



HAL
open science

Conséquence de la transformation de phase et de la vitesse de refroidissement sur le comportement mécanique du zirconium grade 702 traité β

Jérôme Crépin, Thierry Bretheau, Daniel Caldemaison, Alain Barbu, Gérard Jazkierowicz

► To cite this version:

Jérôme Crépin, Thierry Bretheau, Daniel Caldemaison, Alain Barbu, Gérard Jazkierowicz. Conséquence de la transformation de phase et de la vitesse de refroidissement sur le comportement mécanique du zirconium grade 702 traité β . *Journal of Physics IV*, 1999, 9, pp.4/173-4/178. <10.1051/jp4:1999422>. <hal-00111623>

HAL Id: hal-00111623

<https://hal.science/hal-00111623v1>

Submitted on 13 Jun 2025

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.



HAL Authorization

Conséquence de la transformation de phase et de la vitesse de refroidissement sur le comportement mécanique du zirconium grade 702 traité β

J. Crépin, T. Bretheau, D. Caldemaison, A. Barbu* et G. Jazkierowicz*

LMS, UMR 7649, École Polytechnique, 91128 Palaiseau cedex, France

** CEA/DTA/CEREM/LSI, École Polytechnique, 91128 Palaiseau cedex, France*

Résumé : Au cours des opérations de soudage des tôles de zirconium, l'élévation de température conduit à l'apparition d'un gradient microstructural dans la structure soudée, entraînant un gradient de caractéristiques mécaniques. Pour une vitesse de refroidissement de l'ordre de 15°C/s, la transformation allotropique $\beta \rightarrow \alpha$ est de type bainitique avec comme particularité l'apparition d'un seul type parmi les douze possibles de germe α par joint de grain β , d'où l'obtention d'une structure constituée de lattes α parallèles entre elles et de même orientation cristallographique, appelée colonie. La croissance des lattes s'accompagne, au niveau de l'interface, de mécanismes de diffusion des éléments d'addition dans le sens $\alpha \rightarrow \beta$ pour les éléments bêtagènes (fer, chrome, nickel) et dans le sens inverse pour les éléments alphasgènes (oxygène, étain) entraînant une hétérogénéité de répartition de ces éléments. Cette hétérogénéité a pour conséquence l'existence d'une bande de faibles caractéristiques mécaniques localisée le long des joints de lattes, entraînant aussi bien sous sollicitation monotone qu'en fatigue olygocyclique, une localisation du glissement cristallin se traduisant par une forte hétérogénéité de déformation, qui induit à son tour une localisation de l'endommagement et une rupture prématurée du matériau.

1. INTRODUCTION

Le zirconium se caractérise par l'existence de deux variétés allotropiques: la phase β - cubique centrée -, stable à haute température, et la phase α - hexagonale compacte -, stable à température ambiante, la température de transformation se situe au voisinage de 865°C suivant la composition chimique du matériau. On appelle donc "traitement β " le traitement thermique qui consiste à porter le matériau au dessus de cette température de transformation puis à le refroidir plus ou moins rapidement jusqu'à la température ambiante ; la microstructure finale du matériau dépend de la cinétique de refroidissement [1]. La présente étude s'intéresse aux conséquences d'un tel traitement sur les caractéristiques mécaniques du matériau à température ambiante. Elle s'appuie sur une caractérisation de la microstructure aux échelles de la Microscopie Optique, à Balayage et en Transmission. Le couplage entre ces échelles s'avère primordial si l'on souhaite caractériser à la fois la composition chimique, l'orientation cristallographique, la distribution et la morphologie des précipités ainsi que la matrice. Enfin l'influence de cette microstructure sur les mécanismes de déformation et d'endommagement est étudiée d'une part au moyen d'essais mécaniques réalisés dans le MEB et d'autre part de mesure de microdureté Vickers.

