industrie minérale

CAHIERS DU GROUPE FRANÇAIS DE RHÉOLOGIE

TOMEIV - NUMÉRO 3



Numéro spécial du 15 mars 1977

CAHIERS

DU GROUPE FRANÇAIS DE RHÉOLOGIE

Tome IV — Numéro 3 15 mars 1977

tao polyinnioos at marathum heuroa aropriditos en tempétete

BRE N

in formage das vertes meuschers, son

H. LE DOUSSAL

to comportament chéologique à haide températura das produïta réfracteuros taponaes....

UBIHEAM .A

cobjortoment des allers retractiones à dat-

Platamate de la concettare :

Appelestion da la manhous des trançes projettes a la lattele experimentale de ta consiste des extensiones el da consiste des extensiones el posté lugres de révero de la structure su misériese de la structure (d) % Une récel les structure (d) % Une récel les structure (d) % Une récel

Edité par la Revue de l'Industrie Minérale 19, rue du Grand-Moulin, 42029 Saint-Etienne Cedex

sommaire

ISSN 0373-5699

83

84

COLLOQUE DU 18 DECEMBRE 1975

INFLUENCE DE LA TEMPERATURE SUR LES PROPRIETES DES MATERIAUX

Introduction par P. HABIB, président du G.F.R.

J. ZARKA, J. CASIER, J.J. ENGEL

Influe	nce	de	la	tempe	érature	su	r I	le	C	on	n	00	or	te	<u>-</u>	
ment	méd	cani	que	e des	aciers											

B. BARTHELEMY

Variations avec la température des propriétés	
physiques et mécaniques des aciers de cons-	
truction. Application à la prévision de la tenue	
au fer des structures en acier	103

J.C. QUINAT

Les	polyimides	et	matériaux	composites	à	
haut	es propriétés	s en	températu	re		109

M. BRÉ

Viscosité des v	erres industriels,	son rôle dans	
le formage des	verres		115

H. LE DOUSSAL

Le	con	npor	tement	rhéol	ogique	à	haute tempé	j-
ratu	re	des	produit.	s réf.	ractaire	es	taçonnés	. 119

A. MATHIEU

Comportement	des	bétons	réfractaires	à	hau-	
tes températur	es.					129

Photographie de la couverture :

Application de la méthode des franges projetées à l'étude expérimentale de la capacité de résistance et de rotation des assemblages soudés. Lignes de niveau de la structure au voisinage de la rupture (40 t). Une interfrange représente une différence de niveau de 1 mm.



Direction Résistance des Matériaux Expérimentale CEBTP

INDUSTRIE MINERALE

COLLOQUE DU 18 DÉCEMBRE 1975

INFLUENCE DE LA TEMPÉRATURE SUR LES PROPRIÉTÉS DES MATÉRIAUX

INTRODUCTION

par P. HABIB, président du G.F.R.

Le grand désordre qui règne dans l'influence de la température sur les propriétés mécaniques des matériaux est essentiellement celui de l'agitation thermique alliée aux modifications des réseaux cristallins ou pseudo-cristallins (grossissement de cristaux, changement de phases...). D'une façon presque générale l'effet de la température est un affaiblissement de la matière, particulièrement spectaculaire avec l'effondrement de la structure qui entraîne la fusion. Ce sont les propriétés d'écoulement qui sont les plus sensibles à la température : viscosité des liquides, fluage ou relaxation des solides. L'agitation thermique rend plus probables, donc plus faciles, donc plus fréquents, donc plus rapides les sauts molécu laires qui régissent les distorsions de l'écoulement. On voit apparaître là une analogie entre température et vitesse et cette analogie prend sa plus parfaite expression avec la loi, dite W.L.F., de l'équivalence temps-température pour les matériaux viscoélastiques soumis à des sollicitations cycliques. Par contre tant que le réseau cristallin n'est pas atteint, ni dégradé, ni modifié, il ne se passe rien ou pas grand chose : par exemple le module d'élasticité d'un métal loin des températures de transformation reste pratiquement constant, aux effets de dilatation près.

Mais dès qu'on approche d'un seuil, l'effet de la chaleur est sensible ; ainsi la résistance à la rupture est une fonction décroissante de la température. On retrouve l'analogie temps-température pour le passage du phénomène d'écoulement à celui de la rupture, c'est-à-dire pour la transition ductile-fragile pour les corps « solides » au sens vulgaire. Ainsi du bitume, liquide purement visqueux, qui sollicité très vite à chaud ou lentement à froid se brise en morceaux. Ainsi de certains solides viscoélastiques, de certains solides viscoplastiques et de certains solides minéraux réputés fragiles. Ici apparaît un autre voisinage, celui de l'influence de la pression qui s'exerce aussi sur la transition fragile-ductile. Mais pression et température, qui jouent classiquement des rôles équivalents en physique, en particulier parce que la compressibilité diminue la longueur du libre parcours moyen, ont ici des effets différents notamment lorsque la pression augmente la résistance des matériaux répondant au critère de Coulomb. D'où la nécessité de mener une enquête matériau par matériau et d'examiner expérimentalement dans chaque cas l'influence de la température sur les différents éléments du comportement rhéologique de la matière.

equerimenti-le que dans la formulation n'astronatique oi l'anargant-ban physique des propriéres méricos oses des moreus. La recinentes des relations da comportement c'an restariou conna main astro-d'ini accors un probleme d'actualité per 15 art indontes de provoir discoses dans routes les geneers de tauretore de indontes.

valables dans tuda tea cas de dhajqemant, munto tons, cyclique, statique, derendqua, unita e en

electron en Collectro du Grectro d'altrada de l'édalectro

Influence de la température sur le comportement mécanique des aciers*

par J. ZARKA, J. CASIER, J.J. ENGEL, Laboratoire de Mécanique des solides, Ecole Polytechnique. 91128 Palaiseau (France).

RESUME

Revue critique des résultats expérimentaux déjà disponibles. Eléments physiques qui permettent de les interpréter. Représentation mathématique de ces résultats.

1. INTRODUCTION

Depuis toujours on s'est servi du feu et de l'eau pour former les armes, les outils et améliorer leur résistance mécanique. En effet, un métal porté à haute température est plus facile à forger, alors qu'une trempe brutale à l'eau le durcit. C'est là un des aspects élémentaires de l'influence considérable de la température.

Mais, devant les besoins de l'industrie qui fait appel à des métaux de plus en plus sophistiqués qui, pour des raisons économiques, sont utilisés à leurs limites ultimes de sécurité, il est devenu nécessaire de dépasser le stade empirique pour connaître avec précision l'influence de la température sur le comportement des métaux.

Au cours de ces dernières années, d'importants progrès ont été réalisés aussi bien dans l'étude expérimentale que dans la formulation mathématique et l'interprétation physique des propriétés mécaniques des métaux. La recherche des relations de comportement d'un matériau donné reste aujourd'hui encore un problème d'actualité, car il est important de pouvoir disposer *dans toutes les gammes de temrature*, de relations :

.... valables dans tous les cas de chargement, monotone, cyclique, statique, dynamique, uniaxial ou complexe; mais aussi:

.... simples à utiliser et à incorporer dans la résolution des problèmes aux limites, et donc dans les codes de calcul des structures.

Cette note a principalement pour but de décrire les éléments qui sont dès à présent disponibles.

Dans une première partie, on rappelera en les commentant les résultats expérimentaux obtenus dans les essais mécaniques classiques. Ensuite, les principales représentations macroscopiques et microscopiques du comportement des métaux, et plus particulièrement des aciers, seront passées en revue, en dégageant leurs limites actuelles respectives.

2. LES DIFFERENTS TYPES CLASSIQUES D'ESSAIS

2.1. CHARGEMENT SIMPLE OU UNIDIMENSIONNEL

2.1.1. Principe général

Les essais sous chargement unidimensionnel sont les essais de caractérisation les plus courants. On admet que l'éprouvette est soumise à un état de contrainte « uniforme » et unidimensionnel lorsque l'on n'impose qu'une seule variable mécanique Q (force de traction, de compression, couple de torsion. pression...) suffisamment lentement de façon à pou-

Communication au Colloque du Groupe français de Rhéologie, le 18 décembre 1975.

voir négliger les effets d'inertie, et que l'on mesure la variable cinématique correspondante q (allongement, rotation, variation de volume...). Ces essais sont en général effectués à température constante sous atmosphère contrôlée ou sous vide.

Malgré de nombreuses difficultés, de tels essais ont néanmoins permis de mettre en évidence un grand nombre de résultats expérimentaux en élasticité, plasticité, viscoélasticité et viscoplasticité. B. Jaoul (1965) les a décrit dans son livre avec précision, nous en rappelons ici les points essentiels.

2.1.2. Essai de traction simple

C'est l'essai le plus courant, car il est relativement simple à mettre en œuvre. On se sert d'éprouvettes plates, cylindriques ou tubulaires. Il est en général effectué à température constante et en imposant la vitesse de déplacement relative des extrêmités de l'éprouvette, la vitesse de déformation ou la vitesse d'accroissement de la force axiale exercée.

On mesure l'effort exercé F et l'allongement de la partie centrale Δl que l'on traduit par la courbe $S = \frac{F}{S_o}$ en fonction de $e = \frac{\Delta l}{l_o}$; $S_o l_o$ étant la section et la longueur initiales de l'éprouvette (figure 1).

Sur ces courbes, on distingue différentes phases :

- La partie élastique, où les déformations sont « réversibles ».

— Pour certains types d'aciers (aciers doux, ferritiques), cette partie se prolonge souvent par un pic suivi d'un plateau. La déformation est localisée dans certaines zones de l'éprouvette avant de s'étendre à l'ensemble. Les bandes de Piobert-Luders sont observables sur la surface de l'éprouvette. Pour la plupart des aciers austénitiques, on n'observe pas ce phénomène.

 La courbe s'incurve ensuite avec l'apparition des déformations permanentes plastiques.



Fig. 1. — Courbes de traction simple d'un acier inoxydable de type 304. Plaque de 5 cm d'épaisseur, recuite 0,5 h à 1 093 ℃ (d'après Ornl, 1973)





— Dans certains domaines de températures et de vitesses de déformation, on peut aussi observer des oscillations régulières sur la courbe de traction, qui traduisent des phénomènes d'instabilité (l'effet Portevin-Le Chatelier) (*figure* 2).

Actuellement, les résultats expérimentaux sont presque toujours exprimés par les courbes rationnelles $\sigma = \frac{F}{S}$ (effort rapporté à la section actuelle) en fonction de la déformation vraie $\varepsilon = I n \left(\frac{I}{I_o}\right)$ (*I* étant la longueur actuelle) (figure 3).

A chaque température, on peut ainsi tracer un réseau de courbes de traction, obtenu en faisant varier la vitesse de déformation. En comparant toutes ces courbes entre elles, on peut faire les remarques suivantes :

— D'une façon générale, une augmentation de température diminue la résistance du matériau et donne lieu, pour un taux de contrainte donné, à des déformations plus importantes. Une augmentation de la vitesse de déformation donne des effets contraires. Il semble exister un parallélisme entre une augmentation de température et une diminution de la vitesse de déformation.



Fig. 3. — Courbes de traction d'acier inoxydable à basses températures (d'après B. Jaoul, 1965) — Par ailleurs, en fonction du domaine de températures et de vitesses où l'on se place, on peut définir deux types de comportement :

i/ Pour des températures moyennes et des vitesses de déformation faibles $(10^{-6} \text{ à } 10^{-2}/\text{s})$, il n'y a que peu de variations d'une courbe à l'autre, c'est le comportement plastique classique avec cependant, dans certains cas, des phénomènes d'instabilité.

ii/ Au contraire, pour des températures plus élevées ou des vitesses de déformation soit très importantes, soit très faibles, les variations d'une courbe à l'autre sont très importantes, c'est le comportement viscoplastique.

TABLEAU I

Grandeurs caractéristiques en traction simple d'un acier inoxydable de type 304 Plaque A 240 d'épaisseur 5 cm. Recuite 0,5 h à 1 093 °C (d'après Ornl, 1973)

Tempé- rature	Vitesse de défor-	Lii (N	mite 1Pa)	Déform	Réduction de	
(°C)	mation (mn ⁻¹)	élas- tique	à la rupture	uni- forme	totale	section %
25	0,4 0,04	196 178 191	519 538 542	65,6 85,6 76,3	76,5 91,4 89.0	81,5 83,0 83,3
	0,004 0,0004	184 183 161	551 566 537	85,2 82,5 96,0	102,0 98,0 106,0	85,1 85,2 83,8
260	0,4 0,04 0,004 0,0004	103 101 108 109 91	388 394 385 409 408	45,6 47,2 44,0 47,7 52,3	50,8 51,2 48,3 49,9 53,4	75,1 73,3 72,6 63,7 71,6
427	0,4 0,04 0,004 0,0004	85 86 86 89 81	385 394 425 421 419	45,6 45,6 45,9 45,3 50,9	47,3 44,6 52,2 50,4 56,2	66,9 59,8 63,8 71,5 65,8
482	0,4 0,04 0,004 0,0004	79 84 80 83 77	372 385 400 393 390	45,6 46,4 43,2 47,5 51,8	49,9 51,5 50,3 54,7 56,8	70,0 71,4 64,8 58,9 63,7
538	0,4 0,04 0,004 0,0004	83 75 76 77 70	357 327 367 373 329	40,0 48,0 43,3 39,4 46,3	45,9 51,9 52,1 52,5 46,2	71,1 71,1 64,1 67,3 41,1
593	0,4 0,04 0,004 0,0004	69 70 74 76 70	323 322 313 315 254	41,6 48,0 34,6 32,8 28,8	47,2 49,6 38,0 45,4 31,8	70,6 63,3 32,4 43,2 32,3
649	0,4 0,04 0,004 0,0004	65 72 70 70 68	293 277 247 283 182	40,0 36,0 25,5 28,0 20,2	49,2 48,3 33,1 37,0 30,9	63,4 49,2 31,9 33,4 26,2
704	0,4 0,04 0,004 0,0004	64 66 76 77 70	248 215 186 185 130	31,7 28,8 19,0 19,4 10,1	44,7 42,8 39,0 40,0 29,2	43,5 41,9 32,4 33,8 24,4

Les différentes courbes expérimentales ainsi obtenues fournissent les données mécaniques les plus importantes, à l'heure actuelle, pour la caractérisation du comportement d'un matériau précis : (*tableau* I) (Ornl 1973).

a/ Coefficients élastiques

Lorsque la température augmente, les coefficients élastiques décroissent légèrement. Ainsi, par exemple, pour un acier, le module d'Young diminue en moyenne de 3,5 % pour une augmentation de température de 100 °C (entre 0 et 800 °C). C'est une influence non négligeable de la température sur le comportement élastique du matériau (*figure* 4).

b/ Limite élastique du matériau

Théoriquement, la limite élastique correspond au point de transition entre la zone élastique et la zone des déformations plastiques permanentes. Comme cette transition n'est pas toujours très nette, on a été amené à prendre une définition conventionnelle, qui est la valeur de la contrainte correspondant à une déformation plastique permanente de x % (généralement 0,2 %; 0,1 % ou 0,5 %; 0,2 °/∞; 0,1 °/∞).

Il est bien évident que de telles déterminations sont étroitement liées à la précision des mesures de déformations effectuées.

De plus, comme le montre la figure 5, la limite élastique est très sensible aux variations de température, surtout aux basses températures. La vitesse de déformation a également une influence notable à des températures moyennes.

La limite élastique est, par ailleurs, très sensible aux déformations subies antérieurement. Si, par exemple, on plastifie une éprouvette en compression, en inversant la contrainte, on obtiendra une nouvelle limite élastique en traction, qui est en général infé-



Fig. 4. — Variation du module d'Young en fonction de la température pour différents aciers (A.S.T.M.)

86

INDUSTRIE MINERALE



Fig. 5. — Variation de la limite élastique à 0,2 % avec la température et la vitesse de déformation pour un acier inoxydable de type 304 recuit 0,5 h à 1 093 °C (d'après Ornl, 1974).

rieure à la limite précédente (effet Bauschinger). On peut ainsi observer soit une expansion de l'intervalle limite élastique en traction — limite élastique en compression —, soit une conservation de cet intervalle accompagnée d'une translation, soit des cas intermédiaires (*figure* 6).

c/ Résistance à la rupture

C'est elle qui caractérise la résistance ultime du matériau. Mais, de même que pour la limite élastique, on observe une forte dépendance des conditions expérimentales et de la nature du matériau avec, dans certains cas, des phénomènes d'instabilité qui créent des singularités de comportement (*figure* 7).

d/ Allongement à la rupture et réduction de section maximale

Ces grandeurs caractérisent la ductilité du matériau. Là encore, les conditions expérimentales modifient notablement les valeurs obtenues (*figure* 8).

Les essais de traction simple fournissent ainsi de nombreux résultats fondamentaux, qui sont très étroitement liés aux conditions expérimentales.

2.1.3. Essais de fluage - relaxation

Le caractère viscoplastique que nous avons pu remarquer sur les courbes de traction est encore davantage mis en évidence dans les essais de fluage sous charge constante ou de relaxation ($\dot{\epsilon} = o$), car l'influence du temps est étudiée explicitement.

En fonction du temps, pour une contrainte et une température donnée, l'allure des courbes ε (t) est très variable pour un même matériau en fonction des paramètres σ et T (*figure* 9 et *tableau* II). Lorsque σ est important, la déformation évolue très vite vers la rupture ; au contraire, pour des valeurs très faibles de σ







INDUSTRIE MINERALE

Fig. 7. — Variation de la résistance ultime en traction avec la température et la vitesse de déformation pour un acier inoxydable de type 304 recuit 0,5 h à 1 093 °C (d'après Ornl, 1974)

Fig. 8. — Variation de l'allongement uniforme en fonction de la température et de la vitesse de déformation pour un acier inoxydable de type 304, recuit 0,5 h à 1 093 °C (d'après Ornl, 1974)



Fig. 9. — Courbes de fluage pour un acier inoxydable de type 304 à 598 °C. Plaque de 2,5 cm d'épaisseur recuite à 1 093 °C (d'après Ornl, 1973)

la déformation peut rester stationnaire. Si au cours d'un essai on diminue la contrainte, on peut observer des phénomènes transitoires comme l'hésitation au fluage (*figure* 10). La durée de vie en fluage est aussi une grandeur importante à considérer (*figure* 11).

La figure 12 montre les courbes de relaxation d'un acier pour différents niveaux de déformation imposée.

