

# Comportement mécanique en statique et en fatigue des aciers à 9% Nickel dans des conditions cryogéniques

H. KACEM<sup>1,2</sup>, S. HARIRI<sup>1</sup>, J-B. VOGT<sup>2</sup>, J. BOUQUEREL<sup>2</sup>

1. IMT Lille Douai, Univ. Lille, Département Technologie des Polymères et Composites & Ingénierie Mécanique, F-59000 Lille, France

[hassine.kacem@outlook.com](mailto:hassine.kacem@outlook.com) ; [saïd.hariri@imt-lille-douai.fr](mailto:saïd.hariri@imt-lille-douai.fr)

2. Université Lille 1 sciences et technologies, UMET – UMR CNRS 8207/ENSCL/Université de Lille, équipe Métallurgie Physique et Génie des Matériaux, Bâtiment C6, 59655

Villeneuve d'Ascq, France

[jean-bernard.vogt@univ-lille1.fr](mailto:jean-bernard.vogt@univ-lille1.fr) ; [jeremie.bouquerel@univ-lille1.fr](mailto:jeremie.bouquerel@univ-lille1.fr)

## Résumé :

*Les équipements sous pression utilisés pour le transport et le stockage de gaz naturel liquéfié fonctionnent dans des conditions extrêmes notamment à des températures cryogéniques. Dans ce travail nous avons mené une étude de caractérisation mécanique aux températures ambiante et celle de l'azote liquide de l'acier le plus utilisé dans le domaine cryogénique. Une partie de l'étude traite du comportement des soudures. L'étude est menée aussi bien en statique qu'en fatigue. L'objectif scientifique est de mieux comprendre le comportement spécifique de cet acier à très basse température, l'objectif industriel visait à caractériser les matériaux et les soudures des terminaux méthaniers de très grandes capacités et de vérifier leur intégrité pour une durée de vie 50 ans.*

*Après une étude métallurgique de l'acier à 9% Nickel (métal de base), on présente les résultats obtenus de comportement mécanique en statique et en fatigue à température ambiante et à -196°C. La difficulté de mener des essais de fatigue à très basses températures a été résolue par la validation de l'emploi de mini-éprouvettes. L'objectif est de simuler le comportement à 50 ans des structures cryogéniques.*

## Abstract :

*Pressure equipment used for the transport and storage of liquefied natural gas works under extreme conditions, particularly at cryogenic temperatures. In this work we carried out a mechanical characterization study at ambient temperatures and that of liquid nitrogen of the steel most used in the cryogenic field. A part of this study is focus on the weld behavior. The study is conducted in both static and fatigue. The scientific aim of this work is to better understand the behavior of this steel in very low temperature. The industrial aim was to characterize the materials and welds of LNG terminals of very large capacities and to check their integrity for a lifetime of 50 years.*

*After a metallurgical study of 9% Nickel steel, we present the obtained results about its mechanical behavior in statics and fatigue at ambient temperature and at -196 ° C. The difficulty of conducting*

*fatigue tests at very low temperatures was solved by validating the use of mini test tubes. The simulation of the behavior at 50 years of cryogenic structures was also validated.*

**Mots clefs : Matériaux métalliques, acier à 9%Ni, comportement mécanique, cryogénie, martensite, austénite de réversion, cyclage.**

## 1 Introduction

Mondialement, le Gaz Naturel Liquéfié (ou GNL) joue un rôle de plus en plus important dans l'industrie de l'énergie [1]. L'Agence Internationale de l'Énergie (AIE) prévoit une augmentation de la part du GNL dans les échanges de gaz naturel dans le monde : cette part devrait atteindre plus de 40% en 2035 contre près de 30,5% en 2010. En effet, les réserves de gaz naturel dans le monde sont abondantes et son état condensé (600L gaz  $\approx$  1L liquide) rend possible son transport sur de longues distances par voies maritimes. Cela donne naissance à de véritables chaînes d'approvisionnement allant des puits producteurs aux usines de regazéification et de réinjection dans les réseaux en passant par les terminaux de stockage. Fin 2013, 104 terminaux méthaniers (incluant 15 installations flottantes) sont en activité dans le monde, dont une trentaine au Japon. En Europe, les principaux terminaux se trouvent en Espagne (6 terminaux et 24 réservoirs de stockage), au Royaume-Uni, en France et en Italie [2].

Les conditions extrêmes de pression, volume et température associées aux caractéristiques spécifique du gaz GNL imposent des règles de conception, de fabrication, d'utilisation et de suivi en service rigoureuses. En effet, un accident a eu lieu le 20 octobre 1944 sur le peakshaving (station d'écrêtement de pointe) de Cleveland aux Etats-Unis avec l'effondrement quasi instantané d'un réservoir de 4500 m<sup>3</sup> de GNL [3]. La cause principale de cet accident était le choix du matériau de construction inadapté du réservoir. Celui-ci était non conforme aux exigences de la cryogénie, il se fragilisait aux basses températures.

En raison de cela, il est donc primordial que les équipements servant à contenir ou transporter du GNL ou n'importe quel autre gaz liquéfié soient conçus de manière à se prémunir de tout risque de fuite ou de défaillance. L'un des aspects majeurs lors de la conception de tels équipements est le choix des matériaux. En effet, pour assurer un confinement fiable et durable du GNL, le matériau choisi doit avoir une résistance mécanique suffisante pour contenir la pression de liquide ou de gaz impartie aux réservoirs, une résilience élevée pour éviter une rupture fragile à basse température, et la capacité d'arrêter la fissure si elle se propage [4] ; [5].

Dans cet article, nous nous intéresserons particulièrement à l'acier à 9% de nickel qui est celui utilisé pour la construction du terminal méthanier de Dunkerque, dans le Nord de la France. Nous chercherons à expliquer quelles sont les raisons qui font que cet acier possède de bonnes caractéristiques à des températures cryogéniques.

## 2 Démarche expérimentale

### 2.1 Matériau

L'acier à 9% de nickel ou 9Ni, utilisé dans cette étude, a été fourni sous forme d'une tôle de dimensions 7230 mm x 3020 mm x ép. 14mm. Le tableau 1 donne la composition chimique de 9Ni à l'état de réception. Les valeurs données par l'aciériste et vérifiées par différentes méthodes d'analyses élémentaires [6] sont conforme aux exigences des normes ASTM et EN 10028-4.

