HAL
open science

Mesures des hétérogénéités de déformation du tantale déformé à froid et conséquences sur la recristallisation

Christophe Kerisit, Suzanne Jacomet, Nathalie Bozzolo, Marie Houillon, Wilfried Geslin, Valérie Llorca, Roland E. Logé

To cite this version:

Christophe Kerisit, Suzanne Jacomet, Nathalie Bozzolo, Marie Houillon, Wilfried Geslin, et al.. Mesures des hétérogénéités de déformation du tantale déformé à froid et conséquences sur la recristallisation. Matériaux 2010, Oct 2010, Nantes, France. 9 p. - ISBN 978-2-9528-1403-4. hal-00578513

HAL Id: hal-00578513

https://minesparis-psl.hal.science/hal-00578513v1

Submitted on 21 Mar 2011

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.

Mesures des hétérogénéités de déformation du tantale déformé à froid et conséquences sur la recristallisation

C. Kerisit[a,b], S. Jacomet[b], N. Bozzolo[b], M. Houillon[b], W. Geslin[a], V. Llorca[a], R.E. Logé[b]

[a] *CEA DAM Valduc DFTN/SFPU/LDP, F-21120 Is-sur-Tille, wilfried.geslin@cea.fr*
[b] *Mines-Paristech, CEMEF - Centre de Mise en Forme des Matériaux, CNRS UMR 7635, BP 207, 06904 Sophia Antipolis Cedex, France, christophe.kerisit@mines-paristech.fr*

RESUME:

La recristallisation statique du tantale est fortement dépendante de la microstructure engendrée lors de la mise en forme. Des échantillons présentant de faibles taux de déformation ont été obtenus par des essais mécaniques simples de torsion et de compression. Leur observation par microscopie électronique à balayage ainsi que la réalisation de cartographies d'orientation par EBSD, associées à des traitements thermiques *in situ*, ont permis de montrer qu'un grain avec un facteur de Taylor élevé recristallisait plus vite. Par ailleurs, une méthode « globale » d'évaluation de la densité de dislocations à partir de mesures de dureté a été mise en place. Elle permet d'estimer l'énergie stockée par le matériau lors de sa déformation, énergie qui peut ensuite être reliée au déclenchement de la recristallisation. Cette approche est particulièrement intéressante pour des échantillons déformés sévèrement suivant un chemin de déformation complexe, pour lesquels le calcul des facteurs de Taylor à partir d'une microstructure déformée revêt moins de sens.

MOTS-CLES : tantale, recristallisation statique, expérimentations *in situ*, EBSD, dureté Vickers.

1. Introduction

Le tantale est un matériau de structure cristalline cubique centrée (CC). Sa grande ductilité à température ambiante fait de lui un candidat idéal pour une mise en forme à froid. De ce fait, il est possible de produire des formes complexes en minimisant les risques de rupture lors des différentes passes de la gamme de fabrication.

La connaissance de la microstructure d'une pièce tout au long de sa mise en forme (étapes de déformation et recuits) permet de maîtriser les propriétés mécaniques finales. Une voie permettant de suivre ces évolutions est de modéliser les différents phénomènes se produisant au niveau microstructural. On obtient ainsi un outil prédictif qu'il est possible de coupler à un logiciel « éléments finis ». Pour mettre en place ce type d'outil, il est tout d'abord nécessaire d'identifier les mécanismes impliqués. Ceci passe par une observation expérimentale du tantale dans différents états de déformation et de recuit. Ces observations vont permettre d'une part de construire les modèles et d'autre part de les valider.

Plusieurs travaux ont déjà été réalisés sur le tantale et ont montré quel pouvait être le développement de la microstructure de déformation lors d'essais de laboratoire [1, 2, 3, 4, 5]. Ces études ont également cherché à relier la microstructure de déformation à l'apparition de la recristallisation et de la restauration pendant un traitement thermique. L'écrouissage des grains diffère selon leur orientation cristallographique initiale par rapport à la direction de la sollicitation mécanique. Certains grains vont développer une sous-structure de déformation en cellules alors que d'autres présenteront une densité de dislocations uniforme. Cette hétérogénéité va influencer le comportement de la microstructure au cours du traitement thermique en nourrissant la compétition entre la recristallisation et la restauration.