TABLEAU II

Résultats d'essais de fluage sous contrainte imposée pour un acier inoxydable de type 304, recuit 0,5 h à 1 093 °C Plaque de 5 cm d'épaisseur (d'après Ornl, 1973)

Tempé- rature d'essai (°C)	Con- trainte (MPa)	Défor- mation instan- tanée	Taux de fluage minimum	Temps à la rupture	Allonge- ment à la rupture %	Réduc- tion de section %
593	124	2,84	0,000280	4 545	5,9	14,9
649	110	2,41	0,0170	304	12,0	15,0
649	97	1,60	0,00816	761	13,0	17,3
649	83	0,59	0,00322	2 674	13,4	19,0
704	69	0,067	0.0196	568	15,6	19,6
704	69	0.12	0.0253	653	22,5	23,0
704	55	0,031	0,00409	2 760	16,4	15,6



Fig. 10. — Hésitation au fluage



Fig. 11. — Durée de vie en fluage à différentes températures en fonction de la contrainte axiale, pour un acier inoxydable de type 304 recuit 0,5 h à 1 093 °C (d'après Ornl, 1973)





2.1.4. Chargement cyclique

Il s'agit d'essais de traction-compression ou de torsion alternée.

Ces essais sont principalement de deux types, selon que l'on impose la variation de la contrainte ou de la déformation (totale ou plastique) autour



Fig. 13. — Chargement cyclique : a/ à déformation totale imposée b/ à contrainte imposée



Fig. 14. -- Stabilisation de la contrainte

d'une valeur moyenne, en général nulle. Au bout de quelques cycles, on observe le plus souvent une stabilisation de la courbe contrainte-déformation (adaptation ou accomodation), mais on peut également obtenir une évolution régulière du cycle sans stabilisation (déformation progressive) (*figures* 13, 14 et 15).



Fig. 15. — Cycles de chargement à intervalle de déformation totale imposé ($\Delta \epsilon = 0.4$ %) pour un acier inoxydable de type 304 à 593 °C (d'après Ornl, 1974)

INDUSTRIE MINERALE



Fig. 16. — Courbe d'écrouissage cyclique

Dans le cas où les cycles se stabilisent pour un intervalle donné de déformation alternée, il est possible de tracer une courbe d'écrouissage cyclique pour le matériau considéré (*figure* 16). Cette courbe diffère en général de la courbe obtenue pour l'essai monotone correspondant.

En poursuivant les essais jusqu'à la rupture, on peut déterminer la durée de vie du matériau. Dans le cas d'essais sous contrainte alternée, la courbe de Wöhler (*figure* 17) donne le nombre de cycles à la rupture en fonction de l'amplitude de contrainte imposée. Dans le cas de contraintes élevées, on observe des déformations plastiques et la rupture se produit rapidement au bout d'un petit nombre de cycles (10² à 10⁴) (fatigue oligocyclique).

Lors des chargements cycliques à différentes températures, on constate que lorsque la température augmente, l'amplitude en contrainte des cycles à intervalle de déformations donné diminue notablement (*figures* 18, 19). Pour une température donnée, la vitesse de déformation modifie également la valeur des contraintes, mais le sens de variation est fonction de la température. Par exemple, pour un acier inoxydable 304 on observe un basculement des courbes entre 470 °C et 760 °C. (Abdel Raouf 1974, *figure* 18).

La durée de vie pour une déformation donnée est également très sensible aux paramètres de charge.



Fig. 17. - Courbe de Wöhler



Fig. 18. — Réponse en contrainte en fonction du nombre de cycles pour un acier inoxydable 304 soumis à des chargements cycliques à déformations imposées pour différentes températures et vitesses de déformation (d'après Abdel Raouf, 1974)



Fig. 19. — Courbes réponses contraintes — déformations sous chargements cycliques d'un acier inoxydable 304 (d'après Abdel Raouf, 1974)



Fig. 20. — Nombre de cycles à la rupture en fonction de l'intervalle de déformation définissant le cycle pour un acier inoxydable de type 304 entre 430 et 650 °C (d'après Ornl, 1973)



Fig. 21. — Influence de la température sur la durée de vie pour un acier inoxydable de type 304, chargé cycliquement dans un intervalle de déformations donné (d'après Abdel Raouf, 1974)

Elle diminue considérablement à haute température (au-delà de 500 °C) et plus particulièrement lorsque la vitesse de déformation est faible (c'est-à-dire lorsque le fluage intervient). La limite d'endurance diminue également avec la température (*figures* 20 et 21).

2.2. CHARGEMENTS COMPLEXES OU MULTIDIMENSIONNELS

2.2.1. Principe général

Ces essais sont caractérisés par le fait que le champ de contraintes qui règne dans le matériau au cours de l'essai est multidimensionnel. Ils peuvent être classés en deux catégories :

— Les essais globaux, où l'on contrôle un seul paramètre de charge et où le caractère multidimensionnel est dû à la géométrie de l'éprouvette (entaille...), ou au mode de transmission de l'effort (bille, poinçon...);

--- et les essais de chargement complexe d'une éprouvette sur laquelle on superpose plusieurs types de chargements homogènes.

Certains de ces essais sont pratiqués industriellement, mais ils restent d'une interprétation difficile quant aux phénomènes propres qui interviennent, en particulier pour le rôle de la température.

2.2.2. Essais globaux

Ce sont les essais classiques de dureté, de résilience, de tenacité, de propagation de fissures ou de chargement dynamique, où les conditions d'application des efforts font l'objet d'un certain nombre de normes industrielles. Il s'en suit que leur validité est en général conventionnelle. Pour un type donné d'essai, on obtient ainsi un classement relatif entre différents matériaux.



Fig. 22. — Variation de la dureté en fonction de la température pour un acier inoxydable 18 12 Mo-Ti

L'influence de la température est notable pour tous ces essais. La dureté par exemple, décroit lorsque la température augmente de (0 à 800 °C) (*figure* 22).

La résilience se caractérise en fonction de la température par deux niveaux d'énergie séparés par une zone de transition entre la rupture fragile et la rupture ductile qui peut être très limitée, ou, au contraire, s'étendre sur plusieurs dizaines de degrés (*figure* 23).

2.2.3. Chargement complexe sur une éprouvette

L'éprouvette est souvent un tube mince sur lequel on exerce une traction (et compression), un couple de torsion et éventuellement une pression intérieure (ou extérieure).

Un deuxième type d'essais consiste à découper dans une plaque ayant subi un écrouissage préalable



Fig. 23. — Essai de résilience — Température de transition — Allure générale pour un acier de basse ou moyenne résistance

dans une direction donnée, plusieurs éprouvettes suivant des orientations différentes et à soumettre ces éprouvettes à un effort de traction ou compression simple.

Le but de ces essais est de définir la frontière élastique du matériau dans l'espace des contraintes, et de suivre son évolution au cours de l'écrouissage (figures 24, 25 et 26). Il subsiste encore un certain nombre de difficultés, aussi bien au niveau de la réalisation que de l'interprétation (voir la récente revue de Michno et Findley, 1976). En effet, les résultats obtenus par les différents auteurs se recoupent rarement. Cela provient du fait que la notion de limite élastique est une notion conventionnelle et que l'on ne peut se rendre compte si elle est atteinte qu'en créant des déformations plastiques, qui perturbent l'état interne du matériau. On note qu'une élévation de température réduit considérablement le domaine élastique. Certains auteurs ont trouvé que la limite élastique disparaissait après un écrouissage de quelques pour cents de déformation.



Fig. 24. — Frontières d'élasticité successives après écrouissage, T = 20 °C (H.D. Bui, 1970)

INDUSTRIE MINERALE





Fig. 25. — Evolution de la frontière élastique pour un acier 304 à la température ambiante (d'après Ornl, 1974)

Par ailleurs, les essais sur éprouvettes tubulaires n'ont de sens que si l'axe de traction et de torsion est un axe de symétrie de l'éprouvette, cela limite leur utilisation.

3. REPRESENTATIONS MACROSCOPIQUES CLASSIQUES

3.1. PRINCIPE GENERAL

A partir des résultats expérimentaux, on cherche à exprimer par une expression mathématique simple les relations entre les différentes grandeurs macroscopiques mesurées.





Les constantes et les fonctions qui interviennent dans ces relations dépendent, en fait, des divers paramètres expérimentaux qui caractérisent l'essai et ont donc une nature phénoménologique.

3.2. REPRESENTATIONS CLASSIQUES DES COURBES EXPERIMENTALES

3.2.1. Courbes de traction (compression) monotone

Les auteurs proposent en général des formes de type parabolique :

σ	=	k	${\epsilon_p}^n$		Forme	de	Hollomon

$$\sigma = \sigma_{o} + k' \epsilon_{p}^{n'}$$
 Forme de Ludwik

ou

où ε_p est la déformation plastique ($\varepsilon = \varepsilon_e + \varepsilon_p$).

Par exemple, à l'ambiante, pour un acier inoxydable 304, les valeurs de n et n' sont :

$$n \simeq 0.32$$

 $n' \simeq 0.76$ (Ornl 1974)

Pour des aciers inoxydables 316 et 316 L, on a proposé les valeurs :



de déformation pour un acier 304 (d'après Ornl, 1974)

Fig. 27. - Variation de l'exposant de la formule

de Ludwik avec la température et la vitesse

Les constantes et les exposants sont fonctions de la température T, de la vitesse de déformation $\dot{\epsilon}$ et du matériau étudié (*figure* 27). Pour chaque courbe expérimentale, il faut identifier les constantes.

Certains expérimentateurs (Creusot-Loire) (C.E.A., 1975) ont donné une représentation plus globale pour décrire une famille de courbes de traction correspondant à des températures différentes.

3.2.2. Essais sous chargement cyclique

Les auteurs qui étudient la stabilisation du cycle effort déformation, au bout d'un petit nombre de cycles, proposent des relations du type :

$$\frac{\Delta \sigma}{2} = \left(\frac{\Delta \varepsilon_{\rm p}}{2}\right)^{\rm n} {\rm K}$$

où $\Delta \sigma$ et $\Delta \epsilon_{\rm p}$ sont les amplitudes en contrainte et en déformation plastique du cycle stabilisé et K, n sont ici aussi fonctions de T et $\dot{\epsilon}$.

Les figures 28 et 29 montrent les valeurs des coefficients n et K en fonction de la température, pour différents matériaux. Pour un acier inoxydable 304, on a, à l'ambiante :

$$K \simeq 150$$
 Ksi
 $n \simeq 0,25$ (Abdel Raouf 1974).

INDUSTRIE MINERALE

Pour ce qui est de la prédiction de la durée de vie en fatigue, les auteurs prennent en général la loi de Coffin-Manson :

$$N_f = C (\Delta \epsilon_p)^{1/\beta}$$

 N_f étant le nombre de cycles sous la déformation plastique imposée ($\Delta \epsilon_p$) jusqu'à la rupture.







Fig. 29. — Variation du coefficient K de la loi d'écrouissage cyclique avec la température (d'après Abdel Raouf, 1974)

3.2.3. Courbes de fluage sous contrainte constante

Suivant les domaines de contraintes et de température, les représentations mathématiques sont variables.

Sous faible contrainte et à température peu élevée, on a des expressions de type logarithmique :

$$\varepsilon = \varepsilon_{o} + \alpha |\operatorname{Log} \gamma t + 1|^{s}$$

Pour des contraintes plus élevées, on distingue :

 Une phase transitoire à vitesse de déformation décroissante, expression de type parabolique

$$\varepsilon = \varepsilon_0 + \beta t^m$$

— Une phase stationnaire à vitesse constante $\dot{\epsilon}$ = X $\epsilon = \epsilon' + Xt$

- Une phase accélérée, où la vitesse augmente.

Des représentations plus globales ont également été données sous la forme :

 $\epsilon = A (1 - e^{-rt}) + \dot{\epsilon}_{m} t$

où le premier terme représente la composante transitoire du fluage et le deuxième la composante stationnaire.

Toutes les constantes qui apparaissent dans ces formules sont fonctions de la contrainte appliquée et de la température.

Souvent, la vitesse de fluage stationnaire $\dot{\epsilon}_{\rm m}$ est explicitée sous la forme :

$$\dot{\epsilon}_{m} = \dot{\epsilon}_{o} \exp \left\{ - \frac{Q}{kT} \right\}$$

où $\dot{\epsilon}_{o}$ est fonction de la contrainte appliquée σ , suivant la loi de Norton-Hoff par exemple $\dot{\epsilon}_{o} = k \sigma^{n}$.

Le temps à la rupture (durée de vie en fluage) est représenté souvent par la loi d'endommagement de Kachanov-Rabotnov (1969), qui a été généralisée récemment par Lemaître et Chaboche (1974).

3.2.4. Remarque sur ces représentations classiques

A partir de ces exemples, les limites de ce type de représentations sont assez évidentes. Elles restent très liées aux courbes expérimentales qui leur sont propres. En effet, le choix d'une relation mathématique est conditionnée par :

 — la portion de courbe ou de la famille de courbes que l'on fait intervenir dans la détermination des constantes,

 le domaine des contraintes, déformations, températures...,

 la précision recherchée, qui se traduit par un nombre plus ou moins important de constantes à déterminer.

Toute courbe expérimentale peut avoir a priori plusieurs expressions mathématiques. Des questions se posent sur leur validité lorsque l'on modifie les conditions de l'expérience, ou sur leur capacité réelle de prévoir le comportement du matériau.

3.3. THEORIES MACROSCOPIQUES DE LA PLASTICITE ET DE LA VISCOPLASTICITE

3.3.1. Plasticité (paramètres internes)

Dans le cas des essais sous chargements multidimensionnels, la recherche d'une représentation mathématique s'effectue dans la même logique que pour le cas unidimensionnel, mais en faisant désormais appel à des relations tensorielles.

La représentation classique de la plasticité repose essentiellement sur le principe du travail maximal de Hill, avec ses conséquences, pour une température donnée T (J. Mandel, 1964, et R. Hill, 1950) :

— la règle de convexité :

le domaine élastique défini par :

$$f(\sigma, \alpha) \leq 0$$

est une surface convexe dans l'espace des contraintes (σ) pour un état d'écrouissage donné caractérisé par les paramètres (α).

— la règle de normalité :

la vitesse de déformation plastique $\dot{\varepsilon}_p$ est dirigée dans le cône des normales extérieures à la frontière (f (σ, α) = O) au point σ .

f (σ, α) est le potentiel plastique et les matériaux auxquels une telle représentation est appliquable sont dits *standards*.

Les formes choisies pour le potentiel f sont ajustées aux courbes expérimentales définissant la frontière élastique. Une des plus complètes est du type :

$$f \equiv A_{ijhk} (S_{ij} - \alpha_{ij}) (S_{hk} - \alpha_{hk}) - 1$$

15 mars 1977

où les Aijhk sont les composantes d'un tenseur,

- (α_{ij}) les paramètres internes liés à l'histoire du chargement (paramètres d'écrouissage),
- (S_{ij}) est le tenseur déviateur des contraintes.

Cette formulation permet bien, en effet, de rendre compte qualitativement de la translation, de la rotation, de l'expansion ou de la contraction du domaine élastique que l'on a pu constater expérimentalement. Il faut aussi connaître la loi d'évolution des paramètres internes (α) qui est, en général, une donnée indépendante.

L'introduction de la température s'effectue facilement lorsque l'on fait intervenir l'aspect thermodynamique (J. Mandel, 1972).

A l'heure actuelle, un nouveau type de représentation à partir de *matériaux standards généralisés* semble cependant plus satisfaisant (B. Halphen et Nguyen Q.S., 1975).

L'idée essentielle de cette théorie est de ne plus séparer le rôle des variables (σ) et (α). Les paramètres (α) sont considérés comme des forces généralisées auxquelles on associe des déformations élastiques généralisées β . On écrit alors :

 $\Sigma = (\sigma, \alpha)$ Contrainte généralisée

 $E^e = (\epsilon^e, \beta)$ Déformation élastique généralisée

avec $E^e = L \Sigma = \begin{pmatrix} L O \\ O Z \end{pmatrix}$ ($\sigma \alpha$)

où L est souvent une matrice constante définie positive.

Dans l'espace des contraintes généralisées Σ , les règles de convexité du domaine (F (Σ) = f (σ , α) < o) et de normalité de la vitesse de déformation plastique généralisée $\dot{E}^p = (\dot{\epsilon}^p, -\dot{\beta})$ sont conservées, et l'on a toujours $\dot{E} = \dot{E}^e + \dot{E}^p$.

3.3.2. Viscoplasticité (paramètres internes)

La vitesse de déformation viscoplastique s'écrit généralement :

 $\dot{\epsilon}^{vp} = \dot{\epsilon}^{vp}(\sigma, T, \alpha)$ lorsque la condition $g(\sigma, T, \alpha) \ge 0$ $\dot{\alpha} = \dot{\alpha}(\sigma, T, \alpha)$ est satisfaite.

Différentes fonctions ont été proposées pour les fonctions $\dot{\epsilon}^{vp}$ et $\dot{\alpha}.$

L'introduction des matériaux viscoplastiques standards généralisés, caractérisés par :

$$\begin{split} \Omega\left(\Sigma,\mathsf{T}\right) &= \Omega\left(\sigma,\mathsf{T},\alpha\right) \\ \dot{\mathsf{E}}^{\mathsf{vp}} &= \left(\dot{\varepsilon}^{\mathsf{vp}},-\dot{\beta}\right) \\ \dot{\mathsf{E}}^{\mathsf{vp}} &= \frac{\partial}{\partial}\frac{\Omega}{\Sigma} \\ & \left\langle \dot{\varepsilon}^{\mathsf{vp}} &= \frac{\partial}{\partial}\frac{\Omega}{\sigma} \\ & \left\langle -\dot{\beta} &= \frac{\partial}{\partial}\frac{\Omega}{\sigma} \right\rangle \end{split}$$

où Ω est le potentiel viscoplastique, permet d'obtenir des propriétés importantes pour la solution des problèmes.

INDUSTRIE MINERALE

3.3.3. Représentations fonctionnelles en plasticité et viscoplasticité

Ces représentations fonctionnelles sont relativement variées et l'une des plus appliquées, est actuellement la théorie endochronique. Dans cette théorie, il n'y a plus de frontière élastique (ce qui simplifie la définition du problème aux limites), mais on introduit la notion d'un temps intrinsèque au matériau. Là encore, le choix de la fonctionnelle et des constantes à introduire reste extrêmement difficile.

3.4. REMARQUES CRITIQUES

Dans toutes ces représentations macroscopiques, on ne distingue pas, en général, la signification profonde des constantes et des fonctions ou fonctionnelles introduites. Par ailleurs, il s'agit toujours d'ajustements plus ou moins précis sur des courbes expérimentales, car les identifications des constantes deviennent rapidement inextricables.

