# Morphologie et déformation à chaud de microstructures lamellaires dans les alliages de zirconium et de titane

Nicolas Vanderesse

▶ **To cite this version:**

Nicolas Vanderesse. Morphologie et déformation à chaud de microstructures lamellaires dans les alliages de zirconium et de titane. Matériaux. Ecole Nationale Supérieure des Mines de Saint-Etienne, 2008. Français. NNT : . tel-00356622

**HAL Id: tel-00356622**

**https://theses.hal.science/tel-00356622**

Submitted on 28 Jan 2009

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

Ecole Nationale Supérieure des Mines
SAINT-ETIENNE

N° d'ordre : 483 SGM

**THESE**
**présentée par**

*Nicolas Vanderesse*

Pour obtenir le grade de Docteur
de l'Ecole Nationale Supérieure des Mines de Saint-Etienne

Spécialité : Sciences et Génie des Matériaux

# Morphologie et déformation à chaud de microstructures lamellaires dans les alliages de zirconium et de titane

Soutenue à Saint-Étienne le 13 juin 2008

Membres du jury

| | | |
|---|---|---|
| **Président** : | M. Dominique JEULIN | Directeur de recherche – ENSM Paris |
| **Rapporteurs** : | M. László TÓTH | Professeur – Université de Metz |
| | M. Jean-Jacques BLANDIN | Directeur de Recherche – INP Grenoble |
| **Examinateurs** : | M. Pierre BARBERIS | Ingénieur de recherche – Centre de recherche CEZUS |
| | M. Jérôme CRÉPIN | Ingénieur de recherche – Ecole Polytechnique |
| | M. Éric MAIRE | Chargé de recherche – INSA de Lyon |
| **Directeurs de thèse** : | M. Michel DARRIEULAT | Ingénieur Général des Mines – ENSM Saint-Étienne |
| | M. Frank MONTHEILLET | Directeur de recherche – ENSM Saint-Étienne |

| ◘ **Spécialités doctorales :** | **Responsables :** |
|---|---|
| **SCIENCES ET GENIE DES MATERIAUX** | **J. DRIVER** Directeur de recherche – Centre SMS |
| **MECANIQUE ET INGENIERIE** | **A. VAUTRIN** Professeur – Centre SMS |
| **GENIE DES PROCEDES** | **G. THOMAS** Professeur – Centre SPIN |
| **SCIENCES DE LA TERRE** | **B. GUY** Maitre de recherche – Centre SPIN |
| **SCIENCES ET GENIE DE L'ENVIRONNEMENT** | **J. BOURGOIS** Professeur – Centre SITE |
| **MATHEMATIQUES APPLIQUEES** | **E. TOUBOUL** Ingénieur – Centre G2I |
| **INFORMATIQUE** | **O. BOISSIER** Professeur – Centre G2I |
| **IMAGE, VISION, SIGNAL** | **JC. PINOLI** Professeur – Centre CIS |
| **GENIE INDUSTRIEL** | **P. BURLAT** Professeur – Centre G2I |
| **MICROELECTRONIQUE** | **Ph. COLLOT** Professeur – Centre CMP |

◘ **Enseignants-chercheurs et chercheurs autorisés à diriger des thèses de doctorat** (titulaires d'un doctorat d'Etat ou d'une HDR)

| | | | | |
|---|---|---|---|---|
| AVRIL | Stéphane | MA | Mécanique & Ingénierie | CIS |
| BATTON-HUBERT | Mireille | MA | Sciences & Génie de l'Environnement | SITE |
| BENABEN | Patrick | PR 2 | Sciences & Génie des Matériaux | SMS |
| BERNACHE-ASSOLANT | Didier | PR 1 | Génie des Procédés | CIS |
| BIGOT | Jean-Pierre | MR | Génie des Procédés | SPIN |
| BILAL | Essaïd | DR | Sciences de la Terre | SPIN |
| BOISSIER | Olivier | PR 2 | Informatique | G2I |
| BOUCHER | Xavier | MA | Génie Industriel | G2I |
| BOUDAREL | Marie-Reine | MA | Sciences de l'inform. & com. | DF |
| BOURGOIS | Jacques | PR 1 | Sciences & Génie de l'Environnement | SITE |
| BRODHAG | Christian | MR | Sciences & Génie de l'Environnement | SITE |
| BURLAT | Patrick | PR 2 | Génie industriel | G2I |
| CARRARO | Laurent | PR 1 | Mathématiques Appliquées | G2I |
| COLLOT | Philippe | PR 1 | Microélectronique | CMP |
| COURNIL | Michel | PR 1 | Génie des Procédés | SPIN |
| DAUZERE-PERES | Stéphane | PR 1 | Génie industriel | CMP |
| DARRIEULAT | Michel | ICM | Sciences & Génie des Matériaux | SMS |
| DECHOMETS | Roland | PR 1 | Sciences & Génie de l'Environnement | SITE |
| DESRAYAUD | Christophe | MA | Mécanique & Ingénierie | SMS |
| DELAFOSSE | David | PR 2 | Sciences & Génie des Matériaux | SMS |
| DOLGUI | Alexandre | PR 1 | Génie Industriel | G2I |
| DRAPIER | Sylvain | PR 2 | Mécanique & Ingénierie | CIS |
| DRIVER | Julian | DR | Sciences & Génie des Matériaux | SMS |
| FOREST | Bernard | PR 1 | Sciences & Génie des Matériaux | CIS |
| FORMISYN | Pascal | PR 1 | Sciences & Génie de l'Environnement | SITE |
| FORTUNIER | Roland | PR 1 | Sciences & Génie des Matériaux | CMP |
| FRACZKIEWICZ | Anna | MR | Sciences & Génie des Matériaux | SMS |
| GARCIA | Daniel | CR | Génie des Procédés | SPIN |
| GIRARDOT | Jean-Jacques | MR | Informatique | G2I |
| GOEURIOT | Dominique | MR | Sciences & Génie des Matériaux | SMS |
| GOEURIOT | Patrice | MR | Sciences & Génie des Matériaux | SMS |
| GRAILLOT | Didier | DR | Sciences & Génie de l'Environnement | SITE |
| GROSSEAU | Philippe | MR | Génie des Procédés | SPIN |
| GRUY | Frédéric | MR | Génie des Procédés | SPIN |
| GUILHOT | Bernard | DR | Génie des Procédés | CIS |
| GUY | Bernard | MR | Sciences de la Terre | SPIN |
| GUYONNET | René | DR | Génie des Procédés | SPIN |
| HERRI | Jean-Michel | PR 2 | Génie des Procédés | SPIN |
| KLÖCKER | Helmut | MR | Sciences & Génie des Matériaux | SMS |
| LAFOREST | Valérie | CR | Sciences & Génie de l'Environnement | SITE |
| LI | Jean-Michel | EC (CCI MP) | Microélectronique | CMP |
| LONDICHE | Henry | MR | Sciences & Génie de l'Environnement | SITE |
| MOLIMARD | Jérôme | MA | Sciences & Génie des Matériaux | SMS |
| MONTHEILLET | Frank | DR 1 CNRS | Sciences & Génie des Matériaux | SMS |
| PERIER-CAMBY | Laurent | PR1 | Génie des Procédés | SPIN |
| PIJOLAT | Christophe | PR 1 | Génie des Procédés | SPIN |
| PIJOLAT | Michèle | PR 1 | Génie des Procédés | SPIN |
| PINOLI | Jean-Charles | PR 1 | Image, Vision, Signal | CIS |
| STOLARZ | Jacques | CR | Sciences & Génie des Matériaux | SMS |
| SZAFNICKI | Konrad | CR | Sciences de la Terre | SITE |
| THOMAS | Gérard | PR 1 | Génie des Procédés | SPIN |
| VALDIVIESO | François | MA | Sciences & Génie des Matériaux | SMS |
| VAUTRIN | Alain | PR 1 | Mécanique & Ingénierie | SMS |
| VIRICELLE | Jean-Paul | MR | Génie des procédés | SPIN |
| WOLSKI | Krzysztof | CR | Sciences & Génie des Matériaux | SMS |
| XIE | Xiaolan | PR 1 | Génie industriel | CIS |

**Glossaire :**

PR 1 Professeur 1ère catégorie
PR 2 Professeur 2ème catégorie
MA(MDC) Maître assistant
DR (DR1) Directeur de recherche
Ing. Ingénieur
MR(DR2) Maître de recherche
CR Chargé de recherche
EC Enseignant-chercheur
ICM Ingénieur en chef des mines

**Centres :**

SMS Sciences des Matériaux et des Structures
SPIN Sciences des Processus Industriels et Naturels
SITE Sciences Information et Technologies pour l'Environnement
G2I Génie Industriel et Informatique
CMP Centre de Microélectronique de Provence
CIS Centre Ingénierie et Santé

Ecole Nationale Supérieure des Mines
SAINT-ETIENNE

N° d'ordre : 483 SGM

**THESE**
**présentée par**

*Nicolas Vanderesse*

Pour obtenir le grade de Docteur
de l'Ecole Nationale Supérieure des Mines de Saint-Etienne

Spécialité : Sciences et Génie des Matériaux

# Morphologie et déformation à chaud de microstructures lamellaires dans les alliages de zirconium et de titane

Soutenue à Saint-Étienne le 13 juin 2008

Membres du jury

| | | |
|---|---|---|
| **Président** : | M. Dominique JEULIN | Directeur de recherche – ENSM Paris |
| **Rapporteurs** : | M. László TÓTH | Professeur – Université de Metz |
| | M. Jean-Jacques BLANDIN | Directeur de Recherche – INP Grenoble |
| **Examinateurs** : | M. Pierre BARBERIS | Ingénieur de recherche – Centre de recherche CEZUS |
| | M. Jérôme CRÉPIN | Ingénieur de recherche – Ecole Polytechnique |
| | M. Éric MAIRE | Chargé de recherche – INSA de Lyon |
| **Directeurs de thèse** : | M. Michel DARRIEULAT | Ingénieur Général des Mines – ENSM Saint-Étienne |
| | M. Frank MONTHEILLET | Directeur de recherche – ENSM Saint-Étienne |

# Remerciements

A la fin de ces trois années de travaux, il me reste le plus agréable à faire : remercier les personnes qui ont contribué à m'indiquer les questions essentielles, les directions à prendre, éventuellement les destinations à atteindre, mais aussi celles que j'ai eu le plaisir de côtoyer quotidiennement.

Je souhaite tout d'abord exprimer ma reconnaissance à Michel Darrieulat et Frank Montheillet, qui ont bien voulu m'accorder leur confiance pour effectuer ces travaux. Ils se sont montrés, chacun à sa manière, soucieux du bon déroulement de ceux-ci et ont toujours été disponibles pour en discuter. Sans leurs encouragements, ces travaux auraient été sans doute moins aboutis.

Je tiens également à remercier Jean-Jacques Blandin, de l'INPG, et László Tóth, de l'Université de Metz, qui ont accepté d'être les rapporteurs de cette thèse, ainsi que les autres membres du jury, Pierre Barberis, de la société AREVA, Jérôme Crépin, de l'Ecole Polytechnique, Eric Maire, de l'INSA de Lyon, et Dominique Jeulin, de l'Ecole des Mines de Paris.

Pierre Barberis s'est intéressé à ces travaux tout au long de leur déroulement. Qu'il trouve mes sincères remerciements pour ses conseils avisés, ses appréciations et son accueil chaleureux lors de nos déplacements au centre de recherche CEZUS.

Dominique Jeulin a bien voulu assurer la présidence du jury ; je l'en remercie. Je lui dois aussi, ainsi qu'à Maxime Moreaud, une contribution essentielle à l'étude tridimensionnelle de la microstructure lamellaire de TA6V.

Cette étude a débuté par une série d'expériences à l'ESRF. Eric Maire m'a grandement aidé à la mettre en place. Il s'est montré d'emblée disponible et impliqué, et a largement contribué à sa réussite. Aurélie Colin, Andrew King, Olivier Caty, Wolfgang Ludwig, et Vincent Carmona ont également pris part à ces expériences et je les en remercie vivement.

Parmi toutes les personnes avec j'ai eu l'occasion de discuter de manière informelle au cours de ces années, je tiens à adresser des remerciements particuliers à Christophe Desrayaud et Jean Le Coze, le premier pour ses conseils en essais mécaniques et éléments finis et son idée de channeldie à parois mobiles, le second pour les discussions stimulantes autour de l'essai Jominy et de l'éventuelle structure lamellaire du hafnium. Je profite par ailleurs de cet espace de liberté pour remercier Christophe de m'avoir si souvent emmené en voiture à Lyon. En retour, j'espère lui avoir fait découvrir certains horizons musicaux qu'il continuera d'explorer.

Une grande partie de ces travaux repose sur des tests mécaniques. D'aucuns furent laborieux et rebutants, mais la patience, la bonne humeur, et, faut-il le mentionner, la compétence, de notre spécialiste Séverine Girard-Insardi m'ont rendu légère chacune des journées passées au laboratoire d'essais mécaniques. Et je m'en voudrais de ne pas associer à ces remerciements Claire Lettori, non seulement pour son aide précieuse lors des essais Jominy, mais aussi pour sa gentillesse et sa prévenance.

J'adresse aussi mes remerciements à Paul Jouffrey pour son accueil cordial et ses conseils en microscopie électronique, de même qu'à Claire Maurice pour m'avoir fait découvrir, avec patience, les subtilités de l'utilisation des MEB et de l'EBSD.

Bien entendu, je ne saurais oublier de remercier Gilles Blanc, chef du laboratoire de métallographie, dont le savoir-faire m'a tiré d'embarras à plus d'une reprise. J'ai beaucoup appris de ses conseils.

J'ai également eu la chance de travailler avec Martial Douet à la mise en place d'une procédure d'essais Jominy. Je dois reconnaître que sans son intervention et ses innombrables compétences, cette réalisation serait restée à l'état de projet - et je serais passé à côté de discussions intéressantes. Par ailleurs, je ne le remercierai jamais assez pour l'admirable et massif cadeau qui orne désormais mon bureau.

Forgeron sérieux, compétent, disponible, Claude Varillon a su mettre en forme ce matériau inhabituel qu'est le hafnium pour les besoins d'une expérience incertaine. Je lui dois encore de nombreux conseils sur la conduite des essais Jominy et la mise en température de pièces massives. Je le remercie donc chaleureusement, de même que les techniciens de l'atelier, pour leur accueil et la qualité de leur travail en particulier Pierre Félix, André Gault, Albert Boyer et Marc Robert.

Je terminerai en saluant les doctorants et techniciens qui m'ont accompagné au cours de ces années et avec qui j'ai passé de bons moments, en particulier Laurent, Matthieu, Meï, Aurélie, Julien, Sanaa, Nathalie, Mialy, Jean-Philippe, Delphine, Maryline, Sylvain, Maud, Pierre-Yvan, Bertrand, Tiphaine, Nicolas, Matthieu Stein, Willy, Antoine, Annie, Max, Yoann, Jean-Michel...

*Si j'étais médecin, je prescrirais des vacances à tous les patients qui considèrent que leur travail est important.*

*Bertrand Russell*

# Sommaire

**Table des figures** **xiii**

**Introduction** **1**

**Contextes scientifique et industriel** **3**

**1 Etude bibliographique** **9**

1.1 Eléments d'alliage et domaines de phases . . . . . 9

1.2 Transformation bêta → alpha . . . . . 10

1.2.1 Structure hexagonale . . . . . 10

1.2.2 Mécanismes . . . . . 12

1.2.3 Aspect cristallographique . . . . . 14

1.2.4 Aspect morphologique . . . . . 18

1.2.5 Résumé . . . . . 23

1.3 Mécanismes de déformation . . . . . 23

1.3.1 Systèmes de glissement . . . . . 23

1.3.2 Maclage . . . . . 27

1.3.3 Résumé . . . . . 31

1.4 Globulisation des microstructures lamellaires . . . . . 31

1.4.1 Description générale . . . . . 31

1.4.2 Hétérogénéités de déformation . . . . . 35

1.4.3 Recristallisation dynamique . . . . . 39

1.4.4 Milieux stratifiés . . . . . 40

1.4.5 Résumé . . . . . 42

1.5 Approche du problème . . . . . 43

**2 Techniques expérimentales** **45**

2.1 Métallographie . . . . . 45

2.2 Acquisition, traitement et analyse d'images . . . . . 48
2.3 Microscopie électronique . . . . . 49
2.4 Microgrilles . . . . . 51
2.5 Essais mécaniques . . . . . 54

**3 Microstructure lamellaire du Zircaloy-4 57**
3.1 Matériau . . . . . 57
3.2 Gradient de microstructure . . . . . 58
3.3 Influence de la vitesse de refroidissement . . . . . 60
3.3.1 Protocole expérimental . . . . . 62
3.3.2 Resultats . . . . . 62
3.3.3 Simulation numerique . . . . . 69
3.4 Répartition des éléments d'alliage . . . . . 69
3.5 Relations de Burgers . . . . . 70
3.6 Relations morphologie-cristallographie . . . . . 75
3.7 Phase $\alpha_{GB}$ . . . . . 75
3.7.1 Caractère diffusif . . . . . 75
3.7.2 Cristallographie . . . . . 77
3.7.3 Discussion . . . . . 86
3.8 Conclusion . . . . . 90

**4 Microstructure lamellaire du TA6V étudiée par microtomographie X 91**
4.1 Représentation tridimensionnelle des microstructures . . . . . 91
4.2 Procédé expérimental . . . . . 92
4.3 Choix du matériau . . . . . 95
4.4 Résultats . . . . . 97
4.5 Exploitation des résultats . . . . . 98
4.6 Segmentation des anciens grains bêta . . . . . 98
4.7 Segmentation des colonies . . . . . 100
4.7.1 Segmentation par évaluation de textures orientées . . . . . 102
4.7.2 Résultats . . . . . 106
4.8 Conclusions . . . . . 114

**5 Déformation du Zircaloy-4 lamellaire dans le haut domaine $\alpha$ 121**
5.1 Démarche expérimentale . . . . . 122
5.2 Compression plane encastrée à haute température . . . . . 124

5.2.1 Problématique . . . 124
5.2.2 Description du dispositif . . . 128
5.3 Rhéologie . . . 131
5.4 Déformation de la microstructure . . . 135
5.4.1 Observations générales . . . 135
5.4.2 Cisaillements inter- et intra-colonies . . . 137
5.4.3 Fragmentation des colonies . . . 138
5.4.4 Microflambage . . . 139
5.4.5 Maclage . . . 143
5.4.6 Bandes de cisaillement . . . 151
5.4.7 Recristallisation . . . 156
5.5 Synthèse . . . 160

**Conclusions et perspectives** **163**

**Annexes** **167**

**A Simulation par éléments finis de traitements thermiques du Zircaloy-4** **167**
A.1 Propriétés du matériau . . . 168
A.2 Hypothèses et maillage . . . 169

**B Relations de Burgers et phase $\alpha_{GB}$ dans un alliage de titane** **173**
B.1 Relations de Burgers . . . 173
B.2 Phase $\alpha_{GB}$ . . . 177

**C Désorientation entre plans $\{110\}$ de cristaux cubiques** **181**

**D Notions de traitement d'images** **185**
D.1 Représentation d'une image en niveaux de gris . . . 185
D.2 Ligne de partage des eaux . . . 186
D.3 Analyse fréquentielle et convolution . . . 188

**E Analyse mécanique d'un dispositif de channel-die à parois mobiles** **193**

**Bibliographie** **201**

# Table des figures


1 Microstructure lamellaire du Zircaloy-4 trempé bêta. . . . . 5

2 Microstructure lamellaire du TA6V trempé bêta. . . . . 5

3 Illustration du comportement hétérogène de la microstructure lamellaire (Zircaloy-4 déformé en compression uniaxiale à 750 °C, $\overline{\epsilon} = 0,6$) : les lamelles de gauche se tordent alors que celles de droite sont perpendiculaires à la direction de compression. 7

1.1 Influence des éléments d'addition sur les domaines de phases du zirconium. . . . . 10

1.2 Domaines de phases du Zircaloy-4. . . . . 11

1.3 Conventions de notations cristallographiques de la structure hexagonale compacte [PVBC97]. . . . . 11

1.4 Bainite supérieure dans un acier [Bha01]. . . . . 13

1.5 Prédiction des relations d'orientation c.c.-h.c. en fonction des paramètres de mailles (d'après [ZK05a]). Les tirets correspondent au titane, au zirconium et au hafnium. 15

1.6 Relation de Burgers : construction d'une maille prismatique à partir de 5 mailles cubiques centrées (d'après [Bur34]). . . . . 15

1.7 Relation de Burgers : alignement d'un axe $<a>_\alpha$ avec une direction $<111>_\beta$ par rotation de corps solide [KOF01]. . . . . 16

1.8 Relations géométriques entre deux variants (a) et (b) de même plan basal (d'après [BVD$^+$03]). . . . . 17

1.9 Axes de zone et angles de désorientation associés entre paires de variants formés au cours de la transformation c.c.→h.c. (d'après [SB05]). . . . . 17

1.10 Exemple de sélection de variants : vue en coupe transverse d'une tôle laminée à 1050 ℃, trempée à l'eau (direction de compression verticale). Noter la proportion élevée de lamelles horizontales, perpendiculaires à la direction de compression. . . 18

1.11 Macrographie de la microstructure observée par Alois von Widmanstätten dans une météorite ferreuse en 1808 (détail d'après [Smi60], échelle indisponible). . . . 19

1.12 Martensite dans un échantillon de TA6V maintenu 10 minutes à 1050 ℃ puis trempé à l'eau. . . . . 20

1.13 Rapport entre la cristallographie et la morphologie d'une lamelle alpha dans un alliage de titane alpha/bêta [BVD$^+$03]. . . . . 20
1.14 Plans et directions de glissement dans les métaux de structure hexagonale [BA02]. 24
1.15 Rapport des cissions résolues critiques des systèmes basal et prismatique du Zircaloy-4 en fonction de la température [Log99]. . . . . 26
1.16 Valeurs du facteur de Schmid pour différents systèmes de déformation dans les hexagonaux [Par67], en fonction de l'inclinaison de l'axe <c> par rapport à la direction de chargement. L'étalement des courbes correspond à une rotation de la maille autour de l'axe <c>. . . . . 27
1.17 Définition géométrique du maclage [Yoo81]. . . . . 28
1.18 Identification de macles lenticulaires $(10\bar{1}2)$ dans un échantillon de Zircaloy-4 trempé bêta. . . . . 30
1.19 Bandes de cisaillement macroscopiques dans un échantillon de TA6V et un échantillon de Zircaloy-4 déformés en compression uniaxiale (hauteur de l'ordre de 6,5 mm). TA6V : T = 700 °C, $\dot{\bar{\epsilon}} = 1\ s^{-1}$, $\bar{\epsilon} = 0,40$ ; Zircaloy-4 : T = 750 °C, $\dot{\bar{\epsilon}} = 3\ s^{-1}$, $\bar{\epsilon} = 0,45$. . . . . 32
1.20 Cavitation dans un échantillon de Ti-6Al-2Sn-4Zr-2Mo (Ti6242) et un échantillon de Zircaloy-4. Ti6242 : laminage à chaud [SSW98], Zircaloy-4 : compression plane bi-encastrée (*channel-die*) à température ambiante, $\dot{\bar{\epsilon}} = 0,1\ s^{-1}$, $\bar{\epsilon} = 0,25$. Directions de compression verticales. . . . . 32
1.21 Microflambage dans une colonie de Zircaloy-4. Compression uniaxiale à 750 °C, $\dot{\bar{\epsilon}} = 0,1\ s^{-1}$, $\bar{\epsilon} = 0,55$ (direction verticale). . . . . 33
1.22 Microflambage observé dans des colonies de TA6V déformé à 900 °C en compression et traction à $\dot{\epsilon} = 0,1\ s^{-1}$ [MBS99]. La direction de sollicitation est verticale dans les deux cas. . . . . 34
1.23 Hétérogénéités de déformation dans les aluminiures de titane. (a) : exemple de microstructure initiale (d'après [BKC02]), (b) : bande de pliage (d'après [SFC$^+$06]). 35
1.24 Variation de la limite élastique de colonies d'aluminiures de titane en fonction de l'orientation des lamelles par rapport à la direction de sollicitation [IONY92]. . . 36
1.25 Cisaillement d'une structure lamellaire d'aluminiure de titane (d'après [KDA95]) : directions forte (horizontale) et faible (verticale). . . . . 36
1.26 Susceptibilité au microflambage de colonies de TA6V en fonction de l'orientation de l'axe <c> par rapport à la direction de compression [BS02]. . . . . 37
1.27 Simulation de l'apparition de bandes de pliage (kink bands) dans un aluminiure de titane [SFC$^+$06]. . . . . 38
1.28 Cisaillement interlamellaire d'une colonie de Zircaloy-4. Echantillon déformé à 750 °C, $\dot{\bar{\epsilon}} = 0,1\ s^{-1}$, $\bar{\epsilon} = 0,31$, direction de compression verticale. . . . . 38

1.29 Evolution du rapport de forme moyen de lamelles de TA6V en fonction de la déformation pour différentes mirostructures initiales [SS99]. A : lamelles d'épaisseur 1 µm, C : lamelles d'épaisseur 0,25 µm, G : majoritairement lamelles d'épaisseur 5 µm. . . . . 39
1.30 Différentes échelles de plis géologiques. Noter la similarité avec le motif présenté figure 1.21. . . . . 41

2.1 Illustration des relations entre intensité lumineuse et orientation cristalline en lumière polarisée dans le Zircaloy-4. . . . . 46
2.2 Mise en évidence des différentes informations fournies par la lumière polarisée et le contraste interférentiel et combinaison de celles-ci. Echantillon de Zircaloy-4 déformé en compression plane encastrée à 750 °C ($\bar{\epsilon} = 0,8$ et $\dot{\bar{\epsilon}} = 0,1\ s^{-1}$). . . . . 48
2.3 Principe de l'EBSD. . . . . 50
2.4 Principe de réalisation de microgrilles gravées. . . . . 52
2.5 Exemple de microgrille réalisée par gravage chimique sur du Zircaloy-4. . . . . 53
2.6 Influence de l'orientation cristalline sur la qualité de gravage des microgrilles. Les zones mal gravées ont un plan basal perpendiculaire à la surface d'observation. . 53
2.7 Exemple d'un profil de montée en température dans le dispositif de compression. 55

3.1 Histoire thermomécanique du matériau d'étude. . . . . 57
3.2 Variation de microstructure le long du rayon de la billette. . . . . 58
3.3 Simulation d'une homogénéisation en domaine bêta (1050 °C) après traitement en domaine alpha (750 °C) d'une billette de Zircaloy-4 de 12 cm de diamètre ; comparaison entre la zone centrale et la périphérie. . . . . 60
3.4 Essais de Jominy avec des éprouvettes de Zircaloy-4. . . . . 61
3.5 Géométrie de l'éprouvette de Jominy en Zircaloy-4 (a) et de la tête de suspension en inox (b). Les cercles marquent les positions des thermocouples. . . . . 63
3.6 Analyse des profils de refroidissement. . . . . 64
3.7 Variation de la vitesse de refroidissement en fonction de la distance à l'extrémité trempée. . . . . 65
3.8 Contamination par l'oxygène : microstructure en périphérie de l'éprouvette et représentation schématique de la concentration en oxygène dans une pièce en Zircaloy-4 oxydée à haute température (d'après [Mas07]). . . . . 66
3.9 Micrographies de long de l'éprouvette en fonction de la distance à l'extrémité trempée. . . . . 67
3.10 Zones riches en précipités à 65 mm de l'extrémité trempée. . . . . 68
3.11 Epaisseur des lamelles en fonction de la distance à l'extrémité trempée. . . . . 68
3.12 Epaisseur des lamelles en fonction de la vitesse de refroidissement. . . . . 69

3.13 Simulation par éléments finis des profils de refroidissements le long d'une éprouvette de Jominy (mêmes conditions que la figure 3.6). . . . . 70
3.14 Analyse qualitative par EDX de la répartition des principaux éléments d'alliage du Zircaloy-4. . . . . 71
3.15 Répartition irrégulière des précipités intermétalliques dans une colonie en platelets parallèles. Les bandes rectilignes sont des macles. . . . . 72
3.16 Analyse EBSD d'un ancien grain bêta, mise en évidence des axes de zones. . . . . 73
3.17 Histogramme des désorientations de la cartographie présentée figure 3.16. . . . . 74
3.18 Figure de pôles inverse montrant les axes de désorientation de la microstructure présentée figure 3.16. . . . . 74
3.19 Illustration de la présence des axes <c> dans le plan des lamelles. . . . . 76
3.20 Anciens joints de grains bêta. . . . . 77
3.21 Analyse qualitative de la répartition des principaux éléments d'alliage dans une couche de phase $\alpha_{GB}$ de Zircaloy-4. . . . . 78
3.22 Analyse EBSD d'un ancien joint de grains bêta et des colonies qui y ont germé. . 79
3.23 Analyse EBSD de la désorientation entre un allotriomorphe et la colonie associée, et mise en évidence d'une relation de désorientation de Burgers (axe de zone $<10\,\overline{5}\,\overline{5}\,3>$) avec la colonie appartenant au même grain bêta. . . . . 80
3.24 Analyse EBSD d'un ancien joint de grains décoré de plusieurs couches allotriomorphes et des colonies associées. . . . . 81
3.25 Résumé des relations entre les colonies et anciens grains bêta présentés figure 3.24. Ovales : entités microstructurales, rectangles : relations cristallographiques, trait pointillé : ancien joint de grains bêta. . . . . 82
3.26 Analyse EBSD d'un ancien joint de grains bêta séparant deux grains sans relation de désorientation particulière. Sur la figure (c), les colonies (1) à (4) ont été colorées en noir et blanc afin de faciliter leur identification. . . . . 84
3.27 Figures de pôles $< 1\,\overline{1}00 >$ et $(1\overline{2}11)$ des colonies 1 à 5 présentées figure 3.26, mettant en évidence un axe de zone et la trace du plan d'accolement. . . . . 85
3.28 Résumé des relations entre les colonies et anciens grains bêta présentés figure 3.26. Ovales : entités microstructurales, rectangles : relations cristallographiques, trait pointillé : ancien joint de grains bêta. . . . . 85
3.29 Distribution des angles minimaux entre plans {110} de grains bêta voisins dans un échantillon non texturé, modélisé par un réseau hexagonal de 90 000 cellules. . 88
3.30 Distributions de désorientations minimales entre plans {110} de grains bêta voisins pour une texture de laminage {111} avec différentes valeurs de tolérance sur l'orientation idéale. . . . . 89
3.31 Transmission d'une macle $(10\overline{1}2)$ à travers une couche allotriomorphe (matériau à l'état initial). . . . . 90

4.1 Section 2D d'une microstructure de Widmanstätten de TA6V. . . . . 92
4.2 Intersection de deux lamelles de Ti6242 [STT+05] (échelle indisponible). . . . . 93
4.3 Géométrie d'un dispositif de microtomographie X à faisceau parallèle [SCM+03]. 94
4.4 Coefficients d'absorption aux rayons X du zirconium et du titane, d'après [nis]. . 95
4.5 Microstructure du TA6V caractérisé en microtomographie X. . . . . 96
4.6 Sous-volume de $256^3$ voxels d'un échantillon de TA6V. . . . . 97
4.7 Histogramme des niveaux de gris d'un volume de $1024^3$ voxels. . . . . 98
4.8 Répartition de la phase bêta dans un volume cubique de 65 µm de côté. . . . . 99
4.9 Principe de la méthode de segmentation par coupes successives. (a) : exemple d'un relevé sur une coupe, le long d'une couche allotriomorphe ; les gros points sont sélectionnés manuellement, les petits sont interpolés. (b) : visualisation du nuage de points résultant. . . . . 99
4.10 Visualisation d'un ancien grain bêta selon les directions X, Y, Z et en perspective. 101
4.11 Visualisation en section plane des composantes des vecteurs normaux aux lamelles dans un échantillon de TA6V. . . . . 104
4.12 Minima des produits scalaires (a) et marqueurs pour la ligne de partage des eaux (b). . . . . 105
4.13 Résultat de la ligne de partage des eaux (LPE) contrainte par marqueurs, avec superposition sur l'image originale. . . . . 106
4.14 Principe de la segmentation de colonies par analyse de textures. . . . . 107
4.15 Segmentation d'un volume de $256^3$ voxels. . . . . 108
4.16 Exemple de colonie. . . . . 108
4.17 Visualisation d'une colonie selon les directions $x, y, z$ et en perspective. . . . . 109
4.18 Visualisation d'une colonie selon les directions $x, y, z$ et en perspective. . . . . 110
4.19 Visualisation en perspective de l'imbrication entre colonies voisines. . . . . 111
4.20 Visualisation de la position d'une colonie dans un ancien grain bêta. . . . . 112
4.21 Visualisation des positions relatives de deux colonies dans un ancien grain bêta. . 113
4.22 Représentation schématique d'une interaction entre deux colonies conduisant l'une d'entre elles à apparaître enclose. . . . . 115
4.23 Représentation schématique de la genèse de la microstructure de Widmanstätten. 116
4.24 Partition du plan par diagramme de Voronoï. (a) : diagramme global [FG99], (b) à (f) : construction du diagramme par croissance isotrope de cellules initialement circulaires. . . . . 118

5.1 Echantillons pleins et coupés utilisés en compression plane encastrée. . . . . 122
5.2 Impression en relief d'une microgrille sur la surface d'un demi-échantillon comprimé à $\bar{\epsilon} = 0,08$. . . . . 123

5.3 Evolution de la surface d'un demi-échantillon de compression plane encastrée au cours de deux passes de déformation à 750 ℃. . . . . 125

5.4 Evolution d'une microgrille en compression plane encastrée au cours de deux passes de déformation à 750 ℃. Le relief dans les figures (c) et (e) est de l'ordre de 100 µm126

5.5 Schéma de principe d'un dispositif de compression plane bi-encastrée (*channel-die*).127

5.6 Pièces du dispositif. . . . . 128

5.7 Mise en place d'un essai. a : poinçon, b : tas, c : parois, d : échantillon, e : fils de nickel. . . . . 129

5.8 Fonctionnement du dispositif de trempe (schématique). a : axe, b : bras, c : doigt, d : échantillon. . . . . 130

5.9 Courbes contrainte-déformation en compression uniaxiale. . . . . 132

5.10 Détermination du coefficient de sensibilité à la vitesse de déformation et de l'énergie d'activation apparente. . . . . 133

5.11 Comparaison des courbes contrainte-déformation en compressions plane encastrée (carrés) et uniaxiale (ronds). . . . . 134

5.12 Précipités intermétalliques dans un échantillon déformé en compression plane à 750 ℃, $\overline{\epsilon} = 0,80$, $\dot{\overline{\epsilon}} = 0,01$ s$^{-1}$ [Pau06]. . . . . 136

5.13 Epinglage de dislocations par des précipités intermétalliques dans un échantillon déformé en compression plane à 750 ℃ ($\dot{\overline{\epsilon}} = 0,01$ s$^{-1}$ et $\overline{\epsilon} = 0,50$) [Pau06]. . . . . 137

5.14 Cisaillements localisés dans des demi-échantillons faiblement déformés. . . . . 138

5.15 Illustration de la coexistence de plusieurs zones d'orientations cristallines distinctes dans des colonies déformées (compression uniaxiale, direction verticale). . . . . 139

5.16 Analyse EBSD de la fragmentation d'une colonie en blocs d'orientations distinctes. Echantillon déformé en compression uniaxiale à 750 ℃, $\dot{\overline{\epsilon}} = 0,01$ s$^{-1}$ et $\overline{\epsilon} = 0,80$ (direction de compression horizontale). . . . . 140

5.17 Analyse EBSD de la fragmentation d'une colonie en blocs d'orientations distinctes. Mêmes conditions que l'échantillon présenté figure 5.16. . . . . 141

5.18 Mise en évidence du caractère tridimensionnel du microflambage dans deux microstructures lamellaires déformées en compression uniaxiale. (a) : micrographie d'un échantillon de Zircaloy-4 (direction de compression perpendiculaire au plan de l'image), (b) : reconstruction de la courbure d'une lamelle individuelle dans un échantillon de TA6V caractérisé en microtomographie (direction de compression verticale). . . . . 142

5.19 Analyse EBSD de l'orientation cristalline le long d'une lamelle microflambée (compression uniaxiale à 700 ℃, $\dot{\overline{\epsilon}} = 0,01$ s$^{-1}$ et $\overline{\epsilon} = 0,62$, direction de compression horizontale). . . . . 143

5.20 Modèle de développement d'une macle lenticulaire par extension de couches successives, représenté dans le plan $(1\bar{1}20)$ perpendiculaire au plan de maclage $(10\bar{1}2)$ (d'après [SG95]). . . . . 144
5.21 Identification de macles $(10\bar{1}2)$ notées (1) et (2) dans un échantillon déformé en compression uniaxiale de 0,84 à 750 °C et 0,01 $s^{-1}$ (direction de compression perpendiculaire au plan de l'image). . . . . 145
5.22 Figures de pôles des zones notées (1), (2) et (3) dans la figure 5.21 ; mise en évidence de l'axe de zone et de la trace du plan de maclage. . . . . 146
5.23 Identification de macles $(10\bar{1}2)$ dans un échantillon déformé en compression uniaxiale de 0,62 à 700 °C et 0,01 $s^{-1}$ (direction de compression horizontale). . . . . 147
5.24 Développement de macles dans un échantillon déformé en compression uniaxiale à 750 °C ($\overline{\epsilon} = 0,32$, $\dot{\overline{\epsilon}} = 0,1\ s^{-1}$, direction de compression verticale). . . . . 147
5.25 Apparition de macles dans un demi-échantillon à microstructure lamellaire déformé de 0,05 à 750 °C(direction de compression verticale). Les anciens joints de grains bêta après déformation sont repérés par des pointillés. . . . . 148
5.26 Mise en évidence de macles dans un demi-échantillon à gros grains équiaxes déformé de 0,2 à 750 °C (Direction de compression horizontale). (a) et (b) : même zone avant et après déformation, (c) et (d) : microstructure polie après déformation. 150
5.27 Analyse EBSD de macles $(10\bar{1}2)$ dans un demi-échantillon à microstructure équiaxe déformé de 0,20 à 750 °C (direction de compression horizontale). . . . . 151
5.28 Bandes de déformation localisée dans un échantillon déformé en compression plane à 650 °C, $\dot{\overline{\epsilon}} = 0,1\ s^{-1}$ et $\overline{\epsilon} = 0,47$ (direction de compression verticale). . . . . 152
5.29 Comparaison entre des bandes de cisaillement (1) et des macles (2) ; les premières dévient l'alignement des précipités, les secondes non. . . . . 152
5.30 Analyse EBSD d'une bande de cisaillement dans un échantillon déformé en compression uniaxiale (direction de compression horizontale). . . . . 154
5.31 Analyse EBSD d'une bande de cisaillement dans un échantillon prédéformé en compression uniaxiale de 0,80 à 650 °C puis déformé de 0,08 à 750 °C en compression plane. Figures de gauche : avant déformation plane, de droite : après déformation plane. . . . . 155
5.32 Analyse EBSD d'une zone de microflambage et de zones de recristallisation (échantillon déformé en compression uniaxiale à 750 °C, $\dot{\overline{\epsilon}} = 0,01\ s^{-1}$ et $\overline{\epsilon} = 0,80$, direction de compression horizontale). . . . . 157
5.33 Analyse EBSD de cristallites dans la zone présentée figure 5.32. . . . . 158
5.34 Profil de désorientation le long d'une macle et orientation des cristallites dans les zones entourées (même plage que la figure 5.21). . . . . 159

5.35 Cristallites dans deux échantillons déformés en compression uniaxiale ; mise en évidence des sous-structures de dislocations (a) et de l'emplacement des cristallites par rapport aux alignements de précipités intermétalliques [Pau06]. . . . . 161

A.1 Maillage pour la simulation de traitement thermique de la billette. . . . . 170
A.2 Maillage pour la simulation l'expérience de Jominy. . . . . 170
A.3 Coefficient d'échange entre le Zircaloy-4 et l'eau en convection forcée (adapté de [LMLA$^+$02]). . . . . 170
A.4 Densité du Zircaloy-4 en fonction de la température. . . . . 171
A.5 Capacité thermique du Zircaloy-4 en fonction de la température. . . . . 171
A.6 Conductivité thermique du Zircaloy-4 en fonction de la température. . . . . 171

B.1 Analyse EBSD des relations cristallographiques entre phase bêta résiduelle et phase alpha dans un échantillon de TA6V. . . . . 175
B.2 Distribution des désorientations et axes de zones correspondants entre les colonies de l'ancien grain bêta présenté figure B.1(a). . . . . 176
B.3 Détail de la figure de pôles <a> B.1(c). . . . . 176
B.4 Analyse EBSD d'un ancien joint de grains bêta et des colonies qui y sont rattachées. En bleu : pôles du grain $\beta_1$ ; en rouge : pôles du grain $\beta_2$. . . . . 178
B.5 Analyse EBSD d'un ancien joint de grains bêta et des colonies qui y sont rattachées. En bleu : pôles du grain $\beta_1$ ; en rouge : pôles du grain $\beta_2$. . . . . 179

C.1 Distribution des angles de désorientation entre deux cubes orientés aléatoirement (d'après [Han58]). . . . . 182
C.2 Définition des angles d'Euler selon la convention de Bunge. . . . . 182

D.1 Exemple de segmentation par ligne de partage des eaux. . . . . 187
D.2 Transformée de Fourier d'une image représentant un masque de microgrille. . . . 189
D.3 Transformée de Fourier d'un volume de 50 µm de côté contenant quelques colonies. 189
D.4 Segmentation de zones de texture homogène par modification de la transformée de Fourier en deux dimensions. . . . . 191
D.5 Segmentation de zones de texture homogène par convolution en deux dimensions. 192

E.1 Courbes contrainte-déformation d'échantillons d'acier XC10 comprimés dans les dispositifs à parois fixes (ronds) et mobiles (croix), à 400 et 500 °C et $\dot{\bar{\epsilon}} = 0,1\ s^{-1}$. 195
E.2 Echantillons d'acier XC10 déformés dans le dispositif de channel-die à parois fixes (gauche) et à parois mobiles (droite). T = 400 °C, $\bar{\epsilon} = 0,75$, $\dot{\bar{\epsilon}} = 0,1\ s^{-1}$. . . . . 196
E.3 Répartitions calculées des travaux de déformation plastique (Pl) et de frottement (Fr) dans les montages à parois fixes (FW - *Fixed Walls*, pointillés) et parois mobiles (MW - *Mobile Walls*, traits pleins). . . . . 197

E.4 Contours de déformation plastique équivalente calculée à $\overline{\epsilon} = 0,8$ pour les dispositifs à parois fixes (gauche) et mobiles (droite), pour différentes valeurs de coefficient de frottement. . . . . 198
E.5 Distribution de la déformation plastique équivalente calculée à $\overline{\epsilon} = 0,8$ et $\dot{\overline{\epsilon}} = 0,1\ s^{-1}$ pour les dispositifs à parois fixes et mobile et différentes valeurs du coefficient de frottement. . . . . 199
E.6 Evolution de la déformation plastique équivalente ($PEEQ$) calculée dans 36 éléments au centre de l'échantillon pour $\overline{m} = 0,10$. Vitesse de déformation égale à $0,1\ s^{-1}$. . . . . 199
E.7 Vitesses de déplacement calculées dans le plan de symétrie d'échantillons pour $\overline{m} = 0,10$. . . . . 200

# Introduction

Ce mémoire synthétise des travaux de recherche portant sur la caractérisation des microstructures de Widmanstätten dans les alliages de titane et de zirconium, ainsi que leur comportement en déformation à chaud. Ces travaux ont été effectués au sein du centre SMS – Sciences des Matériaux et Structures – de L'Ecole Nationale Supérieure des Mines de Saint-Etienne. Une étape essentielle du procédé de mise en forme de ces matériaux implique la globulisation d'une microstructure lamellaire en une microstructure équiaxe. La microstructure lamellaire est obtenue à la suite d'une transformation allotropique. Elle se caractérise par une organisation complexe dont l'échelle s'étend du micromètre au millimètre, et par une structure cristalline hexagonale compacte. Ces deux facteurs sont à l'origine de fortes hétérogénéités de déformation et de recristallisation qui compliquent les opérations de mise en forme.

Ces travaux sont centrés sur la caractérisation de la microstructure à l'état initial, considérée selon ses aspects morphologique et cristallographique, ainsi que sur l'identification des principaux types d'hétérogénéités observées en début de déformation. L'approche suivie s'appuie sur des études complémentaires, tirant profit des similarités structurales des deux principaux alliages de titane et de zirconium en usage industriel, le Zircaloy-4 et le TA6V. Elle est décrite plus en détail dans la section suivante, qui situe préalablement la problématique dans son contexte scientifique et industriel.

# Contextes scientifique et industriel

1789 fut une année décisive pour l'industrie nucléaire. Cette année-là en effet, le chimiste allemand Martin Heinrich Klaproth identifia deux nouveaux éléments, le zirconium et l'uranium, lesquels allaient se révéler un siècle et demi plus tard au coeur du principe de production d'électricité nucléaire. En 1824, le chimiste suédois Jöns Jakob Berzelius réussit à isoler le zirconium, sous une forme toutefois impure et cassante. Il fallut attendre un siècle de plus pour que Van Arkel et de Boer missent au point un procédé de préparation de zirconium malléable. La découverte par le métallurgiste luxembourgeois Wilhelm Justin Kroll, en 1939, d'un procédé d'élaboration de métaux purs acheva de poser les bases de la métallurgie extractive du zirconium : cette méthode encore utilisée actuellement fut mise en application au lendemain de la seconde guerre mondiale en vue de la réalisation du réacteur du premier sous-marin nucléaire américain, le Nautilus. La France suivit, et quelques années plus tard se lançait dans la production de zirconium afin de construire deux sous-marins, le Redoutable et le Terrible. Quant au nucléaire civil, il utilisa pour la première fois le zirconium vers 1970, avec le lancement de la centrale Chooz A. Aujourd'hui encore, les alliages à base de zirconium représentent la meilleure solution comme première barrière de confinement du combustible.

L'importance des services rendus par Klaproth à l'industrie du XX$^{e}$ siècle est encore accrue par les travaux qu'il mena en 1795 sur un nouvel élément, découvert quelques années plus tôt par le minéralogiste britannique William Gregor. Il confirma l'existence de cet élément, sans toutefois l'isoler, et le nomma titane. Le chimiste américain Matthew Albert Hunter parvint en 1910 à produire du titane pur à 99 %, mais à l'instar du zirconium, il fallut attendre les travaux de Kroll pour que le procédé de production industrielle fût mis au point.

Le zirconium est rarement mentionné sans que son voisin du dessous dans le tableau de Mendeleïev le soit également. Le hafnium est en effet toujours associé au zirconium dans les minerais, et il trouve aussi son utilisation principale dans l'industrie nucléaire. Le hafnium fut découvert en 1923 par Coster et de Hevessy, qui le nommèrent ainsi en hommage à la ville de Copenhague où ils faisaient leurs études [1].

[1] Les amateurs d'étymologie noteront également que le mot zircon, appellation usuelle du silicate de zirconium, provient probablement du perse *zargun*, signifiant *couleur d'or*. Connu depuis l'antiquité, le zircon apparaît dans le nouveau testament, sous le nom de hyacinthe ou jacinthe, comme l'une des pierres de fondation de la Nouvelle Jerusalem (Apocalypse 21 :20).

Ces trois métaux forment les éléments stables du groupe IVB de la classification périodique. Leur structure électronique similaire (8 électrons manquants sur la couche externe) explique leurs propriétés chimiques voisines, marquées par un caractère fortement électropositif. La grande réactivité qui en résulte complique certes les opérations d'extraction et de mise en forme, mais confère à leurs alliages une excellente tenue à la corrosion.

Les caractéristiques de stabilité structurale de ces éléments sont également voisines. Comme près de la moitié des éléments de la classification périodique, le titane, le zirconium et le hafnium présentent plusieurs formes allotropiques, dont les domaines de stabilité sont déterminés par la température et la pression. A pression ambiante, deux phases sont stables, l'une hexagonale compacte à température ambiante (phase alpha), l'autre cubique centrée à haute température (phase bêta). Pour ces trois métaux, le rapport c/a de la phase hexagonale est inférieur au rapport théorique de $\sqrt{8/3}(= 1,633)$. Nous verrons par la suite que c'est un facteur déterminant sur la nature des relations d'orientations entre les phases alpha et bêta et des systèmes de glissement faciles. Les températures de transformation, ainsi que quelques paramètres physiques, sont indiqués dans le tableau 1.

| | Titane | Zirconium | Hafnium |
|---|---|---|---|
| Numéro atomique | 22 | 40 | 72 |
| Masse volumique à 20 °C ($g \cdot cm^{-3}$) | 4,5 | 6,5 | 13,2 |
| Transus $\alpha/\beta$ $T_{\alpha/\beta}$ (°C) | 882 | 865 | 1750 |
| Température de fusion Tf (°C) | 1670 | 1850 | 2220 |
| $T_{\alpha/\beta}$ (K)/Tf (K) | 0,60 | 0,54 | 0,81 |
| Paramètre de maille $a_\alpha$ (Å) | 2,95 | 3,23 | 3,20 |
| Paramètre de maille $c_\alpha$ (Å) | 4,68 | 5,15 | 5,06 |
| Rapport $c_\alpha/a_\alpha$ | 1,587 | 1,593 | 1,582 |
| Paramètre de maille $a_\beta$ (Å) | 3,31 (900 °C) | 3,62 (900 °C) | 3,615 (1800 °C) |

**Tableau 1 :** *Quelques propriétés physiques des éléments stables de la colonne IV (Ti, Zr : [Wyc63, LK55], Hf : [RPK65]).*

Par ailleurs, la structure lamellaire des alliages de titane et zirconium trempés à partir de la phase bêta, qui est au centre de cette étude, est également caractéristique de ces éléments (figures 1 et 2).

D'autres propriétés varient sensiblement d'un métal à l'autre, la plus significative en contexte industriel étant la section efficace de capture neutronique. Le hafnium est environ 500 fois plus absorbant aux neutrons que le zirconium. Cette particularité impose des contraintes sévères sur la composition des alliages de zirconium à usage nucléaire, dont l'une des caractéristiques requises est la transparence aux neutrons. A contrario, la forte capacité d'absorption neutronique du hafnium, conjuguée à sa résistance à la corrosion et sa tenue mécanique motivent son usage comme constituant des barres de contrôle dans les réacteurs.

Les utilisations non nucléaires du zirconium et du hafnium se situent principalement dans les

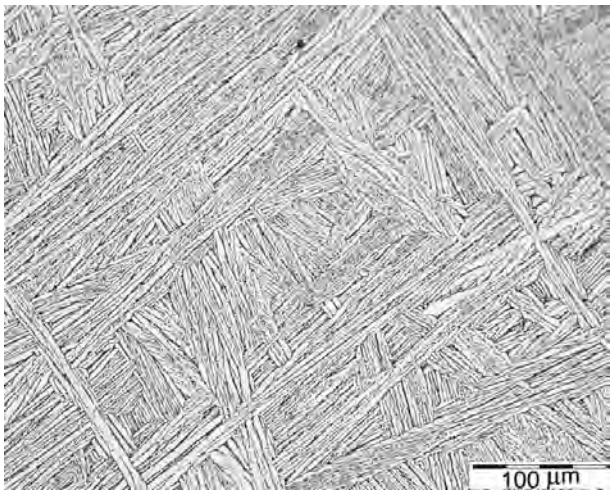



**Figure 1 :** *Microstructure lamellaire du Zircaloy-4 trempé bêta.*

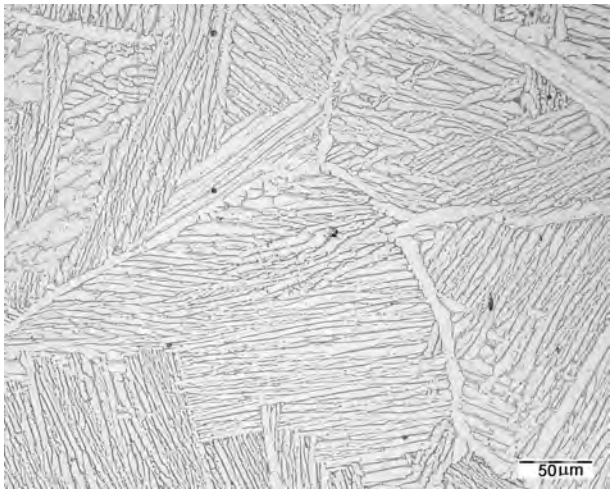



**Figure 2 :** *Microstructure lamellaire du TA6V trempé bêta.*

domaines de la chimie et de la métallurgie (en tant qu'éléments d'alliage). Quant au titane, ses applications sont nombreuses et comme élément de structure, concernent la chimie, l'aéronautique, le biomédical.

Nous en venons maintenant à l'objet de cette étude. Elle s'intègre dans une démarche visant à définir un traitement global de mise en forme pour ces alliages. D'une manière plus générale, la conception de microstructures reproductibles présentant des propriétés bien définies est un enjeu majeur de la recherche en mise en forme des matériaux de structures. Les procédés industriels intègrent donc comme double contrainte la production de pièces précisément dimensionnées, et l'organisation de la matière à l'échelle micro-, voire nanoscopique.

Le cas du titane et du zirconium est marqué par leur forte hérédité structurale : en comparaison avec les structures cubiques, la structure hexagonale, de plus basse symétrie, présente des modes de déformation dont les directions sont inégalement réparties dans l'espace, et dont les cissions résolues critiques peuvent être très différentes [Zae03]. Les textures de déformation ont donc tendance à être prononcées, et ce d'autant plus que la trempe bêta s'accompagne fréquemment d'une sélection des variants [GHPC96]. Les procédés de transformation doivent donc intégrer cette contrainte, ou du moins s'en accommoder : pour forcer le trait, "le premier coup de presse a des répercussions encore perceptibles dans le produit fini" [Bar05].

Les recherches présentées dans ce mémoire portent principalement sur l'alliage de zirconium Zircaloy-4, dans la mesure où il s'agit d'un matériau relativement moins bien connu que les alliages de titane.

Après déformation dans le domaine alpha ou alpha/bêta le Zircaloy-4 est généralement homogénéisé dans le domaine bêta puis trempé. La microstructure de trempe constitue un état de référence pour la suite des traitements thermomécaniques. Ceux-ci sont effectués dans le domaine alpha, c'est-à-dire sans nouvelle transformation de phase. La température de travail se situe entre 750 et 800 °C. Il s'agit d'une gamme de déformation, non à chaud, mais plutôt à tiède. En effet, la température de fusion fictive de la phase alpha (c'est-à-dire sans changement de phase) se situe vers 1990 K [MHZ96, Cha04], ce qui donne une température homologue de déformation de l'ordre de 0,5.

A température ambiante, la structure trempée du Zircaloy-4 est constituée de plaquettes généralement enchevêtrées, séparées par des précipités de taille submicronique. L'anisotropie des propriétés mécaniques qui en résulte, la faible tenue à la fatigue et à la corrosion, rendent la présence des plaquettes indésirable dans le produit fini. Les traitements suivants ont donc pour impératif leur globulisation, de manière à obtenir une structure équiaxe dans laquelle les précipités sont répartis de manière homogène. Le terme de globulisation est volontairement imprécis ; il renvoie à deux processus complémentaires, la fragmentation des lamelles, c'est-à-dire leur séparation en unités structurales plus isotropes - avec conservation de la continuité de la matière -, et la recristallisation, qui correspond à la formation d'une nouvelle microstructure par suite du réarrangement des réseaux de dislocations produits par la déformation [SSG99].

Cette globulisation n'affecte pas l'ensemble du matériau de façon uniforme : dans le cas d'un laminage par exemple, il est fréquemment observé que certaines lamelles se fragmentent facilement, alors que d'autres s'orientent perpendiculairement à la direction de compression. Ces dernières recristallisent moins spontanément que les premières (figure 3).

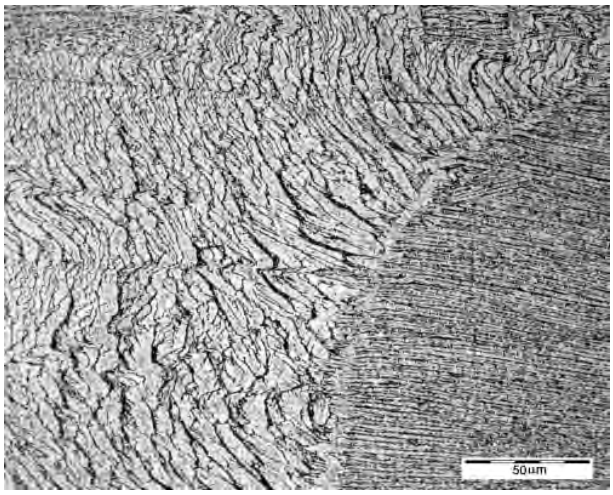



**Figure 3 :** *Illustration du comportement hétérogène de la microstructure lamellaire (Zircaloy-4 déformé en compression uniaxiale à 750* °C*,* $\overline{\epsilon} = 0,6$*) : les lamelles de gauche se tordent alors que celles de droite sont perpendiculaires à la direction de compression.*

L'approche globale de la mise en forme du matériau intègre donc comme contrainte principale l'obtention, après trempe, de microstructures lamellaires susceptibles de recristalliser facilement. Trois questions se posent alors :

- Quels sont les mécanismes à l'oeuvre lors de la genèse de la microstructure lamellaire ?
- Quels sont les paramètres, liés au matériau et au chemin de déformation, qui déterminent la susceptibilité à la fragmentation ?
- Comment favoriser à l'état trempé bêta la présence de lamelles qui se fragmenteront facilement ? Plus généralement, comment mettre en place une microstructure initiale optimisée pour l'obtention d'une microstructure équiaxe dans le produit fini ?

Il s'agit de recherches qui demandent sans doute entre dix et vingt ans. Notre étude concerne avant tout les deux premiers points, préalables à la mise en oeuvre de solutions efficaces pour le troisième.

Les travaux que nous présentons ici s'organisent autour de caractérisations de la microstructure lamellaire à l'état initial et à l'état déformé. D'une façon générale, l'état des connaissances sur les microstructures lamellaires des alliages de titane est plus avancé que pour le Zircaloy-4. La mise en comparaison des microstructures trempées du Zircaloy-4 et du TA6V s'est donc révélée féconde en enseignements ; les deux matériaux ont été étudiés conjointement et certains concepts propres au second ont ainsi pu être appliqués au premier. Le comportement en déformation de la

microstructure a été uniquement caractérisé dans le cas du Zircaloy-4, principalement en raison de contraintes temporelles. Une part importante de nos recherches a en effet été consacrée à la mise en place et à la validation de procédures expérimentales nouvelles pour ces matériaux : essai Jominy instrumenté, compression plane encastrée à haute température, gravage de microgrilles, microtomographie X.

Le mémoire se compose de cinq chapitres. Le premier contient certains rappels nécessaires sur les alliages de zirconium et de titane, leur cristallographie et modes de déformation, ainsi que sur les microstructures lamellaires. Le deuxième chapitre décrit les techniques expérimentales courantes. Le troisième chapitre est consacré à la microstructure trempée du Zircaloy-4, appréhendée principalement sous son aspect cristallographique. Le quatrième chapitre présente une étude par microtomographie X du TA6V lamellaire et propose en conclusion une description synthétique, à l'échelle micrométrique, de la genèse de la microstructure de Widmanstätten dans les alliages de titane et de zirconium. Le dernier chapitre aborde la question des hétérogénéités de déformation et de recristallisation du Zircaloy-4, et propose une classification de celles-ci sur des bases morphologiques. La technique de compression plane encastrée à haute température est présentée avec quelque détail, dans la mesure où elle constitue une avancée dans le domaine de la déformation à haute température des métaux.

# Chapitre 1

# Etude bibliographique

Ce chapitre couvre la chimie du Zircaloy-4, notre principal matériau d'étude, ainsi que la transformation bêta → alpha, présentée sous ses aspects cristallographique et morphologique. Les mécanismes de déformation et la globulisation des microstructures lamellaires sont traités dans les deux dernières sections. Le cas des alliages de titane alpha/bêta, et en particulier le TA6V, est traité en parallèle à celui du Zircaloy-4 à titre de comparaison. Les micrographies non référencées ont été réalisées par nos soins.

## 1.1 Eléments d'alliage et domaines de phases

Le Zircaloy-4 est actuellement l'alliage nucléaire de référence car il constitue un bon compromis entre les propriétés suivantes : transparence aux neutrons, tenue au fluage et à la corrosion en milieu aqueux à 300 °C, stabilité de comportement sous irradiation, ductilité à froid. D'une façon générale, ce compromis impose une teneur maximale en éléments d'addition de 3 % en masse. En moyenne, le Zircaloy-4 contient 1,45 % d'étain, 0,21 % de fer, 0,10 % de chrome et 1,20 % d'oxygène. Il se distingue de son prédécesseur, le Zircaloy-2, par une teneur nulle en nickel, élément responsable d'une fragilisation par l'hydrogène. Son successeur, le M5, comporte comme élément principal d'alliage le niobium ainsi qu'une teneur accrue en oxygène afin d'améliorer sa tenue à la corrosion et au fluage.

D'un point de vue thermodynamique, les éléments d'addition stabilisent soit la phase alpha (éléments alphagènes), soit la phase bêta (éléments bétagènes). Parmi ceux-ci, on distingue les éléments bêta-isomorphes, miscibles en toutes proportions dans la phase bêta, et les éléments bêta-eutectoïdes, qui forment des précipités. Leur influence sur le diagramme d'équilibre est schématisée sur la figure 1.1.

Il est intéressant de noter que les effets de la majorité de ces éléments sont de même nature dans le zirconium et le titane. Le rôle des principaux éléments d'alliage du Zircaloy-4 peut être résumé comme suit [LMC06] :

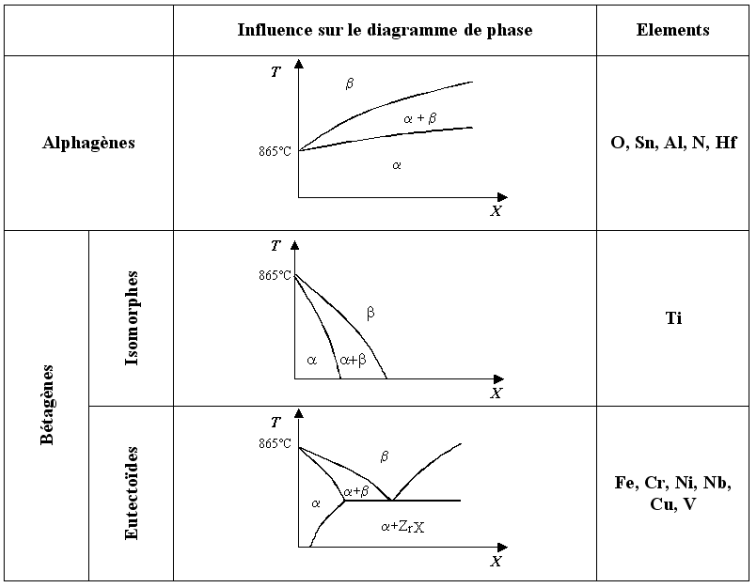



**Figure 1.1 :** *Influence des éléments d'addition sur les domaines de phases du zirconium.*

- étain : cet élément a été introduit afin de contrer les effets de l'absorption d'azote par le matériau, responsable d'une mauvaise tenue à la corrosion. Il est très soluble en phase alpha et améliore aussi modérément la limite élastique.
- fer et chrome : leur rôle est également d'améliorer la résistance à la corrosion. Le chrome a été introduit à la suite d'une contamination accidentelle du matériau par l'acier du réacteur de préparation. Ce sont des éléments bétagènes eutectoïdes dont la très faible solubilité en phase alpha conduit à la formation de précipités intermétalliques de type Zr(Cr, Fe). La répartition uniforme de ces précipités dans le tube de gainage est garante d'une bonne tenue en service, en particulier au regard de la corrosion.
- oxygène : élément alphagène très soluble en phase alpha, l'oxygène améliore sensiblement les caractéristiques mécaniques à froid. Plus précisément, il s'agit d'un effet de durcissement par solution solide interstitielle, qui s'atténue avec la température.

Les domaines de phases du Zircaloy-4 sont résumés sur la figure 1.2.

## 1.2 Transformation bêta → alpha

### 1.2.1 Structure hexagonale

La maille élémentaire de la structure hexagonale compacte est un prisme droit à base losange, d'angles 120 et 60 degrés, de côté a et de hauteur c. Le motif est constitué de deux atomes, situés en (0, 0, 0) et (2/3, 1/3, 1/2). Il est de coutume de considérer une maille triple de la maille

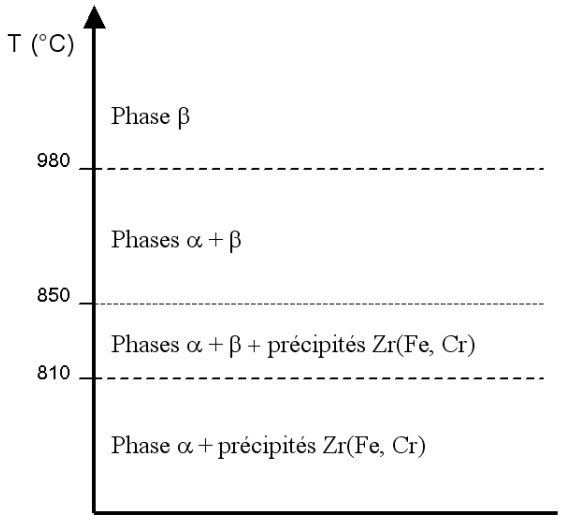



**Figure 1.2 :** *Domaines de phases du Zircaloy-4.*

élémentaire afin de mettre en évidence les symétries (figure 1.3).

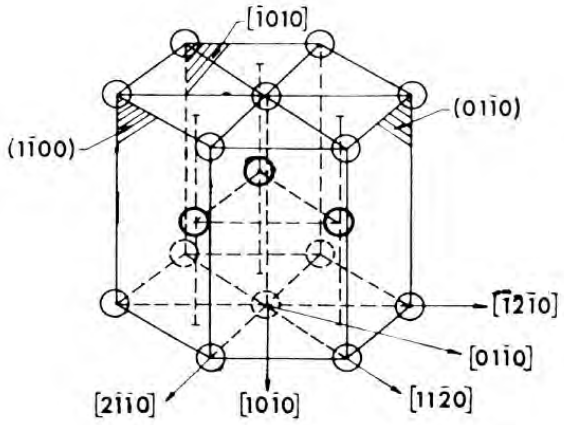



**Figure 1.3 :** *Conventions de notations cristallographiques de la structure hexagonale compacte [PVBC97].*

Cette structure correspond à un empilement de plans compacts (0001), suivant la séquence ABAB... La compacité est maximale et vaut 0,74 [2]. Le rapport c/a détermine le type de plan de plus grande densité : basal si le rapport est supérieur à $\sqrt{8/3}$, prismatique sinon.

[2]La question de la compacité maximale d'un empilement de sphères en trois dimensions n'est pas si simple qu'il pourrait y paraître au premier abord : elle est connue sous le nom de conjecture de Kepler et a attendu près de 300 ans avant d'être démontrée [Hal05].

### 1.2.2 Mécanismes

L'identification des mécanismes responsables de la transformation $\beta \rightarrow \alpha$ du zirconium et du titane et de leurs alliages s'inspire de celle des aciers. Dans le titane et le zirconium purs, il est admis que la transformation au refroidissement opère par mouvement collectif d'atomes, est athermique et sans diffusion. Ces caractéristiques la font entrer dans la catégorie des transformations displacives, et plus précisément, en raison d'une distorsion du réseau dominée par une composante de cisaillement, martensitiques. Bien que ce processus ne soit pas thermiquement activé, il est d'usage de considérer deux stades de germination et croissance. La vitesse de croissance est élevée, de l'ordre de la vitesse d'ondes élastiques se propageant dans le matériau, aussi la cinétique de transformation est-elle dominée par la nucléation. Les produits de transformation ont des formes caractéristiques de plaquettes ou de lattes, dues à l'accommodation de la déformation plastique selon des plans d'accolement et aux relations d'orientations entre les phases mère et fille. La structure interne des lattes comporte une densité élevée de dislocations enchevêtrées [WT79, Ban85, AR98].

Cette situation se complique avec la présence d'éléments d'alliage. En fonction de leurs solubilités et cinétiques de diffusion respectives, la transformation peut être de type bainitique : le mouvement collectif des atomes de la matrice s'accompagne alors de la diffusion à courte distance des éléments les moins solubles et les plus mobiles de la phase nouvellement formée vers la matrice. Dans le cas du Zircaloy-4, les éléments Fe et Cr sont rejetés de la phase alpha et précipitent à l'interface de celle-ci pour former des composés intermétalliques de type Zr(Fe,Cr). De la même manière, dans le TA6V (alliage de titane à 4 % d'aluminium et 6 % de vanadium), la transformation au refroidissement débute entre 980 et 1000 °C et le vanadium, faiblement soluble en phase alpha, diffuse en phase bêta, à tel point qu'il stabilise celle-ci jusqu'à la température ambiante [FS88, GGMP01]. Pour des vitesses de refroidissement élevées, il reste cependant possible de prendre de vitesse la diffusion, et d'obtenir une microstructure martensitique constituée de plaquettes fines, écrouies ou maclées, et sursaturées en éléments d'alliage. Dans les alliages de titane, la phase martensitique hexagonale est notée $\alpha'$ [3]. Ces mécanismes sont à rapprocher de ceux à l'oeuvre lors de la formation de carbures entre les lattes de bainite supérieure dans les aciers faiblement alliés [Bha01], à la différence notable de la position des éléments d'alliage dans le réseau cristallin : le fer et le chrome sont en position interstitielle dans le Zircaloy-4, le vanadium en substitution dans le TA6V, et le carbone en interstitiel dans les aciers. Les cinétiques de transformation sont certes différentes, mais les phases produites s'avèrent relativement similaires du point de vue de la morphologie (comparer les figures 1.4 et 1.12).

La phase produite par transformation bainitique se présente sous l'aspect de plaquettes plus épaisses que celles de la martensite. La structure interne est moins écrouie, et sa composition plus

[3] D'autres types de martensite $\alpha''$ et $\alpha'''$ ont été mis en évidence dans certains alliages de titane alpha/bêta riches en éléments d'alliage [Wil73]. Ces phases n'ont pas été identifiées dans nos travaux et ne seront pas considérées par la suite.

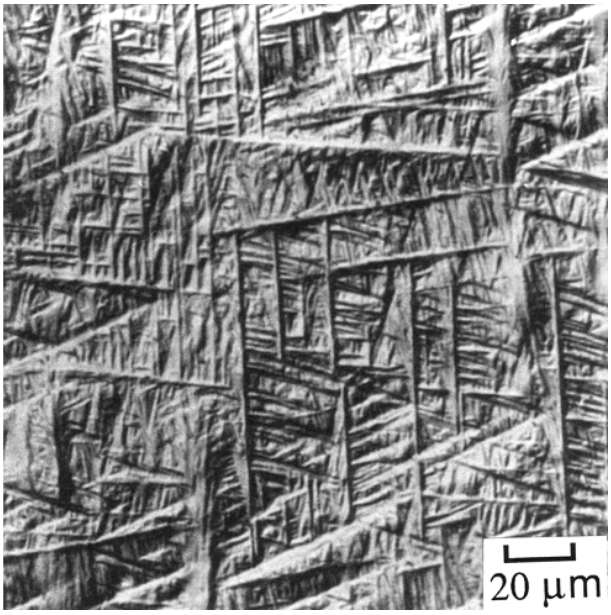



**Figure 1.4 :** *Bainite supérieure dans un acier [Bha01].*

proche de l'équilibre. Les relations d'orientation entre les phases mère et fille, ainsi que la nature des plans d'accolement, ne sont pas modifiées par la diffusion des éléments d'alliage [CPG+96]. La transformation bainitique peut donc être considérée comme une extension continue de la transformation martensitique, la transition entre les deux dépendant de la vitesse de refroidissement et de la nature des éléments d'addition [PVBC97, WT79]. A cet égard, Banerjee et al. [BDSR97] ont montré que pour les alliages zirconium-niobium faiblement alliés, les correspondances de sites atomiques sont proches dans les transformations martensitiques et bainitiques.

Des cas de transformation massive ont aussi été signalés dans le titane faiblement allié [AR88, OLP04, KP02], dans certains systèmes binaires Ti-X [PWA77], le TA6V [AR98] et le Zircaloy-4 [Akh76, Ban85, HKL99]. Ce type de transformation se caractérise par un mécanisme de croissance contrôlé par l'avancée rapide d'un front de réaction qui "piège" les atomes de soluté. Le rapport entre la diffusivité volumique dans la matrice et la diffusivité à travers le joint interphase des éléments d'alliage doit être faible, de manière que ceux-ci ne puissent ségréger pendant la croissance [Per84]. Il s'agit d'une transformation à composition invariante, et la phase formée est sursaturée. La morphologie des domaines formés est souvent irrégulière – d'où le qualificatif "massive" –, sans qu'il s'agisse d'une caractéristique nécessaire à la définition formelle de cette transformation [Aar02].

Dans les travaux portant sur le Zircaloy-4, la distinction établie entre les produits martensitiques ou bainitiques d'une part, et de transformation massive d'autre part, est cependant loin d'être sans ambiguïtés. Bangaru [Ban85] et Hong et al. [HKL99], par exemple, parlent de "transformation massive avec des caractéristiques de cisaillement". L'identification de la trans-

formation massive dans ces études repose partiellement sur des considérations de morphologie, de structure et composition internes, ou éventuellement de cristallographie, paramètres dont aucun n'est caractéristique de la transformation massive [How06]. Notons par ailleurs que l'étude exhaustive par Woo et Tangri [WT79] de l'influence de la vitesse de refroidissement et de la teneur en oxygène sur la nature de la microstructure de trempe bêta du Zircaloy-4 ne fait pas état de transformation massive. Enfin, les expériences menées par Arias et Ruch [AR88] indiquent que seul du zirconium très faiblement allié (moins de un pourcent d'éléments d'alliage, oxygène compris) peut présenter une transformation massive.

Dans le cadre de ces travaux, nous nous intéresserons uniquement aux transformations martensitique et bainitique, de loin les plus courantes, en étudiant tout d'abord l'aspect cristallographique de la question.

### 1.2.3 Aspect cristallographique

Nous décrivons maintenant les relations cristallographiques entre un réseau cubique centré (désigné ci-après par l'abréviation c.c.) et un réseau hexagonal compact (h.c.). Différents phénomènes comme la précipitation ($Mo_2C$ dans Fe, Cr dans Ti, $V_3N$ dans V...), ou la transformation martensitique (Ti, Zr, Li, Be, Y[Rey77], Fe sous haute pression...) mettent en jeu des relations c.c.-h.c.[4]. Trois relations d'orientations sont généralement rencontrées ; elles sont résumées dans le tableau 1.1 [Bur34, PS58, Pot73].

| Burgers | Pitsch-Schrader | Potter |
|---|---|---|
| $(0001)_\alpha \| (011)_\beta$ | $(0001)_\alpha \| (011)_\beta$ | $(0001)_\alpha$ à 2 ° de $(011)_\beta$ |
| $[2\bar{1}\bar{1}0]_\alpha \| [1\bar{1}1]_\beta$ | $[11\bar{2}0]_\alpha \| [100]_\beta$ | $(01\bar{1}1)_\alpha \| (110)_\beta$ |
| | $[01\bar{1}0]_\alpha \| [1\bar{1}0]_\beta$ | $[2\bar{1}\bar{1}0]_\alpha \| [1\bar{1}1]_\beta$ |

**Tableau 1.1 :** *Principales relations d'orientation entre un réseau c.c. et un réseau h.c.*

Jusqu'à la fin des années 90, les théories appliquées à la transformation c.c.-h.c. avaient avant tout une valeur explicative : en partant d'une relation d'orientation connue, il est possible de justifier celle-ci sur la base de correspondances de sites atomiques, de plans denses ou de lignes invariantes [Dul93]. La théorie de correspondance d'arêtes de Zhang et Kelly (*edge-to-edge matching*) [ZK05b] permet en revanche de prédire toute une série de relations à partir de considérations principalement géométriques. Les plans et directions denses sont tout d'abord identifiés, puis un critère d'écart à la coïncidence (*interatomic spacing misfit*) est calculé pour les différentes correspondances cristallographiques qu'il est possible de former entre les phases mère et fille. La relation d'orientation prédite est celle qui présente l'écart à la coïncidence le plus faible. Dans le cas du titane et du zirconium, $a_{h.c.}/a_{c.c.}$ et $c_{h.c.}/a_{h.c.}$ valent environ 0,89

[4]Le cas du fer revêt une certaine importance dans d'autres domaines que la science des matériaux. Certains travaux, en effet, attribuent une partie de l'activité sismique de la Terre aux déformations générées par la transformation c.c.-h.c. ($\theta \rightarrow \epsilon$) [VAG$^+$03].

et 1,59, ce qui indique qu'ils doivent suivre la relation de Burgers (figure 1.5). Hormis un cas unique d'échantillon brut de trempe signalé par Akhtar en 1976 [Akh76], c'est effectivement le cas et cela a été confirmé dans de nombreux travaux [NG53, vGB52, McH53]. D'après les données disponibles, et indépendamment de considérations d'ordre cinétique, le hafnium, de rapport $a_{h.c.}/a_{c.c.}$ égal à 0,89, devrait également suivre la relation de Burgers [5].

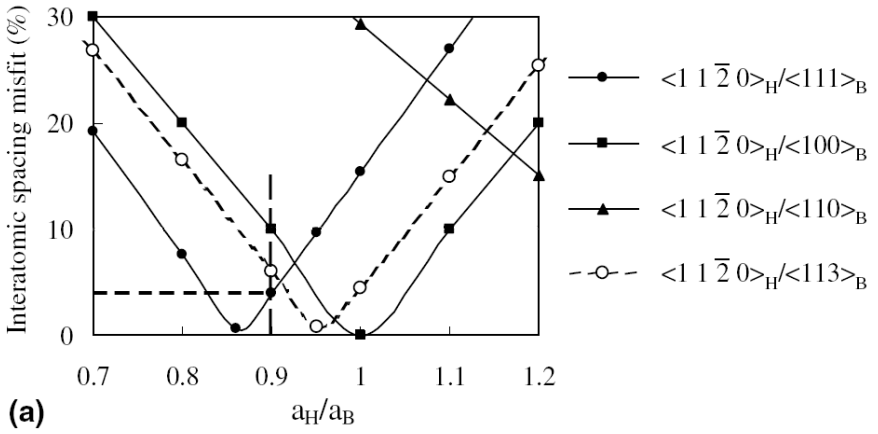



**Figure 1.5 :** *Prédiction des relations d'orientation c.c.-h.c. en fonction des paramètres de mailles (d'après [ZK05a]). Les tirets correspondent au titane, au zirconium et au hafnium.*

La figure 1.6 permet de visualiser la construction d'une maille élémentaire hexagonale à partir de 5 mailles cubiques centrées.

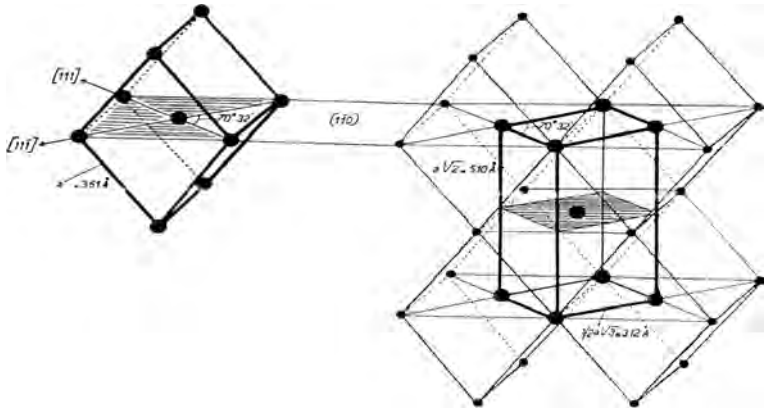



**Figure 1.6 :** *Relation de Burgers : construction d'une maille prismatique à partir de 5 mailles cubiques centrées (d'après [Bur34]).*

[5] Dans le cadre d'une étude, non présentée ici, visant à prouver la validité des relations de Burgers pour le hafnium refroidi depuis l'état fondu, nous avons été amenés à effectuer à fins de comparaison des expériences de fusion et refroidissement d'échantillons de Zircaloy-4 et de TA6V. Pour les deux matériaux, la microstructure formée est de type martensitique, et vérifie lesdites relations. Ce résultat est en contradiction avec celui d'Akhtar.

L'angle entre deux directions $<111>_\beta$ contenues dans un même plan $(110)_\beta$ vaut 70,53 °. Il doit passer à 60 ° au cours de la transformation. Le mécanisme proposé par Burgers considère d'abord une maille hexagonale dont les directions $<11\bar{2}0>_\alpha$ sont à angle égal des directions $<111>_\beta$, figure 1.7 à gauche (cette configuration est celle de Potter). Une rotation de corps solide est ensuite appliquée de manière à faire coïncider l'un des axes $<a>_\alpha$ avec l'une des grandes diagonales $<111>_\beta$. L'angle vaut 5,26 °. Un mécanisme de cisaillement sur les plans $\{112\}_\beta$ selon une direction $<111>_\beta$ permet ensuite d'ajuster les angles de la base du prisme. La transformation s'accompagne donc d'une distorsion de réseau (*distorsion de Bain*).

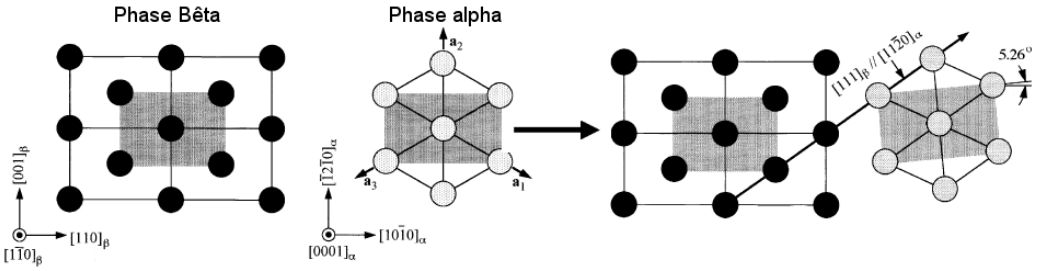



**Figure 1.7 :** *Relation de Burgers : alignement d'un axe $<a>_\alpha$ avec une direction $<111>_\beta$ par rotation de corps solide [KOF01].*

En fonction du sens de rotation, chaque plan $\{110\}_\beta$ peut donc être à la base de deux cristaux alpha d'orientations distinctes. Ces deux cristaux ont le même axe <c>, mais sont désorientés de 10,53 ° autour de celui-ci (figure 1.8). Chaque maille cubique contenant 6 plans $\{110\}_\beta$, 12 cristaux alpha d'orientations différentes peuvent être formés à partir d'un seul cristal bêta initial. Ces différentes orientations sont désignées par le terme de *variants*[6]. Notons que la transformation inverse alpha → bêta ne laisse que 6 possibilités d'orientation bêta pour un grain alpha initial.

Les relations cristallographiques entre variants issus d'un même grain bêta découlent de la définition des relations de Burgers. 66 paires de variants peuvent être formées ($= C_2^{12}$). Par le jeu des symétries, les relations de désorientations minimales entre variants se réduisent à 5 [Cha04]. Elles sont résumées dans le tableau 1.2. Il est à noter que ces relations sont indépendantes du rapport $c/a_\alpha$ et sont donc aussi valables pour le titane.

Les axes de désorientation sont repérés sur la figure de pôles inverse présentée figure 1.9.