2. MICROSTRUCTURE DU MATERIAU

2.1. Composition chimique et traitement thermique

Le matériau d'étude est un matériau technologique appelé "grade 702" dont la composition chimique est donnée dans le tableau 1. Le traitement thermique $\alpha \rightarrow \beta \rightarrow \alpha$ subi par la tôle est effectué dans un four électrique sous vide et consiste à porter le matériau à la température de 1250°C pendant 20 minutes puis à le refroidir sous argon pulsé à une vitesse voisine de 15°C/s.

Tableau 1 : Composition chimique en poids du zirconium grade 702

éléments	C	H	O	N	Cr	Fe	Ni	Sn
analyse (ppm)	58	4-7	1400	33	240	760	50	2280

2.2. Mécanisme de transformation allotropique

Les relations entre orientations cristallines découlant de la transformation allotropique entre les phases cubique centrée et hexagonale compacte ont été proposées par Burgers [2]. Au cours de cette transformation, chaque grain β peut au plus se transformer en 12 variants α (6 plans $\{110\} \times 2$ directions $\langle 111 \rangle$) avec un angle de 0, 60 ou 90° entre les plans de base de chaque paire de grains issus du même ancien grain β [3]. Le nombre de germes nucléés étant fonction de la vitesse de refroidissement, la microstructure finale varie donc d'une microstructure en aiguilles à une microstructure de type Widmanstätten (panier tressé). Cette transformation peut être de type martensitique ou bainitique.

Dans le cadre de cette étude, la vitesse de trempe est faible ($\approx 15^\circ\text{C/s}$) ce qui induit une microstructure constituée d'ensembles de lattes parallèles entre elles, appelées colonies (figure 1). Ces lattes se sont développées au sein des anciens grains β dont la taille est comprise entre 700 et 900 μm . Les colonies qui en résultent sont équiaxes et de taille évaluée à environ 450 μm . La technique EBSD a permis de vérifier qu'au sein d'un même ancien grain β les relations de Burgers entre colonies étaient satisfaites, et donc que la désorientation entre lattes de colonies différentes est bien de 60° ou 90°. La morphologie en plaquettes se caractérise par deux axes de dimension équivalente à celle des colonies, c'est à dire de l'ordre de 450 μm et un troisième de l'ordre de 10 à 20 μm . Il s'avère de plus qu'au cours de cette transformation chaque latte a pour origine le joint de grains β et qu'il n'existe qu'un seul type de germe α par joint de grains β . Leur croissance s'étend du joint vers le centre de l'ancien grain ; en outre au cours de la transformation de phase, les éléments bétagènes (fer, chrome, nickel) diffusent des germes α vers la phase β restante, puis une fois toute la phase β transformée, les éléments bétagènes précipitent sur les interlattes (joints de lattes). Quant aux éléments d'addition alphagènes (oxygène et étain), ils se trouvent en solution solide à l'intérieur des lattes. La figure 2 récapitule et schématise le processus de transformation de phase.

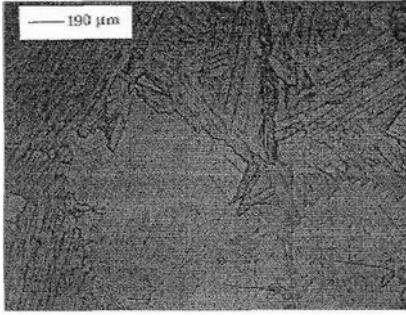


Figure 1: Microstructure du zirconium grade 702 traité β en microscopie optique

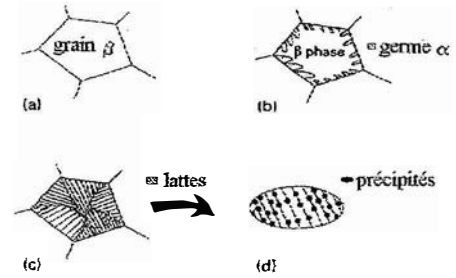


Figure 2: schéma de la transformation allotropique $\beta \rightarrow \alpha$ pour une vitesse de trempe de l'ordre de 15°C/s

