériau.

La microstructure des éprouvettes fluées et de celles maintenues en température ne présente pas de différence notable avec l'état "détensionné" initial. Le fluage ne conduit pas à la création de nouvelles dislocations dans les grains. Il semble plutôt que lors du maintien en température sous charge ou sans charge la restauration des dislocations continue. Ces observations suggèrent que le mécanisme de microfluage n'est pas le mécanisme classique (sous chargement plus élevé)

lié au déplacement des dislocations à l'intérieur des grains (fluage - dislocation). La déformation plastique semble se produire lors du réarrangement des dislocations au cours du processus de restauration.

La Figure 3 montre les deux types d'arrangement de dislocations observés dans le matériau. Les dislocations forment soit des enchevêtrements imparfaits (Figure 3a) lors des maintiens sous charge, soit des structures hexagonales régulières (Figure 3b) lors des maintiens sans charge. Ces dernières étant stables, ce sont les enchevêtrements imparfaits qui évoluent lors du maintien en température. Ceci est en accord avec un fluage de type Harper-Dorn dont Ardell explique le mécanisme à partir du réarrangement de réseaux de dislocations (1). Le taux de déformation de fluage devrait ainsi être diminué par la stabilisation des enchevêtrements vers des structures régulières en effectuant un maintien prolongé en température du matériau (2).

Après recristallisation à 1500°C, les dislocations dans les grains de 10 à 30µm ont disparu mais il subsiste environ 10% de petits grains identiques à ceux de l'état "détensionné" et présentant la même densité et la même configuration de dislocations. Au cours des maintiens à 975°C, ces zones non recristallisées évoluent de la même façon que la structure "détensionnée" initiale (réarrangements des dislocations plus ou moins réguliers suivant que le maintien se fait sans ou avec contrainte). Ces observations permettent d'expliquer la supériorité en fluage de la structure recristallisée par rapport à la structure "détensionnée"; il y a moins de zones où les dislocations génèrent des micro-déformations; il y a donc moins macroscopiquement de déformation de fluage. En ce qui concerne les zones recristallisées, la seule évolution apparaissant au cours des maintiens à 975°C et observée en MEB, est une modification de la forme de certains grains. Ce changement de morphologie est visible sur la Figure 4 où la même zone est comparée avant et après maintien à 975°C.

CONCLUSIONS

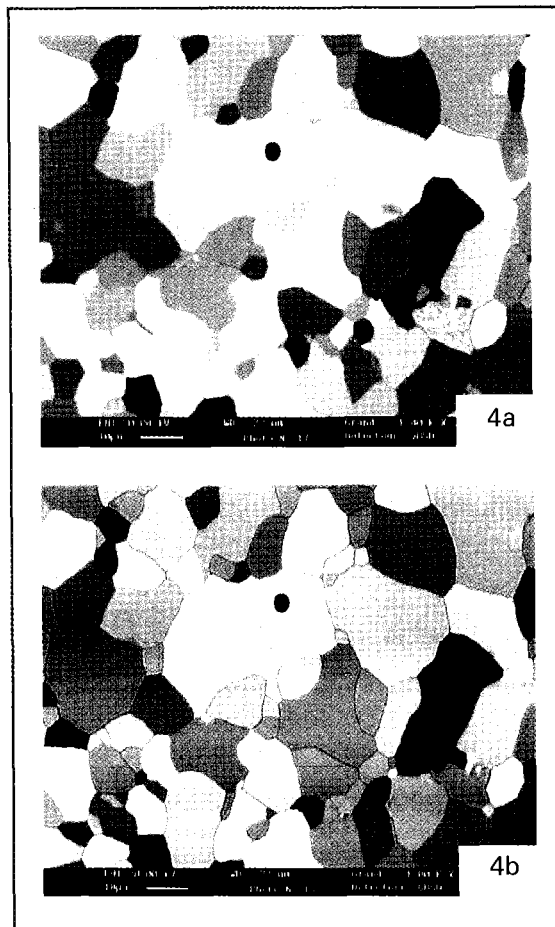
Cette étude a permis d'identifier les mécanismes de déformation survenant lors du microfluage du tungstène à basse température :

- les déformations sont essentiellement liées à des mécanismes de réarrangement de dislocations présentes au sein du matériau avant qu'il soit sollicité en fluage (et non pas créées pendant le fluage comme celles intervenant en fluage-dislocation sous contrainte plus élevée),
- ce mécanisme de déformation correspond à un fluage de type Harper-Dorn basé sur les mouvements et les réseaux de dislocations (1),
- les lois de comportement dans le domaine du fluage Harper-Dorn se caractérisent par un exposant de contrainte égal à 1 et des vitesses de fluage indépendantes de la taille des grains (et nettement supérieures à celles prédites par le fluage-diffusion de Nabarro-Herring et de Coble). Toutes ces caractéristiques ont été mises en évidence au cours de cette étude sur le tungstène.