A l'échelle locale, si 12 variants alpha sont susceptibles d'être formés dans un grain bêta, en pratique seuls quelques-uns sont présents en fin de refroidissement [BMC05, GGH$^+$02]. Il s'agit

[6]Le concept de variant est indissociable des transformations polymorphiques, dont nous n'étudions ici qu'un cas particulier. Les aciers, les bronzes, les matériaux ferroélectriques, et plus généralement les alliages ordonnés présentent eux aussi des transformations dans lesquelles une phase mère peut donner naissance à plusieurs phases filles d'orientations différentes.

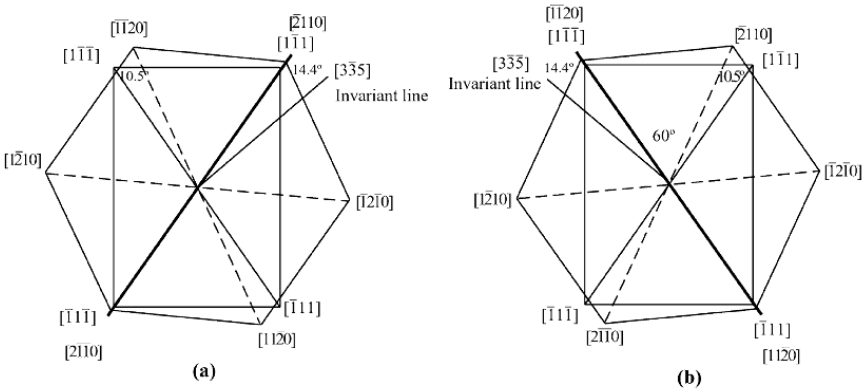



**Figure 1.8 :** *Relations géométriques entre deux variants (a) et (b) de même plan basal (d'après [BVD+ 03]).*

| Valeur numérique (°) | Valeur analytique | Axe de zone |
|---|---|---|
| 10,529 | $2\left[\pi/3 - \cos^{-1}(1/\sqrt{3})\right]$ | [0001] |
| 60 | $\pi/3$ | $[11\bar{2}0]$ |
| 60,832 | $\cos^{-1}(\frac{2\sqrt{6}-1}{8})$ | $d_1$ à 80,97 ° de <c> dans le plan ($d_3$,c) |
| 63,252 | $\cos^{-1}(\frac{4\sqrt{6}+1}{24})$ | $d_2$ à 17,56 ° de <a> dans le plan (a,c) |
| 90 | $\pi/2$ | $d_3$ à 5,26 ° de <a> dans le plan basal |

**Tableau 1.2 :** *Relations de désorientation minimales entre paires de variants issus d'un grain bêta commun [CBM06, GH02, WAS03].*

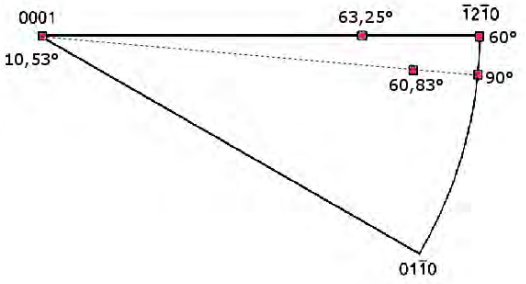



**Figure 1.9 :** *Axes de zone et angles de désorientation associés entre paires de variants formés au cours de la transformation c.c.→h.c. (d'après [SB05]).*

du phénomène de sélection de variants. La figure 1.10 en montre un exemple. Plusieurs facteurs d'origine intrinsèque et extrinsèque concourent à ce phénomène. Pour les premiers, il peut s'agir de contraintes variables selon les grains, générées par le mécanisme de transformation et par la contraction thermique. La seconde catégorie concerne les contraintes ou gradients thermiques appliquées à la pièce. A une échelle plus globale, et en illustration de la notion d'hérédité structurale, lorsque la phase bêta est texturée, la phase alpha l'est également après refroidissement.

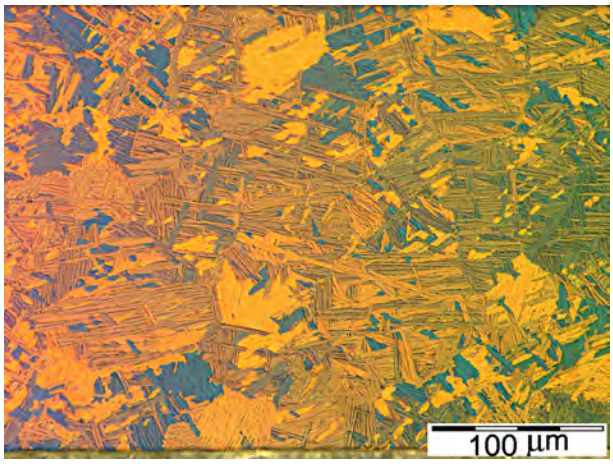



**Figure 1.10 :** *Exemple de sélection de variants : vue en coupe transverse d'une tôle laminée à 1050 °C, trempée à l'eau (direction de compression verticale). Noter la proportion élevée de lamelles horizontales, perpendiculaires à la direction de compression.*

### 1.2.4 Aspect morphologique

L'étude bibliographique du sujet, tant pour le titane que le zirconium, montre que la terminologie employée pour décrire les microstructures manque parfois d'homogénéité. Il nous apparaît donc utile de procéder à une clarification des termes utilisés dans ce mémoire. Nous distinguerons tout d'abord la microstructure *martensitique* de la microstructure *bainitique*. La première est souvent qualifiée d'aciculaire, en raison de l'aspect aiguillé des plaquettes coupées par le plan d'observation. La seconde est dite *de Widmanstätten*, en hommage au minéralogiste éponyme qui en découvrit le premier exemple dans une météorite ferreuse [Smi60]. Les plaquettes peuvent être groupées parallèlement, en paquets appelés colonies. Selon l'importance des colonies et la complexité de leur enchevêtrement, la microstructure est dite *en platelets parallèles* (colonies larges, peu d'enchevêtrements), ou *en vannerie* (colonies fines, enchevêtrements nombreux), la plupart des cas étant intermédiaires. A titre d'exemple, les figures 1 et 2 présentent une microstructure en vannerie dans le Zircaloy-4, et une microstructure à platelets parallèles dans du TA6V, observées sur des échantillons portés à 1050 °C puis refroidis à l'air et en four coupé, respectivement. La figure 1.12 quant à elle donne un exemple de microstructure martensitique dans un échantillon

de TA6V trempé à l'eau. Le tableau 1.3 résume ces notions.

| Microstructure | Eléments d'alliage | Structure interne | Enchevêtrement |
|---|---|---|---|
| Martensitique | Sursaturation | Très écrouie | Complexe |
| Vannerie | Ségrégation aux bords | Peu écrouie | Complexe |
| Platelets parallèles | Ségrégation aux bords | Peu écrouie | Simple |

**Tableau 1.3 :** *Classification simplifiée des microstructures de trempe et de leurs caractéristiques.*

En fonction des auteurs, la qualification *de Widmanstätten* peut concerner les microstructures en platelets parallèles et vannerie [OKK53, OK70, WT79, MAW$^+$03], en vannerie uniquement [SB01, Flo90], ou aucune des deux [SVN$^+$99, DGW02]. Notons que la microstructure observée par Alois von Wimanstätten était de type vannerie (figure 1.11).

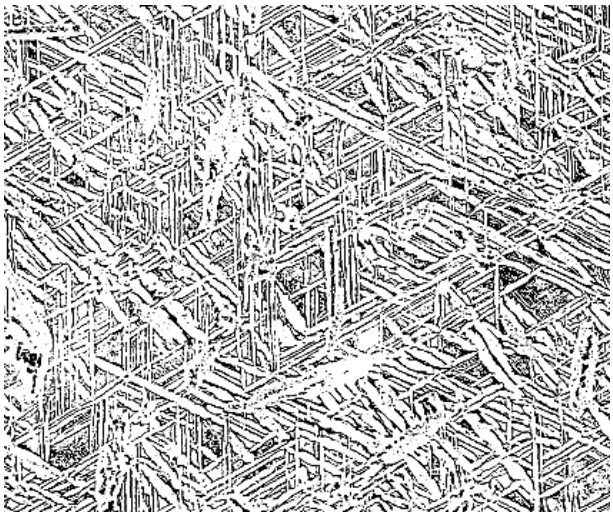


**Figure 1.11 :** *Macrographie de la microstructure observée par Alois von Widmanstätten dans une météorite ferreuse en 1808 (détail d'après [Smi60], échelle indisponible).*

Dans la suite du mémoire, l'expression *microstructure lamellaire* sera synonyme de *microstructure de Widmanstätten*, qu'elle soit de type platelets parallèles, vannerie ou mixte. Il reste sous-entendu qu'une telle microstructure est le produit d'une transformation displacive-diffusive, c'est-à-dire bainitique. Par ailleurs, l'expression *microstructure martensitique* sera préférée à *microstructure aciculaire* ou *aiguillée*. Enfin, les termes *platelet*, *plaquette*, *latte* et *lamelle* seront équivalents.

La microstructure de trempe bêta du Zircaloy-4 et du TA6V s'organise selon trois échelles :

– les anciens grains bêta,
– les colonies,
– les lamelles.

Les colonies regroupent des lamelles parallèles possédant la même orientation cristallogra-

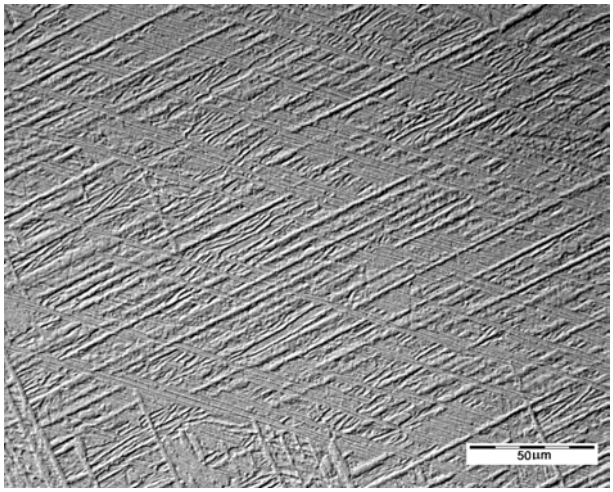



**Figure 1.12 :** *Martensite dans un échantillon de TA6V maintenu 10 minutes à 1050 ℃ puis trempé à l'eau.*

phique. Dans le Zircaloy-4, elles sont délimitées par un liseré discontinu de précipités intermétalliques, et par de la phase bêta résiduelle dans le TA6V. Chaque grain bêta peut donner naissance à 12 orientations cristallographiques distinctes, réparties en un nombre quelconque de colonies, expérimentalement plus élevé pour la structure en vannerie que pour la structure en platelets parallèles.

La morphologie des lamelles est étroitement liée à la cristallographie. Dans le cas du TA6V, il a été établi que l'axe <c> est contenu dans le plan des lamelles et que celles-ci croissent selon une direction $[\overline{3}35]_\beta$, qui est une ligne invariante dans les réseaux alpha et bêta [SVN+99] (figures 1.8 et 1.13). Dans le cas d'un alliage Zr-2,5Nb, Banerjee [BDSR97] identifie la direction $[\overline{3}34]_\beta$.

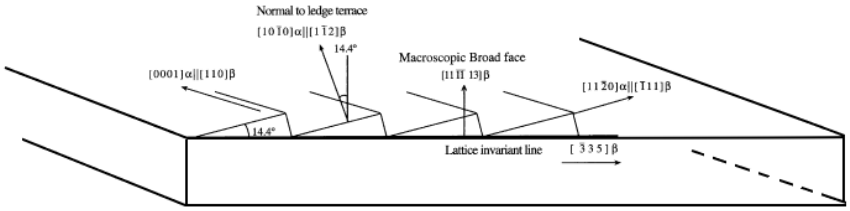



**Figure 1.13 :** *Rapport entre la cristallographie et la morphologie d'une lamelle alpha dans un alliage de titane alpha/bêta [BVD+03].*

Dans les alliages de titane alpha/bêta, la nucléation de la phase alpha débute en général aux joints de grains, par le biais d'un mécanisme de type majoritairement diffusif [vBSvdZ06]. La phase formée est parfois désignée par le terme $\alpha_{GB}$ (*Grain Boundary*). Son orientation résulte d'un compromis entre les orientations des grains bêta séparés par le joint [BVD+03], et sa forme

ne présente pas de relations évidentes avec la symétrie cristalline de la phase alpha ; il s'agit d'une phase dite *allotriomorphe*. Cette phase est d'autant plus présente que la vitesse de refroidissement est faible, ceci en raison du caractère diffusif de sa formation [SE78]. La morphologie lamellaire apparaît par germination sympathique de lamelles sur cette couche allotriomorphe ; elle est dénommée phase $\alpha_{WGB}$ (*Widmanstätten Grain Boundary*) [MA87, ASM$^+$95]. Certains auteurs distinguent un troisième type de phase, à germination intragranulaire, se développant aussi sous forme de lamelles (phase $\alpha_{WI}$ – *Widmanstätten Intragranular*) [FS88, DCTAAG$^+$07]. Une faible désorientation est souvent observée entre la couche allotriomorphe et les lamelles $\alpha_{WGB}$, de telle sorte que celles-ci respectent les désorientations de Burgers avec les autres colonies présentes dans l'ancien grain bêta. D'une manière générale, ce schéma est aussi observé dans la formation de la ferrite à partir de l'austénite [Bha01, PSD05].

A notre connaissance, l'usage de ces définitions ne s'est pas étendu aux alliages de zirconium, en dépit de microstructures voisines. Si la distinction entre germination inter- et intragranulaire dans les Zircaloys est bien établie, et invoquée pour rendre compte des différents types de microstructure [Hol70], la phase allotriomorphe a été moins étudiée (cf. cependant [Rum74], où l'auteur présente une phase qu'il appelle $\alpha^*$, localisée le long des anciens joints de grain bêta).

Eu égard aux hautes températures mises en jeu, la transformation allotropique du hafnium est moins connue que celles des alliages de titane et de zirconium ; la littérature ne fait pas mention de microstructure martensitique ou lamellaire dans le hafnium. L'observation d'une telle microstructure serait de nature à confirmer la pertinence de la théorie de correspondance d'arêtes.

Indépendamment des mécanismes de sélection des variants, les conditions de maintien en phase bêta, la vitesse de refroidissement et la composition de l'alliage sont les principaux paramètres qui déterminent les propriétés de la microstructure de trempe.

La nature partiellement diffusive de la transformation bainitique rend les dimensions caractéristiques de la microstructure tributaires de la distance de diffusion des éléments d'alliage lors de la trempe. En l'occurrence, la diffusion du vanadium dans le TA6V contrôle la cinétique de transformation [FS88, GGMP01]. La longueur de diffusion des espèces chimiques dépend de la vitesse de refroidissement, discutée plus loin, ainsi que de la température de début de transformation bêta/alpha. Comme dans les aciers, la température de début de transformation (*Widmanstätten start temperature*, $W_s$) est fonction de la taille de grain initiale, donc de la température et du temps de maintien en phase bêta [AEC$^+$89]. Ainsi, dans le TA6V, Gil et al. [GGMP01] observent que l'épaisseur des lamelles décroît avec l'augmentation de taille de grain bêta. En revanche, cette corrélation n'est pas mentionnée dans les études de Holt [Hol70], Massih et al. [MAW$^+$03] et Woo et Tangri [WT79] sur les alliages de zirconium.

Holt [Hol70] a étudié les différents types de microstructures formées au passage de la phase bêta à la phase alpha pour différentes vitesses de refroidissement. Pour des vitesses comprises entre 2 et 200 K/s, il a observé des microstructures bainitiques. A 2000 K/s, la transformation

est de type martensitique. Woo et Tangri [WT79] ont mis en évidence le rôle de la concentration en oxygène et de la vitesse de refroidissement sur la nature de la microstructure. Leurs observations montrent que l'épaisseur des lamelles décroît avec la vitesse de refroidissement, indice d'un caractère diffusif de la transformation, jusqu'à devenir constante pour les vitesses élevées, correspondant à une transformation de type martensitique. Approximativement, l'épaisseur des lamelles varie entre 5 µm et 0,5 µm pour des vitesses de refroidissement comprises entre 100 et 1300 K/s, puis devient constante au-delà[7]. Ils proposent la séquence suivante pour résumer l'influence d'une vitesse de refroidissement croissante sur la microstructure : alpha lenticulaire (formes irrégulières) → platelets parallèles → vannerie → martensite. A la différence des aciers, la transformation martensitique/bainitique des alliages de titane et de zirconium est assez peu durcissante [OKK53, Cha82, Rum75].

D'une manière générale, hormis les cas où la transformation massive est rapportée, les travaux ultérieurs corroborent les résultats des études systématiques de Holt et de Woo et Tangri. Massih et al. [MAW+03] observent une microstructure de Widmanstätten pour des vitesses de refroidissement comprises entre 3 et 83 K/s pour le Zircaloy-2 bas étain, et mesurent des épaisseurs de lamelles voisines de celles de Woo et Tangri pour une teneur en oxygène équivalente. Crépin [CBC97] note lui aussi une microstructure bainitique dans le zirconium grade 702 (nuance équivalente au Zircaloy-4 en usage dans l'industrie chimique) refroidi à environ 15 K/s. Charquet et Alhéritière placent la limite de la transformation martensitique à 1000 K/s [CA87], alors que Hong et al. [HKL99] l'estiment à 1500 K/s, et Rumball à environ 2000 K/s [Rum74]. Si une tendance existe, la relative dispersion de ces valeurs met surtout en évidence le manque de mesures précises de vitesses de refroidissement et de définition unanime des microstructures de transformation bêta.

Les éléments d'alliage influencent le type de microstructure en modifiant l'étendue du domaine biphasé. La teneur en oxygène, en particulier, a tendance à augmenter la taille des lamelles, à réduire l'apparition de martensite et à favoriser la formation de platelets parallèles [WT79]. Lors de la transformation bainitique, les éléments peu solubles en phase alpha (Fe et Cr), tendent à ségréger aux abords des plaquettes, et à former des précipités intermétalliques répartis en liserés discontinus. Inversement, l'étain est très soluble en phase alpha, et, ainsi qu'il a été observé par Bangaru [Ban85] et Crépin [CBC97], il est donc plus abondant au coeur des lamelles qu'en leur périphérie. Il en résulte un affaiblissement mécanique localisé aux abords des lamelles [CBC97]. La présence des éléments P, C, Si est susceptible d'entraîner la formation de particules stables à haute température. Celles-ci peuvent servir de sites de germination intragranulaires de la phase alpha, en compétition avec les joints de grains [OK70, FN82, QN84]. La microstructure résultante

[7] Notons que l'évaluation quantitative de l'épaisseur des lamelles à partir de vues en deux dimensions souffre théoriquement d'une légère surévaluation, due aux orientations variables des lamelles par rapport au plan de coupe : si $\theta$ est l'angle entre la normale à la lamelle et le plan de coupe, l'épaisseur apparente varie en $1/cos\theta$. Sauf dans le cas particulier où la lamelle est perpendiculaire au plan de coupe, l'épaisseur apparente est donc toujours supérieure à l'épaisseur réelle.

tend alors à être de type vannerie.

### 1.2.5 Résumé

La transformation bêta → alpha du Zircaloy-4 passe continûment d'un type martensitique à un type bainitique pour des vitesses de refroidissement décroissantes. Les relations de Burgers sont vérifiées dans tous les cas, en accord avec les prédictions de la théorie de correspondance d'arêtes. La transformation bainitique s'accompagne de la ségrégation d'éléments d'alliage menant à la formation de précipités intermétalliques répartis sous forme de liseré discontinu entre les lamelles. Au sein d'une même colonie, les lamelles ont la même orientation cristallographique. La microstructure en vannerie est favorisée par les vitesses de refroidissement rapides, les faibles teneurs en oxygène et la présence de particules insolubles. D'un point de vue morphologique et cristallographique, la situation est semblable dans le TA6V, à l'exception de la présence de phase bêta stabilisée à température ambiante par les éléments d'alliage.

## 1.3 Mécanismes de déformation

Poirier et le Hazif [PLH76], ainsi que Partridge [Par67] ont présenté des études approfondies des systèmes de glissement des hexagonaux. Le cas du zirconium a pour sa part été synthétisé par Tenckhoff [Ten88].

Il importe de noter que les systèmes de déformation des métaux hexagonaux ne sont pas aussi symétriquement distribués dans l'espace que ceux des métaux cubiques. Les systèmes primaires sont moins nombreux et leur action est circonscrite à l'accommodation des déformations selon la direction <a>. Le maclage est donc essentiel à la ductilité de ces alliages. Par ailleurs, les cissions résolues critiques des différents systèmes peuvent varier considérablement d'un système à l'autre.

Ces quatre facteurs – asymétrie et nombre limité de systèmes de glissement, importance du maclage et disparité des cissions résolues critiques – sont à l'origine des fortes textures de déformation et de recuit observées dans les hexagonaux.

Le cas des métaux de structure hexagonale est encore particulier en ce sens que les dimensions caractéristiques de la maille, résumées par le rapport c/a, varient d'un métal à l'autre. Par ailleurs, les distances interréticulaires des plans non basaux ne sont pas constantes. La géométrie cristalline du matériau étudié s'ajoute donc aux paramètres génériques par lesquels se déterminent les systèmes de déformation principaux.

### 1.3.1 Systèmes de glissement

Dans les métaux de structure hexagonale, le glissement des dislocations s'opère suivant quatre plans (basal B, prismatique P, pyramidaux de première et deuxième espèce $\Pi_1$ et $\Pi_2$) et deux

directions (<a> et <c+a>) – figure 1.14 et tableau 1.4. Cinq systèmes de glissement sont donc possibles : basal (B <a>), prismatique (P <a>), et trois systèmes pyramidaux, dont deux peuvent accommoder les déformations selon la direction <c> ($\Pi_1$ <a>, $\Pi_1$ <c+a>, $\Pi_2$ <c+a>).

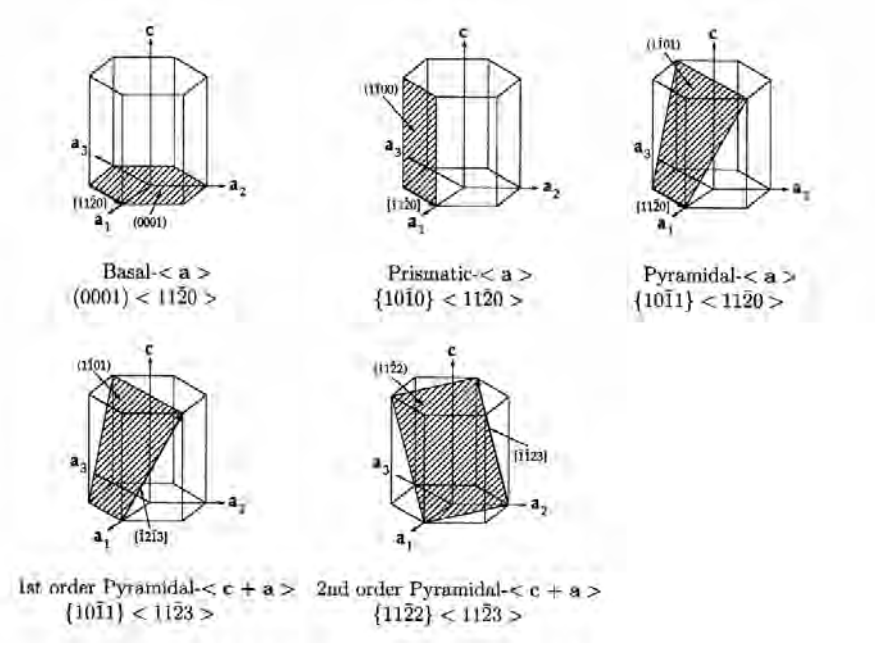



**Figure 1.14 :** *Plans et directions de glissement dans les métaux de structure hexagonale [BA02].*

| Plan | Direction | Nombre de systèmes |
|---|---|---|
| B $\{0001\}$ | <a> $<11\bar{2}0>$ | 3 |
| P $\{10\bar{1}0\}$ | <a> $<11\bar{2}0>$ | 3 |
| $\Pi_1$ $\{10\bar{1}1\}$ | <a> $<11\bar{2}0>$ | 6 |
| $\Pi_1$ $\{10\bar{1}1\}$ | <c+a> $<11\bar{2}3>$ | 12 |
| $\Pi_2$ $\{11\bar{2}2\}$ | <c+a> $<11\bar{2}3>$ | 6 |

**Tableau 1.4 :** *Systèmes de glissement des métaux de structure hexagonale.*

Dans les métaux de structure hexagonale, les systèmes de déformation avec une composante <c> ont une cission résolue critique plus élevée que ceux opérant uniquement dans la direction <a> [Zae03]. Le système de glissement principal d'un métal donné est donc de type basal ou prismatique. Différentes hypothèses ont été formulées pour rendre compte de la prédominance de l'un des deux systèmes par rapport à l'autre dans différents métaux. Les premières approches ont mis en jeu les densités relatives des plans prismatiques et basal, ou bien la variabilité des frictions de réseau. Le cas du béryllium, de glissement principal basal, restait cependant problématique. Le modèle proposé par Legrand [Leg84], en revanche, décrit correctement la répartition des systèmes

de glissement principaux pour les différents métaux hexagonaux. Il repose sur la prise en compte des énergies de défaut d'empilement ainsi que des constantes d'élasticité, résumées par un facteur

$$R = \frac{C_{66} \cdot \gamma_B}{C_{44} \cdot \gamma_P} \tag{1.1}$$

avec

– $C_{66}$ et $C_{44}$ : constantes élastiques

– $\gamma_B$ et $\gamma_P$ : énergies de défaut d'empilement dans les plans basal et prismatique

Pour des valeurs de ce paramètre inférieures à 1, la glissement facile est de type basal, alors qu'il devient prismatique pour des valeurs supérieures (tableau 1.5).

| Elément | Rapport c/a | $\frac{C_{66} \cdot \gamma_B}{C_{44} \cdot \gamma_P}$ | Système de glissement principal |
|---|---|---|---|
| Cadmium | 1,886 | 0,2 | B |
| Cobalt | 1,623 | 0,2 | B |
| Magnésium | 1,624 | 0,25 | B |
| Zinc | 1,856 | 0,25 | B |
| Béryllium | 1,568 | 0,6 | B |
| Rhénium | 1,615 | 0,9 | P/B |
| Ruthénium | 1,584 | 1,7 | P |
| Hafnium | 1,582 | 2,1 | P |
| Zirconium | 1,593 | 2,3 | P |
| Titane | 1,587 | 2,5 | P |
| Yttrium | 1,571 | 3,5 | P |

**Tableau 1.5 :** *Systèmes de glissement principaux des métaux de structure hexagonale.*

Dans le cas du titane et du zirconium, le système de glissement principal est prismatique. Il s'effectue par glissement de dislocations <a> $< 11\bar{2}0 >$ sur des plans de type $\{10\bar{1}0\}$. Les systèmes de glissement secondaires sont de types basal et pyramidaux. Le critère de Taylor, basé sur l'hypothèse que la déformation plastique est due uniquement à la combinaison des systèmes de glissement, impose le nombre de cinq systèmes de glissement indépendants pour l'accommodation de tout type de déformations. Cela accorde une importance particulière aux systèmes incluant des dislocations <c+a>.

La facilité relative des systèmes de glissement dépend principalement de la température et des éléments d'alliage. Des études menées sur le zirconium alpha et le titane alpha mettent en évidence une forte de dépendance de la cission résolue critique du système prismatique avec la température, dépendance d'autant plus marquée que la température est basse. Le franchissement thermiquement activé des vallées de Peierls est généralement évoqué pour rendre compte de ce résultat. La présence d'éléments d'alliage interstitiels, en particulier d'oxygène, a pour effet de renforcer cette tendance. La présence d'oxygène entraîne également l'apparition d'un palier dans l'évolution de la cission résolue critique du système prismatique aux environs de 350 °C. Un

effet de sensibilité inverse à la vitesse de déformation accompagne généralement la présence de ce palier [MC68, DIRF80]. Les interactions dynamiques entre le coeur des dislocations et les éléments interstitiels permettent d'expliquer cette particularité [MT80].

Au regard du système prismatique, le système de glissement basal et les systèmes de glissement pyramidaux sont secondaires. Leur facilité relative d'activation augmente cependant avec la température (figure 1.15).

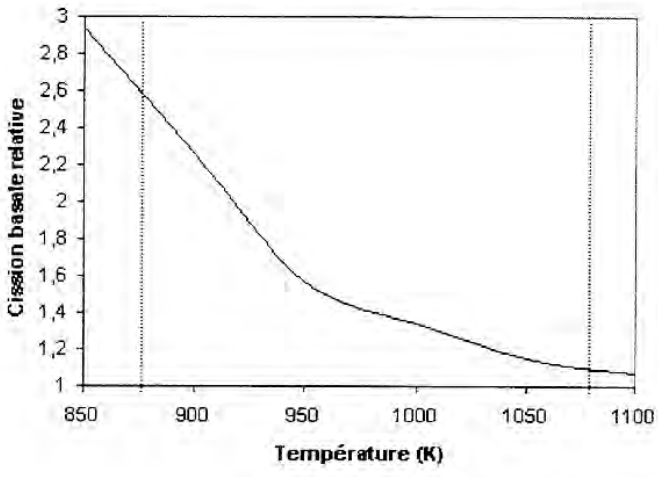



**Figure 1.15 :** *Rapport des cissions résolues critiques des systèmes basal et prismatique du Zircaloy-4 en fonction de la température [Log99].*

Les travaux de Akhtar [Akh75] sur des monocristaux de zirconium alpha montrent que le glissement basal apparaît pour des températures supérieures à 850 K dans des échantillons orientés de manière adéquate. A plus basse température, le glissement prismatique et le maclage sont prépondérants. Dans les polycristaux de Ti, Mg et Be, Yoo et al. [YAMH01] ont montré que les systèmes pyramidaux de direction <c+a> pouvaient être activés à partir de défauts inter- ou intragranulaires, comme des joints de grains ou des jonctions entre dislocations. Cette observation est en accord avec l'idée selon laquelle les glissements pyramidaux et basal sont des modes de glissement dévié du système prismatique [LSC$^+$00, YAMH01].

Dans le Zircaloy-4, les éléments en solution interstitielle favorisent l'activation des systèmes <c+a> [LSC$^+$00]. Le fer tend à supprimer le glissement basal [YAMH01]. A cet égard, mentionnons que la composition de la phase alpha varie en fonction de la température, en raison de la redistribution de l'étain, du fer et du chrome. L'augmentation de la teneur en fer peut ainsi défavoriser le glissement basal aux hautes températures [YAMH01].

Il est également établi que les systèmes de glissement du zirconium et de ses alliages obéissent à la loi de Schmid [Akh75, Cré95]. La figure 1.16 présente les valeurs de facteur de Schmid en compression uniaxiale pour différentes orientations de l'axe <c> par rapport à la direction de chargement.

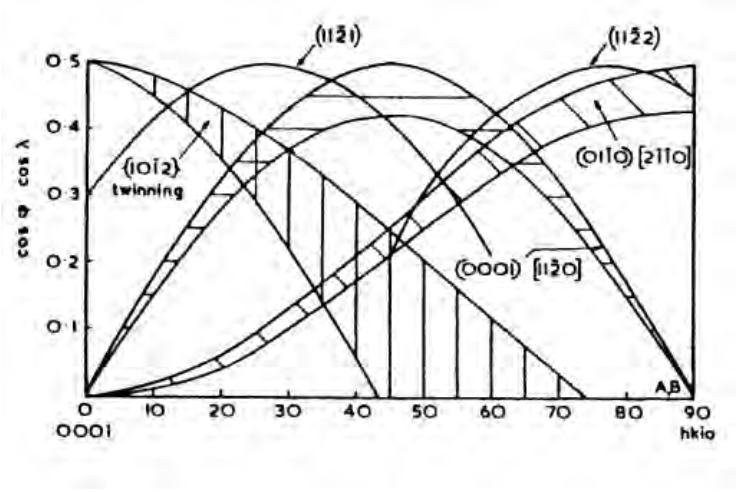



**Figure 1.16 :** *Valeurs du facteur de Schmid pour différents systèmes de déformation dans les hexagonaux [Par67], en fonction de l'inclinaison de l'axe <c> par rapport à la direction de chargement. L'étalement des courbes correspond à une rotation de la maille autour de l'axe <c>.*

### 1.3.2 Maclage

Dans les métaux de structure hexagonale, le maclage permet de rendre compte, en compétition avec le glissement pyramidal, de l'accommodation des déformations selon l'axe <c>. Expérimentalement, il apparaît que la ductilité du titane et du zirconium est corrélée avec la facilité de maclage [Yoo81].

Le maclage peut être décrit géométriquement au moyen des éléments présentés figure 1.17. Lors du maclage, la cellule définie par $\vec{\eta_1}$, $\vec{\eta_2}$, $\vec{S}$ est déformée en une cellule $\vec{\eta_1}$, $\vec{\eta_2}'$, $\vec{S}$ de même volume. Le cisaillement est homogène et s'effectue parallèlement au plan équatorial $K_1$, de telle sorte que les réseaux initial et déformé sont en relation de symétrie par rapport à celui-ci. Les angles et distances interatomiques sont conservées dans ce plan, ainsi que dans le plan $K_2$. Ces deux plans invariants $K_1$ et $K_2$ sont normaux au plan de cisaillement S, et leurs intersections avec celui-ci définissent les directions $\vec{\eta_1}$ et $\vec{\eta_2}$. La donnée de ces quatre éléments, $K_1$, $K_2$ et $\vec{\eta_1}$, $\vec{\eta_2}$, suffit à définir entièrement un système de maclage. Ainsi que le notent Philibert et al. [PVBC97], la définition du maclage et celle de la transformation martensitique sont voisines, à cela près que le maclage ne modifie pas la nature de la structure cristalline.

A la différence du glissement, le cisaillement produit est homogène dans le volume maclé, non localisé sur un plan, et requiert des déplacements atomiques relatifs égaux à une fraction de l'espacement interplanaire. L'activation du maclage est sensible à la direction de sollication (on parle de *polarisation* du maclage), ce qui se traduit par une distinction entre les macles dites de compression et les macles de traction. La catégorie à laquelle appartient chaque système de maclage dépend du rapport c/a. Le cas des métaux hexagonaux se distingue encore de celui des cubiques en cela qu'un réarrangement atomique à courte distance (*shuffle*) s'ajoute au ci-

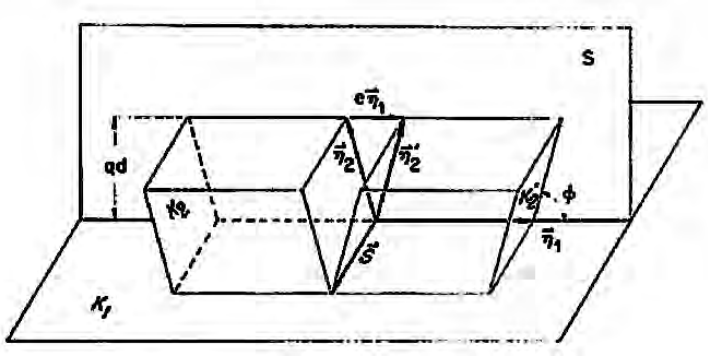



**Figure 1.17 :** *Définition géométrique du maclage [Yoo81].*

saillement proprement dit pour amener les atomes en position finale. Ce réarrangement est rendu nécessaire par la variabilité de la distance interplanaire. A l'échelle macroscopique, le cisaillement reste cependant homogène.

Le tableau 1.6 présente les systèmes de maclage les plus courants du zirconium et du titane.

| Sollicitation | Plan $K_1$ | Direction $\eta_1$ | Axe de rotation S | Angle de rotation |
|---|---|---|---|---|
| Traction | $(10\bar{1}2)$ | $<\bar{1}011>$ | $<2\bar{1}\bar{1}0>$ | 84,79 ° |
| Traction | $(11\bar{2}1)$ | $<\bar{1}\bar{1}26>$ | $<10\bar{1}0>$ | 34,85 ° |
| Compression | $(11\bar{2}2)$ | $<\bar{1}\bar{1}23>$ | $<10\bar{1}0>$ | 64,23 ° |

**Tableau 1.6 :** *Systèmes de maclage courants du zirconium et du titane.*

Le maclage s'accompagne d'une réorientation abrupte d'une partie du matériau autour d'un axe normal au plan de cisaillement. Cette rotation entraîne des changements significatifs de texture lorsque la fraction volumique maclée est conséquente. La contribution du maclage à la déformation totale, en revanche, est modérée. A titre d'exemple, le maclage $(10\bar{1}2)$ complet d'un monocristal de zirconium sollicité en traction dans son orientation la plus favorable se traduit par une déformation de 8,35 % [Ten88].

S'il est admis que l'activation du maclage est sensible à l'orientation relative du cristal par rapport à la direction de sollicitation, l'existence d'une cission résolue critique n'a toujours pas reçu de réponse satisfaisante. Ce concept est cependant d'usage répandu, du fait de son utilité pour les études mettant en comparaison le glissement et le maclage par le biais de la loi de Schmid [MCM$^+$06, MVL01]. Les phénomènes de nucléation et croissance des macles sont assez mal connus et plusieurs mécanismes non exclusifs peuvent être invoqués pour en rendre compte [CM95]. Le manque d'accord sur les résultats de cission résolue critique peut ainsi s'expliquer par la diversité des hétérogénéités à l'origine du maclage [MW73, YL91]. Dans les hexagonaux, Song et Gray [SG95] soulignent par ailleurs l'importance de facteurs comme la densité de dislocations, la taille de grain, le type de maclage et la cohérence des interfaces sur la germination des macles.

Ce à quoi s'ajoutent la nature des dislocations présentes et leur mobilité, liée à l'énergie de défaut d'empilement. Mahajan et Williams notent ainsi que de faibles énergies de défaut d'empilement facilitent la nucléation des macles [MW73]. Dans le zirconium polycristallin, l'étude statistique de Bingert et al. [BMK$^+$02] met en évidence des écarts non négligeables du maclage à la loi de Schmid.

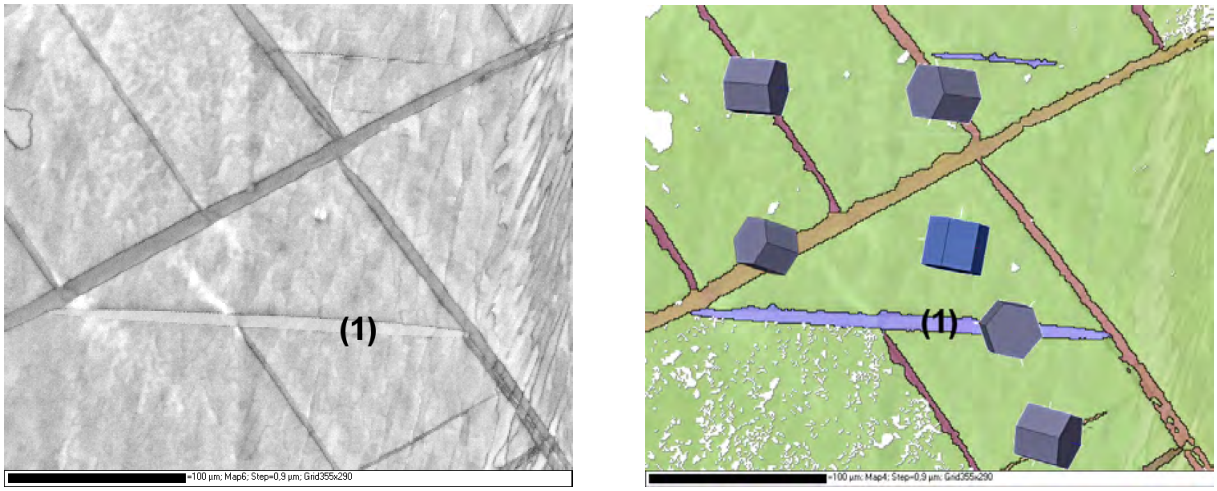
La forme plus ou moins aplatie qu'affectent les macles est dictée par la cohérence des interfaces avec la matrice, du cisaillement induit, ainsi que par les mécanismes de déplacement atomiques aux interfaces. Dans le titane et le zirconium à température ambiante, le système $(10\bar{1}2)$ est le plus fréquent, en raison du faible cisaillement qu'il implique et de la relative cohérence des interfaces. Il est parfois qualifié de lenticulaire, par opposition aux macles $(11\bar{2}1)$ et $(11\bar{2}2)$, d'aspect plus rectiligne [MW73, SG95].

A de nombreuses occasions, il a été nécessaire au cours de nos travaux d'identifier des macles $(10\bar{1}2)$ à partir de cartes d'orientations cristallines, aussi allons-nous décrire la démarche employée. La figure 1.18 montre de multiples macles dans un échantillon de Zircaloy-4 à l'état lamellaire. Le nombre de variants différents [8], 5 parmi les 6 possibles pour ce système, témoigne de la complexité de l'état de contraintes auquel a été soumise cette colonie. L'identification des macles par analyse EBSD s'appuie sur les informations résumées dans le tableau 1.6, c'est-à-dire la désorientation entre la matrice et la zone maclée ainsi que le type de plan $K_1$. Dans notre exemple, la matrice et la zone maclée (1) sont désorientées de 85 ° autour d'un axe <a> ; cette relation est identifiable à partir de la figure de pôles $<2\bar{1}\bar{1}0>$ (figure 1.18(c)), sur laquelle l'axe de zone entre la matrice et la macle (1) est indiqué par un cercle. A titre indicatif, les pôles des autres macles sont aussi repérés. La figure 1.18(d) met par ailleurs en évidence un plan $(10\bar{1}2)$ commun entre la macle (1) et la matrice. Il s'agit du plan $K_1$. Une construction géométrique permet de déterminer la trace de ce plan et de s'assurer qu'elle correspond bien à la trace de la macle, à peu près horizontale sur les cartographies. Il s'agit donc d'une macle lenticulaire $(10\bar{1}2)$. Notons que l'épaisseur apparente des macles, comme celle des lamelles, dépend de l'orientation du plan principal, en l'occurence le plan $K_1$ par rapport au plan d'observation.

Il est généralement considéré que la température a un effet défavorable sur la participation du maclage à la déformation. De fait, il est observé que le maclage est peu actif dans le titane et le zirconium déformés à chaud [MH53, PB70, Ten88]. Il semble que l'activation préférentielle des systèmes de glissement pyramidaux soit responsable de cette tendance [MCM$^+$06].

Néanmoins, le cas du Zircaloy-4 est à nuancer : la redistribution des éléments d'alliage à haute température, en particulier l'étain, peut faire baisser l'énergie de défaut d'empilement ; cette évolution est de nature à favoriser le maclage. Par ailleurs, Song et Gray [SG95] indiquent que la décroissance du rapport c/a avec la température favorise l'apparition des macles $(10\bar{1}2)$ par réduction de leur énergie d'interface. Ainsi, Fundenberger [FPE90] observe des macles dans le Zircaloy-4 au moins jusqu'à 350 °C. Chauvy [Cha04] en observe jusqu'à 550 °C dans des échan-

[8] Le terme de variant est applicable aux différentes orientations produites par un système de maclage.




(a) Contraste de bandes

(b) Orientations cristallines

(c) Figure de pôles $<2\bar{1}\bar{1}0>$

(d) Figure de pôles $(10\bar{1}2)$

**Figure 1.18 :** *Identification de macles lenticulaires* $(10\bar{1}2)$ *dans un échantillon de Zircaloy-4 trempé bêta.*

tillons déformés en compression uniaxiale. La contradiction apparente entre ces deux exemples et de nombreuses autres publications peut aussi trouver son origine dans d'autres facteurs peu fréquemment mentionnés, comme la taille de grain et la présence d'oxygène dans le matériau. Schématiquement, les petits grains maclent difficilement [SR95], et la teneur en oxygène, qui peut s'accroître par contamination lors des essais à haute température, favorise les glissements pyramidaux au détriment du maclage [Con81, NMK91, LSC$^+$00].

### 1.3.3 Résumé

Les mécanismes de déformation du Zircaloy-4 présentent des différences notables entre eux, qu'ils soient considérés du point de vue de l'anisotropie ou de la cission résolue critique. A haute température, les écarts de cission résolue critique s'estompent et les glissements pyramidaux sont activés plus facilement. La teneur en éléments d'alliage en solution est un facteur à ne pas négliger, car elle varie avec la température. A haute température, une teneur accrue en éléments interstitiels peut moduler, voire contrebalancer la réduction de cission résolue critique des systèmes pyramidaux. A cet égard, la présence de macles $(10\bar{1}2)$ a été mise en évidence par Chauvy [Cha04] à 550 °C.

## 1.4 Globulisation des microstructures lamellaires

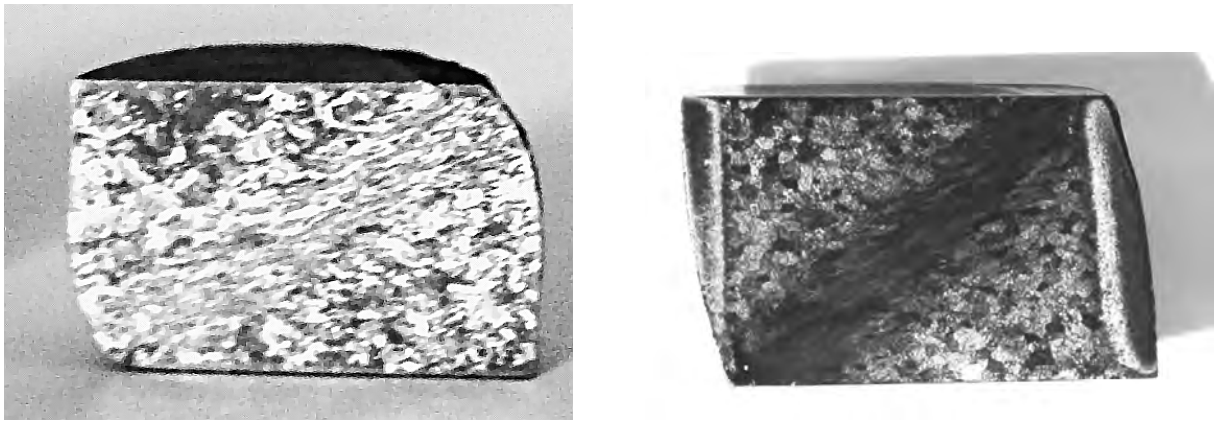
### 1.4.1 Description générale

La déformation des alliages de titane ou de zirconium s'accompagnent fréquemment d'hétérogénités. En compression, des bandes de cisaillement macroscopiques de type "croix du forgeron", sont fréquemment observées, et ce d'autant plus que la température est basse et la vitesse de déformation élevée. Cet effet est accentué par la faible conductivité thermique du matériau. Deux exemples sont présentés figure 1.19. De même, la décohésion de la matière (*cavitation*) est un phénomène courant dans les microstructures lamellaires (figure 1.20) [SSW98]). Ces hétérogénéités sortent cependant du cadre de cette étude, qui est avant tout axée sur les mécanismes de globulisation à haute température et leurs liens avec les hétérogénéités de déformation à l'échelle mésoscopique.

La globulisation désigne le processus qui transforme une microstructure lamellaire en microstructure équiaxe par une série de traitements thermomécaniques. Cette définition est relativement générale en raison de la méconnaissance des mécanismes précis de déformation et recristallisation [SSG99].

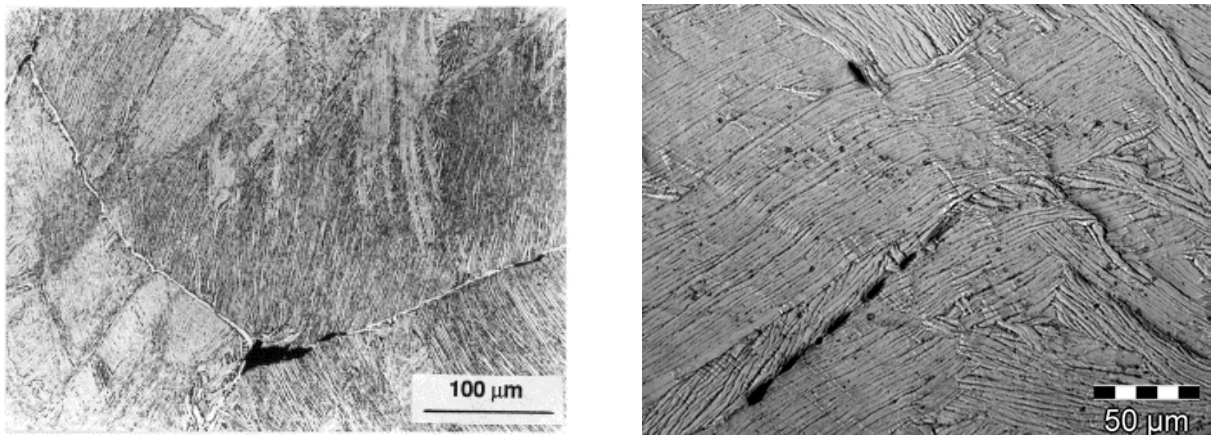
Cette évolution microstructurale peut être décrite à grands traits sur la base d'observations similaires dans les Zircaloy-2 et 4, les alliages de titane $\alpha/\beta$, en particulier le TA6V, et, dans une moindre mesure, les aluminiures de titane.

Dans ces matériaux, les colonies présentent différents comportements lorsque le matériau est



(a) TA6V (b) Zircaloy-4

**Figure 1.19 :** *Bandes de cisaillement macroscopiques dans un échantillon de TA6V et un échantillon de Zircaloy-4 déformés en compression uniaxiale (hauteur de l'ordre de 6,5 mm). TA6V : $T = 700$ °C, $\dot{\bar{\epsilon}} = 1\ s^{-1}$, $\bar{\epsilon} = 0,40$ ; Zircaloy-4 : $T = 750$ °C, $\dot{\bar{\epsilon}} = 3\ s^{-1}$, $\bar{\epsilon} = 0,45$.*




(a) Ti6242 (b) Zircaloy-4

**Figure 1.20 :** *Cavitation dans un échantillon de Ti-6Al-2Sn-4Zr-2Mo (Ti6242) et un échantillon de Zircaloy-4. Ti6242 : laminage à chaud [SSW98], Zircaloy-4 : compression plane bi-encastrée (channel-die) à température ambiante, $\dot{\bar{\epsilon}} = 0,1\ s^{-1}$, $\bar{\epsilon} = 0,25$. Directions de compression verticales.*

comprimé. Le plus remarquable est peut être désigné sous le terme de *microflambage* : alors que certaines colonies ont tendance à s'orienter perpendiculairement à la direction de compression, d'autres présentent des motifs de déformation semblables à du flambage macroscopique (figure 1.21). Ces zones, de même que les zones interlamellaires, sont des sites préférentiels pour la formation de cristallites. D'une façon générale, les zones de recristallisation sont distribuées de manière hétérogène. La poursuite de la déformation jusqu'au régime stationnaire mène à une structure équiaxe. Dans le Zircaloy-4, c'est une condition essentielle pour redistribuer les précipités intermétalliques et améliorer ainsi la tenue à la corrosion du produit.

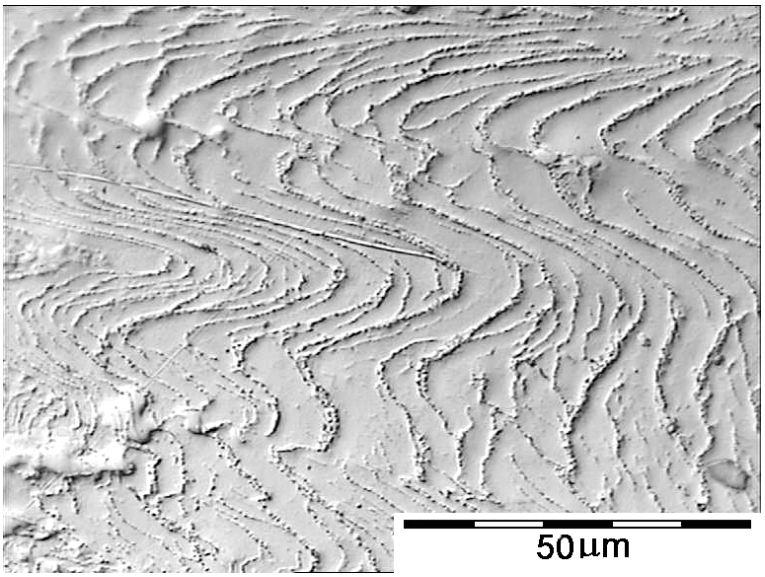
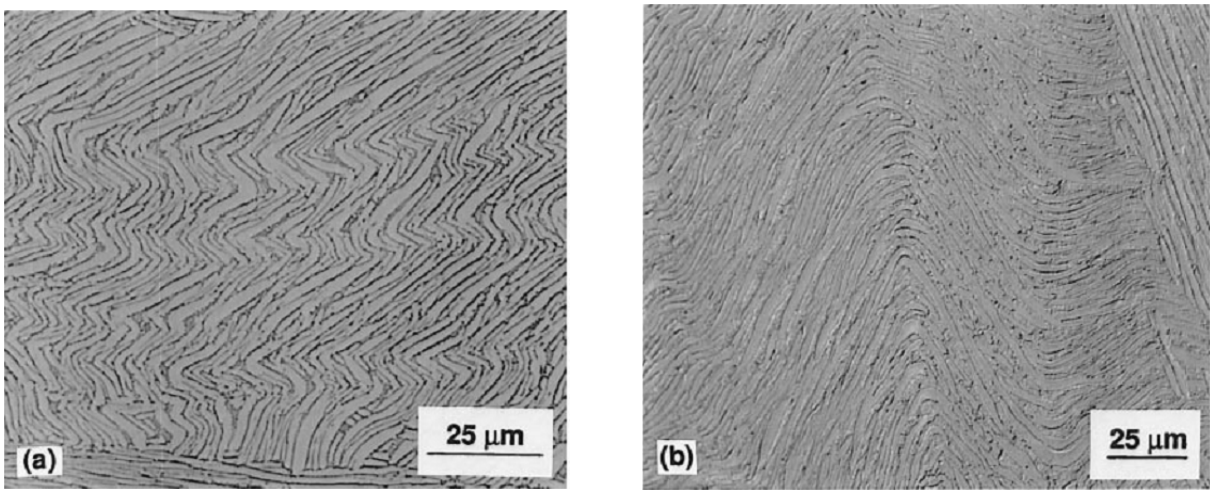



**Figure 1.21 :** *Microflambage dans une colonie de Zircaloy-4. Compression uniaxiale à 750 ℃,* $\dot{\bar{\epsilon}} = 0,1\ s^{-1}$, $\bar{\epsilon} = 0,55$ *(direction verticale).*

Il importe de noter que le comportement de microflambage peut répondre aussi bien à une contrainte macroscopique de compression que de traction (figure 1.22).

Arbitrairement, nous allons distinguer deux phénomènes dans ce processus de globulisation, la déformation plastique/viscoplastique hétérogène et la recristallisation dynamique. Etant entendu que la recristallisation commence en général dans les zones de concentration de la déformation, il est évident que ces deux phénomènes ne sont pas indépendants et se chevauchent dans le temps. Néanmoins cette distinction est utile pour préciser les contours de cette étude.

Les parties qui suivent présentent un aperçu des principaux travaux sur la globulisation dans les Zircaloys, le TA6V et les aluminiures de titane. Comme il a déjà été mentionné, dans le TA6V, la phase bêta est présente à l'ambiante et sa proportion augmente avec la température. La relation de Castro et Séraphin [CS66] donne une estimation de cette évolution :




(a) Compression (b) Traction

**Figure 1.22 :** *Microflambage observé dans des colonies de TA6V déformé à 900 ℃ en compression et traction à $\dot{\epsilon} = 0,1\ s^{-1}$ [MBS99]. La direction de sollicitation est verticale dans les deux cas.*

$$f_\beta(T) = 92,5 \times \exp[-0,0085 \times (T_{\alpha/\beta} - T)] + 7,5 \tag{1.2}$$

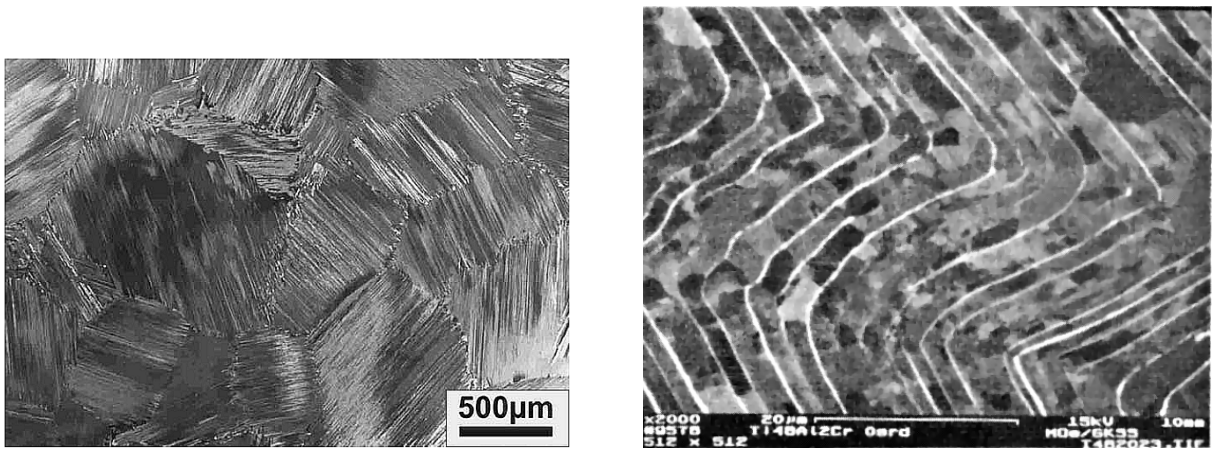
avec :

- $f_\beta$ : fraction de phase bêta
- $T$ : température (℃)
- $T_{\alpha/\beta}$ : température de fin de stabilité de la phase alpha (℃)

$T_{\alpha/\beta}$ est située entre 980 et 1000 ℃ selon les nuances. Cette formule laisse penser que la transposition des résultats obtenus sur les microstructures déformées d'alliages de titane au Zircaloy-4 doit être considérée avec précaution. A titre d'exemple, la proportion de phase bêta à 800 ℃ vaut environ 27 %. Cela peut suffir à isoler la majorité des lamelles alpha les unes des autres au sein des colonies. Leur comportement mécanique a donc quelque probabilité d'être différent de celui de lamelles solidaires comme cela est le cas dans le Zircaloy-4. Néanmoins, les connaissances sur les alliages de titane lamellaires étant assez avancées, il est utile de les comparer avec le Zircaloy-4.

Quant aux aluminiures de titane, il s'agit d'alliages intermétalliques légers, résistants, prometteurs pour l'aéronautique, présentant aussi des microstructures lamellaires. Leur composition moyenne comprend, en masse, 45 à 48 % d'aluminium, du fer, chrome et vanadium à hauteur de 3 %, des ajouts de niobium, tungstène et tantale pour environ 1 %, et le reste de titane. Après trempe, ils présentent une microstructure lamellaire biphasée où les colonies sont constituées de couches alternées de phase majoritaire $\gamma$ TiAl et de phase $\alpha_2$ $Ti_3Al$. La première est cubique

faces centrées et ductile, la seconde hexagonale compacte et plus rigide. Les mécanismes de déformation sont donc sensiblement différents de ceux du titane et du zirconium. Néanmoins, les lamelles peuvent présenter des motifs analogues à du flambage (figure 1.23).




(a) (b)

**Figure 1.23 :** *Hétérogénéités de déformation dans les aluminiures de titane. (a) : exemple de microstructure initiale (d'après [BKC02]), (b) : bande de pliage (d'après [SFC+06]).*

### 1.4.2 Hétérogénéités de déformation

Le comportement hétérogène des colonies lors de la déformation du matériau est dû aux propriétés cristallines et à la morphologie de la microstructure. L'orientation de la maille cristalline et l'orientation des lamelles par rapport à la direction de sollicitation sont les deux facteurs principaux à prendre en considération. Dans les alliages de titane et de zirconium, ils sont liés par la présence de l'axe <c> de la maille hexagonale dans le plan des lamelles.

L'importance de l'orientation des systèmes de glissement prismatiques par rapport aux interfaces lamellaires a été démontrée par des études de Suri et al. [SVN+99] et Savage et al. [STZ+01] sur des échantillons d'alliages de titane alpha/bêta constitués d'une seule colonie. La transmission plus ou moins facile des dislocations <a> issues du glissement prismatique à travers les interfaces semble être le phénomène responsable de l'anisotropie mécanique. L'extrapolation de ces conclusions au Zircaloy-4 alpha doit cependant s'accompagner de réserves. Les mécanismes de transmission de dislocations à travers les couches de précipités peuvent en effet être de nature sensiblement différente.

Dans les aluminiures de titane, les travaux de Fujiwara et al. [FNH+90] et Inui et al. [IONY92] ont mis en évidence la forte anisotropie mécanique de colonies individuelles majoritairement gamma sollicitées en traction et compression. Cette anisotropie dépend avant tout de l'orientation entre la direction de sollicitation et l'orientation des plans lamellaires, la cristallographie jouant

un rôle secondaire. La limite élastique affiche ainsi un minimum pour une orientation de 45 ° entre les lamelles et la direction de chargement (figure 1.24). Les interfaces $\alpha_2/\gamma$ se comportent en effet comme des barrières au déplacement des dislocations et la déformation par cisaillement opère plus facilement le long des lamelles que perpendiculairement à elles (figure 1.25). Cet effet peut être décrit par une loi de Hall-Petch anisotrope.

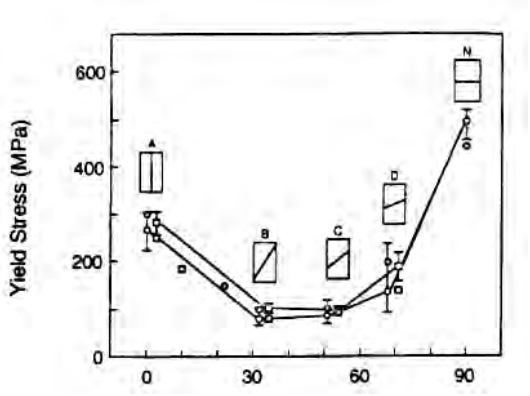



**Figure 1.24 :** *Variation de la limite élastique de colonies d'aluminiures de titane en fonction de l'orientation des lamelles par rapport à la direction de sollicitation [IONY92].*

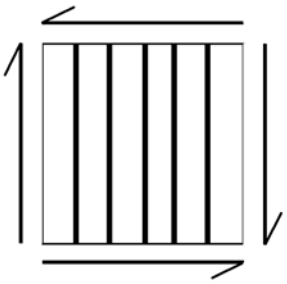


**Figure 1.25 :** *Cisaillement d'une structure lamellaire d'aluminiure de titane (d'après [KDA95]) : directions forte (horizontale) et faible (verticale).*

Parallèlement à ces recherches axées sur l'anisotropie mécanique de colonies individuelles, Bieler, Semiatin et Weiss [BS02, WFEW86] ont étudié le microflambage et la globulisation dans des échantillons polycristallins de TA6V. Ils distinguent deux phénomènes précurseurs à la localisation de la déformation, dont l'activation dépend de l'orientation de l'axe <c> par rapport à la direction de compression. Le mécanisme le plus efficace correspond à l'activation conjointe des systèmes de glissement prismatique et basal, pour une inclinaison d'environ 55 ° (figure 1.26). Le second mécanisme intervient lorsque seuls les glissements prismatiques ou pyramidaux sont susceptibles d'être activés, c'est-à-dire pour des orientations plus dures, avec l'axe <c> sensiblement parallèle ou perpendiculaire à l'axe de compression. Dans ces zones, des bandes de cisaillement macroscopiques peuvent se développer sous l'action de facteurs extrinsèques comme des zones

de concentration de contrainte, des hétérogénéités de la microstructure, etc. Selon cette analyse, les multiples déclenchements de microflambage au sein du matériau sont en grande partie responsables de l'adoucissement plastique observé en traction et en compression.

Cette dernière considération peut être rapprochée du mécanisme de "pliage en genou" observé par Martin et Reed-Hill sur des échantillons de zirconium polycristallin déformés en traction et compression [MRH64]. Il s'agit d'un mode de déformation assez mal renseigné rencontré dans d'autres matériaux hexagonaux comme le cadmium, le zinc et le magnésium. Il se manifeste sous la forme de bandes de pliage (*kink bands*) dans lesquelles le plan de base a subi une rotation autour d'un axe $< 10\bar{1}0 >$. Ces bandes sont produites préférentiellement dans les grains présentant un axe <c> fortement incliné par rapport à la direction de sollicitation. L'activation du glissement basal est essentielle à l'apparition de ce phénomène.

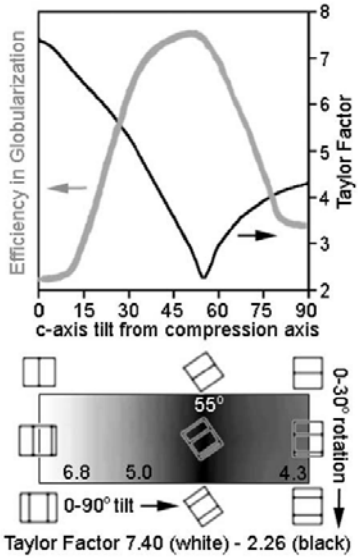



**Figure 1.26 :** *Susceptibilité au microflambage de colonies de TA6V en fonction de l'orientation de l'axe <c> par rapport à la direction de compression [BS02].*

Dans l'ensemble, ces travaux mettent l'accent sur l'anisotropie mécanique intrinsèque aux matériaux lamellaires et à la maille hexagonale. Le développement d'hétérogénéités dans les structures stratifiées a été abordé par Schaden et al. [SFC+06] dans le cadre plus général des instabilités de déformation. Deux causes de déformations non linéaires peuvent être distinguées, la première ayant trait au matériau, la seconde à la nature stratifiée de la microstructure. Des imperfections géométriques dans la structure interne ou l'alignement des lamelles ont pour effet de déclencher l'apparition de bandes de pliage (figure 1.27), qui peuvent ensuite se développer sous forme de bandes de cisaillement à plus grande échelle.

Dans les alliages de zirconium, les études sur l'anisotropie mécanique des microstructures ou le microflambage sont beaucoup moins nombreuses.

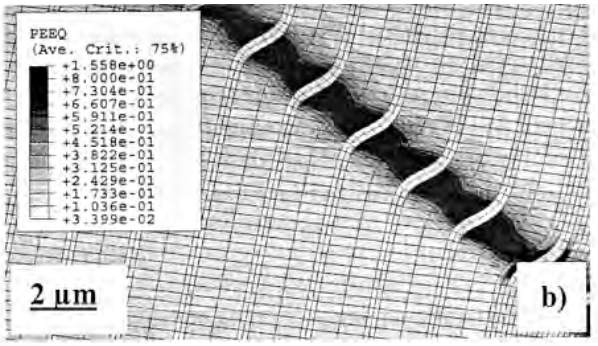



**Figure 1.27 :** *Simulation de l'apparition de bandes de pliage (kink bands) dans un aluminiure de titane [SFC+ 06].*

Dans le zirconium grade 702 déformé en traction uniaxiale à température ambiante, Crépin [Cré95] a mis en évidence l'activation préférentielle des plans prismatiques dans les zones interlamellaires. Cet affaiblissement local des propriétés mécaniques est dû à l'appauvrissement en étain aux abords des lamelles. Nous avons observé un comportement similaire sur du Zircaloy-4 déformé en compression uniaxiale à 750 °C : un méplat a été ménagé sur la surface latérale de l'échantillon et une série de rayures ont été pratiquées sur plusieurs centaines de micromètres. L'aspect de l'une d'entre elles après déformation est présenté figure 1.28. Des discontinuités sont visibles, qui correspondent à un phénomène de glissement interlamellaire. Ce glissement n'est pas régulièrement réparti et se concentre entre quelques lamelles.

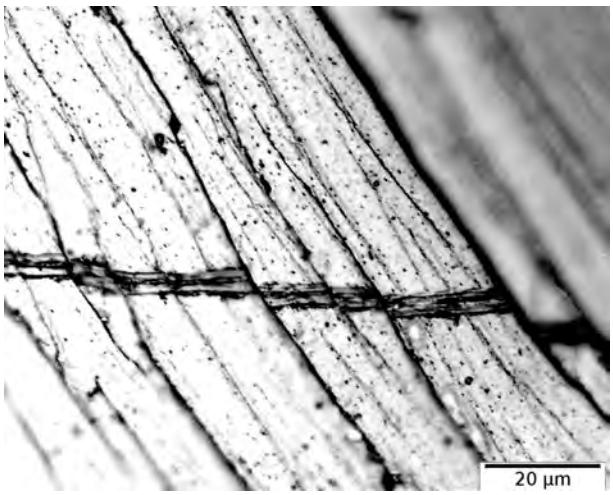



**Figure 1.28 :** *Cisaillement interlamellaire d'une colonie de Zircaloy-4. Echantillon déformé à 750 °C,* $\dot{\bar{\epsilon}} = 0,1\ s^{-1}$, $\bar{\epsilon} = 0,31$, *direction de compression verticale.*

### 1.4.3 Recristallisation dynamique

La recristallisation dynamique des microstructures lamellaires a été étudiée par Semiatin et ses collaborateurs dans le TA6V. Leurs travaux portent sur toute une gamme de traitements thermomécaniques avec différentes microstructures initiales, et les conclusions qu'ils en tirent apparaissent dans de nombreux articles. Les articles [SSG99] et [BS02], en particulier, synthétisent les idées principales. Les deux mécanismes de fragmentation proposés ont déjà été mentionnés plus haut [WFEW86] : le premier procède du flambage des colonies convenablement orientées, au regard de l'activation des glissements prismatique et basal, par rapport à la direction de chargement. Des sous-joints sont alors formés, qui constituent de nouvelles interfaces alpha-alpha. Sous l'effet des tensions interfaciales, la phase bêta pénètre alors le long de ces sous-joints, et entraîne la fragmentation de la lamelle. Il s'agit d'un cas de recristallisation dynamique géométrique, au sens de McQueen et al. [MKRS85], assistée par la diffusion de la phase bêta. Le deuxième mécanisme opère par le développement de bandes de cisaillement intense qui traversent les colonies moins bien orientées. Ces bandes fournissent la force motrice nécessaire à la fragmentation des lamelles, là encore par pénétration de la phase bêta. En compagnie des anciens joints de grain bêta, ces zones de déformation localisée sont les sites préférentiels de formation de nouvelles cristallites[9].

D'une manière générale, l'efficacité de la globulisation augmente avec la finesse des lamelles et le caractère en vannerie de la microstructure (figure 1.29). En revanche, la taille de grain équiaxe atteinte en régime stationnaire est indépendante de la microstructure initiale.

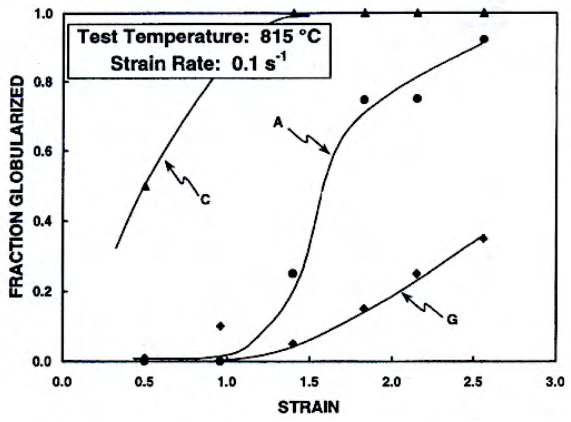



**Figure 1.29 :** *Evolution du rapport de forme moyen de lamelles de TA6V en fonction de la déformation pour différentes mirostructures initiales [SS99]. A : lamelles d'épaisseur 1 µm, C : lamelles d'épaisseur 0,25 µm, G : majoritairement lamelles d'épaisseur 5 µm.*

Le rôle de la phase bêta dans la fragmentation des lamelles ne peut être transposé au cas du

[9]Terme entendu au sens de domaine monocristallin de taille généralement réduite partiellement délimité, à la différence d'un grain, par des joints de faible désorientation.

Zircaloy-4 déformé en domaine alpha. Les travaux de Chauvy [Cha04] laissent penser que la globulisation repose en grande partie sur un phénomène de recristallisation dynamique continue. A la différence de la recristallisation dynamique discontinue au cours de laquelle de nouveaux grains pauvres en dislocations germent et croissent jusqu'à remplacer la microstructure initiale [HH04], la recristallisation dynamique continue procède par l'accumulation progressive de dislocations en parois, dont la désorientation augmente jusqu'à former des sous-joints, puis des joints de grains [GM00]. Il n'y a donc pas à proprement parler de stades distincts de germination/croissance, et la transformation opère progressivement dans l'ensemble du matériau. Chauvy [Cha04] a mis en évidence ce type de mécanisme dans des échantillons de Zircaloy-4 comprimés à différentes températures. Il a quantifié par analyse EBSD l'évolution de la longueur de sous-joints et de joints à taux de déformation croissants. Il ressort de ces mesures que la quantité de sous-joints croît avec la déformation, jusqu'à arriver à un palier où la quantité de joints devient plus importante à son tour. Parallèlement, la désorientation moyenne sur les zones analysées augmente. La conversion progressive de sous-joints en joints de grains, signature de la recristallisation dynamique continue, est ainsi mise en évidence. Dans une publication récente, Chauvy et al. [CBM06] notent que la recristallisation dynamique géométrique, qui opère par déformation des joints de grains préexistant à l'essai, agit en concurrence avec la recristallisation dynamique continue.

Logé conclut lui aussi à un processus de recristallisation dynamique continue en cours de déformation [Log99]. Son étude comporte une caractérisation par microscopie électronique en transmission d'un tube de Zircaloy-4 mis en forme par filage sur aiguille dans le haut domaine alpha. L'essai a été interrompu afin de figer la microstructure. Aucun nouveau germe pauvre en dislocations, signature de la recristallisation dynamique discontinue, n'a été observé. De nouveaux grains recristallisés peuvent en revanche être observés après déformation, par recristallisation métadynamique. Ce phénomène sort du cadre de notre étude, qui est avant tout axée sur la modification de la microstructure pendant la déformation.

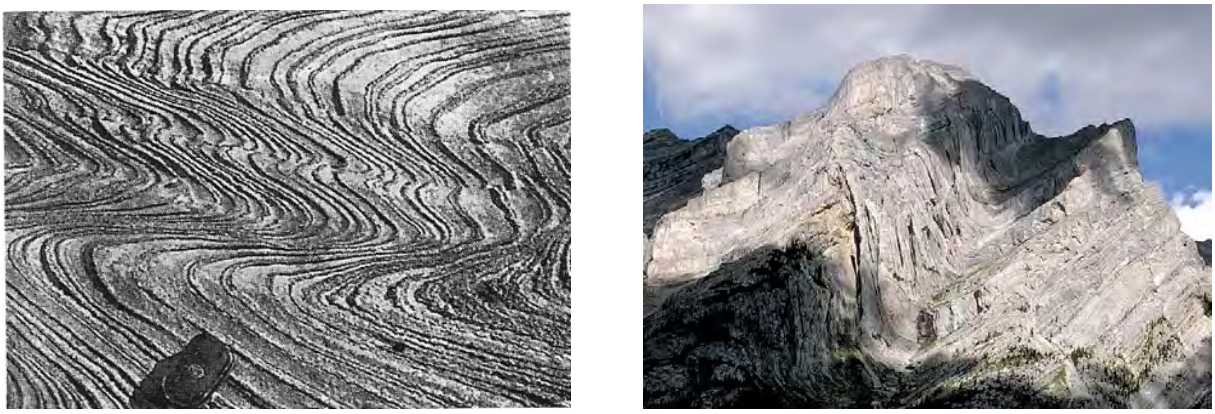
Les conclusions de Perez-Prado et al. sont plus restrictives [PPBKE05] : sur la base d'observations en microscopie en transmission d'échantillons de zirconium déformés en fluage entre 400 et 800 °C, ils identifient la recristallisation géométrique comme mécanisme exclusif d'évolution microstructurale. Les taux et vitesses de déformation en fluage et mise en forme à chaud diffèrent cependant sensiblement.

### 1.4.4 Milieux stratifiés

Cette dernière section a pour objectif de fournir les bases pour une généralisation des études portant sur le microflambage à partir d'autres domaines que la science des matériaux. Les considérations qui suivent sont présentées ici à titre indicatif pour de futures études. Des hétérogénéités similaires à celles présentées figures 3 et 1.22 peuvent être observées dans d'autres contextes que la déformation des microstructures de Widmanstätten. Ainsi que l'a suggéré Semiatin [SSG99],

le flambage de poutres ou de plaques présente une parenté certaine avec le comportement individuel des lamelles, en particulier au regard de la chute de contrainte qui l'accompagne. La déformation d'un paquet de lamelles accolées est cependant un problème plus délicat, dans lequel les conditions aux limites et les imperfections géométriques jouent un rôle prépondérant.

Dans ce domaine, les travaux les plus avancés sont sans doute ceux menés en géologie structurale. Les plis géologiques sont en effet un objet de recherche et de modélisation depuis une cinquantaine d'années. Ils apparaissent à des échelles allant du centimètre au kilomètre (figure 1.30), voire à plusieurs milliers de kilomètres dans le cas de la croûte terrestre, pour des durées de plusieurs millions d'années. Les plis sont classés en fonction de leur forme et des mécanismes de déformation présumés qui en sont à l'origine. La classification la plus répandue est due à Ramsay et al. [RH87].



(a) Flambage dans du marbre [RH87]

(b) Plis dans les Rocheuses canadiennes [Ear]

**Figure 1.30 :** *Différentes échelles de plis géologiques. Noter la similarité avec le motif présenté figure 1.21.*

Les matériaux géologiques sont généralement constitués par un empilement alterné de couches de *compétences* variables [10]. Le flambage engendre généralement des plis qui laissent initialement l'épaisseur des couches inchangée. Les plis sont dits concentriques. D'une façon générale, les couches rocheuses se déforment par *flexural flow* (écoulement en flexion) ou *flexural slip* (glissement en flexion ou glissement banc sur banc) [LH96]. Dans le premier cas, la matière se déforme uniformément, alors que dans le second, les couches ont tendance à coulisser les unes par rapport aux autres, par cisaillement localisé dans les roches de faible compétence. Sur le long terme, les zones de pliage, appelées *charnières*, peuvent s'épaissir en raison de transferts de matière le long des couches par diffusion ou par fluage. La concentration de contrainte au niveau des charnières

[10] En géologie structurale la compétence d'une roche désigne ses propriétés mécaniques, indépendamment de leur nature, élastique, plastique ou visqueuse. Eu égard aux échelles de temps considérées, le cas visqueux ou viscoplastique est le plus fréquemment considéré.

peut par ailleurs entraîner la cristallisation de nouveaux minéraux – on parle alors de *zones de fabrique*.

Biot et Ramberg [Bio61, Ram64] ont été les premiers à s'intéresser à la modélisation du flambage bidimensionnel de couches rocheuses alternées. La plupart des recherches ultérieures ont été effectuées en deux dimensions et sont basées, soit sur une évaluation des champs de contrainte-déformation dans l'ensemble du matériau, avec les problèmes de continuité que cela entraîne aux interfaces, soit sur des considérations de minimisation énergétique, soit sur des modèles éléments finis, à la manière des travaux de Schaden et al. [SFC$^+$06] discutés plus haut. Dans l'ensemble, ces travaux ne prennent pas en compte le temps de façon explicite, et mettent en évidence l'existence d'une contrainte critique au-dessus de laquelle le matériau multicouches se déforme par flambage. La localisation présente initialement un profil sinusoïdal, puis évolue vers un profil en chevron, caractérisé par une charnière anguleuse. L'état de contrainte considéré dans la plupart des cas est une compression uniaxiale parallèle à l'empilement.

Il existe des différences significatives entre la déformation des microstructures lamellaires et le pliage géologique. Ainsi, le transfert de matière par fluage ou diffusion le long des lamelles dans le Zircaloy-4 peut être exclu sans hésitation en raison des faibles durées de déformation. Pour la même raison, la recristallisation dynamique et la fabrique de nouveaux cristaux au niveau des charnières dans les roches ne peuvent être comparées sans réserves. En revanche, le cisaillement interlamellaire dans le Zircaloy-4 ne semble guère éloigné du cisaillement localisé dans les couches de faible compétence. Il est donc fort probable qu'il soit nécessaire au microflambage. Les colonies se déformeraient alors par un mécanisme analogue au glissement en flexion (flexural slip). Cela donne une indication pour l'adaptation de modèles géologiques décrivant ce phénomène, tel que celui développé par Wadee, Hunt et Peletier [WHP04].

### 1.4.5 Résumé

Cette étude laisse apparaître les spécificités du processus de globulisation de structures lamellaires par rapport à la recristallisation dynamique de structures équiaxes. Ainsi l'apparition des zones de concentration de la déformation semble fortement conditionnée par la morphologie de la microstructure. Dans des alliages et des aluminiures de titane, des études modèles sur des colonies individuelles ont montré de fortes variations de limite élastique en fonction de l'orientation des lamelles par rapport à la direction de sollicitation. Les interfaces alpha/bêta se comportent comme des barrières sélectives au mouvement des dislocations, ce qui favorise un comportement anisotrope en déformation qui s'ajoute à celui, intrinsèque, de la maille hexagonale. Dans le Zircaloy-4, les lamelles sont délimitées par un liseré discontinu de précipités. Leur comportement vis-à-vis des dislocations est encore mal défini, d'autant plus que leur stabilité n'est pas garantie à haute température. Le glissement interlamellaire observé dans le Zircaloy-4, dû à l'affaiblissement mécanique aux abords des lamelles, est en revanche bien établi. Ce phénomène fait écho

au glissement en flexion observé dans les structures géologiques. Son rôle dans l'apparition du microflambage est cependant loin d'être clair.

Les mécanismes de recristallisation à l'origine de la globulisation diffèrent sensiblement entre le TA6V, biphasé, et le Zircaloy-4. Cependant les régions de concentration de la déformation, dans les deux cas, jouent un rôle essentiel en tant que sites préférentiels de formation de nouvelles cristallites. Il peut s'agir de zones de microflambage, d'anciens joints de grains bêta et de zones interlamellaires. Pour de forts taux de déformation, la recristallisation est répartie plus uniformément dans le matériau. La germination/croissance de nouveaux grains (recristallisation discontinue) n'a pas été observée dans le Zircaloy-4. La réorganisation des sous-structures de dislocations se ferait plutôt par recristallisation continue, ou restauration poussée, en concurrence avec la recristallisation géométrique.

## 1.5 Approche du problème

Dans la plupart des études que nous venons de présenter, l'existence de zones de localisation de la recristallisation n'est pas explicitement mise en évidence. A l'exception du microflambage, leur lien avec les hétérogénéités de déformation n'est pas non plus été étudié de manière systématique. La microstructure lamellaire initiale, par ailleurs, est encore imparfaitement décrite. Nos travaux se proposent de mettre en lumière ces différents aspects au moyen de caractérisations détaillées à l'échelle mésoscopique, c'est-à-dire sur quelques centaine de micromètres. Une attention particulière a été portée aux aspects cristallographiques et morphologiques de la microstructure initiale ainsi qu'à l'identification des différents types de localisation de la déformation précédant la recristallisation. Nous pensons en effet que des travaux expérimentaux sont encore nécessaires afin de parvenir à une description précise de la microstructure et de son comportement en mise en forme. Ces données expérimentales pourront ensuite servir de base à de futurs travaux de modélisation et de simulation, pour lesquels quelques pistes sont données.

Les principaux moyens mis en oeuvre sont la diffraction électronique et la métallographie, l'essai Jominy, la microtomographie X et la compression plane encastrée à haute température. Certains ont été développés spécifiquement pour cette étude et n'ont pas encore donné toute la mesure de leurs possibilités. La similarité des microstructures de trempe du Zircaloy-4 et des alliages de titane alpha/bêta, sur laquelle nous avons mis l'accent dans les rappels bibliographiques, a en permanence servi de guide. Certains résultats connus concernant le TA6V ont ainsi été reproduits et étendus au Zircaloy-4, d'autres ont été établis pour la première fois et peuvent en première approximation être considérés comme valables pour le Zircaloy-4. A l'inverse, nous montrons que des différences significatives existent entre les deux classes d'alliages en déformation à haute température.