2.2.1 Caractérisation des précipités

Ils sont révélés par attaque chimique (HF : 22%, HNO_3 : 11%, glycerol: 67%, $T = 300\text{K}$, $t \approx 5\text{s}$) et des dissolutions successives montrent qu'ils forment une gangue enrobant les lattes. Une étude [4] nécessitant à la fois leur observation aux échelles du M.E.B. et du M.E.T. a permis de montrer la présence principalement de précipités de type $\text{Zr}_x(\text{Fe,Cr})_{2-x}$ avec $x \leq 40\%$. Ces résultats sont cohérents avec ceux de la littérature [5-8], cependant des cartographies sur l'élément fer effectuées du bord vers l'épaisseur de la lame mince montrent que ces précipités, discontinus dans la zone mince, forment en fait dans l'épaisseur une phase quasi-continue le long des interlattes (fig. 3). Cette phase est constituée de précipités de plusieurs micromètres reliés les uns aux autres par des "ponts" de quelques centaines de nanomètres. Cette étude a donc permis de faire le lien entre les observations à l'échelle de la microscopie à balayage et celle de la transmission. De plus il s'avère que les précipités alignés le long d'un même joint de lattes ont la même orientation cristalline les uns par rapport aux autres (fig. 4).

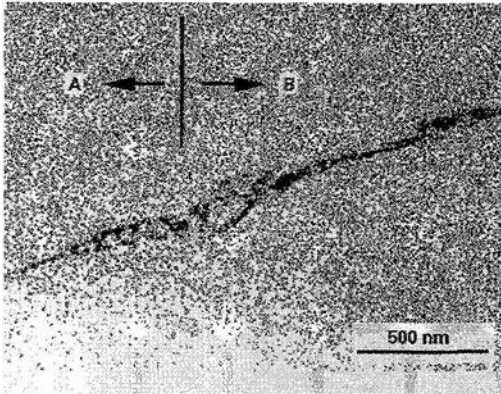


Figure 3: Cartographie en fer (en sombre).
A: zone correspondant à la partie mince de la lame.
B: zone épaisse de la lame, observable en imagerie X

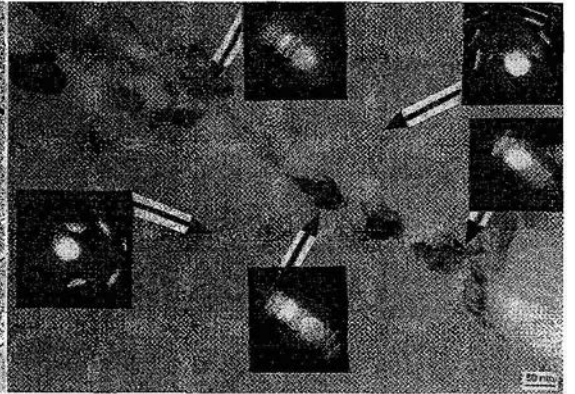


Figure 4: Analyse en μ diffraction de l'orientation cristalline des précipités le long d'un joint de latte. La zone analysée correspond à la zone A de la figure 3.

2.2.2 Répartitions des éléments α phagènes

L'étude détaillée de la répartition des éléments α phagènes en solution solide n'a pu porter que sur l'étain, car la détection de l'oxygène et surtout de ses variations de concentration dans le zirconium est des plus

d'un gradient de concentration en étain entre le centre et les joints de lattes. Ce gradient est une conséquence de la diffusion de l'étain de la phase β vers la phase α . En effet les centres des lattes correspondent aux premiers lieux d'apparition des germes α , il est donc cohérent que la concentration en éléments alphas (en l'occurrence l'étain) y soit plus élevée.