A cette hétérogénéité à l'échelle de la microstructure, vient s'ajouter une hétérogénéité de déformation macroscopique suivant le procédé de mise en forme appliqué et la forme de la pièce réalisée. A l'échelle de la pièce, la microstructure peut donc également être hétérogène.

La microstructure après recuit est clairement dépendante de la microstructure de l'état déformé. Il s'agit donc de savoir comment prendre en compte les hétérogénéités de l'état déformé pour prédire la microstructure de l'état recuit.

Deux techniques sont ici proposées pour répondre à cette question en considérant les deux échelles évoquées : microscopique (échelle du grain) et macroscopique (échelle de la pièce). Nous allons tout d'abord observer quels peuvent être les mécanismes de régénération de la microstructure apparaissant lors d'un recuit à partir de traitements thermiques *in situ* dans la chambre d'un microscope électronique à balayage pour une pièce déformée selon une sollicitation simple (compression). Dans un deuxième temps, nous chercherons à mettre en place une méthode plus globale par mesure de dureté Vickers pour prédire le comportement de la microstructure pendant le recuit pour une pièce déformée selon une sollicitation complexe (aquadrawformage et fluotournage).

2. Hétérogénéités à l'échelle de la microstructure

Afin de suivre l'évolution de la microstructure et de ses hétérogénéités pendant un traitement thermique, une platine chauffante a été développée et installée dans un microscope électronique à balayage équipé d'un système EBSD. Cette platine permet donc de réaliser des traitements thermiques sur un échantillon placé en configuration EBSD (incliné à 70°) (figure 1), avec une inertie thermique très faible permettant un contrôle parfait des rampes de température et garantissant l'homogénéité de la température [6].

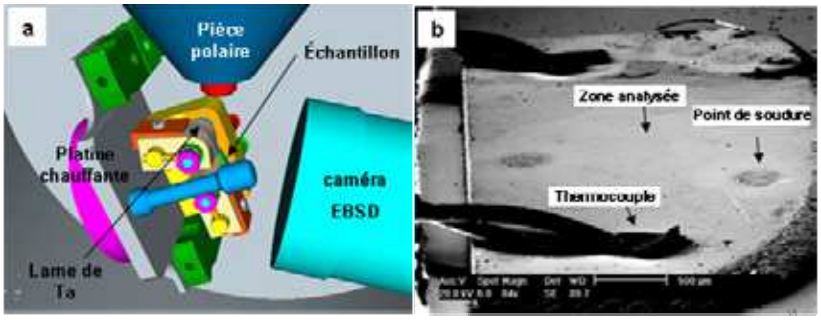


Figure 1. Images du dispositif de chauffage *in situ*

a) CAO de la platine montée dans la chambre du MEB et basculée à 70° pour mesures EBSD

b) Échantillon soudé sur la lame de tantale et équipé de thermocouples

Pour ces essais *in situ*, un pion cylindrique de tantale de grande pureté a été déformé par compression à vitesse de traverse constante (1 mm/s). Le taux de réduction est de 54%. L'échantillon de tantale subit une séquence de traitements thermiques à 1050°C présentée sur la figure 2.

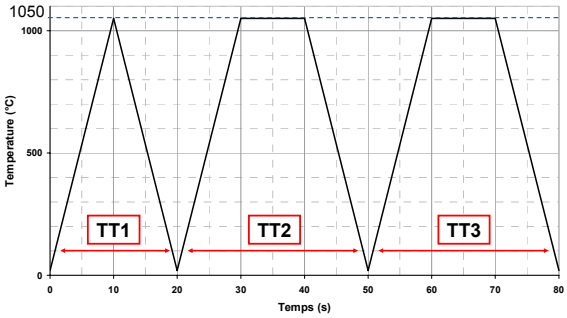


Figure 2. Séquence de traitements thermiques appliquée à l'échantillon

Le suivi de la microstructure se fait de manière séquentielle : cycles de chauffage – maintien – refroidissement - cartographie EBSD (pas de mesure 2 µm).