# Chapitre 2

# Techniques expérimentales

Nous présentons dans cette partie les différents appareils et méthodes mises en oeuvre pour la caractérisation et les traitements thermomécaniques des microstructures d'alliages de titane et de zirconium. Nous commençons par décrire brièvement le savoir-faire métallographique associé à ces alliages, les techniques de microscopie optique et électronique utilisées, les logiciels d'acquisition et manipulation d'images. Seront ensuite présentées avec plus de détails les techniques de microgrilles et d'essais mécaniques à haute température. Les techniques spécifiques développées dans le cadre de ces travaux – essai Jominy, microtomographie X et segmentation d'images volumétriques texturées, compression plane encastrée à haute température – sont abordées dans des chapitres séparés.

## 2.1 Métallographie

D'une façon générale, la surface des échantillons métalliques peut être observée en lumière blanche (champ clair), lumière polarisée, ou contraste interférentiel.

L'observation en lumière polarisée est indiquée pour les matériaux à structure cristalline anisotrope. Dans le Zircaloy-4, les différentes colonies, ainsi que les macles, sont aisément identifiables par cette technique. Le principe repose sur la présence d'une couche d'oxyde dont l'orientation est liée à celle des grains du substrat. Cette couche est optiquement anisotrope et polarise les faisceaux lumineux. L'oeil humain n'est pas sensible à la polarisation de la lumière, aussi la variation de celle-ci après réflexion doit-elle être mise en évidence à l'aide d'un polariseur et d'un analyseur en positions croisées. Le polariseur est intercalé entre la source et l'échantillon, et l'analyseur entre l'échantillon et l'observateur. Le changement de polarisation apparaît alors sous la forme de couleurs dépendant de l'orientation cristalline du substrat. Une lame de retard d'onde orientable sur 360 ° permet de renforcer le contraste et de faire varier les teintes des grains. Celles-ci ne sont cependant pas reliées de manière univoque à leur orientation cristalline. En revanche, dans les matériaux de structure hexagonale l'intensité lumineuse réfléchie est sensible à l'inclinaison

du plan de base par rapport au faisceau incident, donc à la surface de l'échantillon. Par ailleurs, l'alternance de couleurs dans chaque grain observée lorsque l'échantillon est tourné dans le plan horizontal, dépend de l'orientation de la trace du plan de base – cette particularité a été mise à profit dans les années 60 pour déterminer qualitativement l'orientation cristalline des matériaux hexagonaux [LP66, RHB65]. Ainsi, sur figure 2.1, le grain central orné d'une rayure passe par 4 positions d'extinction lorsque l'échantillon est tourné sur 360 °. Pour une polarisaion horizontale, la trace du plan de base en position d'extinction est soit verticale, soit horizontale.

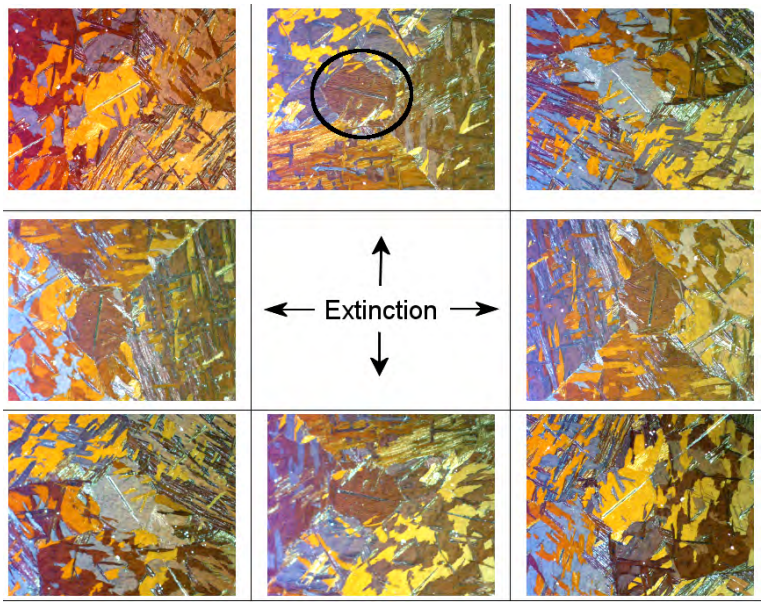



**Figure 2.1 :** *Illustration des relations entre intensité lumineuse et orientation cristalline en lumière polarisée dans le Zircaloy-4.*

L'observation en contraste interférométrique différentiel, ou contraste Nomarski (DIC – *Differential Interferometric Contrast*) est une technique complémentaire qui a pour intérêt de mettre en évidence les reliefs (exemples sur les figures 1.4 et 1.12). Elle est basée sur les différences de phase d'un faisceau parallèle qui frappe une surface à différentes profondeurs. Le faisceau incident est polarisé, et le faisceau réfléchi passe à travers un analyseur croisé, puis un prisme biréfringent. Sur une surface électropolie, l'observation en contraste interférentiel met en évidence les positions des précipités intermétalliques et les différences d'orientations cristallographiques.

La préparation des échantillons de zirconium pour ces deux techniques nécessite une série de polissages de quelques minutes chacun (de P240 à P2400, éventuellement disque textile floqué et pâte diamantée 3 et 1 µm), suivie d'un électropolissage. L'opération d'électropolissage dissout superficiellement le métal, et fait croître simultanément une couche d'oxyde sur celui-ci. Le taux de dissolution, ainsi que l'orientation cristalline et l'épaisseur de la couche d'oxyde, dépendent de l'orientation locale du substrat. L'électrolyte est composé de 80 % d'acide acétique et de 20 %

| | Champ clair | Lumière polarisée | DIC | MEB (SEI) | EBSD |
|---|---|---|---|---|---|
| Electropolissage | * | ** | ** | ** | ** |
| Attaque chimique | ** | - | - | * | * |

**Tableau 2.1 :** *Comparaison des deux principales méthodes de préparation métallographique en fonction des techniques de caractérisation. ** : bons résultats ; * : résultats moyens ; - : sans intérêt.*

d'acide perchlorique. Il doit être utilisé à basse température (aux alentours de 5 °C) en raison de l'instabilité de l'acide perchlorique à température ambiante. La tension imposée vaut 30 V et est maintenue pendant 20 secondes. La pratique montre qu'une solution fraîchement préparée donne de moins bons résultats qu'une solution qui a été utilisée plusieurs fois. Dans les alliages de titane, une attaque chimique de 3 à 5 secondes avec un réactif de Kroll (2 % HF, 3 % $HNO_3$, 95 %$H_2O$, en volume) fournit un meilleur contraste en lumière polarisée.

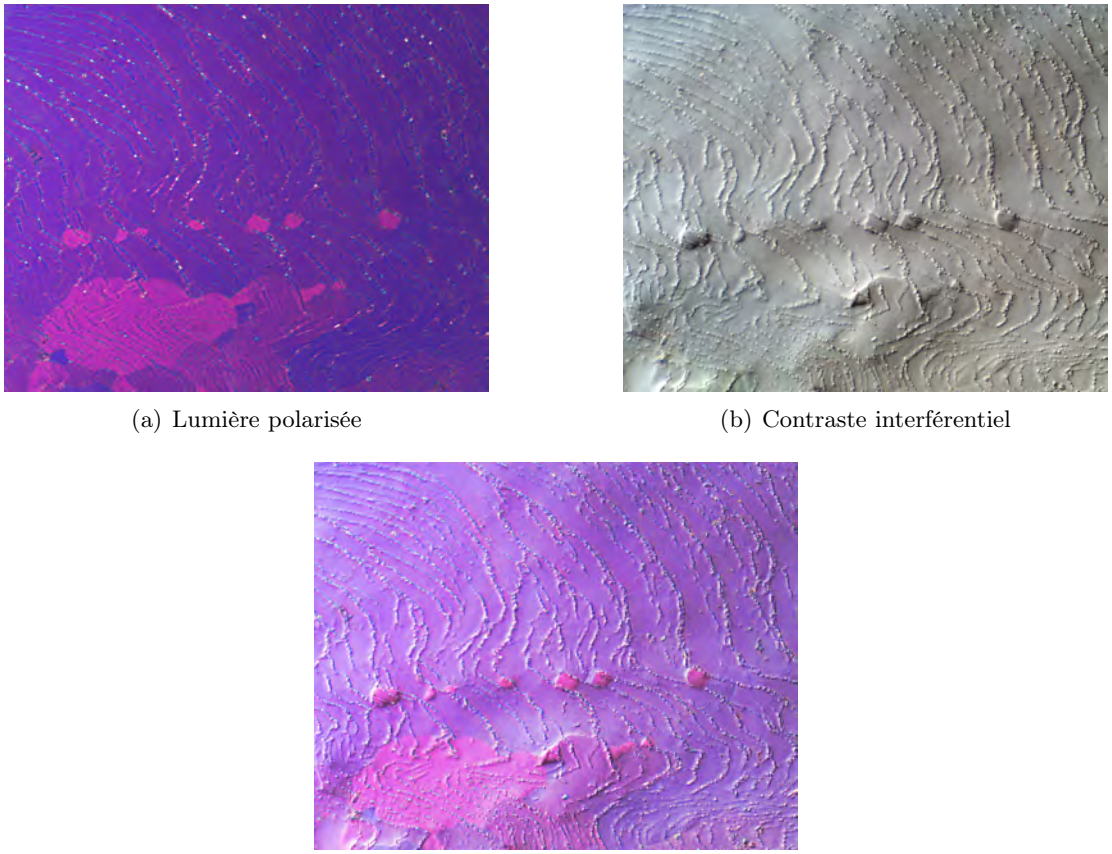
La préparation par électropolissage est relativement simple et rapide. Elle présente l'avantage conséquent de convenir également à la microscopie électronique et à l'analyse par diffraction électronique. En revanche, ainsi que l'a relevé McQuillan [MM56] sur les alliages de titane, elle peut provoquer l'apparition d'ondulations irrégulières lorsqu'elle est utilisée sur de grandes zones monocristallines.

En champ clair, une préparation plus fine est possible. Elle est indiquée pour l'obtention de microstructures contrastées qui peuvent être plus facilement quantifiées par analyse d'image. Il s'agit d'un polissage jusqu'à obtention d'un poli miroir : de P240 jusqu'à P2400, disque textile floqué (tissé dans le cas d'un alliage de titane)et pâte diamantée 3 µm, disque textile floqué et pâte diamantée 1 µm, disque textile floqué et pâte diamantée 0,25 µm, puis polissage de 5 minutes avec une suspension de silice colloïdale (OPS). Une attaque de quelques secondes avec un réactif de Kroll conclut la préparation. Dans le cas du Zircaloy-4, cette préparation révèle avant tout les positions des précipités intermétalliques. Elle donne donc de bons résultats sur les microstructures lamellaires, mais est peu utile pour les microstructures équiaxes dans lesquelles les précipités sont dispersés.

Le tableau 2.1 met en correspondance les différentes préparations métallographiques et les techniques de caractérisation.

Une option intéressante pour la caractérisation optique du Zircaloy-4 et des alliages de titane consiste à tirer parti des informations fournies par la lumière polarisée et le contraste interférentiel. Cela est possible à l'aide d'un logiciel de manipulation d'images permettant la gestion de calques de transparences variables. La figure 2.2 en donne un exemple. Il s'agit d'une colonie de Zircaloy-4 déformé en compression plane encastrée à 750 °C. De petits cristallites sont présents dans la partie médiane ; ils sont visibles en lumière polarisée et contraste interférentiel. La micrographie en lumière polarisée met en évidence un bloc d'orientation cristalline différente, de forme lenticulaire, dans la partie inférieure. Celui-ci n'est pas visible en contraste interférentiel. Les lamelles, en revanche, sont nettement mieux résolues avec ce dernier mode d'observation. La

combinaison des deux micrographies fournit une image de meilleure qualité dans laquelle sont visibles toutes ces caractéristiques.



(a) Lumière polarisée

(b) Contraste interférentiel

(c) Combinaison

**Figure 2.2 :** *Mise en évidence des différentes informations fournies par la lumière polarisée et le contraste interférentiel et combinaison de celles-ci. Echantillon de Zircaloy-4 déformé en compression plane encastrée à 750 °C* ($\bar{\epsilon} = 0,8$ *et* $\dot{\bar{\epsilon}} = 0,1\ s^{-1}$*).*

## 2.2 Acquisition, traitement et analyse d'images

En optique, la plupart des images ont été obtenues sur deux microscopes Olympus BX60M, dont l'un est équipé d'une platine motorisée. L'acquisition d'images a été effectuée avec le logiciel AnalySIS (société Olympus Soft Imaging Solutions GmbH), qui prend également en charge l'asservissement de la platine. L'acquisition automatisée d'images à différentes positions dans les trois directions de l'espace permet de réaliser des observations planes couvrant une surface importante, ainsi que des reconstructions topographiques locales.

Pour les traitements d'images courants (contraste/luminosité, correction d'éclairage, débrui-

tage, seuillage, etc...), le logiciel libre ImageJ a été utilisé en raison de sa légèreté, sa portabilité, sa simplicité d'utilisation et son caractère extensible [Ima]. Le logiciel Aphelion, commercialisé par la société ADCIS [Aph], a été utilisé dans le cadre de l'analyse d'images volumiques obtenues par microtomographie X, à l'aide d'un algorithme développé à l'Ecole des Mines de Paris [JM]. Des données se présentant sous la forme de nuages de points ont été extraites de l'exploitation de ces images volumiques. Les nuages bruts ont pu être visualisés grâce au logiciel libre Gmsh [Gms]. Certains ont été triangulés à l'aide de l'algorithme Cocone, développé par le groupe Jyamiti de l'Université d'Etat de L'Ohio [DS05], ainsi qu'avec le logiciel commercial 3DReshaper [Res].

## 2.3 Microscopie électronique

Différentes techniques liées à la microscopie électronique en balayage ont été exploitées : analyse chimique par sonde EDX (*Energy Dispersive X-Ray Spectrometry*), imagerie en électrons secondaires et rétrodiffusés, diffraction électronique (EBSD – *Electron BackScattered Diffraction*), irradiation de résine électrosensible par balayage contrôlé du faisceau électronique.

L'usage de la diffraction électronique s'est considérablement répandu en science des matériaux au cours de ces vingt dernières années. Son principe, ainsi que la notion d'imagerie d'orientation cristalline (OIM – *Orientation Imaging Microscopy*), ont été décrits à de nombreuses reprises, aussi nous limiterons-nous à en rappeler les grands traits [Pou04].

La technique d'EBSD est indissociable de la microscopie électronique en balayage. Elle repose sur le principe physique de diffraction d'un faisceau électronique par les plans cristallins d'un matériau (figure 2.3). La diffraction peut être définie comme un phénomène de diffusion cohérente des électrons par les atomes. Le faisceau diffracté par une famille de plans prend la forme de deux cônes, dits *cônes de Kossel*, dont une partie s'échappe du matériau. Au point d'impact du faisceau incident diffractent plusieurs familles de plans, ce qui se traduit par l'émission de plusieurs paires de cônes de Kossel. L'intersection de ceux-ci avec un écran phosphore forme un diagramme constitué de plusieurs bandes, appelées pseudo-bandes de Kikuchi [11]. Ce diagramme est la signature de l'orientation cristalline du matériau au point d'impact du faisceau.

L'opération d'indexation consiste à calculer l'orientation cristalline du volume diffractant à partir du diagramme. Cette tâche est effectuée par le logiciel, qui évalue en outre d'autres paramètres comme la qualité du diagramme (*Band Contrast* et *Band Slope* dans le système d'acquisition Channel-5). Ces paramètres sont calculés en chaque point même en cas d'indexation nulle. Ils sont liés de manière qualitative à l'état de surface et à la quantité de dislocations locale. Les cartographies en contraste de bandes permettent de repérer les sous-joints et zones d'accumulation de dislocations dans le matériau. L'indexation d'un diagramme prend une dizaine de millisecondes. L'échantillon est incliné de 70 ° afin d'optimiser le rendement d'électrons détectés.

Trois modèles de microscopes électroniques ont été utilisés. La plupart des cartographies

[11] Les "authentiques" bandes de Kikuchi sont rencontrées en microscopie en transmission.

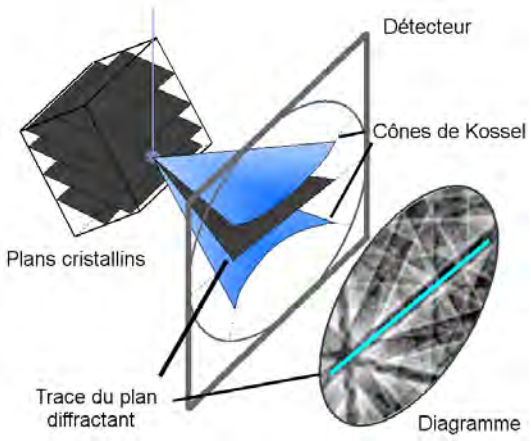



**Figure 2.3 :** *Principe de l'EBSD.*

EBSD ont été obtenues avec un microscope JEOL JSM-6400 équipé d'un canon à filament de tungstène et d'une caméra CCD de marque HKL Technology. L'automatisation et le traitement ont été effectués avec le système d'acquisition Channel-5 (société HKL Technology). La tension d'accélération a été fixée à 20 kV, et le courant de sonde à $3.10^{-9}$ A [12]. La résolution spatiale est légèrement inférieure au micromètre. En EBSD, la résolution angulaire est de l'ordre du degré. Certaines cartographies EBSD sur des échantillons fortement déformés ont été réalisées sur un microscope équipé d'un canon à émission de champ (MEB FEG – *Field Emission Gun*) de type JEOL JSM-6500-F. La tension d'accélération et le courant de sonde ont été réglés aux mêmes valeurs que sur le JSM-6400. La résolution spatiale descend à moins de 400 nm, et la résolution angulaire au demi degré. Les taux d'indexation des cartographies présentées dans ce mémoire avoisinent généralement 90 à 95% dans les échantillons non déformés, et 75 à 85 % dans les échantillons déformés. Le troisième microscope utilisé est un JEOL JSM-840 à filament de tungstène. Il a été principalement utilisé pour la réalisation de microgrilles par électrolithographie, ceci en raison de la possibilité de régler manuellement la fréquence de balayage du faisceau. Il a aussi été utilisé pour l'analyse chimique, à l'aide d'un détecteur EDX de marque PGT (Princeton Gammatech).

Certaines observations en microscopie électronique en transmission ont été réalisées par le professeur H. Paul dans le cadre d'une étude interne portant sur le Zircaloy-4 déformé à chaud [Pau06]. Les lames ont été préparées par la technique d'amincissement électrolytique à double jet, avec une solution composée de 470 mL de méthanol, 30 mL d'acide sulfurique et 1,2 mL d'acide fluorhydrique, utilisée à 22 V entre 30 et 35 °C. Les observations ont été effectuées sur un microscope Philips CM200 équipé d'une cathode émettrice $LaB_6$, sous une tension d'accélération de 200 kV.

[12] Le courant de sonde détermine le diamètre du faisceau électronique.

## 2.4 Microgrilles

Des essais de gravage de microgrilles ont été réalisés au cours de ces travaux. Le choix d'une technique de gravage chimique de préférence à un dépôt métallique répond aux conditions sévères subies par les surfaces des échantillons pendant les essais mécaniques à haute température (typiquement à 750 °C). Le principe de réalisation de microgrilles est inspiré de la technique d'électrolithographie développée pour la microélectronique [ABBC94, AH76]. Une résine électrosensible est déposée sur la surface de l'échantillon. Elle est ensuite irradiée par un faisceau électronique selon un réseau régulier, en général à trame carrée. L'irradiation provoque une modification locale de la masse moléculaire de la résine. La partie irradiée est dissoute sélectivement avec un solvant approprié. La résine restante forme un masque, et la surface découverte est ensuite recouverte de métal déposé par évaporation et/ou pulvérisation (*sputtering*), ou bien attaquée chimiquement. La résine est enfin complètement dissoute et ne subsiste que la grille.

A notre connaissance, les microgrilles que nous avons réalisées sont les premières de ce type sur un alliage de zirconium, aussi allons-nous présenter le procédé avec quelque précision. Les étapes décrites ci-après sont dérivées des travaux de Chapelle sur des échantillons d'aluminium-manganèse [Cha02]. L'ensemble est résumé figure 2.4.

- Dépôt de la résine électrosensible : la résine est constituée d'un mélange de 3 % de polymétacrylate de méthyle (PMMA 2041) et de 97 % d'éther monoéthylique de l'éthylène glycol acétate ($C_6H_{12}O_3$), en masse. Le mélange doit être agité pendant quelques minutes avant dépôt. La surface de l'échantillon doit être plane ; une préparation par polissage mécanique et électropolissage convient tout à fait. La quantité de résine à déposer est de l'ordre de 8 µL pour une surface de 1 $cm^2$. L'échantillon est centrifugé 1 minute à 2000 tours/minute, puis placé au four 20 minutes à 140 °C. La résine forme alors une couche adhérente d'épaisseur uniforme.
- Irradiation : l'irradiation par faisceau électronique est réalisée avec un microscope JEOL 840. La vitesse de balayage est réglée de telle sorte à ce que deux passages successifs du faisceau soient séparés par une distance de 12 ou 13 µm. La tension d'accélération est fixée à 20 kV, la distance focale à 35 mm et le grandissement entre ×100 et ×150. Le courant d'échantillon (courant transmis par l'échantillon) est mesuré par un picoampèremètre ; il doit être ajusté à 2,5 nA, et ce, par réglage du courant de sonde. Les zones de réalisation des microgrilles doivent auparavant avoir été repérées par leurs coordonnées dans le repère de l'échantillon, car le positionnement s'effectue en aveugle afin de ne pas altérer la résine en la visualisant par le biais du balayage électronique. De même, les réglages de mise au point, d'astigmatisme et d'alignement du faisceau doivent s'effectuer à fort grandissement (×5000) et à distance des zones d'intérêt.
- Dissolution sélective : l'échantillon est déposé pendant 2 minutes dans une solution de 70 % de propanol2 et 30 % de méthyléthylcétone, en volume, puis rincé à l'éthanol. Il est

important de réaliser cette opération peu après l'irradiation afin d'éviter la recombinaison des chaînes de polymère irradiées.

– Gravage chimique : l'échantillon est déposé dans une solution de Kroll modifiée (10 % HF à 1,2 N, 90 % $HNO_3$ à 5,5 N, en volume) pendant 5 secondes, puis rincé à l'eau.
– Dissolution du masque : l'échantillon est placé dans un bain de chloroforme au bac à ultrasons pendant 10 minutes, puis rincé à l'éthanol.

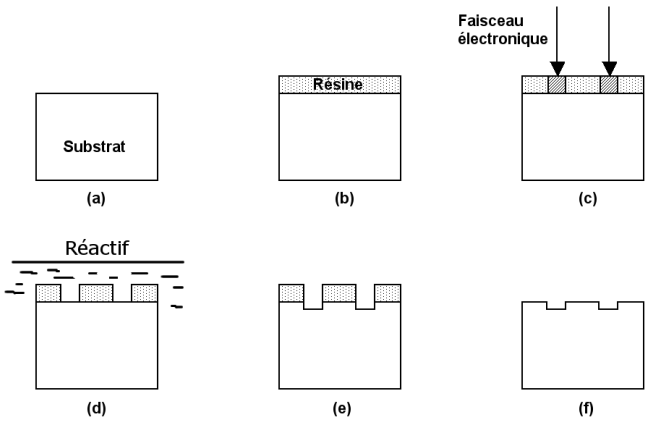
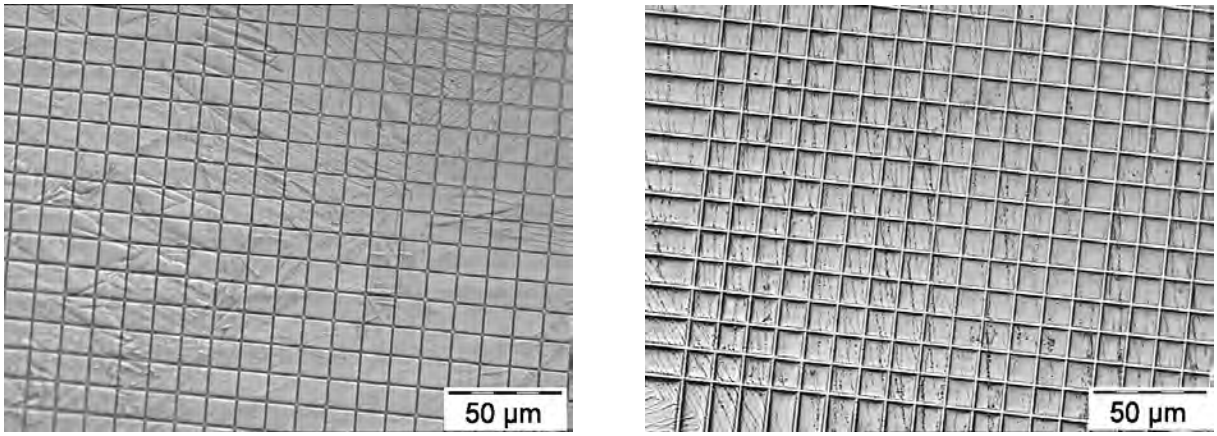



**Figure 2.4 :** *Principe de réalisation de microgrilles gravées.*

Les microgrilles couvrent une zone de près de 1 mm de côté, avec un pas de 12 µm et une largeur de barreau de 1,5 à 2 µm (figure 2.5). Le masque réalisé après la dissolution sélective présente une largeur de barreau nettement moindre (figure 2.5 (a)). Le réactif a donc tendance à attaquer fortement le matériau. Des améliorations sont sans doute possibles à cet égard.

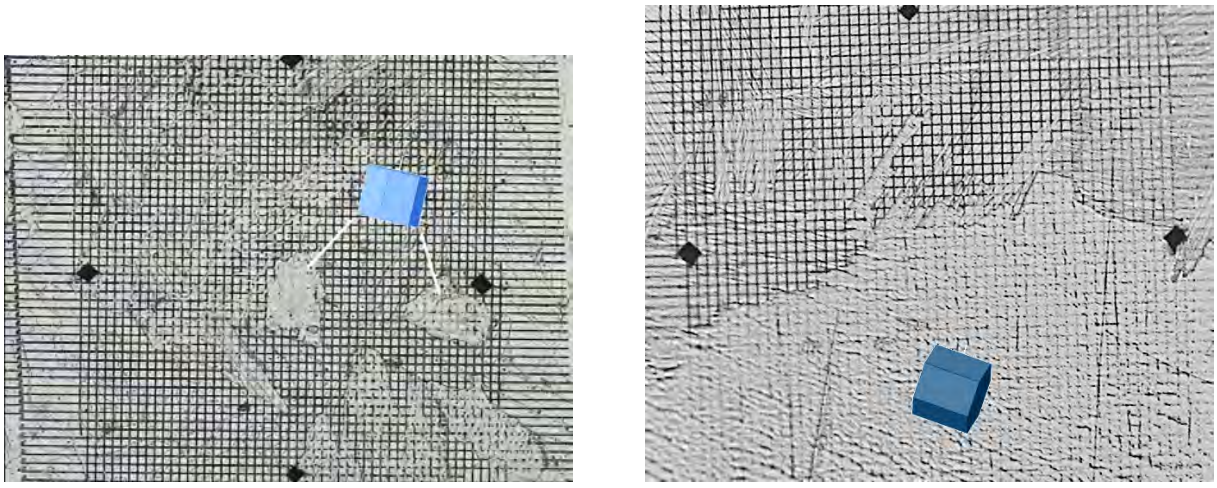
Notons aussi que l'orientation cristalline du substrat influence la qualité de réalisation des microgrilles. A titre d'exemple, les figures 2.6(a) et 2.6(b) montrent des zones gravées de manière hétérogène. Après analyse EBSD, il apparaît que les zones mal gravées présentent un axe <c> dans le plan de la surface. Selon toute probabilité, l'origine de ce comportement est à mettre sur le compte de l'anisotropie cristalline de la maille hexagonale, laquelle conduit moins bien le courant dans les directions transverses à l'axe <c>.

En dépit de ces deux inconvénients – résolution moyenne et qualité parfois hétérogéne –, les microgrilles gravées sont irremplaçables pour les essais à chaud ; leur stabilité vis-à-vis de la déformation et de la température est en effet nettement supérieure à celles réalisées par dépôt d'or ou de platine.




(a) Masque (b) Microgrille

**Figure 2.5 :** *Exemple de microgrille réalisée par gravage chimique sur du Zircaloy-4.*



(a) (b)

**Figure 2.6 :** *Influence de l'orientation cristalline sur la qualité de gravage des microgrilles. Les zones mal gravées ont un plan basal perpendiculaire à la surface d'observation.*

## 2.5 Essais mécaniques

Des essais de compression uniaxiale et plane bi-encastrée ont été menés à haute température. Ce dernier dispositif a été développé pour les besoins de cette étude et sera décrit plus en détail au chapitre 5. La présentation qui suit a été rédigée d'après [VDDM06] et [VDGID08].

L'essai de compression uniaxiale présente l'avantage d'être simple et rapide à mettre en oeuvre. Il consiste à comprimer un échantillon cylindrique dont les dimensions sont choisies de telle sorte que la déformation produite soit la plus homogène possible. En général, des dimensions de 10 mm de diamètre pour 15 mm de haut donnent de bons résultats. Le tenseur des contraintes appliquées ne comporte qu'une seule composante, et, dans le cas d'un échantillon isotrope en l'absence de frottement, aucun cisaillement n'intervient. Les conditions réelles diffèrent quelque peu, en particulier à haute température. Les frottements entre l'échantillon et les tas de compression ne sont plus négligeables, et se manifestent par un bombement de l'échantillon. Ainsi que l'a montré une étude interne [BDG+98], la déformation équivalente présente alors une localisation au centre de l'échantillon, dont les observations microstructurales doivent tenir compte.

La machine de traction-compression est de marque Schenck. Le déplacement de la traverse supérieure est asservi par ordinateur, ce qui permet de réaliser des vitesses de compression constantes. La fréquence d'échantillonnage du déplacement peut monter jusqu'à 100 Hz, et les pas de déplacements successifs sont ajustés en conséquence afin de maintenir la vitesse moyenne de déformation à la valeur souhaitée. Différents chemins de déformation peuvent ainsi être reproduits. La vitesse de déformation imposée peut varier de $10^{-4}$ à 20 $s^{-1}$. Les maxima de déplacement et de charge valent respectivement 100 mm et 100 kN. Les tas de compression sont en TZM, un superalliage base molybdène durci en solution solide et renforcé par une dispersion de particules de carbure de titane. Sa composition approximative est la suivante (en pourcentages de masse) : 0,5 Ti ; 0,08 Zr ; 0,02 C ; reste Mo. Les particules se dissolvent vers 1400 °C, ce qui rend cet alliage approprié pour des applications à haute température. Les tas ont été dimensionnées de telle manière que l'ensemble, échantillon compris, est symétrique par rapport à un plan horizontal. L'uniformité thermique, essentielle à haute température, est ainsi favorisée. Deux thermocouples de type K, placés deux millimètres sous les surfaces des tas supérieur et inférieur, permettent de s'en assurer.

L'ensemble est placé à l'intérieur d'un tube de silice de 12 cm de diamètre. Le tube est entouré par un four à rayonnement de forme cylindrique, dont la position peut être modifiée afin d'ajuster la température mesurée au voisinage de l'échantillon par les thermocouples. Ce procédé garantit une différence de température entre les deux tas inférieure à 3 °C. L'échantillon doit donc être mis en place avant la montée en température. Celle-ci s'effectue par paliers de vitesses décroissantes, assurant un compromis entre l'homogénéité thermique et la rapidité de mise à température de l'échantillon et des outils. Un profil de chauffage jusqu'à 750 °C est présenté figure 2.7.

La température maximale de test peut atteindre 1200 °C. Le tube est parcouru par un flot

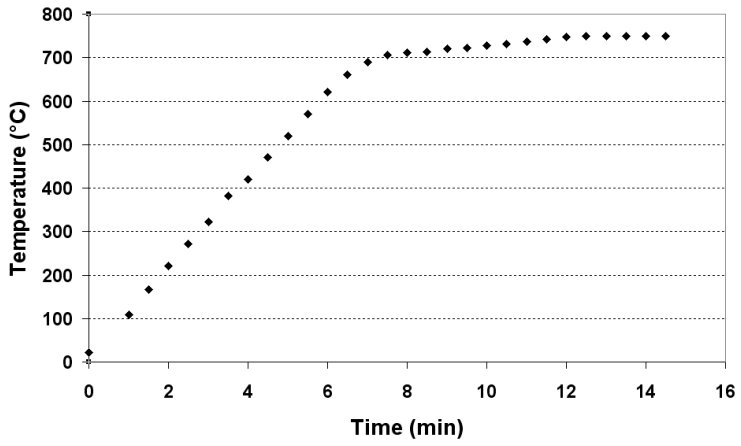



**Figure 2.7 :** *Exemple d'un profil de montée en température dans le dispositif de compression.*

continu d'argon qui réduit l'oxydation, laquelle peut l'être davantage encore par l'utilisation de getter (copeaux de titane et de zirconium absorbant l'oxygène résiduel).

En fin de compression, l'échantillon est éjecté dans un bac de trempe à l'aide d'un doigt métallique actionné manuellement par l'intermédiaire d'un axe débouchant à l'extérieur de l'enceinte. L'opération prend environ 2 secondes.

La lubrification joue un rôle central en compression à haute température. Le lubrifiant utilisé est du graphite en spray, choisi d'après les travaux de Chauvy [Cha04]. Le coefficient de frottement au sens de Tresca a été estimé égal à 0,1 entre 650 et 780 °C.

Les données expérimentales brutes sont des couples de points force-déplacement. Elles sont transformées en valeurs de contraintes-déformation à l'aide des relations suivantes :

$$\overline{\varepsilon} = \ln\left(\frac{h_c}{h_i}\right) \tag{2.1}$$

$$\sigma = \frac{F}{S_c} \tag{2.2}$$

$$S_i h_i = S_c h_c \tag{2.3}$$

avec

- $\overline{\varepsilon}$ : déformation équivalente
- $h_c$ : hauteur courante
- $h_i$ : hauteur initiale de l'échantillon
- $\sigma$ : contrainte
- $F$ : force appliquée
- $S_i$ : section initiale

– $S_c$ : section courante

Le frottement est pris en compte par l'intermédiaire d'une correction appliquée à la contrainte expérimentale $\sigma$ :

$$\sigma_{cor} = \sigma \left[ 1 + \frac{\overline{m}}{3\sqrt{3}} \frac{D_i}{h_i} \exp\left(\frac{3\overline{\varepsilon}}{2}\right) \right]^{-1} \tag{2.4}$$

avec

– $\sigma_{cor}$ : contrainte corrigée du frottement
– $\sigma$ : contrainte expérimentale
– $\overline{m}$ : coefficient de frottement de Tresca
– $D_i$ : diamètre initial
– $h_i$ : hauteur initiale
– $\overline{\varepsilon}$ : déformation équivalente

# Chapitre 3

# Microstructure lamellaire du Zircaloy-4

Ce chapitre traite de la microstructure lamellaire de notre principal matériau d'étude, caractérisé en deux dimensions. Les sujets abordés concernent sa morphologie (épaisseur des lamelles, taille des grains bêta, répartition des éléments d'alliage) et sa cristallographie (relations de Burgers, phase $\alpha_{GB}$).

## 3.1 Matériau

Le matériau étudié est une billette de Zircaloy-4 fournie par la société CEZUS. Son histoire thermomécanique est résumée sur la figure 3.1. Elle a tout d'abord été forgée en domaine bêta, puis en domaine alpha, avant d'être homogénéisée quelques minutes en domaine bêta, puis trempée à l'eau. Sa texture est aléatoire. Sa composition est donnée dans le tableau 3.1.

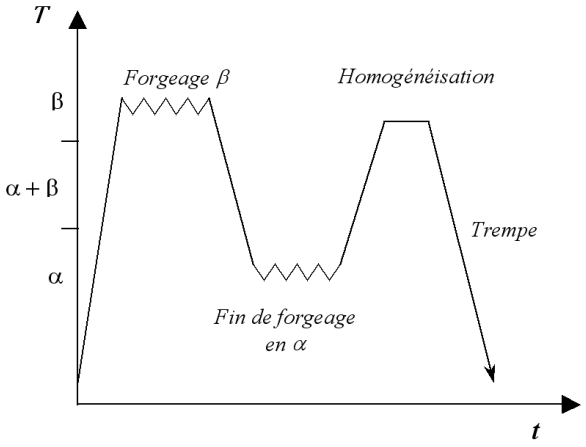



**Figure 3.1 :** *Histoire thermomécanique du matériau d'étude.*

| Sn | O | Cr | Fe | Si |
|---|---|---|---|---|
| 1,30 % | 1200 ppm | 0,10 % | 0,23 % | 0,10 % |

**Tableau 3.1 :** *Principaux éléments d'addition du matériau d'étude (composition en masse).*

## 3.2 Gradient de microstructure

La figure 3.2 montre la billette observée perpendiculairement à son axe. De la peau vers le coeur, la microstructure évolue selon deux aspects : d'une part la taille des anciens grains bêta diminue, d'autre part le type majoritaire de microstructure passe progressivement de vannerie à platelets parallèles. L'épaisseur apparente des lamelles augmente environ de 0,5 µm en périphérie à 5 µm en coeur. La taille apparente des grains bêta passe quant à elle du millimètre et demi à des valeurs de l'ordre du millimètre. D'une façon générale, la microstructure comporte de nombreuses macles de type $(10\bar{1}2)$, telles que celles présentées figure 1.18.

La variation qualitative de microstructure le long du rayon appelle deux remarques. Tout d'abord, il est évident que la zone périphérique a connu une histoire thermique différente de celle du coeur. La croissance de grain étant sensible en première approche au temps et à la température de maintien en phase bêta, il est raisonnable de supposer que la zone centrale de la billette a été moins chauffée, ou moins longtemps, que la peau. Par ailleurs, la corrélation observée entre la taille de grain et le type de microstructure entre en contradiction avec les travaux mentionnés au chapitre 1 indiquant que les tailles de grain bêta importantes favorisent l'apparition d'une microstructure en platelets parallèles.

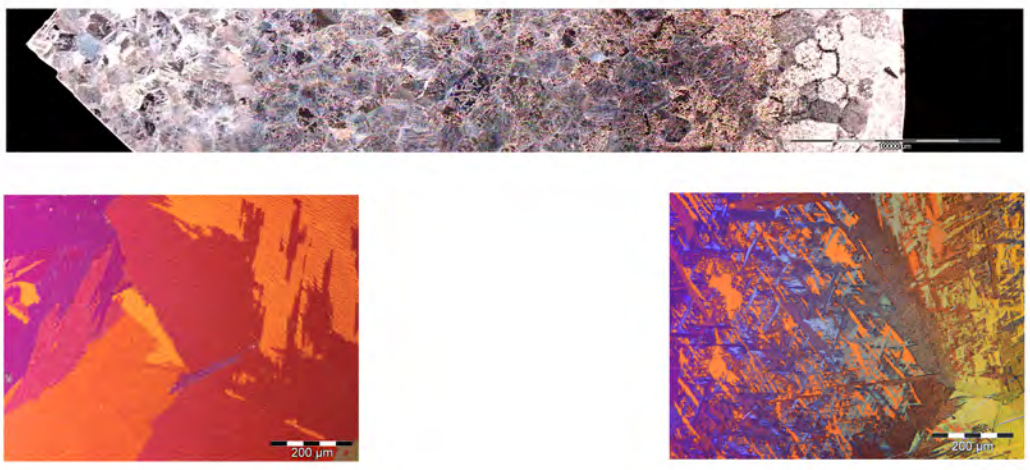



**Figure 3.2 :** *Variation de microstructure le long du rayon de la billette.*

Il est possible d'examiner le premier point à la lumière d'une estimation de l'histoire thermique de la pièce. La technique retenue est celle des éléments finis. Ce problème peut être traité plus

élégamment en une dimension par la méthode des différences finies, mais en l'espèce, il a été plus simple d'utiliser un modèle par éléments finis préalablement développé pour simuler la trempe d'une éprouvette Jominy de Zircaloy-4 (section suivante). Les détails en sont présentés en annexe A.

Le problème consiste à comparer les évolutions de température à coeur et à la périphérie de la pièce. La pièce présente une symétrie cylindrique et la température ne varie que selon son rayon, aussi le calcul porte-t-il uniquement sur une surface définie par un rayon et la génératrice.

La figure 3.3 montre les évolutions de température simulée d'un élément situé en périphérie et d'un élément central. La température initiale, c'est-à-dire correspondant au forgeage en domaine alpha, est fixée à 750 °C, et la température de consigne (d'homogénéisation) à 1050 °C. Elle est maintenue pendant 40 minutes [13]. Afin d'évaluer qualitativement la différence d'histoire thermique et son influence sur la croissance de grain bêta, la température de 980 °C, début du domaine monophasé, est prise comme valeur de référence. On considère qu'à partir de cette température, les grains bêta nouvellement formés commencent à croître. La zone périphérique atteint cette température plus tôt que la zone centrale. A l'inverse, la zone centrale reste plus longtemps à haute température en début de trempe, mais dans une moindre mesure. Le changement de température imposé par la trempe à l'eau se propage en effet plus rapidement dans le matériau. Au total, la différence entre la courbe de périphérie et celle de coeur, évaluée par un calcul d'aire, est positive : l'aire A vaut environ 18700 $\mathrm{K \cdot s}$, soit 4 fois plus que l'aire B, qui mesure 4230 $\mathrm{K \cdot s}$. Ce calcul simplifié, même s'il ignore les paramètres empiriques intervenant dans la modélisation de la croissance de grain normale (énergie d'activation et exposant de croissance), permet donc de rendre compte de la taille de grain plus importante en périphérie qu'en coeur.

Quant à la différence de microstructure lamellaire, elle peut être expliquée à partir de deux considérations distinctes : d'une part la proportion de sites de germination inter- et intragranulaires, d'autre part les différences de vitesses de refroidissement. Les particules insolubles de type phosphures ou siliciures et les joints de grains ont des effets opposés sur le type de microstructure formée au refroidissement. Une proportion élevée de particules mène à des microstructures en vannerie, alors que les joints de grains favorisent la formation de microstructures en platelets parallèles. En admettant que la teneur en particules est constante dans le matériau, leur influence doit donc être d'autant plus marquée que la taille de grain bêta est élevée. Ce raisonnement concorde avec les observations.

Les vitesses de trempe élevées, en favorisant la germination de la phase alpha par rapport à la croissance, ont aussi tendance à entraîner l'apparition de microstructures en vannerie. Le refroidissement étant plus rapide en périphérie qu'en coeur (figure 3.3), cette considération est aussi en accord avec l'expérience. Par ailleurs, la présence de lamelles fines en périphérie montre l'influence marquée de la trempe, en accord avec les observations de Woo et Tangri [WT79].

L'influence de la vitesse de refroidissement a été étudiée plus en detail au moyen d'un essai

[13] Ces valeurs sont des ordres de grandeur, les paramètres exacts étant confidentiels.

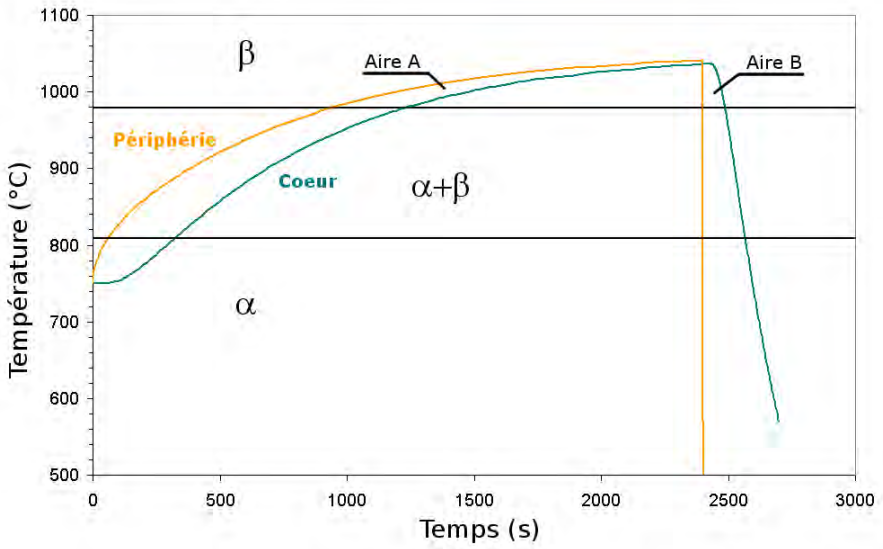



**Figure 3.3 :** *Simulation d'une homogénéisation en domaine bêta (1050 °C) après traitement en domaine alpha (750 °C) d'une billette de Zircaloy-4 de 12 cm de diamètre ; comparaison entre la zone centrale et la périphérie.*

Jominy, dont nous présentons les détails dans la partie suivante.

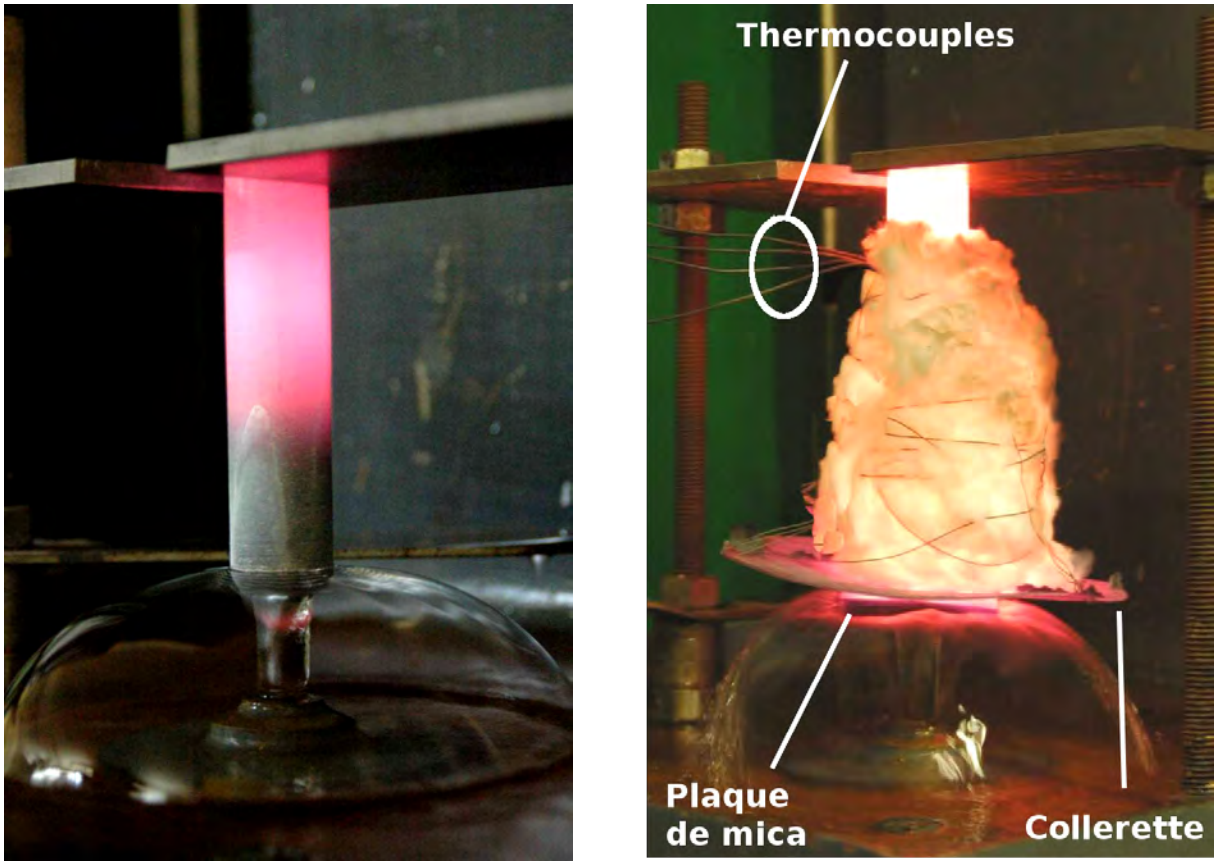
## 3.3 Influence de la vitesse de refroidissement

L'influence de la vitesse de refroidissement sur la microstructure a été discutée au chapitre 1. Cette question est d'importance centrale dans le développement de la microstructure. Des évaluations quantitatives de tailles de lamelles ont été effectuées par Massih et al. [MAW+03] et Woo et Tangri [WT79]. Leurs résultats ont été obtenus sur des échantillons de Zircaloy-4 refroidis à différentes vitesses. A cet égard, il nous est apparu intéressant de mettre en place une expérience fiable et reproductible, et de relier ses résultats avec une simulation numérique de l'état thermique du matériau au cours du refroidissement. L'objectif à moyen terme d'une telle étude est l'établissement d'un modèle phénoménologique de trempe du Zircaloy-4 à même de prévoir certaines caractéristiques de la microstructure en fonction des conditions de refroidissement, et ce pour des géométries arbitraires.

L'essai Jominy est particulièrement adapté à une telle étude. Cette méthode permet d'étudier à partir d'un seul échantillon les gradients de propriétés mécaniques et microstructurales induites par un changement de phase pour des vitesses de refroidissement variables.

Depuis sa conception vers 1939 [JB39], l'essai Jominy a été utilisé à de nombreuses reprises pour étudier la trempabilité des aciers. Le procédé consiste à porter une éprouvette cylindrique en domaine austénitique, puis à la refroidir à une extrémité à l'aide d'un jet d'eau. Un exemple de

cette expérience, effectuée sur du Zircaloy-4 est montré figure 3.4(a). Les différents paramètres du protocole expérimental, comme les dimensions de l'éprouvette et le débit du jet, sont normalisés (norme ISO 642). En fonction de la vitesse de trempe, la transformation de l'austénite est de type martensitique ou bainitique. En fin de transformation, le carbone est réparti sous forme de carbures et d'atomes en solution solide, et il en découle un gradient de propriétés mécaniques. La vitesse de trempe est évaluée à différentes positions le long de l'éprouvette par l'intermédiaire de mesures de dureté effectuées sur un méplat. Récemment, cette méthode a été appliquée à d'autres matériaux, comme les alliages de titane et d'aluminium [NM00]. Dans l'étude de Ahmed et Rack sur le TA6V, dont notre montage expérimental est inspiré, l'usage de thermocouples donne directement accès à la vitesse de trempe [AR98].




(a) Essai classique

(b) Essai modifié

**Figure 3.4 :** *Essais de Jominy avec des éprouvettes de Zircaloy-4.*

| Distance (mm) | 3 | 8 | 28 | 48 | 78 |
|---|---|---|---|---|---|
| Vitesse (K/s) | 200 | 60 | 6,8 | 3,5 | 1,8 |

**Tableau 3.2 :** *Vitesses de refroidissement en fonction de la distance à l'extrémité trempée.*

### 3.3.1 Protocole expérimental

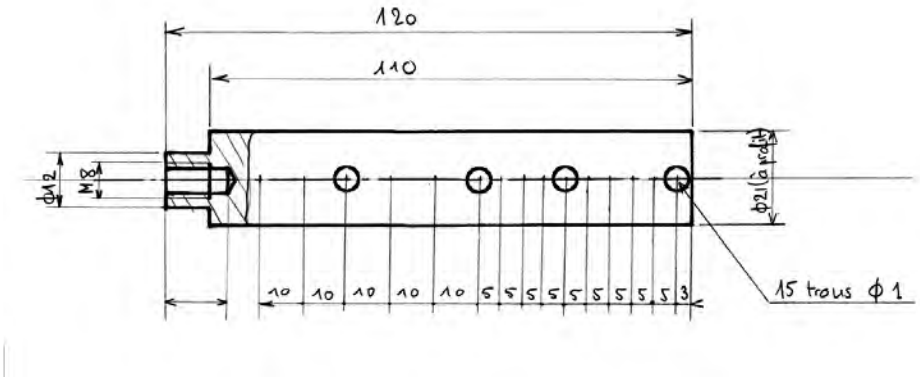
La figure 3.5 présente le dimensionnement d'une éprouvette. Par rapport à une éprouvette de Jominy normalisée, la nôtre est plus longue, de diamètre légèrement inférieur, est munie d'un trou fileté à une extrémité, et comporte des trous pour les thermocouples. Le point de mesure de la température se situe à 5 mm sous la surface. Le trou fileté sert à visser une tête en acier inoxydable par laquelle est suspendue l'éprouvette en cours de trempe, ceci afin d'éviter toute perte de chaleur par contact entre l'éprouvette et le support. L'éprouvette est recouverte d'une couche de nitrure de bore en spray, de manière à limiter l'oxydation. Elle est par ailleurs enrobée de laine isolante sur toute sa surface, excepté à l'extrémité. La laine utilisée est du Kaowool. Afin d'éviter le mouillage de la laine par capillarité au moment du refroidissement, une collerette en acier de 10 cm de diamètre est fixée à quelques millimètres de l'extrémité refroidie. Une plaque de mica, positionnée sous la collerette en acier et ajustée au diamètre de l'éprouvette, achève de garantir l'étanchéité vis-à-vis du jet d'eau. Les thermocouples, de type K, passent à travers la laine et sont reliés à un boîtier d'acquisition Spider 8 (société Hottinger Baldwin Messtechnik). Quatre thermocouples sont branchés simultanément. La fréquence d'échantillonnage est de l'ordre de 15 Hz. Le boîtier transmet les données à une application Labview. La configuration de l'éprouvette en cours de refroidissement est montrée figure 3.4(b).

Plusieurs essais ont été effectués avec la même éprouvette afin d'établir un protocole expérimental stable et reproductible. Dans l'exemple présenté ici, les thermocouples sont situés à 8, 28, 48 et 78 mm de l'extrémité inférieure (positions repérées par des cercles sur la figure 3.5(a)).

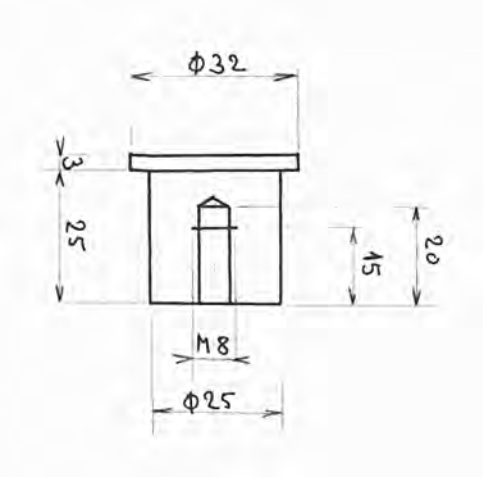
Une fois la température de consigne atteinte au niveau des quatre thermocouples, celle-ci est maintenue 20 minutes avant la trempe. La sortie de l'éprouvette, son positionnement sur le support et le déclenchement de la trempe prennent moins de 5 secondes. Après acquisition, les historiques de température enregistrés par les quatre thermocouples thermocouples ont été extrapolés aux positions intermédiaires. Les profils de trempe résultants sont présentés figure 3.6. Le gradient de température est conséquent entre la zone directement au contact du jet d'eau et le reste de l'éprouvette. De même, les vitesses de refroidissement, évaluées entre 980 et 800 °C, diffèrent significativement (tableau 3.2).

### 3.3.2 Resultats

Après refroidissement, l'éprouvette a été sectionnée le long de son axe. Les demi-éprouvettes ont été polies et électropolies, puis observées en microscopie optique et électronique. A partir de

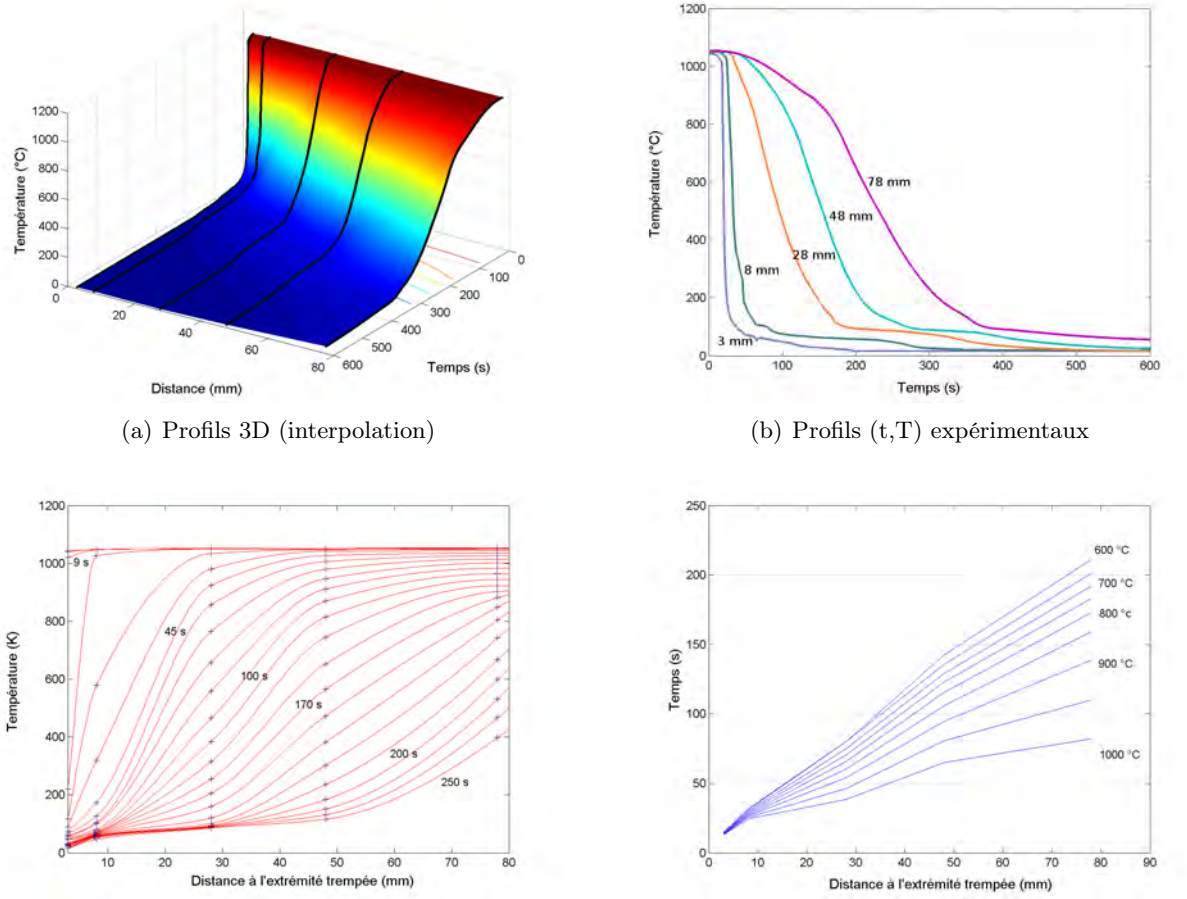



(a)




(b)

**Figure 3.5 :** *Géométrie de l'éprouvette de Jominy en Zircaloy-4 (a) et de la tête de suspension en inox (b). Les cercles marquent les positions des thermocouples.*




(a) Profils 3D (interpolation)

(b) Profils (t,T) expérimentaux

(c) Isochrones (interpolation, écarts variables)

(d) Isothermes (interpolation, écarts de 50 K)

**Figure 3.6 :** *Analyse des profils de refroidissement.*

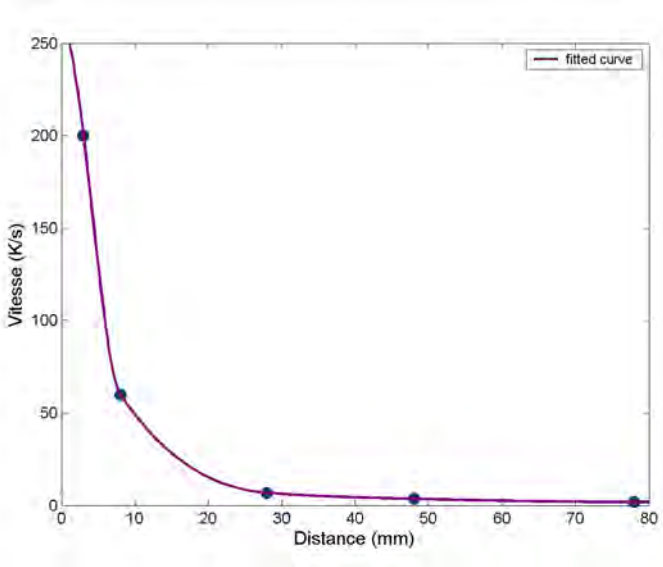
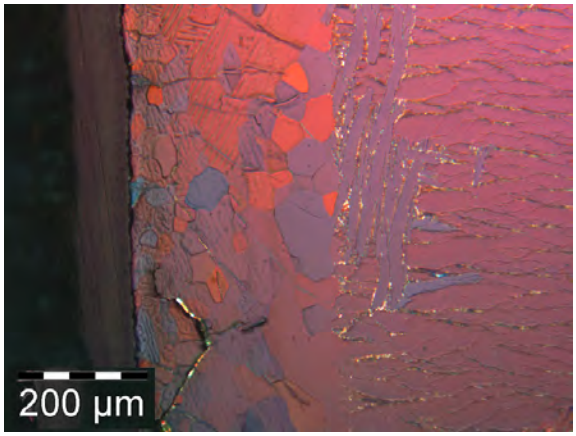



**Figure 3.7 :** *Variation de la vitesse de refroidissement en fonction de la distance à l'extrémité trempée.*

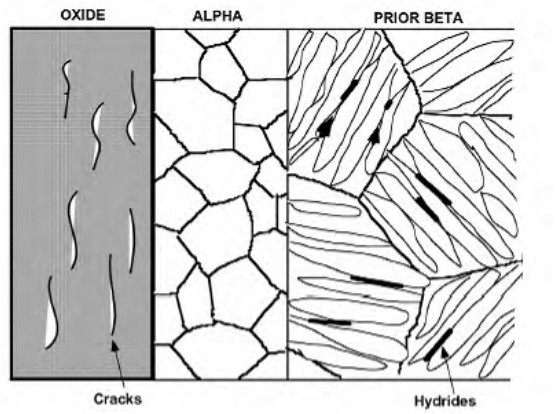
la surface et quelle que soit la distance à partir de l'extrémité trempée, sont visibles une couche d'oxyde épaisse d'une cinquantaine de micromètres, puis une zone de grains alpha équiaxes et une microstructure à lamelles épaisses sur environ 150 µm (figure 3.8(a)). Cette microstructure est imputable à la diffusion de l'oxygène malgré le revêtement en nitrure de bore et la présence de laine isolante. Il est connu en effet que l'oxygène est un élément alphagène, et que sa présence stabilise la phase alpha à haute température. En quantité moindre, à quelque distance de la surface (environ 150 µm dans notre cas) l'oxygène ne peut empêcher la transformation alpha → bêta, mais favorise la formation de microstructures lamellaires grossières au refroidissement [Mas07]. La figure 3.8(b) montre schématiquement la concentration en oxygène près de la surface de l'éprouvette et ses conséquences sur la microstructure. Cette microstructure lamellaire grossière renvoie à la phase *alpha case* observée dans les alliages de titane oxydés à chaud [OKK53].

Des micrographies typiques, obtenues par microscopie électronique en balayage le long de l'axe de l'éprouvette, sont présentées figure 3.9.

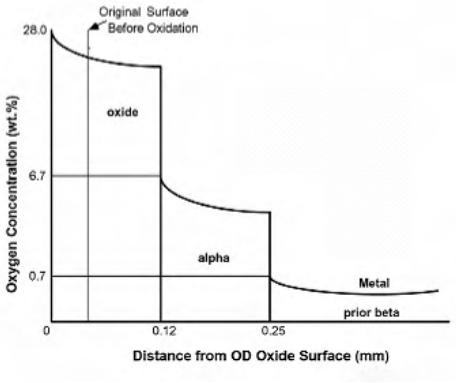
Il apparaît nettement que l'épaisseur apparente des lamelles croît avec la distance par rapport à l'extrémité trempée. Par ailleurs, la taille de grain bêta est relativement élevée dans l'ensemble de l'éprouvette, de l'ordre de 1 à 1,5 mm. Dans l'essentiel du matériau, la microstructure est de type vannerie. Aux abords de l'extrémité trempée, la microstructure est clairement martensitique : les lamelles sont extrêmement fines et la présence de précipités n'est pas décelable. Une caractérisation par microscopie en transmission, qui n'a pas été entreprise faute de temps, permettrait de confirmer cette hypothèse en révélant la structure interne des lamelles et leur périphérie. Un examen détaillé des positions éloignées de l'extrémité de l'éprouvette (à partir de




(a)

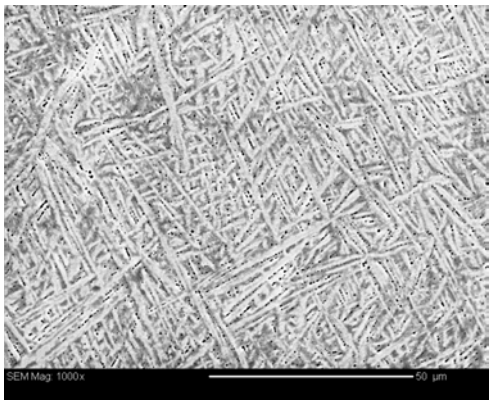



(b)

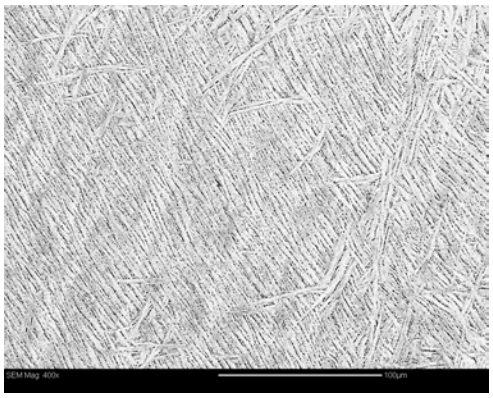



(c)

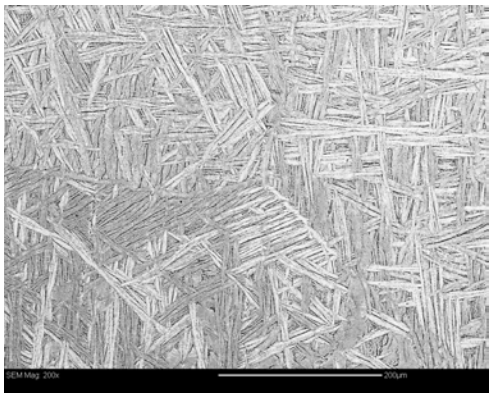
**Figure 3.8 :** *Contamination par l'oxygène : microstructure en périphérie de l'éprouvette et représentation schématique de la concentration en oxygène dans une pièce en Zircaloy-4 oxydée à haute température (d'après [Mas07]).*



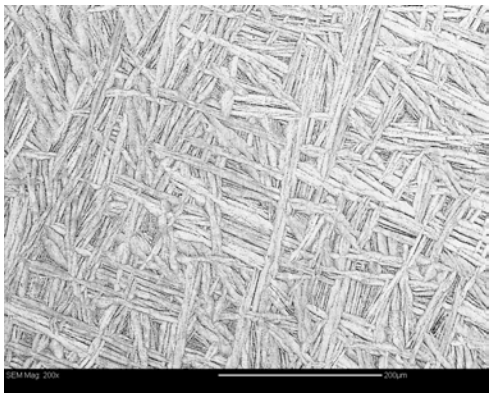

(a) 1 mm



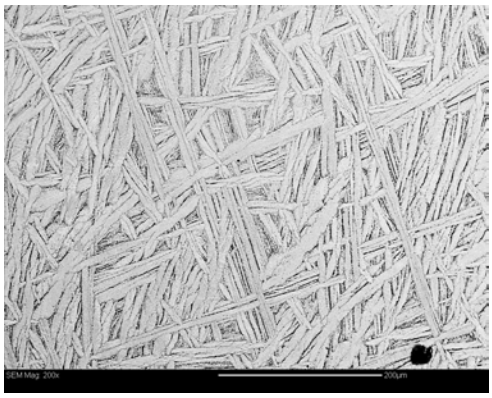
(b) 5 mm



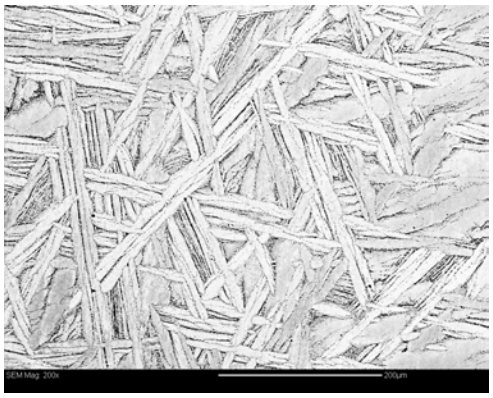
(c) 20 mm



(d) 40 mm



(e) 55 mm



(f) 78 mm

**Figure 3.9 :** *Micrographies de long de l'éprouvette en fonction de la distance à l'extrémité trempée.*

50 mm environ) montre que la répartition des précipités est relativement uniforme, à l'exception de quelques zones d'étendue réduite, dans lesquelles ils sont plus concentrés (figure 3.10). Cette observation est à mettre en rapport avec celle de Logé [Log99], qui remarque lui aussi des zones riches en précipités dans une ébauche de Zircaloy-4 filée en conditions industrielles. Il est raisonnable de supposer qu'elles correspondent aux dernières zones de phase bêta transformées, dans lesquelles se sont concentrés les éléments fer et chrome.

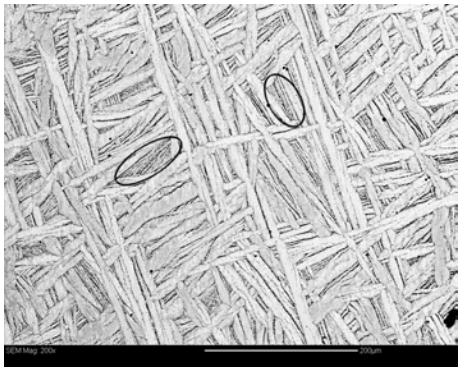


**Figure 3.10 :** *Zones riches en précipités à 65 mm de l'extrémité trempée.*

La largeur des lamelles a été évaluée par intersections avec des droites orientées aléatoirement sur les micrographies. Les zones de concentration de précipités ont été ignorées. La figure 3.11 présente l'ensemble des mesures.

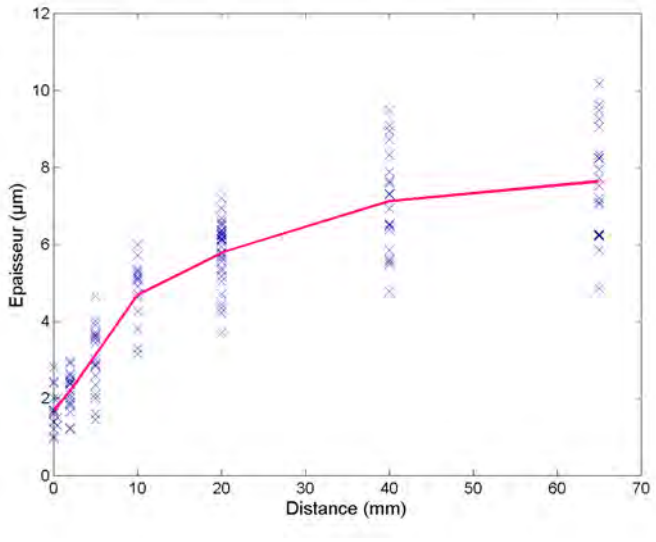



**Figure 3.11 :** *Epaisseur des lamelles en fonction de la distance à l'extrémité trempée.*

Sur la figure 3.12 ces valeurs sont comparées avec celles de Massih et al. [MAW+03]. Si les ordres de grandeur concordent, nos valeurs sont dans l'ensemble légèrement supérieures, ce qui

pourrait s'expliquer par une teneur différente en oxygène, le type de microstructure formée, ainsi que par la méthode de mesure.

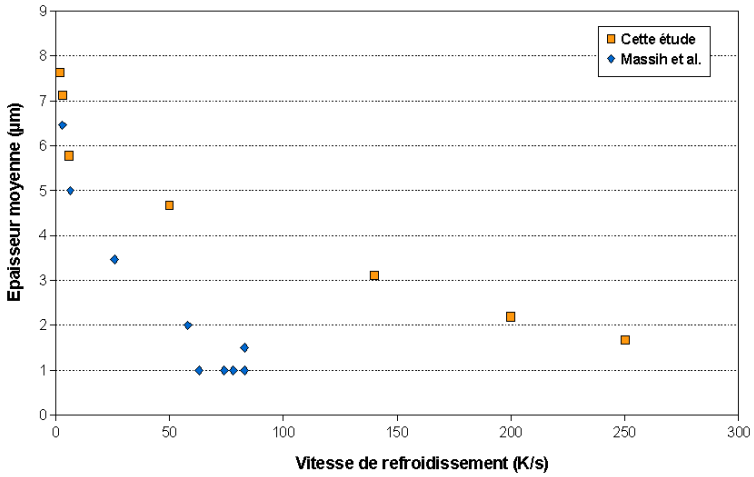



**Figure 3.12 :** *Epaisseur des lamelles en fonction de la vitesse de refroidissement.*

### 3.3.3 Simulation numerique

Cette étude a été étendue à la prédiction, sur des bases empiriques, de la microstructure lamellaire formée au refroidissement depuis le domaine bêta. La démarche employée repose sur une simulation par éléments finis dont les détails sont précisés dans l'annexe A. L'objectif à long terme est de prédire le profil de refroidissement d'une pièce de dimensions et de formes arbitraires et le type de microstructure qui en résulte.

Les premiers résultats sont relativement éloignés des profils de températures mesurés, ainsi que le montre la figure 3.13, à mettre en comparaison avec la figure 3.6(b). L'écart entre les courbes n'est pas correctement reproduit. Sont en cause plusieurs facteurs non exclusifs, en particulier l'imprécision dans les valeurs de coefficients d'échange. L'émissivité, par ailleurs, ne peut qu'être affectée par la présence de la laine de couleur blanche.

Malgré ces difficultés, l'essai de Jominy permet de déterminer des vitesses de refroidissement réalistes et de les relier directement à la microstructure formée. En outre, la variation de taille de grains bêta entre le bord et le coeur de la billette peut être expliquée qualitativement à l'aide de la simulation par éléments finis. D'autres expériences sont nécessaires afin d'évaluer l'émissivité et les coefficients d'échange, par exemple sur le modèle des travaux de Masson et al. [LMLA$^+$02].

## 3.4 Répartition des éléments d'alliage

La variation de composition entre le bord et le coeur des lamelles dans les alliages de zirconium trempés bêta est un fait admis et a été mise en évidence par Bangaru [Ban85] et Crépin [Cré95].

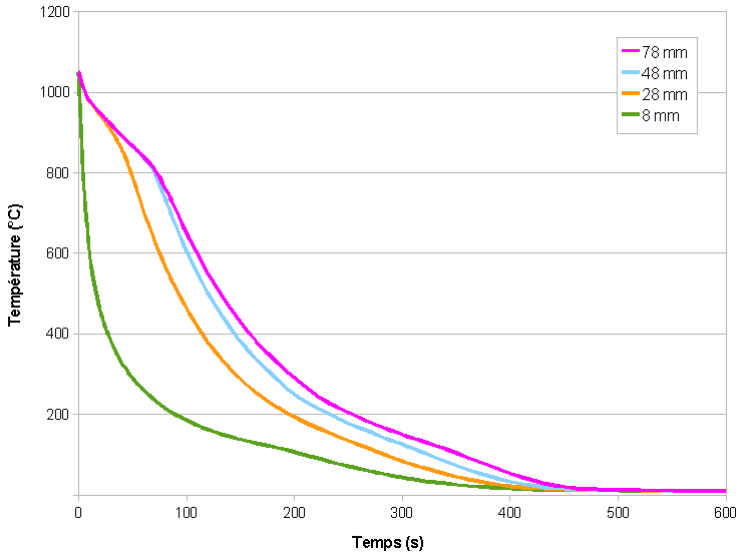



**Figure 3.13 :** *Simulation par éléments finis des profils de refroidissements le long d'une éprouvette de Jominy (mêmes conditions que la figure 3.6).*

La cartographie chimique par sonde EDX de la microstructure de notre matériau initial (figure 3.14) est en accord avec leurs résultats : l'étain est plus abondant au coeur des lamelles, le fer et le chrome sont concentrés dans les précipités interlamellaires.

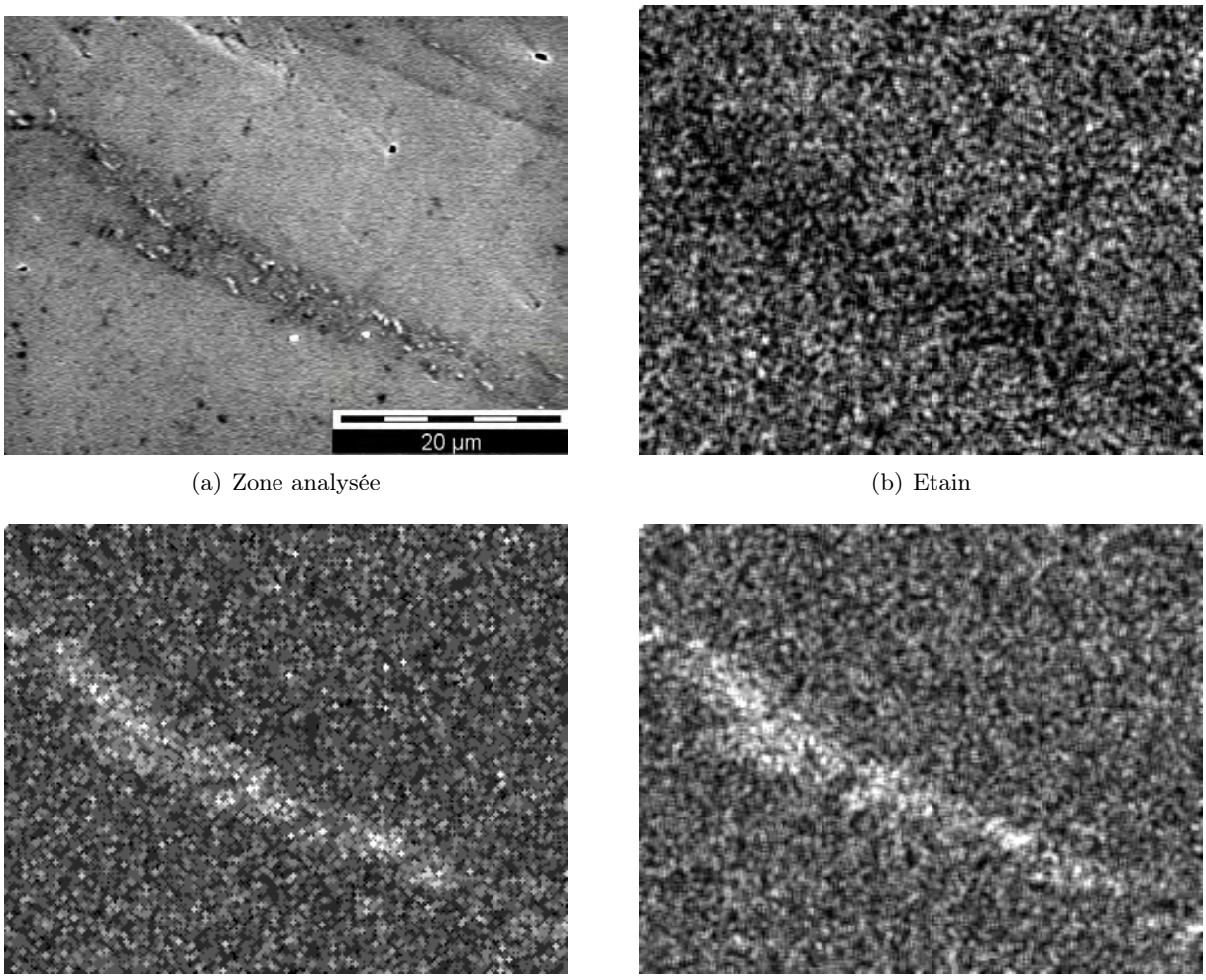
Des caractérisations par MET [Pau06] montrent que les précipités intermétalliques ne forment pas une couche d'épaisseur continue. Leur structure cristalline est majoritairement de type cubique faces centrées. Une analyse chimique montre qu'ils contiennent plus de fer que de chrome. Ces observations sont en accord avec les observations de Crépin [Cré95] et Logé [Log99].

Par ailleurs, la répartition des précipités est certes organisée dans l'espace, mais il est quelque peu abusif de parler de lamelles à l'échelle mésoscopique. La figure 3.15 montre en effet que les couches sont irrégulières et loin d'être planes. Ceci est particulièrement vrai dans les structures en platelets parallèles.

## 3.5 Relations de Burgers

Les relations de Burgers ont été mises en évidence de nombreuses fois dans le Zircaloy-4 et notre matériau ne fait pas exception à la règle. La figure 3.16 présente une cartographie et les figures de pôles associées d'un ex-grain bêta. Onze variants sont présents. L'histogramme de désorientations ente couples de points choisis au hasard est présenté figure 3.17. Les désorientations principales se situent autour de 10, 60 et 90 °, en accord avec les relations de Burgers.

La figure 3.16 présente une vérification plus précise des relations de désorientation entre variants. Outre les figures de pôles $<11\bar{2}0>$ et $<0001>$, sont présentées également les figures




(a) Zone analysée

(b) Etain

(c) Fer

(d) Chrome

**Figure 3.14 :** *Analyse qualitative par EDX de la répartition des principaux éléments d'alliage du Zircaloy-4.*

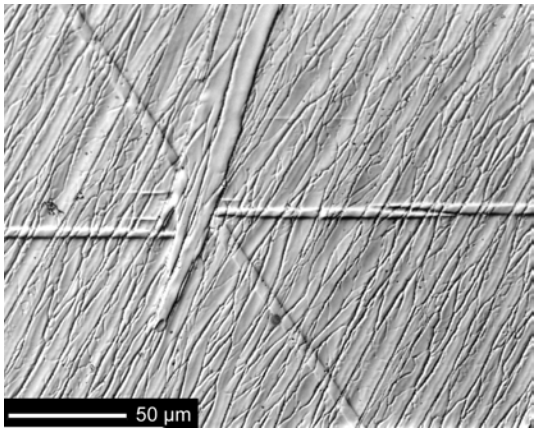
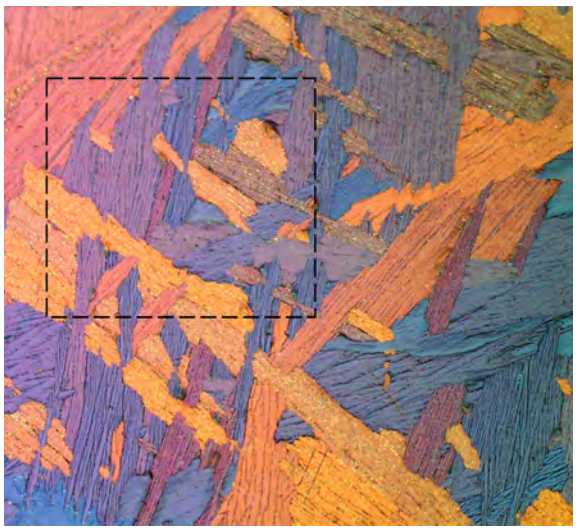


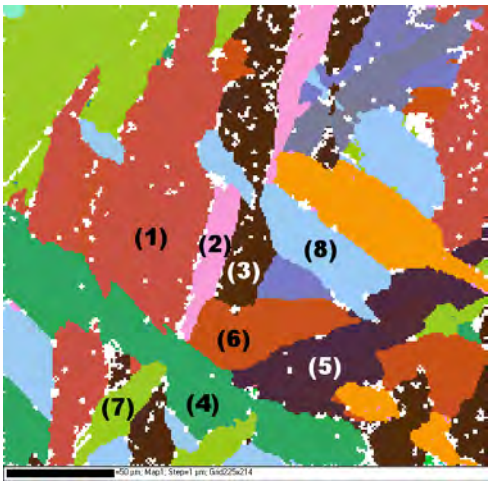

**Figure 3.15 :** *Répartition irrégulière des précipités intermétalliques dans une colonie en platelets parallèles. Les bandes rectilignes sont des macles.*

$<10\overline{2}\overline{4}140>$, et $<10\bar{5}\bar{5}3>$, correspondant aux axes $d_2$ et $d_3$ du tableau 1.2. Les indices de Miller sont approchés d'après [WAS03]. Sur chacune de ces figures, certains pôles sont communs à deux variants. Ainsi, les variants 7 et 8, repérés sur la figure 3.16(b), ont le même plan basal (leurs pôles $<0001>$ sont confondus sur la figure 3.16(c)). La figure de pôles $<11\overline{2}0>$ (3.16(d)) montre par ailleurs qu'ils sont légèrement désorientés autour de l'axe <c>. Cette désorientation est de l'ordre de 10 °. Il s'agit donc de la première des relations de désorientation listées dans le tableau 1.2, pour laquelle le même plan $(110)_\beta$ est à l'origine du plan basal de deux variants distincts. La micrographie montre que les colonies présentant cette désorientation apparaissent souvent perpendiculaires. Ce point est facilement éclairci si l'on considère la direction de croissance des lamelles, de type $<\overline{3}34>_\beta$ selon Banerjee et al. [BDSR97]. L'angle entre deux directions de ce type pour deux variants de même plan basal $(0001)_\alpha//(110)_\beta$ vaut 80,6 °Ėn fonction de l'angle de section planaire, les colonies correspondantes peuvent donc apparaître perpendiculaires [BVD+03].