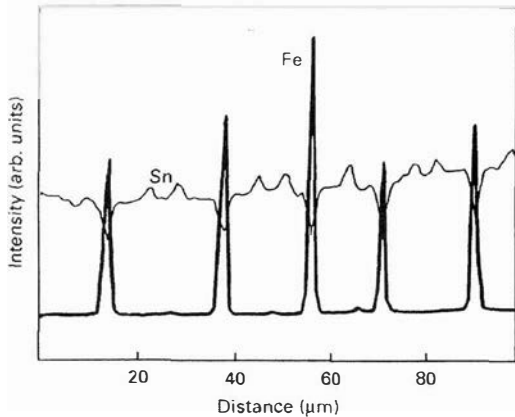


Figure 5: Profil WDS en étain et en fer au travers de 6 lattes. Le fer est localisé au niveau des joints de lattes, l'étain est concentré aux centres des lattes avec un appauvrissement au niveau des joints. Conditions expérimentales: 20 KeV, 0,5µm de pas, 30s par pointé.

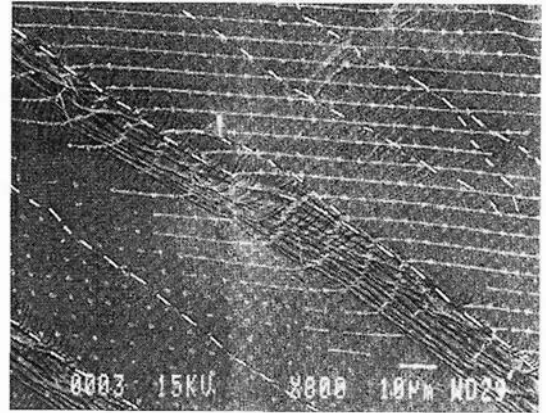


Figure 6: glissement prismatique localisé le long des joints de lattes. La déformation locale de la grille est voisine de 100%, la déformation globale n'étant que de 15%. Les lignes pointillées correspondent à la position des joints.

3. MECANISMES DE DÉFORMATION

Les essais de traction sont pratiqués à la température ambiante et la vitesse de déformation est de l'ordre de 10^{-4} s^{-1} . Les éprouvettes sont équipées de microgrilles au pas de 5 µm, ce qui permet de suivre in situ l'apparition et l'évolution des mécanismes de déformation. La technique EBSD permet, en plus de la détermination de l'orientation cristallographique locale, d'identifier les différents mécanismes de déformation et d'évaluer leur facteur de Schmid. Les trois principaux mécanismes de déformation observés sont les suivants [9]: - maclage de type $(10\bar{1}2) \langle 10\bar{1}\bar{1} \rangle$ simple ou multiple. - maclage de type $(11\bar{2}1) \langle 11\bar{2}\bar{6} \rangle$ simple ou multiple. - glissement prismatique $(10\bar{1}0) \langle \bar{1}\bar{2}10 \rangle$ simple ou double. On a pu vérifier que l'activation de ces différents mécanismes est fonction de l'orientation des grains par rapport à l'axe de sollicitation. De plus moyennant l'hypothèse que la contrainte locale appliquée sur chacun des grains est proche de la contrainte macroscopique, il est possible d'estimer une borne supérieure de la contrainte critique appliquée et de vérifier ainsi que les mécanismes de déformation suivent au premier ordre la loi de Schmid. Cependant si le système prismatique activé - facteur de Schmid le plus élevé - fait intervenir un plan parallèle au joint de lattes, il apparaît alors une localisation du glissement le long de ce plan avec des taux de déformation pouvant atteindre des valeurs de l'ordre de 100%, alors que l'ordre de grandeur de la déformation totale de l'éprouvette n'excède pas 15% environ (fig. 6). Afin de comprendre pourquoi le glissement prismatique se localise le long des joints, une étude comparative de microdureté a été effectuée entre les joints et les centres des lattes. La figure 7 représente le profil de dureté réalisé sur 10 lattes issues d'une même colonie.