Ces résultats ont permis à A. Paret (2) de prédire une voie d'amélioration de la tenue en fluage du tungstène "détensionné" en proposant, préalablement à la sollicitation en fluage, un traitement thermique prolongé destiné à faire évoluer la configuration des dislocations (formation de sous joints à structure hexagonale) sans modifier la taille des grains. Ce point a été vérifié expérimentalement ; l'application de ce traitement divise par 2 les déformations de fluage entre 950 et 1000°C.

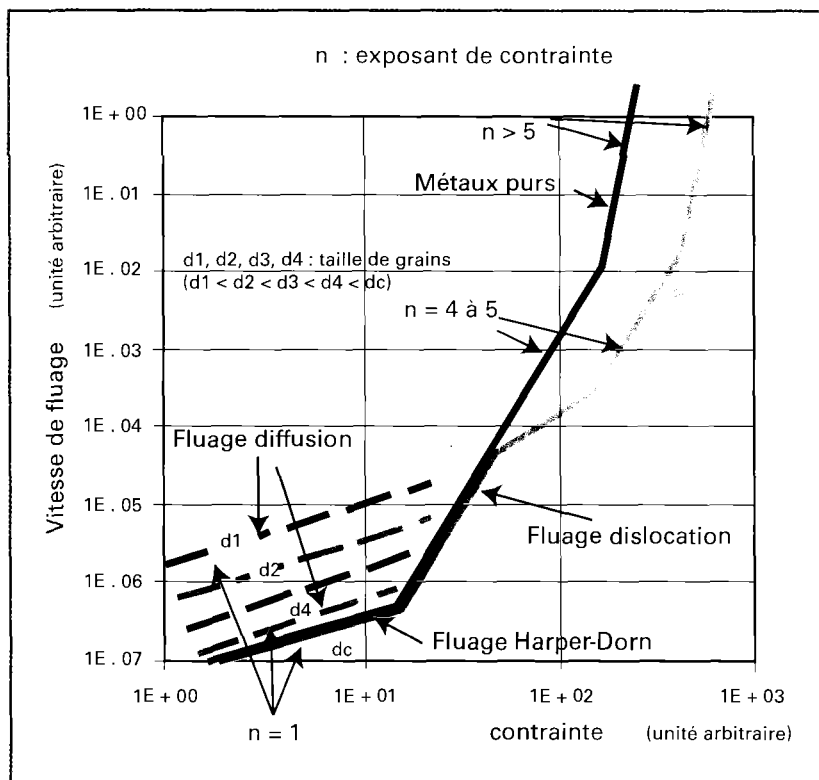
Il faut noter enfin que l'exposant de contrainte égal à l'unité dans le domaine des faibles contraintes n'est pas une spécificité du tungstène, puisque ce comportement a été observé sur plus d'une dizaine de

Figure 4
Tungstène à l'état recristallisé (4h à 1500°C). Effet d'un maintien à 975°C (400h) sur la morphologie des grains ; avant maintien (4a) et après maintien (4b)



Mécanisme de microfluage du tungstène

Figure 5
Evolution de l'exposant de contrainte n en fonction de la contrainte et effet sur la vitesse de fluage



RÉFÉRENCES

- [1] A. J. ARDELL-
A dislocation-network theory of Harper-Dorn creep.
Acta Metall. Vol 45 n°7 1997 Ppp2971/2981
- [2] A. PARET, A. MEDEVIELLE et X. BAILLIN.
Évolutions microstructurales du tungstène dues au fluage.
International Journal of refractory metals. (à paraître)

RICHARD LEVOY
ISABELLE HUGON
HÉLÈNE BURLET
XAVIER BAILLIN
LAURE GUETAZ

Microcreep mechanisms of tungsten

Due to its high melting point (3410°C), tungsten offers good mechanical properties at elevated temperatures for several applications in non-oxidizing environment.

The creep behavior of tungsten is well known between 1200 and 2500°C and 10^{-3} to 10^{-1} strain.

However, in some applications when dimensional stability of components is required, these strains are excessive and it is necessary to know the creep behavior of the material for microstrains (between 10^{-4} and 10^{-6}).

Methods and devices used to measure creep microstrains are presented, and creep equations (Norton and Chaboche laws) were developed for wrought, annealed and recrystallized tungsten.

The main results obtained on tungsten under low stresses are : stress exponent 1, symmetry of microstrains in creep-tension and creep-compression, inverse creep (threshold stress), etc.

TEM, SEM and EBSD studies allow interpretation of the microcreep mechanism of tungsten under low stresses and low temperature (~ 0.3 K) like the Harper-Dorn creep. In Harper-Dorn creep, microstrains are associated with the density and the distribution of dislocations existing in the crystals before creep. At 975°C, the initial dislocation structure moves differently whether or not a stress is applied.

To improve the microcreep behavior of tungsten, a heat treatment is proposed to create the optimum dislocation structure.