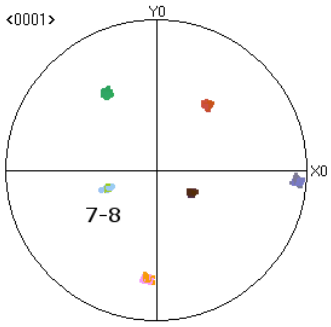
Sur la même figure $<11\overline{2}0>$, les variants 1, 2 et 3 ont un axe en commun. Une mesure sur la cartographie montre qu'ils sont désorientés de 60 °. Il s'agit donc de la deuxième désorientation prédite par les relations de Burgers. Les deux autres figures de pôles concernent les désorientations de 63,3 ° et 90 °. Certains pôles correspondant à des variants distincts sont confondus ; il s'agit donc d'axes de zones. Eu égard à la résolution angulaire de la technique, de l'ordre du degré, la désorientation de 60,8 ° n'a pas été distinguée de celle de 60 °. L'ensemble de ces axes de désorientation sont représentés sur la figure de pôles inverse figure 3.18, qui coïncide avec la figure 1.9.



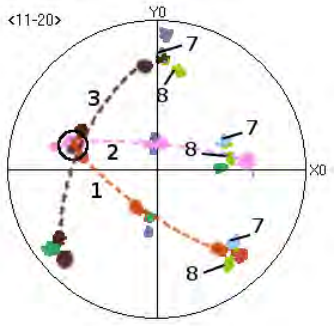
(a) Micrographie



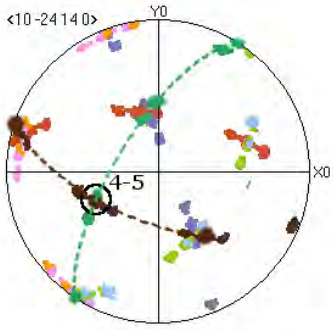

(b) Orientations cristallines



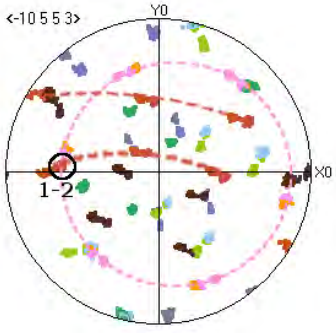

(c) Figure de pôles $< 0001 >_{\alpha}$ // $<110>_{\beta}$




(d) Figure de pôles $<11\bar{2}0>$




(e) Figure de pôles $<10\,\overline{24}\,14\,0>$




(f) Figure de pôles $<10\,\bar{5}\,\bar{5}\,3>$

**Figure 3.16 :** *Analyse EBSD d'un ancien grain bêta, mise en évidence des axes de zones.*

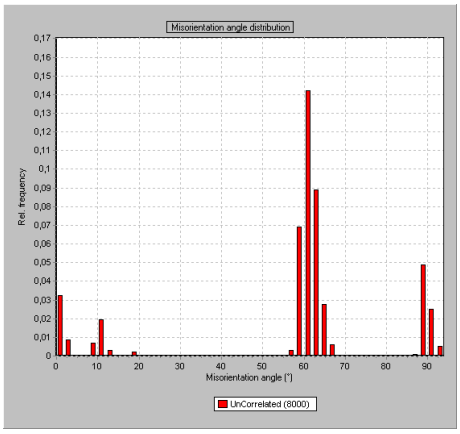



**Figure 3.17 :** *Histogramme des désorientations de la cartographie présentée figure 3.16.*

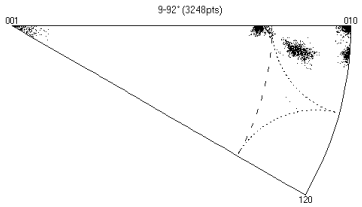



**Figure 3.18 :** *Figure de pôles inverse montrant les axes de désorientation de la microstructure présentée figure 3.16.*

## 3.6 Relations morphologie-cristallographie

Nous l'avons mentionné plus haut, il est quelque peu abusif de parler de lamelles dans notre matériau. Plutôt qu'un empilement de lamelles, les colonies doivent être considérées comme des domaines monocristallins striés par des nappes de précipités intermétalliques. Il est cependant possible de considérer l'orientation moyenne des lamelles dans une colonie donnée. La position de la maille hexagonale par rapport à cette orientation moyenne a fait l'objet d'une étude analogue à celle effectuée par Dumanowski [Dum97] sur le TA6V. Des échantillons ont été caractérisés par EBSD sur deux faces perpendiculaires. De la sorte, l'orientation des lamelles et celle de la maille hexagonale ont pu être comparées. La double détermination de l'orientation cristalline par EBSD a permis de s'assurer que la colonie observée était bien la même dans les deux cas. Un résultat typique est présenté figure 3.19. Sur chacune des faces, l'inclinaison de la trace du plan des lamelles par rapport à l'horizontale est mesurée par les angles $\alpha$ et $\beta$. Ces angles permettent de tracer la projection stéréographique du plan sur les figures de pôles $<0001>$. Sur les deux figures, le pôle $<0001>$ apparaît bien situé dans le plan des lamelles.

## 3.7 Phase $\alpha_{GB}$

Nous présentons dans cette partie une étude portant sur la phase alpha située aux anciens joints de grains bêta. Nous montrons ses traits communs avec la phase alpha allotriomorphe $\alpha_{GB}$ des alliages de titane alpha/bêta. Le caractère diffusif de la formation de cette phase est d'abord mis en évidence, puis une série de caractérisations EBSD permettent de faire le lien avec des résultats récents obtenus avec les alliages de titane [BVD$^+$03, SB04, BVF07]. Ces résultats ont été vérifiés et sont présentés à titre indicatif en annexe B.

### 3.7.1 Caractère diffusif

Les deux micrographies présentées figure 3.20 montrent une zone dans laquelle 3 anciens joints de grains bêta sont visibles. Ils sont décorés d'une couche de phase alpha épaisse de 10 µm environ. Cette couche n'est pas continue et en lumière polarisée plusieurs orientations peuvent être distinguées le long d'un même joint (couches annotées 1 et 2, et 3 et 4 sur la figure 3.20). Une couche peut être reliée, avec la même orientation cristallographique, à des colonies dans les deux anciens grains bêta (couches 1 et 2), dans un seul (couches 3 et 4), ou dans aucun (couche 5 apparemment – il n'est cependant pas exclu que des colonies soient rattachées à cette couche en dehors du plan de l'image). Ces couches ont une forme irrégulière, qui, à la différence des colonies, ne semble pas liée à leur structure cristallographique. Elles peuvent donc être qualifiées d'allotriomorphes.

Dans les alliages de titane, la formation de cette couche est régie par la diffusion des éléments le long des joints de grains [vBSvdZ06]. Une cartographie chimique montre qu'il en va

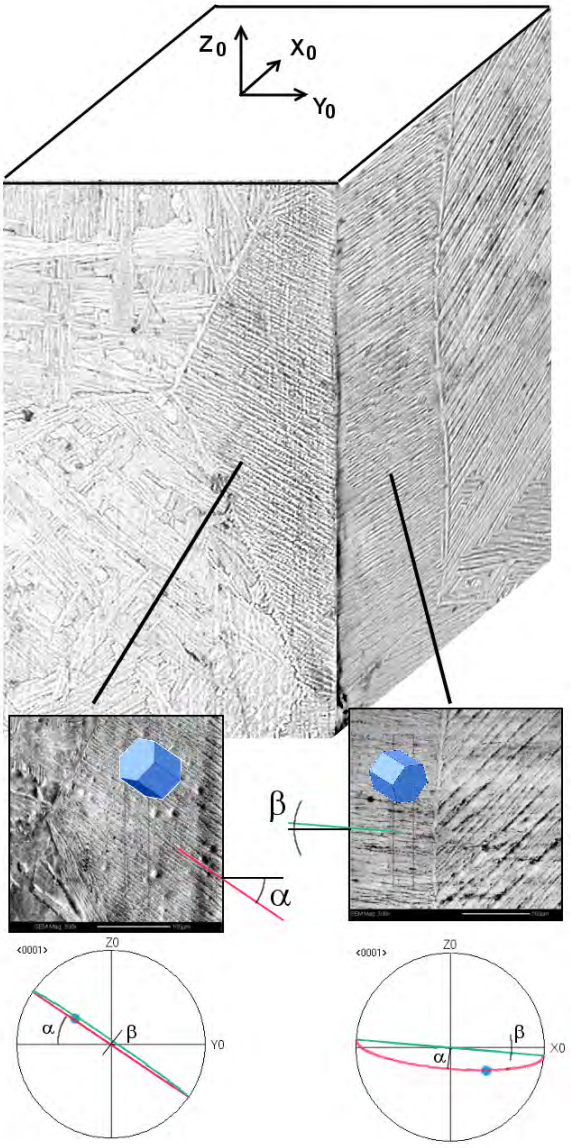
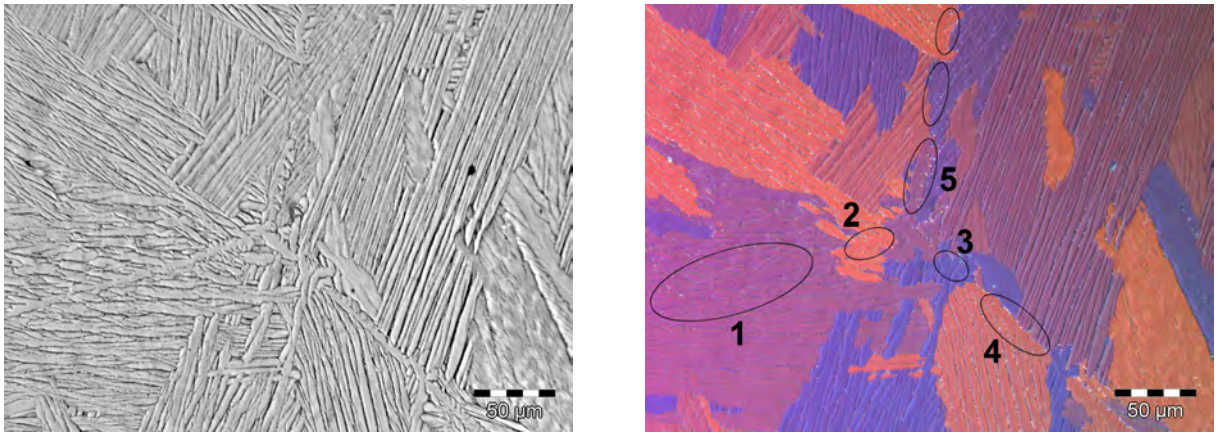



**Figure 3.19 :** *Illustration de la présence des axes <c> dans le plan des lamelles.*




(a) Contraste interférentiel

(b) Lumière polarisée

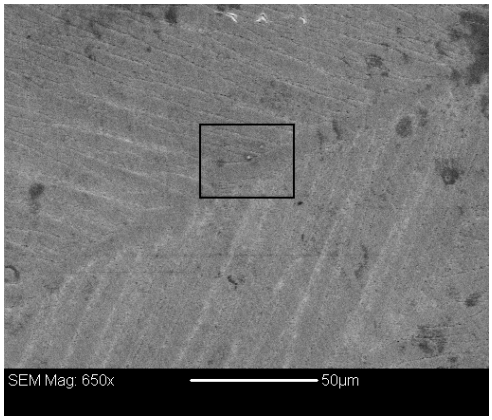
**Figure 3.20 :** *Anciens joints de grains bêta.*

de même dans le Zircaloy-4. Ainsi, la figure 3.21 met en évidence une composition interne de la zone allotriomorphe équivalente à celle des lamelles, avec ségrégation des éléments d'alliage en périphérie.

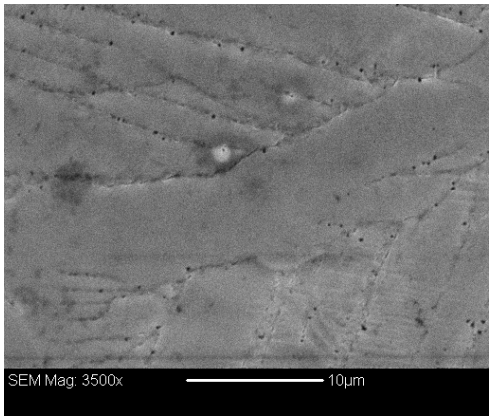
### 3.7.2 Cristallographie

Cette partie traite des relations cristallographiques entre la phase alpha allotriomorphe et les colonies des grains bêta adjacents. Les exemples qui suivent ont été obtenus sur notre matériau initial. Nous montrons d'abord l'existence d'une désorientation variable, mais faible, entre les couches allotriomorphes et les colonies qui y sont rattachées. La présence éventuelle de précipités intermétalliques ne semble pas avoir d'influence sur ce paramètre. En accord avec les résultats de la littérature sur les alliages alpha/bêta de titane, les allotriomorphes présentent une relation de Burgers approchée avec au moins l'un des deux grains. Nous étudions ensuite deux cas de figure de relations entre grains bêta voisins, caractérisés par la proximité d'orientation de plans de type {110}. Ces observations mettent en évidence une sélection des variants au niveau des joints de grains, et montrent que la formation de la couche allotriomorphe dépend de la désorientation initiale entre les grains bêta.

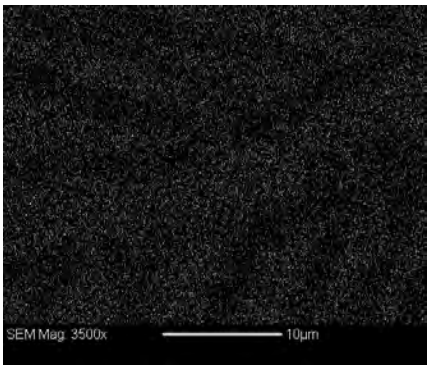
La figure 3.22 montre un ancien joint de grains bêta à partir duquel ont germé deux colonies, une dans chaque ancien grain bêta (colonies notées (1) et (2)). La cartographie EBSD montre que ces deux colonies ont des orientations cristallines différant de quelques degrés, avec un axe <a> en commun et un plan basal proche (figures 3.22(c) et (d)). Des mesures d'orientation cristalline le long des lamelles rattachées à la couche allotriomorphe ne montrent qu'une faible désorientation par rapport à celle-ci (figures 3.22(e) et (f), les profils étant notés (1) et (2) sur la cartographie).



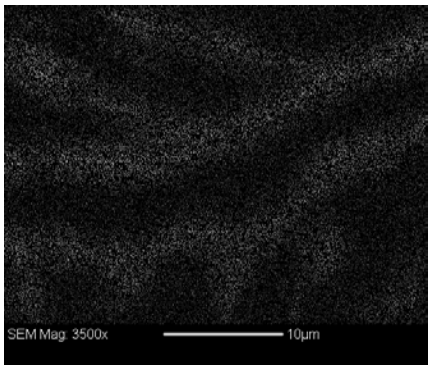

(a) Zone analysée ×650



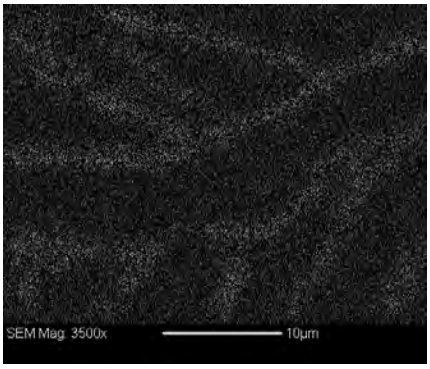

(b) Zone analysée ×3500




(c) Etain

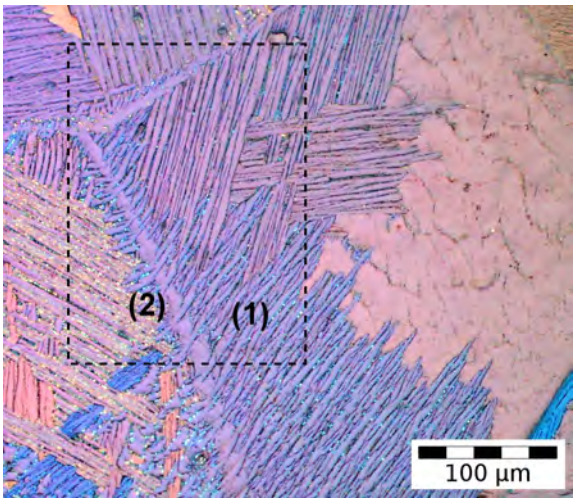



(d) Fer



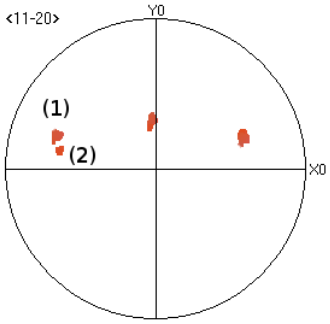

(e) Chrome

**Figure 3.21 :** *Analyse qualitative de la répartition des principaux éléments d'alliage dans une couche de phase $\alpha_{GB}$ de Zircaloy-4.*

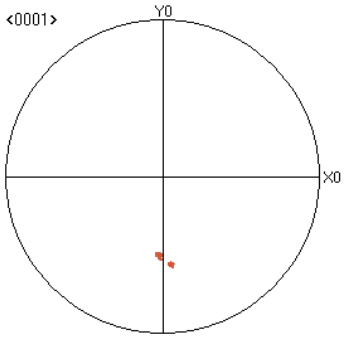



(a) Lumière polarisée

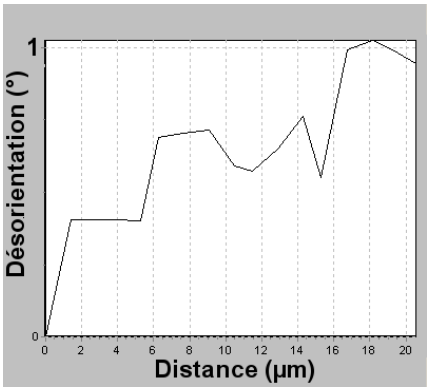
(b) Cartographie



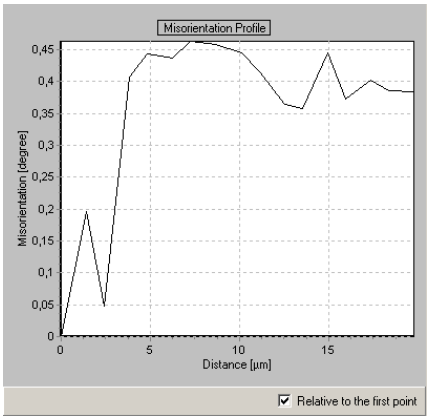

(c) Figure de pôles <a>




(d) Figure de pôles <c>



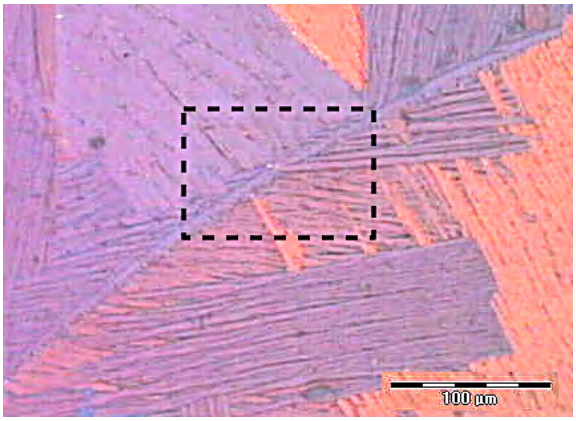

(e) Profil de désorientation (1)



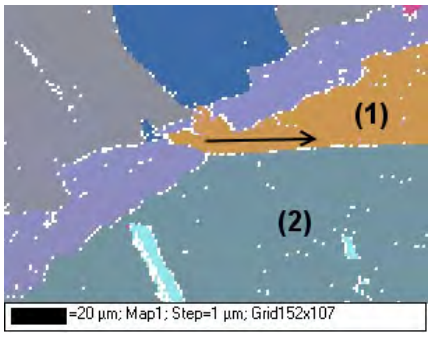

(f) Profil de désorientation (2)

**Figure 3.22 :** *Analyse EBSD d'un ancien joint de grains bêta et des colonies qui y ont germé.*

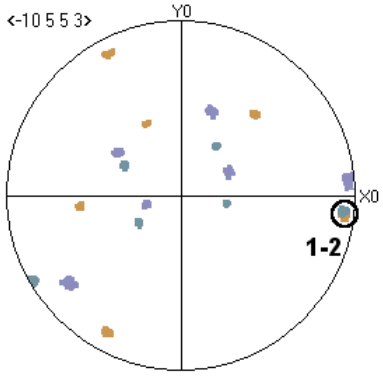
La désorientation entre la couche allotriomorphe et les colonies qui s'y rattachent peut être plus élevée et atteindre quelques degrés. La figure 3.23 montre une portion de joint de grains décorée de deux allotriomorphes. La colonie qui se développe à droite (colonie (1)) présente une désorientation abrupte de 2 °. Celle-ci est en relation de Burgers avec l'autre colonie appartenant au même ancien grain, ainsi que le montre la figure 3.23(c). Sur cette figure de pôles $<10\,\bar{5}\,\bar{5}\,3>$ est visible un axe de zone entre les colonies (1) et (2), repéré par un cercle ; l'écart angulaire étant de 63,5 °, il s'agit de la quatrième relation d'orientation du tableau 1.2. Une réorientation partielle a donc lieu entre l'allotriomorphe et la colonie. A contrario, les allotriomorphes ne présentent généralement qu'une correspondance de Burgers approximative avec l'un des deux grains bêta entre lesquels ils ont germé. Dans certains cas, cette correspondance approchée peut être maintenue avec les deux grains, comme cela est le cas sur la figure 3.22. L'analyse suivante étudie cette configuration plus en détail.



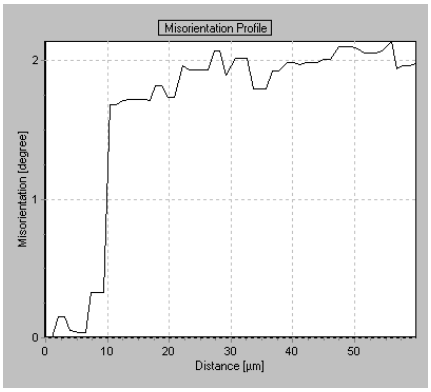

(a) Lumière polarisée




(b) Cartographie



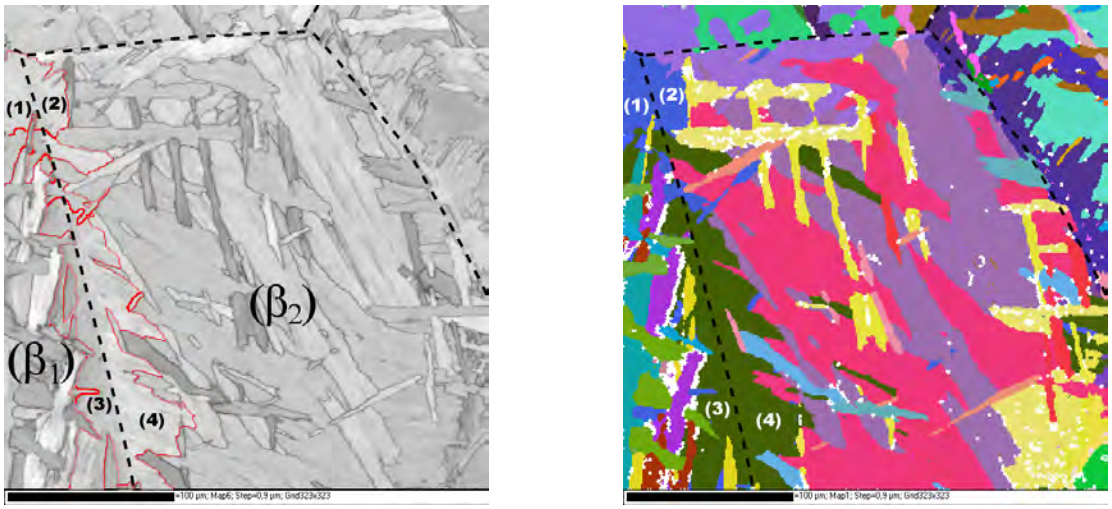

(c) Figure de pôles $<10\,\bar{5}\,\bar{5}\,3>$




(d) Profil de désorientation

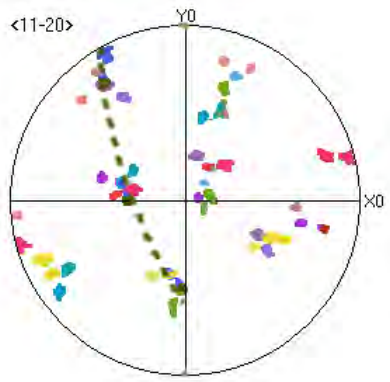
**Figure 3.23 :** *Analyse EBSD de la désorientation entre un allotriomorphe et la colonie associée, et mise en évidence d'une relation de désorientation de Burgers (axe de zone $<10\,\bar{5}\,\bar{5}\,3>$) avec la colonie appartenant au même grain bêta.*

La figure 3.24 montre un ancien joint, séparant deux grains bêta notés ($\beta_1$) et ($\beta_2$).

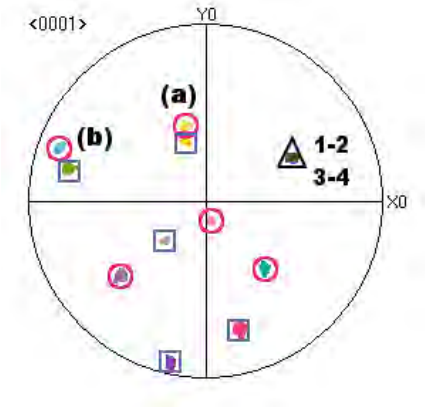



(a) Contraste de bandes

(b) Cartographie




(c) Figure de pôles <a>




(d) Figure de pôles $\{0001\}_\alpha // \{110\}_\beta$

**Figure 3.24 :** *Analyse EBSD d'un ancien joint de grains décoré de plusieurs couches allotriomorphes et des colonies associées.*

Le joint de grains est décoré de plusieurs couches allotriomorphes à partir desquelles ont germé de part et d'autre des colonies. Les principales colonies sont notées de (1) à (4) sur la figure 3.24(b). Les colonies (1) et (2) sont issues de la même couche allotriomorphe, de même que les colonies (3) et (4). Les colonies (1) et (3) appartiennent au grain ($\beta_1$), et les colonies (2) et (4) au grain ($\beta_2$). L'analyse EBSD montre que les relations d'orientations de Burgers sont vérifiées dans chaque grain. Pour chaque couche allotriomorphe, les deux colonies ont sensiblement la même orientation (respectivement, colonies (1) et (2), et (3) et (4)). Les deux anciens grains bêta présentent donc deux variants communs.

Les figures de pôles $< 11\bar{2}0 >$ et $< 0001 >$ mettent par ailleurs en évidence que les colonies

rattachées au joint de grains considéré, et appartenant au même grain bêta, sont désorientées de 10 ° autour d'un axe <c> commun. Sur la figure 3.24(c), les pôles <a> des colonies (1) à (4) sont reliés par des tirets. Sur la figure 3.24(d), les carrés marquent les pôles appartenant au grain ($\beta_1$), les cercles ceux appartenant au grain ($\beta_2$), et l'axe $<0001>_\alpha$ // $<110>_\beta$ commun est indiqué par un triangle. Cette relation d'environ 10 ° autour d'un axe <c> correspond à la première désorientation listée dans le tableau 1.2. Les deux variants communs aux grains bêta ont donc le même plan basal. D'après les relations de Burgers, les deux grains avaient donc un plan $(110)_\beta$ en commun avant la transformation $\beta \rightarrow \alpha$. Le schéma 3.25 résume ces observations.

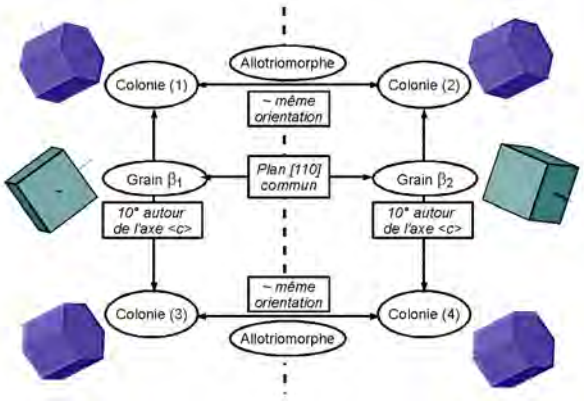



**Figure 3.25 :** *Résumé des relations entre les colonies et anciens grains bêta présentés figure 3.24. Ovales : entités microstructurales, rectangles : relations cristallographiques, trait pointillé : ancien joint de grains bêta.*

Les figures de pôles montrent que certains autres variants sont proches entre les deux grains. Dans chaque grain, deux autres paires de variants désorientés de 10,5 ° autour d'un axe $<0001>$ sont cristallographiquement proches de deux paires équivalentes du grain voisin. Sur la figure 3.24(d), ces paires sont notées (a) et (b). Il n'est pas inutile de noter que les désorientations minimales entre ces variants restent supérieures à celles existant entre les variants des colonies (1) à (4) présents aux joints de grains. Ces derniers sont ceux dont les plans basals sont les plus proches.

En suivant les conclusions de Bhattacharyya et al. [BVD$^+$03] sur les alliages de titane, nous pouvons conjecturer qu'il s'agit d'un cas de sélection de variants opérant au niveau de la phase alpha formée aux joints de grains, sélection qui se prolonge dans l'orientation des colonies ayant germé à partir de celle-ci. Le cas présenté figure 3.22 est sensiblement voisin, à la différence que le joint de grains ne comporte qu'une seule couche allotriomorphe. D'autres configurations similaires, non détaillées ici, sont visibles au niveau du joint de grains situé dans la partie supérieure de la figure 3.24, ainsi qu'en haut à gauche sur la figure 3.26.

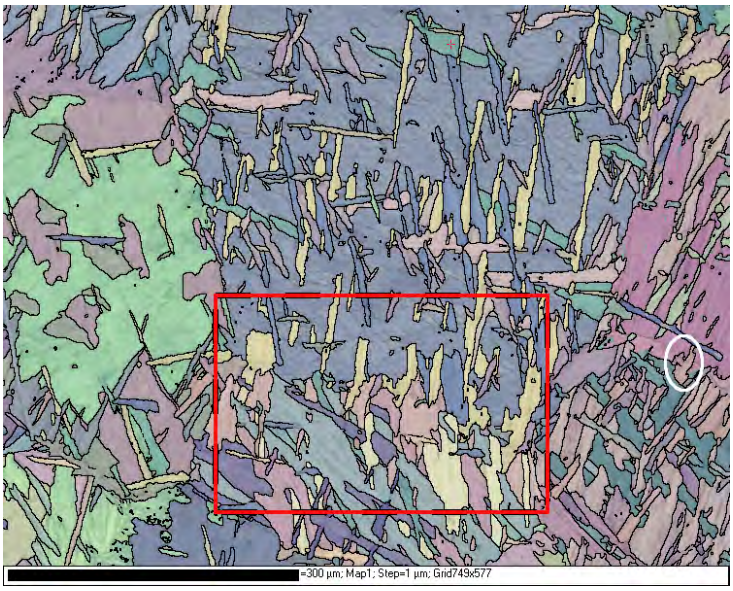
Il est bien entendu fréquent d'observer des grains bêta n'ayant entre eux aucun plan {110} en commun. Cela correspond par exemple à la figure 3.23. Un autre exemple est présenté figure 3.26.

La figure 3.26(a) laisse deviner plusieurs anciens grains bêta, mais il est difficile de distinguer les positions exactes de certains joints. Sur la figure 3.26(b), un joint a été retracé entre deux grains ($\beta_1$) et ($\beta_2$). A la différence du cas précédent, les deux grains ne présentent aucun plan {110} proche. Les couches allotriomorphes sont difficilement décelables, et de nombreuses orientations cristallographiques différentes sont présentes le long du joint de grains. Certaines zones sont reliées à des colonies de part et d'autre du joint. Les colonies rattachées à une même couche allotriomorphe sont notées de 1 à 4 sur la figure 3.26(c). Les colonies 1 et 2, et 3 et 4 sont entre elles désorientées de 3,5 à 4 °, et de 5 à 7 °, respectivement.

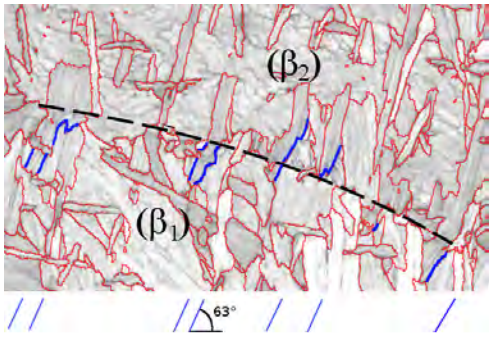
Par ailleurs, il est visible que les colonies 2 et 4 sont moins présentes à l'intérieur des grains ($\beta_1$) et ($\beta_2$) respectivement, que les colonies 1 et 3. En particulier, leur présence reste limitée à l'abord du joint de grains. Un examen plus détaillé montre que les colonies 2 et 4 *ne sont pas* en relation d'orientation de Burgers avec les autres colonies présentes dans le même grain. La colonie 2 est en quelque sorte "intruse" dans le grain ($\beta_1$), à l'instar de la colonie 4 dans le grain ($\beta_2$).

Il semble en revanche exister une relation cristallographique privilégiée entre ces colonies intruses et les deux autres colonies considérées. En effet, les variants des colonies 1 et 4, ainsi que 2 et 3, présentent un axe de zone simple de type $<1\bar{1}00>$, avec une rotation de l'ordre de 34 ° à 35 ° dans les deux cas. Sur la figure 3.27(a), l'axe commun aux différents variants est repéré par un cercle. Or, cette relation est très proche de celle d'un réseau de coïncidence de sites de type $\Sigma 11$, la désorientation théorique étant de 35,10 ° autour d'un axe $<1\bar{1}00>$ [BC81]. La figure 3.28 résume ces relations. Les zones de contact entre les colonies 1 et 4, et 2 et 3, surlignées en rouge sur la figure 3.26(c), sont relativement plus étendues qu'avec d'autres colonies. La trace des plans de contact entre ces colonies est en outre orientée de manière assez homogène, formant un angle d'environ 63 ° avec l'horizontale (figure 3.26(b)). D'une manière générale, la donnée simple d'une relation de coïncidence de sites ne permet pas de faire de prédiction quant au plan d'accolement entre les grains. Dans l'exemple présent, cependant, la coïncidence $\Sigma 11$ est celle qui correspond, dans le zirconium et le titane, au maclage $(1\bar{2}11)$ [SG95]. Le plan de contact entre les parties maclée et non maclée, $K_1$, est alors de type $(1\bar{2}11)$. La figure de pôles correspondante (figure 3.27(b)) fait bien apparaître un pôle $(1\bar{2}11)$ commun entre les colonies 1-2 et 3-4. Sa trace coïncide avec celle des plans de contact repérés sur la figure 3.26(c). La colonie 4 présente une relation tout à fait similaire dans le grain ($\beta_2$) avec une autre colonie, notée 5 (figure 3.27(a)). Un cas semblable, non détaillé ici, a été observé sur la même cartographie (zone entourée en blanc sur la figure 3.26(a)).

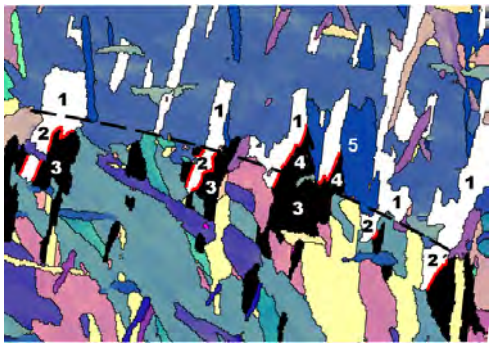
Ces considérations laissent penser que la possibilité de former des interfaces de faible énergie, propriété souvent associée aux réseaux de coïncidence, permet à des colonies de se développer à partir des joints de grains bêta en violation des relations de Burgers. Une étude plus systématique reste à faire afin de déterminer s'il s'agit d'une observation isolée ou d'une caractéristique de la microstructure lamellaire.



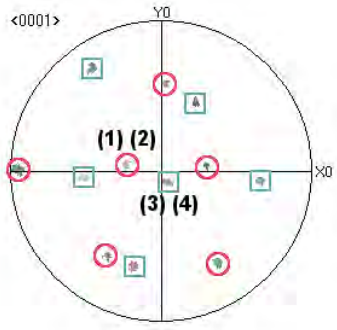

(a) Cartographie complète




(b) Visualisation du joint de grains

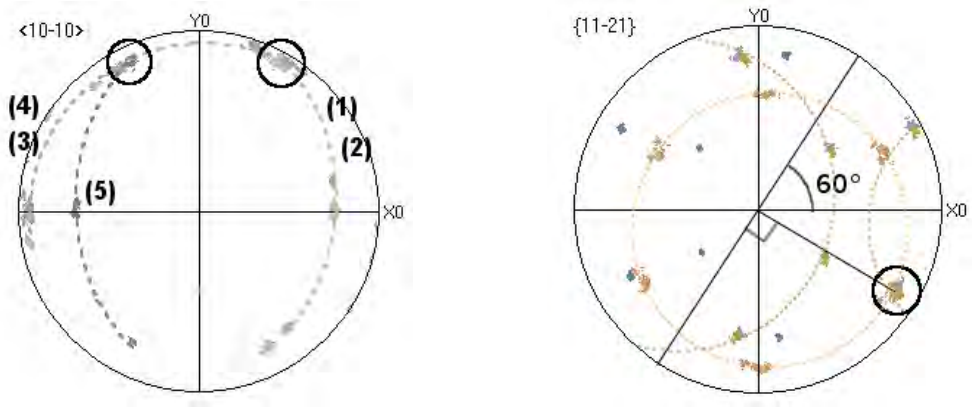


(c) Visualisation des colonies




(d) Figure de pôles $<0001>$

**Figure 3.26 :** *Analyse EBSD d'un ancien joint de grains bêta séparant deux grains sans relation de désorientation particulière. Sur la figure (c), les colonies (1) à (4) ont été colorées en noir et blanc afin de faciliter leur identification.*




(a) Figure de pôles $<1\,\bar{1}00>$

(b) Figure de pôles $(1\,\bar{2}11)$

**Figure 3.27 :** *Figures de pôles* $<1\,\bar{1}00>$ *et* $(1\bar{2}11)$ *des colonies 1 à 5 présentées figure 3.26, mettant en évidence un axe de zone et la trace du plan d'accolement.*

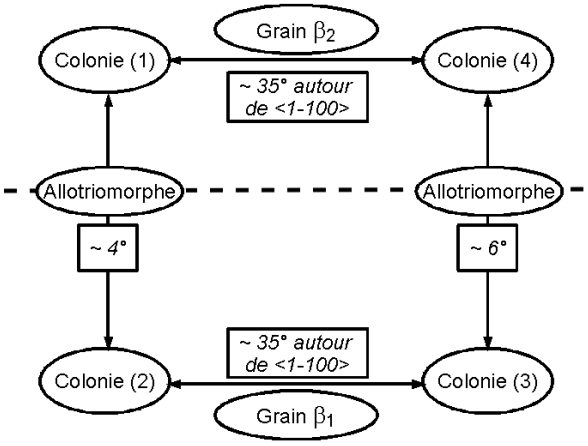



**Figure 3.28 :** *Résumé des relations entre les colonies et anciens grains bêta présentés figure 3.26. Ovales : entités microstructurales, rectangles : relations cristallographiques, trait pointillé : ancien joint de grains bêta.*

### 3.7.3 Discussion

Nous avons mis en évidence certains aspects morphologiques et cristallographiques de la phase alpha se développant aux anciens joints de grains bêta dans le Zircaloy-4. Il apparaît que ce type de phase présente des traits communs avec la phase $\alpha_{GB}$ allotriomorphe dans les alliages de titane alpha/bêta. Sa formation est de type diffusionnel et dépend des orientations relatives des deux grains bêta entre lesquels elle se développe.

Le joint de grains est ainsi un lieu privilégié de sélection des variants. Il est en effet raisonnable de supposer que la germination de la phase allotriomorphe aux joints de grains est tributaire des relations cristallographiques entre les grains de la phase mère, comme cela est le cas dans les alliages de titane et les aciers [SB04, PSD05]. Dans l'hypothèse d'un développement majoritaire de la microstructure lamellaire à partir des joints de grains (phase dénommée $\alpha_{WGB}$, *Widmanstätten Grain Boundary* dans les alliages de titane), les couches allotriomorphes déterminent l'orientation cristallographique des colonies qui leur sont rattachées.

Deux configurations principales ont été distinguées :

- en l'absence de relation particulière entre les plans {110} des deux grains bêta, peu de couches allotriomorphes cristallographiquement compatibles avec ces deux grains, au sens des relations de Burgers, peuvent se développer. Le joint de grains peut alors comporter plusieurs couches allotriomorphes en relation d'orientation de Burgers avec un seul des deux grains. Dans ce cas, des colonies ne se développent à partir de ce joint que dans un seul grain. Il est cependant possible d'observer certaines colonies se développant sur une certaine distance dans un grain bêta en violation des relations de Burgers – sans doute à la condition qu'une interface de faible énergie soit créée avec d'autres colonies.
- Lorsque deux grains présentent une paire de plans {110} faiblement désorientés, le joint de grains a tendance à être décoré d'une couche allotriomorphe dont le plan (0001) coïncide avec ces plans. Cette couche est alors en relation de Burgers approximative avec les colonies présentes dans les deux grains. Deux variants de même plan basal, désorientés de 10,5 °, peuvent coexister sur le joint de grains. Les colonies rattachées de part et d'autre de la couche allotriomorphe satisfont en revanche aux désorientations de Burgers avec les autres colonies du grain.

Dans tous les cas, une désorientation de quelques degrés au plus est observée entre la phase allotriomorphe et les colonies qui y sont rattachées. Ce joint de faible désorientation peut être considéré comme la signature d'un processus de nucléation sympathique [ASM+95]. Des observations similaires ont été effectuées dans le TA6V (annexe B et [SB04]) et dans un acier bas carbone [PSD05].

A notre connaissance, ce type de sélection n'a fait l'objet d'aucune étude extensive dans les alliages de zirconium. Ses origines, comme dans les alliages de titane, découlent probablement de conditions de minimisation de l'énergie interfaciale entre le germe allotriomorphe et les deux

grains bêta. Il s'agit d'un facteur s'ajoutant à ceux d'origine thermomécanique mentionnés au chapitre 1, comme la distorsion de réseau engendrée par la transformation et les gradients de température. A l'échelle du matériau, ces observations mettent l'accent sur l'importance de la texture en phase bêta pour la sélection des variants.

A titre indicatif, nous avons évalué les probabilités de ces deux configurations dans le cas simplifié d'un échantillon non texturé. Le calcul que nous avons développé n'entend pas être aussi synthétique que ceux présentés dans la littérature [MT57, Han58, HRBB96, Bas97], et s'intéresse uniquement aux écarts angulaires entre plans {110} de grains bêta voisins, sans considération vis-à-vis des coïncidences de sites. Les détails sont présentés en annexe C. Le modèle repose sur un pavage hexagonal du plan, chaque cellule représentant un grain bêta. Une orientation aléatoire est tirée pour chaque grain, puis les écarts angulaires entre vecteurs de type $< 110 >$ sont calculés pour chaque paire de grains adjacents. Seule la valeur minimale est retenue. Notons que l'hypothèse du réseau hexagonal est sans effet au regard de la statistique obtenue. Elle est cependant justifiée dans l'optique d'une modélisation microstrusturale et pourra ultérieurement être utile à l'incorporation de corrélations spatiales entre les orientations des grains.

L'histogramme des désorientations pour un réseau de $300 \times 300$ cellules est présenté figure 3.29. Les paramètres statistiques sont résumés dans le tableau 3.3. La distribution est clairement asymétrique, et plus aplatie qu'une distribution gaussienne. Il ressort de ce calcul rapide qu'une désorientation entre 2 plans {110} de deux grains bêta voisins inférieure à 12 ° est réalisée dans plus de la moitié des cas. Les configurations telles que celles présentées dans les figures 3.22 et 3.24 sont donc potentiellement nombreuses, en particulier si l'on considère le nombre moyen de 14 voisins par grain dans une microstruture équiaxe. Des observations statistiques sur un grand nombre d'anciens grains bêta restent à faire afin d'en évaluer la fréquence de manière plus réaliste.

| Minimum | Maximum | Médiane | Moyenne | Ecart type |
|---|---|---|---|---|
| 0 ° (théorique) | 30,68 ° | 11,64 ° | 11,75 ° | 5,42 ° |

**Tableau 3.3 :** *Paramètres statistiques de la distribution présentée figure 3.29.*

Le modèle peut être étendu au cas d'un matériau texturé. A titre d'exemple, la texture de fibre $< 111 >$ est communément rencontrée dans les matériaux cubiques centrés déformés en laminage ([HH04]). L'orientation de chaque maille est choisie de telle sorte qu'un plan {111} soit situé dans le plan de laminage, la maille étant libre de tourner autour de l'axe $< 111 >$ correspondant. Cela revient à fixer deux angles d'Euler, $\Phi$ et $\phi_2$ à 54,74 ° (angle entre deux directions $< 111 >$ et $< 100 >$) et 45 ° respectivement, et à laisser $\phi_1$ libre. Il est possible d'accorder une légère tolérance à l'orientation de l'axe $<111>$ de manière à atténuer la texture globale. Cette tolérance est introduite par le biais d'une loi normale ajoutée aux valeurs de $Phi$ et $phi_2$, l'écart type associé représentant la tolérance d'orientation. Le schéma géométrique et les

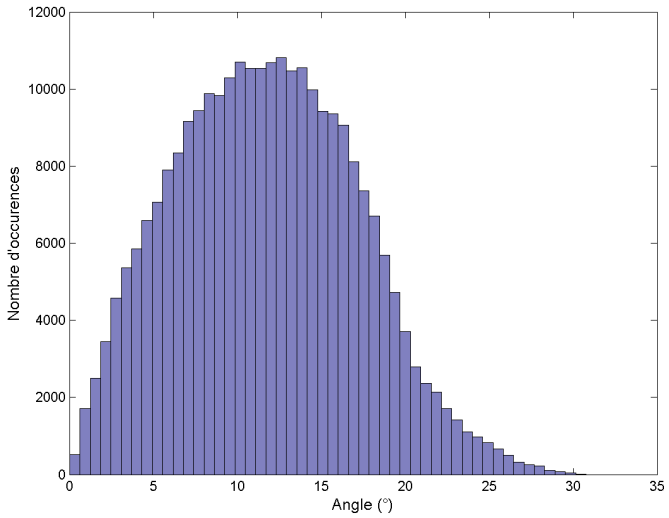



**Figure 3.29 :** *Distribution des angles minimaux entre plans* {110} *de grains bêta voisins dans un échantillon non texturé, modélisé par un réseau hexagonal de 90 000 cellules.*

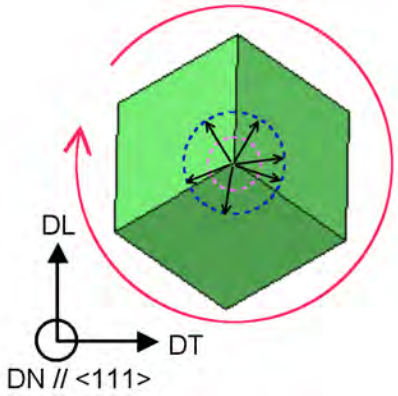
histogrammes correspondant à la texture idéale et à quelques textures atténuées sont présentés figure 3.30. Les calculs ont été effectués sur 40 000 cellules.

Pour les faibles valeurs de tolérance sur l'orientation, la médiane de la distribution est de l'ordre de 10 °. Lorsque la tolérance augmente, la distribution se rapproche de la distribution théorique de cubes orientés aléatoirement. Une texture {111} marquée en phase bêta aurait donc tendance à renforcer la sélection de variants au niveau des joints de grains.

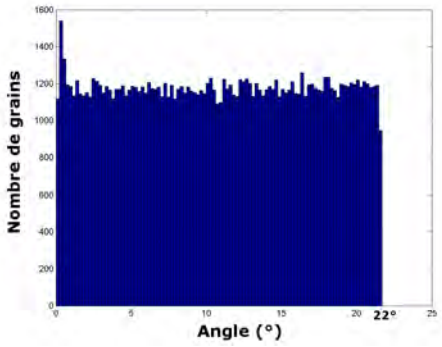
Ce modèle géométrique souffre bien entendu de quelques limitations : la microstructure en phase bêta est très imparfaitement représentée par un pavage hexagonal, et l'orientation des directions $<111>$ de chaque grain bêta, donc des axes <a>, n'est pas prise en compte. L'orientation des joints de grains en trois dimensions, en outre, impose sans doute des restrictions sur la germination de la phase allotriomorphe. De fait, la description des joints de grains repose généralement sur 5 paramètres d'orientation morphologique (plan du joint) et cristallographique [RRH08]. Cette considération est de nature à nuancer l'importance de la cristallographie dans la sélection des variants aux joints de grains.

La notion d'orientation particulière est dans ces travaux encore mal définie. Nous nous sommes uniquement intéressés aux écarts angulaires entre plans {110}. D'autres coïncidences d'orientation sont envisageables entre deux grains de structure cubique centrée ; en particulier, une rotation de 60 ° autour d'un axe $< 111 >$ amène les deux cristaux en position de coïncidence de sites de type Σ3 [GBW74]. Cette transformation, qui peut être réalisée par maclage, est équivalente à une rotation de 70,5 ° ou 109,5 ° autour d'un axe $<110>$.

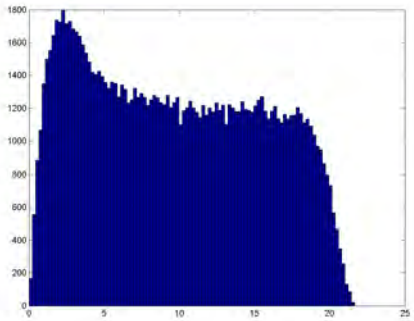
Concluons en mentionnant que cette sélection de variants au niveau des joints de grains



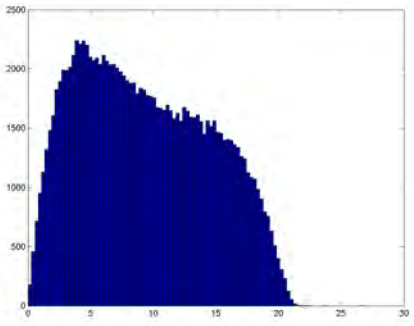

(a) Orientation schématique des mailles



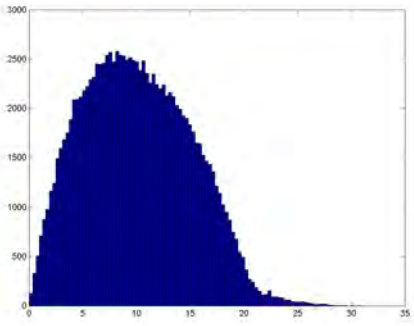

(b) Texture idéale



(c) Tolérance de 2,5 °



(d) Tolérance de 5 °



(e) Tolérance de 10 °

**Figure 3.30 :** *Distributions de désorientations minimales entre plans* {110} *de grains bêta voisins pour une texture de laminage* {111} *avec différentes valeurs de tolérance sur l'orientation idéale.*

a des conséquences sur les mécanismes de déformation microscopiques. La figure 3.31 montre la transmission d'une macle lenticulaire $(10\bar{1}2)$ à travers une couche allotriomorphe dans un échantillon de Zircaloy-4 issu de notre billette. Cette transmission est possible grâce à la proximité d'orientation cristalline entre les colonies de part et d'autre du joint de grains.

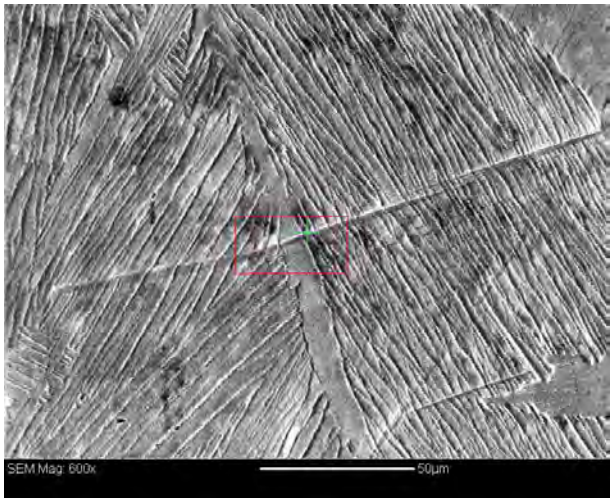



**Figure 3.31 :** *Transmission d'une macle* $(10\bar{1}2)$ *à travers une couche allotriomorphe (matériau à l'état initial).*

## 3.8 Conclusion

Plusieurs facteurs influant sur la microstructure de Widmanstätten ont été étudiés. La variation de l'épaisseur moyenne des lamelles avec la vitesse de trempe a été quantifiée dans le Zircaloy-4 à l'aide d'une expérience de Jominy instrumentée. Celle-ci a permis de mesurer des vitesses de refroidissement réalistes, nettement inférieures à certaines valeurs relevées dans la littérature [CA87, Rum74, HKL99]. Le rôle des joints de grains bêta sur l'orientation des colonies a été mis en évidence dans le Zircaloy-4. Notamment, la couche allotriomorphe formée aux joints de grains présente de claires similarités avec la phase $\alpha_{GB}$ identifiée dans les alliages de titane (annexe B). Les orientations relatives des grains bêta voisins sont à l'origine d'une sélection de variants. L'importance de celle-ci au regard de la texture de trempe reste encore à évaluer. Une synthèse de ces résultats est présentée en conclusion du chapitre suivant, qui poursuit l'étude des microstructures lamellaires en l'étendant à la troisième dimension.

# Chapitre 4

# Microstructure lamellaire du TA6V étudiée par microtomographie X

## 4.1 Représentation tridimensionnelle des microstructures

Ce chapitre est en grande partie inspiré de travaux en cours de publication [JM, VMD+08]. Ces travaux s'adressant avant tout à un public non spécialiste du traitement d'images, les notions nécessaires pour la bonne compréhension de ce chapitre sont résumées en annexe D.

Ainsi qu'il a déjà été mentionné, l'agencement tridimensionnel des colonies est complexe, et ne peut donc être entièrement décrit à partir de coupes isolées. Les caractéristiques géométriques des colonies, comme les dimensions, la forme, la convexité ne peuvent être déterminées que par le biais de représentations tridimensionnelles du matériau. Il en va de même pour les propriétés topologiques, comme la connectivité. A titre d'exemple, il est impossible de déterminer à partir de la seule figure 4.1 si les groupes de lamelles parallèles marquées par des cercles appartiennent ou non à la même colonie. L'analyse tridimensionnelle des microstructures de Widmanstätten est donc un domaine relativement inexploré, sur lequel nous nous proposons d'apporter quelques premiers éclairages. Au moment de la rédaction de ce mémoire, les outils d'exploitation des données obtenues étaient encore au stade de développement, et seuls quelques résultats, les plus caractéristiques, sont présentés ici.

Les techniques d'obtention d'images tridimensionnelles peuvent être destructives ou non destructives. En science des matériaux, et à l'échelle de plusieurs centaines de micromètres, la première catégorie comprend principalement les méthodes d'abrasions séquentielles (*serial sectionning*), en usage depuis longtemps en biologie [DHR68, KMSR00]. Quant aux techniques non destructives, la plus répandue actuellement est la microtomographie à rayons X.

Des étapes d'abrasions successives au papier P1000, suivies d'un électropolissage dans les conditions présentées au chapitre précédent donnent de bons résultats. Les images peuvent être acquises par microscopie optique ou électronique, voire par EBSD. Il est possible d'évaluer l'épais-

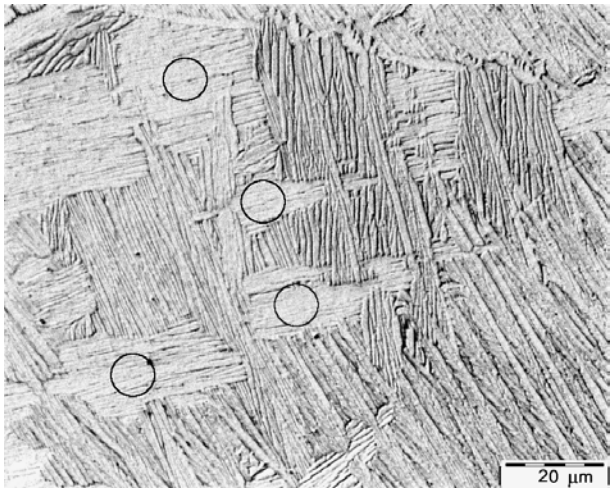



**Figure 4.1 :** *Section 2D d'une microstructure de Widmanstätten de TA6V.*

seur enlevée par la mesure d'empreintes de microdureté avant et après abrasion [EK71]. Cette technique a connu un regain d'intérêt au cours de ces dix dernières années, du fait de l'apparition de machines à abrasion contrôlée et de la possibilité accrue de traiter des images volumiques de grandes dimensions. La limitation essentielle de cette technique est d'ordre humain : les dimensions à couvrir – de l'ordre de plusieurs centaines de micromètres – rendent le procédé fastidieux, dans la mesure où un minimum de 200 plans d'observation sont requis pour avoir une précision convenable [KMSR00]. A cela s'ajoutent les difficultés inhérentes à l'alignement des images, l'échantillon étant manipulé entre chaque observation dans la plupart des cas. A notre connaissance, les alliages de ziconium n'ont jamais fait l'objet d'études de ce type, hormis celle, partielle, de Crépin sur du zirconium grade 702 [Cré95]. Celle-ci couvrait quelques lamelles sur 300 µm, par pas de 50 µm environ, afin de mettre en évidence la continuité, à l'échelle du micromètre, de la couche de précipités intermétalliques. Dans le Ti6242, l'intersection de deux lamelles a été reconstruite par Searles et al. [STT$^+$05] sur une profondeur de 8 µm, par pas de quelques centaines de nanomètres. La visualisation, figure 4.2, montre une zone de pincement au point de contact entre les lamelles indiquée par des flèches.

## 4.2 Procédé expérimental

Une étude plus systématique a donc été entreprise au moyen de la technique de microtomographie X. Née dans les années 70 pour le domaine de l'imagerie médicale, cette technique a été adaptée au domaine des matériaux, de l'agroalimentaire et des sciences du vivant. Elle repose sur les propriétés d'interaction d'un faisceau de rayons X avec la matière, et en particulier l'absorption, décrite à l'aide de la loi de Lambert-Beer :

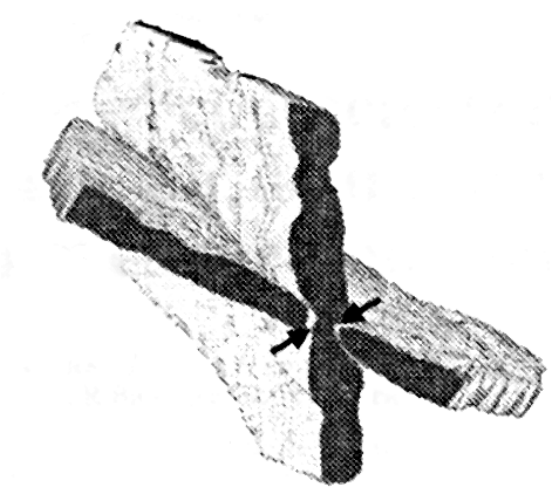


**Figure 4.2 :** *Intersection de deux lamelles de Ti6242 [STT+05] (échelle indisponible).*

$$I = I_0 \exp(-\mu x) \tag{4.1}$$

avec

- $I_0$ : intensité incidente
- $I$ : intensité transmise
- $\mu$ : coefficient d'absorption linéaire
- $x$ : épaisseur de matière traversée

Le coefficient d'absorption, $\mu$, dépend des propriétés locales de la matière traversée (densité et numéro atomique), ainsi que de l'énergie du faisceau incident. Il peut donc varier au sein du matériau en fonction des différentes phases ou des cavités traversées par le faisceau. Les variations d'intensité du faisceau transmis peuvent être visualisées à l'aide d'un détecteur plan placé derrière l'échantillon. Dans le cas d'un matériau hétérogène, la radiographie ainsi formée présente un contraste dû aux différences d'absorption selon le trajet du faisceau. Plusieurs images sont nécessaires afin de reconstruire une cartographie spatiale des coefficients d'absorption. Les notions théoriques mises en oeuvre reposent sur les travaux de Radon, qui a montré en 1917 que toute fonction de deux variables peut être reconstruite à partir d'un ensemble d'intégrales calculées sur différentes droites contenues dans son domaine de définition. En tomographie, l'échantillon subit une rotation de 180 ° par incréments, à chacun desquels est enregistré le signal transmis. L'image tridimensionnelle de la structure est reconstruite en utilisant un algorithme dit de rétroprojection filtrée [SCM+03, LDFJ06].

La nature du matériau et la résolution spatiale nécessaire pour analyser la microstructure nécessitent l'emploi d'une source à la fois très énergétique et cohérente. Les expériences ont donc été menées sur la ligne ID19 de l'ESRF (European Synchrotron Radiation Facility, Grenoble). Le

principe du rayonnement synchrotron consiste à faire circuler des électrons le long d'un parcours circulaire au moyen d'un champ magnétique. Les électrons en rotation émettent un rayonnement électromagnétique qui est recueilli le long de lignes tangentes à l'anneau de confinement. Ce rayonnement peut ensuite être collimaté et monochromatisé en fonction des besoins expérimentaux. Sur la ligne ID19 de l'ESRF, la distance entre l'échantillon et la source est de 150 m, ce qui confère au faisceau une grande cohérence latérale. L'énergie est réglée par un monochromateur, et peut varier entre 7 et 100 keV [SCM$^+$03]. Schématiquement, le montage se compose de cette source de rayons X, d'une platine motorisée assurant la translation et la rotation de l'échantillon, et d'un dispositif de détection et acquisition composé d'un écran fluorescent et d'une caméra CCD (figure 4.3). L'écran convertit les rayons X en lumière visible et la caméra acquiert l'image sur un réseau $1024 \times 1024$ détecteurs.

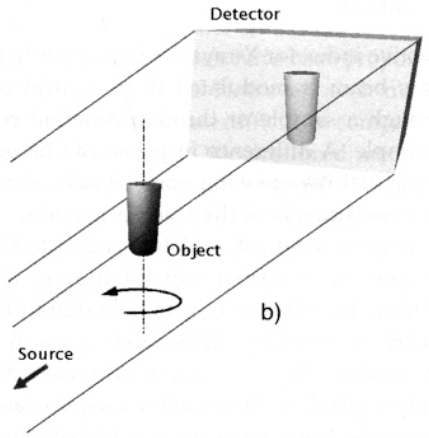



**Figure 4.3 :** *Géométrie d'un dispositif de microtomographie X à faisceau parallèle [SCM$^+$03].*

Il existe trois modes d'acquisition : la tomographie en contraste d'absorption, la tomographie en contraste de phase et l'holotomographie. Le premier mode repose sur les variations de coefficient d'absorption selon le principe exposé précédemment. Il donne des résultats concluants lorsque les phases à séparer ont des caractéristiques de densité et de numéro atomique relativement différentes. Le deuxième mode tire parti des différences d'indices de réfraction des phases et du déphasage subi par le faisceau à la traversée des interfaces. Il est utilisé lorsque les variations de coefficients d'absorption dans l'échantillon sont faibles. La distance entre l'échantillon et le détecteur permet de faire varier l'importance relative, au regard de l'image formée, de ces deux modes : la tomographie en contraste d'absorption est prépondérante lorsque le détecteur est proche de l'échantillon, et la tomographie en contraste de phase apparaît pour de plus grandes distances. L'holotomographie met à profit ces différents phénomènes et consiste en une série de mesures tomographiques à plusieurs distances [SCM$^+$03].

## 4.3 Choix du matériau

L'énergie de faisceau utilisée pour nos observations vaut 35 keV. Cette valeur résulte d'un compromis entre la résolution désirée – de l'ordre du micromètre – et la puissance de pénétration du faisceau. D'une manière générale, le nombre de photons transmis doit valoir 30 % du nombre de photons incidents. En fonction des valeurs du coefficient d'absorption (figure 4.4), il est possible de calculer l'épaisseur maximale des éprouvettes à caractériser. Elle vaut 100 µm dans le cas du zirconium. Cette valeur impose des difficultés conséquentes de préparation et de manipulation des éprouvettes. En outre, elle se situe en-deçà de la taille moyenne des colonies dans notre matériau.

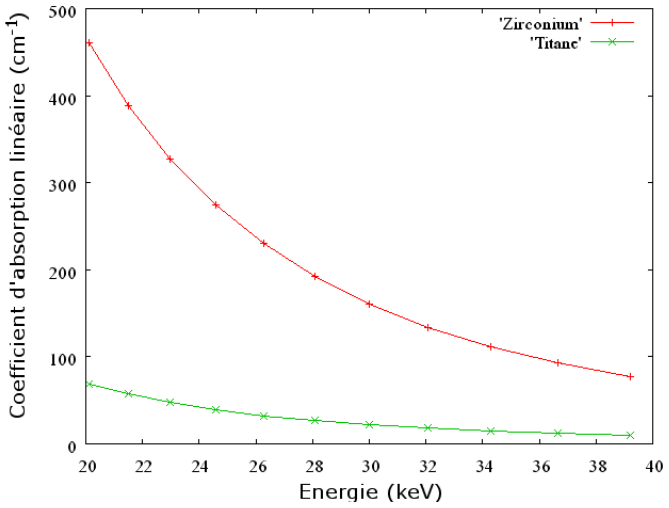



**Figure 4.4 :** *Coefficients d'absorption aux rayons X du zirconium et du titane, d'après [nis].*

Les alliages de titane, en revanche, sont des candidats plus intéressants. Dans les alliages alpha/bêta, les lamelles de phase alpha sont délimitées par de la phase bêta résiduelle. Cette fine couche de seconde phase est susceptible de produire un contraste d'absorption, ou, au moins, de phase. Dans la gamme d'énergie considérée, le coefficient d'absorption du titane est 8 fois moindre que celui du zirconium (figure 4.4). L'épaisseur maximale d'une éprouvette laissant passer 30 % du faisceau incident vaut 800 µm, ce qui est expérimentalement plus réaliste que pour le Zircaloy-4. Cette étude a donc été menée avec un alliage représentatif, le TA6V. Le matériau utilisé a été fourni par la société TIMET. Il se présente sous la forme d'un barreau de 12×16 $mm^2$ de section, découpé dans un octogone de 250 mm porté à 1050 °C puis trempé à l'eau. Sa composition est indiquée dans le tableau 4.1.

La microstructure initiale est de type martensitique, avec des lamelles épaisses de moins d'un demi micromètre. Un traitement thermique a donc été nécessaire afin de produire une microstructure plus grossière. Des échantillons parallélépipédiques et cylindriques ont été découpés dans le

| Al | V | O | Fe |
|---|---|---|---|
| 6,30 % | 4,50 % | 1200 ppm | 2500 ppm |

**Tableau 4.1 :** *Composition massique du TA6V utilisé en microtomographie X.*

barreau, encapsulés en ampoules de quartz sous atmosphère d'argon, puis portés quelques minutes à 1050 ℃, avant d'être refroidis en four coupé. La vitesse de refroidissement est évaluée à quelques K/s. La microstructure finale est majoritairement de type platelets parallèles, avec des lamelles d'épaisseur approximative 5 µm (figure 4.5). Les anciens grains bêta ont des tailles de l'ordre du millimètre. Les lamelles sont délimitées par une couche irrégulière de phase bêta résiduelle d'un micromètre d'épaisseur environ. D'après la formule de Castro et Séraphin (équation 1.2) le matériau comporte environ 7,5 % de phase bêta à température ambiante.

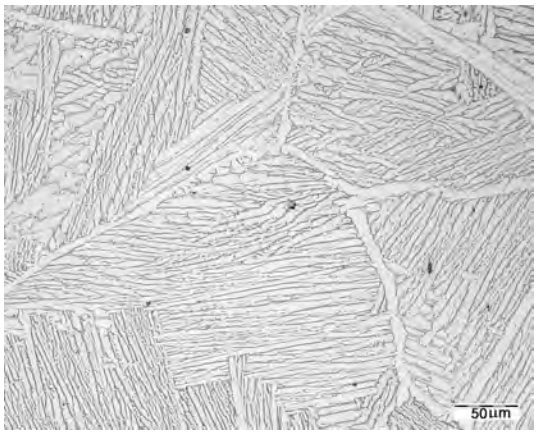



**Figure 4.5 :** *Microstructure du TA6V caractérisé en microtomographie X.*

Les éprouvettes caractérisées en microtomographie se présentent sous la forme de cylindres de 650 µm de diamètre. Elles ont été découpées par électroérosion à 900 µm de diamètre, puis abrasées au papier P2400 jusqu'à l'épaisseur désirée.

Certaines éprouvettes ont été prélevées sur des échantillons déformés en compression uniaxiale à 700 ℃ avec la même microstructure initiale. D'autres ont été déformées sur place à température ambiante à l'aide d'une machine de microcompression développée au laboratoire MATEIS de l'INSA de Lyon. Jusqu'à présent, l'exploitation des résultats se heurte aux difficultés d'interprétation de la microstructure déformée. Certaines observations ont mis en évidence le caractère tridimensionnel du microflambage (chapitre 5, figure 5.18), ainsi que la localisation de la cavitation aux anciens joints de grains bêta. Cette dernière observation sort cependant du cadre de nos travaux.

## 4.4 Résultats

Les résultats d'une expérience de microtomographie se présentent sous la forme d'une image de 1024 × 1024 × 1024 voxels (équivalent d'un pixel en trois dimensions) codés en 256 niveaux de gris. La résolution spatiale valant 0,7 µm par côté de voxel, le volume analysé est un cube de 717 µm de côté. Un exemple est présenté figure 4.6. La phase alpha apparaît en sombre, et la phase bêta en clair, sur des épaisseurs de l'ordre du voxel. Il s'agit principalement d'un contraste de phase. Nous avons vu que ce type de contraste met en évidence les interfaces. Dans le cas présent, la phase bêta est présente en faible quantité, sur des épaisseurs de l'ordre du micromètre. Avec la résolution adoptée, les deux interfaces bordant une couche de phase bêta apparaissent donc confondues.

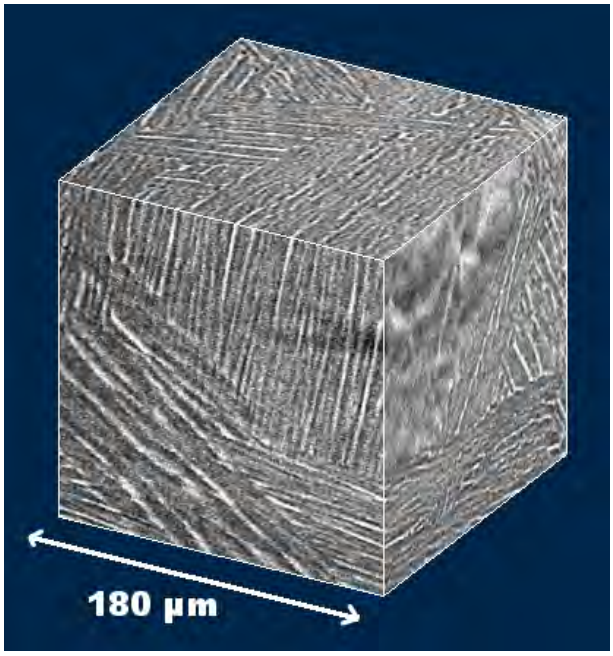



**Figure 4.6 :** *Sous-volume de $256^3$ voxels d'un échantillon de TA6V.*

L'étude morphologique de la microstructure poursuivie à travers ces expériences passe par l'extraction d'informations à partir des images volumétriques. Ces informations peuvent concerner les lamelles, les colonies et les ex-grains bêta. Respectivement, la segmentation de chacune de ces entités doit reposer sur :

- la présence d'une couche continue de phase bêta délimitant les lamelles,
- l'alternance périodique de couches de phase alpha et bêta au sein de chaque colonie,
- la présence de phase allotriomorphe décorant les anciens joints de grain bêta.

Nous allons voir que si les deux dernières conditions s'avèrent remplies, la première ne l'est pas.

## 4.5 Exploitation des résultats

La figure 4.7 montre l'histogramme des niveaux de gris d'un volume typique. La répartition est unimodale, en dépit de différences locales d'intensité entre les deux phases. Dans l'ensemble du volume, les niveaux de gris de la phase bêta recouvrent donc ceux de la phase alpha. Cette caractéristique trouve sans doute son origine dans la présence d'un bruit de mesure conséquent. Dès lors, la séparation des deux phases est délicate, et ne peut reposer sur un seuillage global.

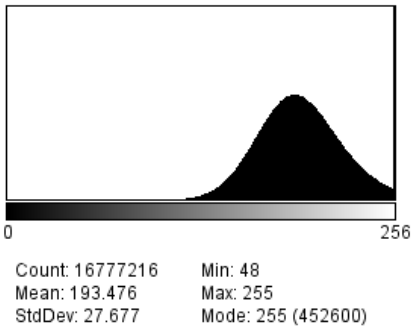



**Figure 4.7 :** *Histogramme des niveaux de gris d'un volume de $1024^3$ voxels.*

Un seuillage local est cependant en mesure de donner des résultats satisfaisants, mais un examen attentif montre alors que la phase bêta n'est pas répartie en couches continues (figure 4.8). Par ailleurs, en raison de la variabilité des niveaux de gris de chaque phase, il reste difficile de déterminer sans ambiguïté l'appartenance d'un voxel donné à l'une ou l'autre. Dans la majorité des cas, la segmentation de lamelles individuelles est donc impossible, voire dénuée de sens.

Par conséquent, les informations fournies par les images concernent avant tout les colonies et anciens grains bêta.

## 4.6 Segmentation des anciens grains bêta

Les ex-grains bêta sont facilement identifiables grâce à la présence de phase $\alpha_{GB}$ aux joints. La méthode de segmentation la plus simple consiste à relever manuellement la position des joints à différentes profondeurs dans l'échantillon. Le principe est schématisé figure 4.9. Il s'agit en quelque sorte d'une version virtuelle de la technique de *serial sectionning* évoquée plus haut. Le logiciel ImageJ [Ima] est particulièrement adapté à cette tâche car il permet de traiter une image volumétrique comme un empilement d'images bidimensionnelles.

En pratique, toutes les 5 images environ, quelques points saillants situés sur le joint sont relevés. Des points intermédiaires sont ensuite interpolés linéairement à l'aide d'un algorithme fonctionnant sous Matlab. Le résultat est un fichier en format texte listant l'ensemble des points

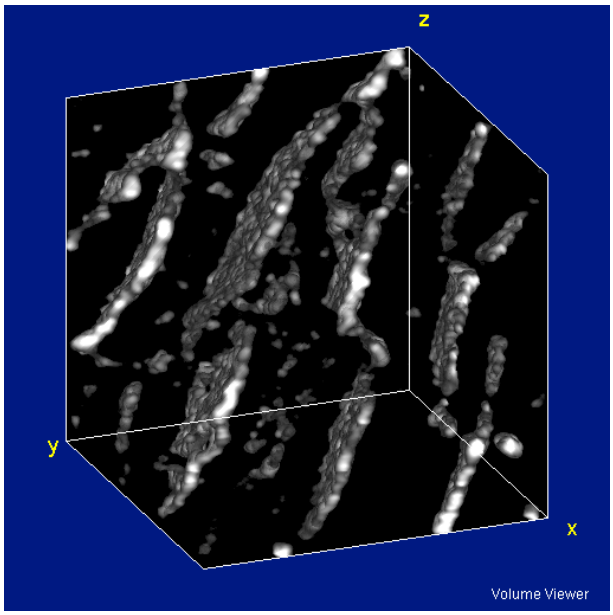
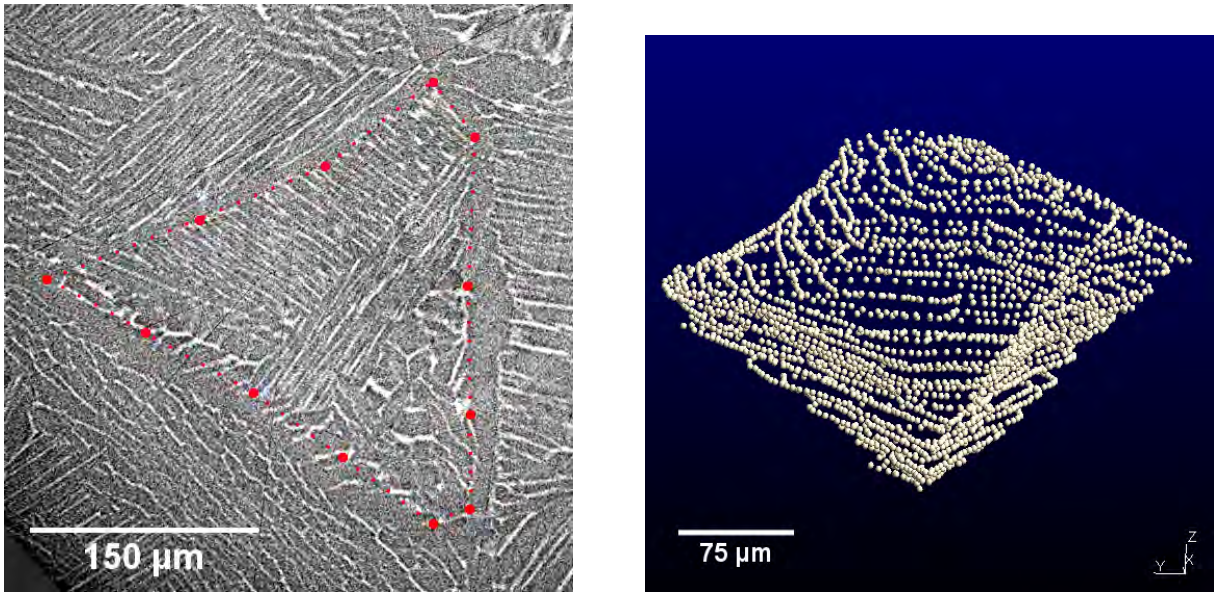



**Figure 4.8 :** *Répartition de la phase bêta dans un volume cubique de 65 µm de côté.*




(a) TA6V (b) Zircaloy-4

**Figure 4.9 :** *Principe de la méthode de segmentation par coupes successives. (a) : exemple d'un relevé sur une coupe, le long d'une couche allotriomorphe ; les gros points sont sélectionnés manuellement, les petits sont interpolés. (b) : visualisation du nuage de points résultant.*

avec leurs coordonnées dans l'espace. Il s'agit d'un nuage de points non structuré [14]. Ce nuage sert ensuite de base à une opération de reconstruction de surface, de manière à créer un objet tridimensionnel facilement visualisable. La reconstruction d'une surface à partir d'un nuage de points étant un domaine de recherche à part entière, nous avons avant tout cherché une solution rapide et simple à mettre en oeuvre. Notre choix s'est porté sur une suite d'algorithmes de reconstruction explicite [15] développés à l'Université d'Etat de l'Ohio [DS05], mis gracieusement à disposition par le professeur T. K. Dey, ainsi que sur un logiciel commercial plus puissant nommé 3Dreshaper [Res].

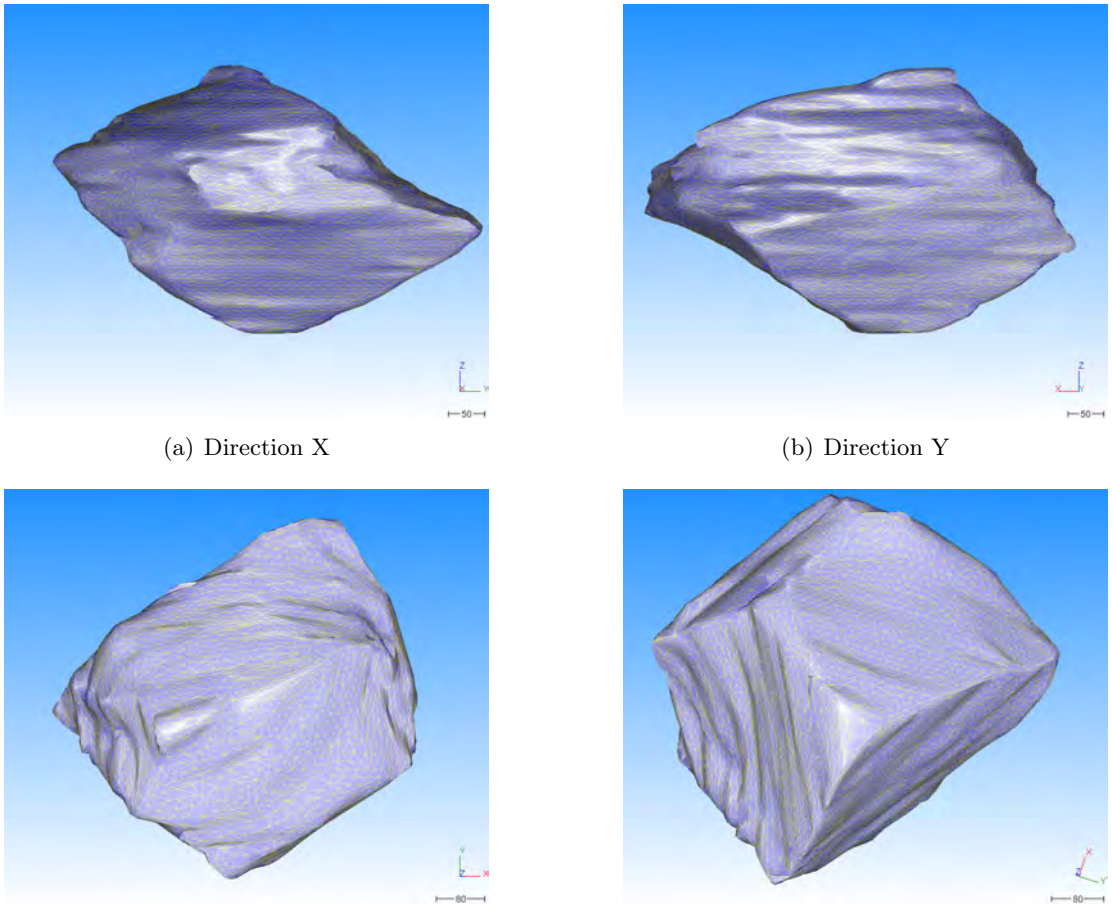
Un exemple de grain est présenté figure 4.10. Sa reconstruction a été effectuée à partir d'environ 2000 points. La forme présentée est approximative en raison des incertitudes induites par le relevé visuel des points et par les lissages préalables à la triangulation. Il est cependant visible que ce grain est de forme équiaxe. Il comporte 8 faces relativement planes et son diamètre est de l'ordre de 250 µm. Il s'agit cependant d'un cas isolé dans l'ensemble de nos essais, car la plupart des anciens grains bêta dépasse en taille le diamètre des éprouvettes. Aussi ne pouvons-nous tirer de conclusions générales quant à leur morphologie.