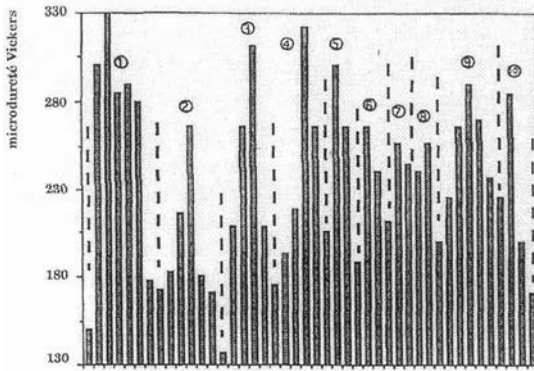


Figure 7: profil de microdureté sous un chargement de 5 grammes pendant 15 secondes. Les traits pointillés symbolisent les joints de lattes.

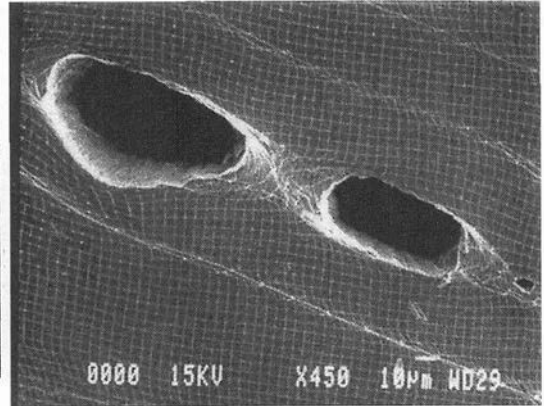


Figure 8: Alignement de cavités le long des joints de lattes; observation de la localisation de la déformation le long des joints à l'aide de la microgrille. Coalescence de cavités.

Il ressort de cette étude qu'il existe bien pour une même orientation cristallographique un gradient de dureté reproductible entre le bord et le centre des lattes. Or ce gradient est à comparer à celui en étain, déjà constaté ci-dessus. En effet, il a été démontré [10-11] que les éléments alphas tels que l'oxygène et l'étain augmentent les caractéristiques mécaniques du zirconium. Une zone appauvrie en étain et oxygène aura donc des caractéristiques mécaniques plus faibles, donc permettant la localisation de la déformation. Deux études similaires effectuées sur du zirconium Van Arkel à faible teneur en oxygène (300 ppm) et dopé en oxygène (1200 ppm) ayant subi le même traitement thermique a permis de vérifier que lorsque la concentration en oxygène est suffisamment élevée (>300ppm), il existait aussi une hétérogénéité de dureté en faveur des centres des lattes au détriment des joints avec comme conséquence l'apparition du glissement prismatique localisé [11].

4. MÉCANISMES D'ENDOMMAGEMENT

Une telle hétérogénéité de déformation entraîne la localisation de l'endommagement le long des lignes de glissement intense (fig. 8). Il se manifeste par l'apparition précoce de cavités, pour des taux de déformation macroscopique compris entre 3 et 6%, bien avant toute intervention significative de la striction. Les cavités ont tendance, au sein d'une même colonie, à apparaître dans quelques lattes, en formant des chapelets parallèles aux joints. Leur croissance s'effectue au détriment de l'une des deux lattes bordant le joint ; elle est donc intragranulaire. L'absence de déformation, mise en évidence par la grille d'or, pour les lattes qui ne sont pas affectées par l'endommagement montre que celui-ci reste très localisé. Leur taille ultime est de l'ordre de grandeur de l'épaisseur de la latte où l'endommagement s'est développé (typiquement une dizaine de micromètres). Il semble en effet que leur croissance prenne fin lorsque la latte a disparu, la cavité débouchant alors sur le joint de latte suivant. La rupture, quant à elle, intervient ensuite pour une déformation de l'ordre de 10% par coalescence des chapelets de cavités, la striction, même dans les phases ultimes, restant faible. L'observation du faciès de rupture révèle la présence de deux types de cupules : - un type majoritaire qui se caractérise par la formation de cupules tubulaires dont le grand axe correspond à l'axe $\langle c \rangle$ du prisme hexagonal. - des zones minoritaires, constituées de petites cupules sphériques. Une analyse EDS montre que ces dernières sont riches en précipités intermétalliques, contrairement aux cupules tubulaires [12]. Si l'on fait correspondre la surface et le faciès de rupture, il apparaît clairement que les zones à petites cupules sont associées à la rupture des extrémités de lattes. Le nombre important de précipités qu'on y retrouve est cohérent avec le schéma de la transformation de phases, puisque ce sont ces zones (joints de colonies) qui sont supposées s'être transformées les dernières en phase α , c'est-à-dire les zones les plus riches en éléments bêtagènes, donc en précipités.