Lors de la déformation plastique, l'écrouissage est différent d'un grain à l'autre en fonction de l'orientation cristallographique. Cette hétérogénéité est mise en évidence dans le pion déformé en

compression par le calcul des facteurs de Taylor (figure 3). Ce facteur nous renseigne sur l'activité des systèmes de glissement pendant la déformation. Un facteur de Taylor élevé indique une forte activité des systèmes de glissement et donc un écrouissage plus important que pour un grain présentant un facteur de Taylor plus faible.

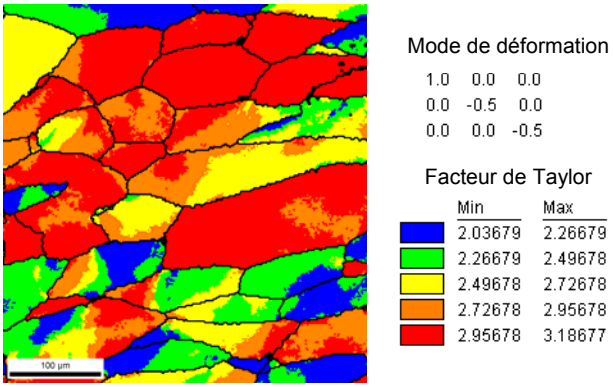
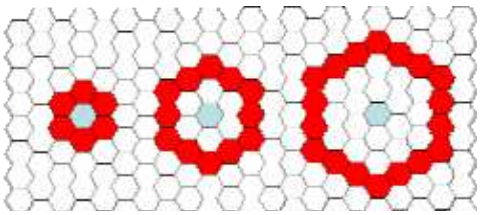


Figure 3. Cartographie des facteurs de Taylor sur la zone d'analyse (état déformé)

Le tantale soumis à une déformation plastique tend à développer une structure en cellules, laquelle est caractérisée par des désorientations locales du réseau cristallin assez importantes. Le facteur de Taylor donne une indication sur le niveau d'écrouissage d'un grain mais il ne rend pas compte de l'organisation intragranulaire des dislocations. Les zones où existent de fortes désorientations du réseau cristallin sont susceptibles d'être des sites préférentiels pour la germination lors de la recristallisation. Les désorientations intragranulaires sont par ailleurs très faibles dans un grain recristallisé. Leur mesure permet donc de discriminer les grains recristallisés de la matrice déformée.

Afin de quantifier ces désorientations locales, on utilise le « Kernel Average Misorientation » (KAM) défini dans le logiciel OIM Analysis (EDAX TSL). Le KAM représente la moyenne des désorientations entre le pixel analysé et les pixels du kernel (figure 4) en excluant les désorientations supérieures à un angle limite correspondant à l'angle de désorientation seuil de définition d'un joint de grains. Dans notre étude, nous choisissons un kernel au 3ème voisin (soit un rayon de 6 µm en considérant le pas de mesure appliqué) et un seuil de définition d'un joint de grains à 5°.



Kernel au 1er voisin — Kernel au 2nd voisin — Kernel au 3ème voisin

Figure 4. Représentation du « kernel » suivant le nombre de voisins choisi

La figure 5 présente l'évolution de la microstructure de notre échantillon au cours de la séquence de traitements thermiques imposée ainsi que les cartographies du KAM. Dès le premier cycle, on observe l'apparition de nouveaux grains présentant de faibles désorientations internes. La recristallisation a donc déjà débuté au cours des 10 premières secondes, il s'agit d'une recristallisation discontinue basée sur le processus de germination/croissance.

La recristallisation induit une évolution de la distribution des désorientations intragranulaires représentées par le KAM (figure 6a). Les nouveaux grains générés par le processus de germination/croissance sont caractérisés par de faibles valeurs de désorientations internes. Ainsi la distribution du KAM se décale vers des valeurs plus faibles lorsqu'il y a recristallisation. La distribution moyenne au cours du traitement thermique est donnée en figure 6b.

On peut noter que les germes apparaissent dans les zones où l'état déformé présentait de fortes valeurs de désorientations intragranulaires et ceci principalement au niveau des joints de grains. Ces zones appartiennent d'ailleurs aux grains présentant les facteurs de Taylor les plus élevés (figure 7).