## 4.7 Segmentation des colonies

La segmentation des colonies peut être traitée de la même manière que celle des grains bêta : les frontières entre colonies peuvent être cartographiées par relevé de points et le nuage résultant triangulé. Cette méthode présente l'avantage d'être fiable – dans la limite bien sûr des capacités de l'expérimentateur à distinguer les colonies sans ambiguïtés. Néanmoins, le coût en temps devient vite prohibitif dès que l'on envisage de segmenter plusieurs colonies. Il est donc apparu intéressant de mettre en place une technique de segmentation automatique. La section suivante en décrit le principe, après l'avoir situé dans le cadre général de l'extraction d'informations à partir d'images volumiques.

[14] Un nuage de points non structuré est une collection de points uniquement définis par leurs coordonnées. D'autres informations, comme les coordonnées des vecteurs normaux à la surface définie par le nuage sont indisponibles [BRS05].

[15] En géométrie algorithmique, la reconstruction d'une surface peut être effectuée selon deux approches, implicite et explicite [BRS05]. La première consiste à définir une fonction prenant une valeur nulle sur la surface de l'objet recherché. La seconde revient à générer une collection de sous-surfaces, généralement des polygones, à partir des points du nuage. La technique la plus utilisée pour ce faire est la triangulation de Delaunay. En parallèle à ces deux catégories de méthodes dites statiques, ont été récemment développées des méthodes dynamiques dans lesquelles une surface initiale définie par l'utilisateur, se déforme de manière à minimiser son énergie jusqu'à recouvrir la surface recherchée (méthode des surfaces déformables [MDSA00]). En deux dimensions, il s'agit des algorithmes de contours actifs (souvent appelés *snakes*). Ces techniques sont encore peu courantes en trois dimensions et ont donc été écartées.



(a) Direction X

(b) Direction Y

(c) Direction Z

(d) Perspective

**Figure 4.10 :** *Visualisation d'un ancien grain bêta selon les directions X, Y, Z et en perspective.*

### 4.7.1 Segmentation par évaluation de textures orientées

En science des matériaux, la microtomographie est utilisée dans un grand nombre d'études portant, pour ne citer que quelques exemples, sur des mousses métalliques, des matériaux des particules intermétalliques ou des inclusions, des échantillons fissurés ou des matériaux granulaires [ESMP02, PDBJD, MFB$^+$07]. Ces exemples ont en commun la présence de plusieurs phases caractérisées par des masses volumiques différentes et donc des niveaux de gris distincts dans l'ensemble du volume. Dans la plupart des cas, la séparation des constituants est réalisée par des opérations de seuillage global ou local, ou par ligne de partage des eaux, ces opérations étant éventuellement précédées d'une détection de contours.

Le cas du TA6V lamellaire est de nature différente. Le matériau se présente sous la forme d'un agrégat compact de colonies monocristallines alpha striées par des couches irrégulières de phase bêta. Nous avons vu que ces deux phases ne pouvaient être séparées sans ambiguïté car leurs distributions de niveaux de gris respectives sont confondues. En revanche, il reste possible de tirer profit de leur répartition spatiale. En effet, chaque colonie peut être considérée comme une région caractérisée par une alternance bidimensionnelle, approximativement périodique, de niveaux de gris clairs et sombres. Dans le langage du traitement d'images, il s'agit d'une texture orientée tridimensionnelle. Chaque colonie est donc définie par une texture relativement homogène, laquelle fournit un critère de segmentation.

Plusieurs stratégies ont été envisagées. Les deux premières, infructueuses, sont présentées en annexe D pour information. La troisième, qui a donné des résultats concluants, a été développée au Centre de Morphologie Mathématique de l'Ecole des Mines de Paris. Son principe est décrit en détail dans [JM] ; nous en présentons ici les grandes lignes.

Le principe de cette approche consiste à calculer le gradient de niveaux de gris de l'image initiale, puis à déterminer les frontières entre zones de gradient homogène, ces zones représentant les colonies.

Le gradient d'une image en niveaux de gris permet d'extraire les lieux de variation rapide d'intensité. L'image initiale peut être définie comme une fonction scalaire définie sur un domaine discrétisé de $\Re^3$, dont la valeur en chaque point $\{x, y, z\}$, ou voxel, correspond à un niveau de gris, compris dans notre cas entre 0 et 255. Cette fonction est notée $I(x, y, z)$. Son gradient peut être défini par la différence de niveau de gris entre voxels voisins selon les directions $x, y, z$ [16] :

$$\frac{\partial I(x,y,z)}{\partial x} = I(x-1,y,z) - I(x+1,y,z)$$
$$\frac{\partial I(x,y,z)}{\partial y} = I(x,y-1,z) - I(x,y+1,z)$$
$$\frac{\partial I(x,y,z)}{\partial z} = I(x,y,z-1) - I(x,y,z+1)$$

[16] D'autres définitions du gradient sont envisageables.

avec

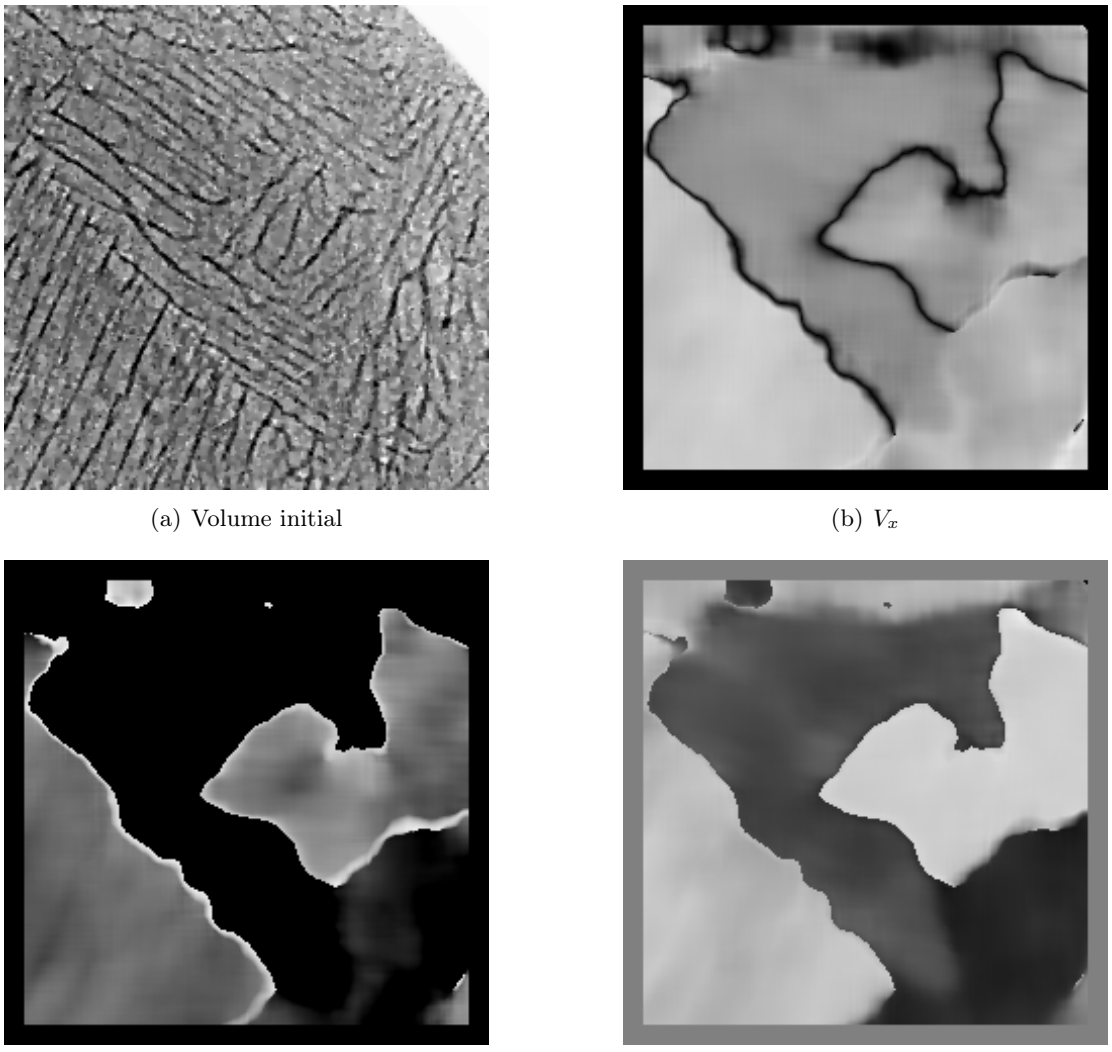
– $I(x, y, z)$ : valeur du niveau de gris au voxel $\{x, y, z\}$

Cette transformation produit un champ vectoriel défini en chaque voxel de l'image initiale. Les coordonnées du vecteur gradient sont sensibles au bruit, aussi est-il nécessaire de lisser le champ vectoriel, de manière à l'homogénéiser au sein de chaque colonie. Le lissage est effectué par une opération de moyenne, portant sur un voisinage $V_1$ de taille arbitraire centré autour de chaque voxel. Les coordonnées des vecteurs appartenant à ce voisinage forment un nuage de points. Si le voisinage est cubique et de côté $n$, ce nuage compte $3 \times n^3$ points. L'orientation moyenne des vecteurs est calculée par l'intermédiaire de la matrice d'inertie associée au nuage de points. La valeur propre maximale de cette matrice est associée au vecteur propre d'orientation principale. Ce calcul est effectué en chaque point du champ vectoriel.

Le champ vectoriel des gradients bruts est donc remplacé par un champ vectoriel plus homogène. Dans le calcul, ce champ est représenté par 3 champs scalaires $V_x, V_y, V_z$, un par composante (figure 4.11). Les frontières entre zones de même orientation moyenne, c'est-à-dire les frontières entre colonies, doivent ensuite être précisées. Les changements d'orientation locale sont détectées par produit scalaire. On considère un voisinage $V_2$ en chaque point $x, y, z$. Les produits scalaires entre le vecteur gradient en ce point et les vecteurs en chaque point du voisinage sont calculés. Ce voisinage $V_2$ peut être différent du voisinage $V_1$ utilisé pour le lissage des orientations locales. Le minimum des produits scalaires calculés sur le voisinage est affecté au voxel. Si cette valeur est proche de 1, les points du voisinage ont une orientation proche. Dans le cas contraire, le point considéré appartient à une frontière entre colonies. Le champ scalaire ainsi calculé comporte des régions homogènes de valeurs élevées séparées par des zones de valeurs faibles. Sur la figure 4.12(a), les zones d'orientation homogène apparaissent en clair, et les frontières en sombre.

Les frontières sont encore floues en raison des calculs portant sur des voisinages. Il est nécessaire de les préciser, la difficulté étant qu'elles présentent des niveaux de gris variables. En général, on ne peut donc reconstruire des frontières fermées en effectuant un seuillage. Une ligne de partage des eaux contrainte par marqueurs permet de contourner cette difficulté.

Rappelons que la segmentation par ligne de partage des eaux repose, en deux dimensions, sur une analogie entre les niveaux de gris d'une image et l'altitude sur un relevé topographique. La courbe connexe reliant les pixels de niveaux de gris maximaux correspond à une ligne de crête. Elle sépare des bassins versants, c'est-à-dire les régions de faible intensité dans une image. Un exemple est fourni en annexe D (figures D.1). En trois dimensions, cette transformation revient à déterminer les surfaces continues d'épaisseur minimale et de niveau de gris maximal délimitant des volumes de niveaux de gris moins élevés. La contrainte par marqueurs indique à l'algorithme la position approximative des bassins versants afin que le calcul n'engendre pas de frontières non pertinentes dues à d'éventuels minima locaux. Les positions des colonies sont donc



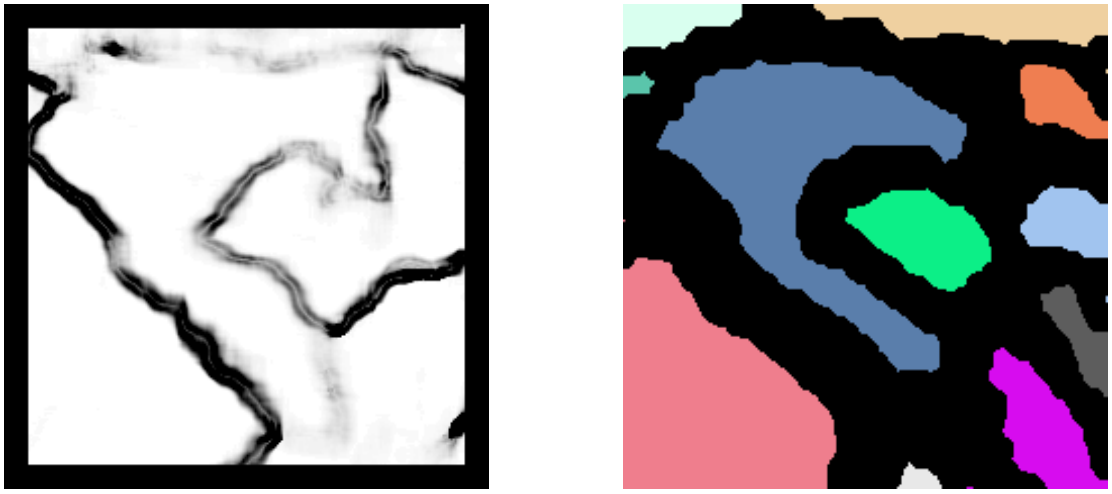
(a) Volume initial

(b) $V_x$

(c) $V_y$

(d) $V_z$

**Figure 4.11 :** *Visualisation en section plane des composantes des vecteurs normaux aux lamelles dans un échantillon de TA6V.*



(a) (b)

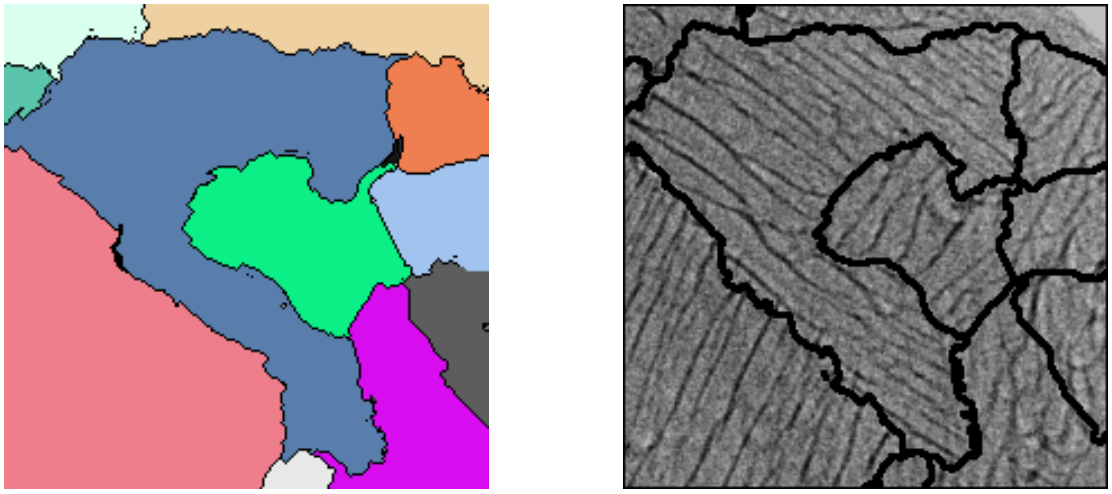
**Figure 4.12 :** *Minima des produits scalaires (a) et marqueurs pour la ligne de partage des eaux (b).*

tout d'abord évaluées de manière grossière afin de fournir des marqueurs. Pour ce faire, l'image 4.12(a) est dupliquée, puis binarisée et érodée de manière à ne garder que des régions isolées de taille réduite. Chacune de ces régions, située dans une colonie unique, est imposée comme bassin versant à l'algorithme de ligne de partage des eaux (figure 4.12(b)).

Pour les besoins du calcul, l'image des minima 4.12(a) à segmenter est inversée de manière à ce que les limites apparaissent en clair. La ligne de partage contrainte par marqueurs prend comme paramètres d'entrée l'image de marqueurs 4.12(b) et l'image des produits scalaires 4.12(a) inversée. En sortie, elle fournit une image constituée de domaines connexes étiquetés, c'est-à-dire différenciés et manipulables individuellement (figure 4.13(a)). Cette image peut ensuite être combinée avec l'image initiale pour vérification des résultats (figure 4.13(b)).

L'ensemble de ces opérations est résumé sur le diagramme 4.14. La figure 4.15 montre le résultat d'une segmentation sur un sous-volume.

Cette méthode de segmentation basée sur la texture en trois dimensions permet en principe d'extraire toutes les colonies présentes dans un volume en une seule opération. En outre elle est insensible au bruit de l'image initiale. Dans les faits, son application se heurte encore à des problèmes de limitation de mémoire. Il n'est pour l'instant pas possible de segmenter un volume initial de $1024^3$ voxels. Il est donc nécessaire de travailler sur des volumes de taille réduite éventuellement sous-échantillonnés. Le volume maximal pouvant être traité en une seule opération compte $256^3$ voxels. Dans ces conditions, le voisinage optimal pour le calcul des moyennes de gradients est un cube de 20 voxels de côté et le voisinage pour le calcul des produits scalaires est un cube de 5 voxels de côté.



(a) LPE (b) LPE + image initiale

**Figure 4.13 :** *Résultat de la ligne de partage des eaux (LPE) contrainte par marqueurs, avec superposition sur l'image originale.*

### 4.7.2 Résultats

Un exemple de colonie est présenté figure 4.16. Elle est relativement fine et est constituée de deux lamelles principales. Cette colonie appartient à une zone en vannerie du matériau.

La plupart des autres colonies observées sont cependant de forme plus massive. Deux exemples sont montrés figures 4.17 et 4.18. Ces colonies sont situées à l'intérieur de l'ancien grain bêta présenté figure 4.10.

En raison des opérations de maillage, leur forme est quelque peu lissée. Néanmoins, les caractéristiques principales de leur géométrie sont conservées. En particulier, il est visible qu'elles sont compactes et présentent plusieurs lobes. Cette forme diffère donc quelque peu des demi-ellipsoïdes par lesquels il peut être tentant d'approximer les colonies [DCTAAG+07]. Incidemment, il est clair que sur une section planaire peuvent apparaître plusieurs zones disjointes de même orientation cristalline émanant d'une même colonie.

Sur la figure 4.19, il est montré que ces deux colonies ont des formes complémentaires. Elles sont emboîtées à l'intérieur du grain et présentent deux plans de contact principaux, indiqués sur la figure 4.19(d). La figure 4.19 illustre un point déjà noté au chapitre 3 : certains joints de grains peuvent ne donner naissance à aucune colonie en cas de désorientation importante entre les grains. La colonie de la figure 4.17 est représentée ici à l'intérieur du grain bêta, dont seul le maillage est visible. Il apparaît qu'elle est en contact avec deux faces complètes du grain (figure 4.20(d)). En admettant qu'elle s'est développée à partir d'un seul joint, on peut conclure qu'elle a donc entièrement recouvert l'autre joint. Afin de donner une idée plus précise de l'agencement des colonies, celles-ci sont représentées à l'intérieur du grain sur la figure 4.21.

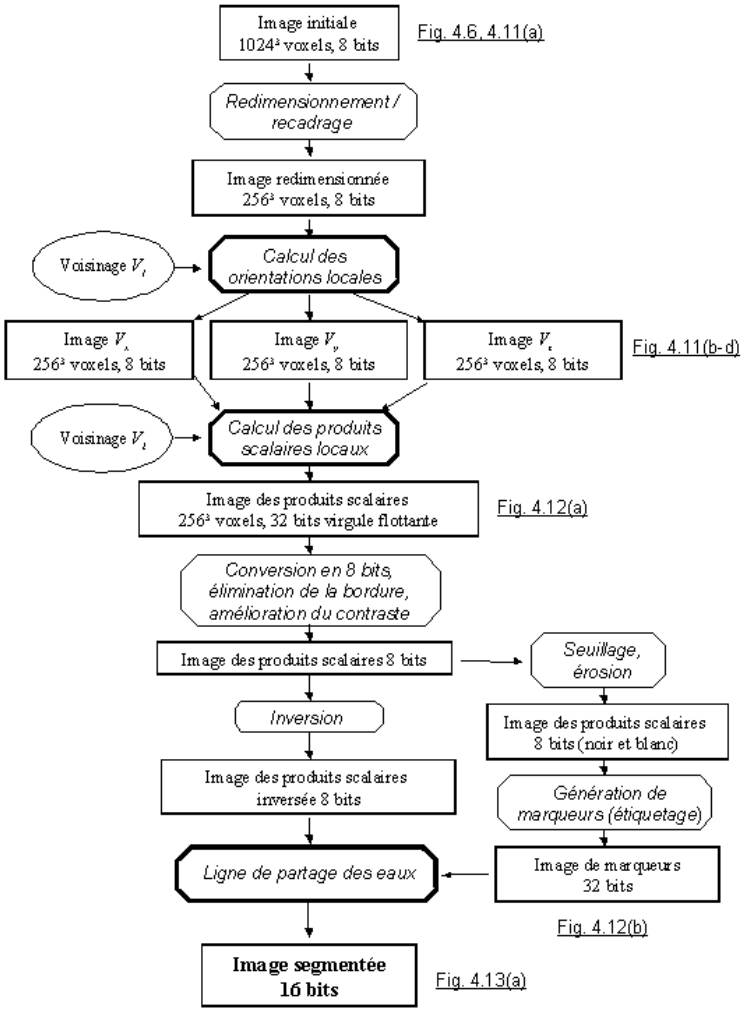



**Figure 4.14 :** *Principe de la segmentation de colonies par analyse de textures.*

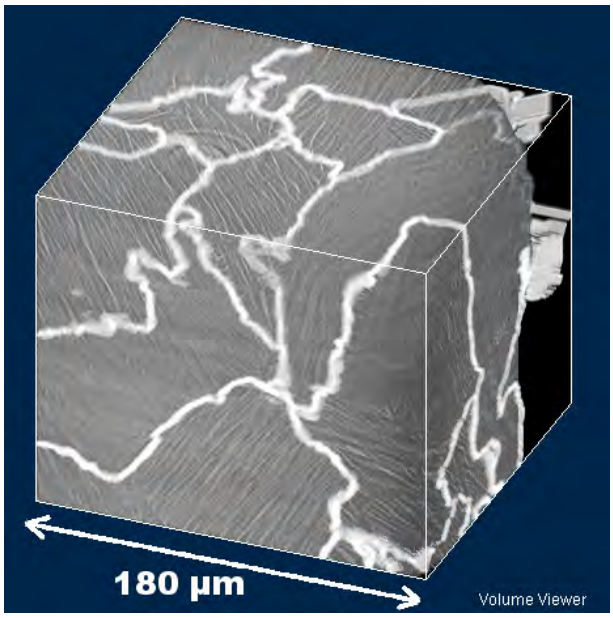



**Figure 4.15 :** *Segmentation d'un volume de* $256^3$ *voxels.*

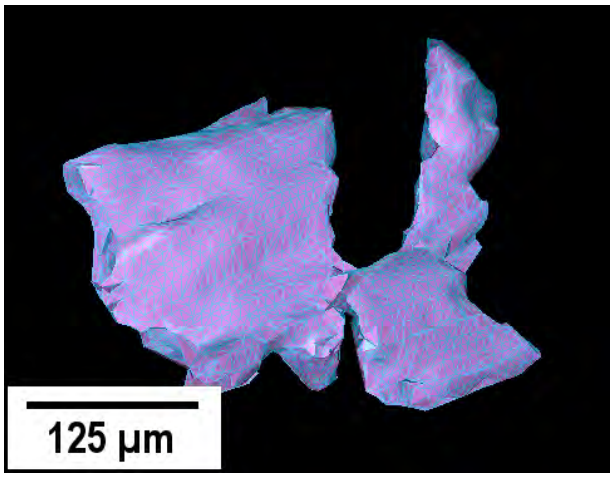
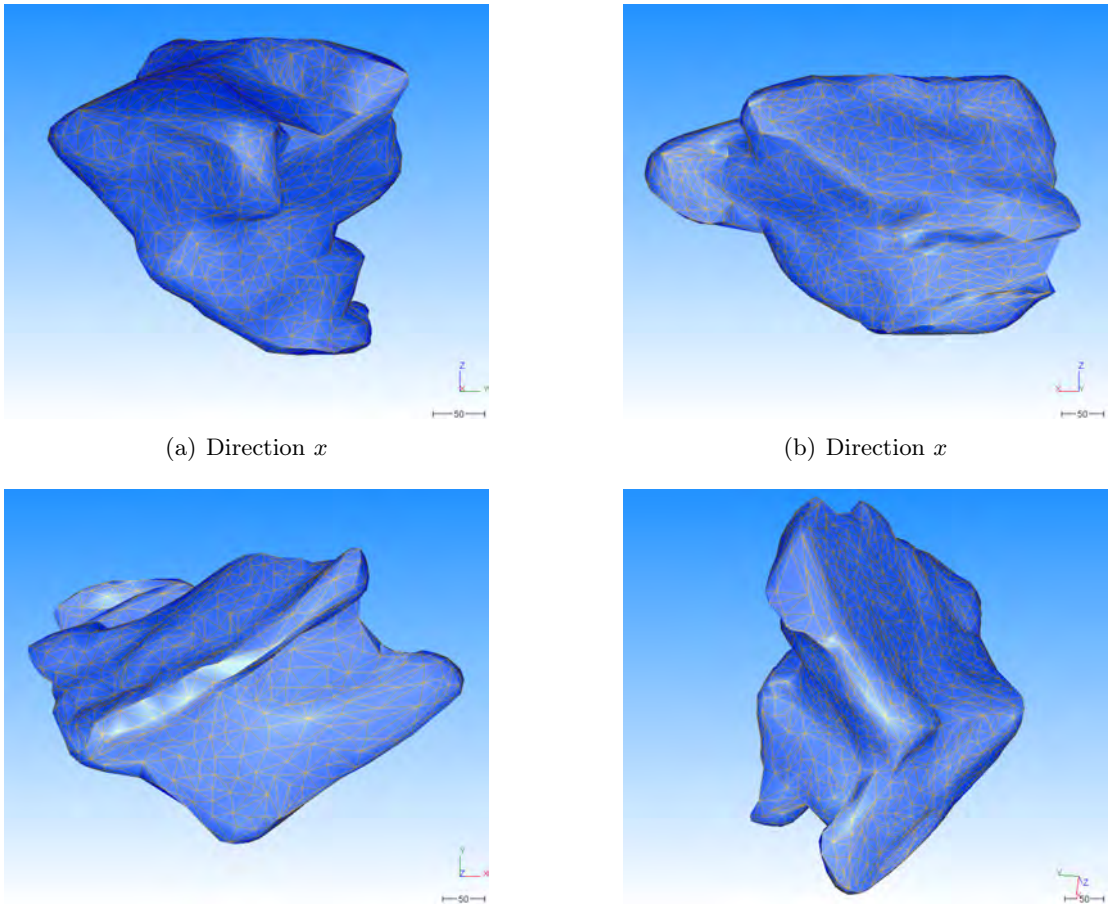



**Figure 4.16 :** *Exemple de colonie.*



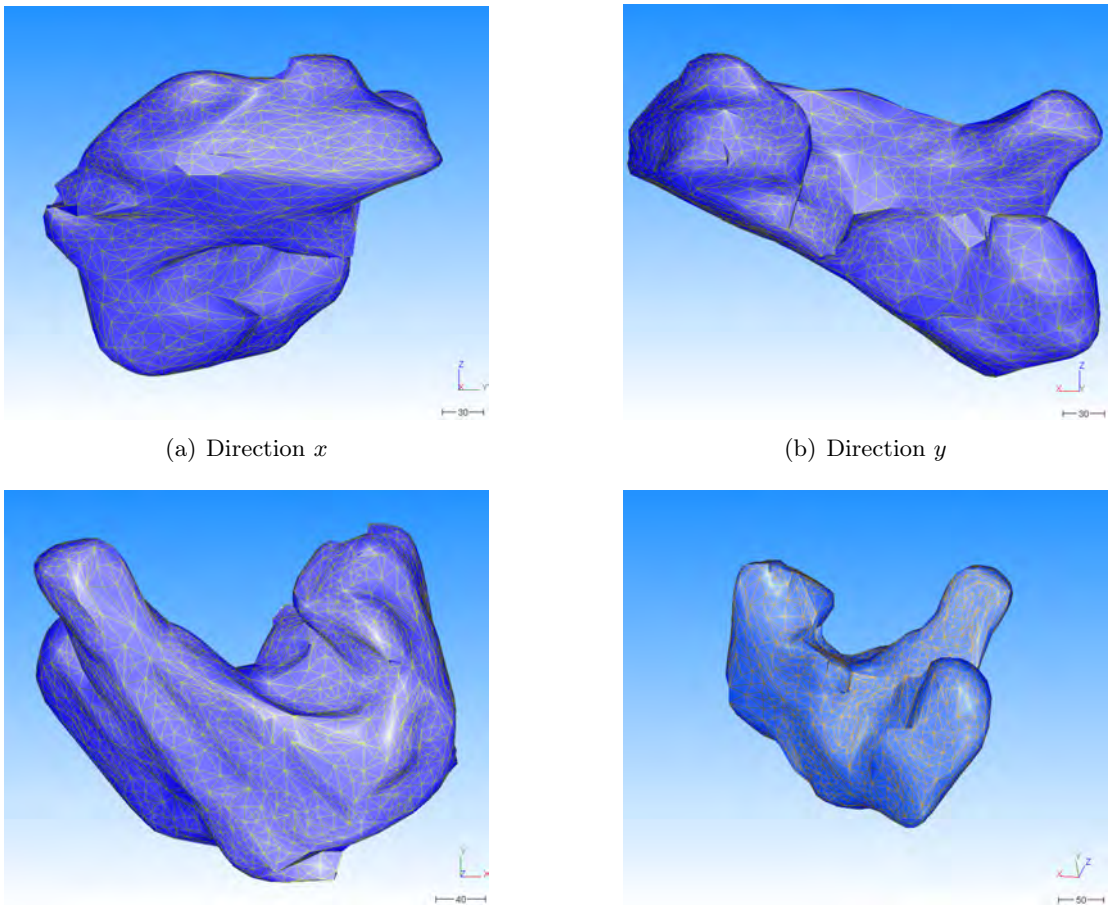
(a) Direction $x$

(b) Direction $x$

(c) Direction $z$

(d) Perspective

**Figure 4.17 :** *Visualisation d'une colonie selon les directions $x, y, z$ et en perspective.*



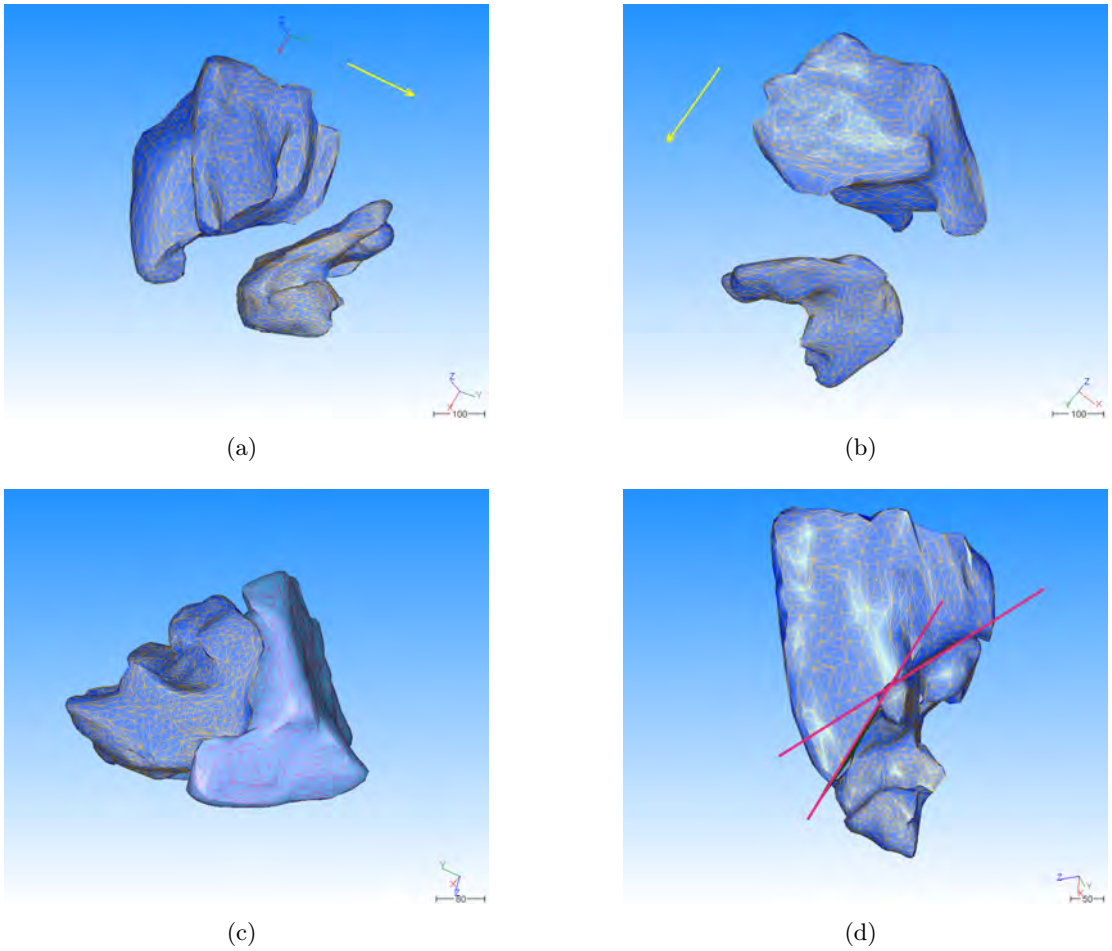
(a) Direction $x$

(b) Direction $y$

(c) Direction $z$

(d) Perspective

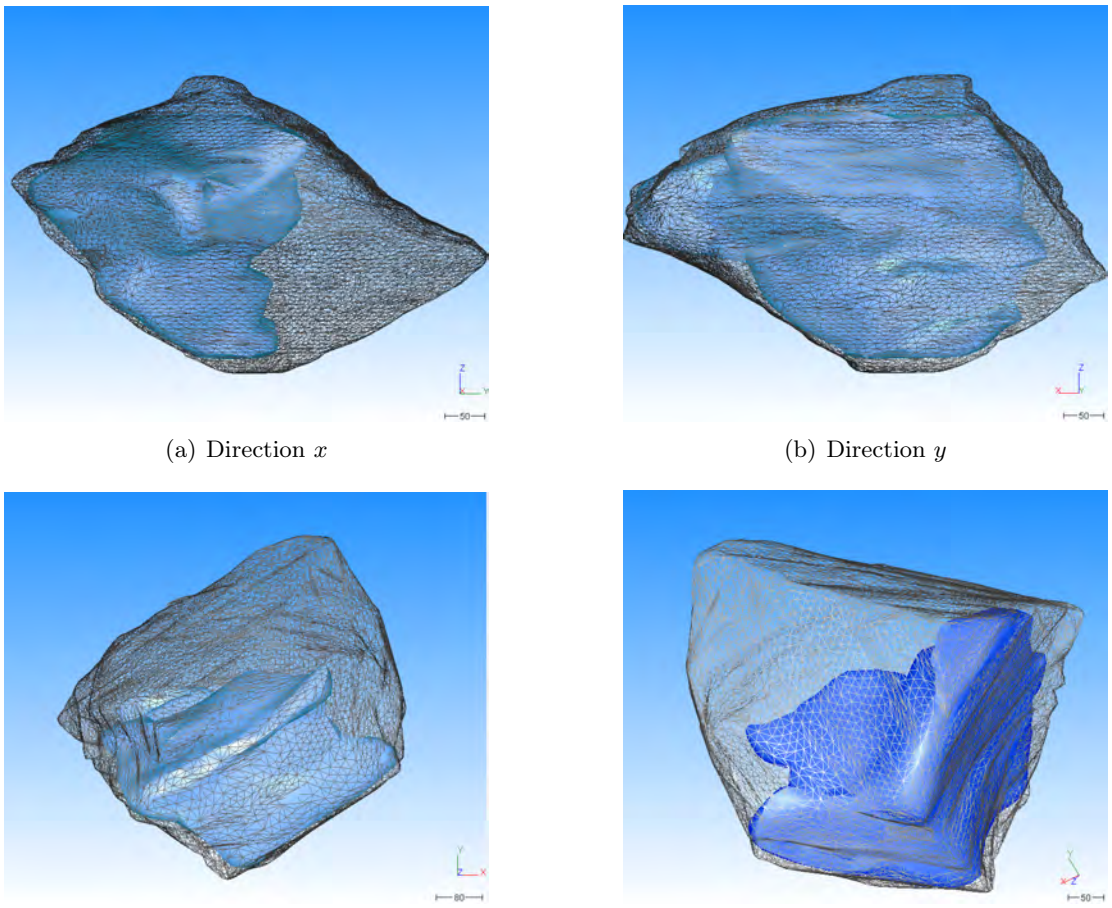
**Figure 4.18 :** *Visualisation d'une colonie selon les directions $x, y, z$ et en perspective.*



(a) (b)

(c) (d)

**Figure 4.19 :** *Visualisation en perspective de l'imbrication entre colonies voisines.*



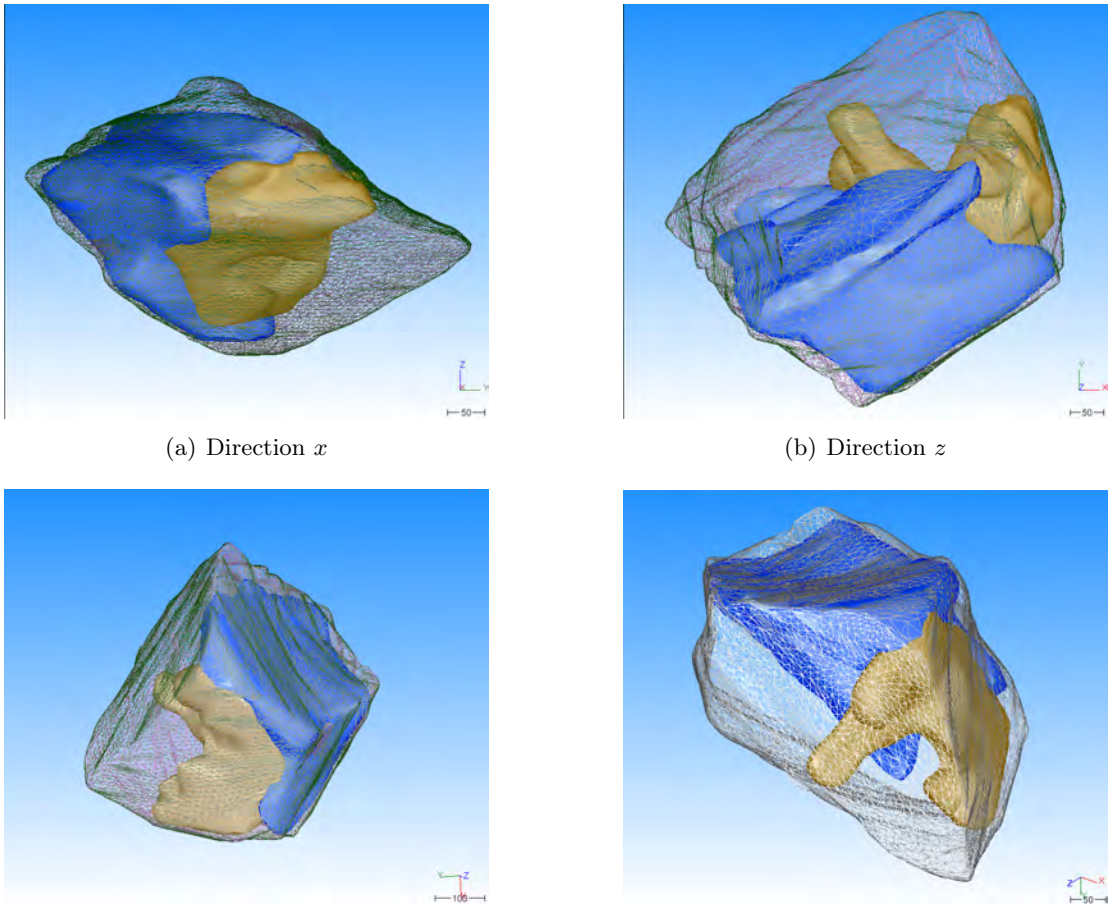
(a) Direction $x$

(b) Direction $y$

(c) Direction $z$

(d) Perspective

**Figure 4.20 :** *Visualisation de la position d'une colonie dans un ancien grain bêta.*



(a) Direction $x$

(b) Direction $z$

(c) Perspective

(d) Perspective

**Figure 4.21 :** *Visualisation des positions relatives de deux colonies dans un ancien grain bêta.*

La forme particulière des colonies et leur imbrication justifient certaines hypothèses quant aux mécanismes de formation de la microstructure lamellaire et à son comportement en déformation. Il est probable que la géométrie des colonies soit le résultat d'un processus de croissance présentant des caractéristiques de *hard impingement* [17] [LSB07]. Selon cette hypothèse, les colonies se bloquent mutuellement au cours de leur croissance. Seules les parties d'une colonie qui ne sont pas en contact avec d'autres peuvent continuer à croître. En fin de transformation, les colonies imbriquées forment un agrégat compact à l'intérieur de chaque ancien grain bêta. Cette interprétation repose par ailleurs sur la nature partiellement displacive de la transformation, par opposition à une transformation entièrement diffusive dans laquelle les champs de diffusion peuvent se recouvrir sur quelque distance (phénomène de *soft impingement*). Certaines colonies, observées en coupe planaire, peuvent entourer d'autres colonies. Cela peut être observé sur la figure 4.22(a). Cette configuration peut être expliquée en considérant une vitesse de croissance certes anisotrope, mais non nulle à tout instant dans toutes les directions. Les colonies peuvent ainsi "se refermer" autour d'autres colonies et emplir tout l'espace au sein des anciens grains bêta. Ce processus est représenté schématiquement figure 4.22. Sur celle-ci, la colonie inférieure croît vers le haut, alors qu'une autre colonie se trouve sur son chemin. La première colonie se trouve partiellement bloquée et finit par enclore la deuxième. Ce scénario n'implique pas logiquement que les colonies puissent être, en trois dimensions, trouées à la manière d'un tore – c'est-à-dire de genre 1 en termes topologiques. Cette configuration, que nous n'avons pour l'instant pas observée par microtomographie, et sur laquelle nous ne pouvons conclure à partir de seules sections planes, reste cependant tout à fait envisageable.

Au regard du comportement en déformation, notons que la présence de lobes peut avoir des effets de concentrateurs de contrainte, comme cela a été étudié dans le cas de particules intermétalliques de forme complexe dans les alliages d'aluminium [Mou08]. En suivant cette hypothèse, la fragmentation des colonies serait facilitée au niveau des zones de raccordement entre lobes.

## 4.8 Conclusions

Nous allons ébaucher dans cette section un scénario descriptif de formation de la microstructure lamellaire dans le Zircaloy-4 et le TA6V en conditions de refroidissement continu. Nous étendons ensuite la discussion en suggérant des pistes pour la modélisation de telles structures. La description que nous proposons est basée sur les observations en deux et trois dimensions rapportées dans ce chapitre et le chapitre précédent, et se situe donc à l'échelle mésoscopique. La nature exacte des interfaces, en particulier, n'est pas considérée. Par ailleurs, ce scénario ne prend pas en compte la germination intragranulaire et considère des vitesses de trempe modé-

[17] Une croissance par hard impingement se traduit par l'absence d'interpénétration des phases nouvellement formées.

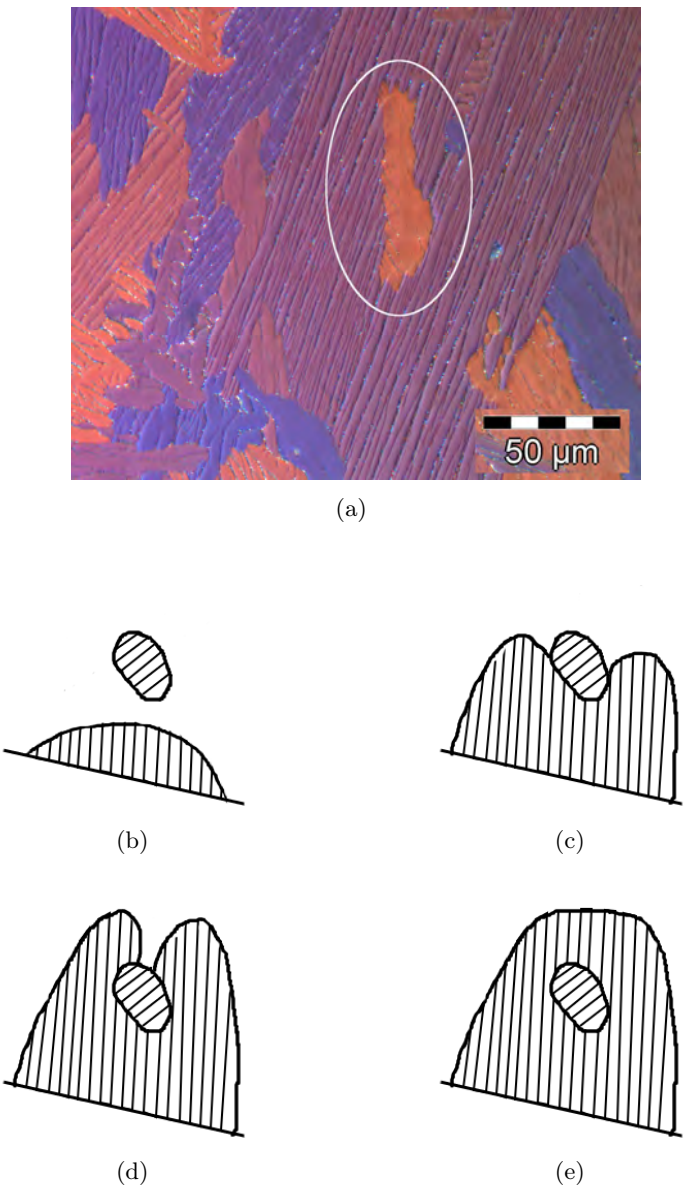



**Figure 4.22 :** *Représentation schématique d'une interaction entre deux colonies conduisant l'une d'entre elles à apparaître enclose.*

rées. Nous proposons en figure 4.23 une représentation schématique de la transformation $\beta \rightarrow \alpha$ inspirée de celle présentée par Crépin [Cré95], actualisée par de nouveaux éléments ayant trait à la germination des colonies et à leur morphologie.

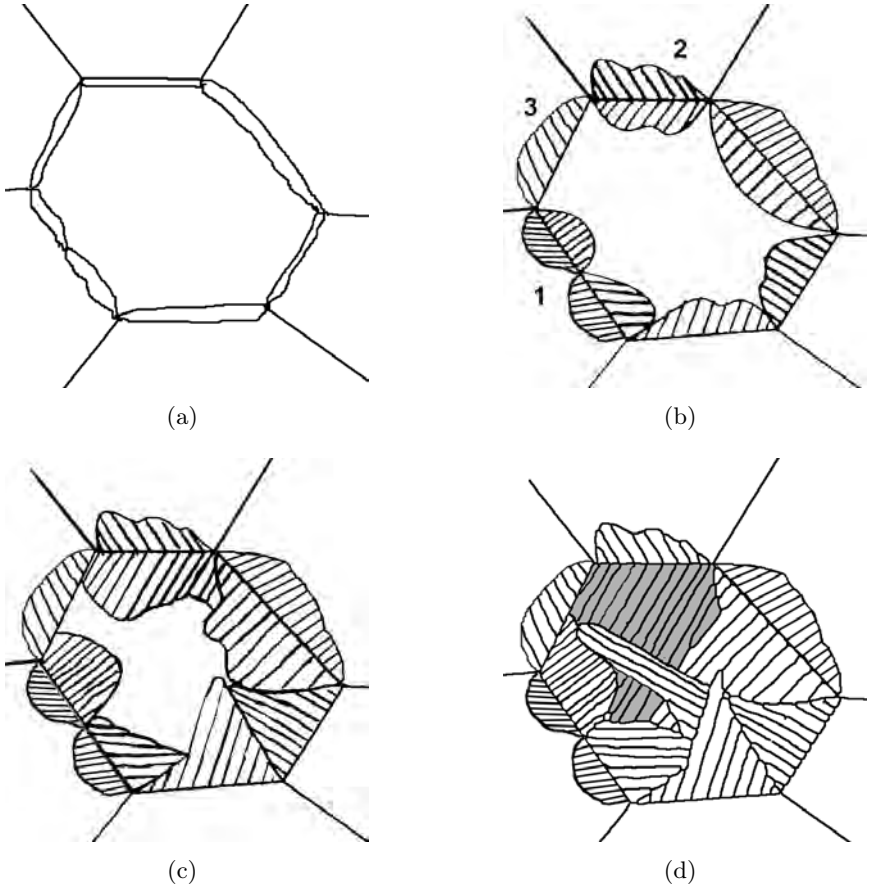



**Figure 4.23 :** *Représentation schématique de la genèse de la microstructure de Widmanstätten.*

Nous avons montré dans le Zircaloy-4 l'existence d'un type particulier de phase alpha se développant le long des anciens joints de grains bêta. Cette phase est analogue à la phase $\alpha_{GB}$ des alliages de titane alpha/bêta. Son développement est de type diffusif, ainsi qu'en atteste la ségrégation des éléments d'alliage. Comme dans les alliages de titane, elle se développe sans doute aux premiers stades de la transformation $\beta \rightarrow \alpha$ (figure figure 4.23(a)). A l'inverse des lamelles, ce type de phase alpha présente une morphologie dénuée de relation particulière avec sa nature cristallographique. Elle est qualifiée d'allotriomorphe. Les lamelles de Widmanstätten apparaissent par germination sympathique sur les couches $\alpha_{GB}$ et se propagent vers l'intérieur du grain (figure 4.23(b)). Dans les alliages de titane, la direction de croissance principale est de type $<\overline{3}34>_\beta$ ou $<\overline{3}35>_\beta$ [BDSR97, SVN$^+$99]. Les colonies et la phase allotriomorphe ont une orientation cristallographique proche. D'une manière générale, les couches $\alpha_{GB}$ maintiennent une

relation de Burgers plus ou moins exacte avec au moins l'un des deux ex-grains bêta, alors que les colonies qui y ont germé respectent exactement ces relations avec le grain où elles se développent. Aussi est-il courant d'observer une désorientation de quelques degrés entre les couches allotriomorphes et les colonies qui y sont rattachées. Dans la mesure où les colonies sont cristallographiquement liées aux couches allotriomorphes, la désorientation initiale entre grains bêta adjacents revêt une importance certaine dans le phénomène de sélection des variants à l'échelle du matériau.

Un cas important est rencontré lorsque deux grains adjacents ont un plan $\{110\}_\beta$ proche. Le variant sélectionné pour la phase $\alpha_{GB}$ est alors celui dont le plan basal coïncide avec ce plan $\{110\}_\beta$. La phase allotriomorphe maintient alors une relation de Burgers approchée simultanément avec les deux ex-grains bêta. Toujours dans les mêmes conditions, deux variants de même plan basal, désorientés de 10,5 ° autour de l'axe <c> peuvent être sélectionnés au joint de grains. Les lamelles qui germent sur ces couches ont donc un axe <c> proche, et peuvent se développer de part et d'autre de l'ancien joint de grains (zones 1 et 2 dans la figure 4.23(b)). Un calcul rapide de désorientations de cubes montre que cette condition est susceptible d'être réalisée dans la moitié des cas pour un matériau non texturé.

Dans d'autres cas, la couche allotriomorphe ne donne naissance à des colonies que dans un ancien grain (zone 3 dans la figure 4.23(b)). D'autres relations d'orientation entre anciens grains bêta sont peut-être susceptibles d'entraîner des sélections de variants ; elles n'ont pas encore fait l'objet de recherches.

La croissance des colonies s'effectue de manière compétitive. Elles se bloquent mutuellement (figure 4.23(c)), ce qui, en conjugaison avec une vitesse de croissance fortement anisotrope, leur confère des formes lobées. La microstructure observée en deux dimensions apparaît donc enchevêtrée (colonie en gris sur la figure 4.23(d)). L'influence de la phase $\alpha_{GB}$ sur la formation de la microstructure est encore mal évaluée, en particulier dans le Zircaloy-4. Des études sont encore nécessaires, et il est probable qu'elles devront reposer sur des observations en trois dimensions. Le nombre de couches $\alpha_{GB}$ distinctes par joint de grain, leurs relations cristallographiques avec les grains adjacents et leur influence sur le nombre de variants présents dans chaque grain devraient être les prochains sujets d'étude dans ce domaine, de même que l'importance de ce type de sélection de variant au regard de la texture en phase alpha.

La formation des lamelles proprement dites n'a pas été traitée dans nos travaux. Il n'est pas évident, sur la seule base d'observations à température ambiante, de déterminer si les lamelles germent individuellement avec la même orientation et forment ensuite des colonies, ou si les colonies croissent en bloc et les éléments fer et chrome précipitent ensuite en délimitant les lamelles. Par analogie, notons que la question de la partition du carbone dans les aciers refroidis depuis le domaine austénitique est toujours l'objet de débats.

D'un point de vue expérimental, le couplage entre la microtomographie et l'EBSD est prometteur. Il s'agirait en pratique de tomographier un échantillon, puis de le sectionner à différentes

profondeurs de manière à connaître l'orientation cristalline de toutes les colonies. Alternativement, la technique de diffraction en trois dimensions (3-DXRD – *3D X-ray Diffraction*), développée au cours des ces dernières années, pourrait apporter des informations complémentaires, dans le cas des alliages de titane vraisemblablement. Cette technique repose sur la diffraction en volume d'un faisceau de rayons X énergétique (50 à 100 keV) et cohérent, et donne simultanément accès à l'orientation cristalline et à la morphologie des grains [LDFJ06].

Parallèlement, la simulation de microstructures de Widmanstätten constitue un autre domaine à explorer. D'après ces premiers résultats, il apparaît que la synthèse de morphologies réalistes passe obligatoirement par la prise en compte des trois dimensions. Une approche consiste à s'inspirer de la simulation de microstructures équiaxes par diagrammes de Voronoï [FG99]. Dans ce modèle, on considère un domaine constellé de germes ponctuels distribués aléatoirement. Le diagramme est construit en reliant chaque point par des segments à ses plus proches voisins. Un plan est construit au centre de chaque segment, perpendiculairement à celui-ci. Les intersections mutuelles de ces plans définissent des polyèdres. L'ensemble de ces polyèdres réalise un pavage de l'espace (figure 4.24(a)).

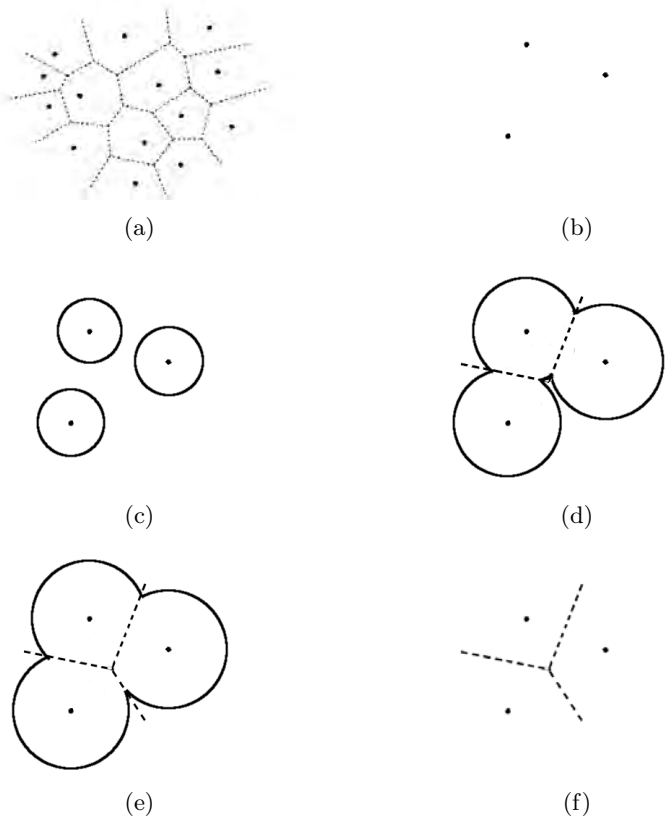



**Figure 4.24 :** *Partition du plan par diagramme de Voronoï. (a) : diagramme global [FG99], (b) à (f) : construction du diagramme par croissance isotrope de cellules initialement circulaires.*

Cette démarche peut être envisagée d'un point de vue dynamique : chaque germe est le centre de croissance d'un domaine dont la taille augmente jusqu'à ce qu'il entre en contact avec ses voisins. Dans le diagramme de Voronoï classique en trois dimensions, les domaines sont sphériques, germent au même instant, et croissent de manière isotrope. Les zones de contact deviennent planes, et s'étendent jusqu'à ce que le volume soit entièrement divisé en polyèdres (figures 4.24(b) à (f)). En raison de la vitesse de croissance isotrope, les domaines ainsi formés sont tous convexes.

Une adaptation de ce modèle aux microstructures de Widmanstätten devrait prendre en compte des vitesses de croissance anisotropes de manière à produire des domaines non convexes. En outre, une germination à partir de sous-domaines situés sur les joints de grains bêta devrait être considérée. A certains égards, cette démarche est à rapprocher de celle des algorithmes de détection de contours en trois dimensions par surfaces déformables [MDSA00] développés pour la segmentation d'images. La différence majeure est qu'il n'existe ici aucun contour préexistant à détecter et que plusieurs surfaces évoluent en même temps jusqu'à se rencontrer.

En pratique, trois étapes peuvent être distinguées :

- génération de la microstructure bêta équiaxe, par exemple par diagramme de Voronoï classique,
- partitionnement des surfaces des polyèdres en un certain nombre de sous-surfaces, éventuellement sur la base de critères cristallographiques tels que ceux esquissés au chapitre 3,
- croissance anisotrope de volumes à partir des sous-surfaces.

Les principaux paramètres d'ajustement de ce modèle sont les directions et vitesses de croissance des colonies, ainsi que les critères de sélection de variants aux joints de grains ; la contrainte principale est le remplissage total de l'espace au sein de chaque grain. La validation des résultats peut s'effectuer en deux et trois dimensions, par comparaison de coupes aléatoires de la microstructure simulée avec des micrographies de microstructures réelles, ainsi que par comparaison directe avec des résultats de microtomographie.

Concluons en notant que la méthode des automates cellulaires semble particulièrement adaptée à cette tâche. En effet, les automates cellulaires proposent un cadre très général pour la simulation de phénomènes physiques. Leur principe repose sur une partition de l'espace en un réseau de cellules, associée à une loi locale d'évolution discrétisée dans le temps. Cette loi porte sur un voisinage arbitraire, peut être déterministe ou probabiliste et agir simultanément ou non sur toutes les cellules [Raa02]. Le phénomène de germination-croissance anisotrope par *hard impingement* a déjà fait l'objet de simulations de Monte-Carlo sur des réseaux en deux dimensions [PG98, Koo04]. L'adaptation de cette démarche en trois dimensions, avec des germes de forme aplatie représentant les allotriomorphes, est un objectif raisonnable. Le point délicat consisterait à établir un pavage de l'espace reproduisant les symétries cristallines des phases alpha et bêta, ainsi qu'à établir des vitesses de croissance anisotropes réalistes dans les trois dimensions.

# Chapitre 5

# Déformation du Zircaloy-4 lamellaire dans le haut domaine $\alpha$

Ce chapitre présente une étude de la microstructure lamellaire du Zircaloy-4 à l'état déformé dans le haut domaine alpha. Il est connu que la microstructure déformée présente un caractère hautement hétérogène en raison de sa cristallographie et de sa morphologie. Le but poursuivi ici est d'identifier certains comportements récurrents parmi la diversité des situations observées au sein d'un même échantillon et entre plusieurs échantillons sollicités dans des conditions différentes. Ces travaux entendent apporter un éclairage sur les modifications microstructurales du matériau au cours de la mise en forme. Le laminage et le filage sur aiguille sont deux opérations utilisées dans le process de fabrication des tubes de gainage de combustible. Elles peuvent être correctement représentées, à l'échelle macroscopique, par un état de déformations planes. La reproduction à l'échelle du laboratoire de ces conditions de déformation a nécessité le développement d'un dispositif de compression plane encastrée (*channel-die*) opérationnel jusqu'à 800 ℃ [VDDM06, VDGID08]. En parallèle, le matériau a été testé en compression uniaxiale selon la technique décrite au chapitre 2.

Ce chapitre se compose de quatre parties principales. La première expose l'approche expérimentale employée. La deuxième décrit avec quelque détail le principe du dispositif de compression plane encastrée après l'avoir replacé dans le contexte des essais mécaniques à haute température. Elle est complétée par l'annexe E, qui présente une analyse mécanique et une série de tests visant à comparer les résultats fournis par le nouveau dispositif et le dispositif de compression plane pour les tests à plus basse température en usage à l'Ecole des Mines. La troisième partie traite de la rhéologie de notre nuance de Zircaloy-4. La dernière partie s'attache, à travers plusieurs exemples représentatifs, à identifier plusieurs types d'hétérogénéités de déformation et à évaluer leurs relations avec la recristallisation dynamique du matériau.

## 5.1 Démarche expérimentale

Dans une série d'échantillons de Zircaloy-4 de taux de déformation croissants, Chauvy a mis en évidence l'augmentation moyenne de la proportion de joints de grains de plus de 15 °, conjointement à la disparition de joints de faible désorientation [Cha04]. Ces observations suggèrent que le processus de recristallisation dynamique du Zircaloy-4 est de type continu. Des conclusions semblables ont été formulées par Logé [Log99].

Notre étude se situe à une échelle plus locale, et vise à identifier les différents types d'hétérogénités de déformation et leur influence sur l'apparition des cristallites précurseurs de la microstructure équiaxe. L'échelle couverte peut être qualifiée de mésoscopique et s'étend du micromètre à plusieurs centaines de micromètres. Notons qu'une analyse détaillée se heurte au problème de la représentativité des zones observées. Nous avons donc effectué un grand nombre de caractérisations locales en microscopie optique et EBSD, desquelles ont été isolés plusieurs phénomènes récurrents. Sous certaines réserves ayant trait à l'orientation cristallographique locale et à la configuration de la microstructure, et sauf indication contraire, chacun des exemples que nous présentons peut être considéré comme caractéristique de ces phénomènes. En complément à nos travaux, une étude interne par microscopie électronique en transmission a été réalisée sur des échantillons déformés en compression plane et uniaxiale à 650 et 750 ℃[Pau06]. Quelques résultats en sont mentionnés, qui concernent la nature des systèmes de glissement activés et la sous-structure des cristallites.

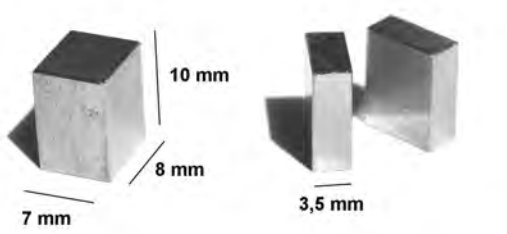



**Figure 5.1 :** *Echantillons pleins et coupés utilisés en compression plane encastrée.*

La microstructure déformée a été étudiée en compression uniaxiale et en compression plane. Dans ce dernier cas, des échantillons pleins et des échantillons découpés selon le plan de symétrie du dispositif ont été utilisés (figure 5.1). Pour les métaux en compression plane encastrée, cette méthode est à notre connaissance mentionnée deux fois seulement dans la littérature, par Panchanadeeswaran et Doherty [PD93, PDB96] qui l'ont testée sur des échantillons d'aluminium à 375 ℃. Elle a l'avantage de permettre le suivi d'une même plage située au coeur d'un échantillon déformé par passes successives. En pratique, il s'agit de caractériser les surfaces de deux demi-échantillons avant déformation, d'effectuer l'essai, puis de les séparer après la trempe. Ils

peuvent ensuite être comprimés à nouveau [18].

Dans notre cas, les taux de déformation équivalente atteints en une seule passe avec des échantillons pleins sont compris de 0,5 à 0,8. En compression de demi-échantillons, les pas sont de l'ordre de 0,1. La représentativité au regard de la déformation des faces internes des deux demi-échantillons en comparaison avec un échantillon complet est un point important. Elle semble être assurée par le fort contact mécanique constaté après quelques pourcent de déformation. La figure 5.2 montre la surface d'un demi-échantillon électropoli déformé jusqu'à 0,08 à 750 ℃ en même temps qu'un autre demi-échantillon sur lequel a été gravée une microgrille. Des traces régulières sont visibles : la microgrille a imprimé son relief au cours de la déformation. Les surfaces des deux demi-échantillons ne sont donc pas libres et s'influencent mutuellement.

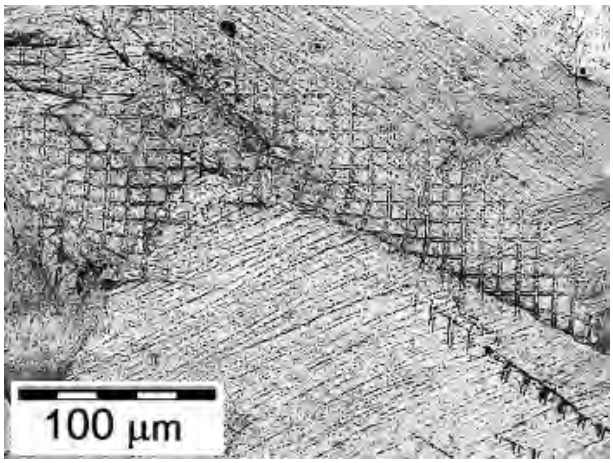



**Figure 5.2 :** *Impression en relief d'une microgrille sur la surface d'un demi-échantillon comprimé à* $\overline{\epsilon} = 0,08$.

L'étude expérimentale des demi-échantillons souffre cependant de limitations sérieuses, jusqu'à présent imparfaitement surmontées. La première tient aux déplacements hors plan de la matière. Ces déplacements constituent une difficulté pour les caractérisations après déformation. Elle peut être contournée, dans le cas des observations de microgrilles, à l'aide de la fonction de mise au point étendue (*Extended Focal Imaging*) disponible sur le logiciel associé au microscope motorisé. Cette fonction fournit une image nette sur toute la profondeur de la zone observée en combinant une série de clichés pris à différentes distances. Elle permet par ailleurs de reconstruire le relief de la microstructure. Ce relief complique en revanche les caractérisations EBSD après déformation. Il est alors nécessaire de polir partiellement la surface jusqu'à arriver à la zone observée, ce qui rend parfois les mesures incertaines et hypothèque la possibilité de réutiliser les échantillons. La seconde difficulté concerne l'état de surface après essai. En dépit du flux d'argon

[18] D'un point de vue mécanique, la caractérisation d'échantillons découpés après compression évoque une approche eulérienne de la déformation, et la caractérisation de demi-échantillons une approche lagrangienne. Dans la première, l'état initial de la plage observée est inconnu, dans la seconde, il est connu et évalué régulièrement. Pour de faibles taux de déformation, cette distinction perd bien entendu de sa signification.

et de la présence de getter dans l'enceinte, la surface est plus ou moins oxydée. L'exploitation des microgrilles pour l'évaluation des déformations planes devient alors délicate, de même que la réutilisation des échantillons. Notons que malgré ces difficultés, les deux demi-échantillons ont toujours été séparés facilement après déformation.

La figure 5.3 donne un exemple de l'évolution d'une surface de demi-échantillon comprimé deux fois à 750 °C et 0,1 $s^{-1}$. La première passe de compression impose une déformation équivalente de 0,08, la seconde de 0,05. La déformation équivalente totale vaut 0,13. La surface initiale est électropolie – à l'exception des coins – et comporte deux microgrilles. A l'échelle de l'échantillon, la surface apparaît relativement altérée dès la première déformation. Un relief est visible, de même qu'une contamination des parties supérieures par du lubrifiant ayant pénétré dans l'interstice initial entre les deux demi-échantillons. Une fois porté à haute température et refroidi, ce lubrifiant forme une couche adhésive difficile à ôter sans abîmer la surface sous-jacente. Le deuxième pas de déformation a pour effet de renforcer le relief et de produire une surface encore plus altérée.

La figure 5.4 montre le suivi de la microgrille située à gauche. Le relief développé après la première déformation atteint une profondeur de l'ordre de 100 µm. Le deuxième pas de déformation produit un relief plus accidenté, ainsi qu'un état de surface plus dégradé. Cela est particulièrement visible sur la partie gauche de la figure 5.4(d).

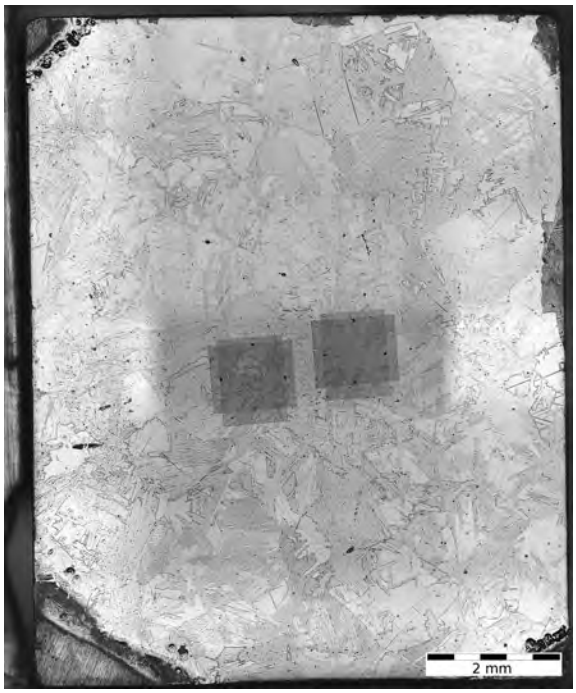
En conséquence du fort contact mécanique entre les deux demi-échantillons, il se révèle impossible d'identifier d'éventuelles lignes de glissement. Celles-ci sont en effet écrasées par l'autre demi-échantillon. L'aspect strié des microstructures est une source d'erreur supplémentaire.

Pour ces différentes raisons, il nous a été impossible de réaliser le suivi d'une même plage au-delà de deux pas de déformation – soit une déformation équivalente d'environ 0,20. Des améliorations portant sur l'élimination du lubrifiant et la protection des surfaces sont cependant envisageables. Dans cette étude, cette limitation expérimentale a pu être palliée par l'usage d'échantillons prédéformés en compression uniaxiale.

## 5.2 Compression plane encastrée à haute température

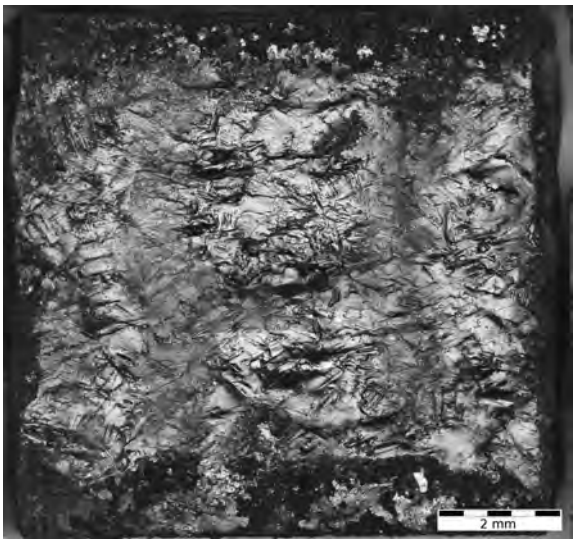
### 5.2.1 Problématique

L'étude expérimentale de la mise en forme des métaux fait usage de trois types principaux d'essais mécaniques : la compression uniaxiale, la torsion et la compression plane. Les avantages et inconvénients de ces essais sont depuis longtemps connus. A titre d'exemple, la torsion permet d'atteindre de grandes valeurs de déformation, sans pour autant constituer un chemin de déformation pertinent du point de vue industriel. Les procédés de transformation les plus fréquents, le forgeage et le laminage, sont respectivement simulés de manière plus réaliste par les essais de compressions uniaxiale et plane.



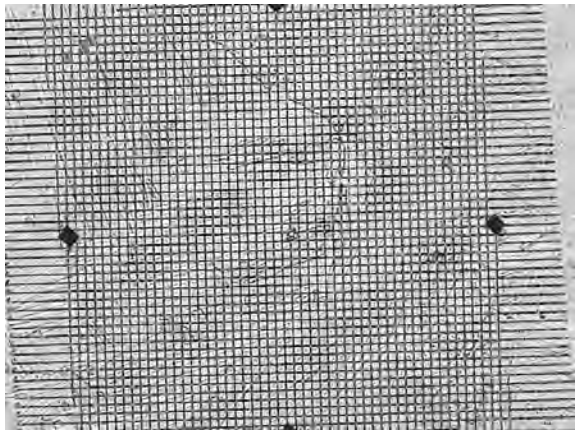

(a) Etat initial

(b) $\bar{\epsilon} = 0,08$

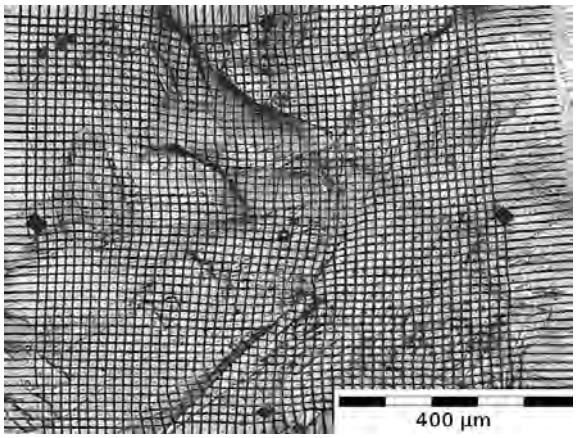



(c) $\bar{\epsilon} = 0,13$

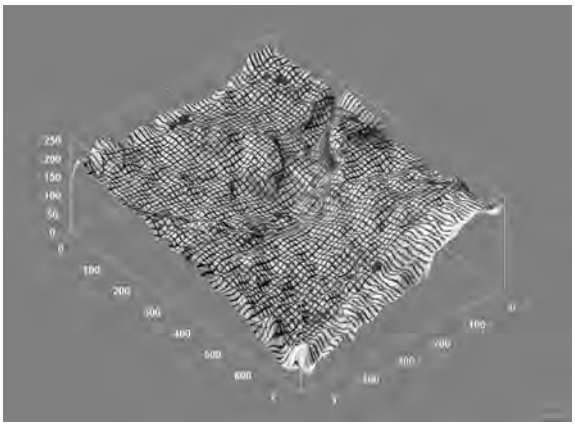
**Figure 5.3 :** *Evolution de la surface d'un demi-échantillon de compression plane encastrée au cours de deux passes de déformation à 750 ℃.*



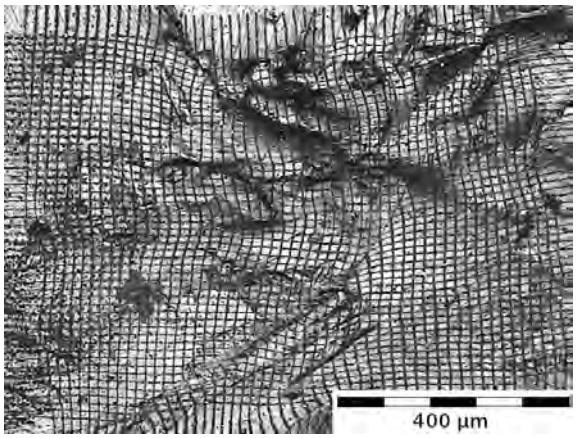
(a) Etat initial



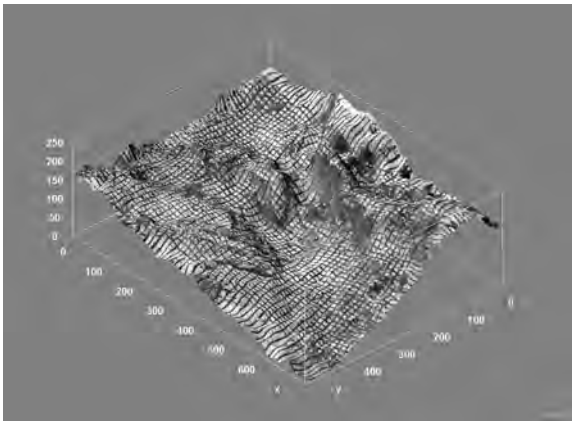

(b) $\overline{\epsilon} = 0,08$



(c) $\overline{\epsilon} = 0,08$




(d) $\overline{\epsilon} = 0,13$



(e) $\overline{\epsilon} = 0,13$

**Figure 5.4 :** *Evolution d'une microgrille en compression plane encastrée au cours de deux passes de déformation à 750 ℃. Le relief dans les figures (c) et (e) est de l'ordre de 100 µm*

Ces dix dernières années ont vu un intérêt croissant pour la compression plane, qui se décline sous deux variantes : le bi-poinçonnement et la compression plane bi-encastrée (*channel-die*). Dans la première, un échantillon préchauffé est comprimé par un poinçon sur une partie de sa surface. La relative simplicité de ce test permet d'opérer jusqu'à 1200 °C, et les frottements sont réduits aux surfaces inférieure et supérieure. L'inconvénient majeur de cette technique réside dans l'extension latérale de l'échantillon, ce qui se peut traduire par une zone et un état de déformation plastiques mal définis.

A contrario, le channel-die permet d'imposer un état de déformation plane dans la majeure partie de l'échantillon, au prix d'une surface de contact accrue entre l'échantillon et les outils. Cet essai consiste à comprimer une pièce parallélépipédique bloquée par deux parois qui empêchent son expansion latérale (figure 5.5). L'échantillon mécaniquement anisotrope peut s'allonger dans une seule direction et éventuellement présenter deux modes de cisaillement. Le tenseur des déformations comporte donc deux composantes libres, contre quatre en compression uniaxiale. La réduction des frottements revêt une importance capitale, car sur les six faces de l'échantillon, quatre sont en contact avec le dispositif. Une lubrification appropriée permet cependant d'obtenir des résultats fiables et reproductibles.

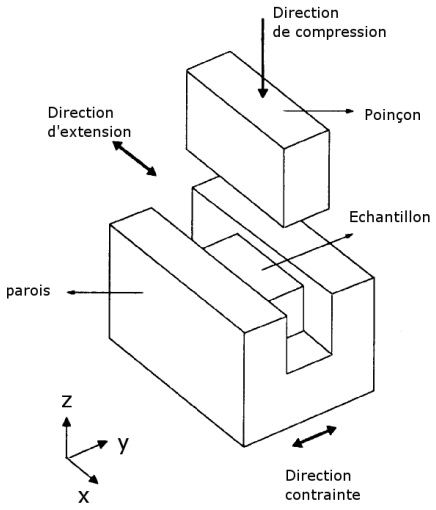



**Figure 5.5 :** *Schéma de principe d'un dispositif de compression plane bi-encastrée (channel-die).*

Le premier exemple de channel-die recensé dans la littérature remonte aux années 30 [WS30]. Le dispositif a ensuite été redécouvert et développé par Chin et al. dans les années 60 [CNW66], toujours dans le cadre de tests à température ambiante. L'utilisation de cet équipement à plus haute température se heurtait en effet à des difficultés d'ordre technologique, parmi lesquelles la nécessité de trouver des alliages résistants, ainsi que de maintenir une température homogène au sein de l'échantillon et des outils. Dans les années 90, différents dispositifs travaillant jusqu'à 500

ou 600 °C furent conçus [MD93, CK91, PD93]. Celui utilisé à l'Ecole des Mines de Saint-Etienne est décrit en détail dans [Mor99]. Les différentes parties (parois, tas, poinçon) sont en acier inoxydable. Au cours de l'essai, les parois sont pressées contre l'échantillon à l'aide d'un système hydraulique. Le poinçon et les parois sont chauffés à l'aide de résistances en graphite insérées dans la masse. Les échantillons sont enrobés de feuilles de Teflon™ (*PTFE – polytétrafluoroéthylène*) faisant office de lubrifiant.

Le dispositif existant est limité à 600 °C et ne peut travailler sous atmosphère inerte. En outre, le Teflon™ se dégrade aux alentours de 500 °C. Des tests à plus haute température requièrent donc une nouvelle approche, tant au niveau de la conception du dispositif que de la lubrification.

### 5.2.2 Description du dispositif

Il est composé de quatre parties (figure 5.6) : deux parois amovibles, le tas (partie inférieure) et le poinçon (partie supérieure). Le tas et le poinçon sont identiques. De la sorte, ils suivent la même évolution thermique. Les parois peuvent s'insérer dans des rainures pratiquées dans le tas et le poinçon, et coulisser lors de l'essai. Comme nous le verrons plus loin, cela a pour effet de limiter les frottements. Les rainures sont larges de 5 mm et profondes de 15 mm. Les parois mobiles ont pour dimensions $24 \times 20 \times 5$ mm$^3$. Les largeurs des rainures et des parois diffèrent d'un jeu d'environ 100 µm, de manière à laisser ces dernières glisser librement sans grippage à haute température. Les dimensions des échantillons ont les valeurs suivantes : largeur 7 mm, hauteur 10 mm, longueur (dimension d'extension) 8 mm. Elles résultent d'un compromis de réduction des frottements et des hétérogénéités de déformation [CDM02]. Des demi-échantillons peuvent être aussi utilisés pour des études axées sur la microstructure ; leurs dimensions sont $3,5 \times 8 \times 10$ mm$^3$ (figure 5.1).

**Figure 5.6 :** *Pièces du dispositif.*

L'échantillon est placé entre les parois et les parties supérieure et inférieure au début de l'essai, puis l'ensemble est chauffé (figure 5.7). Le profil de montée en température présenté figure 2.7 a été réalisé avec ce dispositif.