		Fiche réception matière	Analyses élémentaires*	ASTM	EN 10028-4
% en masse	<b>C</b>	0,04	0,0499 ±0,0025	≤0.13	≤0,10
	<b>Mn</b>	0,53	0,54 ±0,03	≤0.9	0,3-0,8
	<b>P</b>	0,006	0,007 ±0,0004	≤0.035	≤0,020
	<b>S</b>	0,001	0,0002 ±0,00001	≤0.04	≤0,005
	<b>Si</b>	0,23	0,252 ±0,013	0.15-0.3	≤0,35
	<b>Ni</b>	8,99	8,97 ±0,449	8.5-9.5	8,5-10,0
	<b>Mo</b>	0,01	0,013 ±0,0005	-	≤0,10
	<b>V</b>	0,003	0,0034 ±0,0002	-	≤0,05

Tableau 1 : Composition chimique de l'acier à 9%Ni à l'état de réception donnée par l'aciériste et les analyses élémentaires et selon les exigences de normes ASTM et EN 10028-4

Cette tôle commercial est laminée à chaud et traitée thermiquement par trempe et revenu : austénitisation à 800°C pendant 15 minutes suivie d'un refroidissement à l'eau puis un chauffage à 600°C pendant 30 minutes suivi d'un refroidissement à l'air.

## 2.2 Caractérisation microstructurale

La microstructure de 9Ni a été analysée à l'état de réception avec le traitement thermique industriel de trempe et revenu aussi qu'à l'état simulé de trempe. Afin de caractériser l'influence des opérations de mise en forme sur la taille et la forme des grains, des échantillons ont été prélevés dans la tôle dans le sens longitudinal et transversal de laminage. Les échantillons ont été enrobés à chaud dans une résine phénolique, puis polis en utilisant des techniques métallographiques classiques. Ensuite ces échantillons ont subi à une attaque chimique.

La mesure quantitative de la quantité d'austénite présente après chaque étape de traitement thermique a été déterminée par des méthodes de diffraction des rayons X. L'appareil utilisé dans cette mesure est un diffractomètre Bragg-Brentano ( $\theta/\theta$ ) de marque Bruker équipé d'un tube à rayons X à anticathode en cobalt ( $\lambda = 1,78897\text{\AA}$ ). Les diagrammes ont été collectés sur un intervalle angulaire compris entre 45 et 120° par pas de 0,01° et avec un temps d'acquisition de 1s par point.

En exploitant la différence de la structure cristallographique entre la ferrite et l'austénite, la diffraction des rayons X permet la quantification de la fraction volumique de l'austénite. Comme les pics reliés à la martensite et à la ferrite sont superposés, les constituants ont été traités en considérant leur représentation cristallographique : Ferrite-Martensite (CC) et austénite (CFC). Les positions des pics calculées pour la radiation  $K_{\alpha}$  de Cobalt ( $\lambda = 1,78897\text{\AA}$ ) sont présentées dans le tableau 2.

Pic	(111) <sub><math>\gamma</math></sub>	(110) <sub><math>\alpha</math></sub>	(200) <sub><math>\alpha</math></sub>	(211) <sub><math>\alpha</math></sub>	(220) <sub><math>\gamma</math></sub>	(311) <sub><math>\gamma</math></sub>
2 $\theta$ (°)	50,94	51,99	76,61	98,78	89,54	111,36

Tableau 2 : Positions des pics calculées pour  $K_{\alpha}$  de Cobalt ( $K_{\alpha} \lambda = 1.78897\text{\AA}$ )

La fraction volumique de l'austénite présente dans le 9Ni est déterminée en faisant le rapport de la somme des aires sous pics CFC à la somme des aires sous pic CC mesurées.

La connaissance précise des températures de transformations allotropiques est capitale pour établir les traitements thermiques. Les points Ac1 et Ac3 ont été déterminées à partir de mesures dilatométriques (dilatomètre L75 de marque Linseis) sur des échantillons (l=20mm ; Ø5mm) chauffés et refroidis à la vitesse de 2°C/min avec un maintien à la température d'austénitisation de 800°C pendant 30 min entre

les deux. L'Ac1 (637°C) est défini par le point de raccordement de l'arrondi avec la portion rectiligne de la courbe et l'Ac3 (741°C) est le point où la tangente est horizontale.

## 2.3 Essais mécaniques quasi-statique

Afin de concevoir des structures à grande échelle comme des réservoirs de GNL, il est nécessaire et important de connaître les propriétés mécaniques des matériaux dans les conditions de service [7].

Le comportement du matériau de l'étude a été caractérisé à travers des essais de dureté, des essais de flexion par choc et des essais de traction quasi-statiques.

La dureté a été mesurée par indentation Vickers avec une machine de micro-dureté. La dureté moyenne de 9Ni à l'état de réception dans les deux sens de prélèvements est de 249HV. La simulation de l'état trempé donne une dureté moyenne de 343HV.

Les essais de traction ont été menés à l'ambiante et à -196°C (température de l'azote liquide). La campagne d'essais comporte des essais sur grandes éprouvettes de même épaisseur que la tôle et des essais sur mini-éprouvettes et ceci afin de vérifier l'effet d'échelle. Ce point est important pour les essais de cyclage à basse température. Les essais quasi-statiques de traction sur grandes éprouvettes normalisées ont été réalisés à l'aide d'une machine servo-test hydraulique (INSTRON Type 8505) de capacité maximale de 1100 kN. Un montage spécifique permet de refroidir les grandes éprouvettes à -196°C et de garder cette température constante pendant l'essai.

Les essais mécaniques sur mini-éprouvettes à -196°C ont été réalisées à l'aide d'une machine servo-test hydraulique MTS 100kN équipée d'une cellule bases températures. Les mini-éprouvettes cylindriques ayant une longueur calibrée de 19 mm et un diamètre de 4 mm.

## 2.4 Essais mécaniques quasi-statique

L'objectif de travail est de vérifier les caractéristiques mécaniques à -196°C à l'état initial et après application d'un nombre de cycles couvrant 50 ans d'emploi des réservoirs de stockage. Chaque cycle correspond un remplissage-vidange du réservoir, la contrainte maximale de cyclage retenue est la contrainte nominale de calcul avec un  $R=0,1$ . Après cyclage, on réalise des essais de traction à basse température et on compare les résultats obtenus à ceux d'avant cyclage.

# 3 Résultats et discussion

## 3.1 Microstructure

L'intérêt fondamental du nickel (élément gammagène) est qu'il agrandit la région de phase  $\gamma$  dans le diagramme de phase Fe-C. Par conséquent, il permet de baisser la température d'austénitisation de l'acier, ce qui peut favoriser le raffinement de la structure.

L'examen métallographique du 9Ni à l'état de réception a été réalisé au microscope optique (figure 1). Les joints des anciens grains d'austénite sont clairement visibles. La Figure 1.a (sens T) et la figure 1.b (sens L) indiquent que les grains sont fins et équiaxes avec une taille moyenne environ égale à 10-15 $\mu\text{m}$ .