5. CONCLUSION

L'ensemble de ces résultats permet d'affirmer que la transformation allotropique $\beta \rightarrow \alpha$, dans les conditions de température de refroidissement subies par le matériau, est plutôt de type bainitique. Il faut donc se l'imaginer commè étant une transformation par cisaillement, qui débute au niveau des joints de grains β et progresse vers l'intérieur des grains en s'accompagnant de réarrangements par des mécanismes de diffusion dans le réseau de zirconium. Au cours d'une telle transformation, les éléments bêtagènes sont drainés par le front de transformation vers les espaces interlattes où ils précipitent tandis que les éléments alphasubissent un mouvement contraire en délaissant les zones interlattes pour se concentrer dans le coeur des lattes. Ceci a pour conséquence (sous réserve que le système de glissement activé concerne le plan prismatique proche du joint de lattes) la localisation du glissement le long du joint. Cette localisation de la déformation entraîne à son tour une localisation de l'endommagement le long de ces mêmes joints. La coalescence des cavités ainsi créées entraîne ensuite la rupture du matériau. Afin d'améliorer la tenue mécanique du matériau après traitement β , des études ayant pour but la suppression des gradients d'éléments durcissants par une meilleure maîtrise de leur diffusion ou leur introduction à saturation seraient vivement souhaitables.

Remerciements

Cette étude s'effectue en collaboration et avec le soutien financier du CEA/CEREM/SRMA.

Références

1. L. Autissier, Thèse de doctorat de l'université Paris 6. Spécialité chimie des matériaux, 21 février 1989.
2. W.G Burgers, *Physica I*, (1934), 561-586.
3. A. Akhtar, *Metal. Trans. A.*, 7A (1976) 1735 .
4. J. Crépin, T. Bretheau, D. Caldemaïson, A. Barbu, G. Jazkierowicz, *Journal of Materials Science*, 32, (1997), 4841-4846.
5. J.B. Van der Sand and A.L. Bement, *Journal of Nuclear Materials* ,52 (1974) 115-118.
6. V. Krasevec, *Journal of Nuclear Materials*, 98 (1981) 235-237.
7. X.Y. Meng and D.O. Northwood, *Journal of Nuclear Materials*, 132 (1985) 80-87.
8. R.A. Versaci and P. Iphorski, *Journal of Nuclear Materials*, 80 (1979) 180-183.
9. J. Crépin, T. Bretheau, D. Caldemaïson, *Acta Metallurgica et Materialia*, 43, 10, (1995) 3709-3719
10. R.M. Treco, *Proceedings of Zirconium and zirconium alloys. 8th Western Metal Congress and Exposition, Los Angeles, March 23 to 27,1953*, edited by American Society for Metals, Cleveland, Ohio .pp. 254-274.
11. J. Fudenberger, M.J. Philippe, C. Esling. *Scripta Met.* 24 (1990) pp 1215-1220.
- 12 J. Crépin, Thèse de doctorat de l'Ecole polytechnique, spécialité Mécanique et Matériaux, 26 Juin 1995.