C'est pourquoi, afin de donner une signification plus physique et pour obtenir des expressions mathématiques, des recherches importantes ont été développées sur l'aspect microscopique du comportement des matériaux. On se place à une échelle microscopique assez petite, où tout peut être assez bien défini, et on remonte ensuite à l'échelle macroscopique en précisant la nature des constantes et des fonctions obtenues. Cependant, comme nous allons le voir maintenant, ce passage du microscopique au macroscopique n'est pas toujours aisé.

4. INTERPRETATIONS MICROSCOPIQUES CLASSIQUES

4.1. PROPOSITIONS DU METALLURGISTE ET DU PHYSICIEN

4.1.1. Principe général

Leur intérêt porte tout particulièrement sur l'état du matériau, sa structure interne et l'évolution de cette structure au cours de la déformation. Ils procèdent essentiellement à une description qualitative et parfois quantitative des phénomènes élémentaires qui interviennent, en essayant de trouver des relations simples entre eux.

4.1.2. Composition chimique et phase des constituants du métal

La composition chimique d'un métal et l'état structural de ses composants influent considérablement sur ses propriétés mécaniques.



Dans le cas des aciers, par exemple, à partir du diagramme fondamental d'équilibre fer-carbone, on peut définir les phases et la structure cristalline des constituants en fonction de la température et des concentrations (*figure* 30). Les éléments qui interviennent dans la composition des alliages modifient entièrement leurs caractéristiques mécaniques. Certains éléments comme le manganèse, par exemple, augmentent la limite élastique, d'autres, comme le molybdène améliorent la tenue au fluage (*figures* 31, 32). Ces éléments d'addition confèrent aussi à la



Fig. 31. — Aciers inoxydables de type 316 à différentes teneurs en molybdène : 0 %, 1 %, 2 %. Variation de la limite d'élasticité à 0,2 % d'allongement avec la température (d'après Ben Marsouk, 1976) structure une plus ou moins grande stabilité. Suivant le traitement thermique (recuit, trempe...) subi par le matériau, certaines transformations de phases peuvent être accélérées ou au contraire bloquées; la structure pouvant être maintenue dans un état métastable. La déformation plastique peut alors, dans certains cas, résulter d'une transformation de phase (par exemple, pour un acier austénitique on peut observer une *transformation martensitique* après une déformation plastique importante).



Fig. 32. — Courbes de fluage d'aciers inoxydables 316 à différentes teneurs en Mo (0 %, 1 %, 2 %) à 700 °C sous la contrainte $\sigma = 7 \text{ kg/mm}^{\circ}$ (d'après Ben Marsouk, 1976)

97

4.1.3. Taille, Forme et Orientation des grains

L'élément de volume qui concerne pratiquement l'ingénieur est un élément polycristallin, c'est-à-dire un assemblage de plusieurs grains (ou cristaux), séparés par des joints. La taille, la forme et l'orientation des grains (c'est-à-dire la texture) sont déterminées par des traitements thermiques ou mécaniques et conditionnent les propriétés ultérieures du matériau. Dans un polycristal, la déformation peut être de deux types :

 intracristalline, c'est-à-dire confinée à l'intérieur des grains, ou

intercristalline, localisée aux joints de grains.

Ces deux processus sont possibles simultanément ou successivement.

La déformation plastique d'un monocristal se produisant suivant des directions et des plans privilégiés, il ressort que l'orientation des grains dans un polycristal va influer sur la déformation du polycristal. Cette orientation peut aussi être modifiée au cours de la déformation (apparition de texture). De même, la taille de grain détermine la déformation de type intracristalline.

La température joue un rôle fondamental à ce niveau, car en chauffant simplement le métal, on peut provoquer une réorientation des grains, une réhomogénéisation ou une recristallisation.

4.1.4. Distribution des précipités et des inclusions

La structure d'un matériau réel n'est en fait jamais parfaite, car il y a toujours un certain nombre de défauts, de précipités ou d'inclusions dans les grains ou aux joints de grains. Les précipités sont le plus souvent dus à des solubilités différentes de certains composants, et les inclusions aux impuretés inévitables à l'échelle industrielle. Ces phénomènes ont une influence non négligeable sur les propriétés mécaniques du matériau, car ils créent dans une matrice relativement homogène des noyaux de dureté différente qui peuvent être des points de concentration pour les autres défauts, et créer des hétérogénéités dans la déformation du matériau.



Fig. 33. — Courbes de précipitation des carbures et des phases intermétalliques en fonction du temps de maintien pour un acier inoxydable du type 316 (d'après Ben Marsouk, 1976)

INDUSTRIE MINERALE

La distribution des précipités dépend fortement du traitement thermique subi par le matériau *(figure* 33).

4.1.5. Distributions des dislocations et des défauts ponctuels

A l'échelle macroscopique, on considère toujours un solide comme homogène et parfait, alors qu'une observation microscopique montre qu'il existe au sein même d'un cristal un nombre considérable de défauts. Les principaux défauts sont les défauts ponctuels (lacunes et atomes interstitiels) et les défauts linéaires (dislocations) (*figure* 34).

Dans un cristal nouvellement préparé (par exemple, par fusion contrôlée) et recuit, la densité de dislocations est de l'ordre de 10⁶ à 10⁸ cm/cm³; après une déformation plastique moyenne, cette densité est rapidement multipliée par un facteur considérable (10⁴ à 10⁶). Les défauts à l'échelle du cristal jouent un rôle fondamental dans la déformation du matériau.

Tous les phénomènes liés à la création, le mouvement et la disparition de ces défauts ont fait l'objet d'une étude approfondie (cf. Friedel, 1964, par exemple).

4.1.6. Modes de déformation plastique

Dans un cristal, divers modes de déformation donnant lieu à des déformations plastiques permanentes ont pu être mis en évidence :

.... le glissement d'un plan atomique sur un autre, qui est le résultat du mouvement de dislocations dans le plan de glissement;



- ... le maclage,
 - qui peut s'interpréter comme une série de glissements de plans successifs avec des déplacements variables ou une instabilité globale du réseau ;
- le changement de phase, qui consiste en un réarrangement des atomes du cristal ;
- les phénomènes de diffusion des défauts ponctuels,

qui représentent des transports de matière dans le cristal.

Dans le polycristal, il faut, en plus, tenir compte de tous les modes possibles de déplacements relatifs des grains entre eux.

4.1.7. Déplacements et évolutions des défauts

De nombreux processus élémentaires ont été étudiés expérimentalement et théoriquement :

- la création et la diffusion des défauts ponctuels ;
- la création de dislocations par un processus de source de Frank-Read ;
- le mouvement des dislocations (glissements simples ou déviés, montée...);
- les interactions des défauts entre eux ou avec les inclusions et impuretés, que ces interactions soient élastiques ou chimiques ;
- la disparition des défauts (par anihilation...).

A chaque processus élémentaire, on associe en général une énergie d'activation thermique qui représente l'énergie qu'il faut fournir pour que le processus ait lieu. La fréquence du processus est alors donnée par une loi d'Arrhénius :

$$\nu = \nu_{o} \exp\left(-\frac{U}{kT}\right)$$

 ν_o étant une fréquence propre au processus, généralement de l'ordre de la fréquence de Debye;

U l'énergie d'activation, et

T la température absolue.

Ainsi, par exemple, dans le cas du saut d'un atome d'une position d'équilibre à une autre, le « col » à franchir est le même pour aller de A en B que de B en A (*figure* 35). Par contre, une contrainte appli-



Fig. 35. — Energie d'activation pour franchir le col C : a — en l'absence de contraintes ; b — en présence de contraintes σ.

quée au matériau peut bouleverser cet équilibre en facilitant le passage dans un sens. La contrainte appliquée ne suffit pas à provoquer le déplacement de A vers B, mais l'apport énergétique qui reste à fournir est plus faible que dans la position d'équilibre initiale. L'agitation thermique pourra fournir cette énergie.

A l'aide de ces processus élémentaires, presque toutes les propriétés plastiques et viscoplastiques des matériaux et particulièrement l'influence sensible de la température ou de la vitesse de déformation sur ces propriétés peuvent être interprétées :

Les déformations élastiques correspondent aux mouvements réversibles des atomes alors que les déformations plastiques s'interprêtent en termes de mouvements irréversibles des dislocations et des défauts ponctuels, ou par des changements de phase. Le durcissement qui apparaît au cours de l'écrouissage est lié aux interactions entre les dislocations. On conçoit, en raison de l'activation thermique, qu'une élévation de température va accélérer le franchissement des obstacles. L'effet Portevin-Le Chatelier est ainsi lié à la diffusion des atomes et à leur accumulation en « nuages » au voisinage des dislocations. De ce fait, pour se libérer du « nuage » de défauts et d'impuretés qui les entourent, les dislocations ont besoin d'une énergie plus grande qu'en l'absence de nuage.

4.1.8. Critiques

De nombreux modèles physiques ont été proposés. En général, ils ne sont valables que pour des chargements unidimensionnels. Leur intérêt réside essentiellement dans une description des phénomènes, et



Fig. 36. — Orientations et rotations des cristaux utilisés dans la simulation des cristaux C.F.C. (d'après J. Zarka, 1973)



Fig. 37. — Courbes représentant la contrainte axiale en fonction de l'allongement axial (d'après J. Zarka, 1973)

dans le fait qu'ils conduisent à des formes mathématiques qu'il aurait été impossible de considérer a priori. Ils ont permis aussi de construire un modèle plus satisfaisant, valable dans tous les cas de chargement, pour des monocristaux de type C.F.C. (J. Zarka, 1968) (*figures* 36, 37).

4.2. PROPOSITIONS DU MECANICIEN DU SOLIDE

4.2.1. Principe général

Afin de donner une représentation mathématique macroscopique cohérente du comportement globai d'un matériau qui soit valable dans le domaine expérimental le plus large possible, il est indispensable de se fonder sur les phénomènes élémentaires microscopiques décrits précédemment.

Un des problèmes fondamentaux qui se pose au Mécanicien du solide est alors le suivant :

— en supposant connus le comportement des différents grains contenus dans l'élément de volume ainsi que les champs de contrainte et de température qui règnent à l'échelle microscopique,

.... comment en déduire les relations entre les grandeurs macroscopiques correspondantes au niveau du polycristal, et comment obtenir des relations qui restent cependant suffisamment simples pour être utilisables ?

4.2.2. Relations fondamentales entre grandeurs macroscopiques et grandeurs microscopiques

L'élément de volume utilisé dans les applications réelles est un polycristal. Pour pouvoir définir un comportement moyen caractéristique du matériau, il doit être suffisamment petit par rapport à l'échelle de la pièce étudiée et suffisamment grand pour contenir un certain nombre de cristaux élémentaires (figure 38).

INDUSTRIE MINERALE



Fig. 38. — Echelles microscopiques et macroscopiques considérées lors du passage micro-macro

On a pu montrer (R. Hill, 1967), (J. Mandel, 1971), (J.R. Rice, 1970), sous certaines hypothèses de macrohomogénéité, que les grandeurs macroscopiques fondamentales définies au niveau de l'élément de volume considéré (V),

le tenseur de contraintes,	$\bar{\sigma}$
le tenseur des déformations,	ε
et le travail dépensé,	σ.ε

sont les valeurs moyennes directes des grandeurs microscopiques correspondantes, définies à l'intérieur de chaque grain,

$$\bar{\sigma} = \frac{1}{V} \int_{V}^{\sigma} dv \; ; \; \bar{\epsilon} = \frac{1}{V} \int_{V}^{v} \epsilon \, dv \; ; \; \bar{\sigma} \; . \; \bar{\epsilon} = \frac{1}{V} \int_{V}^{\sigma} . \; \epsilon \, dv$$

et que s'il existe un potentiel viscoplastique microscopique ω , le potentiel viscoplastique macroscopique Ω en est également la valeur moyenne directe.

Cependant, cette propriété simple de la valeur moyenne n'est pas en général vérifiée pour les tenseurs de déformations élastiques et plastiques. En effet, il faut introduire un tenseur de concentration de contraintes élastiques, défini par :

$$r = A\sigma$$

et l'on a (avec A^T le transposé de A)

$$\bar{\epsilon}^e = \frac{1}{V} \int_V^{} A^{ \mathrm{\scriptscriptstyle T} } \epsilon^e \, dv \ ; \ \bar{\epsilon}^p = \ \frac{1}{V} \int^{} A^{ \mathrm{\scriptscriptstyle T} } \epsilon^p \, dv$$

Cette particularité souligne l'existence d'interactions entre les grains dans le polycristal, et donne au polycristal des propriétés différentes de celles d'un monocristal moyen.

4.2.3. Modèles élémentaires pour les interactions

De nombreux modèles ont été proposés pour rendre compte de façon simple de ces interactions. Certains modèles élémentaires n'en tiennent pas compte (modèle de Sachs). D'autres supposent en tout point $\epsilon = \bar{\epsilon}$, ce qui conduit dans le cas de l'élasticité linéaire et isotrope à un champ de contrainte défini dans chaque cristal par :

$$\sigma = \overline{\sigma} + 2 \mu \left(\overline{\epsilon}^{p} - \epsilon^{p}\right)$$

 $\overline{\epsilon} = \epsilon = \epsilon^e + \epsilon^p = \overline{\epsilon}^e + \overline{\epsilon}^p$ avec μ module de cisaillement.

Le terme $\sigma_r = 2 \mu (\bar{\epsilon}^p - \epsilon^p)$ donne explicitement les intéractions.

Des extensions de ces modèles (modèle de Budianski-Kröner) ont également été proposées. D'une façon générale, l'introduction du terme d'interaction σ_r permet de comprendre facilement la translation du domaine élastique observée expérimentalement, et qui apparaît dans les formulations macroscopiques.

Si, par ailleurs, on fait intervenir la température au niveau des relations de passage du microscopique au macroscopique, on obtient des expressions presques analogues (cf. Nowacki et Zarka, 1974).

4.2.4. Modèles quasi physiques pour le comportement global

A partir d'une caractérisation précise du comportement des cristaux et d'un modèle d'interaction entre cristaux, il est donc possible de définir en principe un comportement global du polycristal.

Des constantes et des fonctions s'introduisent également dans ces formulations ; elles ont alors toutes une signification physique. Il est donc possible de prévoir leurs variations en fonction des différents facteurs physiques ou métallurgiques.

4.2.5. Remarques — Critiques

Il a été possible, dans le cadre de cette approche, de simuler quelques types de chargement simples et de trouver une bonne concordance avec les résultats expérimentaux.



(d'après P. Compère, 1974)



Fig. 40. — Déformation alternée (d'après P. Compère, 1974)

Récemment, par simulation numérique de divers trajets de chargement, une expression du potentiel viscoplastique macroscopique analogue à celle définie pour la surface limite d'élasticité au paragraphe 3.3.1., a été obtenue. Tous les coefficients pouvant être explicités (Compère, 1974) (*figures* 39, 40 et 41).

Cependant, ces modèles ne sont pas encore d'un très grand intérêt pratique pour l'ingénieur, car leur introduction dans les codes de calcul des structures nécessite la connaissance d'un trop grand nombre de paramètres internes.



Fig. 41. — Courbes équipotentielles dans l'espace des contraintes (d'après P. Compère, 1974)

5. CONCLUSION

Il reste encore de nombreuses étapes à franchir pour arriver à une représentation mathématique convenable et pratique du comportement global plastique et viscoplastique des métaux, et plus particulièrement des aciers. Il ne fait pas de doute, selon nous, qu'il faut actuellement porter tous nos efforts sur l'approche microscopique du problème. C'est, en effet, la seule qui permette de prévoir, avec une certaine assurance, le comportement d'un matériau pour n'importe quel type de chargement et en prenant pleinement en compte l'influence de la température.

Pour cela, une collaboration étroite entre les divers groupes de chercheurs Métallurgistes et Mécaniciens est nécessaire.

REMERCIEMENTS

Cette étude a été effectuée dans le cadre d'un contrat avec le S.E.P.T.E.N. - EdF que nous tenons à remercier.

REFERENCES

- H. ABDEL RAOUF, A. PLUMTREE, T.H. TOPPER, 1974, Met. Trans., 5, p. 267.
- A.S. ARGON Ed, 1975, Constitutive Equations in Plasticity, M.I.T.
- M.T. BEN MARSOUK, 1976, Influence du molybdène sur la résistance mécanique à haute température des aciers inoxydables du type 18-14 et plus particulièrement sur la tenue au fluage vers 700 °C. Thèse Paris XI.
- H.D. BUI, 1970, Evolution de la frontière du domaine élastique des métaux avec l'écrouissage plastique et comportement élastoplastique d'un agrégat de cristaux cubiques. Thèse, Paris.
- J. CAISSO, 1960, Contribution à l'étude du phénomène de Portevin-Le Chatelier. Pub. Sc. et T., Minis. Air.

C.E.A., 1975, Note Technique, D. Tech. RMA, 671.

- P. COMPERE, 1974, Sur les relations de comportement des métaux en viscoplasticité. Thèse Docteur Ingénieur, Paris XI.
- J. FRIEDEL, 1964, Dislocations. Pergamon Press.
- J. GITTUS, 1975, Creep, Viscoelasticity and Creep Fracture in Solids. Applied. Science Publishers, L.T.D.
- R. HILL, 1950, The Mathematical theory of plasticity. Oxford at the Clarendon Press.