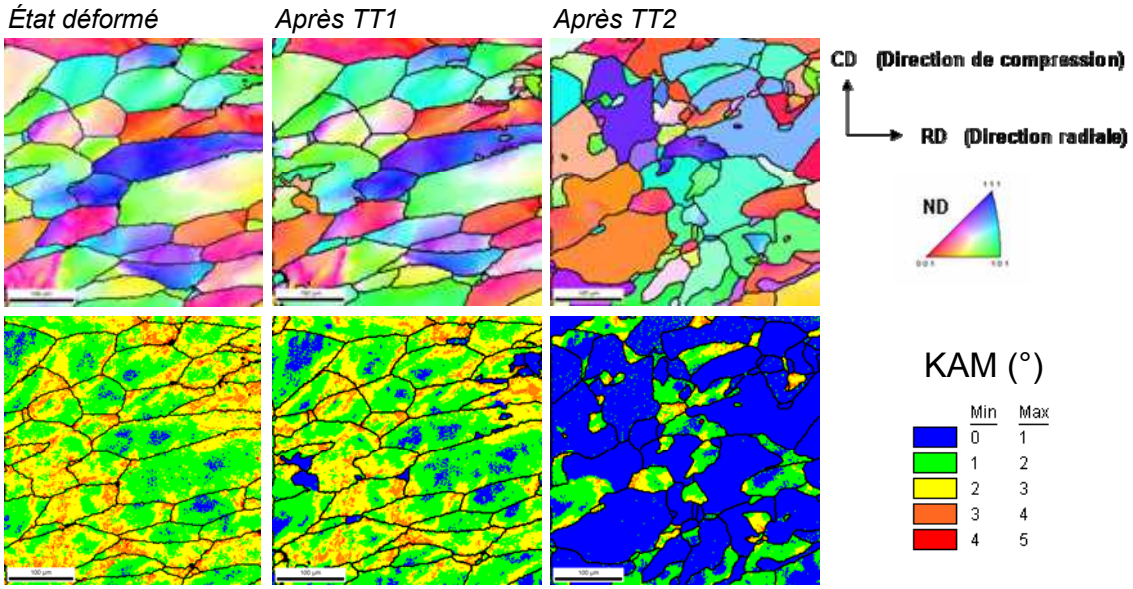


Figure 5. Evolution de la microstructure et des désorientations intragranulaires au cours de la séquence de traitements thermiques

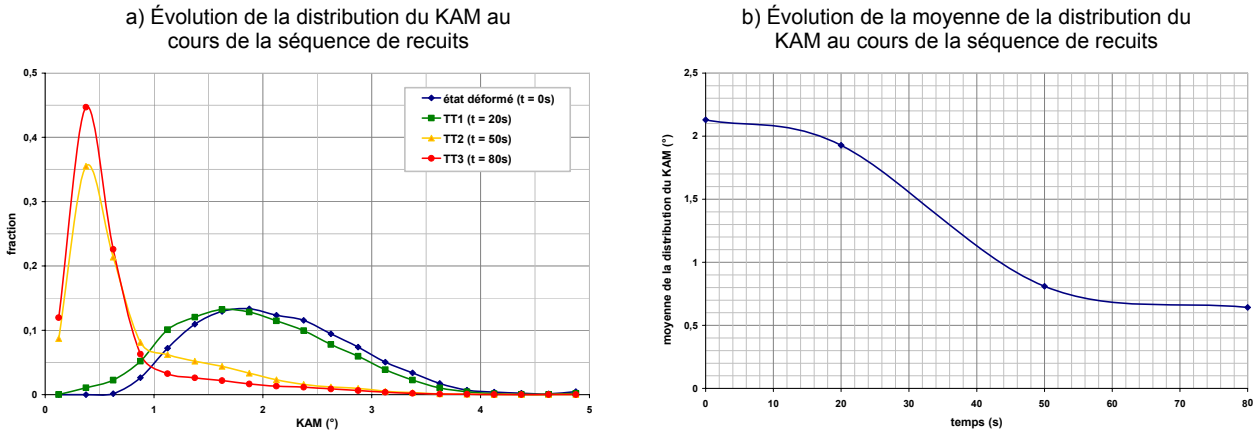


Figure 6. Évolution de la distribution des désorientations intragranulaires et de sa moyenne en fonction du temps