Les parois reposent sur des fils de nickel placés au fond des rainures : cela leur laisse une amplitude de déplacement vers le bas de quelques millimètres, ce qui est suffisant pour la plupart

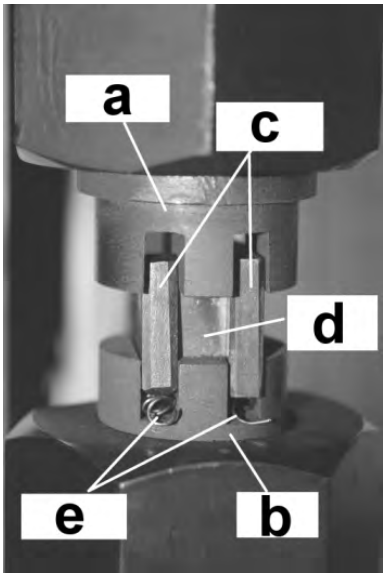
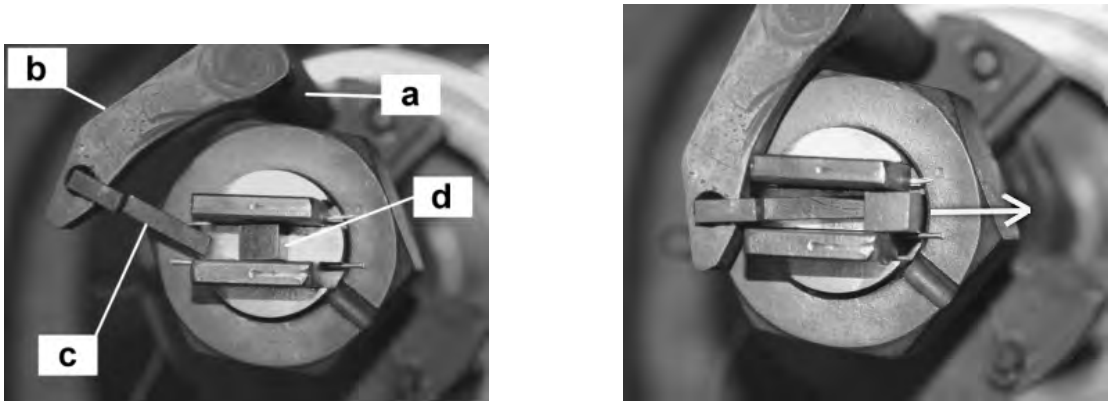



**Figure 5.7 :** *Mise en place d'un essai. a : poinçon, b : tas, c : parois, d : échantillon, e : fils de nickel.*

des taux de déformation visés. Les pièces ont été dimensionnées de telle manière que l'ensemble, échantillon compris, est symétrique par rapport à un plan horizontal. L'uniformité thermique, essentielle à haute température, est ainsi favorisée. Comme dans le dispositif de compression uniaxiale, deux thermocouples de type K, placés deux millimètres sous les surfaces du tas et du poinçon, permettent de s'assurer que la différence de température entre le haut et le bas de l'échantillon est inférieure à 5 °C à 750 °C.

Le dispositif est utilisé avec la machine de compression décrite au chapitre 2. Les essais s'effectuent donc à vitesse de déformation constante et sous atmosphère protectrice. Le système de trempe est une extension de celui utilisé pour les essais de compression uniaxiale. Un doigt articulé, actionné manuellement par l'intermédiaire d'un axe débouchant à l'extérieur de l'enceinte, permet de projeter l'échantillon et de le faire tomber dans un bac de trempe rempli quelques secondes avant la fin de l'essai (figures 5.8(a) et 5.8(b)). Afin de faciliter cette opération, le poinçon est remonté rapidement de quelques millimètres lorsque la valeur de déformation souhaitée est atteinte.

Le zirconium étant un alliage très oxydable à haute température, la lubrification revêt une importance certaine dans le protocole expérimental. Les outils sont lubrifiés avec du graphite en spray. Quant à l'échantillon, plusieurs solutions ont été testées : nitrure de bore, graphite en spray, surfaces préoxydées, lubrifiant industriel fourni par la société CEZUS. Ce dernier a donné les meilleurs résultats : l'éjection de l'échantillon en fin d'essai s'effectue sans difficulté et le coefficient de frottement est constant jusqu'à une déformation de $\overline{\epsilon} = 0,80$. Il se présente sous la forme d'un produit liquide et forme un film adhésif à haute température. Cela est probablement dû à la présence de billes de verre dans sa composition. Berry [BPM73] rapporte en effet un




(a) Position du doigt avant la trempe

(b) Ejection de l'échantillon

**Figure 5.8 :** *Fonctionnement du dispositif de trempe (schématique). a : axe, b : bras, c : doigt, d : échantillon.*

comportement similaire dans le cas d'alliages de titane lubrifiés avec des billes de verre. Notons que ce film interdit toute observation sur les surfaces extérieures de l'échantillon.

Le coefficient de frottement de ce lubrifiant utilisé dans un contact Zircaloy-4/TZM a été évalué par le biais d'essais de compression d'anneaux, selon la technique proposée par Male et Cockcroft [MC64]. Le principe consiste à déformer uniaxialement des anneaux de dimensions normalisées, puis à calculer la variation de diamètre interne, exprimée par

$$\Delta D = \frac{D_{i1} - D_{i0}}{D_{i0}} \tag{5.1}$$

avec

- $\Delta D$ : variation de diamètre interne
- $D_{i0}$ : diamètre initial interne
- $D_{i1}$ : diamètre final interne

La valeur de $\Delta D$ permet de déterminer le coefficient de frottement de Tresca grâce à un abaque. Des anneaux en Zircaloy-4 de diamètre interne 9,5 mm, de diamètre externe 19 mm et de hauteur 6,35 mm ont été utilisés. Les essais ont été effectués sous atmosphère inerte, avec des tas de compression en TZM, entre 650 et 800 °C à une vitesse de déformation de 0,1 $s^{-1}$. Les résultats sont résumés dans le tableau 5.1. Dans les conditions qui nous intéressent, entre 750 et 800 °C, le coefficient de frottement a été pris égal à 0,11.

A notre connaissance, ce dispositif à parois mobiles est le premier permettant de tester des matériaux en compression plane bi-encastrée à plus de 600 °C. On trouve certes dans la littérature un exemple de compression plane bi-encastrée à 750 °C sur du titane polycristallin [BA02], mais les conditions expérimentales ne sont pas décrites, et les courbes contrainte-déformation sont manifestement affectées par les frottements. Ce dispositif à parois mobiles diffère notablement

| Température (°C) | Déformation | $\Delta D$ | $\overline{m}$ |
|---|---|---|---|
| 650 | 0,38 | 0,08 | 0,18 |
| 700 | 0,41 | 0,05 | 0,13 |
| 750 | 0,40 | 0,04 | 0,13 |
| 775 | 0,41 | 0,02 | 0,11 |
| 800 | 0,36 | 0,03 | 0,12 |

**Tableau 5.1 :** *Coefficients de frottement $\overline{m}$ entre le Zircaloy-4, le TZM et le lubrifiant industriel CEZUS, déterminés par compression d'anneaux à $\dot{\epsilon} = 0,1\ s^{-1}$.*

| Température (°C)/ Vitesse de déformation | 650 | 700 | 750 | 780 |
|---|---|---|---|---|
| 0,01 $s^{-1}$ | 167 | 120 | 90 | 77 |
| 0,1 $s^{-1}$ | 205 | 178 | 135 | 113 |
| 1 $s^{-1}$ | 238 | | | 155 |

**Tableau 5.2 :** *Conditions d'essai de compression uniaxiale et contraintes associées en régime stationnaires (MPa).*

en son principe de ceux développés jusqu'alors. L'exploitation des résultats, en particulier au regard de la rhéologie, doit donc faire l'objet d'une étude à part entière. Celle-ci est présentée en annexe E. Sont décrits des essais comparés avec le montage à parois fixes et le nouveau montage, ainsi qu'une analyse par éléments finis validant la procédure d'extraction des valeurs de contrainte-déformation à partir des données brutes de force-déplacement.

## 5.3 Rhéologie

Nous avons comparé les propriétés rhéologiques du Zircaloy-4 à l'état initial trempé bêta déformé à haute température en compression uniaxiale et compression plane bi-encastrée. Les températures d'essai sont comprises entre 650 et 780 °C. En compression uniaxiale, les vitesses de déformation sont comprises entre 0,01 et 1 $s^{-1}$. Les échantillons présentent à l'état initial une microstructure majoritairement en platelets parallèles. Le tableau 5.2 résume les conditions d'essai et indique les contraintes mesurées en régime stationnaire. Les courbes correspondantes sont présentées figure 5.9.

Sur la base des essais de compression uniaxiale ont été estimés les paramètres rhéologiques du matériau, la sensibilité à la vitesse de déformation $m$ et l'énergie d'activation apparente $Q$. Ces grandeurs sont exprimées par

$$m = \frac{\partial \ln \sigma}{\partial \ln \dot{\epsilon}} \tag{5.2}$$

et

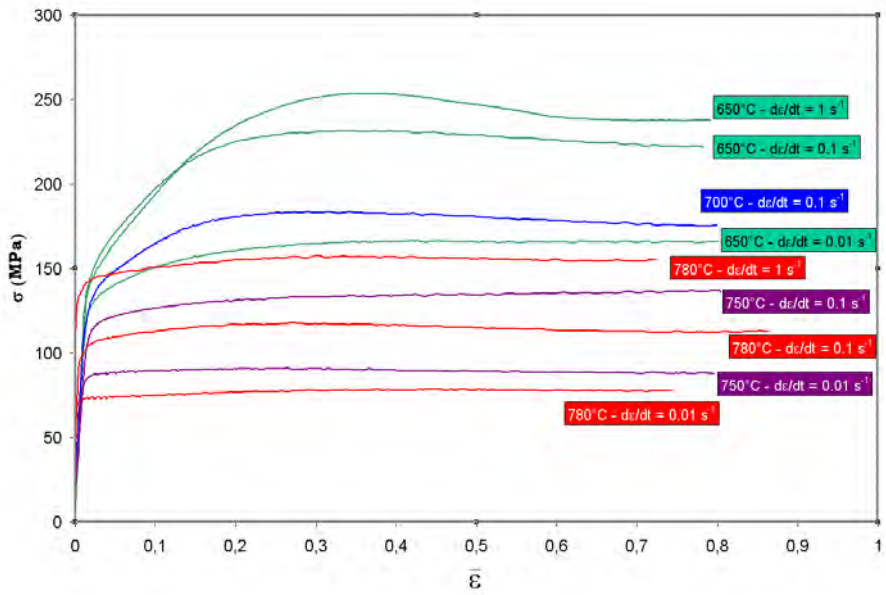



**Figure 5.9 :** *Courbes contrainte-déformation en compression uniaxiale.*

$$Q = \frac{R}{m}\frac{\partial \ln \sigma}{\partial (1/T)} \tag{5.3}$$

avec

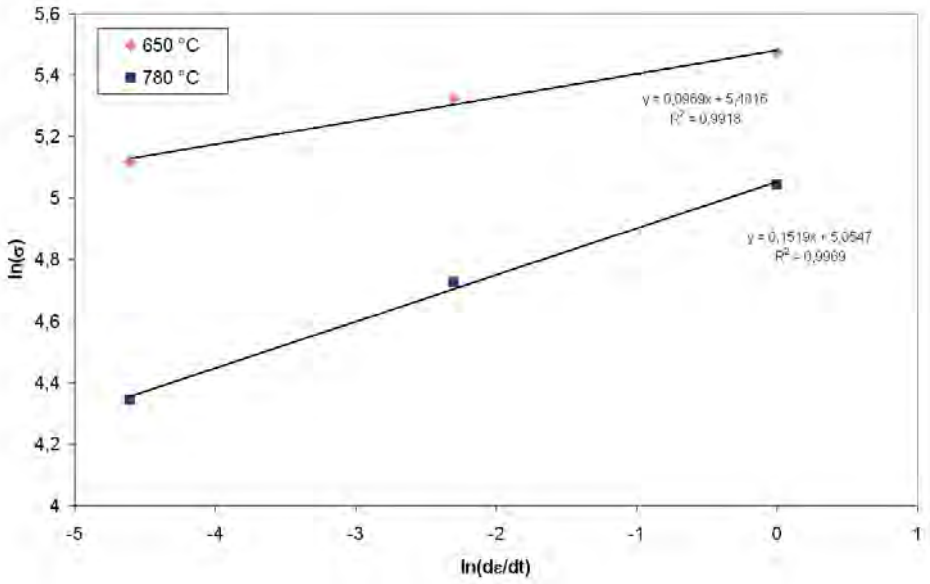
- $m$ : sensibilité à la vitesse de déformation
- $\sigma$ : contrainte d'écoulement
- $\dot{\bar{\epsilon}}$ : vitesse de déformation équivalente
- $Q$ : énergie d'activation apparente
- $R$ : constante des gaz parfaits
- $T$ : température

Le coefficient de sensibilité à la vitesse de déformation a été calculé à 650 et 780 °C, l'énergie d'activation apparente à 0,01 et 0,1 $s^{-1}$. Les valeurs de contrainte en régime stationnaire reportées dans le tableau 5.2 ont été utilisées. Les courbes correspondantes sont présentées figures 5.10(a) et (b).

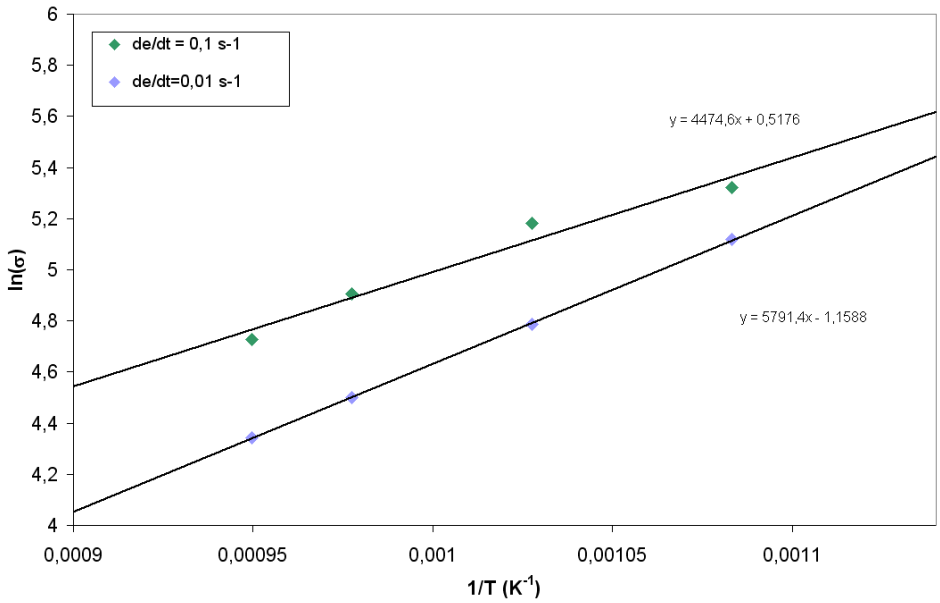
On a :

- $m = 0,097$ à 650 °C,
- $m = 0,15$ à 780 °C,
- $Q = 300$ kJ/mol pour $\dot{\bar{\epsilon}} = 0,1$ $s^{-1}$,
- $Q = 334$ kJ/mol pour $\dot{\bar{\epsilon}} = 0,01$ $s^{-1}$.

La sensibilité à la vitesse de déformation augmente avec la température, ce qui est en accord avec le comportement de la plupart des alliages métalliques. Le rapport $R/m$ varie peu dans la




(a) Sensibilité à la vitesse




(b) Energie d'activation

**Figure 5.10 :** *Détermination du coefficient de sensibilité à la vitesse de déformation et de l'énergie d'activation apparente.*

gamme de vitesse de déformation considérée. La valeur de $m$ a été fixée à 0,13 pour le calcul de l'énergie d'activation. La valeur de l'énergie d'activation apparente est en accord avec d'autres travaux sur le Zircaloy-4 et le Zircaloy-2. Elle est légèrement plus élevée que l'énergie d'activation d'auto-diffusion, de l'ordre de 280 kJ/mol. La même observation est valable pour les alliages de titane [CBPA92]. Cette observation suggère que les mécanismes de déformation à l'oeuvre sont thermiquement activés et principalement contrôlés par le glissement et la montée des dislocations.

Il faut noter l'absence d'adoucissement sur la plupart des courbes. Seuls les essais à 650 °C présentent un stade d'écrouissage suivi d'une légère diminution de la contrainte. Ce comportement contraste avec celui généralement constaté dans les alliages de titane et de zirconium à microstructure lamellaire déformés en domaine alpha [Cha04]. L'origine de l'adoucissement est une question à laquelle n'a été apportée aucune réponse définitive. Dans le TA6V à microstructure lamellaire, Semiatin et Bieler [SB01] recensent quatre causes possibles de l'adoucissement : la formation d'une sous-structure de dislocations, la recristallisation dynamique, l'évolution de la texture, et le microflambage des lamelles. Ce dernier mécanisme est proposé comme cause principale, mais non unique. En effet, le TA6V et le Zircaloy-4 avec une microstructure équiaxe présentent aussi un stade d'adoucissement, quoique moins marqué. Ainsi que nous le montrons dans la partie suivante, le phénomène de microflambage est présent dans notre matériau. Par ailleurs, nous avons déjà noté que l'alliage ne présentait pas de texture prononcée. Cela est dû en partie à la taille moyenne relativement élevée des colonies alpha. L'absence d'adoucissement dans notre matériau ne peut donc être imputée à un facteur unique.

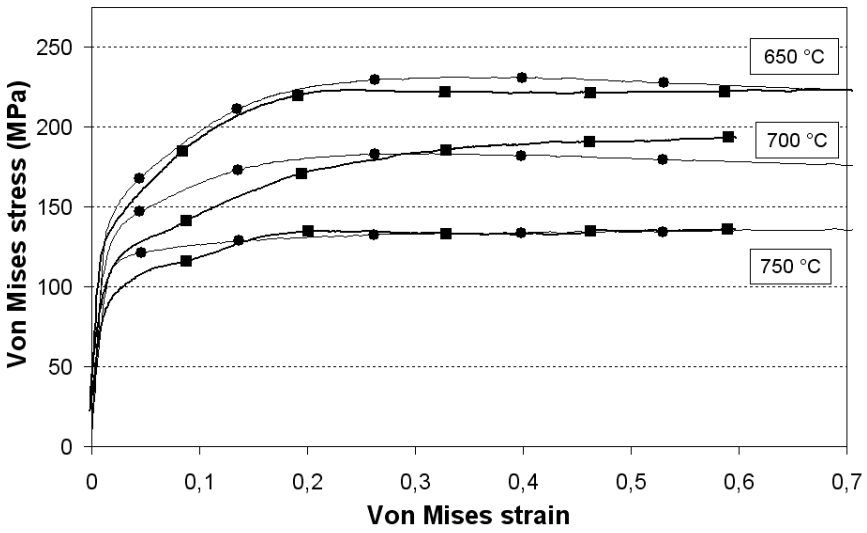



**Figure 5.11 :** *Comparaison des courbes contrainte-déformation en compressions plane encastrée (carrés) et uniaxiale (ronds).*

Les résultats de compression uniaxiale sont comparés sur la figure 5.11 à ceux obtenus avec

le même matériau en compression plane encastrée. Les régimes transitoires montrent quelques différences, qui trouvent leur explication dans le dimensionnement des parois. Ainsi qu'il a été mentionné plus haut, celles-ci sont en effet légèrement moins larges que les rainures. La largeur de l'échantillon est donc inférieure à l'écartement entre les parois et le début de la déformation s'accompagne d'une adaptation de l'échantillon, négligée par la méthode d'exploitation des résultats. Les régimes stationnaires, en revanche, sont très proches, en particulier à 750 °C.

Ces résultats indiquent une certaine insensibilité du matériau au chemin de déformation lorsque celui-ci inclut principalement des contraintes de compression. A contrario, Chauvy [Cha04], dans une étude comparée en compression uniaxiale et torsion du Zircaloy-4, mesure des niveaux de contraintes inférieurs de l'ordre 30 % dans le cas de la torsion. D'un point de vue macroscopique, le matériau est donc sensible au type de contrainte principale – cisaillement ou compression.

## 5.4 Déformation de la microstructure

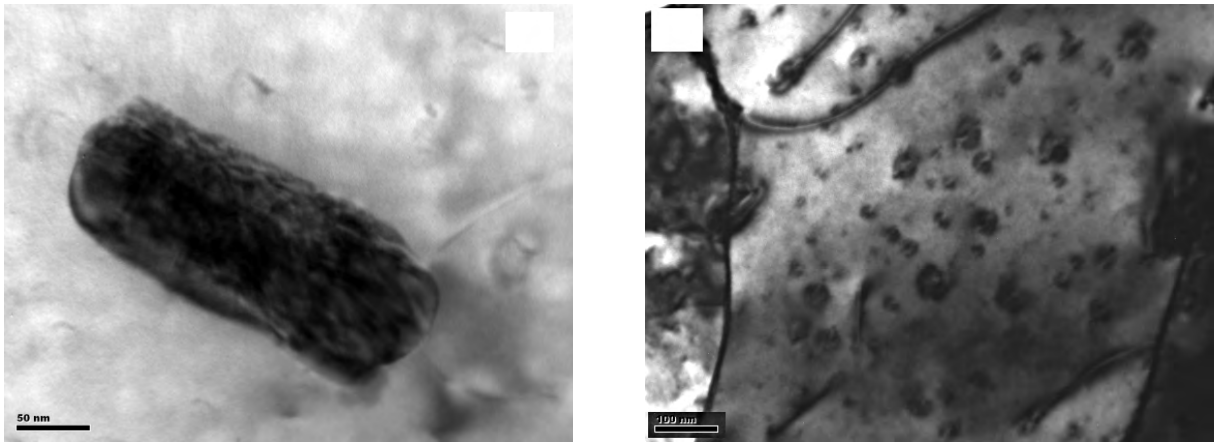
### 5.4.1 Observations générales

Dans l'ensemble, les observations sur des échantillons pleins, découpés après essai, ont été effectuées en compression uniaxiale et plane à des taux de déformation équivalente compris entre 0,50 et 0,80. Ces valeurs placent le matériau dans un état de transformation intermédiaire caractérisé par la coexistence de colonies peu déformées et de zones de recristallisation localisée. Le caractère lamellaire de la microstructure est globalement conservé. En certains endroits cependant, les lamelles ne sont plus discernables et se sont clairement divisées en cristallites. D'une façon générale, ces zones de recristallisation sont plus diffuses et réparties de manière plus homogène dans les échantillons déformés à haute température. Toutes choses égales par ailleurs, les échantillons déformés en compression plane présentent une microstructure plus fragmentée que ceux déformés en compression uniaxiale.

Deux types de précipités intermétalliques peuvent être observés (figure 5.12 [Pau06]). Les premiers ont des dimensions de l'ordre de plusieurs centaines de nanomètres et sont localisés entre les lamelles. Les seconds sont plus petits (de l'ordre de la cinquantaine de nanomètres) et sont distribués de manière homogène à l'intérieur des cristallites. Une partie des précipités initialement présents a donc été dissoute et redistribuée.

Les observations sur demi-échantillons ont toutes été effectuées à 750 °C, pour des taux de déformation équivalente de l'ordre de 0,10 à 0,20. Dans la majorité des cas, la vitesse de déformation équivalente vaut 0,1 $s^{-1}$. Le matériau est alors en début de déformation, stade caractérisé par un réarrangement des colonies. Les mouvements mutuels de celles-ci produisent des zones de cisaillement localisées. Les orientations cristallines évoluent peu pour ces valeurs de déformation et l'apect lamellaire n'est pas modifié.

Il existe entre les échantillons découpés après essai et les demi-échantillons de compression




(a) Gros précipité (b) Petits précipités

**Figure 5.12 :** *Précipités intermétalliques dans un échantillon déformé en compression plane à 750 ℃,* $\overline{\epsilon} = 0,80$*,* $\dot{\overline{\epsilon}} = 0,01\ s^{-1}$ *[Pau06].*

plane un intervalle de déformation non couvert, au cours duquel les hétérogénéités générées en début de déformation évoluent et se convertissent en zones de recristallisation préférentielle. Si l'évolution d'une même zone jusqu'à des taux de déformation élevés n'a pu être réalisée, les observations partielles permettent néanmoins de dégager des tendances générales sur la nature des zones de déformation localisée et sur leur rôle quant aux processus de recristallisation dynamique.

Les caractérisations par microscopie électronique en transmission sur des échantillons déformés en compression plane et uniaxiale à 650 et 750 ℃ [Pau06] mettent en évidence la présence de dislocations de type <a> et <c+a>. Les systèmes de glissement prismatique et /ou basal et pyramidaux sont donc activés. Les dislocations forment des enchevêtrements plus diffus à 750 qu'à 650 ℃. Il apparaît par ailleurs que certaines sont épinglées par les précipités intermétalliques (zones entourées sur la figure 5.13).

Nous proposons un classement de ces hétérogénéités basé sur leur aspect, leurs propriétés cristallographiques, ainsi que leurs dimensions caractéristiques. Nos observations ont principalement porté sur les microstructures en platelets parallèles, pour lesquelles nous présumons un comportement plus reproductible que dans les microstructures en vannerie. Nous distinguons les cisaillements entre colonies, la fragmentation des colonies en blocs, le microflambage, le maclage et les bandes de cisaillement. Il est difficile de proposer des domaines d'activation – exprimés par exemple en termes de température, taux et vitesse de déformation – pour ces différentes hétérogénéités. La plupart sont observées simultanément et une étude statistique est pour l'instant hors de portée. Qualitativement, il est cependant certain qu'un cisaillement entre colonies voisines est activé dès les premiers stades de la déformation. Le maclage est observé à différents stades à partir du début de la déformation. Quant au microflambage, à la fragmentation des colonies et aux bandes de cisaillement, ils semblent apparaître pour des valeurs plus élevées, de

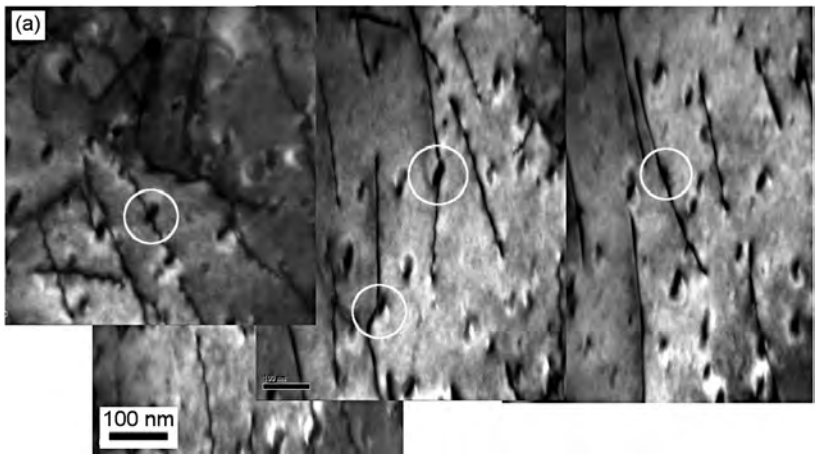



**Figure 5.13 :** *Epinglage de dislocations par des précipités intermétalliques dans un échantillon déformé en compression plane à 750 °C ($\dot{\bar{\epsilon}} = 0,01\ s^{-1}$ et $\bar{\epsilon} = 0,50$) [Pau06].*

l'ordre de 0,5.

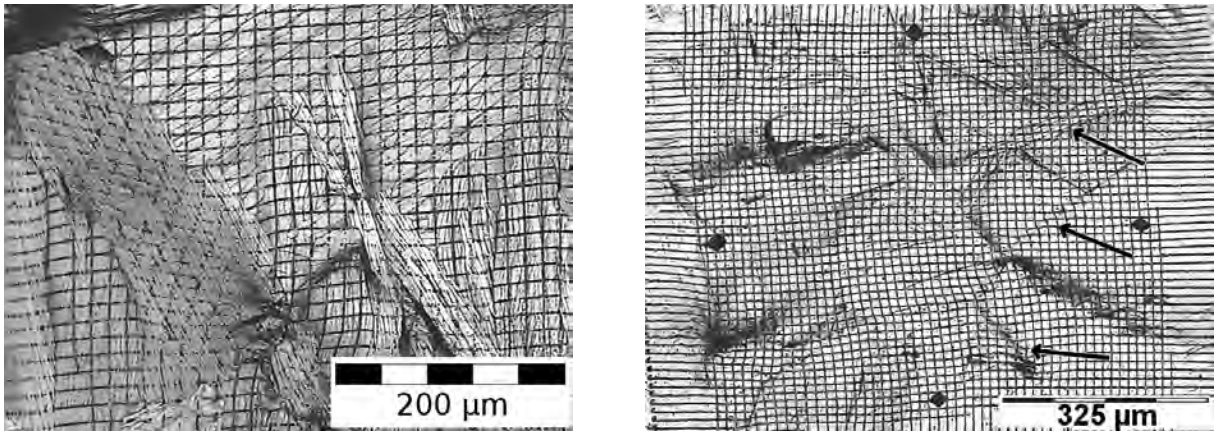
Chacune des cinq sections suivantes est consacrée à un type d'hétérogénéité. La mise en évidence du maclage est présentée avec quelque détail dans la mesure où son observation à haute température est en contradiction avec la majorité des travaux rapportés dans la littérature. L'influence de ces différentes hétérogénéités sur la transformation de la microstructure est discutée en sixième partie.

### 5.4.2 Cisaillements inter- et intra-colonies

Ainsi que nous l'avons précisé, les essais sur des demi-échantillons sont adaptés à la mise en évidence de l'apparition d'hétérogénéités aux premiers stades de la mise en forme du matériau. L'usage de microgrilles permet ainsi de visualiser des zones de cisaillement localisées après quelques pourcent de déformation équivalente. Les figures 5.14(a) et 5.14(b) en donnent un aperçu. La figure 5.14(a) montre un détail de microgrille après déformation de 0,14, la figure 5.14(b) montre une microgrille complète après une déformation de 0,08. Une colonie fortement cisaillée par rapport à ses voisines est visible sur la première figure. Sur la seconde figure sont repérées plusieurs zones de cisaillement intense. Celles-ci sont localisées entre des colonies de grande taille, qui, elles, sont assez peu déformées. Un exemple similaire est visible dans la partie inférieure de la figure 5.4(b) présentée précédemment.

Dans les limites de résolution du grandissement utilisé, c'est-à-dire à l'échelle de quelques micromètres, et compte tenu de l'épaisseur des barreaux des microgrilles, ceux-ci semblent rester continus après déformation. Il est cependant probable qu'une observation plus fine, comme celle présentée figure 1.28, montrerait des zones de glissement intense plus localisées.

Le début de la déformation s'accompagne donc d'un réarrangement mutuel des colonies. Les




(a) $\overline{\epsilon} = 0,14$ (b) $\overline{\epsilon} = 0,08$

**Figure 5.14 :** *Cisaillements localisés dans des demi-échantillons faiblement déformés.*

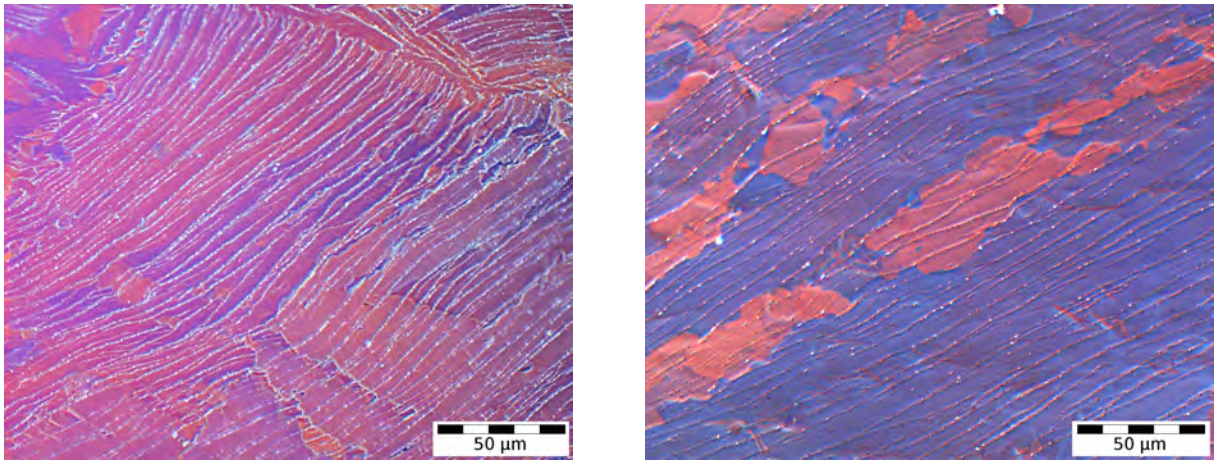
cisaillements mis en oeuvre sont concentrés dans des zones peu larges, étendues sur plusieurs centaines de micromètres. Le critère de sensibilité à ce comportement n'est pas clairement établi. Il peut s'agir de colonies convenablement orientées du point de vue de l'activité des systèmes de glissement, mais aussi de colonies de taille réduite dont la déformation est imposée par des colonies voisines de grande taille. Nous verrons plus loin que cette activité de cisaillement localisé n'est pas sans conséquence sur la localisation de la recristallisation.

### 5.4.3 Fragmentation des colonies

Un aspect important de la microstructure lamellaire déformée est la décorrélation apparente entre l'alignement des précipités intermétalliques et l'orientation cristalline locale. Cette particularité, sur laquelle nous reviendrons en conclusion, a tendance à masquer un comportement général des grandes colonies que l'on peut décrire comme la fragmentation de celles-ci en blocs fortement désorientés. Les colonies affectées ont des tailles de l'ordre de plusieurs centaines de micromètres, et les blocs de plusieurs dizaines de micromètres.

Deux exemples sont présentés figure 5.15. Il s'agit de deux échantillons déformés en compression uniaxiale à 700 °C ($\dot{\overline{\epsilon}} = 0,01$ s$^{-1}$, $\overline{\epsilon} = 0,62$) et 780 °C ($\dot{\overline{\epsilon}} = 0,1$ s$^{-1}$, $\overline{\epsilon} = 0,80$). Sur ces micrographies, les précipités délimitant les lamelles forment des couches parallèles et continues à l'échelle micrométrique. Dans les deux cas, la zone observée correspond donc à une seule colonie. L'éclairage en lumière polarisée met cependant en évidence plusieurs zones d'orientations cristallines différentes.

Les analyses EBSD confirment que les blocs de grande taille présents au sein de diverses colonies déformées ont généralement des orientations très différentes. Deux exemples sont présentés figures 5.16 et 5.17. Il s'agit dans les deux cas d'un échantillon déformé en compression uniaxiale




(a) 700 °C, $\dot{\bar{\epsilon}} = 0,01\ \mathrm{s}^{-1}$, $\bar{\epsilon} = 0,62$ (b) 780 °C, $\dot{\bar{\epsilon}} = 0,1\ \mathrm{s}^{-1}$, $\bar{\epsilon} = 0,80$

**Figure 5.15 :** *Illustration de la coexistence de plusieurs zones d'orientations cristallines distinctes dans des colonies déformées (compression uniaxiale, direction verticale).*

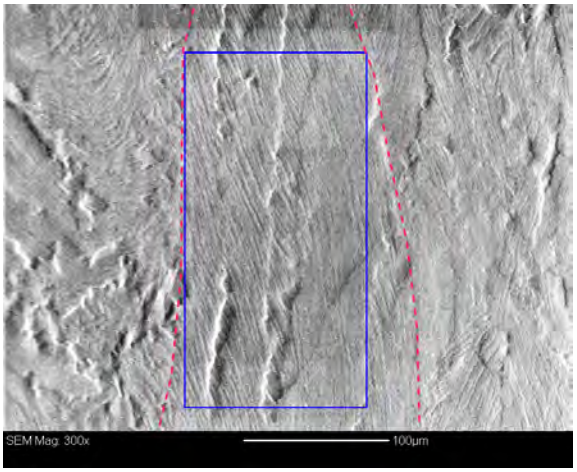
à 750 °C, $\dot{\bar{\epsilon}} = 0,01\ \mathrm{s}^{-1}$ et $\bar{\epsilon} = 0,80$.

Sur la figure 5.16, les tirets délimitent une colonie, identifiable à partir de l'orientation moyenne des couches de précipités qui la parcourent. Celles-ci sont courbées de manière relativement homogène. L'orientation cristalline de la colonie, en revanche, n'est pas continue. La cartographie EBSD, figure 5.16(b), montre qu'elle est divisée en plusieurs zones d'orientations cristallines nettement différentes, notées (1), (2) et (3). En raison de la déformation imposée, ces orientations sont quelque peu diffuses et étalées autour d'une orientation moyenne.

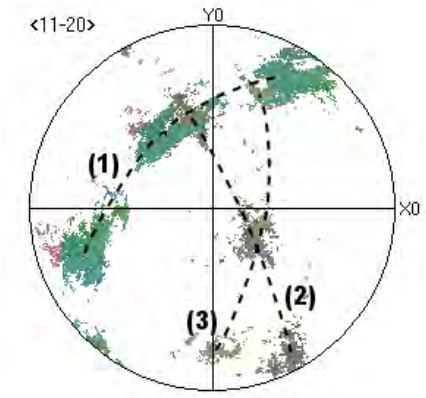
L'origine et l'évolution de cette fragmentation, qu'il importe de distinguer de la fragmentation des lamelles en cristallites équiaxes présentée au chapitre 1, n'ont pu être déterminées faute d'observations concluantes sur des demi-échantillons. Les cartographies en contraste de bandes permettent cependant d'émettre l'hypothèse que ces zones se fragmentent à nouveau au cours de la déformation. Ainsi, sur la figure 5.16(d), il est visible que la zone (2) présente une densité de défauts particulièrement hétérogène, en contraste avec les deux autres. Ces concentrations de défauts indiquent la présence de parois de dislocations qui préfigurent sans doute la fragmentation de la zone en unités plus petites. Notons que les couches de précipités semblent jouer un rôle négligeable dans ce processus. Les mêmes observations s'appliquent au deuxième exemple présenté figure 5.17.

### 5.4.4 Microflambage

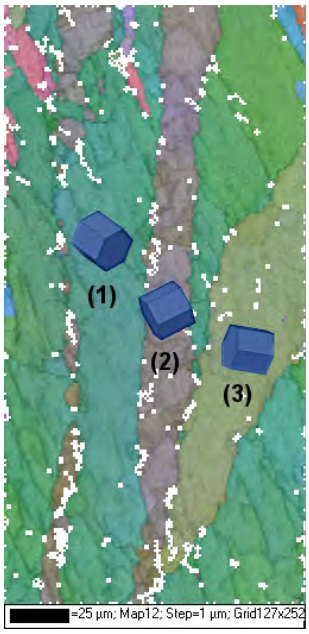
On désigne par microflambage la distorsion des lamelles selon des motifs similaires à ceux observés lors du flambage de poutres ou de tôles. L'analogie avec le flambage de couches géologiques a été soulignée au chapitre 1 ; en sus d'une ressemblance visuelle, elle s'appuie sur la



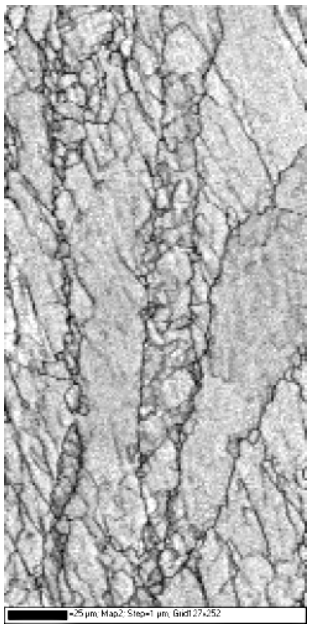

(a) Micrographie




(b) Pôles <a>

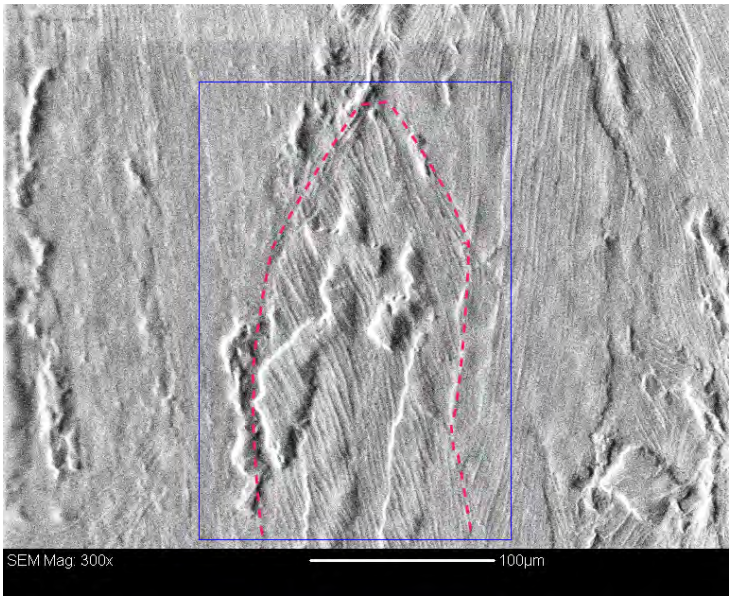



(c) Orientations cristallines

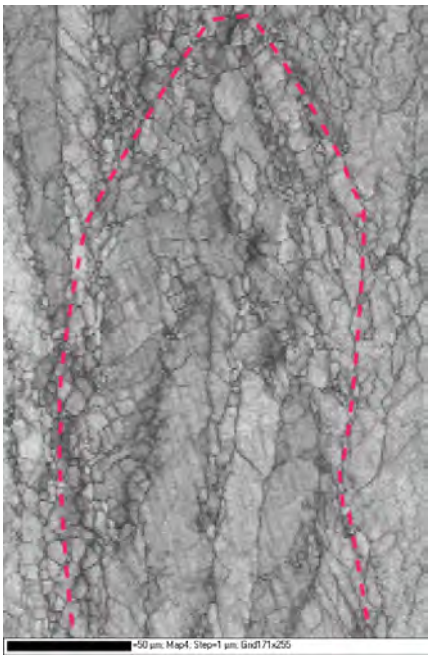


(d) Contraste de bandes

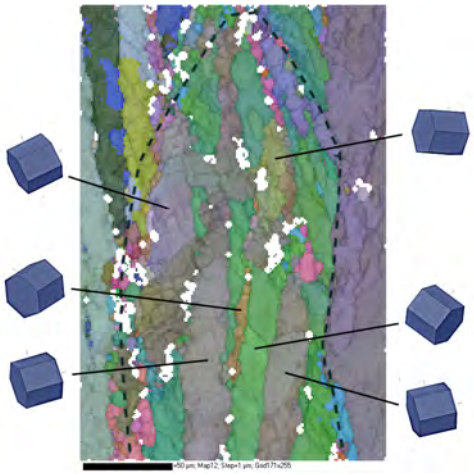
**Figure 5.16 :** *Analyse EBSD de la fragmentation d'une colonie en blocs d'orientations distinctes. Echantillon déformé en compression uniaxiale à 750 ℃, $\dot{\bar{\epsilon}} = 0,01\ s^{-1}$ et $\bar{\epsilon} = 0,80$ (direction de compression horizontale).*




(a) Micrographie



(b) Contraste de bandes

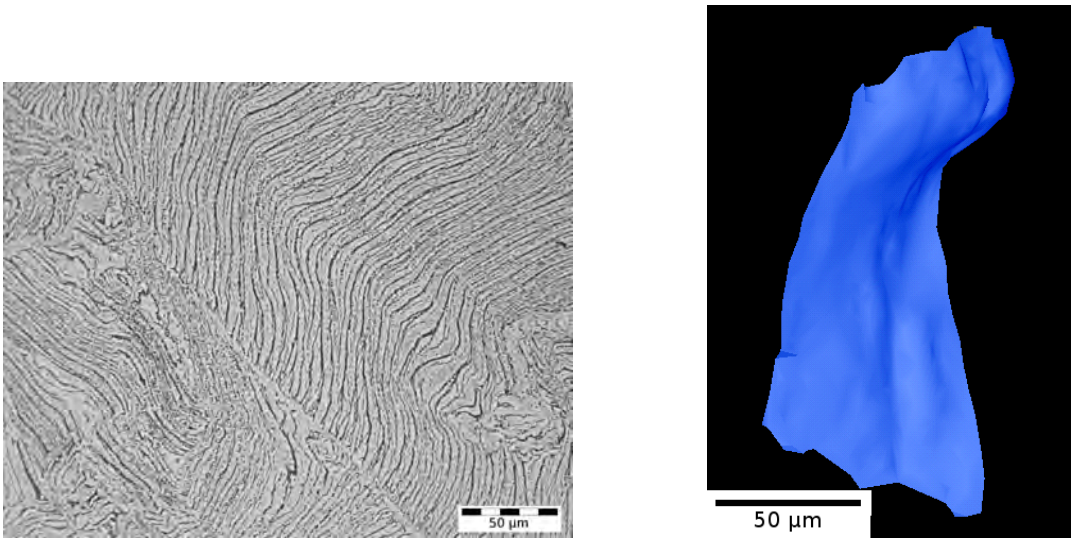


(c) Orientations cristallines

**Figure 5.17 :** *Analyse EBSD de la fragmentation d'une colonie en blocs d'orientations distinctes. Mêmes conditions que l'échantillon présenté figure 5.16.*

possibilité des couches de coulisser les unes par rapport aux autres en réponse à la déformation imposée. Dans la discussion qui suit nous utiliserons les termes géologiques de charnière et de flancs pour décrire les zones flambées. Ils désignent, respectivement, la zone de pliage maximal et les segments relativement rectilignes situés de part et d'autre de celle-ci.

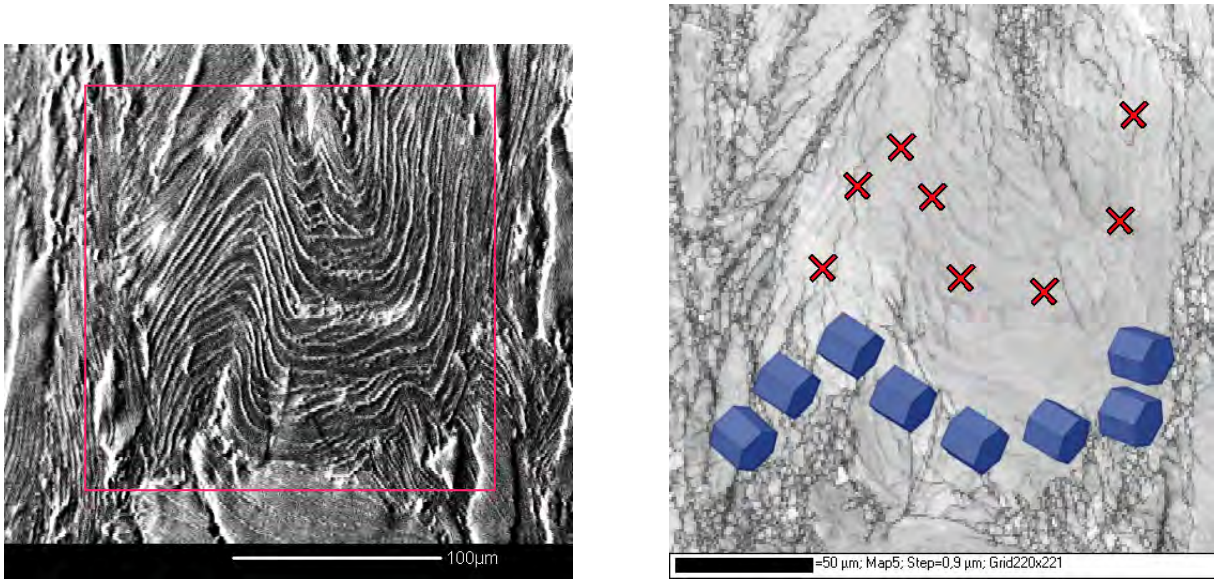
Quelles que soient la température et la vitesse de déformation de nombreuses colonies sont en état de microflambage. Les orientations cristallines de ces colonies par rapport à la direction de compression sont variables. Des observations effectuées perpendiculairement à l'axe de compression montrent qu'il s'agit d'un phénomène tridimensionnel : les lamelles présentent deux modes distincts de flambage. Les figures 5.18(a) et 5.18(b) en montrent deux exemples. La première figure présente la microstructure d'un échantillon déformé en compression uniaxiale découpé à mi-hauteur perpendiculairement à l'axe de compression. Des motifs semblables à ceux observés dans un plan contenant l'axe de compression sont observés. La figure 5.18(b) présente la reconstruction tridimensionnelle d'une zone de microflambage, observée en microtomographie dans un échantillon de TA6V déformé en compression uniaxiale à 700 °C, $\dot{\bar{\epsilon}} = 0,1\ \mathrm{s}^{-1}$ et $\bar{\epsilon} = 0,54$. L'axe de compression est vertical. En dépit des difficultés relatives à la distribution irrégulière de la phase bêta, une lamelle individuelle en état de microflambage a pu être segmentée par relevé de points sur des coupes successives. La profondeur couverte vaut 120 µm. Dans cet exemple, il est manifeste que les lamelles apparaissent plus ou moins déformées en fonction de la section d'observation.




(a) (b)

**Figure 5.18 :** *Mise en évidence du caractère tridimensionnel du microflambage dans deux microstructures lamellaires déformées en compression uniaxiale. (a) : micrographie d'un échantillon de Zircaloy-4 (direction de compression perpendiculaire au plan de l'image), (b) : reconstruction de la courbure d'une lamelle individuelle dans un échantillon de TA6V caractérisé en microtomographie (direction de compression verticale).*

Un aspect intéressant et quelque peu contre-intuitif est l'absence de relation entre la forme distordue des lamelles et l'orientation cristallographique locale. Cela est particulièrement visible sur la figure 5.19. Un profil d'orientations a été réalisé le long d'une lamelle en état de micro-




(a) Micrographie (b) Contraste de bandes

**Figure 5.19 :** *Analyse EBSD de l'orientation cristalline le long d'une lamelle microflambée (compression uniaxiale à 700 °C, $\dot{\bar{\epsilon}} = 0,01\ s^{-1}$ et $\bar{\epsilon} = 0,62$, direction de compression horizontale).*

flambage. Il apparaît que l'orientation de la maille hexagonale est peu ou prou invariante le long de la lamelle. La charnière, en particulier, ne se distingue aucunement des flancs et ne comporte pas de cristallites.

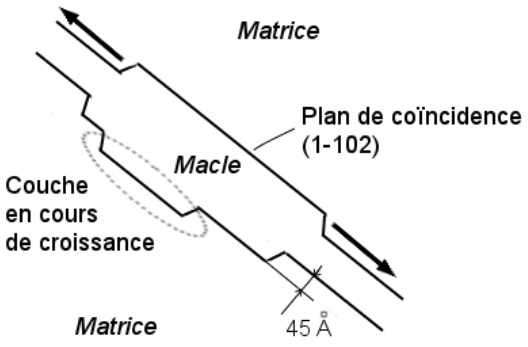
Cette observation, systématique pour toutes les zones de microflambage, contraste avec les résultats de Bieler et Semiatin [BS02] sur du TA6V déformé à 815 °C. Ces travaux montrent que l'orientation cristalline locale suit celle de la lamelle de manière assez proche. La principale différence entre les deux matériaux est la présence de phase bêta à la température de déformation dans le TA6V. Cette phase étant plus ductile que la phase alpha, il est probable qu'elle permette aux lamelles de se déformer plus librement que dans le Zircaloy-4, où les lamelles restent en contact au cours de la déformation. Notons que ces résultats invalident l'hypothèse selon laquelle le mécanisme de "pliage en genou", évoqué au chapitre 1, peut être responsable du microflambage.

### 5.4.5 Maclage

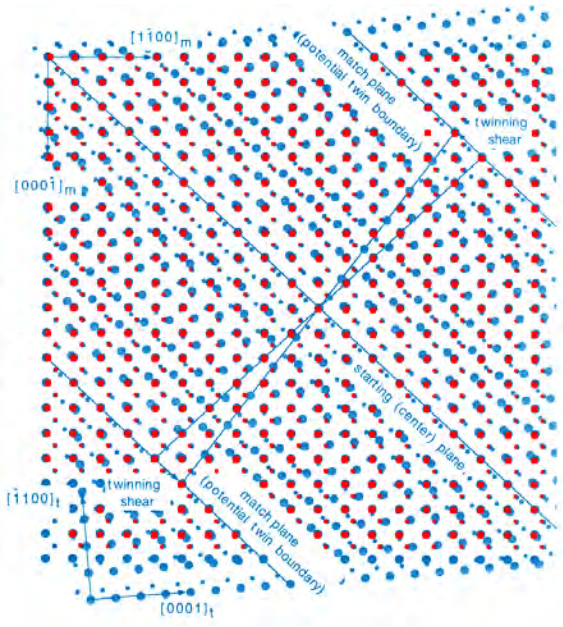
La question du maclage à haute température dans le Zircaloy-4 est sujette à discussion. Dans l'ensemble, les travaux rapportés dans la littérature circonscrivent son activité aux basses températures. Ainsi que nous l'avons mentionné dans l'étude bibliographique, Fundenberger a

cependant observé des macles $(10\bar{1}2)$ jusqu'à 350 °C et Chauvy jusqu'à 550 °C. Les essais que nous avons effectués nous amènent à faire l'hypothèse que le maclage $(10\bar{1}2)$ est actif jusqu'à 750 °C.

Comme cela a été présenté dans le chapitre 1 (figure 1.18), l'identification des macles s'appuie sur la mesure de la désorientation cristalline entre la zone présumée maclée, en général de forme oblongue, et la matrice, ainsi que sur la détermination de la trace du plan de coïncidence $K_1$ – cette trace devant correspondre à celle de la macle. Dans le Zircaloy-4 à microstructure lamellaire, les macles ne semblent pas dévier l'alignement des precipités intermétalliques, ainsi que cela est visible sur la figure 3.15. Le mécanisme de croissance de macles dans le titane et le zirconium proposé par Song et Gray [SG95] offre une explication simple à ce phénomène. Dans ce modèle, les macles s'épaississent par extension latérale de couches au sein desquelles le matériau est en orientation maclée. Ces couches s'étendent à grande vitesse parallèlement au plan $K_1$ (figure 5.20(a)). L'interface entre la macle et la matrice est la plus cohérente possible, ce qui n'est pas réalisé pour tous les plans de la famille de $K_1$. Dans le cas des macles lenticulaires du zirconium, une coïncidence de sites de type $\Sigma 24$ est réalisée tous les 12 plans $(10\bar{1}2)$ (figure 5.20(b)). Cette condition impose aux couches une épaisseur minimale de 45,47 Å.




(a) Morphologie




(b) Positions atomiques des réseaux maclé (en bleu) et non maclé (en rouge)

**Figure 5.20 :** *Modèle de développement d'une macle lenticulaire par extension de couches successives, représenté dans le plan* $(1\bar{1}20)$ *perpendiculaire au plan de maclage* $(10\bar{1}2)$ *(d'après [SG95]).*

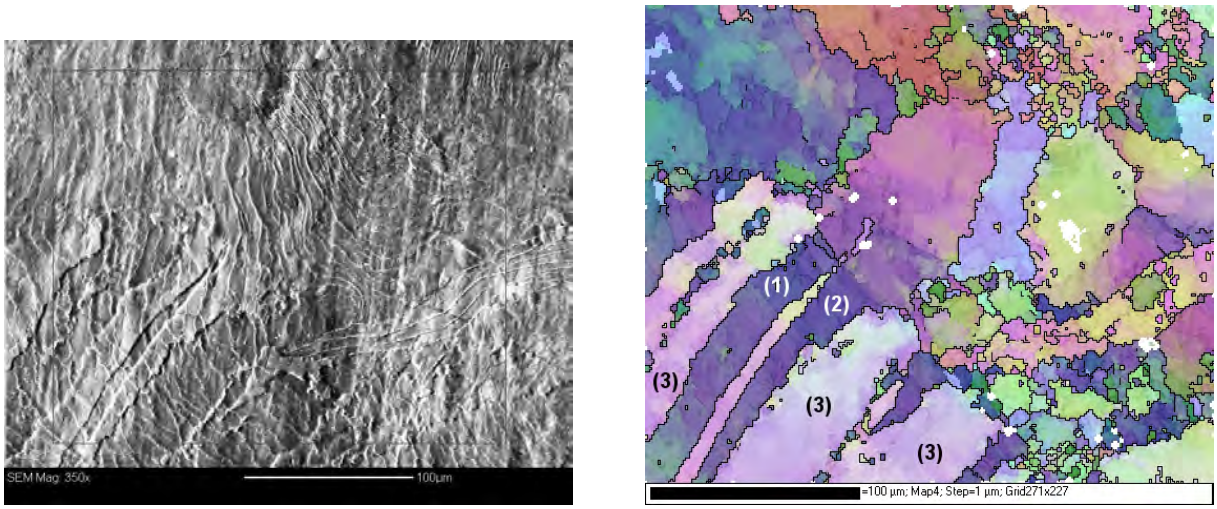
Si plusieurs couches peuvent croître simultanément, le volume de matière affectée reste néan-

moins très en deçà de la dimension de la plupart des précipités intermétalliques, qui est de l'ordre de plusieurs centaines de nanomètres. Il est donc raisonnable de supposer que ceux-ci ne sont pas déplacés par le passage des couches de maclage, ce qui explique que leur alignement reste inchangé.

Les éléments que nous venons de présenter – désorientation cristalline, plan $(10\bar{1}2)$ commun coïncidant avec la macle et la matrice, absence de déviation des précipités à l'échelle du micromètre – constituent un critère d'identification robuste qui nous a permis de conclure à l'activité du maclage à haute température, et ce, dès le début de la déformation. Les exemples qui suivent décrivent en détail quelques cas typiques.

### Caractérisations d'échantillons pleins

Les figures 5.21 et 5.23 présentent deux microstructures déformées en compression uniaxiale. Sur la figure 5.21, la direction de compression est perpendiculaire au plan de coupe. Cet échantillon a été déformé de 0,84. Deux bandes approximativement rectilignes notées (1) et (2) sont visibles en bas à gauche. La colonie où elles se trouvent est notée (3).

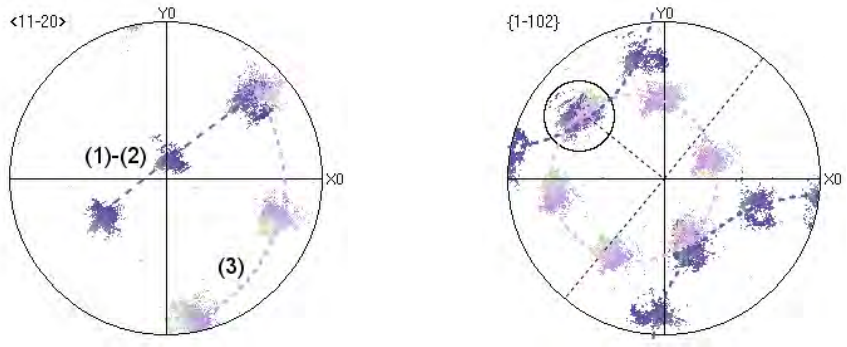



(a) Micrographie (b) Orientations cristallines

**Figure 5.21 :** *Identification de macles* $(10\bar{1}2)$ *notées (1) et (2) dans un échantillon déformé en compression uniaxiale de 0,84 à 750 °C et 0,01* $s^{-1}$ *(direction de compression perpendiculaire au plan de l'image).*

Dans la mesure où l'échantillon est relativement déformé, les orientations cristallines locales de ces éléments ne sont pas constantes, mais dispersées autour d'une orientation moyenne. Cela est visible sur les figures 5.22(a) et (b). Le critère d'identification des macles est vérifié, quoique de manière plus approximative que dans le matériau non déformé. Ainsi, un pôle $(10\bar{1}2)$ commun, marqué d'un cercle sur la figure 5.22(b), peut être identifié ; sa trace correspond bien à celle des

bandes (1) et (2). De même, la désorientation entre la matrice (3) et les bandes est de l'ordre de 80 à 90 °, selon les endroits où elle est mesurée. Ces éléments confirment qu'il s'agit de macles lenticulaires ayant continué à se déformer après leur formation.




(a) Axe de zone (b) Plan de maclage $K_1$

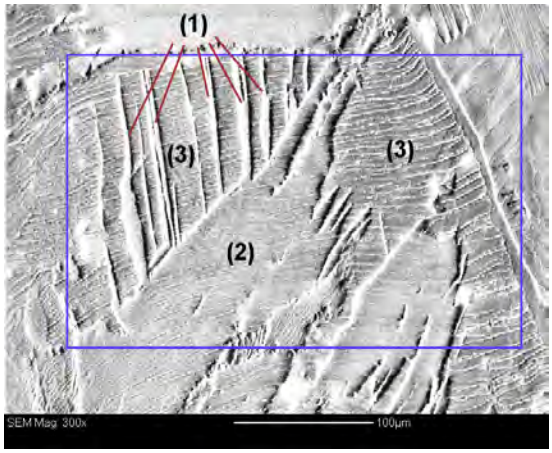
**Figure 5.22 :** *Figures de pôles des zones notées (1), (2) et (3) dans la figure 5.21 ; mise en évidence de l'axe de zone et de la trace du plan de maclage.*

Le deuxième échantillon (figure 5.23) a été comprimé de 0,62 à 700 ℃ et 0,01 $s^{-1}$. Afin de s'assurer de l'absence d'artefacts éventuels de préparation métallographique, celle-ci a été confiée à un spécialiste du centre de recherches de CEZUS. Dans cet exemple, deux variants de macles, notés (1) et (2), sont visibles. Ils sont désorientés entre eux de 5 à 10 ° et correspondent à des rotations de 85 ° dans des sens opposés autour d'un axe <a> commun avec la matrice. La macle (2) apparaît nettement plus étendue que la macle (1) en raison de la faible inclinaison du plan $K_1$ par rapport au plan de l'image. La macle est ainsi observée dans une orientation proche de sa plus grande dimension.

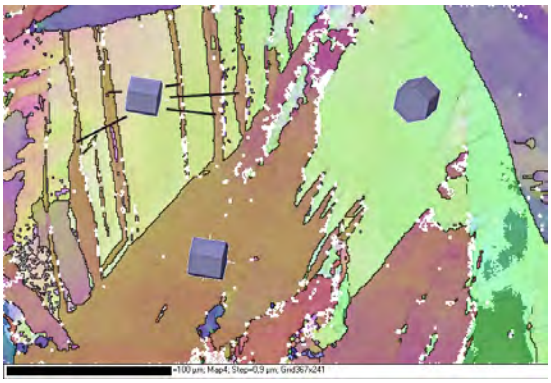
### Caractérisation de demi-échantillons

Ces deux exemples précédents suggèrent que le maclage est présent à haute température. L'exemple présenté figure 5.24 montre que les macles observées peuvent se développer à partir des macles présentes à l'état initial. La micrographie 5.24(a) a été réalisée sur un méplat pratiqué au bord d'un échantillon cylindrique de compression uniaxiale – il s'agit de la même expérience que celle réalisée pour mettre en évidence le cisaillement interlamellaire discuté au chapitre 1 (figure 1.28).

De fines macles sont visibles dans la colonie située à gauche. Après déformation à 750 ℃ ($\bar{\epsilon} = 0,32$, $\dot{\bar{\epsilon}} = 0,1\ s^{-1}$), le méplat a été légèrement poli puis électropoli afin d'ôter le relief et la couche d'oxyde. L'enlèvement de matière est estimé à 50 µm, aussi pouvons-nous considérer que nous observons la même microstructure à l'état déformé. La colonie présente des macles plus étendues, situées à l'emplacement des macles initiales. Il est donc raisonnable de supposer que

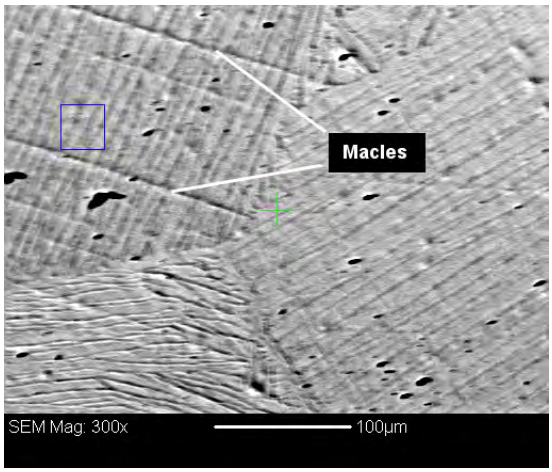



(a) Micrographie

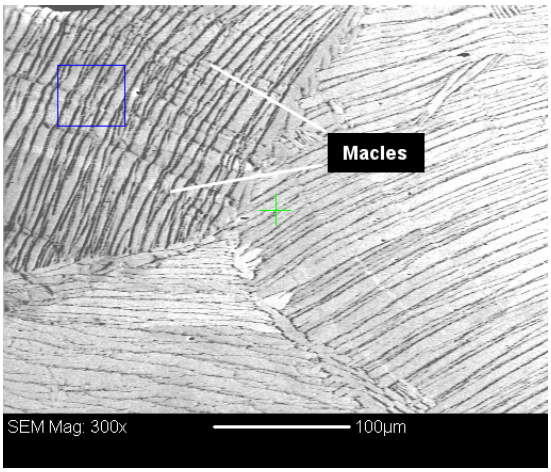


(b) Orientations cristallines

**Figure 5.23 :** *Identification de macles* $(10\bar{1}2)$ *dans un échantillon déformé en compression uniaxiale de 0,62 à 700 ℃ et 0,01* $s^{-1}$ *(direction de compression horizontale).*




(a) Etat initial

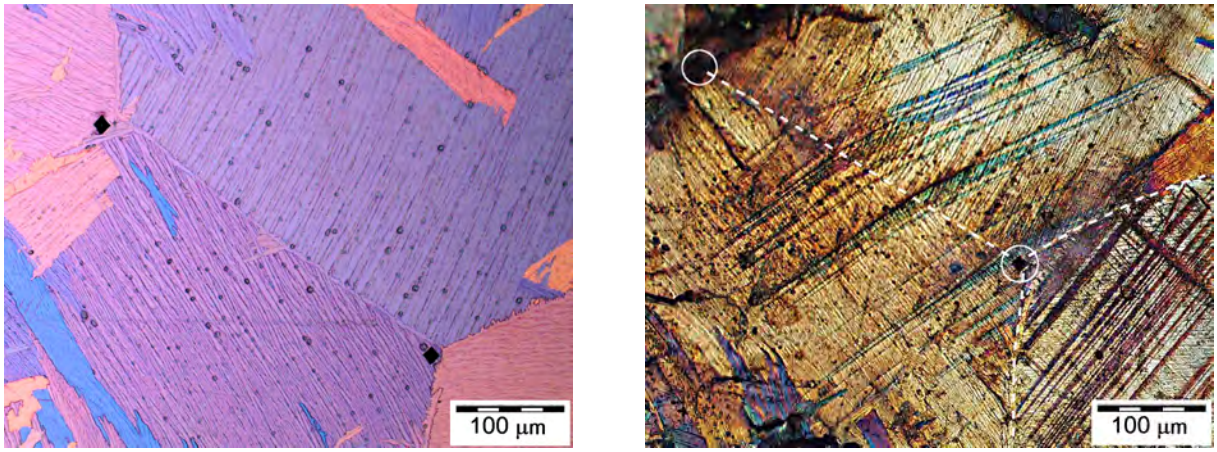



(b) $\bar{\epsilon} = 0,32$

**Figure 5.24 :** *Développement de macles dans un échantillon déformé en compression uniaxiale à 750 ℃* ($\bar{\epsilon} = 0,32$, $\dot{\bar{\epsilon}} = 0,1$ $s^{-1}$, *direction de compression verticale).*

celles-ci ont crû au cours de la déformation.

Les deux exemples qui suivent montrent que les macles peuvent apparaître dans des colonies initialement non maclées, ou plus exactement, dans des colonies ne présentant pas de macles de dimensions supérieures à la limite de résolution de la technique de caractérisation employée (de l'ordre du micromètre en optique et légèrement inférieure en micoscopie électronique).




(a) Etat initial (b) $\bar{\epsilon} = 0,05$

**Figure 5.25 :** *Apparition de macles dans un demi-échantillon à microstructure lamellaire déformé de 0,05 à 750 °C(direction de compression verticale). Les anciens joints de grains bêta après déformation sont repérés par des pointillés.*

La figure 5.25 présente une zone lamellaire observée avant et après déformation sur un demi-échantillon. Celui-ci a été comprimé de 0,05 à 750 °C et 0,1 $s^{-1}$. La surface après déformation est altérée par l'oxydation et le contact mécanique avec l'autre demi-échantillon [19]. Il est néanmoins manifeste que des macles sont apparues au cours de la déformation. Notons qu'il s'agit ici de colonies de grande taille, ce qui est un facteur favorable au maclage.

Afin de tester qualitativement l'importance de la taille de grain sur l'apparition des macles, il a été procédé à un essai avec un demi-échantillon présentant une microstructure équiaxe à gros grains. La matériau utilisé pour ce faire provient d'une barre à bouchons en Zircaloy-4 recristallisé (travaux de Chauvy [Cha04]). Afin de favoriser l'apparition de gros grains, l'échantillon a été porté 5 heures à 800 °C sous ampoule de quartz. Les grains alpha sont alors en régime de croissance anormale, et la microstructure obtenue présente quelques gros grains de taille millimétrique avec des petits grains résiduels mesurant une dizaine de micromètres de diamètre. De très rares macles sont présentes. Une telle microstructure est loin d'être représentative de la microstructure de trempe bêta. Elle se présente plutôt comme un cas simplifié assez proche du monocristal. 10 grains ont été analysés par EBSD avant essai. Ce demi-échantillon a été comprimé de 0,20 à

[19] Les couleurs sur la micrographie 5.25(b) sont naturelles, la microstructure étant observée en champ clair.

750 °C et 0,1 $s^{-1}$ avec un autre demi-échantillon à microstructure lamellaire. La surface après déformation est altérée et présente un relief marqué. Il a donc été nécessaire de la polir sur une centaine de micromètres afin d'obtenir une surface plane pour l'analyse EBSD. Le grain initial a été retrouvé dans 6 cas. Dans chaque cas, l'évolution de l'orientation cristalline mesurée est inférieure à 10 °.

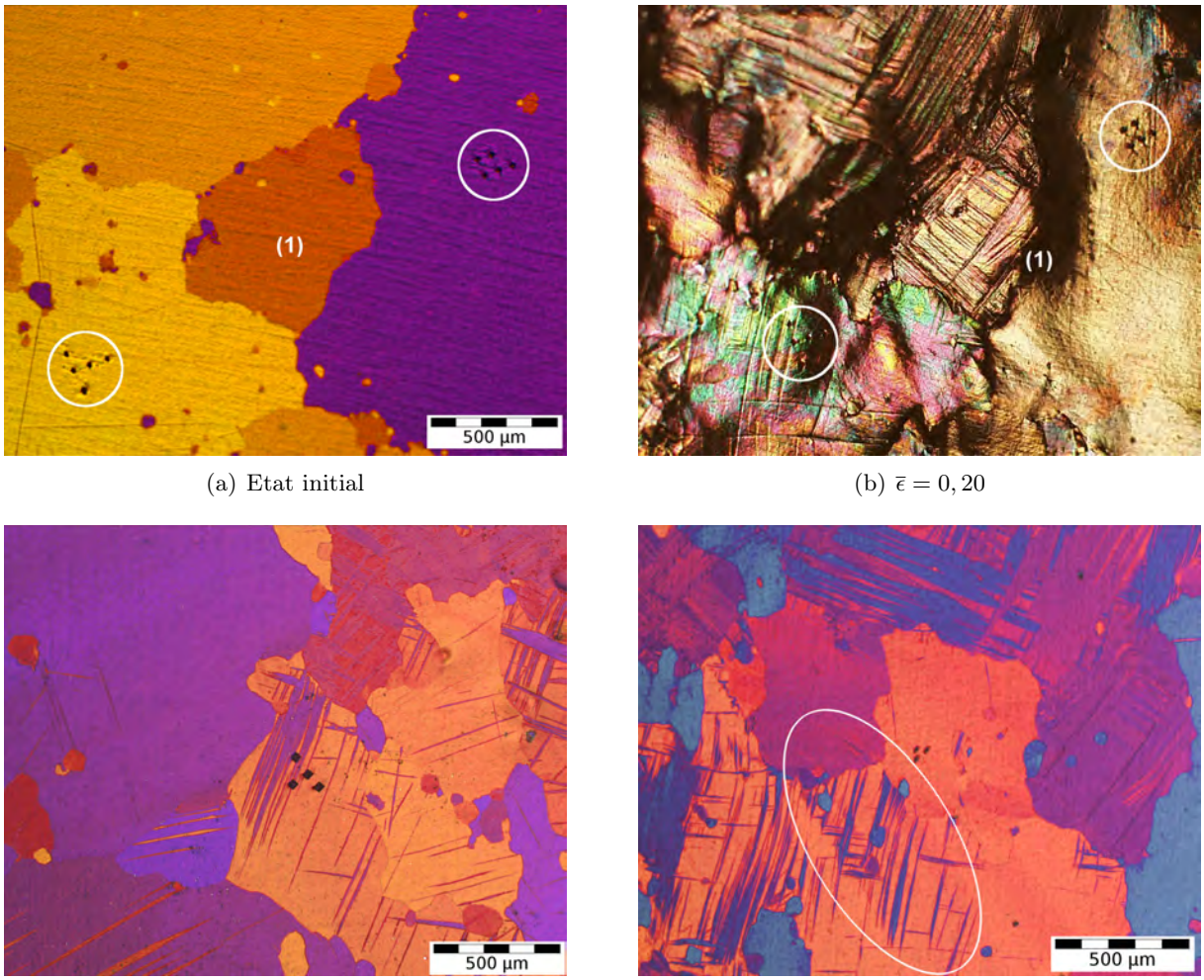
La microstructure de cet échantillon après déformation présente de nombreuses macles, visibles avant même tout polissage (figure 5.26(b)). Par ailleurs, il apparaît que ces macles sont réparties de manière particulièrement hétérogène entre les différents grains et à l'intérieur même de ceux-ci. Les petits grains en sont exempts, de même que certains gros grains. Les figures 5.26(a) à (d) résument ces observations. Les figures (a) et (b) présentent une même zone avant et après déformation. Les indentations utilisées pour le repérage de cette zone sont entourées en blanc. Après déformation, des macles sont clairement visibles sur le grain central marqué (1) en dépit du relief. Les figures 5.26(c) et (d) montrent deux zones après déformation et polissage. Certains grains de grande taille ne comportent pas de macles. Cela est particulièrement visible sur la partie gauche de la figure 5.26(c). Sur la figure 5.26(d), de nombeux petits grains, dont aucun n'est maclé, sont présents. Dans le grain central, il est aussi observé que certaines macles, entourées en blanc, sont agglomérées et forment une bande aux contours relativement vagues. Dans certains grains, les macles sont tellements nombreuses qu'il est difficile d'identifier les parties maclées et non maclées.

Les analyses EBSD, dont un exemple est présenté figure 5.27, confirment qu'il s'agit de macles lenticulaires $(10\bar{1}2)$. Comme dans la microstructure lamellaire, celles-ci peuvent croître de part et d'autre d'un joint de grains – sur la figure 5.27, les macles (1) et (2) ont un plan basal proche et un axe <a> en commun.

**Discussion**

Ces exemples constituent à notre connaissance la première observation directe de l'apparition de macles à haute température dans le Zircaloy-4. Il reste à s'interroger sur la contradiction entre ces résultats et l'opinion couramment admise dans la littérature selon laquelle le maclage disparaît au profit des glissements <c+a> avec l'augmentation de température.

Ainsi que nous l'avons rappelé en préambule, la diversité des situations rencontrées au sein du matériau déformé interdit toute conclusion générale qui ne serait pas fondée sur un nombre conséquent d'observations. La participation du maclage au processus de déformation dans le matériau est donc loin d'être évaluée. Il a cependant été montré que dans certaines circonstances favorables, dans des colonies ou grains de grande taille, des macles pouvaient être observées après déformation à 750 °C. Ces macles, de type $(10\bar{1}2)$, peuvent s'être développées à partir de macles préexistantes et à partir d'éventuels défauts de taille submicronique. Comme à basse température, elles apparaissent tôt dans la déformation et se déforment par la suite. Cela peut fournir un début d'explication au fait que l'on en identifie peu dans les échantillons fortement



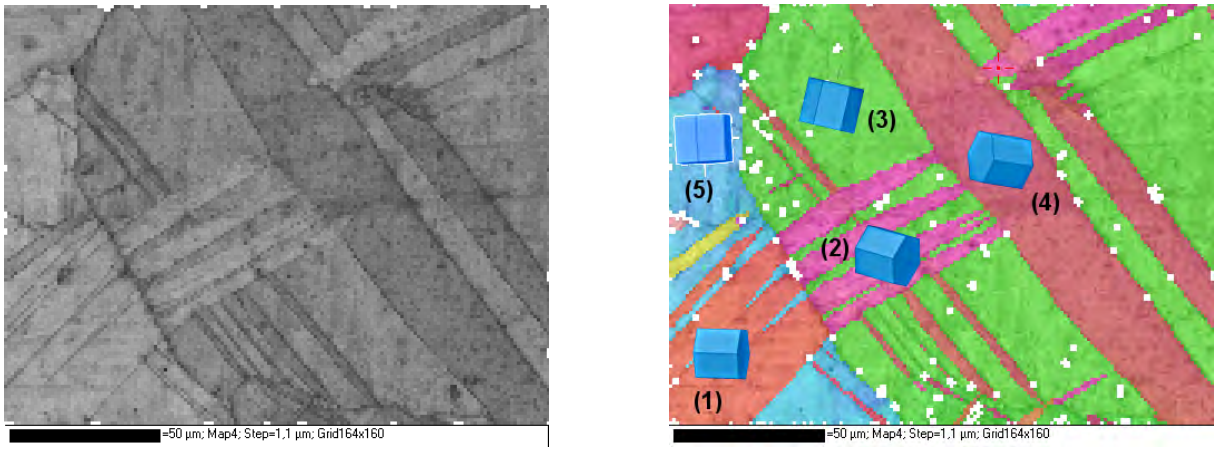

(a) Etat initial

(b) $\bar{\epsilon} = 0,20$

(c) $\bar{\epsilon} = 0,20$ / polissage

(d) $\bar{\epsilon} = 0,20$ / polissage

**Figure 5.26 :** *Mise en évidence de macles dans un demi-échantillon à gros grains équiaxes déformé de 0,2 à 750 ℃ (Direction de compression horizontale). (a) et (b) : même zone avant et après déformation, (c) et (d) : microstructure polie après déformation.*




(a) Contraste de bandes

(b) Orientation cristalline

**Figure 5.27 :** *Analyse EBSD de macles* $(10\bar{1}2)$ *dans un demi-échantillon à microstructure équiaxe déformé de 0,20 à 750 °C (direction de compression horizontale).*

comprimés.

En l'état actuel de nos recherches, nous n'avons pas relié l'activité du maclage à l'orientation cristalline locale. Le calcul du facteur de Schmid dans un grand nombre de colonies pour un état théorique de contraintes planes, en procédant selon le modèle statique ou de Sachs – à la manière des travaux de Francillette [FBGB98] –, reste une voie à explorer. Il est néanmoins fort probable que la susceptibilité du matériau au maclage soit avant tout déterminée par la taille et la morphologie des colonies, ainsi que par l'état de contraintes local.

### 5.4.6 Bandes de cisaillement

Le matériau à l'état déformé comporte de nombreuses bandes de cisaillement localisé. Elles se distinguent des bandes de cisaillement évoquées au chapitre 1 (figure 1.19) par leurs contours bien définis et leurs dimensions, de l'ordre de la 10 à 20 µm en épaisseur et de la centaine de micromètres en longueur. La figure 5.28 en montre un exemple. Il importe de noter que ces bandes sont généralement insensibles à l'orientation cristalline locale, dans la mesure où elles sont couramment observées à travers plusieurs colonies sans déviation apparente. Un autre point important est qu'elles dévient nettement l'alignement des précipités. Enfin, la densité de défauts à l'intérieur des bandes est manifestement assez élevée, dans la mesure où elles sont difficiles à indexer en EBSD. Ces trois points permettent de distinguer les bandes de cisaillement localisé des macles (figure 5.29).

Les deux analyses EBSD suivantes apportent un éclairage sur le rôle des bandes de cisaillement vis-à-vis de la recristallisation. Les figures 5.30(a) et 5.30(b) montrent une bande de cisaillement, notée (4), franchissant un ancien joint de grain bêta. L'échantillon a été déformé à 650 °C en

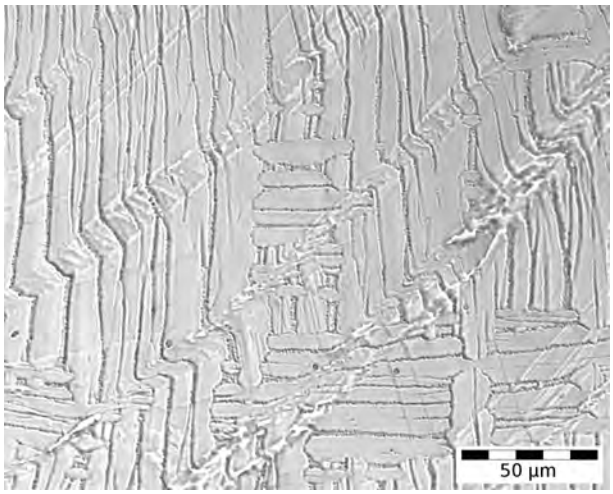



**Figure 5.28 :** *Bandes de déformation localisée dans un échantillon déformé en compression plane à 650 °C, $\dot{\bar{\epsilon}} = 0,1\ s^{-1}$ et $\bar{\epsilon} = 0,47$ (direction de compression verticale).*

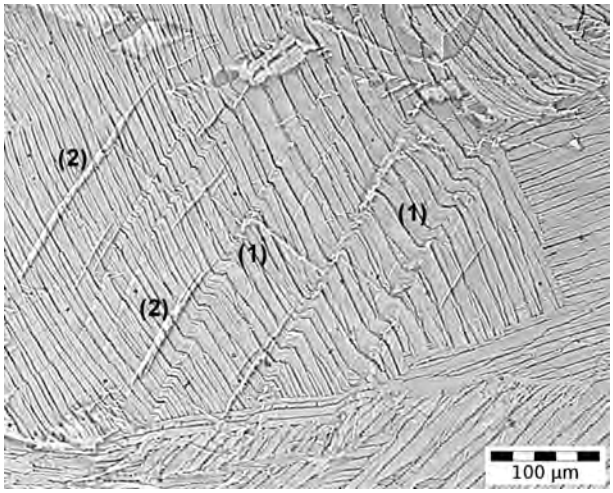
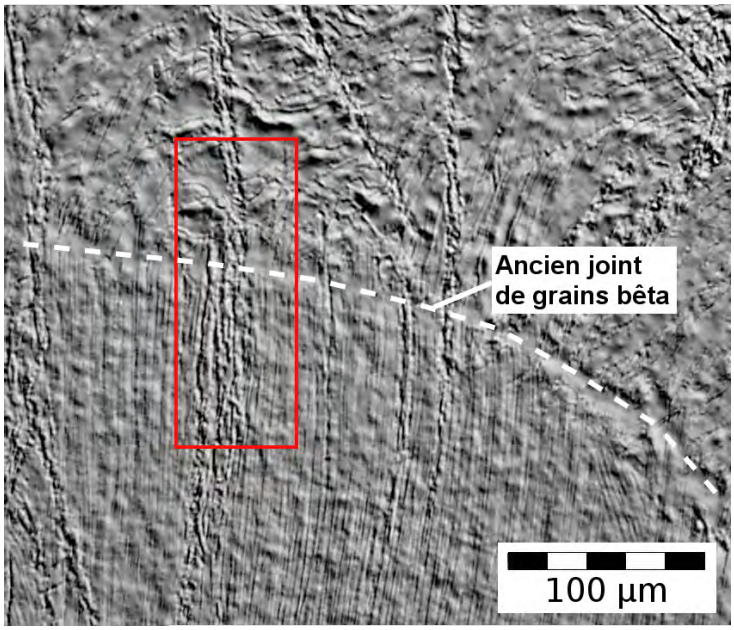



**Figure 5.29 :** *Comparaison entre des bandes de cisaillement (1) et des macles (2) ; les premières dévient l'alignement des précipités, les secondes non.*

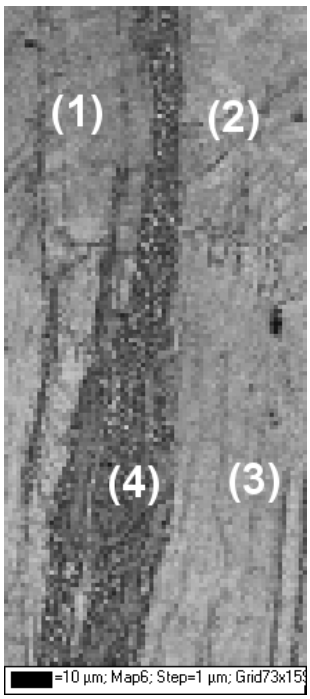
compression uniaxiale à un taux de 0,80 et une vitesse de 0,1 $s^{-1}$. Les deux colonies situées de part et d'autre du joint de grains ont une orientation proche. La cartographie en contraste de bandes met en évidence une forte concentration de défaut à l'intérieur de la bande, en raison de laquelle le taux d'indexation est assez faible. Les points indexés avec succès ont une orientation relativement homogène, ainsi que l'indique la figure 5.30(c) (pôles notés (4)). Il est par ailleurs visible que les zones (1) et (2), appartenant à la même colonie, sont désorientées d'environ 10 °. Les cristallites et les colonies traversées ont un axe <a> proche, qui pourrait être la signature de l'activation simple d'un système de glissement basal ou pyramidal.