- R. HILL, 1967, The essentiel structure of constitutive laws for metal composites and polycristals, J. Mech. Phys. Solids, vol. 15, p. 79.
- B. HALPHEN, Q.S. NGUYEN, 1975, Sur les matériaux standards généralisés. Journal de Mécanique, vol. 14.
- B. JAOUL, 1965, Etude de la plasticité et applications aux métaux. Dunod.
- E. KRONER, 1962, Dislocations and continuum mechanics. Applied Mech. Review, vol. 15, n° 8, p. 599.
- H. de LEIRIS, 1971, Métaux et Alliages II. E.N.S.T.A., Masson.
- J. LEMAITRE et J.L. CHABOCHE, 1974, Non linear model of creep fatigue damage cumulation and interaction. Symposium IUTAM, Göteborg, sept. 74, Springer Verlag.
- T.H. LIN, 1971, *Physical theory of plasticity*, in Advances in Applied Mechanics, Vol. II, Academic Press.
- J. MANDEL, 1964, Proceedings 11 th Int. Cong. Appl. Mech., Munich 1964, Springer Verlag, 1966.
- J. MANDEL, 1971, Plasticité classique et viscoplasticité, Cours du CISM Udine.
- J. MANDEL, 1972, Relations de comportement des milieux élastiques plastiques et élastiques viscoplastiques. Notion de repère directeur. Int. Symposium on foundations of plasticity, Varsovie, A. Sawczuk, Editor. (Noordhoff International Publishing).
- M. MICHNO, W. FINDLEY, 1976, An historical perspective of yield surface investigations for metals. Int. J. of Non linear Mech. vol. 11, pp. 59-82.
- W.K. NOWACKI, J. ZARKA, 1974, Sur le champ des températures obtenues en thermoélastoviscoplasticité. Archives of Mechanics, 26, 4, p. 701, Varsovie.
- OAK. RIDGE, NATIONAL LABORATORY, 1973 et 1974 : Mechanical properties test data for structural materials. Quartely progress reports. Oct. 73, March 74.
- P. PERZYNA, 1971, Viscoplasticity: theory and applications, Cours CISM, Udine.
- Y.N. RABOTNOV, 1969, Creep in structures, Amsterdam-London, Noorth Holland Pub. Cie.
- D RADENKOVIC, J. SALENÇON, éd. 1972, *Plasticité et viscoplasticité*, Séminaire Ecole Polytechnique, Paris. Ediscience, Mc Graw Hill, Paris.
- J.R. RICE, 1970, J. Applied Mech. 37, p. 728.
- A. SAWCZUK Ed., 1974, International Symposium on Foundations ot plasticity, Varsovie. Noordhoff Int. Publishing.
- Workshop on Applied thermoviscoplasticity, 1975, The Technological Institute NoorthWestern, Univ. Evanston. Illinois, 60201.
- Workshop on Inelastic constitutive equations for metals, 1975, Rensselear Polytechnic Institute, Troy. New-York, 12181.
- J. ZARKA, 1968, Sur la viscoplasticité des métaux, Thèse, Paris.
- J. ZARKA, 1973, Constitutive laws of metals in plasticity and viscoplasticity. Lectures at the Royal Institute of Technology. Stockholm, Sweden.

Variations avec la température des propriétés physiques et mécaniques des aciers de construction^{*}

Application à la prévision de la tenue au feu des structures en acier

par B. BARTHELEMY, C.T.I.C.M.

RESUME

La prévision par le calcul du comportement au feu des ossatures en acier passe par la connaissance des principales propriétés physiques et mécaniques de ces aciers.

Ce texte présente les propriétés qui ont été adoptées par le Centre Technique Industriel de la Construction Métallique, ainsi que la méthode de calcul s'appuyant sur ce choix et sur le comportement plastique des structures.

ABSTRACT

The calculation of fire resistance of steel structures requires the knowledge of main physical and mechanical steel properties.

Herein are presented those which have been adopted by the Technical Center for Steel Construction (C.T.I.C.M.) and the method of calculation based on this choice and on the plastic behaviour of steel structures.

Afin d'appréhender le comportement au feu des structures en acier, le Centre technique industriel de la Construction métallique a mis au point une méthode de calcul fondée sur les variations avec la température des propriétés physiques et mécaniques des aciers de construction.

Le but premier du groupe de travail chargé de ces études au C.T.I.C.M. a donc été de rassembler toutes les données disponibles dans la littérature à ce sujet.

Je ne chercherai pas ici, à entrer dans les détails de cette recherche bibliographique et je me bornerai à vous exposer les lois de variation que nous avons choisies et leur place dans la dispersion habituelle des divers résultats publiés. La seule justification de nos choix, qui peuvent vous paraître arbitraires, réside dans la bonne concordance entre la théorie et l'expérience que nous avons obtenue par la méthode de calcul s'appuyant sur ces choix. Je reviendrai à la fin de mon exposé sur cette méthode de calcul.

En ce qui concerne la chaleur massique, la conductivité thermique et la dilatation de l'acier de construction d'usage courant, les informations recueillies dans la littérature sont assez cohérentes et nous ont permis d'adopter assez facilement les courbes que je vais vous présenter. Par contre, les caractéristiques mécaniques sont plus difficiles à appréhender et les publications y afférant se recoupent assez peu. Cette dispersion est principalement due au phénomène de fluage qui apparaît lorsque les paramètres charge, temps et température interviennent simultanément, puisque, comme vous le savez, un essai de traction peut se faire par accroissement de charge à température constante ou, au contraire, par échauffement à charge constante : dans un cas comme dans l'autre, les vitesses de chargement ou d'échauffement influent sur le fluage. A titre d'exemple, la figure 1 présente les résultats d'une expérimentation suédoise effectuée avec une vitesse de chargement de 975 kg/cm².mn, pour des températures — constantes lors de chaque essai — variant de 25 °C à 650 °C [1]**.

Je reviendrai brièvement sur ce problème de fluage après vous avoir exposé l'ensemble des courbes adoptées par le C.T.I.C.M.

Tout d'abord la limite conventionnelle d'élasticité, qui est la charge unitaire à laquelle correspond un allongement non proportionnel égal à 0,2 % de la longueur initiale entre repères.

Communication au Colloque du Groupe français de Rhéologie, le 18 décembre 1975.

^{**} Les chiffres mis entre crochets [] renvoient à la liste des références, en fin d'article, page 108.





Fig. 1. — Stress-strain $(\sigma - \varepsilon)$ curves determined in tensile tests at elevated temperatures at a rate of loading of 975 kgf/cm². min. Temperatures °C: ① 25, ② 100, ③ 300, ④ 400, ⑤ 450, ⑥ 500, ⑦ 550, ⑧ 600, ⑨ 650.

Vous voyez sur la *figure* 2 un exemple de la dispersion de cette limite d'élasticité pour des aciers E 24 et E 36. Ces données ont été obtenues à l'aide d'essais dans lesquels la vitesse de chargement était très élevée, de sorte que le fluage est négligeable. Le trait en pointillé représente la courbe que nous avons adoptée : vous remarquerez qu'elle coupe l'axe des abscisses aux environs de 750 °C, alors qu'en réalité, on approche asymptotiquement de cet axe.

Nous avons ensuite adopté une courbe donnant les variations avec la température du module l'élasticité. Ici encore, la dispersion est importante et





seule la bonne concordance entre les résultats théoriques et expérimentaux permet de justifier ce choix (voir *figure* 3).

Pour ces deux propriétés mécaniques, des expressions analytiques des courbes adoptées sont présentées ici :



Enfin, il reste une troisième propriété mécanique de l'acier, qui est sa résistance maximale à la traction. Le critère de calcul en usage dans les divers règlements de construction se référant à la limite conventionnelle d'élasticité du métal, la résistance maximale à la traction ne présente que peu d'intérêt.

C'est pourquoi nous n'avons pas adopté de courbe moyenne parmi les résultats exposés sur la figure 4.



INDUSTRIE MINERALE



Nous pouvons maintenant passer aux propriétés physico-thermiques des aciers de construction. Voici successivement :

 la conductivité thermique, dont les valeurs élevées nous ont permis de supposer un transfert instantané et uniforme de la chaleur dans les profilés utilisés en charpente métallique (figure 5),

— la chaleur spécifique, limitée à 700 °C à cause des changements intervenant à cette température dans la nature cristalline de l'acier (transformation $\alpha - \gamma$) (figure 6),

— la dilatation thermique, elle aussi limitée à 700 °C pour les mêmes raisons (*figure* 7).

Pour ces trois propriétés, nous donnons les expressions analytiques des courbes adoptées :

 $\begin{aligned} \lambda_{a} &= 0.0283 \ \theta + 47 & \text{kcal/m.h.°C} \\ \text{Cp}_{a} &= 9.1 \ .10^{-8} \theta^{2} + 4.8 \ .10^{-5} \theta + 0.113 & \text{kcal/kg.°C} \\ \hline \frac{\Delta I}{I} &= 0.4 \ .10^{-8} \theta^{2} + 1.2 \ .10^{-5} \theta - 3.10^{-4} \end{aligned}$

L'expérience nous a montré que pour des calculs courants de bureau d'étude, nous pouvions adopter les valeurs approchées suivantes :

 $\lambda_{a} = 30 \text{ kcal/m} \cdot \text{h} \cdot ^{\circ}\text{C}$ $Cp_{a} = 0,125 \text{ kcal/kg} \cdot ^{\circ}\text{C}$ $\frac{\Delta 1}{1} = 1,4 \cdot 10^{-5}\theta$







Fig. 8

Nous pouvons maintenant revenir quelques instants sur le problème du fluage, bien que ce phénomène ait été écarté de nos travaux. En effet, il nous a semblé trop audacieux de tenir compte du fluage dans le calcul de la température de ruine des structures en acier car les essais faits dans notre laboratoire de Maizières-lès-Metz interdisent une quelconque interprétation, d'une manière globale, quant à l'éffet du fluage. Vous pouvez vous en rendre compte sur la *figure* 8.

Néanmoins, certains ont tenté de fonder leurs études sur les lois contrainte - déformation en fonction de la température [1]. Quoique satisfaisantes, les méthodes de calcul sont trop compliquées pour un emploi courant en bureau d'étude.

Pour en finir avec le problème du fluage, il nous faut citer l'approche de Dorn [6, 7, 8], reprise par Harmathy [10] et Thor [1] qui suppose que la déformation de fluage ε_t ne dépend que de la contrainte σ et d'une variable température-temps θ définie par la relation :



Fig. 9

$$\theta = \int_{0}^{t} e^{-\frac{\Delta H}{RT}} dt$$

où : Δ H est l'énergie d'activation nécessaire au cal/mole fluage

R la constante des gaz parfaits cal/mole.K (K)

T la température

t le temps (h)

Les courbes $\varepsilon_t - \theta$ ont l'allure présentée sur la figure 9. Elles possèdent une portion linéaire (période secondaire de fluage) dont la perte d $\varepsilon_t/d\theta$ est notée Z (paramètre de Zener-Hollomon [9]) et qui est supposée, de même que l'ordonnée à l'origine et, ne dépendre que de la contrainte o.

Harmathy a fourni une relation entre ε_t , θ , Z et ε_t_o :



Fig. 10. — The relation between Z and the stress σ plotted in a diagram with the Z-axis to a logarithmic scale. Steel 2172

INDUSTRIE MINERALE

Ainsi, à l'aide de cette relation, la déformation de fluage ε_t peut être calculée pour toute valeur de θ , pour peu que l'on connaisse $\frac{\Delta H}{R}$, qui dépend de la nature de l'acier et les lois de variations de Z et eto avec la contrainte σ .

Ces données peuvent s'obtenir à partir d'essais classiques de fluage, selon les indications données par les auteurs de la théorie [1] [10].

Nous ne nous attarderons pas davantage sur ce point. A titre d'exemple, les figures 10 et 11 donnent les lois $\varepsilon_{t_0} - \sigma$ et Z - σ pour un type d'acier donné [1].

La figure 12 montre la bonne concordance entre les calculs et l'expérience obtenue à l'aide de cette théorie.

Enfin et pour achever mon exposé, je vais brièvement vous expliquer la méthode de calcul du comportement au feu des structures en acier que nous avons élaborée.

Cette méthode comporte trois parties successives, qui sont :

- le calcul de la température de ruine de la structure,

- le calcul de la loi d'échauffement des profilés,

-- la vérification que la température atteinte par la structure au temps de stabilité exigé par le règlement est inférieure à sa température de ruine.

Je ne vous parlerai ici que du premier de ces points, en invitant les personnes intéressées à se



Fig. 11. — The relation between ϵ_{to} and the stress σ plotted in a diagram with both axes to a logarithmic scale. Steel 2172.

106



Fig. 9

$$\theta = \int_{0}^{t} e^{-\frac{\Delta H}{RT}} dt$$

où : Δ H est l'énergie d'activation nécessaire au fluage cal/mole

R la constante des gaz parfaits cal/mole.K

T la température (K)

t le temps (h)

Les courbes $\varepsilon_t - \theta$ ont l'allure présentée sur la figure 9. Elles possèdent une portion linéaire (période secondaire de fluage) dont la perte d $\varepsilon_t/d\theta$ est notée Z (paramètre de Zener-Hollomon [9]) et qui est supposée, de même que l'ordonnée à l'origine ε_t_o ne dépendre que de la contrainte σ .

Harmathy a fourni une relation entre ε_t , θ , Z et ε_{t_0} :



Fig. 10. — The relation between Z and the stress σ plotted in a diagram with the Z-axis to a logarithmic scale. Steel 2172

INDUSTRIE MINERALE

Ainsi, à l'aide de cette relation, la déformation de fluage ε_{t} peut être calculée pour toute valeur de θ , pour peu que l'on connaisse $\frac{\Delta H}{R}$, qui dépend de la nature de l'acier et les lois de variations de Z et ε_{t_0} avec la contrainte σ .

Ces données peuvent s'obtenir à partir d'essais classiques de fluage, selon les indications données par les auteurs de la théorie [1] [10].

Nous ne nous attarderons pas davantage sur ce point. A titre d'exemple, les *figures* 10 et 11 donnent les lois $\varepsilon_{t_0} - \sigma$ et Z - σ pour un type d'acier donné [1].

La figure 12 montre la bonne concordance entre les calculs et l'expérience obtenue à l'aide de cette théorie.

Enfin et pour achever mon exposé, je vais brièvement vous expliquer la méthode de calcul du comportement au feu des structures en acier que nous avons élaborée.

Cette méthode comporte trois parties successives, qui sont :

- le calcul de la température de ruine de la structure,

le calcul de la loi d'échauffement des profilés,

 la vérification que la température atteinte par la structure au temps de stabilité exigé par le règlement est inférieure à sa température de ruine.

Je ne vous parlerai ici que du premier de ces points, en invitant les personnes intéressées à se



Fig. 11. — The relation between ε_{to} and the stress σ plotted in a diagram with both axes to a logarithmic scale. Steel 2172.



Fig. 12. — $\varepsilon_t - \theta$ curves for Steel 2172 according to SIS 14 21 72 at different stresses σ for steel temperatures θ of 550 °C and 650 °C.

reporter au projet de recommandations établi par le C.T.I.C.M. [11].

La température de ruine, ou température critique, d'une structure en acier s'obtient à l'aide de la loi de variation de la limite d'élasticité avec la température. Il suffit donc d'utiliser l'abaque de la *figure* 13, dont l'ordonnée est le taux d'exploitation, à savoir le quotient entre les sollicitations existant dans l'élément de structure et la capacité de résistance ultime de cet élément.

A titre d'exemple, pour une poutre bi-encastrée, nous avons une capacité ultime de résistance en flexion caractérisée par :

$$Mp = Zp \cdot \sigma_e = \frac{Pu L^2}{16}$$



A l'état limite de service, la sollicitation maximale dans la poutre est caractérisée par :

 $\mathsf{M} = \mathsf{W}\,\sigma = \frac{\mathsf{P}\mathsf{L}^2}{\mathsf{12}}$

$$\frac{P}{Pu} = \frac{\sigma}{\sigma_e} \cdot \frac{W}{Zp} \cdot \frac{12}{16}$$

Dans cette relation :

 $\frac{W}{Zp}$ est le facteur de forme f

-p

D'où :

 $\frac{\sigma}{\sigma_{\rm e}}$ est le taux de sollicitation par rapport à la limite d'élasticité $\sigma_{\rm e}$.

 $\frac{12}{16}$ est le facteur d'hyperstaticité χ qui dépend des conditions de charge et de la configuration de la structure.

Donc :

$$\frac{\mathsf{P}}{\mathsf{Pu}} = \frac{\sigma}{\sigma_{\rm e}} \cdot \frac{1}{\mathsf{f}} \cdot \frac{1}{\chi}$$

Sans entrer davantage dans les détails, il est clair que le calcul de P/Pu, pour un système complexe, requiert une maîtrise parfaite du calcul en plasticité, ce qui n'est encore que peu le cas dans les bureaux d'études. Néanmoins, des programmes de calculs développés au C.T.I.C.M. facilitent la détermination de ce taux d'exploitation.

Voici donc brièvement exposées les données et les bases de la méthode de calcul qui vient de voir le jour au C.T.I.C.M. Je suis parfaitement conscient de n'avoir aujourd'hui fait qu'effleurer le problème en l'abordant du point de vue très orienté de l'ingénieur. Je ne peux donc que vous signaler que je reste à la disposition de toutes les personnes souhaitant de plus amples renseignements sur les travaux dont je viens de vous parler.

107

REFERENCES

- Deformations and critical loads of stell beams under fire exposure conditions, J. THOR, National Swedish Building Research, doc. D. 16, 1973, Stockholm.
- [2] *Evaluation of the behaviour of steel in fire*, D.C. KNIGHT, Melbourne Research Laboratories, June 1971.
- [3] Research paper n° 345 of the Division of building research. T.Z. HARMATHY, Ottawa, déc. 1967.
- [4] Determination of high temperature properties of steel, B.H.P. Technical Bulletin, vol. 16, n° 2, nov. 1972.
- [5] Hand-book of heat transfer, WARREN, ROHSENOW, HARTNETT, Mc GRAW-HILL.
- [6] Some fundamental experiments on high temperature creep, J.E. DORN, Journal of Mechanical Phys. Solids, vol. 3, 1954, p. 85.
- [7] Progress in understanding high temperature creep, J.E. DORN, Grillet Memorial lecture, ASTM, 1962.
- [8] Physical aspects of creep, J.E. DORN, High Temperature Structures and Materials, edited by Frendenthal, A.M., Boley, B.A. and Liebowitz, H., Mc Millan Co., N.Y. 1964, p. 95.
- [9] Effects of strain rate on the plastic flow of steel, C. ZENER et J.H. HOLLOMON, Journal of applied Phys., vol. 15, 1944, p. 22.
- [10] A comprehensive creep model, T.Z. HARMATHY, NRC, Ottawa, Ontario, Canada, sept. 1967, Trans. of ASME.
- [11] Projet de recommandations concernant la prévision par le calcul du comportement au feu des structures en acier, C.T.I.C.M., sept. 1975.

ig. 12. ---- energies for been 2112 economics in 513 P. 20 st. Elferrori streames -- for after fampersiones in 21 550 °C and 500 °C.

Participal analysis

reporter au projet de recommandatione établi par le .C.T.C.M. [11].

La température de raine, ou température aritique, d'une structure an acter s'abitent à l'aide de la loi de varianten de la limite d'alacticité avec la température. Il suffit donc d'utiliser l'abaten de la rigère 13, dont l'ordennés est le tata d'exploitation, à savoir le quotient suire les sollicitations existent dans l'élément de arrecture et la capacité de résiletance utame de cet élément

A titre d'exemple, pour une poutre bl'uncestres, nous svons une especifi ultime de résistance en flixion carectérisée par

$$Mp = 2p, m = \frac{p_{\rm H} t}{16}$$

aunit et à mogen se constitute de la finite

aut la facteur d'hyperatatione , qui déparée des conditions de charge et de la configuration de la structure.