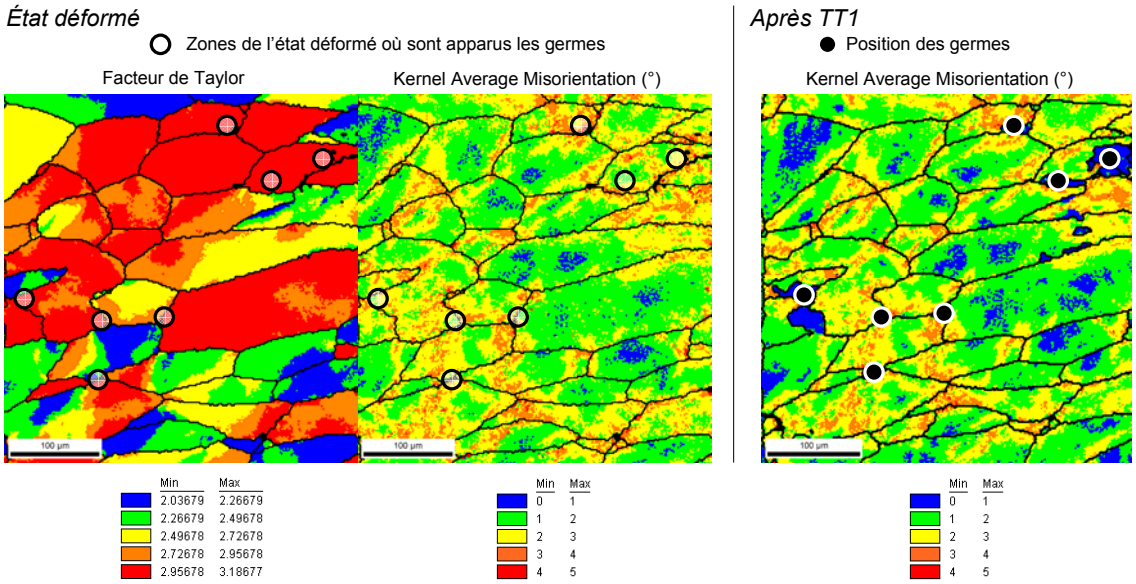


Figure 7. Localisation des germes après le premier recuit et dans l'état déformé

La vitesse de chauffage étant très rapide (~100 °C/s), une restauration préalable diminuant l'énergie stockée dans le matériau ne peut se produire de façon importante. Cependant, on observe tout de même localement une diminution des désorientations intragranulaires ce qui démontre une certaine activité de restauration. Ce phénomène reste ici mineur par rapport à la recristallisation. Les zones restaurées présentent des désorientations locales faibles, comme les grains recristallisés. Ce qui discrimine réellement les deux phénomènes est que la recristallisation génère de nouveaux « grains », zones de faibles désorientations internes et entourées par des joints de grains, tandis que les zones restaurées n'ont pas de frontières bien définies.

Le « Grain Orientation Spread (GOS) » représente la moyenne des désorientations de chaque pixel d'un même grain par rapport à l'orientation moyenne de ce grain. Une faible valeur du GOS signifie que l'on a affaire à un grain avec de faibles désorientations internes, ce qui correspond exactement à la définition d'un grain recristallisé. Au contraire, un grain présentant une zone restaurée aura un GOS plus élevé.

Sur la figure 8, on observe bien qu'un grain recristallisé présentant de faibles désorientations internes correspond à une valeur faible du GOS. Ces grains sont localisés au niveau des joints de grains de la structure déformée. Les zones restaurées sont généralement localisées au centre de gros grains ayant une valeur du GOS plus élevée.