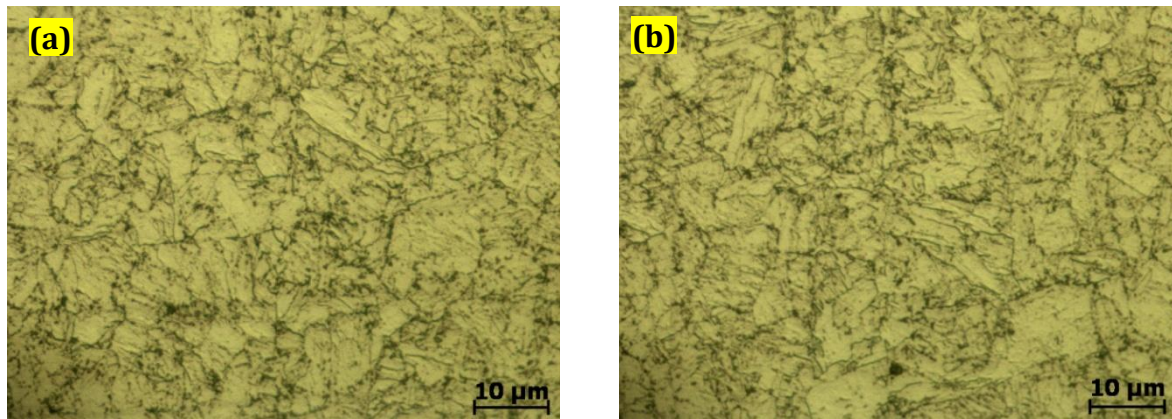


Figure 1 : Micrographie optique de 9Ni (a) sens T ; (b) sens L

### A l'état trempé :

La trempe à l'eau (refroidissement rapide) à partir de la température d'austénitisation donne naissance à une structure martensitique. En fait, les atomes de carbone n'ont pas le temps de migrer pour recomposer de la Perlite ou de la Cémentite. Ils sont pris au piège au sein du réseau cristallin. Lorsque la température passe en dessous d'un certain seuil " $M_s$ ", la martensite se crée. Au fur et à mesure de la baisse de température, le pourcentage martensite créé augmente pour atteindre 100% à une température " $M_f$ ". Le diagramme de Transformations en Refroidissement Continu TRC (figure 2), d'un 9Ni de composition {0,09% C ; 0,22% Si ; 0,68% Mn ; 9,02% Ni ; 0,008% P ; 0,009% S ; et 0,03% Al} [8] légèrement différente de la nôtre, donne une température de Martensite Finish " $M_f$ " d'environ 100°C.

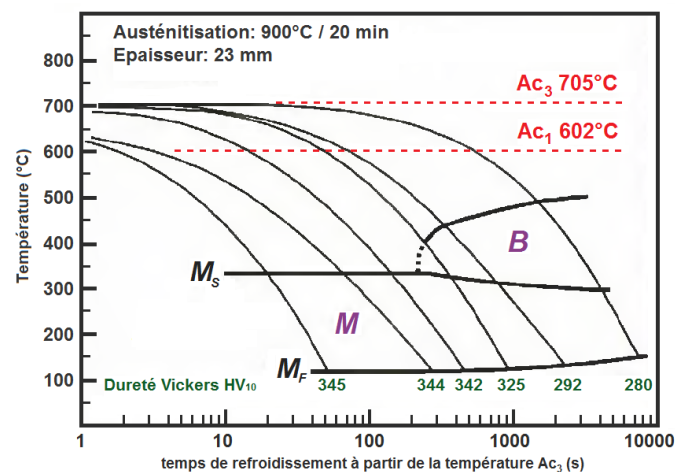


Figure 2 : Diagramme de Transformations en Refroidissement Continu TRC de 9Ni {0,09% C ; 0,22% Si ; 0,68% Mn ; 9,02% Ni ; 0,008% P ; 0,009% S ; et 0,03% Al} [8].

En raison de cette basse température  $M_f$ , une portion d'austénite non transformée en martensite au cours du refroidissement peut rester dans la microstructure à la température ambiante. Cette dernière est dite résiduelle ou bien retenue. La phase majoritaire composant cet acier 9Ni reste une matrice martensitique cristallographiquement équivalente à de la ferrite puisqu'elle contient un très faible taux de carbone (0,04% C dans la composition chimique). Les analyses DRX permettent de prouver la présence ou non de cette austénite résiduelle (figure 3).

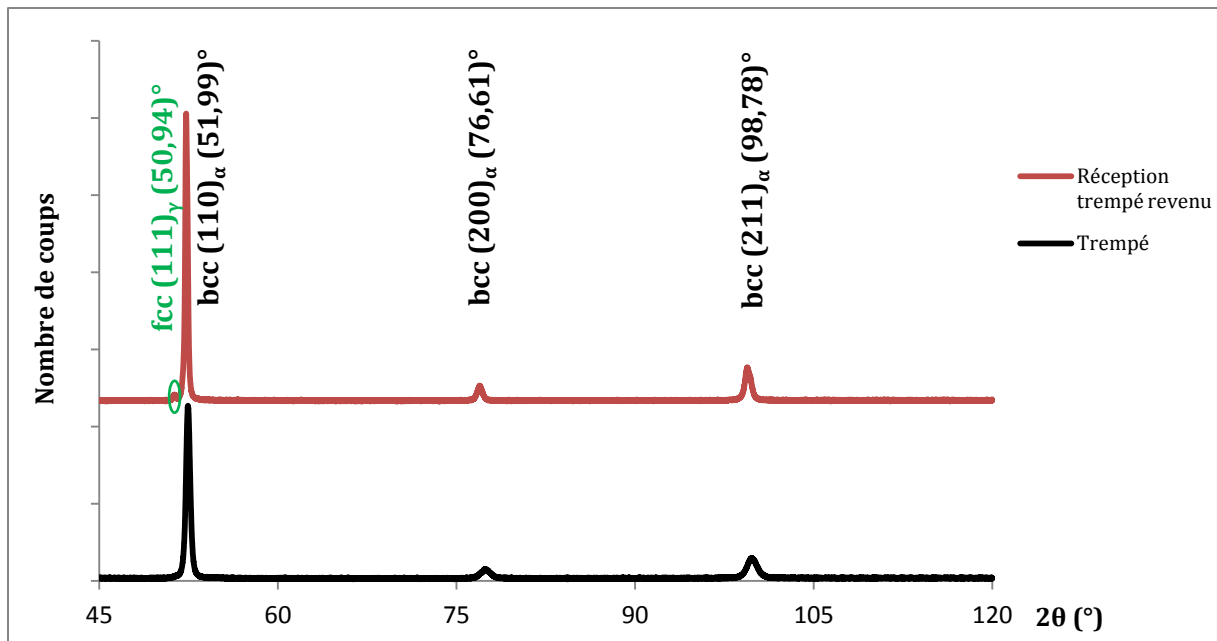


Figure 3 : Diagrammes de diffraction des rayons X "DRX" de 9Ni à l'état simulé de trempe (en noir) et à l'état de réception avec le traitement thermique industriel de trempe et revenu (en rouge).