Ding

Sans entrer davantage dens les détails, il est cloir que la calcut de P/Pu, pour un système conglexe, requiert une maltrise partaite du celcul en plastiutré ce qui n'est ancora que peu le use dans les bureaux d'études. Néamoine, des prégrammes de celouis développés au C.T.I.C.M. facilitant le détermination de ce teux d'explaitation.

Venici denci britavament axproves les données at rebases de la méthode de calcul qui viunt de voir je jour au C.T.I.C.M. Je suis parfaitament conscient de n'even outoord'hui fait qu'effigurer le problème at l'aberdant du point de vua très ortenté de l'ingénieur de position de toutes les personnes sonhaitant de plas amples renseignemente sur les pravaux dont je viens de vous similar.

INDUSTRIE MINERALE

Les polyimides et matériaux composites à hautes propriétés en température *

Du point de vue mutières premières, colles de la voie arconcaine sont plus chérimese arbydrid pyrometitique et diaminodiphényléther. Celles de la voie française, plus nimplement, foin appel l'achydride matélique et au diaminodiphénylméticana (voir tebleau 2).

par J.C. QUINAT

RESUME

Bien qu'à l'état commercial naissant, les polyimides et leurs composites (fibres de verre, de carbone...) sont regardés avec une grande attention comme substituts des métaux et d'autres plastiques par la plupart des industries.

ABSTRACT

Although in a new commercial state, polyimides and their reinforced glass fibers or carbon fibers composites are looked at with a great attention as substitutes for metals and others polymers by the most industries.

Depuis que Baeyer fit réagir le formol sur le phénol il y a tout juste un siècle, la chimie n'a pas cessé de produire des matériaux macromoléculaires les plus divers. Les polymères sont un des succès les plus brillants de la chimie industrielle dans ces trente dernières années. Ce succès est dû à ce que ces polymères possèdent seuls ou associés à des charges les plus diverses un ensemble de propriétés satisfaisantes et, que, d'autre part, ils se mettent en forme aisément. Ils remplacent avec bonheur des matériaux naturels antérieurs lorsque l'on doit accéder à des caractéristiques telles que la souplesse, des faibles densités, l'isolation thermique et phonique, la transparence.

Par contre, ils ne pouvaient prétendre jusqu'à ce jour, se mesurer à des métaux ou alliages sous les angles de la rigidité ou de la conservation des propriétés mécaniques à des températures élevées.

Si certains problèmes de rigidité et de résistance pouvaient être surmontés par leur renforcement avec des fibres minérales ou autres, fibres de verre, de graphite, de bore, à des températures relativement basses, on ne pouvait conserver ces propriétés en température.

Les métaux eux conservent en général leurs propriétés jusqu'à 300 °C, mais ils ont le handicap par rapport aux polymères de synthèse d'avoir des densités élevées, ce qui les conduit, par exemple, à posséder des résistances et modules spécifiques faibles.

Quel a été l'axe de recherche de ces dernières années dans le domaine macromoléculaire : il a été de créer des polymères susceptibles de conserver en continu à des températures variant de 150 à 300 °C l'ensemble de leurs propriétés mécaniques, électriques et d'isolation, d'avoir des coefficients de dilatation se rapprochant de ceux des métaux, de fluer le moins possible.

De nombreuses formules ont été proposées par les chimistes, la plupart basées sur des enchaînements aromatiques et hétérocycliques. On peut citer les polybenzoxazoles, polyimides, polybenzimidazoles, polybenzothiazoles, pyrrones...

Parmi ce grand nombre de modèles, seuls les polyimides par l'ensemble de leurs caractéristiques et leur prix de revient forment une famille séduisante de composites qui sont parvenus à un niveau de développement commercial déjà important.

On accède aux polyimides par deux routes : celle de la polycondensation, c'est la voie américaine et celle de la polymérisation, polyaddition, c'est la voie française.

La première conduit à des dégagements d'eau pendant la transformation ce qui entraîne des anisotropies dans les objets moulés de forte épaisseur

^{*} Communication suivie de la projection du film : « *L'âge des thermostables »* au Colloque du Groupe français de Rhéologie, le 18 décembre 1975.

110



et des difficultés de moulage. Elle fait appel à des pressions et des températures élevées de transformation (1 000 bars — 300 °C) donc à des investissements nouveaux et lourds (*tableau* 1).

La seconde ne conduit pas à des dégagements de volatils pendant la polymérisation. Elle est la voie élégante chimiquement parlant. Elle ne nécessite pas des pressions et des températures élevées (200 bars — 200 °C). Elle est bon marché sur le plan des investissements puisqu'elle conduit à des produits : poudres à mouler, vernis d'émaillage de fils électriques, résines pour stratifiés ne nécessitant pas l'utilisation de matériel de transformation plus sophistiqué que celui utilisé par les industries transformant déjà des polymères organiques thermodurcissables.

Du point de vue matières premières, celles de la voie américaine sont plus onéreuses : anhydride pyromellique et diaminodiphényléther. Celles de la voie française, plus simplement, font appel à l'anhydride maléique et au diaminodiphénylméthane (voir *tableau* 2).

On fait réagir en une seule phase deux molécules d'anhydride maléique sur une molécule de diaminodiphénylméthane, on obtient le bisimide éthylénique qui, sous l'action de la chaleur, pourrait se polymériser en un produit, mais dont les caractéristiques sont loin d'être satisfaisantes.

On préfère, et cela est l'originalité du procédé Rhône-Poulenc, dans une deuxième phase, introduire un excès de diaminodiphénylméthane et par chauffage pendant un temps limité, on conduit la réaction jusqu'à l'obtention d'un prépolymère. On s'arrête donc au stade B. Ces prépolymères sont livrés à des transformateurs sous forme non chargée, résine pour stratifiés par exemple sous le nom de Kerimid, ou associée à des charges, compounds de moulage sous le nom de Kinel.

Dans le tableau projeté (*tableau* 3), apparaissent maintenant les caractéristiques mécaniques d'éprouvettes moulées à partir de compound Kinel renforcé soit fibres de verre, soit fibres de carbone. Elles sont



INDUSTRIE MINERALE

TABLEAU 3

	KINEL fibres de verre 6 mm d = 1,9		KII strat ve d =	NEL tifiés rre 1,9	fibre de 12 d =	NEL carbone mm 1,6	KI fibre de unidire Mod d =	NEL carbone ctionnel mor II 1,6	ALUN AS d =	AINIUM TIT 2 UN = 2,7 d		ANE = 4,45
	25 °C	250 °C	25 °C	250 °C	25 °C	250 °C	25 °C	250 °C	25 °C	250 °C	25 °C	250 °C
Rf Mf	38 2 250	30 2 000	50 2 800	35 2 200	40 4 700	35 4 300	150 16 900	120 16 000	23,5 6 850	18,5 5 000	100 11 000	
Rt Mt	17,5 2 500	13 1 550	35 3 000	25 1 800	369	007.1	110 17 500	108 16 700	17 7 400	12 6 750		
Rf/d Mf/d	20 1 180	16 1 050	26,3 1 475	18,5 1 160	23 2 700	21 2 460	93,8 10 562	75 10 560	8,7 2 540	6,85 1 850	22 2 500	
Rt/d Mt/d	9,2 1 310	6,9 815	18,5 1 580	13,2 950			68,7 10 940	67,5 10 440	6,25 2 740	4,35 2 500		

Mf = ModuleFlexion Rf = Résistance Flexion Rt = Résistance Mt = Module Traction Traction

d	=	densite

Matériau		KINEL 550 $(d = 1,9)$	4	COM	POUND EI (d = 2,00)	POXY)	AS 2 UN (d = 2,7)			
Caractéristique	20 °C	250 °C	300 °C	20 °C	150° C	180° C	20 °C	250 °C	300 °C	
σ1 - hbar	17,5	13	9	7	4	3	17	11,8	8,5	
ε1 - hbar	2 500	1 550	1 000	1 850	1 150	300	7 400	6 750	6 600	
σ / d	9,2	6,83	4,75	3,5	2	1,5	6,25	4,35	3,15	
ε / d	1 310	815	528	925	575	400	2 740	2 500	2 450	





111

Matériau	BA.	KINEL 550 (d = 1,9)	4	COM	POUND E (d = 2)	POXY	AS 2 UN (d = 2,7)			
Caractéristique	20 °C	250 °C	300 °C	20 °C	150 °C	180 °C	20 °C	250 °C	300 °C	
σ1 - hbar	38	30	22	18	11	8	23,5	18,5	14	
ε1 - hbar	2 250	3 000	1 625	2 200	1 600	1 250	6 850	5 000	1 500	
σ1/d	20	15,8	11,6	9	5,5	4	8,7	6,85	5,20	
ε1/d	1 180	1 050	870	1 100	800	625	2 540	1 250	1 670	





comparées à celles d'un alliage d'aluminium AS 2 UN couramment utilisé en aéronautique et à celles du titane. A 250 °C, vous pouvez évaluer le niveau de performances auquel prétendent les matériaux composites polyimides. Aucun polymère servant de matrice, commercialisé jusqu'à ce jour, ne peut prétendre à de tels niveaux de performances, les résines phénoliques peut-être, mais pendant si peu de temps, moins de quelques heures.

Du point de vue prix, il est évident que les fibres de graphite sont encore à l'heure actuelle peu abordables. En conséquence, les composites à base de cette fibre ne sont ou ne seront employés à court terme que dans des applications ou des marchés sophistiqués comme l'aéronautique.

Il n'en est pas de même avec les composites à base de fibres de verre dont le prix est infiniment plus bas et permet à court terme d'envisager des applications de masse. Nous allons nous pencher plus particulièrement sur les caractéristiques du Kinel 5504, matériau comprenant 65 % de fibres de verre courtes 6 mm et 35 % de polyimides.

Comparons ce composite à l'alliage d'aluminium AS 2 UN et à un composite à base de résine époxyde. Les caractéristiques de flexion, de traction, de fatigue en flexion alternée, de fluage et de résilience sont indiquées dans les tableaux suivants. Les résultats sont obtenus sur éprouvettes de même géométrie que celles des normes ASTM.

a/ Caractéristiques de traction : l'effort est effectué dans la direction perpendiculaire au moulage (*tableau* 4).

b/ **Caractéristiques en flexion :** l'effort est effectué dans la direction perpendiculaire au moulage (*tableau* 5).

c/ Fatigue en flexion alternée : effort dans la direction perpendiculaire au moulage. Les essais sont effectués sur éprouvettes de type Webi à déformations imposées (*tableau* 6).

d/ Fluage : effort dans la direction perpendiculaire au moulage. L'éprouvette choisie est identique à



celle pour les essais de traction. Les résultats sont donnés en fonction de la contrainte et du facteur température-temps (*tableau* 6).

e/ **Résilience :** l'effort est effectué dans les directions perpendiculaire et parallèle au moulage. Eprouvette lisse de section 10×10 mm (*tableau* 7).

Coefficient de dilatation : le coefficient de dilatation linéaire moyen compris entre 20 et 200 °C est de 14.10^{-6} cm/cm/°C.

Essai de tenue au feu : une plaque en Kinel 5504, $200 \times 200 \times 3$ mm, est exposée sur une face à la flamme de 1 100° C. Après 30 s, la face exposée devient rouge, une flamme apparaît et se maintient

TABLEAU 7	
Bésilience	

Matériau Carac- téristique	KINI	EL 5504	COMPOUND EPOXY	AS 2 UN	
	Usiné	Non usiné	Usiné	Usiné	
R ⊥ daj/cm ²	0,6	1	0,35	0,5	
R // daj/cm ²	0,6	1	0,3	0,5	

⊥ Perpendiculaire à l'axe de moulage

// Parallèle à l'axe de moulage

2 mn. Cette flamme s'arrête si on retire la plaque du feu. L'essai est poursuivi pendant 15 mn sans phénomène remarquable. Après l'essai, la plaque est légèrement déformée et quelques cloques sont visibles sur la face non exposée. A aucun moment de l'essai, la face non exposée a dépassée une température de 320 °C.

Cet examen rapide des caractéristiques du Kinel 5504 en comparaison avec celles d'autres matériaux conduit aux commentaires suivants :

Les résultats en traction comparés à ceux en flexion mettent en évidence l'influence de l'orientation des fibres parallèles aux plans des surfaces de moulage, ce qui se traduit par un rapport contrainte de rupture de flexion/contrainte de rupture en traction égal ou supérieur à 2 pour le Kinel, alors qu'il est de l'ordre de 1,5 pour l'alliage d'aluminium considéré.

Le Kinel 5504 a des niveaux de performances très supérieurs aux matériaux composites époxy les plus performants actuellement, et grâce à sa bonne tenue thermique et à la flamme, on peut prétendre à remplacer certains métaux et alliages. Il ne faudrait pas omettre cependant ici de dire que la conception des pièces devant être faites en matériaux composites doit être différente de celle des pièces à réaliser en métaux. L'orientation des fibres pendant les opérations de moulage interviennent en effet directement sur les caractéristiques mécaniques.

En dehors des caractéristiques mécaniques dont nous venons de parler, les polyimides résistent bien aux radiations, à un certain nombre de réactifs chimiques et aux solvants. Leurs propriétés d'isolation électrique sont bonnes ce que ne possèdent pas les métaux.

Nous allons vous présenter un film au titre peutêtre un peu ambitieux « L'Age des Thermostables », titre qui reflète cependant bien la fierté de nos découvertes et de l'idée que nous nous faisons des matériaux en découlant. Ce film a été réalisé avec le collaboration de plusieurs de nos clients français et étrangers. Nous avons bien conscience que le développement des polyimides et de leur réussite future passe par les mains maintenant des transformateurs ou des utilisateurs finals. C'est à eux de puiser dans ces propriétés et d'innover à leur tour.

Ces propriétés peuvent être trouvées sur des pièces moulées par compression, transfert ou injection, pièces de frottement, pièces électriques, pièces de structure, stratifiés, fils émaillés, etc. Ces propriétés doivent conduire soit à substituer les polyimides à d'autres matériaux souvent en concevant différemment des pièces ou des systèmes de pièces qui élimineront des solutions complexes donc onéreuses, soit à passer de nouvelles normes dues aux nouvelles réglementations.

L'axe de notre développement n'est pas d'essayer de substituer nos polyimides à des plastiques courants lorsqu'ils donnent satisfaction, mais davantage de susciter l'utilisation des polyimides dans les endroits où seuls les métaux et alliages sont utilisés. Nous n'oublions pas, bien entendu, de substituer les polyimides aux résines conventionnelles, époxydes entre autres, lorsqu'elles ne conviennent plus, mais ces types de marchés sont plus évidents que les précédents.

Les polyimides nous paraissent adapter aux problèmes posés par l'évolution, l'évolution peut paraître lente, mais elle est irrémédiable. Il faut donner au temps le temps de faire son œuvre.

L'évolution fait nécessité. Nécessité, en particulier dans les années à venir :

 d'améliorer la sécurité, la fiabilité des productions et des objets finis;

de rupture de l'exion/contrainte de rupture en treo tron ágal ou supérieur à 2 pour le Kinel, alora qa'il est de l'orthe de 15 pour l'alliage d'aluminium cones dere

Lo nomi doub il cos integios de pertaminado nos performants attuellament, et grâce à au boine tenue performants attuellament, et grâce à au boine tenue placer conteits méteux et allages. Il ne teudrait pas omettre consentant ici de dira que la conception dés plèces devent être taites en matérieux composites doit être différente de celle des plèces à réalisites doit être différente de celle des plèces à réaliser en méteux. L'orientation dos fibres pencient les opérations de moulage interviennent en effet diractement aut les ceractoristiques méteues

En dehore des correctivistiques meaniques dont neus vencres de parter, les polytimides résistent bien aux matacions, 8 un contain manère do réactifs chimiques et aux solvants. Leurs propriétés d'isoliation siactrique sont honnes ce que ne possèdent pas les méteux.

Nous silons gous présenter un fibri au tibre pausitte un pau embilises. L'Age des Thermostables utre qui reflète cependent bien la fierté de acc désouvertes et de l'idée que nous neus feisore des pratérieux en désouient. Ce film a été réalisé avec le collaboration de plusieurs de nos clients françois et étrangers, illeus avoits bien consolance que le développement des polyimides et de leur réusaits future passe par les mains maintenant des transfor metaux en des cliesteurs finais G est à eux de metaux en des propriétés et d'innever à leur teur

Ces propriétés peuvant être traivées sur des priéces modifiés par compression, transfert ou inpretion, plèces de frothmant, pléces electriques, plèces de simulture, situitiés, fils émaillés, etc. Ces propriotés déivent, conduire soit è substitues les polyimides à d'autres matériaux souvent en concevant différenment des pièces ou des agatemes de préces qui éliminement des solutions complexes deno contractors, soit à preser de copyrelles normes dues aux nouvelles régionentetions.

L'aire de actre déceloppement n'est pas d'assayer de substituer nos polynmides à des plastiques conrants lorsqu'ils donnent satisfection mais devantage de suscitar l'utilization des pulyasides dans les midraits d'asells les minaux et alliages conturbinas

INDUSTRIE MINERALE

 de réduire les dépenses d'énergie en particulier en gagnant du poids ;

- d'améliorer les conditions de travail, réduction des bruits par exemple.

Les polyimides ont déjà répondu et répondront à un certain nombre de ces problèmes dans des domaines variés allant de l'électronique à la mécanique.

Le film que nous vous présentons maintenant vous amènera, nous l'espérons, à nous poser un certain nombre de questions auxquelles nous aurions plaisir à répondre soit dès aujourd'hui, soit dans l'avenir.



cello pour les essels de traction. Les résultats sont donnée en fonction de la contrainte et du facteur température-temps (trôinez 6).

a/ Résilience : l'effort est offectué dans les directions perpendiculaire et paraitèle au moulege. Eprovvette lisse de section 10 x 10 mm (tebleau 7).

Coefficient de dilatation : la coefficient da dilata tran linéaire moyen compris entre 26 et 200 °C est de 14.10 ° crevom/°C.

Essai de termi au fau : uno plaquo an Kinel 5304. 200 × 200 × 3 mm, set exposée eur une fuce à la flamme de 1 100°C. Après 30 s, la face exposée devient rouge, une flamme apparait et se maintient

Bergondieshire & Faxe de moulege

/ Parakéle a Faxa de moulage

Viscosité des verres industriels, son rôle dans le formage des verres

par Michel BRÉ, St-Gobain Industries.