Un exemple similaire est présenté sur la figure 5.31. Dans ce cas, l'évolution de la bande de cisaillement a pu être suivie sur un pas de déformation. L'échantillon initial a été prédéformé en compression uniaxiale dans les mêmes conditions que précédemment (650 ℃, $\dot{\bar{\epsilon}} = 0,1\ s^{-1}$, $\bar{\epsilon} = 0,80$). Il a ensuite été découpé de façon à fournir deux demi-échantillons, déformés en compression plane à 750 ℃, $\dot{\bar{\epsilon}} = 0,1\ s^{-1}$ et $\bar{\epsilon} = 0,08$. Dans les deux cas, la direction de compression est horizontale. La surface a été polie sur moins de 100 µm après compression. A l'état initial, la bande comporte deux régions distinctes : des cristallites, notées (4), sont visibles en bordure d'une zone relativement homogène notée (3). Les portions de colonies situées de part et d'autre de la bande sont notées (1) et (2). La figure de pôles 5.31(e) à l'état inital met en évidence un axe de zone <a> entre les parties (1), (2) et (3). Les cristallites ont une orientation nettement différente. Les régions (1) et (2) sont désorientées d'environ 10 °.

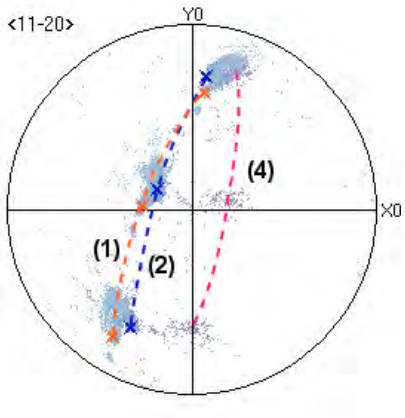
Cette observation suggère que la bande de cisaillement est une zone d'accommodation des déformations imposées à la colonie. La rotation autour d'un axe <a> peut être la signature d'une activité importante des systèmes de glissement basal ou pyramidaux, cette activité se trouvant concentrée dans une couche de faible étendue. L'activité des systèmes de glissement produit de nombreuses dislocations dans la zone de localisation. Ces dislocations sont à l'origine de la formation de cristallites de taille submicrométrique qui peuvent par la suite envahir l'intérieur de la bande. Cela est visible sur les figures 5.31(a) et 5.31(c). Après une déformation équivalente de 0,08 en compression plane à 750 ℃, la figure de pôles montre que la composante (3) a complètement disparu au profit des composantes (4), sans que la bande se soit elle-même étendue. Dans le cas présent, il est fort probable que la montée en température avant l'essai de compression plane soit à l'origine d'un phénomène de croissance de grains locale. L'activité de recristallisation marquée au sein des bandes de cisaillement est commune à de nombreux matériaux, y compris les alliages de titane, indépendamment de leur structure cristalline [Wal07, KGPP$^+$06]. Dans notre cas, l'élévation de température qui accompagne la formation des bandes de cisaillement n'est pas suffisante pour porter le matériau en phase bêta comme cela a pu être observé dans l'alliage Zr-2,5%Nb déformé à vitesse élevée [DTKK99].




(a) Micrographie



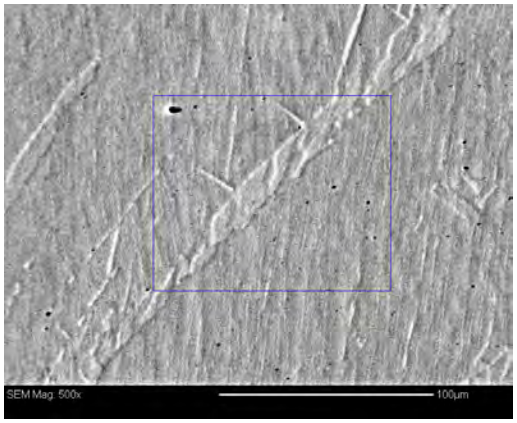

(b) Contraste de bandes



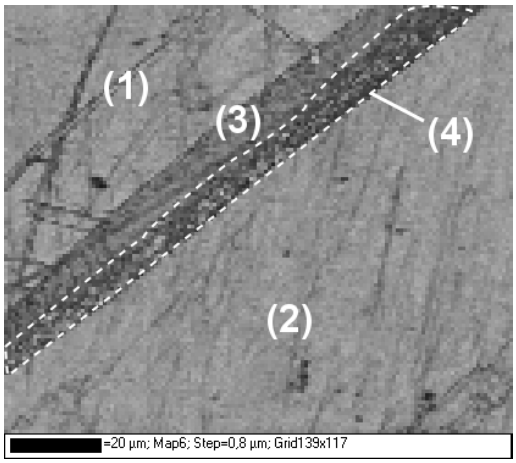

(c) Pôles <a>

**Figure 5.30 :** *Analyse EBSD d'une bande de cisaillement dans un échantillon déformé en compression uniaxiale (direction de compression horizontale).*

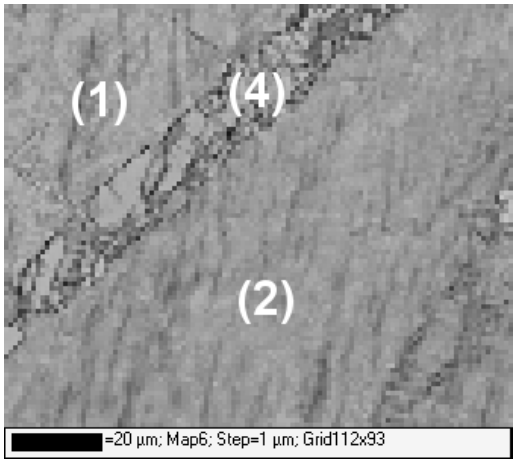
(a) Micrographie avant déformation



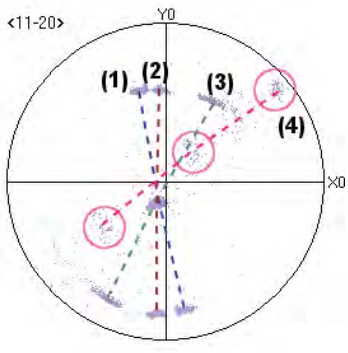

(b) Micrographie après déformation



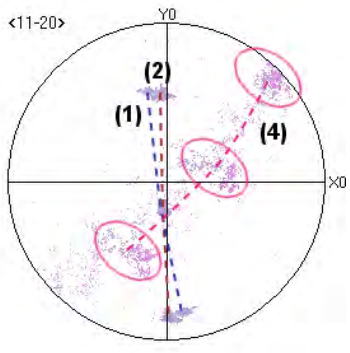

(c) Contraste de bandes avant déformation




(d) Contraste de bandes après déformation




(e) Pôles <a> avant déformation




(f) Pôles <a> après déformation

**Figure 5.31 :** *Analyse EBSD d'une bande de cisaillement dans un échantillon prédéformé en compression uniaxiale de 0,80 à 650 °C puis déformé de 0,08 à 750 °C en compression plane. Figures de gauche : avant déformation plane, de droite : après déformation plane.*

### 5.4.7 Recristallisation

Cette section se propose de faire le lien entre les différentes hétérogénéités qui viennent d'être présentées et la recristallisation dynamique du Zircaloy-4. Dans le cas des bandes de cisaillement, ce lien est direct : celles-ci sont rarement observées sans cristallites en leur sein. Pour les autres hétérogénéités, maclage, réarrangement des colonies, microflambage, fragmentation des colonies, ce lien est moins direct et mérite d'être précisé.

La figure 5.32 montre une zone en cours de recristallisation. Une colonie centrale en microflambage est visible, ainsi que des zones fortement perturbées dans les colonies voisines. Comme dans les précédents exemples, plusieurs blocs fortement désorientés sont présents au sein d'une même colonie.

La figure en contraste de bandes 5.32(b) fait apparaître de nombreuses cristallites. Leur localisation est particulièrement inhomogène. En comparaison avec la colonie microflambée, la recristallisation apparaît plus avancée aux abords de celle-ci et dans la colonie fragmentée sur la droite. La charnière, en particulier ne comporte pas de cristallites. Deux bandes de concentration de défauts, entourées en blanc, sont cependant visibles dans les flancs.

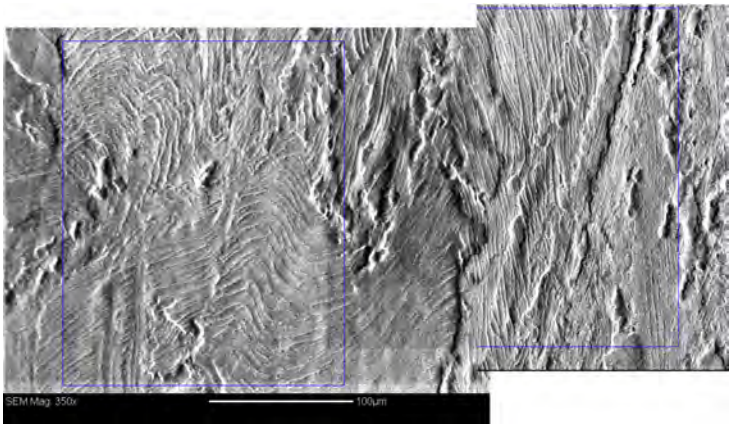
Sur la figure 5.33(b), les cristallites de taille inférieure à 100 $\mu m^2$ ont été isolées. La sélection des cristallites repose sur un critère de désorientation d'au moins 3 °. Trois groupes de cristallites sont repérés. Au sein de chaque groupe, les orientations cristallines sont relativement proches, ainsi que le montre la figure de pôles 5.33(d). Les désorientations entre cristallites voisines sont dans l'ensemble inférieures à environ 15 °.

La comparaison de la figure de pôles correspondant aux cristallites et de celle correspondant à la plage entière (figures 5.33(d) et 5.33(c)) montre que les cristallites ont par ailleurs une orientation assez proche de celle des zones environnantes non fragmentées. Aucune nouvelle composante de texture n'apparaît.

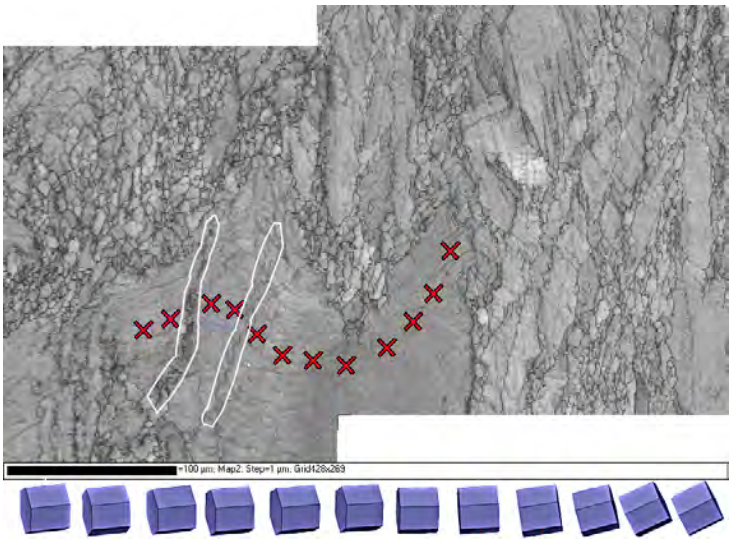
Les zones de microflambage et les macles sont aussi des lieux privilégiés de recristallisation. Leur importance semble cependant moindre que celle des bandes de cisaillement et des zones de recristallisation plus diffuses situées dans les blocs fragmentés et aux abords des colonies.

Au regard du microflambage, il est raisonnable de supposer que les mouvements relatifs entre lamelles varient en fonction de la distance à la zone de pliage maximal. Cela a déjà été proposé pour les plis géologiques. Les flancs sont donc susceptibles d'être soumis à des déformations en cisaillement nettement plus élevées que la charnière, qui subit principalement à des déformations de traction et compression. Les déplacements interlamellaires dans les flancs peuvent être accommodés par l'activation des systèmes de glissement prismatique aux abords des lamelles [Cré95]. Les dislocations créées peuvent ensuite se réorganiser par restauration et recristallisation.

La recristallisation dans les macles est mise en évidence dans la figure 5.34, qui étend l'analyse de la figure 5.21. La cartographie en contraste de bandes montre que les macles (1) et (2) comportent des zones sombres, correspondant à des accumulations locales de dislocations.

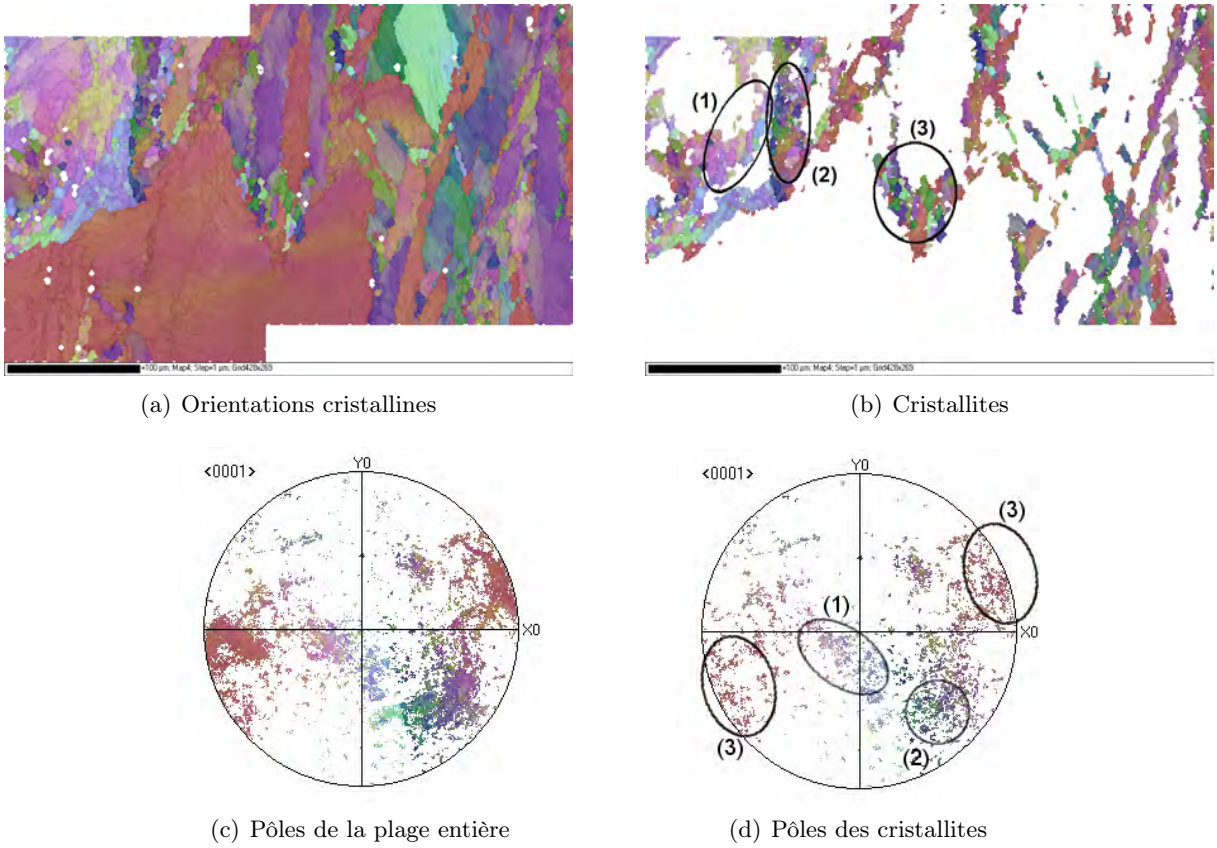



(a) Micrographie




(b) Contraste de bandes

**Figure 5.32 :** *Analyse EBSD d'une zone de microflambage et de zones de recristallisation (échantillon déformé en compression uniaxiale à 750 °C,* $\dot{\bar{\epsilon}} = 0,01\ s^{-1}$ *et* $\bar{\epsilon} = 0,80$*, direction de compression horizontale).*



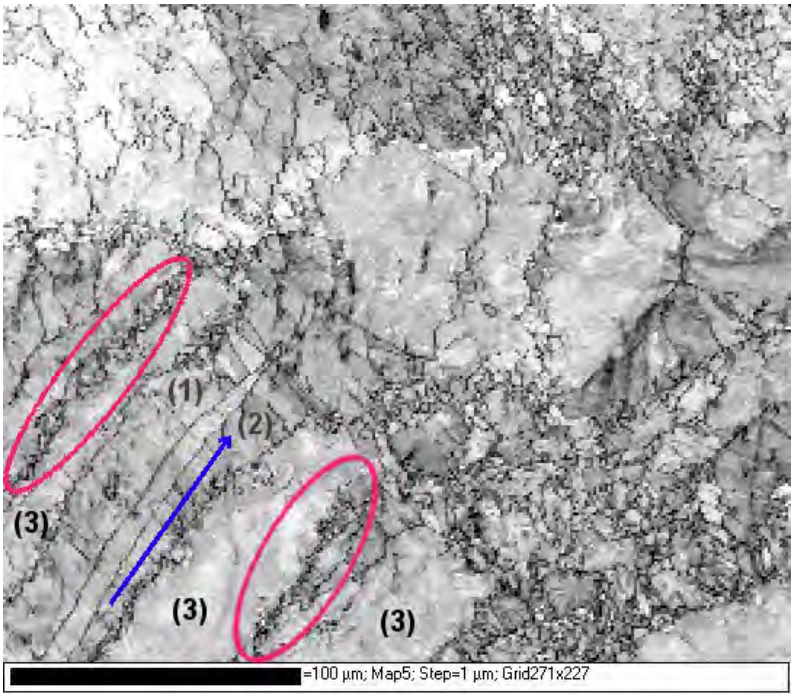

(a) Orientations cristallines

(b) Cristallites

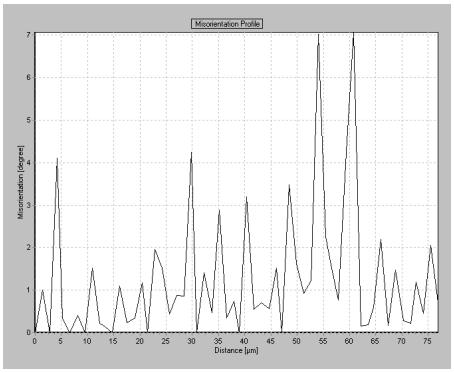
(c) Pôles de la plage entière

(d) Pôles des cristallites

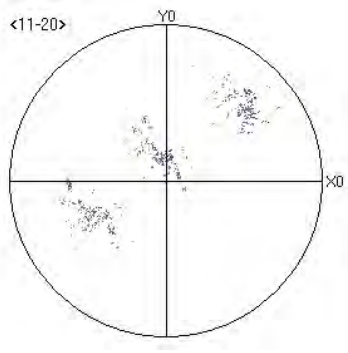
**Figure 5.33 :** *Analyse EBSD de cristallites dans la zone présentée figure 5.32.*




(a) Contraste de bandes




(b) Profil de désorientation le long de la macle (2)




(c) Orientation des cristallites entourés en rouge

**Figure 5.34 :** *Profil de désorientation le long d'une macle et orientation des cristallites dans les zones entourées (même plage que la figure 5.21).*

Ces zones sont approximativement perpendiculaires à la trace du plan de la macle. Un profil de désorientation entre pixels voisins effectué le long de la macle (2) est présenté figure 5.34(b). Il met en évidence des variations d'orientation locales de l'ordre de 3 à 7 °. Sur la figure 5.34(a) sont aussi entourés deux chapelets de cristallites. Leur orientation, tant spatiale que cristallographique est voisine de celles des macles (1) et (2) (comparer les figures 5.34(c) et 5.22(a)). Ces observations suggèrent donc que les macles (1) et (2) sont en cours de fragmentation alors que les cristallites sont issues de macles complètement fragmentées.

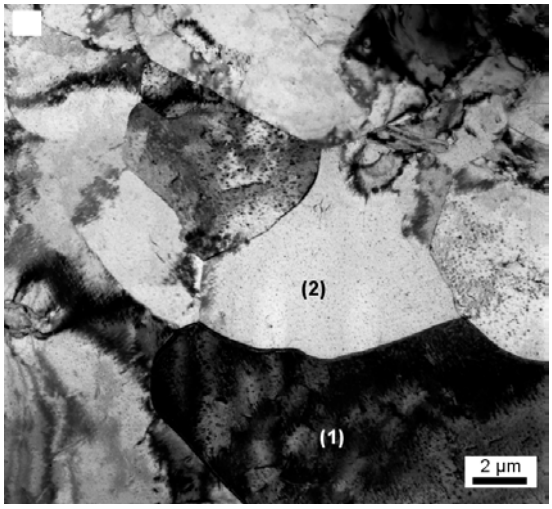
Les cristallites dans les macles sont désorientées de manière homogène avec la matrice, propriété commune avec les cristallites issues des bandes de cisaillement. A contrario, les cristallites formées aux abords des zones de contact entre colonies ont des orientations proches de celles-ci. Dans les zones de microflambage que nous avons observées, la recristallisation apparaît moins avancée et l'orientation des cristallites n'a pu être évaluée. Ces observations qualitatives plaident en faveur d'une interprétation de la recristallisation comme un processus continu, caractérisé par la formation progressive de nouveaux grains dont la désorientation avec la matrice augmente au cours de la déformation.

Les caractérisations en microscopie en transmission apportent un éclairage sur la structure interne des cristallites. D'une manière générale, il apparaît que celle-ci est assez variable. Certaines comportent des écheveaux de dislocations, alors que d'autres en sont apparemment exemptes. Ainsi, sur la figure 5.35(a), la cristallite notée (1) est relativement riche en dislocations, alors que celle notée (2) n'en comporte aucune. La figure 5.35(b) apporte un éclairage sur les sites de formation des cristallites au sein des colonies. Deux cristallites, notées (1) et (3), se sont manifestement développées de part et d'autre des précipités intermétalliques. La cristallite (2) est plutôt confinée à l'intérieur de la lamelle [20]. Les précipités se sont partiellement redistribués au cours de la déformation. Les alignements entre lamelles sont certes toujours présents, mais une précipitation plus fine est visible à l'intérieur des cristallites. Cette observation est en accord avec celles de Logé et al. dans le Zircaloy-4 déformé en bi-poinçonnement à 750 °C [LSC+00]. La localisation des cristallites vis-à-vis des hétérogénéités de déformation n'a pas été relevée dans ces travaux. Son influence éventuelle sur la structure interne des cristallites reste une question ouverte.

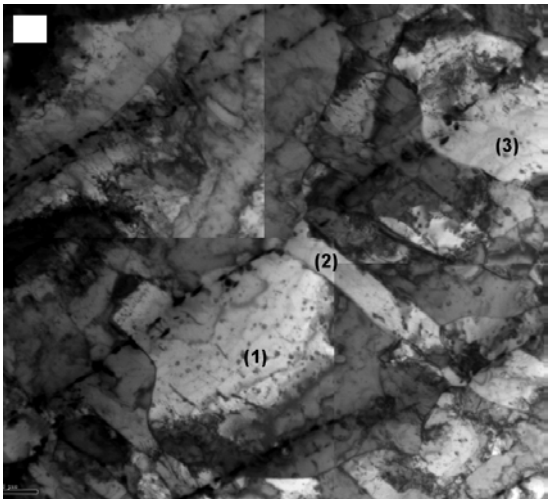
## 5.5 Synthèse

Nous avons établi dans cette partie une ébauche de classification des différents types de localisation de la déformation observés dans les microstructures lamellaires de Zircaloy-4 à haute température. Les zones de localisation de la déformation sont à l'origine d'hétérogénéités de recristallisation d'importance variable. Dans les études sur les alliages métalliques, l'agencement

[20] Une observation optique similaire a été présentée dans le chapitre consacré aux techniques expérimentales (chapelet de cristallites au centre de la figure 2.2)




(a) 650 °C, $\overline{\epsilon} = 0,80$, $\dot{\overline{\epsilon}} = 1\ \mathrm{s}^{-1}$




(b) 750 °C, $\overline{\epsilon} = 0,80$, $\dot{\overline{\epsilon}} = 0,01\ \mathrm{s}^{-1}$

**Figure 5.35 :** *Cristallites dans deux échantillons déformés en compression uniaxiale ; mise en évidence des sous-structures de dislocations (a) et de l'emplacement des cristallites par rapport aux alignements de précipités intermétalliques [Pau06].*

tridimensionnel de la microstructure n'est pas en général explicitement pris en compte dans la mesure où les grains sont de forme convexe. L'état de déformation est néanmoins très variable selon les grains et selon la position à l'intérieur même de ceux-ci. Dans le cas du Zircaloy-4 trempé bêta, à cette variabilité de la déformation dictée par la cristallographie s'ajoute celle liée à la morphologie des colonies.

Malgré ces difficultés inhérentes à la microstructure et aux limitations expérimentales, quelques traits importants peuvent être dégagés. Les microgrilles mettent tout d'abord en évidence des zones localisées de cisaillement entre les colonies apparaissant tôt dans la déformation – au plus à 0,1 de déformation équivalente. Les caractérisations EBSD à plus forts taux de déformation suggèrent que ces zones sont autant de sites préférentiels de recristallisation. Parallèlement à ces hétérogénéités localisées aux abords des colonies, d'autres processus sont observés à l'intérieur de celles-ci : les bandes de cisaillement, les macles, le microflambage et la fragmentation des colonies. Leurs influences sur la globulisation du matériau sont variables. Si les bandes de cisaillement sont manifestement à l'origine d'une activité de restauration/recristallisation intense, il n'en va pas de même des zones microflambées. Quant aux macles, elles peuvent constituer des sites de recristallisation, mais aussi participer à la fragmentation des grandes colonies en blocs, lesquels peuvent ensuite se déformer et recristalliser. Ce phénomène de fragmentation apparaît logiquement comme une étape préalable à la globulisation des grandes colonies.

La distinction entre les macles et les bandes de cisaillement peut être établie à partir d'une série de critères descriptifs. Ces deux types d'hétérogénéités ont en commun une forme générale-

ment oblongue mais peuvent être distinguées à partir des propriétés suivantes :

- les bandes de cisaillement perturbent l'alignement des précipités, à la différence des macles qui le laissent inchangé à l'échelle micrométrique (figure 5.29),
- la désorientation entre une macle et la matrice est strictement définie, celle avec une bande de cisaillement est différente d'un cas à l'autre ; en conséquence, une macle est généralement confinée dans une colonie, alors qu'une bande de cisaillement peut en traverser plusieurs,
- les bandes de cisaillement peuvent séparer deux zones d'une même colonie faiblement désorientées entre elles, ce qui n'a pas été observé dans le cas du maclage,
- dans nos observations, les bandes de cisaillement apparaissent fréquemment riches en cristallites, cela est moins courant pour les macles.

Ces considérations mettent en lumière le rôle des glissements cristallographiques dans la déformation à l'échelle locale. Si les macles ne perturbent qu'une zone limitée de la matière, les bandes de cisaillement semblent être la réponse à des déplacements sur de plus grandes échelles. En témoignent les désorientations cristallines de la matrice de part et d'autre de la bande : celle-ci apparaît comme une zone de concentration des glissements nécessaires à l'accommodation de mouvements globaux de la matière en translation et en rotation. La nature des systèmes activés peut varier entre chaque colonie de manière à garantir la concentration de la déformation au sein d'une bande de faible étendue. L'activité abondante et localisée des systèmes de glissement fournit par ailleurs une explication au fait que les bandes de cisaillement sont le lieu d'une forte activité de recristallisation. Des observations ciblées par MET devraient permettre de confirmer cette hypothèse.

Un autre point intéressant est l'absence de relation claire entre l'alignement des précipités et l'orientation cristalline. Ces deux propriétés se trouvent différemment couplées en fonction des situations : le maclage modifie l'orientation cristalline sans changer l'orientation des précipités, à l'inverse, les bandes de cisaillement modifient les deux à la fois, enfin, le microflambage change l'alignement des précipités sans modifier considérablement l'orientation cristalline. Ces considérations rendent délicate la formulation d'un critère purement cristallographique présidant au microflambage et à la fragmentation des colonies comme l'ont proposé Bieler et Semiatin pour le TA6V [BS02] (figure 1.26) déformé à 815 °C. Notons que l'état du matériau diffère nettement dans les deux cas, dans la mesure où le TA6V comporte environ 30 % de phase bêta à cette température.

D'une manière plus générale, la nature des paramètres pertinents présidant à l'apparition des hétérogénéités n'est pour l'instant pas établie. Une évaluation exhaustive des relations entre l'orientation cristalline et le comportement local en déformation reste à faire. Notons cependant qu'il n'est pas assuré qu'une corrélation existe. A titre d'exemple, les colonies microflambées que nous avons observées ont des orientations variées par rapport à la déformation. Il est fort probable que les interactions entre colonies, dont nous avons montré l'imbrication au chapitre 4, soit un paramètre plus significatif.

# Conclusions et perspectives

Les microstructures de Widmanstätten sont parmi les plus complexes rencontrées dans les alliages métalliques. Leur comportement en déformation est encore loin d'être compris. Cette étude majoritairement expérimentale a néanmoins permis de mettre en évidence certaines de leurs propriétés caractéristiques. Nous revenons dans cette dernière partie sur les principaux sujets abordés, la formation de la microstructure de trempe et sa recristallisation dynamique, ainsi que sur les techniques expérimentales mises en oeuvre. La comparaison entre les alliages de titane alpha/bêta et le Zircaloy-4 à l'état trempé bêta s'est révélée fructueuse. A l'échelle mésoscopique ces deux classes d'alliages présentent de nombreux points communs et il ne fait aucun doute que les travaux à venir devront en tirer profit. Nos travaux ont abouti à la mise en évidence de plusieurs caractéristiques nouvelles ou jusqu'ici imparfaitement établies de ces microstructures.

Nos résultats principaux peuvent être résumés ainsi :

- La nature de la phase formée aux anciens joints de grains bêta et son rôle sur la sélection de variants ont été établis pour le TA6V et le Zircaloy-4. En conditions de refroidissement modéré, les colonies germent principalement à partir de cette phase. Il a été montré que leur orientation est alors tributaire des écarts angulaires minimaux entre les plans (110) des grains bêta ajacents.
- La microtomographie X a permis de révéler l'agencement tridimensionnel des colonies. Celles-ci ont des formes non-convexes résultant d'interactions mutuelles au cours de la croissance. Dès lors, il est clair que l'imbrication de la microstructure est à même d'entraîner de fortes hétérogénéités de contrainte pendant la déformation.
- La microstructure déformée du Zircaloy-4 a été étudiée au moyen d'essais de compression uniaxiale et plane. Les colonies peuvent se déplacer les unes par rapport aux autres, se fragmenter en blocs et présenter du microflambage. D'autres modes de déformation plus génériques, le maclage et les bandes de cisaillement, ont été également observés. Certaines de ces hétérogénéités n'ont jamais été signalées dans les alliages de titane. D'une façon générale, l'analogie entre les alliages de titane biphasés et le Zircaloy-4 cesse d'être valide à haute température : la présence de phase bêta influe sur la nature des hétérogénéités et sur les mécanismes de globulisation des lamelles. Le microflambage est certes commun aux

deux classes d'alliages, mais nous avons montré que des différences significatives existent au regard des orientations cristallines. Quant au maclage, son observation est en contradiction avec l'opinion couramment admise dans la littérature, tant pour le Zircaloy-4 que les alliages de titane.

– Des méthodes expérimentales nouvelles ou jusqu'alors inusitées pour ces matériaux ont été développées. Il s'agit de l'essai Jominy instrumenté, la microtomographie X et la compression plane encastrée à haute température.

Les informations que nous avons synthétisées sur la cristallographie et la morphologie de la microstructure constituent un socle solide sur lequel peuvent être entrepris des essais de modélisation. Une description générale de la genèse de la microstructure a été esquissée. Elle se base sur une germination des colonies à partir des joints de grains bêta, ce processus étant soumis à des conditions de désorientations entre les grains. La croissance s'effectue ensuite de manière compétitive avec des vitesses anisotropes. Nous proposons d'appliquer ce schéma indifféremment aux alliages de titane et au Zircaloy-4, dès lors que l'échelle d'observation est mésoscopique. A long terme, des simulations basées sur ce principe devraient produire des microstructures réalistes susceptibles d'être implémentées dans des codes de calcul de plasticité cristalline.

L'importance des hétérogénéités de déformation vis-à-vis des processus de recristallisation est encore à préciser, de même que leurs conditions d'apparition. Sur ce point, il est probable que la morphologie des colonies et leur imbrication – en d'autres termes les conditions aux limites imposées aux colonies – soit le paramètre déterminant. D'une manière générale, nos résultats suggèrent que la recristallisation, bien qu'hétérogène, est un processus continu caractérisé par la désorientation progressive des cristallites. Celles-ci ont en effet des orientations proches de celle de la matrice, de la macle, ou de la bande de cisaillement dans laquelle elles apparaissent. Une dissolution partielle des plus petits précipités intervient conjointement à ces mécanismes. D'un point de vue qualitatif, la recristallisation est plus efficace à haute température et en compression plane encastrée.

Notons qu'il est connu que la globulisation est plus efficace avec une microstructure en vannerie. Les efforts d'optimisation du procédé de mise en forme devraient donc être portés sur l'obtention de cette microstructure. Le paramètre principal est la vitesse de refroidissement pour laquelle les valeurs élevées peuvent être atteintes en convection forcée (jet d'eau ou bain agité) et avec un fluide à basse température (eau glacée par exemple). La tendance des grains bêta de grande taille à former des microstructures fines, si elle est confirmée, peut aussi être mise à contribution.

Les méthodes expérimentales développées dans le cadre de ces travaux n'ont pas encore donné tous les résultats que l'on pourrait en attendre. L'essai Jominy instrumenté est une technique prometteuse pour l'étude de l'influence de la vitesse de refroidissement sur la microstructure ainsi que des propriétés thermiques du matériau. Des essais supplémentaires dans différentes conditions devraient permettre de formuler des relations précises entre l'histoire thermique et la

microstructure formée. L'établissement de diagrammes TRC (transformation - refroidissement continu) précisant les paramètres de transformation martensitique et bainitique est un résultat important que cette technique est en mesure de fournir.

Comme nous l'avons mentionné, la microstructure du matériau utilisé en microtomographie X comportait une grande majorité d'anciens grains bêta de taille supérieure aux dimensions de l'éprouvette. Cet essai devrait être renouvelé avec une microstructure mieux adaptée de manière à disposer d'un plus grand nombre d'anciens grains bêta complets. Les informations morphologiques obtenues par ces expériences peuvent par ailleurs être complétées par des abrasions séquentielles donnant accès aux orientations cristallines.

L'exploitation de la compression plane encastrée à haute température se heurte encore à des difficultés dont certaines sont inhérentes au matériau. Les déformations hors-plan de la matière et l'altération de la surface en sont les plus importantes, et ont empêché le suivi d'une même plage microstructurale jusqu'à des taux élevés de déformation. Il reste cependant possible d'envisager des améliorations quant à la préservation de la surface. Notons par ailleurs que l'utilisation d'échantillons prédéformés en compression uniaxiale ou plane permet de contourner ces limitations.

En conclusion, si des avancées ont été réalisées au cours de ces travaux, de nouvelles questions ont été soulevées et devraient faire l'objet d'études plus approfondies :

- étude de la microstructure en trois dimensions : liens entre la morphologie et la cristallographie des colonies avec les mécanismes de croissance,
- étude des hétérogénéités de déformation : classification plus précise et relations, en amont avec la morphologie et la cristallographie de la microstructure, et en aval avec la recristallisation du matériau à l'échelle globale.

Ces programmes de recherche, dont la description est délibérément générale, devraient permettre d'aboutir à une meilleure compréhension de la genèse de la microstructure de Widmanstätten et son articulation avec les mécanismes de globulisation.

# Annexe A

# Simulation par éléments finis de traitements thermiques du Zircaloy-4

Cette annexe décrit le principe de la simulation par éléments finis mise en oeuvre pour étudier le comportement thermique du Zircaloy-4. Plus précisément, deux cas ont été considérés. le premier est le chauffage d'une billette de 12 cm de diamètre depuis le domaine alpha jusqu'au domaine bêta, suivi d'une trempe à l'eau. La température initiale du matériau est supposée homogène et fixée à 750 °C. La température du traitement bêta est fixée à 1050 °C. On considère qu'elle est appliquée instantanément. Le deuxième cas est assez voisin : il s'agit d'un essai Jominy modifié, au cours duquel un cylindre de 11 cm de haut pour 20 mm de diamètre est porté à 1050 °C, puis sorti du four et refroidi à une extrémité par un jet d'eau. Dans les deux cas, les températures de l'eau et de l'air sont fixées à 15 °C.

Les calculs ont été menés avec le code ABAQUS. Les phénomènes physiques intervenant au refroidissement sont la conduction de la chaleur au sein du matériau, l'échange de chaleur avec les milieux environnants (air et eau), le rayonnement et le changement de phase bêta/alpha. Les variables correspondantes sont la conduction, la densité et la capacité thermiques du matériau, les coefficients d'échange avec les fluides de refroidissement, l'émissivité de la surface (propre au métal ou à la couche d'oxyde) et l'enthalpie libre de transformation.

Dans ABAQUS, la conduction est modélisée par la loi de Fourier, qui considère la transmission de la chaleur comme un phénomène linéaire. La modélisation de l'échange de chaleur avec l'environnement repose sur une adaptation de la loi de Fourier faisant l'hypothèse de l'existence d'un flux laminaire entre le matériau et le fluide de refroidissement. La loi gouvernant l'émissivité fait l'hypothèse d'un corps gris dont le rayonnement est anisotrope et indépendant de la longueur d'onde. La loi de Newton, basée sur la conservation de l'énergie, exprime la variation de température du matériau en fonction de ces différents flux thermiques.

## A.1 Propriétés du matériau

Les propriétés physiques du Zircaloy-4 varient sensiblement dans les intervalles de températures considérés, en raison notamment du changement de phase alpha-bêta. La mesure de ces grandeurs sort du cadre de ces travaux, aussi ont-elles été extraites des recommandations de l'Agence Internationale de l'Energie Atomique (IAEA) [IAE06], du centre de recherche de l'Université de Karlsruhe [SSSP02] et du Centre International de Sécurité Nucléaire du Département de l'Energie Américain [Arg]. Les températures sont exprimées en Kelvin.

La densité $\rho$, exprimée en $\mathrm{kg} \cdot \mathrm{m}^{-3}$, est décrite par [IAE06] :

– dans le domaine alpha ($T < 1083$ K) :

$$\rho = 6595,2 - 0,1477 \cdot T \tag{A.1}$$

– dans le domaine bêta ($1144 < T < 1800$ K) :

$$\rho = 6690 - 0,1855 \cdot T \tag{A.2}$$

– dans le domaine biphasé, entre 1083 et 1144 K, les valeurs sont interpolées linéairement.

La conductivité thermique $k$, exprimée en $\mathrm{W} \cdot \mathrm{m}^{-1} \cdot \mathrm{K}^{-1}$, est décrite par [IAE06] :

– entre 300 et 1800 K :

$$k = 12,767 - 5,4348.10^{-4} \cdot T + 8,9818.10^{-6} \cdot T^2 \tag{A.3}$$

La capacité thermique $C_p$, exprimée en $\mathrm{J} \cdot \mathrm{K}^{-1} \cdot \mathrm{kg}^{-1}$, est décrite par [SSSP02] :

– pour $273 < T < 1093$ K

$$C_p = 260,85 + 0,1371 \cdot T \tag{A.4}$$

– pour $1293 < T < 2000$ K

$$C_p = 634,6 - 0,4 \cdot T + 1,6.10^{-4} \cdot T^2 \tag{A.5}$$

– dans le domaine biphasé, pour $1093 < T < 1173$ K, $C_p$ est exprimée par la somme de l'équation A.4 et d'une fonction gaussienne :

$$f(T) = 565 \cdot \exp\left[-\frac{(T-1163)^2}{1100}\right] \tag{A.6}$$

– pour $1173 < T < 1293$ K, $C_p$ est exprimée par la somme de l'équation A.5 et d'une fonction gaussienne :

$$f(T) = 530 \cdot \exp\left[-\frac{(T-1183)^2}{2390}\right] \tag{A.7}$$

L'émissivité du matériau oxydé est fixée en première approche à 0,7. En effet, cette grandeur varie peu dans l'intervalle de températures qui nous intéresse (de 700 à 1100 °C) et pour des couches d'oxyde épaisses de plus de 10 µm [Arg].

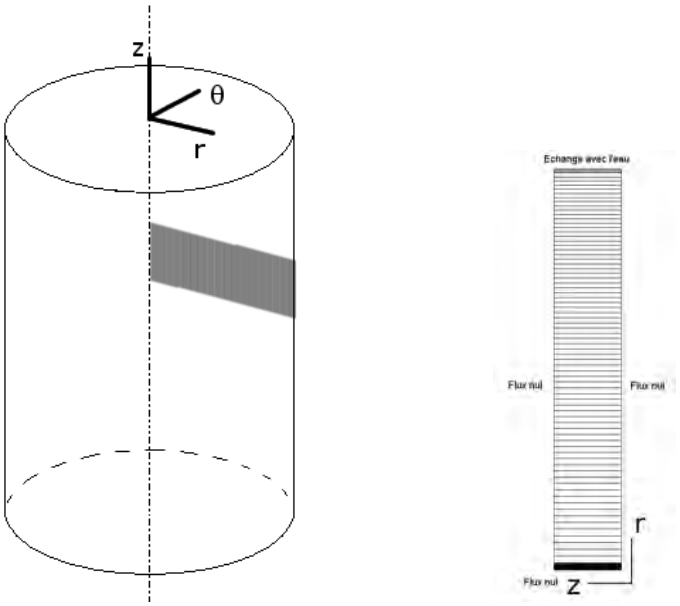
Les figures A.4, A.5 et A.6 présentent les variations de densité, capacité et conductivité thermiques.

## A.2 Hypothèses et maillage

Un certain nombre d'hypothèses simplificatrices ont été adoptées :

- les températures de l'air et de l'eau sont supposées constantes,
- la contamination de l'échantillon par les espèces chimiques de l'environnement, l'oxygène en particulier, est négligée,
- le coefficient d'échange avec l'eau varie avec la température en fonction de la prépondérance des différents phénomènes d'échange (vaporisation, ébullition, convection forcée), sa courbe caractéristique est inspirée des travaux de Le Masson et al. [LMLA$^+$02] (figure A.3),
- dans le cas de l'essai Jominy avec une éprouvette recouverte de laine isolante, le coefficient d'échange avec l'air est supposé constant et fixé à 100 $\mathrm{W \cdot m^{-2} \cdot K^{-1}}$,
- l'enthalpie de transformation est fixée à 4,12 kJ/mol [TTMY97],
- les limites du domaine biphasé sont considérées indépendantes de la vitesse de refroidissement et de la taille de grain bêta.

Les figures A.1 et A.2 présentent le maillage utilisé pour chaque cas de simulation (billette et éprouvette de Jominy).




(a) Géométrie (b) Maillage

**Figure A.1 :** *Maillage pour la simulation de traitement thermique de la billette.*

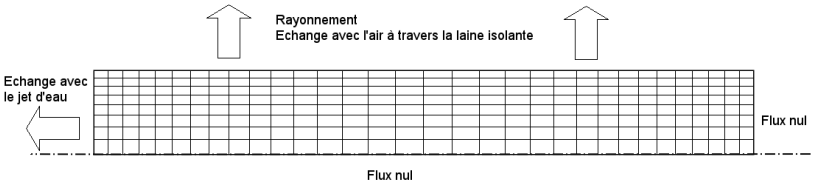



**Figure A.2 :** *Maillage pour la simulation l'expérience de Jominy.*

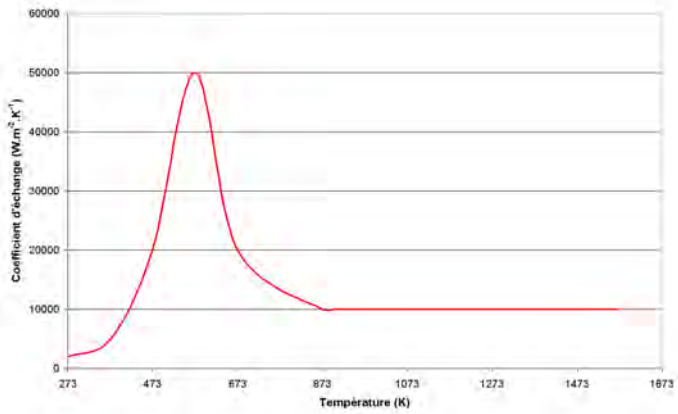



**Figure A.3 :** *Coefficient d'échange entre le Zircaloy-4 et l'eau en convection forcée (adapté de [LMLA+02]).*

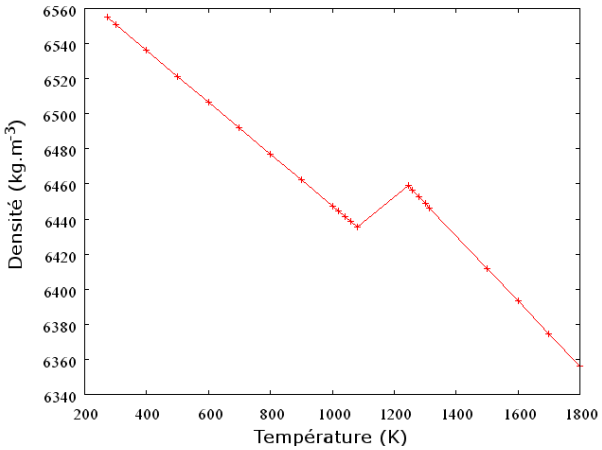



**Figure A.4 :** *Densité du Zircaloy-4 en fonction de la température.*

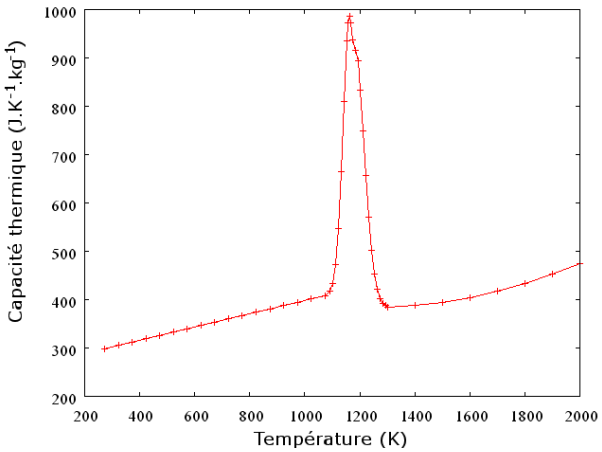



**Figure A.5 :** *Capacité thermique du Zircaloy-4 en fonction de la température.*

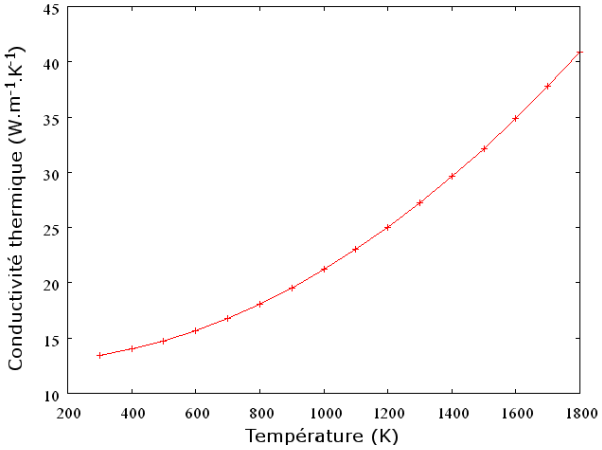



**Figure A.6 :** *Conductivité thermique du Zircaloy-4 en fonction de la température.*

# Annexe B

# Relations de Burgers et phase $\alpha_{GB}$ dans un alliage de titane

Dans le chapitre 3 est rapidement abordée la question des relations de Burgers dans la microstructure de trempe bêta du Zircaloy-4. Leur validité est prouvée à partir des désorientations minimales entre variants. La phase alpha présente aux anciens joints de grains bêta est étudiée de manière plus détaillée, notamment du point de vue de la cristallographie. Cette annexe a pour objet de présenter des résultats similaires concernant l'alliage de titane TA6V. Ces observations se distinguent de celles effectuées sur le Zircaloy-4 en cela qu'elles tirent profit de la présence de phase bêta résiduelle.

La première partie de cette annexe concerne les relations de Burgers. Il est montré que l'orientation de la phase bêta résiduelle est la même que celle de la phase bêta à haute température. La transformation $\beta \rightarrow \alpha$, malgré les distorsions de réseau qui l'accompagnent, ne semble donc pas modifier l'orientation de la phase bêta. En corollaire, il apparaît justifié d'estimer l'orientation initiale des grains bêta à partir des seuls variants alpha dans le Zircaloy-4. En particulier, l'orientation des plans $\{110\}_\beta$ peut être déduite de celle des plans $\{0001\}_\alpha$.

La deuxième partie repose sur deux caractérisations de couches $\alpha_{GB}$ et met en évidence l'influence de l'orientation des plans $\{110\}$ de grains bêta voisins sur l'orientation des colonies qui se développent à partir du joint.

## B.1 Relations de Burgers

Dans le Zircaloy-4, la validité des relations de Burgers est établie d'après les désorientations cristallographiques existant entre les variants présents dans un ancien grain bêta. Rappelons que ces relations s'expriment par :

$$(0001)_\alpha \| (011)_\beta$$
$$[2\overline{1}\overline{1}0]_\alpha \| [1\overline{1}1]_\beta$$

L'orientation du grain bêta peut être déduite des orientations des variants alpha [GHPC96, GKS04, CAB06]. Dans les alliages de titane alpha/bêta, une certaine proportion de phase bêta est stabilisée à température ambiante. Elle est de l'ordre de 7,5 % dans le TA6V. Cette phase résiduelle permet d'accéder directement à l'orientation initiale du grain bêta, sous l'hypothèse que son orientation n'est pas modifiée par la transformation $\beta \rightarrow \alpha$ des zones voisines. En particulier, les 6 plans {110} de la phase bêta cubique centrée doivent coïncider avec les plans {0001} de la phase alpha. De même, les 4 axes $<111>_\beta$ doivent correspondre à 4 directions $<11\overline{2}0>_\alpha$ parmi les variants.

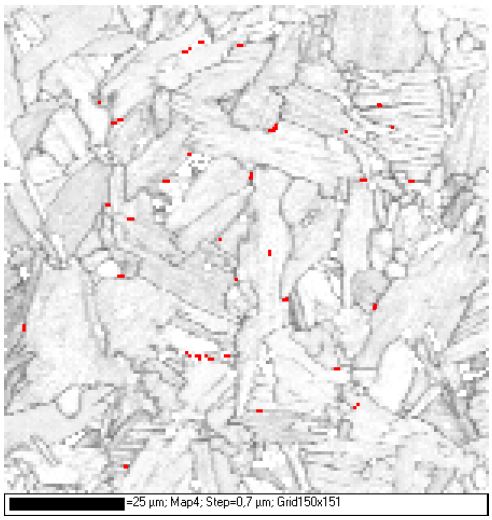
L'analyse EBSD présentée figure B.1 permet de vérifier ces hypothèses. L'échantillon étudié est du TA6V. Il s'agit du matériau utilisé pour l'étude par microtomographie décrite au chapitre 4. Il a été porté à 1050 ℃ quelques minutes avant d'être refroidi en four coupé.

Les lamelles sont séparées par des couches irrégulières de phase bêta résiduelle épaisses de moins d'un micromètre. Les limites d'un ancien grain bêta sont indiquées par des pointillés sur la figure B.1(b). Plusieurs colonies sont visibles à l'intérieur de ce grain, de même qu'une faible proportion de phase bêta, repérée en rouge sur la figure B.1(a) (la résolution de cette cartographie est de 0,7 µm/pixel). Les 12 variants sont présents, ainsi que le montrent les figures de pôles <a> et <c> (figures B.1(c) et (d)). La distribution des désorientations minimales entre colonies est présentée figure B.2(a) et les axes correspondants figure B.2(b). Les relations cristallographiques entre ces variants sont donc équivalentes à celles reportées dans le tableau 1.2. Les figures de pôles $<111>_\beta$ et $<110>_\beta$ sont présentées figures B.1(e) et B.1(f).

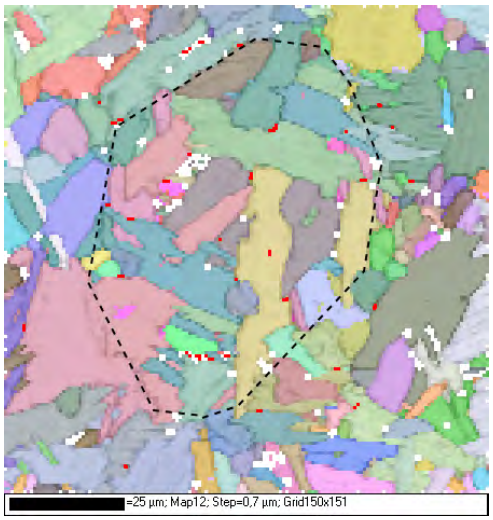
Il apparaît bien que les directions $<110>_\beta$ et $<0001>_\alpha$ sont confondues : les figures de pôles correspondantes sont identiques. De même, les 4 pôles $<111>_\beta$ coïncident chacun avec un axe $<a>_\alpha$ de 4 variants, indiqués par des cercles rouges sur la figure B.1(c). Les autres axes <a> sont regroupés par groupes de 3 autour de chacune de ces directions de coïncidence. La figure B.3 montre un agrandissement de la zone entourée en pointillés sur la figure B.1(c). Les axes sont désorientés avec la direction de coïncidence de 10,5 °. Les plans basals auxquels ils appartiennent sont entre eux désorientés de 60 °. Cette désorientation est celle qui relie, dans le cristal cubique initial, les 3 plans $\{110\}_\beta$ possédant un axe $<111>_\beta$ en commun.

Les relations de Burgers sont donc vérifiées avec la phase bêta résiduelle. Celle-ci apparaît bien représentative du grain bêta à haute température et ne semble pas être affectée en son orientation cristallographique par la transformation $\beta \rightarrow \alpha$. Cette hypothèse est renforcée par la dispersion des zones où a été mesurée l'orientation de la phase bêta.

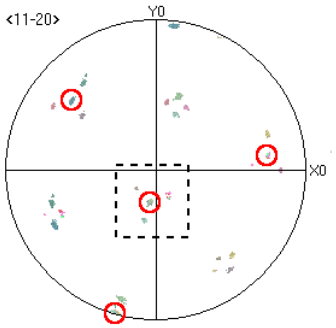
Dans la mesure où la transformation $\beta \rightarrow \alpha$ du Zircaloy-4 est cristallographiquement similaire



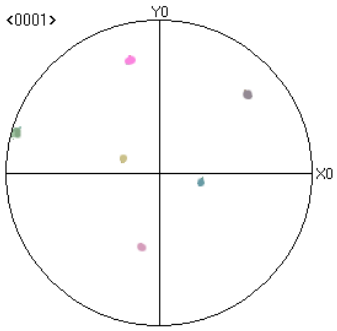

(a) Contraste de bandes



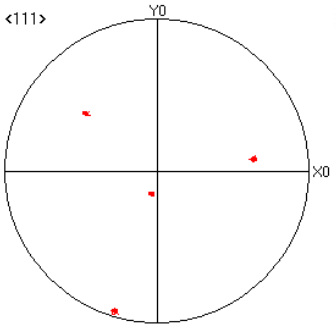

(b) Cartographie d'orientations



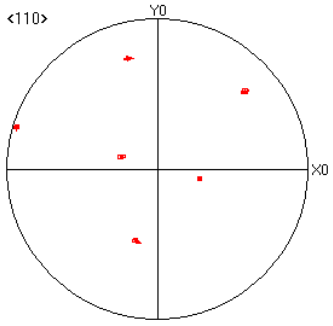

(c) Figure de pôles $<11\bar{2}0>_\alpha$




(d) Figure de pôles $<0001>_\alpha$

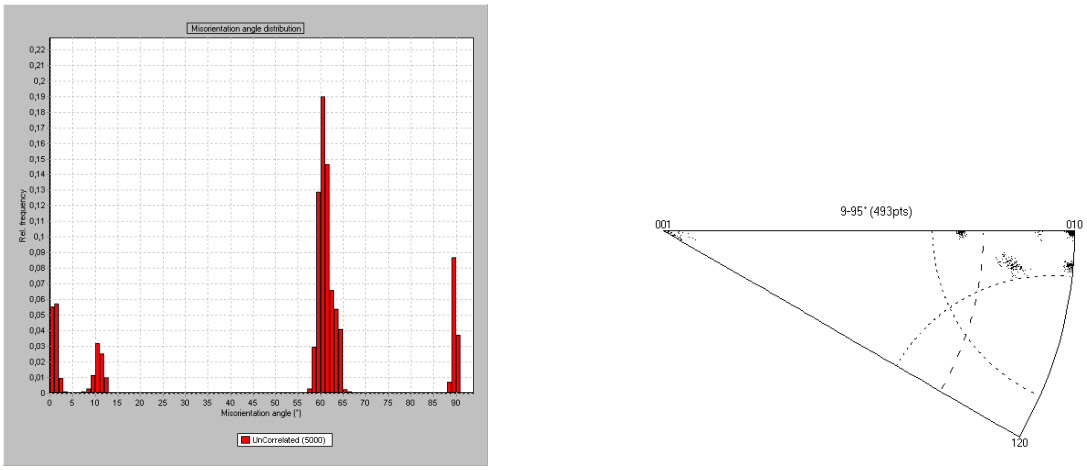



(e) Figure de pôles $<111>_\beta$




(f) Figure de pôles $<110>_\beta$

**Figure B.1 :** *Analyse EBSD des relations cristallographiques entre phase bêta résiduelle et phase alpha dans un échantillon de TA6V.*




(a) Désorientations (b) Axes de zones

**Figure B.2 :** *Distribution des désorientations et axes de zones correspondants entre les colonies de l'ancien grain bêta présenté figure B.1(a).*

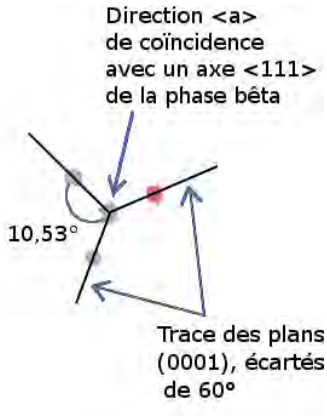



**Figure B.3 :** *Détail de la figure de pôles <a> B.1(c).*

à celle TA6V, il est donc raisonnable de déduire l'orientation des plans $\{110\}_\beta$ de celle des plans $\{0001\}_\alpha$. Cette hypothèse est implicitement utilisée au chapitre 3 dans la présentation des relations de Burgers et de la phase $\alpha_{GB}$ du Zircaloy-4.

## B.2 Phase $\alpha_{GB}$

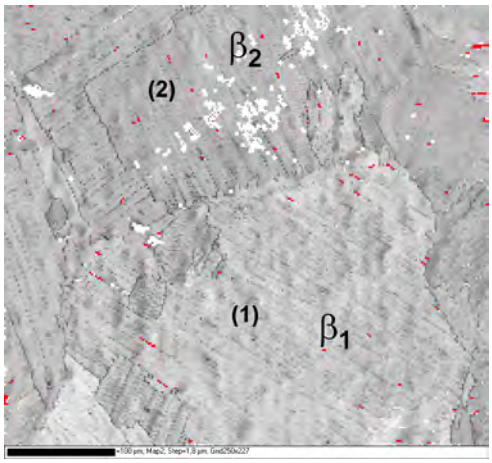
Les deux analyses EBSD présentées ci-dessous mettent en lumière certaines relations cristallographiques entre les grains bêta, la phase $\alpha_{GB}$ et les colonies qui y ont germé. La première, figure B.4, montre une microstructure en platelets parallèles dans un échantillon de TA6V. Les quelques zones où la phase bêta résiduelle a été détectée sont indiquées en rouge sur la figure B.4(a). Le joint de grains séparant les grains $\beta_1$ et $\beta_2$, repéré par des pointillés rouges sur la cartographie, est décoré d'une couche $\alpha_{GB}$. Les colonies (1) et (2) dans les grains $\beta_1$ et $\beta_2$ sont rattachées à cette couche. Elles sont désorientées d'environ 7 °. La figure de pôles <a> (figure B.4(c)) montre que ces colonies ont un plan basal proche. De même, il est visible sur la figure B.4(e) que les grains $\beta_1$ et $\beta_2$ ont un plan $(110)_\beta$ proche, ce plan étant celui qui correspond au plan basal des colonies (1) et (2). Afin de faciliter la visualisation de cette correspondance, les cristaux hexagonaux et cubiques des colonies et grains bêta sont représentés sur la figure B.4(b). Sur les figures B.4(e) et (f), les pôles du grain $\beta_1$ sont en bleu, et ceux du grain $\beta_2$ en rouge.

Dans l'exemple suivant, figure B.5, la relation d'orientation entre les deux grains bêta est légèrement différente : ils n'ont pas de plan {110} en commun, mais en présentent plusieurs également proches. Comme dans l'exemple précédent, la phase bêta résiduelle est indiquée en rouge sur la première figure. Sur la figure de pôles $<110>_\beta$ (figure B.5(e)), les pôles correspondant au grain $\beta_1$ sont en bleu, et ceux du grain $\beta_2$ en rouge. Cette figure met en évidence la proximité d'orientation de plusieurs plans {110} dans les deux grains. Deux paires sont repérées par des cercles.

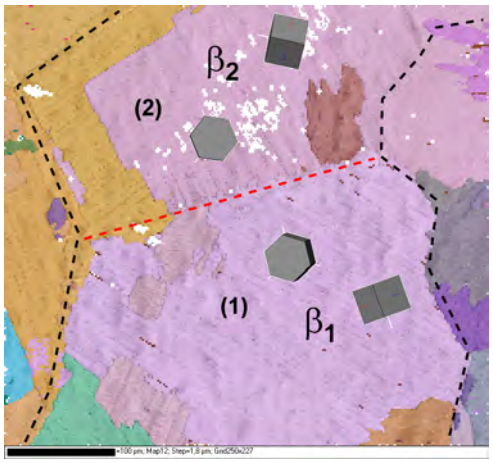
L'ancien joint de grain est décoré de deux couches $\alpha_{GB}$, à partir desquelles ont germé des colonies dans les deux grains bêta. L'orientation cristallographique de ces colonies est telle que leur plan basal coïncide avec les paires de plans (110) indiquées sur la figure B.5(e).

Ces deux exemples illustrent l'influence de l'orientation relative des grains bêta sur celle de la phase $\alpha_{GB}$. La proximité d'orientation des plans {110} semble jouer un rôle important. Entre deux grains bêta peuvent être composées 36 paires de plans {110}. La phase $\alpha_{GB}$ et les colonies qui lui sont rattachées ont un plan basal qui coïncide avec les plans {110} formant la paire la plus faiblement désorientée entre les deux grains bêta. Des colonies peuvent croître de part et d'autre de la couche $\alpha_{GB}$. Une désorientation de quelques degrés entre la couche et les colonies peut être nécessaire de manière à ce que les relations de Burgers soient respectées par les variants de chaque ancien grain bêta. Dans cette configuration, la couche $\alpha_{GB}$ est en relation de Burgers approchée avec les deux grains.

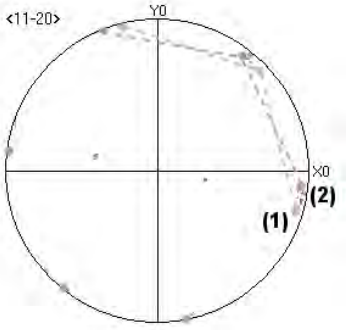
En l'absence d'orientation proche entre plans {110} de grains bêta voisins, les anciens joints



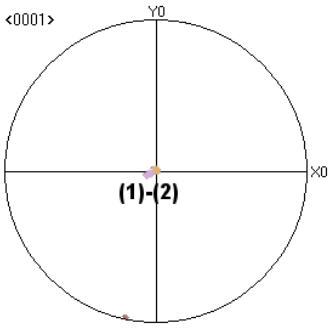

(a) Contraste de bandes



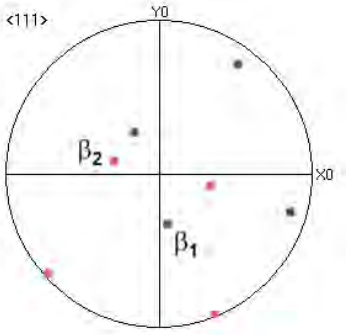

(b) Cartographie d'orientations



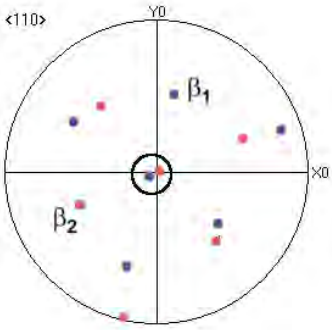

(c) Figure de pôles <a>$_\alpha$




(d) Figure de pôles <c>$_\alpha$

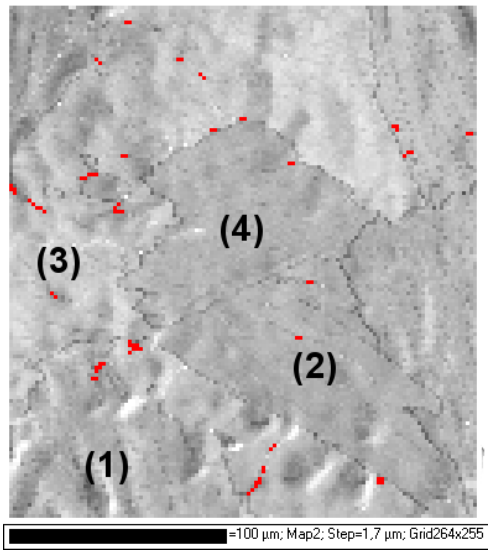



(e) Figure de pôles <111>$_\beta$

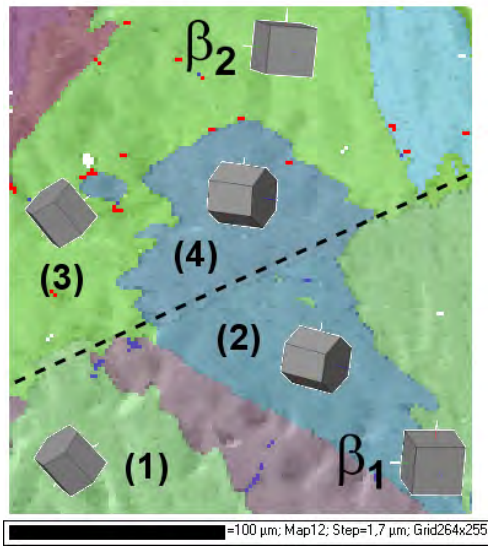



(f) Figure de pôles <110>$_\beta$

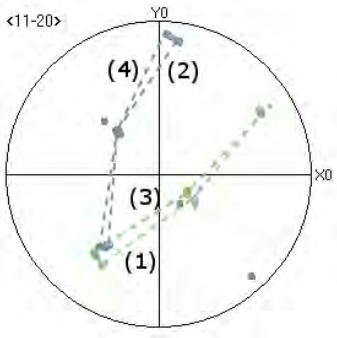
**Figure B.4 :** *Analyse EBSD d'un ancien joint de grains bêta et des colonies qui y sont rattachées. En bleu : pôles du grain $\beta_1$ ; en rouge : pôles du grain $\beta_2$.*



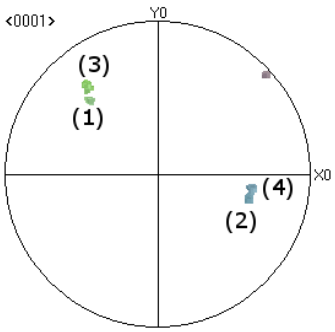

(a) Contraste de bandes



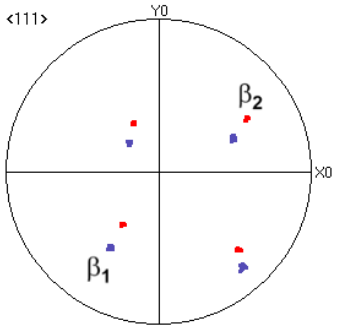

(b) Cartographie d'orientations



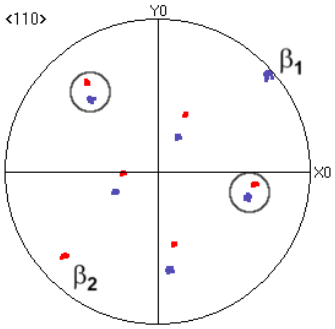

(c) Figure de pôles <a>$_\alpha$




(d) Figure de pôles <c>$_\alpha$




(e) Figure de pôles $<111>_\beta$




(f) Figure de pôles $<110>_\beta$

**Figure B.5 :** *Analyse EBSD d'un ancien joint de grains bêta et des colonies qui y sont rattachées. En bleu : pôles du grain $\beta_1$ ; en rouge : pôles du grain $\beta_2$.*

de grain bêta sont décorés de plusieurs couches $\alpha_{GB}$, chacune étant en relation de Burgers approximative avec un seul des deux grains. Chaque couche $\alpha_{GB}$ ne sert alors de site de germination à des colonies que dans un seul des grains bêta. Dans cette configuration, les anciens joints de grains peuvent être difficiles à distinguer. Cela est par exemple le cas dans la figure B.1.

# Annexe C

# Désorientation entre plans {110} de cristaux cubiques

Le modèle que nous présentons dans cette annexe a été développé dans le cadre de l'étude expérimentale sur la phase alpha allotriomorphe présentée chapitre 3. Dans les alliages de titane alpha/bêta, le développement de cette phase localisée aux joints de grains bêta est tributaire des orientations respectives des grains adjacents. Nous montrons que dans le Zircaloy-4, l'écart angulaire minimal entre les plans {110} de chaque grain est un facteur d'importance pour l'orientation cristalline de la phase alpha allotriomorphe. Nous nous sommes donc intéressés à la distribution de ces angles dans un cas simplifié.

Des travaux similaires ont déjà été réalisés. McKenzie s'est le premier intéressé au problème de la désorientation entre deux cubes orientés aléatoirement en procédant par la méthode de Monte-Carlo [MT57]. Handscomb a ensuite exprimé analytiquement la distribution des angles de désorientation [Han58], représentée figure C.1. La valeur maximale de cette distribution vaut 62.8 °, le mode 45 °, et la valeur moyenne 42,7 °.

Notre modèle s'inscrit dans la démarche de Mckenzie. Il s'appuie sur un pavage hexagonal périodique du plan, chaque cellule représentant un grain bêta. Une orientation aléatoire décrite par les angles d'Euler est attribuée à chaque grain. Le repère de référence (X,Y,Z) est orthonormé et lié à l'échantillon. La convention de Bunge considère 3 rotations successives pour passer du repère échantillon au repère du cristal ([100],[010],[001]) (figure C.2) :

- rotation d'angle $\varphi_1$ autour de l'axe Z,
- rotation d'angle $\phi$ autour de l'axe X', transformé de X par la rotation précédente,
- rotation d'angle $\varphi_2$ autour du nouvel axe [001],

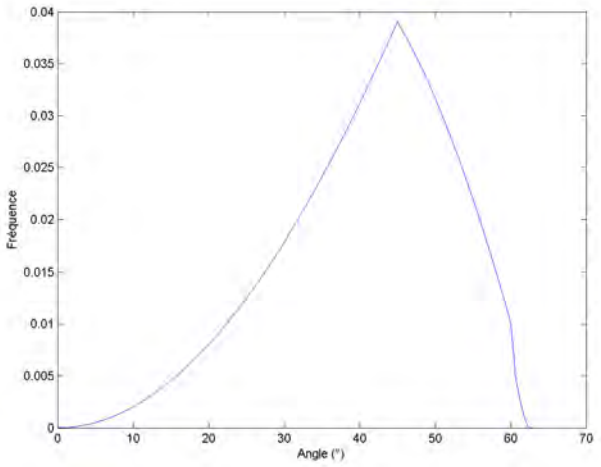



**Figure C.1 :** *Distribution des angles de désorientation entre deux cubes orientés aléatoirement (d'après [Han58]).*

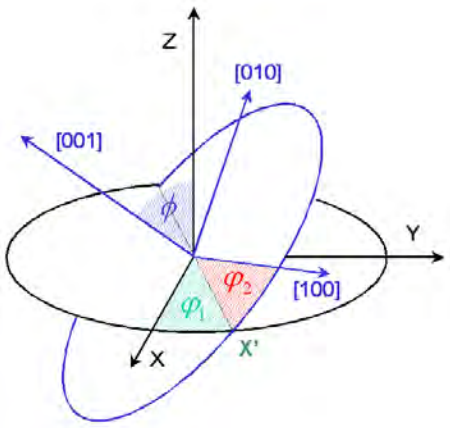



**Figure C.2 :** *Définition des angles d'Euler selon la convention de Bunge.*

La matrice de rotation associée au triplet d'angles d'Euler s'écrit :

$$P = \begin{bmatrix} \cos\varphi_1 \cos\varphi_2 - \sin\varphi_1 \sin\varphi_2 \cos\phi & \sin\varphi_1 \cos\varphi_2 + \cos\varphi_1 \sin\varphi_2 \cos\phi & \sin\varphi_2 \sin\phi \\ -\cos\varphi_1 \sin\varphi_2 - \sin\varphi_1 \cos\varphi_2 \cos\phi & -\sin\varphi_1 \sin\varphi_2 + \cos\varphi_1 \cos\varphi_2 \cos\phi & \cos\varphi_2 \sin\phi \\ \sin\varphi_1 \sin\phi & -\cos\varphi_1 \sin\phi & \cos\phi \end{bmatrix}$$

A partir de 3 nombres aléatoires $n_1$, $n_2$, $n_3$ compris entre 0 et 1, les angles sont exprimés par :

$$\begin{aligned} \varphi_1 &= 360 n_1 \\ \phi &= \arccos(2n_2 - 1) \\ \varphi_2 &= 360 n_3 \end{aligned}$$

On a :

$$\begin{aligned} 0 \leq \varphi_1 &\leq 2\Pi \\ 0 \leq \phi &\leq \Pi \\ 0 \leq \varphi_2 &\leq 2\Pi \end{aligned}$$

Pour chaque grain, la matrice de rotation est appliquée aux 6 directions $< 110 >$. Pour chaque paire de grains adjacents A et B, l'algorithme considère toutes les paires de vecteurs $\{< 110 >_A, < 110 >_B\}$ réalisables, soit 36 combinaisons, et calcule les produits scalaires correspondants. De manière à ne retenir que les angles aigus, 2 produits scalaires sont calculés pour chaque paire de vecteurs, l'un des deux étant inversé pour le deuxième calcul. Seul l'angle minimal est retenu.

# Annexe D

# Notions de traitement d'images

Nous ne prétendons pas dans cette annexe présenter de manière formelle les bases du traitement et de l'analyse d'images. Nous introduisons plutôt quelques notions nécessaires à l'appréhension des problèmes liés à l'extraction d'informations à partir des images volumétriques de TA6V lamellaire présentées au chapitre 4. Nous décrivons en fin d'annexe deux stratégies alternatives de segmentation basées sur l'évaluation des textures formées par les alternances de lamelles.

## D.1 Représentation d'une image en niveaux de gris

Indépendamment de sa provenance, une image numérique est généralement représentée par un tableau dont les valeurs correspondent à une couleur ou un niveau de gris. Chaque élément du tableau est appelé un *pixel* (*Picture Element*), et repéré par ses coordonnées. Un codage en couleur requiert 3 nombres par pixel, alors qu'un codage en niveaux de gris n'en requiert qu'un seul. Ce dernier cas est le plus courant. En fonction de la résolution dans l'échelle des niveaux de gris, ceux-ci peuvent être codés en 2 bits (noir et blanc), 8 bits (256 nuances), ou plus. La distribution des niveaux de gris d'une image, habituellement représentée par un histogramme, est une donnée importante. Une image comportant des zones claires et des zones sombres (par exemple des cavités dans une microstructure observée en champ clair) aura un histogramme bimodal. Si la séparation des différentes zones est requise, celle-ci pourra s'appuyer sur une opération portant directement sur toute l'image par le biais d'une binarisation de l'histogramme. Ces considérations très générales sont valables en trois dimensions, domaine duquel l'imagerie médicale est famillière depuis une vingtaine d'années. L'équivalent d'un pixel en trois dimensions est appelé un *voxel*.

D'une manière générale, la segmentation est le but poursuivi en analyse d'images. L'opération de segmentation consiste à séparer l'image en constituants distincts. En science des matériaux, il peut s'agir de délimiter des grains de manière à pouvoir évaluer la distribution statistique

des tailles de grains, d'isoler des précipités afin de caractériser leur répartition spatiale, etc. La problématique qui nous concerne dans ces travaux consiste à isoler les différentes colonies dans une image tridimensionnelle d'un échantillon de TA6V.

Selon la nature du problème, plusieurs démarches peuvent être envisagées. Notons qu'il n'existe pas de stratégie générique permettant à tout coup de segmenter une image quelconque. Les traitements préalables à la segmentation doivent être choisis en fonction des propriétés de l'image et de l'objectif recherché. Sans entrer dans les détails, mentionnons que les opérations les plus courantes sont le débruitage, consistant à éliminer les variations ponctuelles de niveaux de gris, la détection de contours, portant sur les dérivées premières ou secondes du signal, et les modifications de l'histogramme.

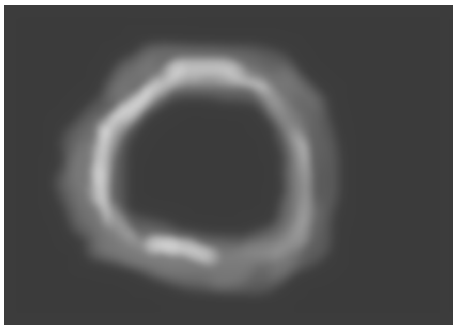
Les opérations de segmentation peuvent être classées en deux grandes catégories, selon qu'elles agissent sur les zones de discontinuités de l'image préalablement traitée, ou, au contraire, sur les zones homogènes. On parle respectivement de segmentation par contours ou par régions. Les deux approches sont duales : une région est délimitée par un contour, et un contour est défini comme une zone séparant deux régions. La démarche présentée au chapitre 4 est mixte : les contours des colonies sont d'abord évalués grossièrement (calcul de produits scalaires locaux de vecteurs représentant l'orientation des colonies), puis une opération de ligne de partage des eaux, portant sur les zones homogènes situées entre ces contours, permet de les préciser. Cette dernière opération est décrite plus en détail dans la section suivante.

## D.2 Ligne de partage des eaux

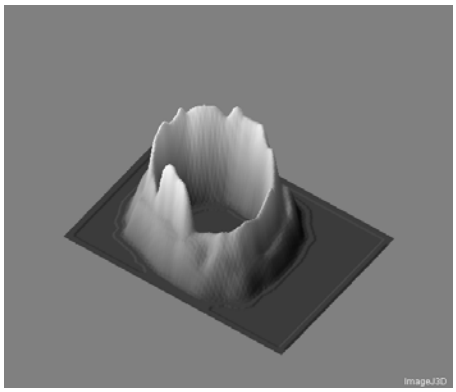
La segmentation par ligne de partage des eaux repose sur une analogie entre la surface définie par les niveaux de gris d'une image et un relief géographique. Chaque niveau de gris est associé à une altitude. Le relief comporte en général plusieurs minima locaux. La zone d'influence d'un minimum local est appelée un bassin versant. La ligne de partage des eaux est définie comme la ligne de crête délimitant deux bassins versants. Un exemple est montré figure D.1. L'image initiale présente un "anneau" diffus de niveau de gris variable (figures D.1(a) et (b)). L'opération de ligne de partage des eaux permet d'isoler la ligne de crête entourant le bassin versant défini par l'anneau. Sur les figures D.1(c) et (d), la ligne de crête, légèrement dilatée pour les besoins de la visualisation, est superposée à l'image initiale.

La technique de l'immersion de l'image permet de déterminer les lignes de crête. Il faut imaginer chaque minimum percé d'un trou. Le relief est progressivement inondé à partir de ces trous. Les lignes de crête alors sont définies comme les zones où se rencontrent les eaux issues de minima différents.

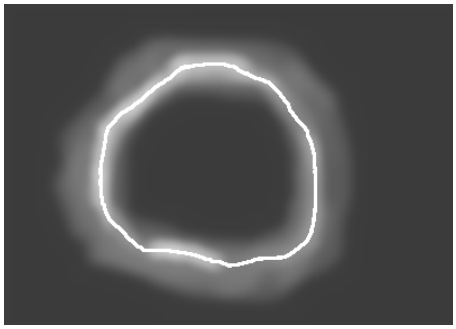
Il peut être nécessaire de ne pas tenir compte de certains minima locaux, non significatifs au regard des constituants à segmenter. Une méthode consiste à indiquer à l'algorithme de ligne de partage des eaux les positions approximatives des bassins versants significatifs. Il s'agit de



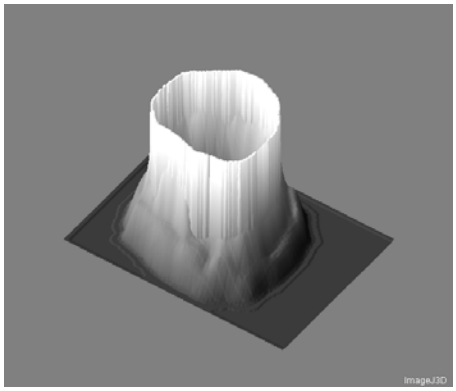
(a) Image initiale



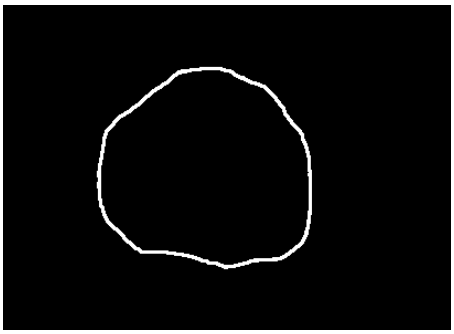
(b) Image initiale (topographie)



(c) Image initiale et ligne de crête



(d) Image initiale et ligne de crête (topographie)



(e) Ligne de crête

**Figure D.1 :** *Exemple de segmentation par ligne de partage des eaux.*

l'approche par marqueurs, utilisée dans la dernière partie de la démarche de segmentation des images 3D de TA6V présentée au chapitre 4. L'image des marqueurs est généralement dérivée de l'image initiale après des traitements visant à effacer les minima inutiles.

Le concept de ligne de partage des eaux peut être étendu en trois dimensions. On peut pour s'en donner une idée en considérant un matériau présentant des fluctuations de densité. Les lignes de crête sont alors définies comme les surfaces séparant les zones de plus faible densité.