On remarque sur le diagramme DRX de l'état simulé de trempe (figure 3), la présence visible et nette des pics relatifs à la phase  $\alpha$  et l'absence des pics relatifs à la phase  $\gamma$  (ou leur taille est minime). Visiblement aucune quantité d'austénite résiduelle n'est restée ou en quantité mesurable à la température ambiante. On peut affirmer que la microstructure de 9Ni après trempe est totalement martensitique. Elle se présente (figure 4.a) sous forme de lattes (qui en constituent les unités cristallographiques) dans les anciens grains austénitiques.

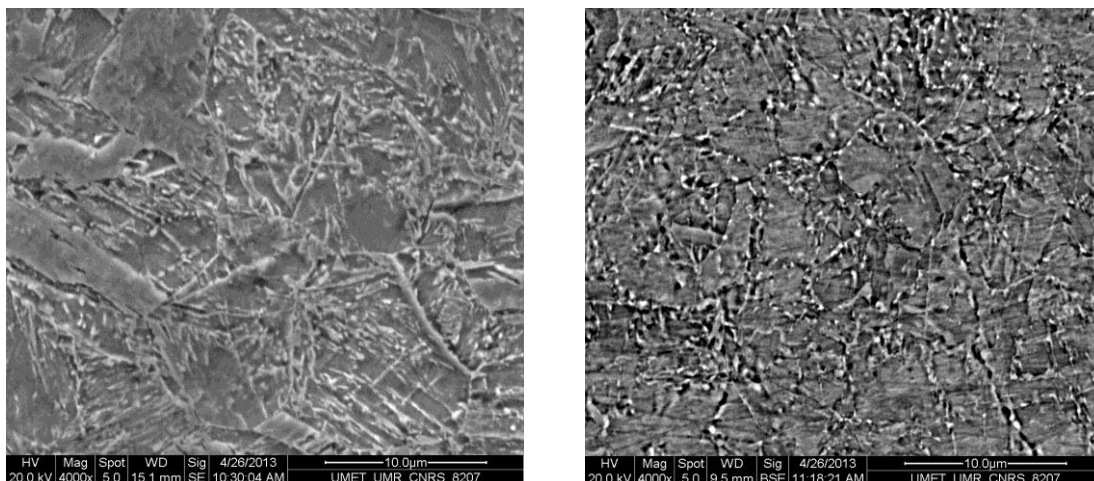


Figure 4 : Microscopie à balayage de 9Ni à l'état : (a) Trempe ; (b) trempé revenu

Quelques paquets de lattes sont contenus dans un seul ancien grain austénitique. Les anciens grains austénitiques sont équiaxes avec une taille moyenne environ égale à 10-15 $\mu$ m.

D'après Kim et al [9], La rupture de l'acier cryogénique 9Ni dans l'état brut de trempe se produit par le biais de clivage progressif principalement le long des plans de clivage (100) de la matrice martensitique (des plans de clivage potentiels traversent souvent un paquet avec la conséquence que la

taille du paquet de martensite agit comme la taille effective des grains pour la rupture de clivage transgranulaires). D'où la nécessité d'appliquer des traitements thermiques pour avoir la précipitation de l'austénite le long des limites de lattes de martensite qui va servir à interrompre les plans de clivage et donc d'affiner la taille des grains effective de l'alliage.

#### **A l'état trempé revenu :**

Pendant le traitement de revenu industriel de 30 minutes à 600°C, pour des raisons de minimisation de l'énergie libre du matériau, il y a une partition des éléments d'alliage. Cette partition est régie par la diffusion et aura lieu essentiellement dans la martensite, étant donné que cette dernière est d'un point de vue cristallographique très proche de la ferrite et qu'il est bien connu que les coefficients de diffusion sont bien plus importants dans la ferrite que dans l'austénite [10]. Les éléments gammagènes vont donc diffuser de la martensite vers l'austénite résiduelle s'il existe et aussi vers les joints d'anciens grains austénitiques et les joints des lattes martensitiques. Une fois l'enrichissement en éléments gammagènes est suffisamment important à ces interfaces, il y'aura germination d'une austénite riche en ces éléments et croissance de cette phase tant que la diffusion des éléments gammagènes vers cette phase nouvellement germée se poursuit.

De fins îlots (de taille submicronique et de forme allongée [11]) ou lentilles d'austénite de réversion riche en éléments comme le nickel, le manganèse, le carbone, le chrome et le silicium commencent à se former et à grossir au cours de traitement de revenu (constatée sur le 5,5Ni par Kim et al [9]). La quantité de l'austénite de réversion formée au bout de 30 minutes de ce traitement de revenu industriel est mesurée par DRX.

Le diffractogramme (figure 3) de l'état trempé revenu montre, par rapport à l'état simulé de trempe, la naissance d'un nouveau pic à 50,94° relatif au plan (111) de la phase  $\gamma$  (qui se chevauche avec le grand pic du plan (110)<sub>o</sub>). Cet acier avec son traitement thermique industriel de trempe et revenu ne contient dans sa microstructure qu'une faible quantité d'austénite de réversion de l'ordre de 1%. Cette quantité reste dans l'ordre connu par les différents chercheurs pour ce type de traitement thermique : 0,9 ± 0,5% mesurée en DRX par Zhang et al [12] et 1,6% mesurée en DRX par Jahrsengene et al [13]. Après un revenu à une température au-dessous de la température Ac1, la microstructure de l'acier à 9% Ni est typiquement martensitique (figure 4.b) avec une petite quantité d'austénite de réversion.

Il est connu que l'austénite de réversion est une phase molle par rapport à la martensite en lattes. Ce qui explique le passage de la dureté de 343HV à l'état trempé (que des lattes de martensite dans la microstructure) à une dureté moins élevée de 249HV à l'état trempé revenu.

### **3.2 Comportement mécanique quasi-statique**

Cette étude statique englobe des essais sur grandes éprouvettes de même épaisseur que la tôle et des essais sur mini-éprouvettes. La figure ci-dessous regroupe les courbes conventionnelles de traction à +20°C et à -196°C obtenues.