RESUME

Les verres usuels sont des corps visco-élastiques dont la viscosité, en fonction de la température, couvre un immense domaine.

Certains points, ou certaines plages, de ce domaine, sont en liaison étroite avec des propriétés physiques diverses, ou déterminent les conditions de mise en forme à chaud des verres.

Nous décrirons donc ces régions caractéristiques et leurs modes de détermination, puis nous donnerons, dans une deuxième partie, un exemple pratique qui montrera le rôle essentiel de l'évolution de la viscosité au cours d'une opération de formage sur le bon déroulement de celle-ci.

ABSTRACT

Common glasses are visco-elastic substance whose viscosity varies with temperature over an extremely wide range.

Certain viscosity values or intervals within this range govern the conditions of forming the hot glass.

These characteristic viscosities and the way in which they are determined will be described, then a concrete example will be given showing the vital role of the evolution of the viscosity on the success of the forming observation.

Les verres industriels sont des matériaux particulièrement intéressants du point de vue rhéologique puisque, suivant leur température, ils peuvent présenter un comportement situé entre l'état élastique et l'état visqueux quasiment parfaits. En particulier, aux températures moyennes (700-1 000 °C) où les verres sont mis en forme, ils sont un bon exemple de corps visco-élastiques.

Nous allons donc décrire tout d'abord l'évolution de la viscosité des verres avec la température. Nous parlerons des méthodes usuelles de mesure de la viscosité. Enfin, à titre d'exemple, nous donnerons un exemple montrant l'intervention de cette propriété dans un mode de formage.

Si, à la température ordinaire, le verre se présente comme un solide quasiment parfait, au sens ordinaire el au sens mécanique du terme, son apparence se modifie graduellement lorsqu'on le chauffe. Il se ramollit d'autant plus que la température croît et parvient de façon continue à la consistance d'un liquide épais aux températures élevées auxquelles il est élaboré (1 500 °C environ). Le verre ne présente donc pas de fusion franche à une certaine température. Il y a continuité absolue dans son comportement rhéologique, ce qui n'implique pas forcément continuité pour toutes ses propriétés en fonction de la température.

La viscosité du verre joue un rôle prédominant dans son élaboration, son affinage ; tous les modes de formage sont fondés sur la déformation visqueuse du verre chaud.

L'évolution de la viscosité des verres avec la température peut être représentée par la *figure* 1 commune à tous les verres courants. En ordonnées nous avons représenté les viscosités par leurs logarithmes, à cause de l'énorme domaine de variation de cette grandeur.

L'allure générale de cette courbe fait apparaître un point d'inflexion pour une viscosité de 13,3, définie comme le point de transformation.

Ce point particulier correspond à une discontinuité dans plusieurs propriétés physiques (dilatation, résistivité par exemple) et apparemment au passage du verre d'une structure de solide à une structure de liquide.

^{*} Communication au Colloque du Groupe français de Rhéologie, le 18 décembre 1975.



Sa détermination se fait par dilatométrie (voir plus loin). Il en est de même des points R (viscosité 11 à 12 — point de ramollissement dilatométrique) et l (viscosité 16,5 à 18 — point inférieur de recuisson). Les points I et S forment les limites de l'intervalle de recuisson. Nous avons vu qu'à chaque viscosité le verre présente un temps de relaxation non nul. C'est ainsi qu'aux points de viscosité 14,5 (strain point) et 13 (annealing point A) les temps de relaxation sont respectivement de 4 h et de 15 mn.

Le point A est donc très voisin du point S. Le point L, point de Littleton, est défini conventionnellement comme correspondant à la viscosité 7,6 résultant d'une méthode très particulière que l'on décrira plus loin. Ce point correspond grossièrement à la limite de la déformation spontanée d'un objet en verre abandonné à lui-même à cette température. Enfin, citons le gob point ou point de paraison (viscosité 3) correspondant très approximativement à la viscosité du verre délivré par le four.

Le domaine limité par les points G et L intéresse le formage proprement dit tandis que dans l'intervalle L-A l'objet formé est soumis au figeage (extraction des calories avant démoulage). Les jalons que constituent ces divers points n'ont pas un intérêt purement descriptif. Ils correspondent à des états particuliers rencontrés en fabrication. C'est ainsi, par exemple, que l'aptitude d'un verre à être travaillé rapidement à la machine est liée au nombre de Vaughan $\frac{L - 450}{L - 450}$.

ughan
$$\frac{1}{1-A+70}$$
.

Plusieurs auteurs ont cherché à identifier la courbe $\eta = f(T)$ à une fonction mathématique. La forme qui se rapproche le plus de la réalité tout en gardant une certaine simplicité est

$$\log \eta = \mathsf{A} + \frac{\mathsf{B}}{\mathsf{T} - \mathsf{To}},$$

équation de Fulcher qui ne contient que trois coefficients A, B et To.

Cette courbe est susceptible de varier sensiblement selon la composition des verres. A température constante, on dira qu'un verre est plus dur, ou moins tendre, qu'un autre, si sa viscosité est plus élevee.

On dira de même d'un verre dont la courbe est lentement décroissante qu'il présente un grand palier de travail ; ceci traduit bien le fait concret qu'on disposera d'un grand domaine de température pour le mettre en forme.

L'introduction d'oxydes alcalins et alcalino-terreux conduit à un abaissement de la viscosité, par rupture de liaisons Si-O. Il en est de même pour l'oxyde de plomb (les émaux sont riches en PbO). ZnO et surtout CaO, ont un effet très particulier qu'il faut connaître. Leur introduction dans la composition élève la viscosité aux basses températures et l'abaisse aux hautes températures, de sorte que le verre présente un plus court palier de travail. C'est ainsi que la glace (CaO 10,5) et le Duralex (CaO 8,5) présentent les courbes respectives de la figure 2. La différence entre ces deux verres est de 55° au point l et de 12° en sens opposé au point G. L'alumine durcit le verre. L'anhydride borique a une action proche de celle de la chaux, en moins marquée. Les anions O⁻ et F⁻ attendrissent le verre. On a pu dresser des tables de prévision donnant les écarts de température à viscosité constante provoqués par la substitution d'un certain taux d'un oxyde par le même taux d'un autre oxyde.

A titre d'exemple, nous donnons le tableau partiel suivant. Pour deux viscosités (3 et 12) supposées constantes :

A

C

N

	$\log = 3$	$\log = 12$
$ _2O_3$	+ 11	+ 3
aO	- 20	+ 7
a ₀ O	- 14	- 4

Nous indiquons les écarts de température à faire subir au verre lorsqu'on remplace 1 % de silice par 1 % des oxydes indiqués. On y constate l'effet durcisseur de l'alumine, l'effet contraire de la soude et le comportement spécial et important de la chaux.

La viscosité n'est pas, en toute rigueur, fonction uniquement de la composition et de la température. Elle est influencée par l'histoire passée du verre. Ainsi un verre tempé, qui possède une structure



lâche de haute température, présente une viscosité plus faible que prévue (cas des fibres de verre), et ce verre ne recouvre sa viscosité nominale que si l'on permet aux effets de relaxation d'intervenir (par chauffage modéré au-dessous du strain point).

Les méthodes de mesure de viscosité pratiquées dans les laboratoires verriers font appel à trois techniques bien différentes :

a) **Brookfield.** Il s'agit d'un four tubulaire en platine dans l'axe duquel est suspendu un plongeur cylindrique en platine solidaire d'un moteur d'entrainement. L'espace entre four et plongeur est occupé par le verre (75 g). On mesure, pour une vitesse de rotation imposée, le couple qui s'oppose à la rotation du plongeur. On peut opérer jusqu'à 1 450 °C, c'est-àdire pratiquement déterminer quatre points de la courbe de viscosité en une journée entre les viscosités 1 et 4. L'erreur sur chaque lecture est inférieure à 0,02. L'appareil est étalonné au moyen d'un verre standard.

b) **Déplacement de la bille.** Une bille de platine suspendue sous un plateau de balance est immergée dans le verre fondu. Sa vitesse d'ascension provoquée par un poids convenable placé dans l'autre plateau, est mesurée. Un étalonnage préalable est ici également nécessaire. On peut déterminer jusqu'à 1 300 °C des viscosités de 2 à 6 ce qui permet de trouver six points de la courbe à partir de 100 g de verre ; l'erreur est également de \pm 0,02.

c) Littleton. Cette méthode très conventionnelle a pour objet principal la détermination du point de Littleton. Elle consiste à élever très progressivement, à la vitesse de 5 à 10 °C par mn, la température d'une baguette de verre de diamètre 0,50 à 0,70 mm et de longueur 23 cm suspendue dans l'axe d'un four tubulaire spécialement conçu pour cet usage. On observe à l'aide d'un micromètre l'allongement de lá baguette sous son propre poids. Le point de Littleton correspond à une vitesse de 1 mm/mn de l'extrémité inférieure. Dans ces conditions, on relève une incertitude de \pm 1 °C sur le point de Littleton.

Cette dernière méthode convient également, la beguette étant alors chargée par un poids connu, pour déterminer le point A (erreur ± 2 °C) et le strain point (± 3 °C).

Nous devons, pour être complet, mentionner une méthode de mesure basée sur l'écoulement du verre par un canal. Il s'agissait d'un creuset muni d'un téton bien défini et contenant une masse connue de verre à une température bien connue également. Sous l'effet de la pression hydrostatique, le verre s'écoule en gouttes et son débit est inversement proportionnel à la viscosité. Un étalonnage préalable s'impose évidemment.

Le formage des verres présente un aspect double : la transformation d'une masse de verre chaud en un objet de forme définie s'effectue en effet par modification de forme sous l'effet de contraintes extérieures et simultanément par extraction des calories de cette masse de façon à parvenir à l'état figé. Une telle opération s'effectue industriellement le plus rapidement possible, donc soumet le verre à des contraintes internes souvent importantes. A titre indicatif mentionnons le laminage du verre plan, le fibrage ; le pressage d'objets culinaires. Nous allons examiner plus en détail l'opération qui consiste à détacher de la source de verre chaud la masse de verre (paraison) qui sera transformée en bouteille ou en assiette. Cette masse de verre apparaît à intervalles réguliers sous un distributeur de verre chaud. Elle est détachée par la fermeture rapide de deux lames de ciseaux refroidis.

La cicatrice provenant de cette coupure se retrouve sur l'objet fini (en particulier vers le centre des assiettes pressées). Prenons l'exemple d'une paire de ciseaux qui se referme à une vitesse estimée de 2 m/s sur une queue de paraison de diamètre 2 cm. La durée de la coupure est donc de 5 ms. Estimons la viscosité du verre à cet endroit à 10 000 Po et l'écartement des deux lames de ciseaux à 1 mm. Dans ces conditions la vitesse de déformation est 4.10^a et la contrainte de 0,40 hbar.

Cette contrainte modérée est insuffisante pour assurer la rupture élastique de la queue de paraison. Mais nous avons négligé un élément dont nous allons évaluer l'importance : il s'agit du refroidissement local du verre qui a subi le contact des lames refroidies. Pour simplifier l'estimation de ce refroidissement, considérons le film de verre emprisonné entre les deux lames. On peut assimiler ce film à un mur et nous sommes dans le cas classique du mur à une certaine température non nulle dont les faces sont portées brusquement au temps zéro, à une température nulle. La valeur des températures en tout point de l'épaisseur va évoluer comme e^{-t/oe}, le temps de relaxation thermique τ étant égal à d²/ π ² a (d'épaisseur du film et a diffusivité calorifique). Dans notre exemple nous avons d = 0,1 cm et a = 10⁻² aux environs de 1 000 °C, donc τ vaut sensiblement 10⁻¹s. Le niveau moyen des températures est donc affecté d'un facteur :

$$e^{-0,005/0,1} = e^{-5/100} = 0.95$$

la chute de température correspondante est donc de

$$(1 - 0.95) \times 1200 \,^{\circ}C = 60 \,^{\circ}C$$

et entraîne un accroissement de la viscosité d'un facteur 2 à 3. Il en est de même pour la contrainte qui atteint alors 1 hbar. Il est facile de poursuivre ce genre de calcul.

On verra ainsi que, dans l'exemple numérique choisi, la contrainte demeure à peu près constante et égale à 1 hbar pour des vitesses de ciseaux variant de 1 à 5 m/s. En dehors de ce domaine, conformément à notre attente, la contrainte augmente. Si l'on cherche à lui donner une valeur plus importante assurant une coupure franche de la paraison, la méthode la plus efficace est de rapprocher les lames de ciseaux l'une de l'autre. Ainsi si l'on réduit leur distance à 0,5 mm, toujours pour une vitesse de 2 m/s, la conséquence est importante. En effet, la vitesse de déformation et la contrainte sont en l'absence de refroidissement doublées. Mais le temps de relaxation étant divisé par 4, le niveau

reficient mentionnome le fantinopp do verre plan, la fibrage la pressage d'objets culmaires blaus allons exeminer plus en détail l'aperation qui consiste a détacher de la seuvos de verre plaud la mane de varre (sernison) qui sere transformée en bauquile qui en assistite (atto masse de verre apparait à intervalles réguliers ands ce distributeur de verre chaud file est ditachée par le formeture repide de deux laines de ciseaux refinidis

La creatrice provenant de cette consurre se retrauve aur l'objet fini (en partiquillar voirs in contre des assistints pressures). Pronone l'example d'une optre de risseux qui se referme a une vitetras set mée de 2 m/s sur une consure de pertissen de diant tre 2 cm. La durée de le compuje est danc de 5 ma faitmone le viscosité du verne 5 cet endroit d 10 000 Po et l'étartament des deux lames de cisasue à 1 mm. Dana das contitions 's vitetras de déforme tion ent 4 10° et la contrainte de 9.46 fieur.

Cette contrainto moderés est l'autifisante pour esseror la rupture éhadique de la queue de parguseo Mois nous avons négligé un élément dent nous altens éveluer l'importance il s'agit du refroidisse crent focsi du verre qui a subi la contact des lanes refroides Pour aimpitter l'estimution de ce refroi des températures est alors affecté d'un coefficient $e^{-1/5}=0,82,$ ce qui correspond à une chute de température de

$$(1 - 0.82) \times 1200 \,^{\circ}\text{C} = 216 \,^{\circ}\text{C}$$

et à une forte élévation (facteur 20) de la viscosité locale. La contrainte a donc subi finalement un accroissement notable puisqu'elle vaut maintenant

$$0.40 \times 2 \times 20 = 16$$
 hbar

pour une telle valeur la coupure est certainement assurée. Le réglage des ciseaux est donc de première importance.

Nous avons voulu montrer par cet exemple que le formage du verre, opération à la fois mécanique et thermique, développait nécessairement des contraintes locales. Celles-ci sont en général dues à un cisaillement entre couches de verre en mouvement relatif permanent ou non. Dans notre exemple les contraintes étaient purement visqueuses et leur exaltation par le refroidissement local provoqué par l'outil de formage peut conduire à des valeurs critiques.

Des vitesses de formage plus élevées provoquent évidemment des contraintes plus fortes même si leur durée d'action est plus petite. Il faudrait que cette durée devienne très faible, soit de l'ordre de grandeur du temps de relaxation pour que l'on se trouve en régime élastique transitoire.

Même dans ces conditions extrêmes, il ne faut pas espérer une réduction importante des contraintes. Le verre matériau au double comportement visqueux et élastique présente irrémédiablement la facheuse propriété de s'opposer aux changements de forme d'autant plus énergiquement que l'on veut agir sur lui plus rapidement.

ce verre na moouvre sa viscosite nomiente que a i on permet aux uffets de relaciation d'intervontr (pe chauffage modéré, su-dessous du amérir point), Les méthodes de mesure de viscasité pratiquées

dens fas taboraçoires vontens tout uppet a tri techniques bien differentes:

Al Brookileid. E s'agit d'un teur tubulaire an platiose dans l'aste daquei est suspendu un plongeur unitedirat. L'espace antre four et alongeur est accupé nateant. L'espace antre four et alongeur est accupé par lo sèrre (75 g). On mesure, pour une vitesse do notation imposée, le cousie qui s'apposé à la rotation du plangeur. On paul epèrer juagr's (450 °C, c'est-à du plangeur. On paul epèrer juagr's (450 °C, c'est-à du plangeur. On paul epèrer juagr's (450 °C, c'est-à cambe de visquaité en une jeunée entre les viscosités t et 4. L'erreur sur chaque lacture est inférieure à 0,02 L'appureil ast étalence qui meyen d'en verre standent

b) Deplacement de la bille Une bille de platine ausgendue sous un plateau de balance set immergée dans le verre fondu. Sa viteses d'ascension prévoquée par un patés cenvengble placé dans l'autre plateau est meaures. En étaionnage presidois est lo réateau est meaures. En étaionnage presidois est lo

Le comportement rhéologique à haute température des produits réfractaires façonnés

par H. LE DOUSSAL, Société Française de Céramique.

RESUME

Après avoir rappelé brièvement les différentes sollicitations auxquelles les matériaux réfractaires sont soumis pendant leur service, l'aspect théorique et pratique de leur comportement est abordé.

L'influence des 4 paramètres de base : structure, température, contrainte et temps est capitale et est décrite en détail avec la formulation mathématique correspondante.

L'influence de la nature de l'atmosphère est également importante, surtout pour les produits contenant de la silice.

Les différents mécanismes de déformation sont analysés (glissement, diffusion superficielle, en volume et intergranulaire). Les différents moyens de mesure permettant de caractériser le comportement rhéologique des matériaux réfractaires sont exposés (mesures de fluage, de module de rupture par flexion, de relaxation, d'énergie de rupture, etc.) et sont illustrés par des essais effectués sur des produits industriels types.

ABSTRACT

After a short recalling of the different stresses a refractory material undergoes in practice, the theoretical and practical aspect of their behaviour is studied.

The influence of 4 fundamental parameters: structure, temperature stress and time is described in detail and the corresponding mathematical formulas are given.

The influence of the type of atmosphere is also important, specially in the case of silica-containing products.

The different deformation mechanisms (sliding, superficial diffusion) are analyzed. The test methods for characterizing the rheology of refractory products are laid out (creep test, modulus of rupture, relaxation test, energy of rupture a.s.o.) and illustrated by tests made on industrial typical products.

1. INTRODUCTION

Si on définit la rhéologie comme étant la science de l'écoulement et de la déformation de la matière, il va de soi que les produits réfractaires, lors de leur utilisation, aussi bien à des températures moyennes qu'à haute température, ont un comportement rhéologique.