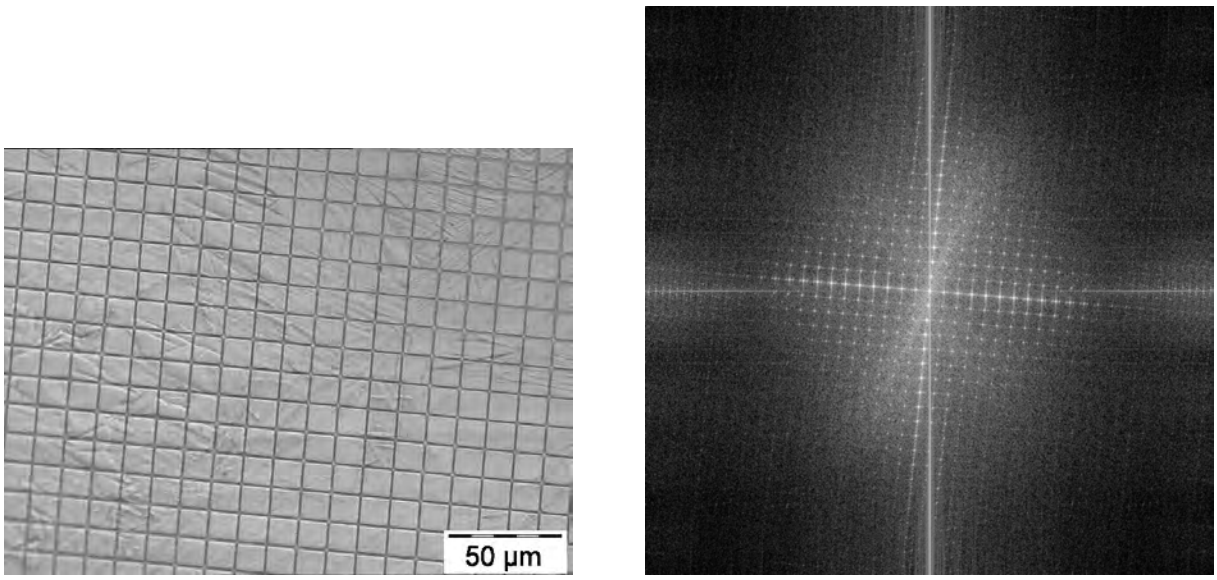
## D.3 Analyse fréquentielle et convolution

Nous présentons dans cette section deux approches pour la segmentation des volumes obtenus par microtomographie, qui, pour s'être révélées infructueuses dans leur application pratique, sont éclairantes pour la compréhension de la problématique de segmentation des textures orientées.

En traitement du signal, la tranformation de Fourier met en évidence les périodicités du signal d'entrée. L'information la plus utile est le spectre de fréquences, qui indique les fréquences fondamentales et leurs harmoniques. Il en va de même pour des images en deux et trois dimensions, où la transformée de Fourier se présente sous la forme d'un champ scalaire dans l'espace des fréquences spatiales. Dans un espace discret, ce champ est un nuage de points codé en niveaux de gris. Un exemple est présenté figure D.2. L'image initiale montre un masque de microgrille. Cette image est caractérisée par une périodicité spatiale dans deux directions perpendiculaires légèrement désorientées par rapport aux directions verticale et horizontale. La transformée de Fourier, figure D.2(b), fait apparaître une série de pics

Dans le cas des microstructures de Widmanstätten, l'image initiale présente des domaines distincts, les colonies, caractérisés par des motifs périodiques. Ces motifs sont définis par une alternance périodique de zones étendues claires et sombres – les phases bêta et alpha. On parle alors de texture orientée. Les différentes textures présentes dans une image se manifestent par certaines valeurs élevées dans l'espace des fréquences spatiales. Un exemple de transformée de Fourier d'un volume de TA6V est montré figure D.3.

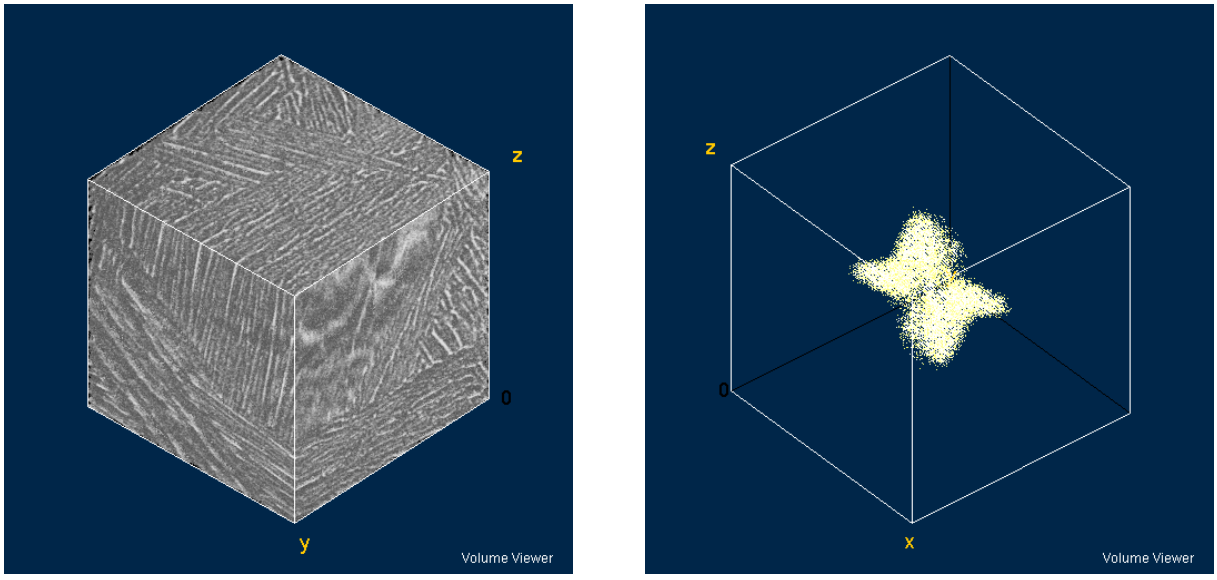
Des excroissances sont visibles, qui correspondent à des variations orientées de niveaux de gris dans des directions privilégiées au sein du volume initial. Certaines alternances de niveaux de l'image initiale peuvent être isolées à l'aide d'un masque agissant directement sur la transformée. Après inversion, cette opération permet de mettre en évidence certaines colonies de texture équivalente. Ce procédé est présenté de manière simplifiée, en deux dimensions, sur la figure D.4. La micrographie figure D.4(a) montre deux colonies de textures différentes. La transformée de Fourier (figure D.4(b)) comporte deux directions d'intensité maximale, une par texture. En modifiant la transformée de telle sorte que l'une des deux directions soit effacée (figure D.4(c)), il est possible de provoquer la disparition de l'une des textures sur la transformée inverse (figure D.4(d)). Une texture parasite, peu marquée, est cependant induite par les discontinuités créées dans la transformée ; elle est visible à l'emplacement de la colonie effacée. Elle peut être effacée




(a) Image originale

(b) Transformée de Fourier

**Figure D.2 :** *Transformée de Fourier d'une image représentant un masque de microgrille.*




(a) Image originale

(b) Transformée de Fourier

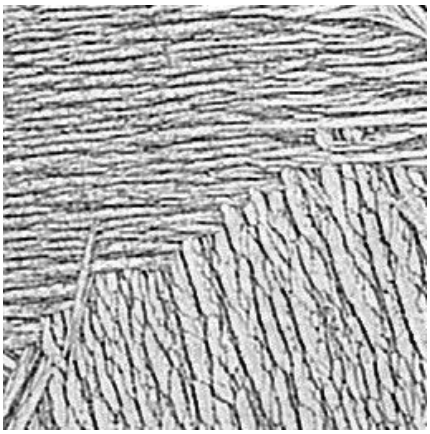
**Figure D.3 :** *Transformée de Fourier d'un volume de 50 µm de côté contenant quelques colonies.*

de plusieurs manières, la solution retenue pour cet exemple reposant sur un filtrage diffusif anisotrope type Peron-Malik. Ce filtre a pour effet de réduire le bruit tout en conservant la cohérence des structures directionnelles. Ainsi, l'image filtrée ne comporte plus de texture dans la zone inférieure (figure D.4(e)). Il est maintenant possible de segmenter la colonie située dans zone supérieure par un seuillage (figure D.4(f)). Cette dernière opération peut éventuellement être précédée d'opérations morphologiques de dilatation-érosion, de manière à homogénéiser la zone à segmenter.

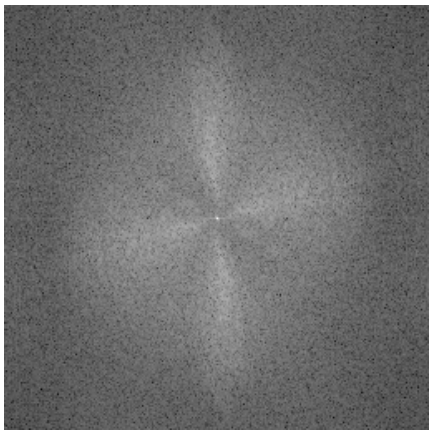
Cette démarche peut en principe donner de bons résultats en trois dimensions, mais en pratique elle reste difficile à mettre en oeuvre. La modification de la transformée de Fourier est en effet délicate à effectuer en trois dimensions. Par ailleurs, il n'est possible de segmenter qu'une seule colonie à la fois.

Une méthode voisine consiste à effectuer une convolution du volume avec un sous-volume sélectionné dans une colonie. L'opération de convolution se traduit dans l'espace de Fourier par une multiplication des transformées. L'image initiale est balayée par une autre image de taille inférieure, appelée le noyau. A chaque pixel est affecté une valeur d'autant plus élevée que le noyau est similaire avec le voisinage de ce pixel. Ainsi, en sélectionnant une zone homogène située à l'intérieur d'une colonie comme noyau, la convolution aura pour effet de créer un contraste entre cette colonie et ses voisines. Un exemple simplifié, en deux dimensions, est présenté figure D.5. L'image de départ comporte deux colonies. L'expérience montre qu'il est préférable de travailler sur une image initiale binarisée (figure D.5(b)). Un noyau est sélectionné dans la colonie supérieure (carré rouge dans la figure D.5(b)), puis l'opération de convolution est appliquée. L'image résultante montre que la colonie supérieure apparaît en clair alors que l'autre apparaît en sombre (figure D.5(c)). Les opérations suivantes visent à accentuer ce contraste et à effacer la texture résiduelle de la colonie inférieure. Comme dans l'exemple précédent, un filtre diffusif anisotrope donne des résultats corrects, pourvu que cette texture ne soit pas trop marquée (figure D.5(d)). L'image peut ensuite être seuillée, de telle sorte que n'apparaît plus que la colonie supérieure (figure D.5(e)).

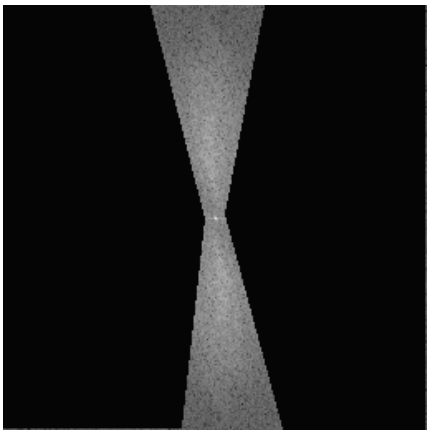
Comme dans le cas précédent, cette méthode est délicate à transposer en trois dimensions. Le choix du noyau requiert généralement plusieurs essais, et une seule colonie peut être segmentée à la fois.



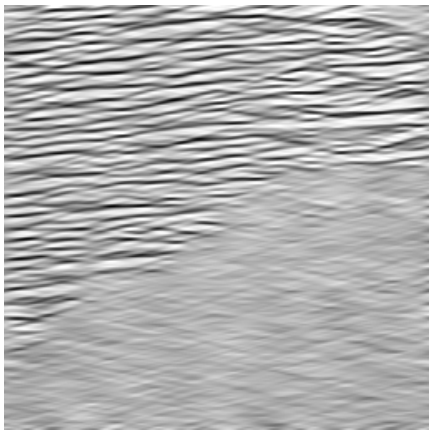
(a) Image initiale



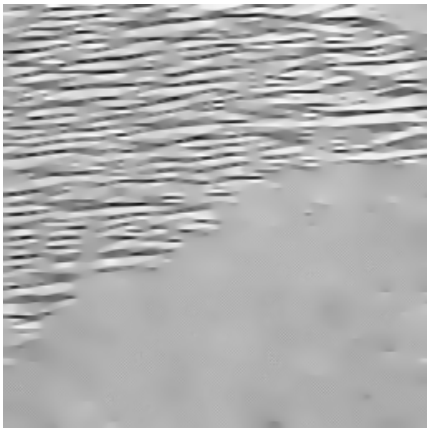
(b) Transformée de Fourier



(c) Transformée modifiée



(d) Transformée inverse

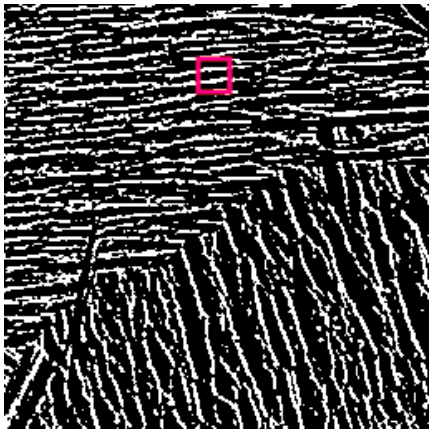


(e) Transformée inverse filtrée

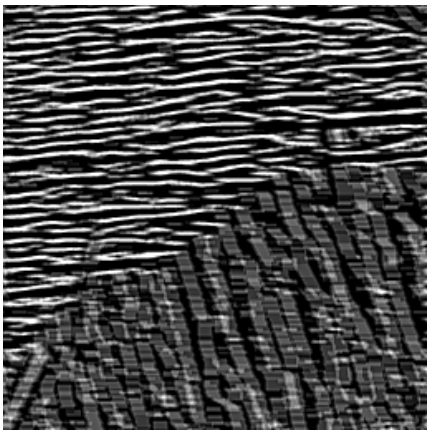
(f) Image seuillée

**Figure D.4 :** *Segmentation de zones de texture homogène par modification de la transformée de Fourier en deux dimensions.*

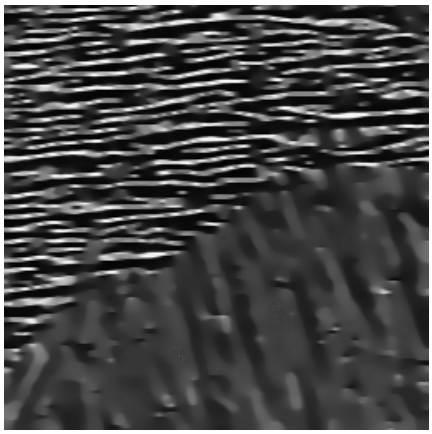
(a) Image initiale



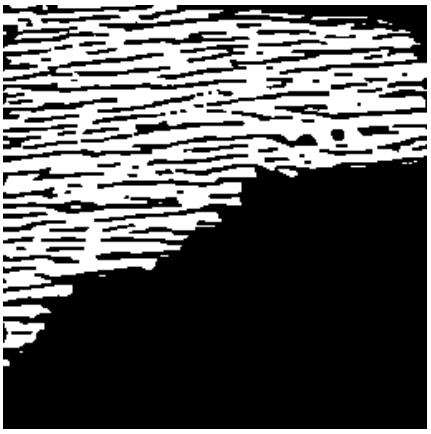
(b) Image seuillée et noyau



(c) Convolution de l'image (b) avec le noyau



(d) Convolution filtrée



(e) Image seuillée

**Figure D.5 :** *Segmentation de zones de texture homogène par convolution en deux dimensions.*

# Annexe E

# Analyse mécanique d'un dispositif de channel-die à parois mobiles

Cette annexe présente une étude comparative des dispositifs de compression plane encastrée à parois fixes et à parois mobiles en usage à l'Ecole des Mines de Saint-Etienne. Le premier a été conçu dans les années 90 et depuis a été utilisé dans de nombreuses études [MD93, MPKD05]. Le second a été développé dans le cadre de nos travaux sur le Zircaloy-4 [VDDM06, VDGID08]. Hormis le matériau, l'environnement et le procédé de chauffage, la différence principale entre le dispositif classique, limité à 600 °C, et celui que nous avons développé réside dans la mobilité relative des parois par rapport à l'échantillon. Il s'agit à notre connaissance du premier montage basé sur ce principe. En parallèle aux études portant sur le Zircaloy-4 déformé dans le haut domaine alpha, il a donc été nécessaire d'évaluer la validité des résultats obtenus avec ce nouveau dispositif, en les comparant avec ceux fournis par le dispositif à parois fixes.

Des essais de compression sur les deux dispositifs avec le même matériau, ainsi qu'une modélisation par éléments finis, ont été mis en oeuvre en ce sens. La modélisation a permis de valider une procédure fiable d'extraction des données rhéologiques à partir des données brutes pour le dispositif à parois mobiles. Les résultats obtenus permettent en outre de mieux comprendre les nettes différences de répartition de la déformation dans l'échantillon pour les deux dispositifs.

Les essais mécaniques ont été effectués avec un acier bas carbone d'usage courant, le XC10, à température identique et avec le même lubrifiant. Sa composition comprend principalement, en masse 0,08 à 0,13 % de carbone, 0,3 à 0,6 % de manganèse, le reste de fer. Les tests ont été effectués à 400 et 500 °C, à une vitesse de déformation de 0,1 $s^{-1}$. Nous avons vu que dans le nouveau dispositif à parois mobiles, les pièces et l'échantillon sont chauffés ensemble. Cela diffère du dispositif à parois fixes, où l'échantillon est habituellement mis en place quelques minutes avant le début de la compression. Pour ces tests, les échantillons ont été placés en début de chauffage dans les deux dispositifs, de manière à garantir un état identique pour le matériau et le lubrifiant au début de l'essai. Dans les deux configurations, la température de consigne est

atteinte en environ 15 minutes. Le lubrifiant utilisé est du nitrure de bore en spray.

Les contraintes ont été évaluées d'après la méthode établie pour le dispositif à parois fixes [CDM02]. Ce choix est justifié plus loin. Le matériau est considéré comme un solide isotrope de von Mises avec une contrainte d'écoulement $\sigma_0$. Celle-ci varie avec la déformation équivalente $\overline{\epsilon}$, qui en compression plane s'exprime par

$$\overline{\epsilon} = \frac{2}{\sqrt{3}} \ln(\frac{h_0}{h}) \tag{E.1}$$

avec

– $\overline{\epsilon}$ : déformation équivalente au sens de von Mises
– $h_0$ : hauteur initiale de l'échantillon
– $h$ : hauteur courante

Les frottements sont pris en compte par l'intermédiaire d'une contrainte de cisaillement décrite par la formulation de Tresca :

$$\tau = \overline{m} \frac{\sigma_0}{\sqrt{3}} \tag{E.2}$$

avec

– $\tau$ : contrainte de cisaillement due aux frottements
– $\sigma_0$ : contrainte d'écoulement
– $\overline{m}$ : coefficient de Tresca

Le coefficient $\overline{m}$ a été pris égal à 0,1, d'après de précédents travaux [DGLCM02]. La contrainte $\sigma_0$ est extraite de la containte appliquée $\sigma_a$ par l'intermédiaire du rapport entre les puissances de frottement $\dot{W^F}$ et de déformation plastique $\dot{W^P}$. La puissance transmise par le déplacement de la traverse est la somme de ces deux grandeurs, et il est nécessaire d'évaluer leurs contributions respectives. L'analyse présentée dans [CDM02] établit une formulation analytique dans le cas du dispositif classique à parois fixes. Cette formulation repose sur l'hypothèse forte d'une déformation homogène au sein du matériau, ce qui n'est pas toujours le cas, même avec une lubrification efficace. Les résultats sont cependant très proches de ceux issus d'une simulation par éléments finis et d'une analyse variationnelle. Il apparaît donc que la répartition exacte des déformations n'a que peu d'influence sur la valeur de la contrainte d'écoulement. Celle-ci peut ainsi être exprimée en fonction de la contrainte appliquée par une formulation analytique simple :

$$\sigma_0 = \sigma_a \left(1 + \frac{\dot{W_F}}{\dot{W_P}}\right)^{-1} \tag{E.3}$$

avec

– $\sigma_0$ : contrainte d'écoulement
– $\sigma_a$ : contrainte appliquée
– $\dot{W_F}$ : puissance de frottement

– $\dot{W}_P$ : puissance de déformation plastique

L'expression analytique de $\frac{\dot{W}_E}{\dot{W}_P}$ montre que ce rapport est proportionnel à $\overline{m}$ [DGLCM02, DGV$^+$03], et dépend de la déformation équivalente ainsi que du rapport d'aspect initial de l'échantillon.

Cette analyse a été appliquée aux deux dispositifs. La simulation par éléments finis présentée plus loin en établit la validité pour le dispositif à parois mobiles. Les courbes contrainte-déformation sont présentées figure E.1. Jusqu'à $\overline{\epsilon} = 0,2$, les contraintes correspondant au dispositif à parois fixes sont supérieures à celles du dispositif à parois mobiles. En régime stationnaire, les courbes sont relativement similaires, en particulier à 500 °C. Dans les deux cas, l'échantillon doit s'adapter aux dimensions du dispositif, mais cela prend plus de temps avec les parois mobiles.

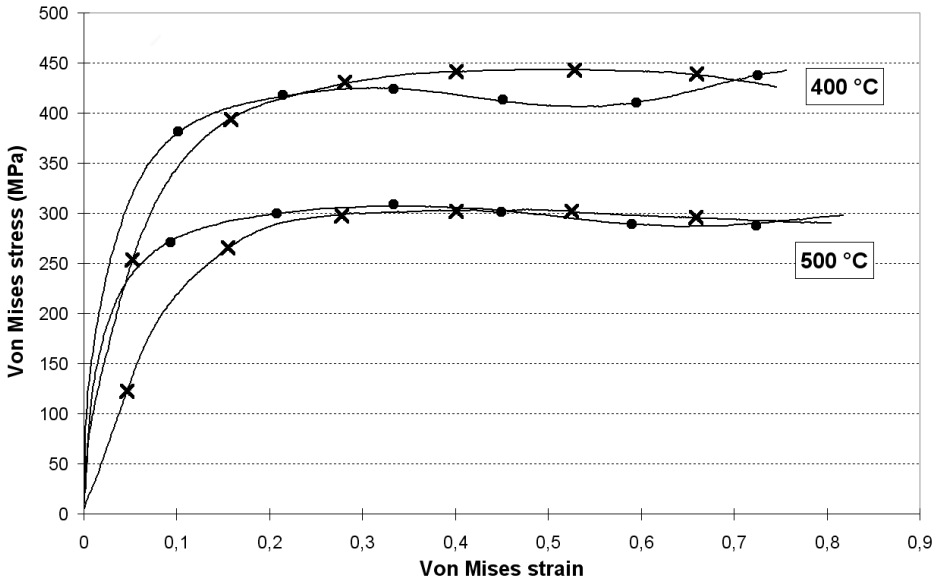



**Figure E.1 :** *Courbes contrainte-déformation d'échantillons d'acier XC10 comprimés dans les dispositifs à parois fixes (ronds) et mobiles (croix), à 400 et 500 °C et* $\dot{\overline{\epsilon}} = 0,1\ s^{-1}$.

Si le comportement rhéologique des échantillons est comparable, ceux-ci présentent un aspect différent après déformation. En effet, les échantillons testés dans l'équipement à parois fixes sont dissymétriques par rapport au plan médian horizontal, la partie supérieure étant plus étendue que la partie inférieure (figure E.2). En revanche, les échantillons déformés dans le dispositif à parois mobiles sont symétriques, avec un léger bombement. Comme nous allons le montrer, cette hétérogénéité macroscopique trouve son origine dans les différences de vitesse entre les surfaces supérieure et inférieure de l'échantillon, différences accentuées lorsque le coefficient de frottement est élevé.

Deux configurations ont été simulées avec le code ABAQUS : la première correspond au dispositif à parois fixes, la seconde au dispositif à parois mobiles. Dans ce dernier cas, un degré

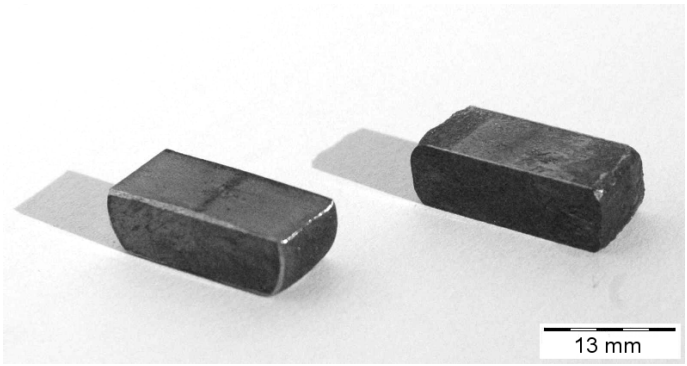



**Figure E.2 :** *Echantillons d'acier XC10 déformés dans le dispositif de channel-die à parois fixes (gauche) et à parois mobiles (droite). $T = 400$ °C, $\overline{\epsilon} = 0,75$, $\dot{\overline{\epsilon}} = 0,1\ s^{-1}$.*

de liberté vertical est accordé aux parois, qui sont en fait entraînées lorsque l'échantillon se déforme. Les outils sont traités comme des solides indéformables, et l'échantillon suit une loi de Norton-Hoff de la forme :

$$\sigma_0 = k\dot{\overline{\epsilon}}^m \tag{E.4}$$

avec

- $\sigma_0$ : contrainte d'écoulement
- $\dot{\overline{\epsilon}}$ : vitesse de déformation équivalente
- $k$ : consistance
- $m$ : sensibilité à la vitesse

Les essais étant isothermes, la température n'intervient pas dans la formulation. L'échantillon est maillé avec des éléments à 8 noeuds de type C3D8. Le contact entre l'échantillon et les outils est traité par la méthode des multiplicateurs de Lagrange de manière à empêcher la pénétration des noeuds dans les outils. Le comportement tangentiel est traité par la méthode des pénalités et la contrainte de cisaillement due aux frottements $\tau$ est calculée à l'aide de la contrainte d'écoulement locale dans les éléments en contact avec les outils. Le problème est résolu de manière incrémentale en prenant pour condition que l'équilibre est atteint à la fin de chaque incrément. Les effets dynamiques sont donc négligés, la vitesse de déformation étant fixée à $\dot{\overline{\epsilon}} = 0,1\ \mathrm{s}^{-1}$. La consistance $k$ est prise égale à $350\ \mathrm{MPa} \cdot \mathrm{s}^{\mathrm{m}}$, et la sensibilité à la vitesse $m$ à 0,12 ; il s'agit d'un ordre de grandeur raisonnable pour plupart des matériaux métalliques. Le coefficient de frottement $\overline{m}$ est compris entre 0,02 et 0,2.

La figure E.3 présente les contributions des travaux de frottement et plastique en fonction de la déformation pour $\overline{m} = 0,1$ dans les deux configurations. Les résultats sont équivalents pour $0,02 \leq \overline{m} \leq 0,2$. Il apparaît que le mouvement des parois relativement à l'échantillon n'a pas d'influence notable sur la répartition ou la somme de ces grandeurs. Hormis dans les premiers

instants, les différences de contribution sont stables et valent 10 % pour les frottements et 90 % pour la déformation plastique.

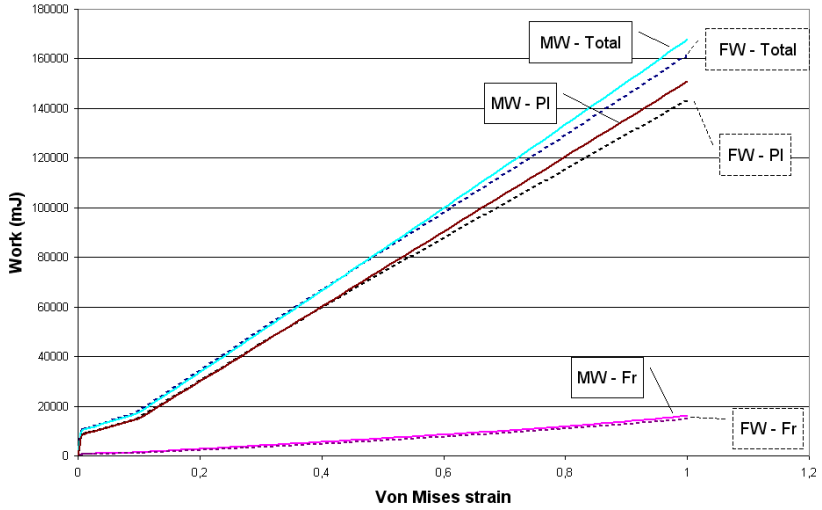


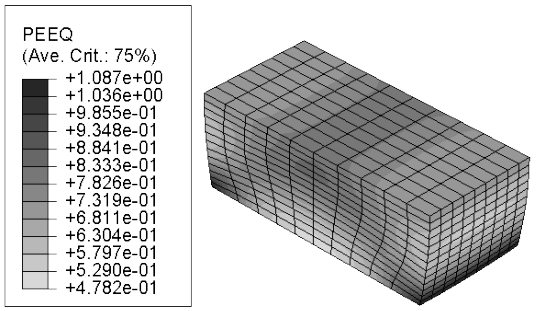

**Figure E.3 :** *Répartitions calculées des travaux de déformation plastique (Pl) et de frottement (Fr) dans les montages à parois fixes (FW - Fixed Walls, pointillés) et parois mobiles (MW - Mobile Walls, traits pleins).*

En revanche, ainsi que le montre la figure E.4, la forme des échantillons comprimés diffère significativement selon que les parois sont fixes ou mobiles. Cet effet est en accord avec les résultats expérimentaux (figure E.2), et est d'autant plus marqué que le coefficient de frottement est élevé.

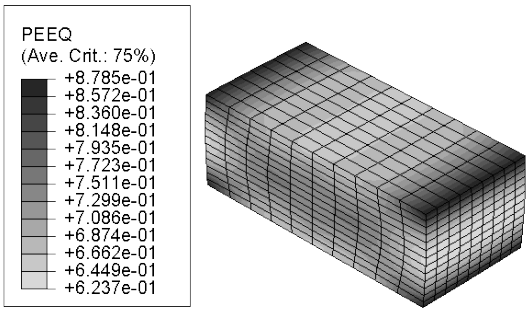
Dans les deux cas, les échantillons sont déformés de manière hétérogène. La figure E.5 fournit une représentation de la distribution de la déformation plastique équivalente calculée aux centres des éléments d'intégration pour les deux configurations, et pour différents coefficients de frottement, dans des échantillons déformés à $\bar{\epsilon} = 0,8$. Il apparaît que la distribution est plus étalée pour le dispositif à parois fixes que pour le dispositif à parois mobiles. Cette tendance est particulièrement visible pour les valeurs élevées de coefficient de frottement.

L'évolution dans le temps des hétérogénéités de déformation plastique peut être visualisée grâce à l'exemple présenté figure E.6. Les différentes courbes correspondent aux valeurs de déformation plastique équivalente calculées aux centres de 36 éléments situés dans la partie centrale du plan de symétrie vertical de l'échantillon. Il s'agit de la "zone utile" de l'échantillon. Le coefficient de frottement vaut 0,10. Il apparaît que la dispersion augmente avec la déformation macroscopique dans le cas du dispositif à parois fixes, à la différence du dispositif à parois mobiles pour lequel la dispersion reste stable.

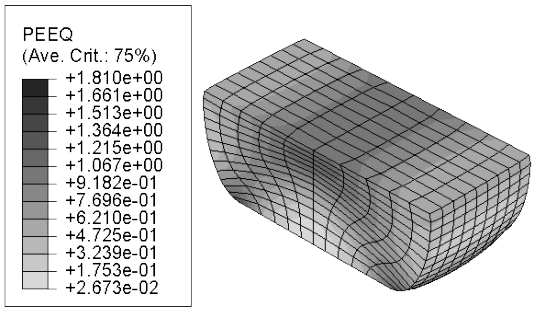
Le déplacement relatif des parois par rapport à l'échantillon affecte donc la répartition de la déformation plastique équivalente, qui en retour détermine la forme de l'échantillon. Lorsque les



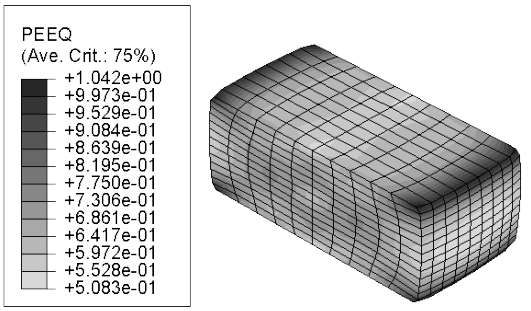

(a) $\overline{m} = 0,02$



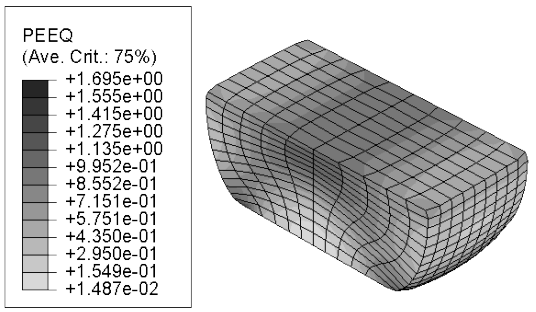

(b) $\overline{m} = 0,02$



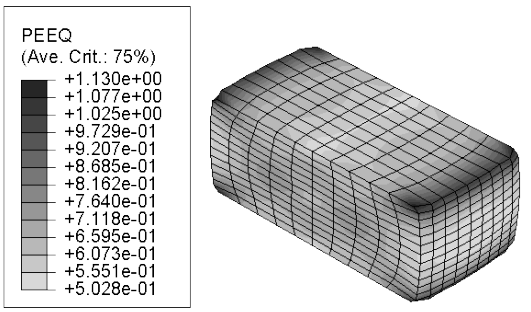

(c) $\overline{m} = 0,10$




(d) $\overline{m} = 0,10$

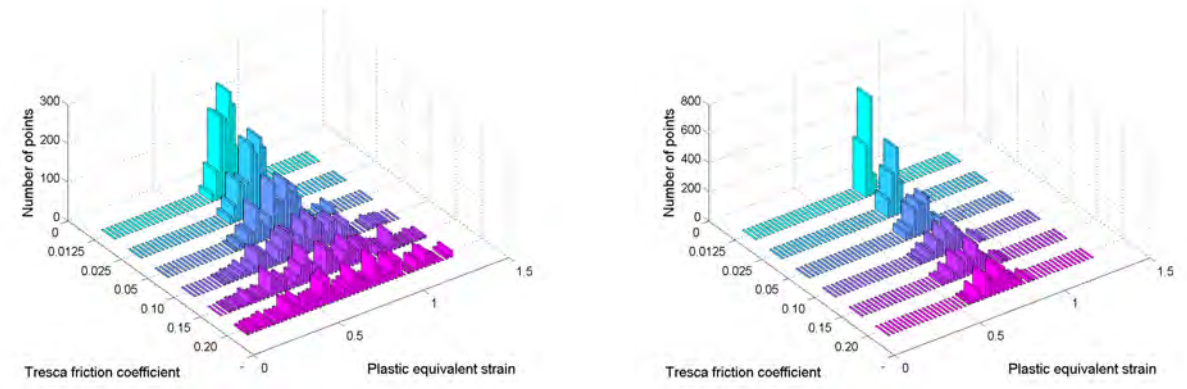



(e) $\overline{m} = 0,20$




(f) $\overline{m} = 0,20$

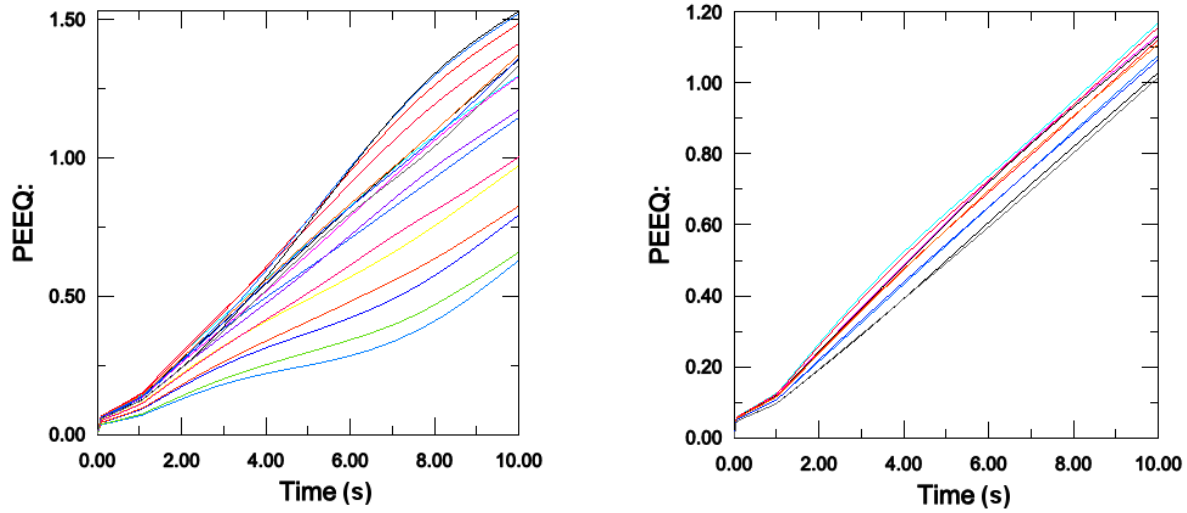
**Figure E.4 :** *Contours de déformation plastique équivalente calculée à $\overline{\epsilon} = 0,8$ pour les dispositifs à parois fixes (gauche) et mobiles (droite), pour différentes valeurs de coefficient de frottement.*




(a) Parois fixes

(b) Parois mobiles

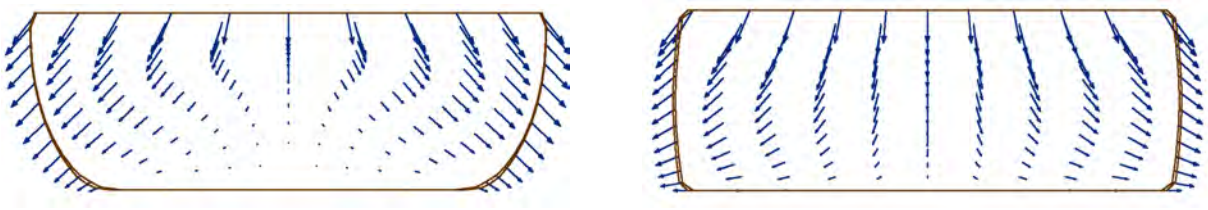
**Figure E.5 :** *Distribution de la déformation plastique équivalente calculée à* $\overline{\epsilon} = 0,8$ *et* $\dot{\overline{\epsilon}} = 0,1\ s^{-1}$ *pour les dispositifs à parois fixes et mobile et différentes valeurs du coefficient de frottement.*




(a) Parois fixes

(b) Parois mobiles

**Figure E.6 :** *Evolution de la déformation plastique équivalente (PEEQ) calculée dans 36 éléments au centre de l'échantillon pour* $\overline{m} = 0,10$. *Vitesse de déformation égale à* $0,1\ s^{-1}$.



(a) Parois fixes

(b) Parois mobiles

**Figure E.7 :** *Vitesses de déplacement calculées dans le plan de symétrie d'échantillons pour* $\overline{m} = 0,10$.

parois sont libres de se déplacer dans la direction verticale, la déformation est plus homogène et les échantillons ont une forme symétrique par rapport au plan horizontal à mi-hauteur. Au niveau de l'échantillon, la facilité de mouvement horizontal de la face inférieure est à l'origine de cette différence de comportement. La figure E.7 donne un aperçu des vitesses de déplacement calculées aux noeuds des éléments dans le plan de symétrie vertical de l'échantillon. La déformation équivalente vaut 0,8 et le coefficient de frottement 0,10.

Terminons en notant que le dispositif de compression plane à parois mobiles est particulièrement adapté à l'étude de la mise en forme par laminage, dans la mesure où ce procédé est caractérisé par un plan de symétrie situé à mi-distance des rouleaux.

# Bibliographie


[Aar02] H. I. Aaronson : Mechanisms of the massive transformation. *Metallurgical and Materials Transactions A*, 33(8):2285–2297, août 2002.

[ABBC94] L. Allais, M. Bornert, T. Bretheau et D. Caldemaison : Experimental characterization of the local strain field in a heterogeneous elastoplastic material. *Acta Metallurgica et Materialia*, 42(11):3865–3880, novembre 1994.

[AEC+89] H. I. Aaronson, D. Eylon, C. M. Cooke, M. Enomoto et F. H. Froes : The widmanstatten-start (ws) temperature, as affected by matrix grain size, in ti-6% al-4% v and in fe—c alloys. *Scripta Metallurgica*, 23(3):435–440, mars 1989.

[AH76] D. G. Attwood et P. M. Hazzledine : A fiducial grid for high-resolution metallography. *Metallography*, 9(6):483–501, décembre 1976.

[Akh75] A. Akhtar : Schmid's law and prismatic slip of zirconium. *Scripta Metallurgica*, 9(8):859–861, août 1975.

[Akh76] A. Akhtar : The allotropic transformation bcc-hcp in zirconium. *Metallurgical Transactions A*, 7A:1735–1741, 1976.

[Aph] http ://www.adcis.net/.

[AR88] D. Arias et M. Ruch : Beta/alpha transformation in dilute titanium base alloys. *In* P. Lacombe, R. Tricot et G. Berranger, éditeurs : *Sixth World Conference on Titanium, France*, pages 1669–1674. Editions de Physique, 1988.

[AR98] T. Ahmed et H. J. Rack : Phase transformations during cooling in $\alpha$+$\beta$ titanium alloys. *Materials Science and Engineering : A*, 243(1-2):206–211, mars 1998.

[Arg] http ://www.insc.anl.gov/matprop/zircaloy/.

[ASM+95] H. I. Aaronson, G. Spanos, R. A. Masamura, R. G. Vardiman, D. W. Moon, E. S. K. Menon et M. G. Hall : Sympathetic nucleation : an overview. *Materials Science and Engineering B*, 32(3):107–123, juillet 1995.

[BA02] S. Balasubramanian et L. Anand : Plasticity of initially textured hexagonal polycrystals at high homologous temperatures : application to titanium. *Acta Materialia*, 50(1):133–148, janvier 2002.

[Ban85] N. V. Bangaru : An investigation of the microstructures of heat-treated zircaloy-4. *Journal of Nuclear Materials*, 131(2-3):280–290, avril 1985.

[Bar05] P. Barberis : Communication personnelle, 2005.

[Bas97] F. Basson : Probability of random disorientation axes in cubic polycrystals. *Journal of Applied Crystallography*, 30:102–106, 1997.

[BC81] R. Bonnet et E. Cousineau : Determination of near-coincident cells for hexagonal crystals. related dsc lattices. *Acta Crystallographica A*, 37:184–189, 1981.

[BDG+98] F. Basson, C. Desrayaud, A. Girinon, F. Montheillet, F. Perocheau et C. Sauvage : Analyse pratique et théorique des essais de compression. Rapport technique, Groupe Etude des Essais de Compression, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Saint-Etienne, 1998.

[BDSR97] S. Banerjee, G. K. Dey, D. Srivastava et S. Ranganathan : Plate-shaped transformation products in zirconium-base alloys. *Metallurgical and Materials Transactions A*, 28A:2201–2216, 1997.

[Bha01] H. K. D. H. Bhadeshia : *Bainite in steels - 2nd edition.* The Institute of Materials, London, March 2001.

[Bio61] M. A. Biot : Theory of folding of stratified viscoelastic media and its implications in tectonics and orogenesis. *Geological Society of America Bulletin*, 72(11):1595–1620, novembre 1961.

[BKC02] A. Bartels, H. Kestler et H. Clemens : Deformation behavior of differently processed $\gamma$-titanium aluminides. *Materials Science and Engineering : A*, 329-331:153–162, juin 2002.

[BMC05] P. Barberis, F. Montheillet et C. Chauvy : Variant selection in zr alloys : How many variants generated from one beta grain ? *In* C. Esling, M. Humbert, R. A. Schwarzer et F. Wagner, éditeurs : *Texture and Anisotropy of Polycrystals II - Proceedings of the International Conference on Texture and Anisotropy of Polycrystals (ITAP 2)*, volume 105, pages 133–138. Trans Tech Publications, 2005.

[BMK+02] J. Bingert, T. Mason, G. Kaschner, G. Gray et P. Maudlin : Deformation twinning in polycrystalline zr : Insights from electron backscattered diffraction characterization. *Metallurgical and Materials Transactions A*, 33(3):955–963, mars 2002.

[BPM73] J. T. Berry, M. H. Pope et N. Misra : Lubrication of ti alloys under conditions of bulk plastic deformation. *Titanium Science and Technology*, 1:419–429, 1973.

[BRS05] T. Boubekeur, P. Reuter et C. Schlick : Visualization of point-based surfaces with locally reconstructed subdivision surfaces. *SMI*, 0:23–32, 2005.

[BS02] T. R. Bieler et S. L. Semiatin : The origins of heterogeneous deformation during primary hot working of ti-6al-4v. *International Journal of Plasticity*, 18(9):1165–1189, septembre 2002.

[Bur34] W. G. Burgers : On the process of transition of the cubic-body-centered modifications into the hexagonal-close-packed modification of zirconium. *Physica I*, 36:561–586, 1934.

[BVD+03] D. Bhattacharyya, G. B. Viswanathan, R. Denkenberger, D. Furrer et H. L. Fraser : The role of crystallographic and geometrical relationships between $\alpha$ and $\beta$ phases in an $\alpha/\beta$ titanium alloy. *Acta Materialia*, 51(16):4679–4691, septembre 2003.

[BVF07] D. Bhattacharyya, G. B. Viswanathan et H. L. Fraser : Crystallographic and morphological relationships between $\beta$ phase and the widmanstatten and allotriomorphic $\alpha$ phase at special $\beta$ grain boundaries in an $\alpha/\beta$ titanium alloy. *Acta Materialia*, 55(20):6765–6778, décembre 2007.

[CA87] D. Charquet et E. Alheritiere : Influence of impurities and temperature on the microstructure of zircaloy-2 and zircaloy-4 after the beta to alpha phase transformation. *In* R. Adamson et L. van Swam, éditeurs : *Seventh International Symposium : Zirconium in Nuclear Industry*, numéro ASTM STP 939, page 284. ASTM, 1987.

[CAB06] C. Cayron, B. Artaud et L. Briottet : Reconstruction of parent grains from ebsd data. *Materials Characterization*, 57(4-5):386–401, décembre 2006.

[CBC97] J. Crépin, T. Bretheau et D. Caldemaison : Microstructural study of beta treated grade 702 zirconium. scanning electron microscopy and transmission electron microscopy, complementary of two observationnal scales. *Journal of Materials Science*, 32:4841–4846, 1997.

[CBM06] C. Chauvy, P. Barberis et F. Montheillet : Microstructure transformation during warm working of $\beta$-treated lamellar zircaloy-4 within the upper $\alpha$-range. *Materials Science and Engineering : A*, 431(1-2):59–67, septembre 2006.

[CBPA92] J. K. Chakravartty, S. Banerjee, Y. V. R. K. Prasad et M. K. Asundi : Hot-working characteristics of zircaloy-2 in the temperature range of 650-950 °C. *Journal of Nuclear Materials*, 187(3):260–271, mai 1992.

[CDM02] C. Chovet, Ch. Desrayaud et F. Montheillet : A mechanical analysis of the plane strain channel-die compression test : friction effects in hot metal testing. *International Journal of Mechanical Sciences*, 44(2):343–357, février 2002.

[Cha82] B. Champin : Interaction transformation-structure-proprétés dans les alliages de titane. *Traitement thermique*, 163:19–32, 1982.

[Cha02] D. Chapelle : *Influence des orientations cristallines sur la localisation en bande de cisaillement dans des alliages Al-Mg soumis à compression plane.* Thèse de doctorat, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Saint-Etienne et Université Jean Monnet de Saint-Etienne, 2002.

[Cha04] C. Chauvy : *Traitements thermomécaniques dans le haut domaine alpha du zircaloy-4 trempé-bêta.* Thèse de doctorat, École nationale supérieure des mines (Saint-Etienne) - Université Jean Monnet (Saint-Étienne), 2004.

[CK91] S. R. Chen et U. F. Kocks : *Texture and microstructure development in Al-2% Mg during high temperature deformation*, pages 89–104. The Minerals, Metals and Materials Society, 1991.

[CM95] J. W. Christian et S. Mahajan : Deformation twinning. *Progress in Materials Science*, 39(1-2):1–157, 1995.

[CNW66] G. Y. Chin, E. A. Nesbitt et A. J. Williams : Anisotropy of strength in single crystals under plane strain compression. *Acta Metallurgica*, 14(4):467–476, avril 1966.

[Con81] H. Conrad : Effect of interstitial solutes on the strength and ductility of titanium. *Progress in Materials Science*, 26(2-4):123–403, 1981.

[CPG+96] D. Ciurchea, A. V. Pop, C. Gheorghiu, I. Furtuna, M. Todica, A. Dinu et M. Roth : Texture, morphology and deformation mechanisms in $\beta$-transformed zircaloy-4. *Journal of Nuclear Materials*, 231(1-2):83–91, juillet 1996.

[Cré95] J. Crépin : *Etude des mécanismes de déformation et d' endommagement du zirconium grade 702 traité bêta.* Thèse de doctorat, Ecole polytechnique, 1995.

[CS66] R. Castro et L. Séraphin : Contribution à l' étude métallographique et structurale de l' alliage de titane ta6v. *Mémoires scientifiques revue de la métallurgique*, 12:1025–1058, 1966.

[DCTAAG+07] J. Da Costa Teixeira, B. Appolaire, E. Aeby-Gautier, S. Denis, G. Cailletaud et N. Spath : Transformation kinetics and microstructures of ti17 titanium alloy during continuous cooling. *Materials Science and Engineering : A*, 448(1-2):135–145, mars 2007.

[DGLCM02] Ch. Desrayaud, S. Girard, J. Le Coze et F. Montheillet : Influence of carbon additions on the dynamic recrystallization of high purity $\alpha$-iron. *Materials Transactions*, 43(2):135–140, 2002.

[DGV+03] Ch. Desrayaud, S. Girard, L. Vaughan, J. Le Coze et F. Montheillet : Influence of carbon micro-additions on the high temperature rheology of high purity $\alpha$-fe based alloys. *In Matériaux et Techniques - Tenth International Conference on Ultra-High Purity Metallic-Base Materials (UHPM 2003)*, 2003.

[DGW02] R. Ding, Z. X. Guo et A. Wilson : Microstructural evolution of a ti-6al-4v alloy during thermomechanical processing. *Materials Science and Engineering : A*, 327(2):233–245, avril 2002.

[DHR68] R.T. De Hoff et F.N. Rhines : *Quantitative Microscopy.* 1968.

[DIRF80] J. L. Derep, S. Ibrahim, R. Rouby et G. Fantozzi : Deformation behaviour of zircaloy-4 between 77 and 900 k. *Acta Metallurgica*, 28(5):607–619, mai 1980.

[DS05] T. K. Dey et J. Sun : An adaptive mls surface for reconstruction with guarantees. *In* S. Desbrun et H. Pottman, éditeurs : *Eurographics Symposium on Geometry Processing*, pages 43–52, 2005.

[DTKK99] A. V. Dobromyslov, N. I. Taluts, N. V. Kazantseva et E. A. Kozlov : Formation of adiabatic shear bands and instability of plastic flow in zr and zr-nb alloys in spherical stress waves. *Scripta Materialia*, 42(1):61–71, décembre 1999.

[Dul93] D. Duly : Application of the invariant line model for b.c.c./h.c.p. couples : A criterion based on surface variations. *Acta Metallurgica et Materialia*, 41(5): 1559–1566, mai 1993.

[Dum97] B. Dumanowski : *Simulation de traitements thermomécaniques de l' alliage de titane Ti-6Al-4V dans le domaine biphasé alpha-bêta.* Thèse de doctorat, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Saint-Etienne, 1997.

[Ear] Earth science world image bank - http ://www.earthscienceworld.org.

[EK71] H. E. Exner et K. Kuhn : Investigation of the rate of removal of material by diamond polishing. *Praktische Metallographie*, 8:453–469, 1971.

[ESMP02] A. Elmoutaouakkil, L. Salvo, E. Maire et G. Peix : 2D and 3D characterization of metal foams using X-ray tomography. *Advanced Engineering Materials*, 4(10):803–807, 2002.

[FBGB98] H. Francillette, B. Bacroix, M. Gasperini et J. L. Bechade : Grain orientation effects in zr702[alpha] polycrystalline samples deformed in channel die compression at room temperature. *Acta Materialia*, 46(12):4131–4142, juillet 1998.

[FG99] P. J. Frey et P. L. George : *Maillages - applications aux éléments finis*. Hermes Science Publications, Paris, 1999.

[Flo90] H. M. Flower : Microstructural development in relation to hot working of titanium alloys. *Materials Science and Technology*, 6:1082–1092, 1990.

[FN82] W. L. Fong et D. O. Northwood : Microstructure–impurity content relationships in zircaloy-4 nuclear fuel sheathing. *Microstructural Science*, 10:123–130, 1982.

[FNH+90] T. Fujiwara, A. Nakamura, M. Hosomi, S. R. Nishitani, Y. Shirai et M. Yamaguchi : Deformation of polysynthetically twinned crystals of tial with a nearly stoichiometric composition. *Philosophical Magazine A*, 61(4):591–606, 1990.

[FPE90] J. J. Fundenberger, M. J. Philippe et C. Esling : Mechanical twinning at high temperatures in some hexagonal alloys. *Scripta Metallurgica et Materialia*, 24(7):1215–1220, juillet 1990.

[FS88] H. Fujii et H. G. Suzuki : New concept on the beta to alpha phase transformation in titanium alloys. *In* P. Lacombe, Tricot R. et G. Beranger, éditeurs : *Sixth world Conference on Titanium, France*, pages 1489–1494. Editions de physique, 1988.

[GBW74] H. Grimmer, W. Bollmann et D. H. Warrington : Coincidence-site lattices and complete pattern-shift in cubic crystals. *Acta Crystallographica A*, 30(2): 197–207, 1974.

[GGH+02] N. Gey, E. Gautier, M. Humbert, A. Cerqueira, J. L. Bechade et P. Archambault : Study of the $\alpha/\beta$ phase transformation of zy-4 in presence of applied stresses at heating : analysis of the inherited microstructures and textures. *Journal of Nuclear Materials*, 302(2-3):175–184, avril 2002.

[GGMP01] F. J. Gil, M. P. Ginebra, J. M. Manero et J. A. Planell : Formation of $\alpha$-widmanstatten structure : effects of grain size and cooling rate on the widmanstatten morphologies and on the mechanical properties in ti6al4v alloy. *Journal of Alloys and Compounds*, 329(1-2):142–152, novembre 2001.

[GH02] N. Gey et M. Humbert : Characterization of the variant selection occurring during the $\alpha$–>$\beta$–>$\alpha$ phase transformations of a cold rolled titanium sheet. *Acta Materialia*, 50(2):277–287, janvier 2002.

[GHPC96] N. Gey, M. Humbert, M. J. Philippe et Y. Combres : Investigation of the $\alpha$- and $\beta$- texture evolution of hot rolled ti-64 products. *Materials Science and Engineering : A*, 219(1-2):80–88, novembre 1996.

[GKS04] M. G. Glavicic, P. A. Kobryn et S. L. Semiatin : Validation of an automated ebsd method to deduce the $\beta$-phase texture in ti-6al-4v with a colony-$\alpha$ microstructure. *Materials Science and Engineering : A*, 385(1-2):372–376, novembre 2004.

[GM00] S. Gourdet et F. Montheillet : An experimental study of the recrystallization mechanism during hot deformation of aluminium. *Materials Science and Engineering : A*, 283(1-2):274–288, mai 2000.

[Gms] http ://www.geuz.org/gmsh/.

[Hal05] T. C. Hales : A proof of the kepler conjecture. *Annals of Mathematics*, 162(3): 1065–1185, novembre 2005.

[Han58] D. C. Handscomb : On the random disorientation of two cubes. *Canadian Journal of Mathematics*, 10:85–88, 1958.

[HH04] F. J. Humphreys et M. Hatherly : *Recrystallization and related annealing phenomena*. Elsevier, 2004.

[HKL99] H. S. Hong, S. J. Kim et K. S. Lee : Effect of oxygen content on the beta-quenched microstructure of modified zircaloy-4. *Journal of Nuclear Materials*, 265(1-2):108–111, février 1999.

[Hol70] R. A. Holt : The beta to alpha phase transformation in zircaloy-4. *Journal of Nuclear Materials*, 35(3):322–334, juin 1970.

[How06] J. M. Howe : Comparison of the atomic structure, composition, kinetics and mechanisms of interfacial motion in martensitic, bainitic, massive and precipitation face-centered cubic-hexagonal close-packed phase transformations. *Materials Science and Engineering : A*, 438-440:35–42, novembre 2006.

[HRBB96] W. B. Hutchinson, L. Ryde, P. S. Bate et B. Bacroix : On the description of misorientations and interpretation of recrystallisation textures. *Scripta Materialia*, 35:579–582, 1996.

[IAE06] Thermophysical properties database of materials for light water ractors and heavy water reactors. Rapport technique IAEA-TECDOC-1496, International Atomic Energy Agency, 2006.

[Ima] http ://rsb.info.nih.gov/ij/.

[IONY92] H. Inui, M. H. Oh, A. Nakamura et M. Yamaguchi : Room-temperature tensile deformation of polysynthetically twinned (pst) crystals of tial. *Acta Metallurgica et Materialia*, 40(11):3095–3104, novembre 1992.

[JB39] W. E. Jominy et A. L. Boegehold : A hardenability test for carburizing steels. *ASM Transactions*, 27:574, 1939.

[JM] D. Jeulin et M. Moreaud : Segmentation of 2d and 3d textures from estimates of the local orientation. *Image Analysis and Stereology*, page Accepté.

[KDA95] B. K. Kad, M. Dao et R. J. Asaro : Numerical simulations of plastic deformation and fracture effects in two phase $\gamma$-tial $\alpha_2$-ti$_3$al lamellar microstructures. *Philosophical Magazine A*, 71(3):567–604, 1995.

[KGPP$^+$06] B. K. Kad, J.-M. Gebert, M. T. Perez-Prado, M. E. Kassner et M. A. Meyers : Ultrafine-grain-sized zirconium by dynamic deformation. *Acta Materialia*, 54(16):4111–4127, septembre 2006.

[KMSR00] M. V. Kral, M. A. Mangan, G. Spanos et R. O. Rosenberg : Three-dimensional analysis of microstructures. *Materials Characterization*, 45(1):17–23, juillet 2000.

[KOF01] M. Kato, S. Onaka et T. Fujii : Energy consideration for variant selection in precipitation on dislocations. *Science and Technology of Advanced Materials*, 2(2):375–380, juin 2001.

[Koo04] B. J. Kooi : Monte carlo simulations of phase transformations caused by nucleation and subsequent anisotropic growth : Extension of the johnson-mehl-avrami-kolmogorov theory. *Physical Review B*, 70(22):224108–12, décembre 2004.

[KP02] S. K. Kim et J. K. Park : In-situ measurement of continuous cooling beta -> alpha transformation behavior of cp-ti. *Metallurgical and Materials Transactions A*, 33(4):1051–1056, avril 2002.

[LDFJ06] E. M. Lauridsen, S. R. Dey, R. W. Fonda et D. Juul Jensen : Nondestructive approaches for 3-d materials characterization. *JOM*, 58:40–44, 2006.

[Leg84] B. Legrand : Relations entre la structure électronique et la facilité de glissement dans les métaux hexagonaux compacts. *Philosophical Magazine*, 49:171–184, 1984.

[LH96] L. Lan et P. Hudleston : Rock rheology and sharpness of folds in single layers. *Journal of Structural Geology*, 18(7):925–931, juillet 1996.

[LK55] B. Lustman et F. Kerze : *The Metallurgy of zirconium*. Mc Graw Hill, New-York, 1955.

[LMC06] K. Linga Murty et I. Charit : Texture development and anisotropic deformation of zircaloys. *Progress in Nuclear Energy*, 48(4):325–359, mai 2006.

[LMLA$^+$02] P. Le Masson, T. Loulou, E. Artioukhine, P. Rogeon, D. Carron et J.-J. Quemener : A numerical study for the estimation of a convection heat transfer coefficient during a metallurgical "jominy end-quench" test. *International Journal of Thermal Sciences*, 41(6):517–527, mai 2002.

[Log99] R. Logé : *Influence des conditions thermomécaniques et de la microstructure sur les évolutions de texture cristallographique du Zircaloy 4 en mise en forme à chaud. Application au filage de tubes.* Thèse de doctorat, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris, 1999.

[LP66] L. T. Larson et M. L. Picklesimer : Determination of the basal-pole orientation in zirconium by polarized-light microscopy. *Transactions of the Metallurgical Society of AIME*, 236:1104–1106, 1966.

[LSB07] F. Liu, F. Sommer et C. Bos : Analysis of solid state phase transformation kinetics : models and recipes. *International Materials Reviews*, 52:193–212, 2007.

[LSC+00] R. E. Loge, J. W. Signorelli, Y. B. Chastel, M. Y. Perrin et R. A. Lebensohn : Sensitivity of $\alpha$-zy4 high-temperature deformation textures to the $\beta$-quenched precipitate structure and to recrystallization : application to hot extrusion. *Acta Materialia*, 48(15):3917–3930, septembre 2000.

[MA87] E. S. K. Menon et H. I. Aaronson : Morphology, crystallography and kinetics of sympathetic nucleation. *Acta Metallurgica*, 35(3):549–563, 1987.

[Mas07] A. R. Massih : Review of experimental data for modelling lwr fuel cladding behaviour under loss of coolant accident conditions. Rapport technique 2007 :14, Swedish Nuclear Power Inspectorate, SKI, 2007.

[MAW+03] A. R. Massih, T. Andersson, P. Witt, M. Dahlback et M. Limback : Effect of quenching rate on the $\beta$-to-$\alpha$ phase transformation structure in zirconium alloy. *Journal of Nuclear Materials*, 322(2-3):138–151, novembre 2003.

[MBS99] R. M. Miller, T. R. Bieler et S. L. Semiatin : Flow softening during hot working of ti-6al-4v with a lamellar colony microstructure. *Scripta Materialia*, 40(12):1387–1393, mai 1999.

[MC64] A. T. Male et M. G. Cockcroft : A method for determination of the coefficient of friction of metals under conditions of bulk plastic deformation. *Journal of the Institute of Metals*, 93:38–46, 1964.

[MC68] D. Mills et G. B. Craig : The plastic deformation of zirconium-oxygen alloy single crytals in the range 77 to 950 k. *Transactions of the Metallurgical Society AIME*, 242(9):1881–1890, Sept. 1968.

[McH53] C. J. McHargue : The crystallography of the titanium transformation. *Acta Crystallographica*, 6(6):529–530, Jun 1953.

[MCM+06] R. J. McCabe, E. K. Cerreta, A. Misra, G. C. Kaschner et C. N. Tom&eacute ; : Effects of texture, temperature and strain on the deformation modes of zirconium. *Philosophical Magazine*, 86(23):3595–3611, 2006.

[MD93] C. Maurice et J. H. Driver : High temperature plane strain compression of cube oriented aluminium crystals. *Acta Metallurgica et Materialia*, 41(6):1653–1664, juin 1993.

[MDSA00] J. Montagnat, H. Delingette, N. Scapel et N. Ayache : Representation, shape, topology and evolution of deformable surfaces. application to 3d medical image segmentation. Rapport de recherche 3954, Institut National de Recherche en Informatique et Automatique, 2000.

[MFB+07] K. Madi, S. Forest, M. Boussuge, S. Gailliegue, E. Lataste, J.-Y. Buffiere, D. Bernard et D. Jeulin : Finite element simulations of the deformation of fused-cast refractories based on x-ray computed tomography. *Computational Materials Science*, 39(1):224–229, mars 2007.

[MH53] C. J. McHargue et J. P. Hammond : Deformation mechanisms in titanium at elevated temperatures. *Acta Metallurgica*, 1(6):700–701, novembre 1953.

[MHZ96] N. Matsuura, G. M. Hood et H. Zou : The correspondence between self-diffusion properties and melting temperatures for $\alpha$-zr and $\alpha$-ti. *Journal of Nuclear Materials*, 238(2-3):260–263, novembre 1996.

[MKRS85] H. J. McQueen, O. Knustad, N. Ryum et J. K. Solberg : Microstructural evolution in al deformed to strains of 60 at 400 ℃. *Scripta Metallurgica*, 19(1):73–78, janvier 1985.

[MM56] A. D. McQuillan, et M. K. McQuillan : Metallographic techniques for titanium and its alloys. *In Titanium*, chapitre 14, pages 447–458. Academic Press, Inc. and New-York, 1956.

[Mor99] B. Morère : *Recristallisation d' un alliage d' aluminium 7010 après déformation à chaud ; influence sur la ténacité*. Thèse de doctorat, Institut National Polytechnique de Grenoble, 1999.

[Mou08] N. Moulin : *Modélisation numérique de la fragmentation de particules de formes complexes avec une application au laminage des alliages d'aluminium*. Thèse de doctorat, Ecole des Mines de Saint-Etienne, 2008.

[MPKD05] C. Maurice, D. Piot, H. Klocker et J. H. Driver : Hot plane strain compression testing of aluminum alloys by channel-die compression. *Metallurgical and Materials Transactions A*, 36A(4):1039–1047, avril 2005.

[MRH64] J. L. Martin et R. E. Reed-Hill : A study of basal slip kink bands in polycrystalline zirconium. *Transactions of the Metallurgical Society of AIME*, 230:780–785, 1964.

[MT57] J. K. Mackenzie et M. J. Thomson : Some statistics associated with the random disorientation of cubes. *Biometrika*, 44(1-2):205–210, juin 1957.

[MT80] B. N. Mehrotra et K. Tangri : High temperature (600-800°C) thermally activated deformation behaviour of $\alpha$-zircaloy-4-oxygen alloys. *Acta Metallurgica*, 28(10):1385–1394, octobre 1980.

[MVL01] M. A. Meyers, O. Vohringer et V. A. Lubarda : The onset of twinning in metals : a constitutive description. *Acta Materialia*, 49(19):4025–4039, novembre 2001.

[MW73] S. Mahajan et D. F. Williams : Deformation twinning in metals and alloys. *International Metallurgical Reviews*, 18:43–61, 1973.

[NG53] J. B. Newkirk et A. H. Geisler : Crystallographic aspects of the beta to alpha transformation in titanium. *Acta Metallurgica*, 1(3):370–371, mai 1953.

[nis] http ://physics.nist.gov/physrefdata/contents.html.

[NM00] J. W. Newkirk et D. S. MacKenzie : The jominy end quench for light-weight alloy development. *Journal of Materials Engineering and Performance*, 9:408–415, 2000.

[NMK91] H. Numakura, Y. Minonishi et M. Koiwa : $<\overline{1}\overline{1}23>\{10\overline{1}1\}$ slip in zirconium. *Philosophical Magazine A*, 63(5):1077–1084, 1991.

[OK70] G. Okvist et K. Kallstrom : The effect of zirconium carbide on the $\beta$ –> $\alpha$ transformation structur in zircaloy. *Journal of Nuclear Materials*, 35(3):316–321, juin 1970.

[OKK53] R. Osadchuk, W. P. Koster et J. F. Kahles : Metallographic structures in commercial titanium. *Metal Progress*, 64:93–96, 1953.

[OLP04] M. S. Oh, J.-Y. Lee et J. K. Park : Continuous cooling beta-to-alpha transformation behaviors of extra-pure and commercially pure ti. *Metallurgical and Materials Transactions A*, 35A(10):3071–3077, 2004.

[Par67] P. G. Partridge : The crystallography and deformation modes of hexagonal close-packed metals. *Metallurgical Reviews*, 118:169–194, 1967.

[Pau06] H. Paul : Heterogeneities of plastic deformation in lamellar structures of hcp and fcc alloys and their influence on deformation and recrystallization processes. Rapport technique, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Saint Etienne, Centre SMS, France, Institute of Metallurgy and Materials Science, Polish Academy of Sciences, Cracovie, Pologne, 2006.

[PB70] N. E. Paton et W. A. Backofen : Plastic deformation of titanium at elevated temperatures. *Metallurgical Transactions*, 1:2839–2847, 1970.

[PD93] S. Panchanadeeswaran et R. D. Doherty : Direct observation of orientation change by channel die compression in polycrystalline aluminum–use of split sample. *Scripta Metallurgica et Materialia*, 28(2):213–218, janvier 1993.

[PDB96] S. Panchanadeeswaran, R. D. Doherty et R. Becker : Direct observation of orientation change by channel die compression of polycrystalline aluminum–use of a split sample. *Acta Materialia*, 44(3):1233–1262, mars 1996.

[PDBJD] E. Parra Denis, C. Barat, D. Jeulin et C. Ducottet : 3D complex shape characterization by statistical analysis : Application to aluminium alloys. *Materials Characterization*, In Press, Corrected Proof:–.

[Per84] J. H. Perepezko : Growth kinetics and mechanism of the massive transformation. *Metallurgical Transactions A*, 15A:437–447, 1984.

[PG98] T. Pusztai et L. Gránásy : Monte carlo simulation of first-order phase transformations with mutual blocking of anisotropically growing particles up to all relevant orders. *Physical Review B*, 57(22):14110–, juin 1998.

[PLH76] P.-P. Poirier et R. Le Hazif : Microscopie électronique et déformation plastique des métaux et alliages hexagonaux compacts. *Journal de Microscopie et de Spectroscopie Electroniques*, 1:595–607, 1976.

[Pot73] D. I. Potter : The structure, morphology and orientation relationship of V3N in $\alpha$-vanadium. *Journal of the Less Common Metals*, 31(2):299–309, mai 1973.

[Pou04] J. L. Pouchou : *L' analyse EBSD – Principes et Applications*. EDP Sciences, 2004.

[PPBKE05] M. T. Perez-Prado, S. R. Barrabes, M. E. Kassner et E. Evangelista : Dynamic restoration mechanisms in $\alpha$-zirconium at elevated temperatures. *Acta Materialia*, 53(3):581–591, février 2005.

[PS58] W. Pitsch et A. Schrader : *Archiv für das Eisenhüttenwesen*, 29:715, 1958.

[PSD05] D. Phelan, N. Stanford et R. Dippenaar : In situ observations of widmanstatten ferrite formation in a low-carbon steel. *Materials Science and Engineering : A*, 407(1-2):127–134, octobre 2005.

[PVBC97] J. Philibert, A. Vignes, Y. Bréchet et P. Combrade : *Métallurgie : du minerai au matériau*. 1997.

[PWA77] M. Plichta, J. Williams et H. Aaronson : On the existence of the $\beta$ to $\alpha_m$ transformation in the alloy systems ti-ag, ti-au, and ti-si. *Metallurgical and Materials Transactions A*, 8(12):1885–1892, décembre 1977.

[QN84] Vo Quach et D. O. Northwood : Influence of the phosphorus impurity content on the microstructure of zircaloy-4 air cooled from the high temperature beta phase region. *Metallography*, 17(2):191–201, mai 1984.

[Raa02] D. Raabe : Cellular automata in materials science with particular reference to recrystallization simulation. *Annual Review of Materials Research*, 32:53–76, 2002.

[Ram64] H. Ramberg : Selective buckling of composite layers with contrasted rheological properties, a theory for simultaneous formation of several orders of folds. *Tectonophysics*, 1(4):307–341, novembre 1964.

[Res] http ://www.technodigit.com/.

[Rey77] P. A. Reynolds : The HCP to BCC phase transition in metals. *Journal of Physics C*, 10:4463–4469, 1977.

[RH87] J. G. Ramsay et M. I. Huber : *The techniques of modern structural geology.* Academic Press, Londres, 1987.

[RHB65] R. E. Reed-Hill et D. H. Baldwin : A technique for orienting grains in a fine-grained polycrystalline hexagonal close-packed metal using the polarized-light microscope. *Transactions of the Metallurgical Society of AIME*, 233:842–844, 1965.

[RPK65] P. A. Romans, O. G. Paasche et H. Kato : The transformation temperature of hafnium. *Journal of the Less Common Metals*, 8(3):213–215, mars 1965.

[RRH08] V. Randle, G. S. Rohrer et Y. Hu : Five-parameter grain boundary analysis of a titanium alloy before and after low-temperature annealing. *Scripta Materialia*, 58(3):183–186, février 2008.

[Rum74] W. M. Rumball : Massive and martensitic transformations in a zr-1.25 wt.% cr-0.1 wt.% fe alloy. *Journal of the Less Common Metals*, 38(2-3):233–237, 1974.

[Rum75] W. M. Rumball : The effect of chromium, oxygen and microstructure on the hardness of zirconium-chromium alloys. *Journal of the Less Common Metals*, 39(1):35–42, janvier 1975.

[SB01] S. L. Semiatin et T. R. Bieler : The effect of alpha platelet thickness on plastic flow during hot working of ti-6al-4v with a transformed microstructure. *Acta Materialia*, 49(17):3565–3573, octobre 2001.

[SB04] N. Stanford et P. S. Bate : Crystallographic variant selection in ti-6al-4v. *Acta Materialia*, 52(17):5215–5224, octobre 2004.

[SB05] N. Stanford et P. S. Bate : Crystallographic variant selection in $\alpha$-$\beta$ brass. *Acta Materialia*, 53(3):859–867, février 2005.

[SCM+03] L. Salvo, P. Cloetens, E. Maire, S. Zabler, J.-J. Blandin, J.-Y. Buffiere, W. Ludwig, E. Boller, D. Bellet et C. Josserond : X-ray micro-tomography an attractive characterisation technique in materials science. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B : Beam Interactions with Materials and Atoms*, 200:273–286, janvier 2003.

[SE78] D. Shechtman et D. Eylon : On the unstable shear in fatigued beta-annealed ti-11 and imi-685 alloys. *Metallurgical and Materials Transactions A*, 9(7):1018–1020, 1978.

[SFC+06] T. Schaden, F. D. Fischer, H. Clemens, F. Appeland et A. Bartels : Numerical modelling of kinking in lamellar gamma-tial based alloys. *Advanced engineering materials*, 8:1109–1113, 2006.

[SG95] S. G. Song et G. T. Gray : Structural interpretation of the nucleation and growth of deformation twins in zr and ti–i. application of the coincidence site lattice (csl) theory to twinning problems in h.c.p. structures. *Acta Metallurgica et Materialia*, 43(6):2325–2337, juin 1995.

[Smi60] C. S. Smith : *A History of Metallography.* The University of Chicago Press, 1960.

[SR95] A. Salinas-Rodriguez : Grain size effects on the texture evolution of alpha-zr. *Acta Metallurgica et Materialia*, 43(2):485–498, février 1995.

[SS99] E. Shell et S. Semiatin : Effect of initial microstructure on plastic flow and dynamic globularization during hot working of ti-6al-4v. *Metallurgical and Materials Transactions A*, 30(12):3219–3229, décembre 1999.

[SSG99] S. L. Semiatin, V. Seetharaman et A. K. Ghosh : Plastic flow, microstructure evolution, and defect formation during primary hot working of titanium and titanium aluminide alloys with lamellar colony microstructures. *Philosophical Transactions of the Royal Society A*, 357(1756):1487–1512, juin 1999.

[SSSP02] J. Stuckert, M. Steinbrück, U. Stegmaier et A. V. Palagin : On the thermo-physical properties of zircaloy-4 and zro2 at high temperatures. Rapport technique FZKA6739, Forschungszentrum Karlsruhe, 2002.

[SSW98] S. L. Semiatin, V. Seetharaman et I. Weiss : Hot workability of titanium and titanium aluminide alloys–an overview. *Materials Science and Engineering : A*, 243(1-2):1–24, mars 1998.

[STT+05] T. Searles, J. Tiley, A. Tanner, R. Williams, B. Rollins, E. Lee, S. Kar, R. Banerjee et H. L. Fraser : Rapid characterization of titanium microstructural features for specific modelling of mechanical properties. *Measurement Science and Technology*, 16(1):60–69, 2005.

[STZ+01] M. F. Savage, J. Tatalovich, M. Zupan, K. J. Hemker et M. J. Mills : Deformation mechanisms and microtensile behavior of single colony ti-6242si. *Materials Science and Engineering : A*, 319-321:398–403, décembre 2001.

[SVN+99] S. Suri, G. B. Viswanathan, T. Neeraj, D. H. Hou et M. J. Mills : Room temperature deformation and mechanisms of slip transmission in oriented single-

colony crystals of an $\alpha/\beta$ titanium alloy. *Acta Materialia*, 47(3):1019–1034, février 1999.

[Ten88] E. Tenckhoff : Deformation mechanisms, texture, and anisotropy in zirconium and zirconium alloys. ASTM special technical publication STP 966, ASTM, 1988.

[TTMY97] T. Terai, Y. Takahashi, S. Masumura et T. Yoneoka : Heat capacity and phase transition of zircaloy-4. *Journal of Nuclear Materials*, 247:222–226, août 1997.

[VAG+03] L. Vocadlo, D. Alfe, M. J. Gillan, I. G. Wood, J. P. Brodholt et G. D. Price : Possible thermal and chemical stabilization of body-centred-cubic iron in the earth' s core. *Nature*, 424:536–539, 2003.

[vBSvdZ06] S. M. C. van Bohemen, J. Siestma et S. van der Zwaag : Experimental observations elucidating the mechanisms of structural bcc-hcp transformations in beta-ti alloys. *Physical Review B*, 74:134114, 2006.

[VDDM06] N. Vanderesse, Ch. Desrayaud, M. Darrieulat et F. Montheillet : Compression plane à chaud d'un alliage de zirconium. *In Matériaux 2006 - Dijon, France*, 13-17 Novembre 2006.

[VDGID08] N. Vanderesse, Ch. Desrayaud, S. Girard-Insardi et M. Darrieulat : Channel-die compression at high temperature. *Materials Science and Engineering : A*, 476:322–332, 2008.

[vGB52] A. J. J. van Ginneken et W. G. Burgers : The habit plane of the zirconium transformation. *Acta Crystallographica*, 5(4):548–549, juillet 1952.

[VMD+08] N. Vanderesse, E. Maire, M. Darrieulat, F. Montheillet, M. Moreaud et D. Jeulin : 3d microtomographic study of widmanstatten microstructures in an alpha/beta titanium alloy. *Scripta Materialia*, 58:512–515, 2008.

[Wal07] S. M. Walley : Shear localization : A historical overview. *Metallurgical and Materials Transactions A*, 38(11):2629–2654, novembre 2007.

[WAS03] S. C. Wang, M. Aindow et M. J. Starink : Effect of self-accommodation on $\alpha/\alpha$ boundary populations in pure titanium. *Acta Materialia*, 51(9):2485–2503, mai 2003.

[WFEW86] I. Weiss, F. H. Froes, D. Eylon et G. E. Welsch : Modification of alpha morphology in ti-6al-4v by thermomechanical processing. *Metallurgical and Materials Transactions A*, 17(11):1935–1947, 1986.

[WHP04] M. A. Wadee, G. W. Hunt et M. A. Peletier : Kink band instability in layered structures. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 52(5):1071–1091, mai 2004.

[Wil73] J. C. Williams : Critical review : kinetics and phase transformations. *In Titanium Science and Technology, vol. 3*, pages 1433–1494. Plenum Press, New York, 1973.

[WS30] Von F. Wever et W.E. Schmid : Texturen kaltverformter metalle. *Zeitschrift für Metallkunde*, 22:133–140, 1930.

[WT79] O. T. Woo et K. Tangri : Transformation characteristics of rapidly heated and quenched zircaloy-4-oxygen alloys. *Journal of Nuclear Materials*, 79(1):83–94, janvier 1979.

[Wyc63] R. W. G. Wyckoff : *Crystal structures*, volume 1. Interscience Publishers, 1963.

[YAMH01] M. H. Yoo, S. R. Agnew, J. R. Morris et K. M. Ho : Non-basal slip systems in hcp metals and alloys : source mechanisms. *Materials Science and Engineering : A*, 319-321:87–92, décembre 2001.

[YL91] M. H. Yoo, et J. K. Lee : Deformation twinning in h.c.p. metals and alloys. *Philosophical Magazine A*, 63:987–1000, 1991.

[Yoo81] M. H. Yoo : Slip, twinning, and fracture in hexagonal close-packed metals. *Metallurgical and Materials Transactions A*, 12:409–418, 1981.

[Zae03] S. Zaefferer : A study of active deformation systems in titanium alloys : dependence on alloy composition and correlation with deformation texture. *Materials Science and Engineering : A*, 344(1-2):20–30, mars 2003.

[ZK05a] M.-X. Zhang et P. M. Kelly : Edge-to-edge matching and its applications : Part i. application to the simple hcp/bcc system. *Acta Materialia*, 53(4):1073–1084, février 2005.

[ZK05b] M.-X. Zhang et P. M. Kelly : Edge-to-edge matching model for predicting orientation relationships and habit planes–the improvements. *Scripta Materialia*, 52(10):963–968, mai 2005.

**Ecole Nationale Supérieure des Mines**
**de Saint-Etienne**

N° d'ordre : 483 SGM

**Nicolas Vanderesse**

**Title**
Morphology and hot deformation of lamellar microstructures in ziconium and titanium alloys

**Speciality**
Materials Science and Engineering

**Keywords**
Zirconium, titanium, Zircaloy-4, TA6V, Widmanstätten, Jominy, microtomography, image analysis, plane strain compression, twinning, shear banding, microbuckling

**Abstract**
This study aims at providing a precise description of the lamellar microstructures of two alloys, Zircaloy-4 and TA6V, and at characterizing their deformation at high temperature. New experimental techniques have been developped for these materials: instrumented Jominy end quench test, channel-die with mobile walls, X-ray microtomography. The main results underline the role of the alpha_GB phase formed at the prior beta grain boundaries on the variant selection in Zircaloy-4 and TA6-V. The three dimensional organization of the colonies in TA6V is also revealed for the first time and discussed in relationship with the formation of the microstructure. In hot compressed Zircaloy-4 several mechanisms of strain localization are observed. Twinning activity at 750 °C, in particular, is clearly put into evidence. A classification of these heterogeneities is proposed and their influence on the recrystallization is discussed.

**Ecole Nationale Supérieure des Mines**
**de Saint-Etienne**

N° d'ordre : 483 SGM

**Nicolas Vanderesse**

**Titre**
Morphologie et déformation à chaud de microstructures lamellaires dans les alliages de zirconium et de titane

**Spécialité**
Sciences et génie des matériaux

**Mots clefs**
Zirconium, titane, Zircaloy-4, TA6V, Widmanstätten, Jominy, microtomographie, analyse d'images, compression plane, maclage, bande de cisaillement, microflambage

**Résumé**
Cette étude se propose de fournir une description précise des microstructures lamellaires de deux alliages, le Zircaloy-4 et le TA6V, et de caractériser leur déformation à haute température. A cette fin, des techniques expérimentales nouvelles pour ces matériaux ont été développées : essai Jominy instrumenté, compression plane encastrée à parois mobiles, microtomographie X. Les principaux résultats soulignent le rôle de la phase alpha_GB formée aux anciens joints de grains bêta sur la sélection de variants dans le Zircaloy-4 et le TA6V. L'agencement tridimensionnel des colonies dans le TA6V est également mis en lumière pour la première fois et discuté en relation avec la genèse de la microstructure. Dans le Zircaloy-4 comprimé à haute température, plusieurs mécanismes de localisation de la déformation sont observés. L'activité du maclage à 750 °C, en particulier, est clairement mise en évidence. Une classification de ces hétérogénéités est proposée et leur influence sur la recristallisation est discutée.