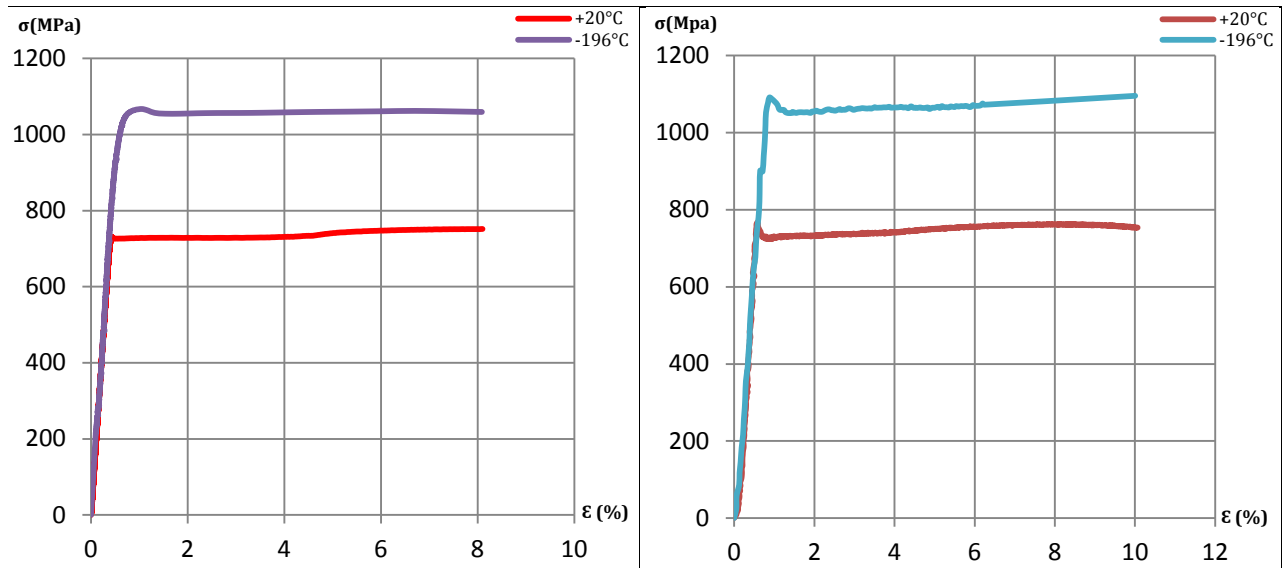


Figure 5 : Courbes conventionnelles de traction de 9Ni à +20°C et à -196°C  
(A) Grandes éprouvettes ; (B) Mini-éprouvettes

En comparant les courbes entre les deux températures, on constate une augmentation significative des propriétés mécaniques à basse température par rapport à la température ambiante. On trouve une augmentation de plus de 42% de la limite élastique et de la charge à la rupture de l'acier 9Ni entre l'ambiante et -196°C pour les deux tailles des éprouvettes.

Les valeurs tirées de ces courbes (figures 5) concernant le 9Ni ainsi que les mesures réelles effectuées directement sur les grandes éprouvettes rompues sont données dans le tableau 3.

	T (°C)	R <sub>e</sub> (MPa)	R <sub>m</sub> (MPa)	A%	Z%		
<b>EN 10028-4</b>	<b>+20°C</b>	<b>≥585</b>	<b>680 – 820</b>	<b>≥18</b>	–		
Grandes éprouvettes normalisées	+20	730	751	23	66		
	-196	1053	1068	17	53		
		↗	≈ 44%	↗	≈ 42%	↘	≈ 26%
Mini- éprouvettes	+20	738	772	–	–		
	-196	1055	1112	–	–		
		↗	≈ 43%	↗	≈ 44%	–	–

Tableau 3 : Propriétés mécaniques de traction à +20°C et à -196°C à partir des grandes et mini-éprouvettes

La résistance à la traction de 9Ni à la température de l'azote liquide (-196°C) montre une valeur plus élevée que celle à température ambiante. Le taux de consolidation est un peu plus élevé à température cryogénique qu'à l'ambiante. Il est connu que les dislocations sont moins mobiles lorsque la température diminue. Toutefois, d'autres mécanismes de durcissement sont envisageables (transformation de l'austénite de réversion par exemple). Le durcissement se traduit également par la diminution de la striction de 19% par rapport à la température ambiante.

Au cours de la déformation à froid, l'alliage s'écroute, ce qui produit un durcissement et une baisse de la ductilité résiduelle. Plus l'écroutissage est important, plus l'énergie nécessaire à la déformation est grande.

La Figure 6 montre la morphologie des faciès de rupture après essai de traction sur grandes et mini-éprouvettes.



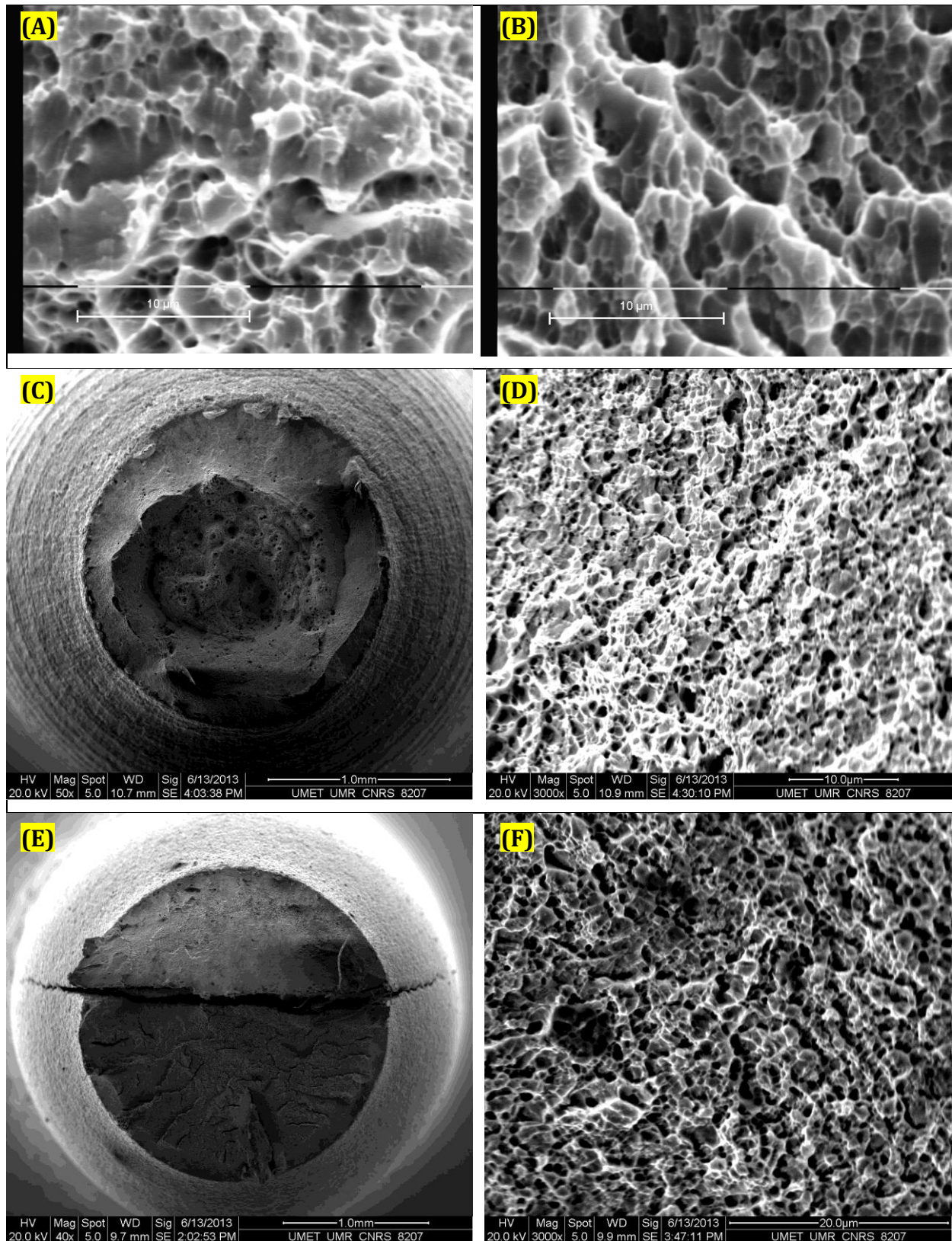


Figure 6 : Microscopie à balayage de faciès de rupture de 9Ni

Grandes éprouvettes : (A) rompue par traction à +20°C ; (B) rompue par traction à -196°C  
 Mini-éprouvette : (C, D) rompue par traction à +20°C ; (E, F) rompue par traction à -196°C