En effet, pendant leur service, les produits réfractaires sont soumis à des sollicitations de plusieurs origines :

- sollicitations thermiques (température, gradient de température, choc thermique, etc.),

- sollicitations mécaniques (contraintes d'écrasement, de flexion, de traction, de torsion, etc.),

— sollicitations physico-chimiques (érosion, corrosion par des solides, liquides, gaz, etc.). Si l'on ajoute à ces diverses contraintes l'influence du temps, on conçoit aisément que toutes les conditions sont requises pour qu'un produit réfractaire obéisse à un phénomène rhéologique très complexe.

D'autre part, quand on sait l'importance de plus en plus grande que tendent à prendre les céramiques dans les industries de pointe, où les sollicitations à haute température interviennent à tout instant, il s'avère nécessaire de connaître parfaitement le comportement de ces produits, pour leur choix et leur emploi adéquat.

L'objet de cet exposé est d'étudier l'importance de ces paramètres (température, contrainte, temps, etc.) et de discuter de leur influence sur la « réponse » rhéologique des céramiques réfractaires.

Nous envisagerons successivement l'aspect théorique et pratique de ces phénomènes pour, ensuite, aborder quelques exemples concrets.

^{*} Communication au Colloque du Groupe français de Rhéologie, le 18 décembre 1975.

2. ASPECT THEORIQUE

Comme nous l'avions fait remarquer précédemment, la déformation ε des céramiques dépend essentiellement de 4 facteurs : la structure (S), la tempénature (T), la contrainte (σ) et le temps (t). La formulation mathématique de ce phénomène peut s'exprimer symboliquement par la relation

$$\varepsilon = f(S, T, \sigma, t)$$

Examinons successivement l'influence de ces 4 paramètres en abordant, ensuite, l'influence de l'atmosphère qu'il y a lieu également de considérer comme paramètre secondaire.

2.1. Influence de la structure

La déformation des céramiques dépend, en premier lieu, de leur constitution macro et microscopique.

Macrostructure :

- porosité,
- dimensions des grains,
- distribution des phases,
- état de surface (rayures, attaques chimiques localisées, etc.).

Microstructure :

- microfissures entre grains et cristaux (retraits de frittage différentiels),
- structure cristalline,
- défauts ponctuels,
- interférence des dislocations,
- lacunes dans le réseau, etc.

A une plus petite échelle, les dislocations de structure cristalline peuvent, par coalescence, conduire à la formation de microfissures.

Ainsi, Griffith a démontré que la distribution des contraintes autour d'un pore de forme elliptique, de longueur (2 c) et de rayon de courbure à l'extrémité (ρ), était maximum à cette extrémité.

On a :

$$\sigma_{\rm m} = 2 \ \sigma \ \sqrt{\frac{\rm c}{\rho}}$$

avec :

 $\sigma_{\rm m} =$ contrainte maximale

 σ = contrainte de traction normale.

Si c $\gg \rho$ la contrainte $\sigma_{\rm in}$ « concentrée » à cette extrémité peut dépasser la résistance théorique du matériau. Dans ce cas, la fissure va se propager et (c) va augmenter, jusqu'à provoquer la rupture totale de la pièce.

Globalement, l'influence de la porosité est qualitativement semblable pour les produits industriels

INDUSTRIE MINERALE

à celle observée avec les oxydes purs, c'est-à-dire croissance de la déformation avec la porosité suivant une loi du type :

$$\log \frac{d \varepsilon}{d t} = a + bP$$

où : a et b = constantes P = porosité

Pour citer un exemple, un produit de MgO polycristallin avec 12 % de porosité se déforme par fluage six fois plus rapidement qu'avec 2 % de porosité. Des expériences réalisées sur l'alumine ont donné un comportement similaire.

2.2. Influence de la température

Suivant la température, une céramique se déformera différemment et présentera une variation de la contrainte à la rupture en fonction de la température non linéaire.

Aux températures les plus basses (20-900 °C), la rupture est occasionnée par les défauts inhérents à la texture même du matériau (porosité, fissures, etc.). Dans ce domaine de température, la dimension du défaut commande la résistance mécanique. Dans le domaine des températures intermédiaires (> 1 100 °C), une déformation plastique limitée peut se produire et la résistance mécanique décroît avec l'augmentation de la température, par création de défauts au cours de la déformation et diminution de la viscosité de la phase vitreuse. Aux températures plus élevées, une forte déformation plastique peut se produire et la résistance mécanique augmente par un phénomène d'écrouissage, pour décroître à nouveau à des températures encore plus élevées (processus de rétablissement).

2.3. Influence de la contrainte

La déformation d'une céramique dépend également de la contrainte à laquelle elle est soumise.

L'expression mathématique de l'influence de ce paramètre est encore actuellement très controversée. Des études menées sur le fluage de monocristaux, ou sur des produits pré-agglomérés, ont conduit à des équations de la forme :

$$\frac{\mathrm{d}\,\varepsilon}{\mathrm{d}\,t} = \mathrm{A}\,\phi^{\mathrm{n}}\,\sigma^{\mathrm{m}}\,\mathrm{e}^{-\mathrm{Q/RT}}$$

où : $\frac{d \varepsilon}{d +}$ = vitesse de fluage

A = constante dépendant du matériau

 ϕ = dimension moyenne des cristaux

 $\sigma = \text{contrainte}$

- m = coefficient voisin de 4
- Q = énergie d'activation
- R = constante des gaz parfaits
- T = température absolue.

Cette équation du type Arrhenius peut s'écrire plus simplement sous la forme $\frac{d \varepsilon}{d t} = K \sigma^m$ en posant $K = A \phi^n e^{-Q/RT}$.

Des études menées par Bertolotti et Scott à l'Université de Washington ont montré, que, pour un monocristal d'alumine α , la variation de la vitesse de fluage $\dot{\epsilon} = d\epsilon/dt$ peut être mise sous la forme d'un binôme du second degré,

$$\ln \dot{\epsilon} = A + B \ln \sigma + C (\ln \sigma)^2$$

Norton, en reprenant une équation du type Arrhenius, a défini à partir de l'exposant m de σ de l'équation

$$\frac{d \varepsilon}{d t} = K \sigma^{m}$$

trois types d'écoulement :

- écoulement élastique : m = 0
- écoulement plastique : m = 4
- écoulement visqueux : m = 1

En pratique, c'est l'écoulement plastique que l'on rencontre le plus souvent dans les céramiques industrielles.

2.4. Influence du temps

La déformation présentée en service par une céramique est généralement complexe et bien éloignée des conditions d'essai en laboratoire. Le facteur temps joue alors un grand rôle ; la déformation sous contrainte mécanique est alors appelée fluage.

Un exemple simple de ce type de déformation est celui d'un tube de four qui s'affaisse en service. Dans ce cas, la contrainte mécanique *est due à la pesanteur* et la déformation a lieu avec le temps, sous charge constante.

D'après de nombreux travaux effectués dans les laboratoires de fabricants et d'utilisateurs de produits réfractaires, on sait que la déformation d'un produit, en fonction du temps, suit une loi de la forme :

$$\frac{\Delta L}{L} \approx at^{n}$$

avec : $\Delta L =$ variation de dimension de l'échantillon L = longueur initiale de l'échantillon

a et n = constantes

t = temps

L'exposant n de la relation précédente est, en général, un peu plus élevé au début de l'essai et se stabilise ensuite autour d'une valeur constante, différente suivant le mécanisme de fluage contrôlant le fluage du produit. En dérivant par rapport au temps $\Delta L/L = at^n$ on aboutit à l'expression :

$$\frac{d \varepsilon}{d t} = n a t^{n-1}$$

Il en résulte que la vitesse de fluage décroît en fonction du temps, suivant une loi du type :

$$\log \frac{d \epsilon}{d t} = b + (n - 1) \log t$$

Ainsi, pour des produits industriels courants, on observe suivant les produits, dans les 5 premières heures d'essai, une vitesse de fluage de l'ordre de 0,05 à 0,2 %/heure, qui se stabilise à environ 0,01-0,02 %/h après 10 h d'essai pour rester ensuite pratiquement constante.

Pour un produit donné, on observe que n est peu dépendant de la température et de la contrainte ; par contre, il peut dépendre de la nature de l'atmosphère. La valeur du coefficient n permet de déterminer à quel mécanisme de déformation le produit est soumis. On distingue les limites suivantes :

- n < 0,2 mécanisme correspondant à un frittage
- 0,2 < n < 0,5 mécanisme du type plasticité-frittage avec un comportement d'autant plus plastique que l'on est près de 0,5
 - n > 0,5 mécanisme correspondant essentiellement à de la plasticité

2.5. Influence de l'atmosphère

Les produits réfractaires sont, en général, soumis pendant leur service à des atmosphères plus ou moins corrosives, oxydantes ou réductrices.

Des essais effectués dans notre propre laboratoire, sur de nombreux produits, ont montré que les atmosphères réductrices accélèrent, comparativement aux atmosphères neutres ou oxydantes, le phénomène de fluage. Ainsi, un produit argileux à 42 % d'alumine flue à 1 300 et 1 350 °C environ trois fois plus dans une atmosphère composée d'un mélange $H_2 + N_2 + CO_2$ que dans l'air (cf. *figures* 1, 2 et 3). De même, un produit à base de mullite flue à 1 500 °C deux fois plus dans une atmosphère d'oxyde de carbone que dans l'air (cf. *figure* 4). Le même phénomène se ren-



Fig. 1. — Echantillon argileux 42-44 % Al₂O₃ Température : 1 300 °C. Pression : 2 bars



Température 1 350 °C. Pression 2 bars

Echantillon argileux 42-44 % Al₂O₃



contre avec un produit à base de silice où la présence d'hydrogène entraîne un fluage très important du matériau (cf. *figure 5)*. Dans l'hydrogène, il a été établi que la silice était réduite en sous-oxyde SiO avec formation de vapeur d'eau suivant l'équilibre :

$$SiO_2 + H_2 \iff SiO + H_2O^2$$





INDUSTRIE MINERALE



On rencontre également ce phénomène de réduction dans les produits contenant Fe_2O_3 et Na_2O .

Cette réduction partielle ou totale d'un des éléments entrant dans la composition du produit entraîne l'apparition de porosité ayant pour effet d'abaisser la résistance mécanique du matériau et, donc, d'augmenter le fluage. Parallèlement, on a remarqué, dans le cas des matériaux présentant une forte proportion de phase vitreuse, l'influence de l'atmosphère sur sa viscosité, favorisant le développement du phénomène de plasticité.

3. MECANISMES DE DEFORMATION

Les mécanismes de déformation régissant le comportement rhéologique des céramiques polycristallines sont contrôlés par différents phénomènes dont l'action se conjugue avec une importance plus ou moins grande suivant le degré *d'activation* des paramètres que nous avons vus précédemment : structure, température, contrainte, temps, atmosphère.

L'étude de ces mécanismes est extrêmement complexe, comme en témoignent les nombreux travaux réalisés notamment aux Etats-Unis.

Afin de schématiser les phénomènes, on distingue essentiellement :

- les mécanismes de déformation par glissement (prépondérance du paramètre structure),

-- les mécanismes de déformation par diffusion (prépondérance du paramètre température).

3.1. Les mécanismes de déformation par glissement

Les céramiques sont généralement constituées de cristaux dans lesquels les atomes et les ions sont situés dans un réseau régulier. La déformation se produit par mouvement des plans de ces atomes les

122

Fig. 2. -

uns par rapport aux autres. Le mouvement a lieu suivant certains plans et directions cristallographiques préférentiels, connus sous le nom de systèmes de glissement.

La contrainte nécessaire pour mettre en mouvement une dislocation est appelée contrainte de Peierls-Nabarro. On distingue deux types de dislocation, suivant la direction de leur déplacement : les dislocations coins ($\underline{1}$) et les dislocations vis (//).

Dans le cas des céramiques polycristallines, les joints de grains agissent comme barrière vis-à-vis du glissement des dislocations.

Un autre mode de déformation peut également exister dans certains matériaux cristal·lins (Al₂O₅) : le maclage.

3.2. Les mécanismes de déformation par diffusion

Les processus de diffusion sont d'une importance particulière pour la déformation des céramiques aux températures élevées.

Les contraintes aux joints de grains, causées par l'empilement des dislocations ou le mouvement d'un grain par rapport à l'autre, peuvent être relâchées par la diffusion permettant une déformation supplémentaire.

Les phénomènes de diffusion dans les céramiques dépendent beaucoup de la teneur en impuretés et des conditions d'environnement. Ainsi, le dopage intentionnel des céramiques avec des impuretés et le contrôle de l'atmosphère sont utilisés, en pratique, pour le frittage des céramiques.

On distingue différents types de mécanisme suivant le modèle choisi (modèle des sphères tangentes et/ou des sphères sécantes).

Mécanisme de diffusion superficielle

Ce mécanisme est caractérisé par une diffusion superficielle des lacunes excédentaires du pont vers la surface voisine des sphères.

Comme il s'établit un flux de lacunes, il existera un flux équivalent d'atomes en sens inverse, qui tendra à édifier un pont.

Ce fluage est caractérisé par une loi du type $\frac{\Delta L}{L} = K t^{0,3}$.

Mécanisme de diffusion en volume

Ce type de mécanisme correspond, comme le précédent, à un transfert de lacunes, en considérant cette fois le phénomène dans le volume.

L'équation est du type
$$\frac{d \epsilon}{d t}$$
 = (A) $\frac{D \sigma}{KT \phi^2}$

Mécanisme de diffusion intergranulaire

Dans ce cas, les lacunes se trouvant en excès au voisinage des ponts de raccordement des grains ont tendance à diffuser vers le joint de grain et à augmenter, ainsi que le volume du pont de raccordement.

Coble a établi une théorie sur ce mécanisme de déformation qui se traduit par une équation du type :

$$\frac{\mathrm{d}\,\varepsilon}{\mathrm{d}\,t} = \mathrm{A}\,\frac{\mathrm{DW}\,\sigma}{\mathrm{KT}\,\phi^{\mathrm{s}}}$$

avec : A, K = constantes

ε	=	déformation	
t	=	temps	
D	=	coefficient de diffusion de l'ion con trôlant le processus	1-
Т	=	température	

- ϕ = dimension des cristaux
- $\sigma = contrainte$
- W = largeur du joint de grain

Les trois relations précédentes peuvent s'exprimer, comme nous l'avons vu précédemment, sous la forme plus générale :

$$\frac{\mathsf{d}\,\varepsilon}{\mathsf{d}\,\mathsf{t}} = \mathsf{A}\,\phi^{\mathrm{m}}\,\sigma^{\mathrm{n}}\,\mathsf{e}^{-\mathsf{Q}/\mathsf{R}'}$$

avec m et n variables suivant les mécanismes.

Il va sans dire que, dans la réalité, le comportement d'un produit au fluage est le résultat d'un compromis entre ces différents mécanismes, compromis qui dépendra de l'intensité des sollicitations thermomécaniques.

4. ASPECT PRATIQUE

Le comportement rhéologique des réfractaires est étudié depuis de nombreuses années, aussi bien en France qu'à l'étranger.

Dans presque tous les cas, les essais de laboratoire et leurs résultats ne sont qu'une évaluation indirecte du comportement réel de ces produits dans la pratique. Comme dans la réalité les réfractaires sont soumis à un modèle de contraintes mécaniques complexes et, également, à un gradient thermique, de telles situations ne peuvent être étudiées fondamentalement que si l'on dispose de données de base techniques suffisantes sur la structure. Le premier pas vers une meilleure connaissance du comportement rhéologique des réfractaires est fait actuellement avec la généralisation de la mesure simultanée de la contrainte et de la déformation.

L'étude du comportement contrainte-déformation a notamment mis en lumière l'influence du temps sur le comportement rhéologique des produits réfractaires à haute température. Dans la pratique, six types d'essais sont couramment utilisés dans les laboratoires pour caractériser le comportement mécanique et rhéologique des réfractaires :

- le module de rupture à chaud,
- l'affaissement sous charge à chaud,
- le fluage (en compression et en flexion),
- les mesures de relaxation,
- la torsion à chaud,
- l'énergie de rupture à chaud.

4.1. Le module de rupture à chaud

Cet essai consiste à soumettre une éprouvette du produit, par l'intermédiaire d'un dispositif de flexion en trois points, à une contrainte de vitesse constante jusqu'à la rupture, à une température donnée.

L'interposition d'un capteur permet d'enregistrer la déformation que subit l'éprouvette pendant l'application de la contrainte. Un enregistreur X-Y permet de tracer la courbe effort-déformation du produit. Cette mesure, réalisée à différentes températures, permet de tracer le graphe de la fonction :

R = f(t)

La vitesse de mise sous contrainte ayant une grande importance, surtout pour les produits à grande plasticité à certaines températures, celle-ci a été normalisée et fixée à 100 kgf \cdot cm⁻² \cdot mn⁻¹ (projet I.S.O.). En effet, des essais effectués dans notre laboratoire sur un produit argileux à 42 % d'Al₂O₃, dans un domaine de température (1 300-1 370 °C) où celui-ci possède une phase plastique, ont mis en évidence l'influence de la vitesse de mise sous contrainte lorsque l'on fait varier celle-ci de \pm 10 % autour de la vitesse standard (100 kgf \cdot cm⁻² \cdot mn⁻¹).

Il est donc nécessaire d'être prudent dans l'interprétation des résultats obtenus avec un tel essai



Fig. 6. - Produit argileux à 42 % Al₂O₃. Température : 1 200 °C

INDUSTRIE MINERALE

quand on voit les différences qui peuvent exister lorsque les conditions d'essai ne sont pas strictement respectées.

En général, on constate que, quand la vitesse de mise sous contrainte augmente, la contrainte occasionnant la rupture augmente également, la déformation à la rupture ayant plutôt tendance à diminuer.

Des exemples de courbes effort-déformation, obtenues avec différents produits industriels, sont illustrés par les *figures* 6 à 14.

Produits argileux à 42 % d'alumine (figures 6, 7 et 8):

Les mesures ont été effectuées à trois températures (1 200, 1 300 et 1 400 °C) et avec trois vitesses de mise sous contrainte (40, 60 et 90 kgf \cdot mn⁻¹). On remarquera l'influence de la vitesse de mise sous contrainte et de la température sur le comportement du matériau à la déformation.

- Produit à base de mullite (figures 9, 10 et 11) :

Les mesures ont été effectuées à trois températures (1 300, 1 400 et 1 500 °C) et avec deux vitesses de mise sous contrainte (60 et 90 kgf.mn⁻¹). On remarquera que, pour ce type de matériau, l'influence de la vitesse de mise sous contrainte est moins importante que pour le produit précédent qui présentait une phase plastique importante.