D'après les observations au MEB (figure 6.A et 6.B), il est constaté que le 9Ni est encore ductile à la température de l'azote liquide (-196°C) qui est toujours inférieure à la température du GNL (-163°C). Pour les mini-éprouvettes rompues à l'ambiante, on distingue macroscopiquement (figure 6.C) deux parties :

- Une partie centrale avec une surface normale à l'axe de traction, où l'existence de nombreux « trous » est observée.
- Une lèvre de cisaillement, sous forme de cône et cratère, formée en raison de la propagation rapide jusqu'à la rupture finale. Ces lèvres externes sont plus lisses

Microscopiquement (figure 6.D) sur la totalité des surfaces fracturées, nous observons la présence des cupules confirmant une rupture ductile de l'acier 9Ni.

Ces observations s'expliquent par le fait qu'au cours de la déformation en traction, il y a la formation de petits trous dans des endroits isolés (inclusions...), là où la compatibilité entre la déformation globale et la déformation locale est difficile à assurer [14].

Au cours de la striction et sous l'action de la triaxialité des contraintes, les cavités augmentent rapidement de volume au centre de la zone de striction et commencent à se réunir. Cette fissure interne produit une concentration de contrainte et de déformation et la naissance de bandes de cisaillement intense à l'extrémité de la fissure. Dans ces bandes inclinées de 30 à 45° par rapport à l'axe de traction, il se forme des couches de cavités et la fissure s'étend-en suivant ces couches. La trajectoire de la fissure reste macroscopiquement normale à l'axe de traction, mais à une échelle plus fine elle est constituée de zones inclinées à 30-45° alternativement dans un sens et dans l'autre. Les lèvres de cisaillement des cassures en coupelle (cône et cratère) résultent de la propagation rapide d'une zone de décohésion par cisaillement jusqu'à la surface extérieure de l'éprouvette.

Pour la rupture à -196°C, la mini-éprouvette (figure 6.E) s'est fissurée longitudinalement dans la direction de la contrainte principale : la fissure part du milieu de la mini-éprouvette dans le plan de la plus grande striction. Elle se propage dans le sens longitudinal. Sur la moitié inférieure dans cette vue, la formation de plusieurs fissures secondaires radiales : lorsque des forces tangentielles prennent naissance pendant la striction, la mini-éprouvette cylindrique se crevasse radialement dans le sens axial. On constate aussi que la partie avec lèvre de cisaillement observée dans la fracture à température ambiante est beaucoup moins prononcée. Ce phénomène est dû au durcissement de l'acier 9Ni à basse température, et peut être associé à la diminution du coefficient de striction  $Z$ . Nous observons la présence de cupules sur tout le faciès de rupture (figure 6.F) ce qui prouve que l'on a affaire à une rupture ductile à basse température.

Ces effets du froid sur le comportement sont observés de la même manière sur les grandes éprouvettes normalisées de même épaisseur initiale que la tôle que sur des mini-éprouvettes. Ceci confirme le choix des mini-éprouvettes pour la suite de l'étude à basse température, surtout pour les essais de cyclage ou de fatigue pour lesquels ce choix présente un intérêt expérimental indéniable.

### 3.3 Effet de cyclage

Cette partie aborde l'étude expérimentale de l'influence des cyclages mécaniques sur les propriétés mécaniques de l'acier 9Ni. Le matériau sera testé en fatigue pour des nombres de cycles limités, représentatifs des nombres estimés de remplissage-vidange des réservoirs de stockage. Les essais de fatigue sont réalisés à  $R=0,1$ , la contrainte maximale est prise égale à la contrainte nominale de calcul. Vu que dans les plages de contraintes choisies, le nombre de cycles significatif est relativement faible, nous l'avons doublé pour l'acier 9Ni afin de vérifier si on affecte ou pas les propriétés de cet acier.

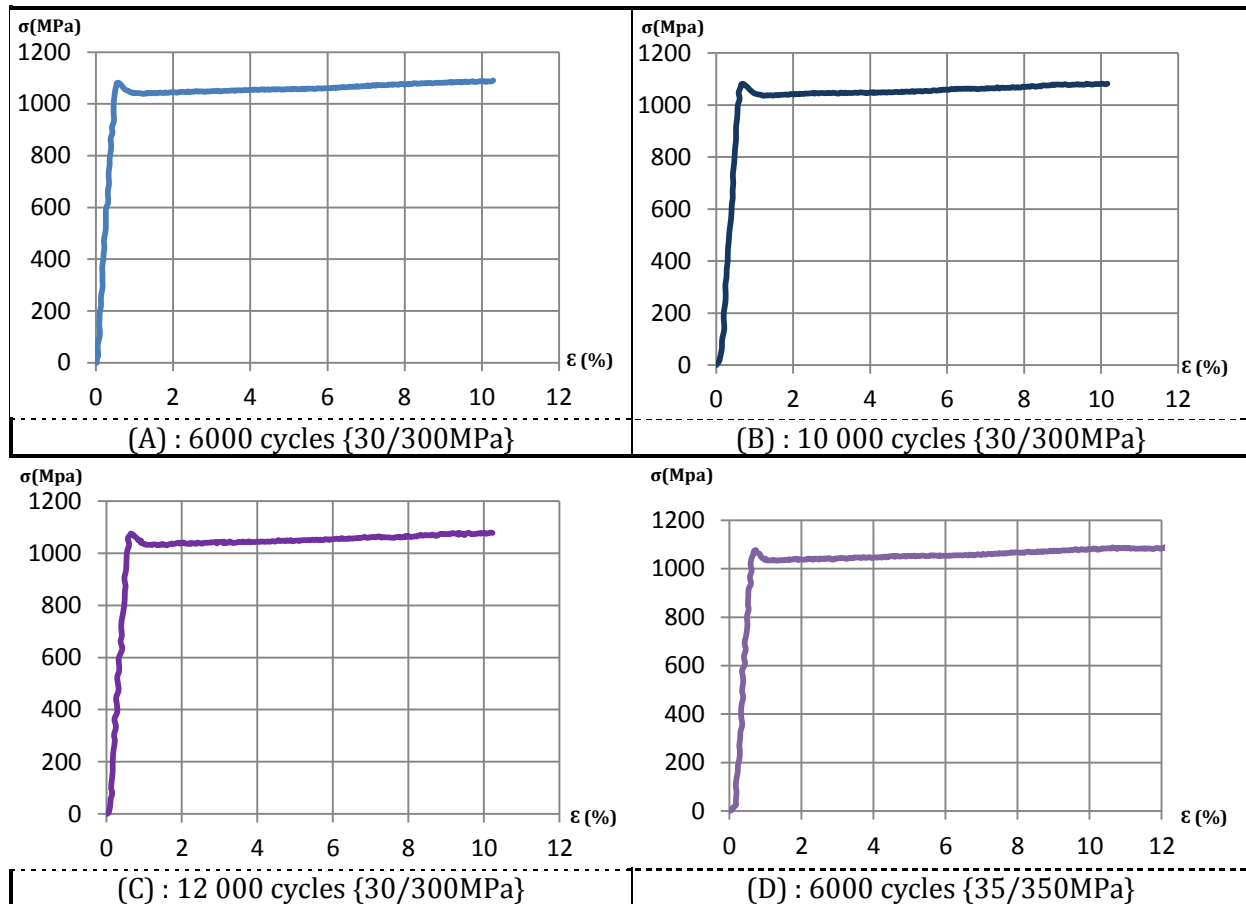


Figure 7 : Courbes conventionnelles de traction de 9Ni à  $-196^{\circ}\text{C}$  après cyclages à  $-196^{\circ}\text{C}$   
 Entre 30/300MPa : (A) 6000 cycles ; (B) 10 000 cycles ; (C) 12 000 cycles ;  
 Entre 35/350MPa : (D) 6000 cycles

On ne constate pas d'influence des 6000, 10 000 et 12 000 cycles sur le comportement en traction du 9%Ni. Les courbes conventionnelles de traction avant et après cycles coïncident parfaitement.

	A zéro cycle	30/300MPa						35/350MPa	
		Après 6000 cycles		Après 10000 cycles		Après 12000 cycles		Après 6000 cycles	
Limite élastique (MPa)	1055	1047	-0,8%	1046	-0,9%	1043	-1,1%	1044	-1%
Charge à la rupture (MPa)	1112	1099	-1,2%	1095	-1,5%	1094	-1,6%	1093	-1,7%

Tableau 4 : Effet de cyclage sur les propriétés mécaniques de traction des mini-éprouvettes à  $-196^{\circ}\text{C}$

On ne relève pas de différence entre les limites élastiques, les charges à la rupture, les allongements pour cent et les coefficients de striction. L'écart maximal est de 1,1% sur la limite élastique et de 1,6% sur la charge à la rupture (tableau 4). Ces valeurs restent dans le domaine des erreurs expérimentales et ne révèlent pas de baisse des propriétés mécaniques suite aux différents cyclages.

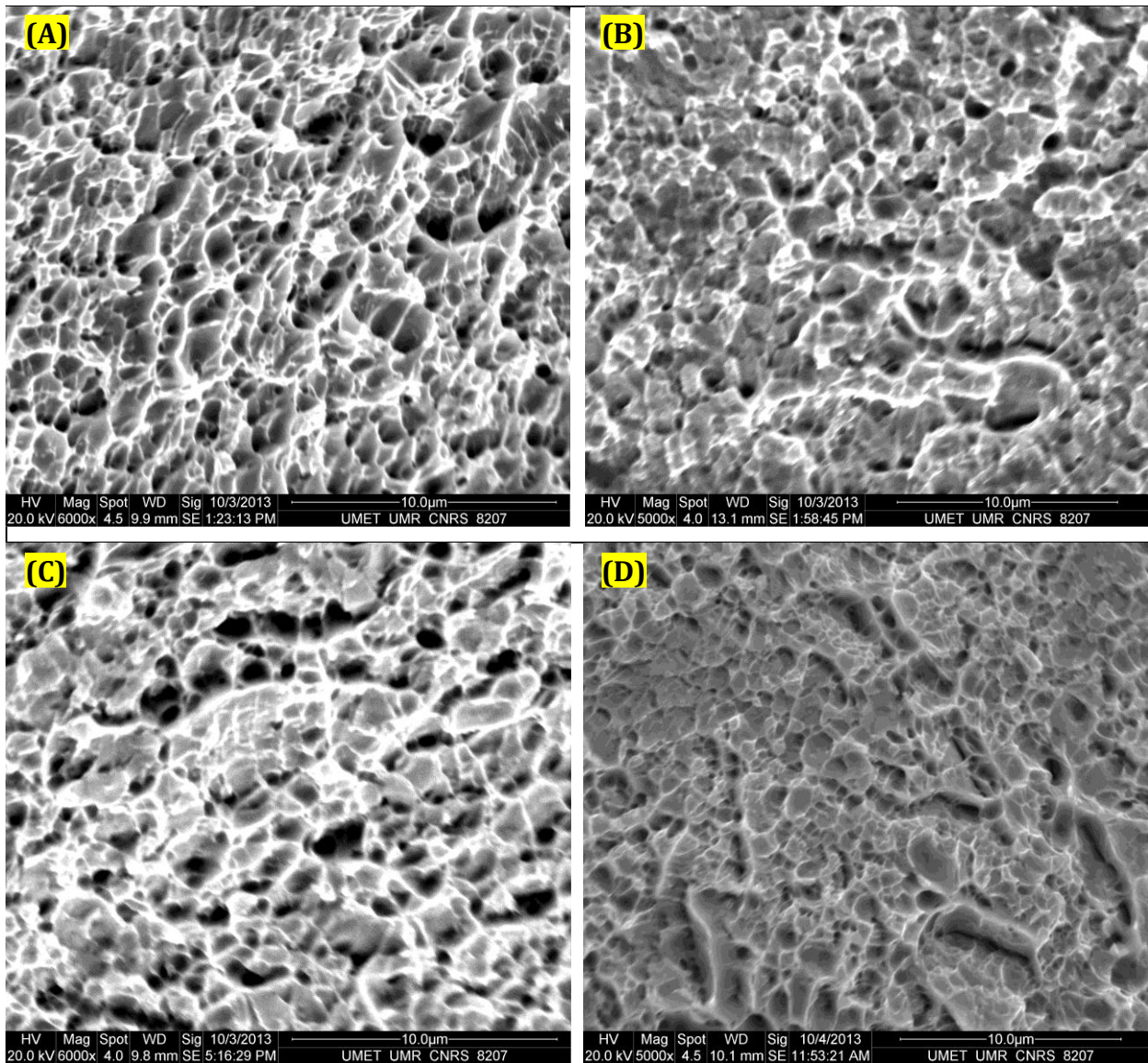


Figure 8 : Microscopie à balayage de faciès de rupture de mini-éprouvettes 9Ni cyclées et rompues à -196°C

Entre 30/300MPa : (A) 6000 cycles ; (B) 10 000 cycles ; (C) 12 000 cycles ;  
Entre 35/350MPa : (D) 6000 cycles

Les observations au MEB des faciès de rupture pour les différentes configurations sont caractéristiques d'un comportement ductile. A ce stade on peut conclure que les 6000, 10 000 et 12 000 cycles entre 30 et 300MPa et les 6000 cycles entre 35 et 350MPa n'affectent pas le comportement mécanique ni les propriétés de l'acier à 9% Ni.