Fig. 8. - Produit argileux à 42 % Al₂O₃. Température : 1 400 °C





Fig. 10. - Produit de mullite. Température 1 400 °C



Fig. 11. — Produit de mullite. Température : 1 500 °C

- Produit à base de silice (figures 12, 13 et 14) :

Les mesures ont été effectuées à trois températures (1 300, 1 400 et 1 500 °C) et avec deux vitesses de mise sous contrainte (60 et 90 kgf . mn⁻¹). Etant donné la grande rigidité à chaud de ce type de produit, l'influence de la vitesse de mise sous contrainte est pratiquement négligeable.









4.2. L'affaissement sous charge à chaud

Au cours de cet essai, l'échantillon subit l'action d'une contrainte de compression constante de 2 kgf.cm⁻². Un système de mesure différentiel permet de mesurer la déformation de l'échantillon quand la température augmente. En pratique, l'essai est arrêté quand l'échantillon a subi un affaissement de 10 %. Cet essai est également normalisé.



4.3. Le fluage

Cet essai est, de loin, le plus utilisé pour caractériser le comportement thermo-mécanique d'un produit et connaître son comportement rhéologique dans le temps.

L'échantillon est soumis à une contrainte de compression ou de flexion constante, et on enregistre sa déformation à un niveau de température donné, en fonction du temps, à l'aide d'un dispositif différentiel identique à celui utilisé pour l'essai d'affaissement sous charge.

Dans les essais courants, l'échantillon subit l'application de la charge pendant 25 h mais elle peut également être prolongée jusqu'à 100 h.

Le fluage de l'échantillon résulte essentiellement de deux phénomènes :

- frittage sous charge,
- écoulement visqueux.

Ces deux types de phénomènes sont favorisés ou ralentis par des phénomènes annexes de nature physico-chimique :

- grossissement des cristaux,
- transformations irréversibles
 - transformations allotropiques,
 - réaction chimique avec formation ou disparition de phase.

Les figures 15, 16 et 17 donnent des exemples d'essais de fluage en flexion effectués sur un échantillon à haute teneur en alumine à microstructure contrôlée, avec différentes charges et à trois températures différentes (1 350, 1 400 et 1 450 °C). On remarquera l'influence déterminante de la température mais également de l'intensité de la charge à laquelle est soumis l'échantillon sur le comportement au fluage du matériau.

4.4. Mesures de relaxation

Les mesures de relaxation consistent à appliquer à l'échantillon une déformation, à la maintenir constante et à observer l'affaiblissement ou la relaxation de contraintes qui en résulte.









La relaxation de la contrainte s'exprime par la relation : $\sigma = \ \sigma_{\rm o} \, {\rm e}^{-{\rm t}/\tau_{\rm e}}$

avec : $\sigma_{\circ} = \text{ contrainte instantanée initiale à t} = 0$ $\sigma = \text{ contrainte à l'instant t} = \tau_{e}$, temps de relaxation. La mesure de la relaxation de la contrainte nécessite d'avoir la possibilité de maintenir la déformation constante tout en mesurant la contrainte. Cette mesure peut être faite avec une machine d'essais Instron, que nous possédons à la Société Française de Céramique, en incorporant un four entre les plateaux de la presse.

Les figures 18 à 21 représentent les résultats d'essais de relaxation effectués par l'équipe du Dr Padgett à la British Ceramic Research Association sur des produits à base de magnésie et à haute teneur en alumine.

On remarquera, en *figure* 19, l'influence de la répétition de l'essai (essais 1, 2 et 3) sur le comportement à la relaxation du matériau.

On constatera également la différence de comportement du produit à base de magnésie et du produit à haute teneur en alumine en ce qui concerne la variation du temps de relaxation en fonction de la température d'essai.



Fig. 18. — Courbe de relaxation d'un produit de magnésie à 1 450 °C (d'après Padgett G.C. et Bettany D.J.)







Fig. 21. — Temps de relaxation en fonction de la température (produit à haute teneur en alumine) (d'après Padgett G.C. et Bettany D.J.)

Dans le premier cas, on obtient en coordonnées semi-logarithmiques une droite (*figure* 20) et, dans le second cas, une variation non-linéaire (*figure* 21).

De façon générale, en-dessous de 1 000 °C, la relaxation est extrêmement lente et au-dessus de 1 450 °C extrêmement rapide.

La relaxation des contraintes peut également être étudiée indirectement en comparant des essais à vitesse de déformation constante et des essais à vitesse constante d'application de la contrainte. Ces essais font référence à deux temps de relaxation, τ_e et τ_σ (τ_e = temps de relaxation de contrainte dans des conditions de déformation constante et τ_σ = temps de relaxation de déformation dans des conditions de contrainte constante).

4.5. La torsion à chaud

Les éprouvettes utilisées pour ces essais ont une forme prismatique (par exemple : $230 \times 25 \times 25$ mm), la partie centrale de 50 mm étant réduite à 17 mm. L'éprouvette est maintenue dans des supports refroidis à l'eau, de chaque côté d'un four chauffé par des éléments en carbure de silicium.

La déformation variable est appliquée sinusoïdalement par un moteur synchrone actionnant une came qui, à son tour, agit par l'intermédiaire d'un levier pour tordre l'éprouvette. Le couple résultant de la déformation est évalué en mesurant la torsion d'un arbre en acier étalonné.

Dans la méthode de torsion, l'équation de Maxwell s'écrit sous la forme :

$$\dot{\sigma} = \mathbf{G} \dot{\epsilon} - \frac{\sigma}{\tau_e}$$

avec : G = module d'élasticité au cisaillement

- τ = contrainte de déformation
- $\sigma = \text{contrainte de cisaillement}$
- τ_e = temps de relaxation pour la contrainte lorsque la déformation est constante.

Ce type d'essai, également très intéressant, est encore actuellement peu répandu et n'est pratiqué que dans quelques laboratoires.

4.6. Energie de rupture à chaud

Le développement, ces dernières années, des études concernant notamment la résistance au choc thermique des matériaux, a entraîné la nécessité, pour les laboratoires, de mesurer l'énergie de rupture car elle entre dans le calcul des paramètres $K_{\rm IC}$, $R_{\rm ST}$ et R''' caractérisant le phénomène de choc thermique.

Ces essais sont effectués sur des éprouvettes prismatiques de $150 \times 25 \times 25$ mm ou d'un format voisin, qui sont soumises, à partir d'un montage en flexion trois points, à une loi de déformation linéaire jusqu'à rupture non catastrophique (rupture dite contrôlée).

L'énergie absorbée au cours de la rupture est mesurée par la surface de la courbe effort-déformation tracée sur un enregistreur X-Y.

La forme de l'entaille est différente suivant la grandeur mesurée.

studies indirectement on companied des essais a vitases de diferencies constante el des essais à vitases constante d'application de la contrainte. Des essais font diference à deux tatage de relavation - et , (x_{1} = temps de relavation de contrainte time des exactifiques de relavation de contrainte et cutemps de relavation de déformation dans des ponditions de contrainte constante).

S. is torsion & chaud

bas éprévésites utilisées paur que assais ent que forma prismetique (par example: 230×25×29 ann) la partie centrale de 50 mm étant réduite » fil avoi

INDUSTRIE MINERALE

— Entaille triangulaire pour la mesure de γ_{WOF} (travail de propagation de la fissure).

— Entaille rectangulaire pour la mesure de K_{IC} et γ_{NBT} (travail d'initiation à la fissuration).

Etant donné leur difficulté, les mesures d'énergie de rupture à chaud ne sont actuellement réalisées que par quelques laboratoires étrangers. Il est certain qu'une meilleure connaissance de l'énergie de rupture à chaud des produits réfractaires permettra. dans l'avenir, de mieux comprendre leur comportement aux sollicitations thermiques de toute nature.

5. CONCLUSIONS

Le comportement rhéologique des réfractaires, encore mal connu il y a quelques années, fait l'objet actuellement d'études importantes dans de nombreux laboratoires français et étrangers.

Toutefois, le domaine à étudier reste encore très vaste et de nombreuses études devront être entreprises si l'on veut mieux comprendre, dans l'avenir, l'évolution des réfractaires soumis de plus en plus à des contraintes sévères.

Il va sans dire que, pour les utilisateurs de réfractaires, la connaissance précise du comportement des produits, dans le temps — dont dépend la fiabilité des réalisations industrielles — est capitale. Malheureusement, de telles études demandant un matériel d'essai de haute qualité ne peuvent être menées, actuellement, que par quelques laboratoires.

Une meilleure connaissance de ces phénomènes de contrainte-déformation devrait conduire, dans l'avenir, à l'amélioration des produits industriels actuellement élaborés, et à l'accroissement de la durée de vie des installations.

Ce sont ces études que nous essayons de développer dans notre laboratoire, grâce à des matériels d'essai que nous avons mis au point, sur des produits de synthèse à microstructure contrôlée et sur des produits industriels commercialisés ou à l'état de prototype.

The R. -- Couthes de solecular d'un produit à l'acte contrat on divertire à 1 300 °C (d'arris l'adjoirs (c.) et Bértany 0.3.)

128

Comportement des bétons réfractaires à hautes températures

procédés amployte en génie civil ant pour coulege béroma coffrési, soil par projection preventique béroma guaitési et conduit après durcimement à un ceten dont les liaisons sont évidemment de type hydraulique.

Si la băton vert paut se comparer ă un băton de genia stvil, la mise en temperature va en feire un metêrleu nooveau en raison des transformationa physico-chimiques dues à l'disvation de températures et eux réactions entre les particules du ciment et du

par A. MATHIEU, Laboratoire Central Lafarge.

RESUME

L'étude des propriétés mécaniques à haute température et en particulier les mesures des résistances à la torsion ont permis de comprendre le comportement industriel des bétons réfractaires.

Comme son nom l'indique, un béton réfractaire est d'abord un béton, c'est-à-dire un ensemble de granulats liés par un ciment à prise hydraulique. Mais il est aussi réfractaire, c'est-à-dire capable de supporter en permanence une température élevée.

Cette condition entraîne la nécessité d'employer des matériaux particuliers aussi bien pour le liant que pour le granulat, afin que l'élévation de température n'amène pas la dégradation du matériau.

Ceci exclut en particulier l'emploi du ciment Portland comme liant en raison de la présence de chaux libre capable, par suite de la réhydratation ultérieure, d'entraîner la désagrégation du béton cuit et refroidi.

C'est à partir de 1923 que le Fondu Lafarge a été utilisé dans les constructions de garnissage réfractaire.

Par la suite, en raison de la diversité des applications possibles, le nombre de ciments alumineux s'est accru en raison :

- des températures d'utilisation de plus en plus élevées,
- du degré de pureté requis par les utilisateurs.

TABLEAU 1

Type de light	Composition chimique %									
	SiO ₂	Al ₂ O ₃	TiO ₂	CaO	Fe ₂ O ₃	FeO				
Fondu	4,5	39,0	2,0	38,5	12,0	4,0				
Secar-50	6,9	50,5	1,9	36,3	2,3	1,0				
Secar-250	0,3	71,8	0,05	26,8	0,1	0,0				
Secar-80	0,1	81,0	0,05	17,0	0,1	0,0				

Dans le *tableau* 1, nous avons rassemblé les analyses chimiques des principaux ciments alumineux fabriqués et commercialisés par Lafarge Fondu International.

L'on est amené à constater que le degré de pureté croît avec la teneur en alumine, ce qui se traduit nécessairement par une augmentation de la réfractarité.

Citons pour mémoire :

— Fondu : 3 300 °C

— Secar 50 : 1 450 °C

- Secar 250 : 1 670 °C
- Secar 80 : 1 800 °C environ

Il s'agit évidemment des résistances pyroscopiques en pâte pure.

^{*} Communication au Colloque du Groupe français de Rhéologie, le 18 décembre 1975.

La mise en service d'un revêtement réfractaire se fait en deux stades :

- la confection du béton « vert »,

- la mise en température,

La confection du béton « vert » se fait selon les procédés employés en génie civil soit pour coulage (bétons coffrés), soit par projection pneumatique (bétons gunités) et conduit après durcissement à un béton dont les liaisons sont évidemment de type hydraulique.

Si le béton vert peut se comparer à un béton de génie civil, la mise en température va en faire un matériau nouveau en raison des transformations physico-chimiques dues à l'élévation de températures et aux réactions entre les particules du ciment et du granulat :

— déshydratation des aluminates de calcium hydratés ainsi que de la gibbsite,

- recristallisation des aluminates de calcium et de l'alumine native,

- réaction à l'état solide entre les fractions fines du ciment et du granulat avec formation de nouvelles phases cristallines,

- formation de phases liquides qui accélèrent la réaction physico-chimique,

- passage progressif de l'état rigide à la fusion en passant par un état intermédiaire pâteux et visqueux.

Dans le *tableau* 2, nous montrons l'évolution en fonction de la température d'un béton de Segar 250-chamotte.

TABLEAU II

Evolution minéralogique d'un béton Ségar 250-Chamotte

Opérations			-			(Granulat							
A sec				×	AL	2 0	3,	CA		1	CA2		s,	A3	52
Après	durciss	em	ent 20°C	×	AL	2 0	3,	CAH	10	+	CA2		s,	A 3	52
Après	étuva	ge d	à 100°C	×	AL	2 0	з,	C3 AH	16	+	AH3		s,	A 3	52
Après d	hauffa	ge	00-800°C	ø	AL	0	з,	C12 A	7	+	AH		s,	A3	52
~		à	1000°C	æ	ALZ	0	з,	CA2	-	CZAS		CAS 2	s,	A 3	52
			1200°C	×	ALZ	0	3,	CA2	(2 AS		CAS2	s,	A 3	52
	н	à	1400°C						0	2 AS		CAS2		A 3	52

Ainsi, à partir d'un béton « vert » à liaison hydraulique, l'on obtient, par la cuisson, un *nouveau matériau* à liaison céramique.

Au cours de son utilisation, un béton réfractaire est soumis à diverses sollicitations auxquelles il doit résister le mieux possible.

Selon l'emploi envisagé, ces sollicitations peuvent être très diverses, d'origines mécaniques, thermiques, chimiques ou combinées :

INDUSTRIE MINERALE

charges mécaniques déterminées ou variables,

- chocs mécaniques,

- abrasion,
- variation brusque de température (chocs thermiques),
- fluage,
- agents corrosifs divers (gaz liquides, solides),
- etc.

L'énumération précédente montre que les qualités exigées d'un béton réfractaire sont très diverses suivant son utilisation.

Pendant longtemps les propriétés des bétons réfractaires ont été surtout étudiées aux moyens d'essais pratiques après chauffage et refroidissement.

Ces essais étaient dérivés des méthodes utilisées pour les ciments Portland et ceci pour des raisons de facilités technologiques et d'habitudes.

Ils ont permis de résoudre un grand nombre de problèmes, mais sont devenus insuffisants devant les exigences accrues de la clientèle car ils ne reflètent pas complètement le comportement réel des matériaux examinés.

Examinons le cas des résistances mécaniques des bétons réfractaires Fondu-chamotte par exemple.

Traditionnellement on détermine les résistances après chauffage du béton à diverses températures.

Lorsque les liaisons hydrauliques sont présentes, l'on observe un haut niveau de résistances mécaniques.

Après cuisson à haute température, l'on observe également de fortes résistances mécaniques, résistances dues à la céramisation et au refroidissement.

Par contre aux températures intermédiaires, l'on note une lacune de cohésion « un trou de résistances » dû à l'absence de liaison céramique et de liaison hydraulique.

L'on conçoit parfaitement :

 — d'une part que ce trou de résistances constitue une zone de faiblesse au sein du garnissage, après refroidissement entre la face chauffée et la zone extérieure,

— d'autre part, que la notion de résistances après chauffage aux hautes températures n'a pas de signification réelle sur le comportement du béton pendant son utilisation.

La détermination du module de rupture à chaud permet de vérifier cet état. En effet l'on observe une chute générale des résistances en fonction de la température (*tableau* 3).

Il faut cependant constater que la détermination du module de rupture par flexion à haute température est imparfaite, car :

130

TABLEAU III





TABLEAU IV

Déformation par torsion sous charge constante



— elle est déterminée à partir d'une relation établie pour les corps rigides, ce qui n'est pas nécessairement le cas puisque l'on se trouve à haute température,

- avant la rupture, il se produit une déformation plastique de l'éprouvette.

Néanmoins cette méthode représente un net progrès par rapport à la détermination des résistances après chauffage.

Etant donné la diversité des états de contrainte qui se créent dans un matériau réfractaire en cours d'utilisation :

 — dilatation différentielle dans l'épaisseur et sur la surface à cause des différences locales de températures,

- contraintes mécaniques créant des porte-à-faux par exemple,

nous avons pratiqué des essais de traction par torsion à haute température qui représentent la sollicitation la plus sévère pour ces matériaux.

Les caractéristiques techniques du torsiomètre peuvent se résumer comme suit :

- four à enroulement chauffant permettant d'atteindre 1 500 °C dans la partie centrale de l'éprouvette,

- un couple de torsion ajustable de 0-20 cm/kg,

- un dispositif de mesure de la déformation angulaire de l'éprouvette jusqu'à 25°. Cet appareil permet d'utiliser une éprouvette allongée de section carrée de 2 cm de côté.

Dans le *tableau* 4, nous montrons la déformation par torsion de deux types de bétons. Pour la formulation classique, l'on note une rupture pour un angle de 15 °C alors que pour la nouvelle formulation l'on n'a pas observé de rupture.

Cela signifie que le béton de type nouvelle formulation pourra supporter des contraintes nettement plus importantes sans rupture.

Ce fait a été rendu encore plus net par la comparaison des propriétés de deux bétons pour la réalisation d'un essai industriel.

Dans cet essai industriel comparatif, le béton classique s'est détérioré (fissuration, biscottage, écaillage) alors que la formulation améliorée n'a pas présenté, à la même échéance, de signe de dégradation.

Ainsi nous avons pu prévoir clairement une différence de comportement des bétons réfractaires par une méthode de laboratoire, différence confirmée par des essais industriels.

Certes cet essai n'est pas parfait et l'on peut à son égard soulever de nombreuses critiques. Il ne faut cependant pas oublier que, contrairement au génie civil où les moyens de mesure en vraie grandeur sont nombreux, il est difficile de mesurer les phénomènes mécaniques à hautes températures.

Cette méthode constitue donc une sérieuse amélioration par rapport aux méthodes traditionnelles.