## Conclusion

Une première partie concerne le comportement quasi statique de l'acier à 9% de nickel à la température ambiante et à -196°C. Cette étude est menée respectivement sur des grandes éprouvettes d'épaisseur des tôles et sur des mini-éprouvettes. Nous avons montré l'absence d'effet d'échelle entre les grandes et mini-éprouvettes (résultats utiles pour les essais de fatigue à basse température et fatigue). Nous avons vérifié et quantifié l'amélioration des caractéristiques mécaniques de l'acier à 9Ni à basse température ainsi que son comportement ductile à -196°C. Cette ductilité est vérifiée aussi

par des essais de flexion par choc et par des observations au MEB. Des essais Small Punch Test (SPT) complémentaires ont confirmés ces résultats [15].

Une deuxième partie porte sur l'influence du cyclage mécanique sur les propriétés de métal de base. L'objectif étant de vérifier s'il y'a dégradation ou pas des propriétés mécaniques après application d'un nombre de cycles représentant 50 ans de service des réservoirs de stockage de GNL. Ce nombre de cycles est estimé à 6000 cycles pour les parois des grands réservoirs en 9Ni. La contrainte maximale de cyclage est prise égale à la contrainte nominale de calcul avec  $R=0,1$ . Les essais sont réalisés à 1Hz, la température d'essais est l'ambiante. Les résultats obtenus avec et sans cyclage sont comparés entre eux. L'écart maximal observé est de 0,8 % sur la limite élastique et de 1,2% sur la charge à la rupture. On conclut que ces essais ne révèlent pas de dégradation des propriétés mécaniques après cyclage.

Pour se rapprocher plus des conditions réelles, où le réservoir en acier à 9% Ni n'est jamais complètement vide et où la température est proche de  $-163^{\circ}\text{C}$ , nous avons réalisé des essais de cyclage à basse température dans les mêmes conditions d'essais d'avant. Pour compléter l'effet du nombre de cycles (qui semble relativement faible), en plus des 6000 cycles, nous avons testé 10000 cycles et 12000 cycles. Dans les mêmes conditions de comparaison, on constate que le plus grand écart sur la limite élastique est 1,1% pour 12000 cycles, il est de 1,6% pour la charge à la rupture pour le même nombre de cycles. Une série de mini-éprouvettes à été testé à 6000 cycles avec une contrainte maximale de 350 MPa et  $R=0,1$ . L'écart maximal constaté est 1,7% sur la charge à la rupture.

Enfin sur le plan normatif, cette étude a montré l'amélioration importante des caractéristiques mécaniques à basse température et l'absence de dégradation de ces dernières à ces niveaux de contraintes de l'étude et pour ces faibles nombres de cycles.

## Remerciements

Les auteurs tiennent à remercier les partenaires industriels d'INNOCOLD : « Dunkerque LNG ; Entrepouse Contracting ; Air Liquide Welding ; Fluxys ; UIMM Côte d'Opale ; Europipe ; BSL ; TS LNG ; Sofregaz » et académiques « ULCO et ARMINES » pour leurs contributions à ce travail.

## Références

- [1] S. Hany, B. Duponchel, C. Poupin, Microstructural and mechanical properties of 9%Ni steels used for the construction of LNG storage tanks, *Advanced Materials Research*, 936 : pp 1953-1957, 2014.
- [2] Gaz naturel liquéfié (GNL). [En ligne] Available at: <http://www.connaissancedesenergies.org/fiche-pedagogique/gaz-naturel-liquefie-gnl> [Accès le 2016].
- [3] DT 97 : Guide d'inspection et de maintenance des réservoirs cryogéniques, Union Française des Industries Pétrolières (UFIP), 2012.
- [4] W. Johnson, *Impact strength of materials*, London: Edward Arnold, 1972.
- [5] J. Jang, J. Ju, B. Lee, Effects of microstructural change on fracture characteristics in coarsegrained heat-affected zones of QLT-processed 9% Ni steel, *Materials Science and Engineering*, 340 : pp 68-79, 2003.
- [6] S. Hany, *Etudes structurales de l'acier cryogénique 9% Ni utilisant les méthodes avancées sur les grands instruments*, Thèse, Université du Littoral Côte d'Opale, 2015.

- [7] H-S. Shin, H-M. Lee, M-S. Kim, Impact tensile behaviors of 9% nickel steel at low temperature, *International Journal of Impact Engineering*, 24(6-7): pp 571-581, 2000.
- [8] Guide to the welding and weldability of cryogenic steels, International Institute of Welding, 1987.
- [9] J. K. Kim, C.K. Syn, and J.W. Morris, Jr., Microstructural Sources of Toughness in QLT-Treated 5.5Ni Cryogenic Steel, *Metallurgical Transactions A*, 14A: pp. 93–103, 1983.
- [10] L. Couturier, Caractérisation des évolutions microstructurales de l'acier inoxydable martensitique à durcissement structural 15-5PH au cours du vieillissement thermique, thèse, Université de Grenoble, 2014.
- [11] C. K. Syn, S. Jin, J. W. Morris, Cryogenic Fracture Toughness of 9Ni Steel Enhanced Through Grain Refinement, *Metallurgical Transactions A*, 7A: pp. 1827-1832, 1976.
- [12] J-M. Zhang, H. Li, F. Yang, Effect of Heat Treatment Process on Mechanical Properties and Microstructure of a 9% Ni Steel for Large LNG Storage Tanks, *Journal of Materials Engineering and Performance*, 22(12): pp. 3867-3871, 2013.
- [13] G. Jahrsengene, M. Wenn, M. Karlsen, EBSD Quantification of Retained Austenite in 9% Ni Steel Related to Thermal Treatments, The Twenty-fifth International Offshore and Polar Engineering Conference ISOPE, 21-26 June, Kona, Hawaii, USA, 2015.
- [14] H. Guy, H. Dietrich, *De Ferri Metallographia V*, Verlag Stahleisen m. b. H., 1979.
- [15] H. Kacem, Influence des chargements cycliques sur les propriétés mécaniques des aciers à 9% de nickel et 316L dans des conditions cryogéniques. Thèse, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Douai | Université de Lille 1, 2016.