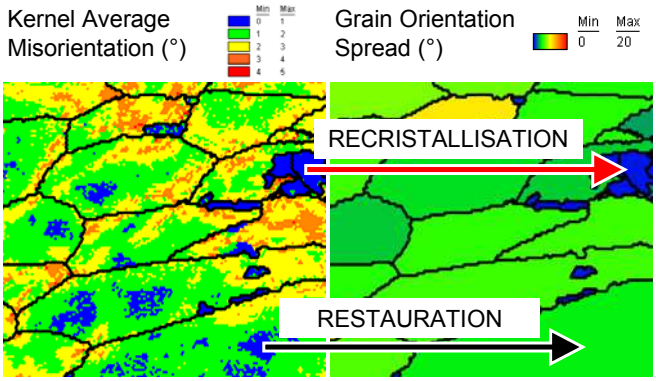


Figure 8. Le « Grain Orientation Spread » : un outil de discrimination entre recristallisation et restauration

L'analyse des cartographies du « Kernel Average Misorientation » couplée à celle du « Grain Orientation Spread » permet de discriminer recristallisation et restauration et d'observer la compétition qui peut exister entre ces deux phénomènes. Sur la figure 9, on constate qu'après le second traitement thermique des zones de la matrice déformée subsistent. Certaines de ces zones correspondent à des grains qui avaient restauré lors du premier traitement thermique. L'énergie stockée dans ces grains a diminué et ces zones sont plus lentes à recristalliser.

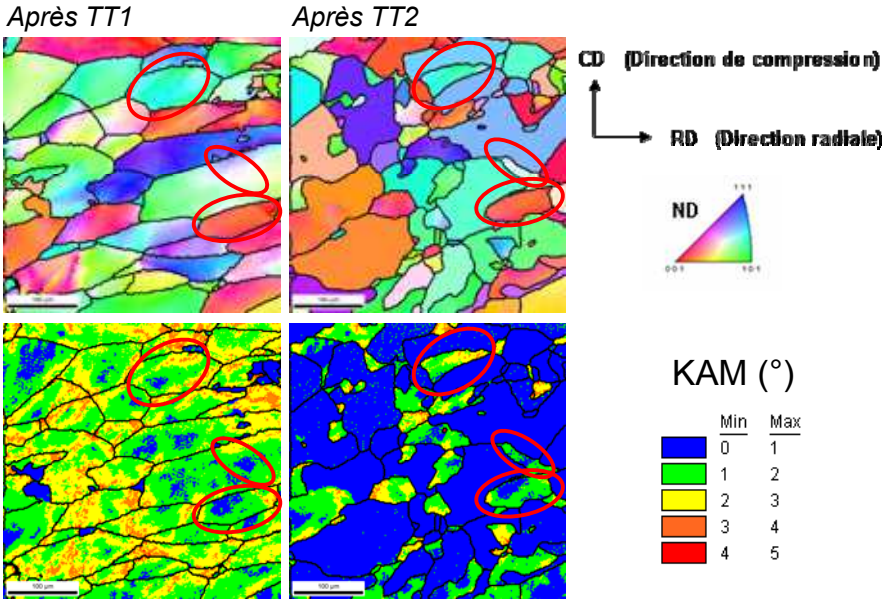


Figure 9. Subsistance de zones de la matrice déformée due à la restauration

3. Hétérogénéités à l'échelle de la pièce

Pendant la mise en forme, le matériau voit différentes histoires thermomécaniques en fonction de la localisation sur la pièce. Ceci implique donc une hétérogénéité de la microstructure à l'échelle de la pièce.

Une mesure de dureté est représentative de l'état microstructural du matériau. La valeur de dureté est fortement dépendante du niveau d'écrouissage (densité de dislocations). Cette mesure est donc un bon candidat pour mettre en évidence les hétérogénéités à l'échelle macroscopique.

Le matériau de départ est une tôle épaisse de tantale de grande pureté. Elle est ensuite mise en forme par aquadrawformage en plusieurs passes. Par la suite, la partie cylindrique de la pièce obtenue est fluotournée (figure 10). Du fait de cette mise en forme multi-passes et multi-sollicitations, on obtient une pièce avec un matériau qui a subi différentes histoires thermomécaniques en fonction de la localisation sur la pièce.

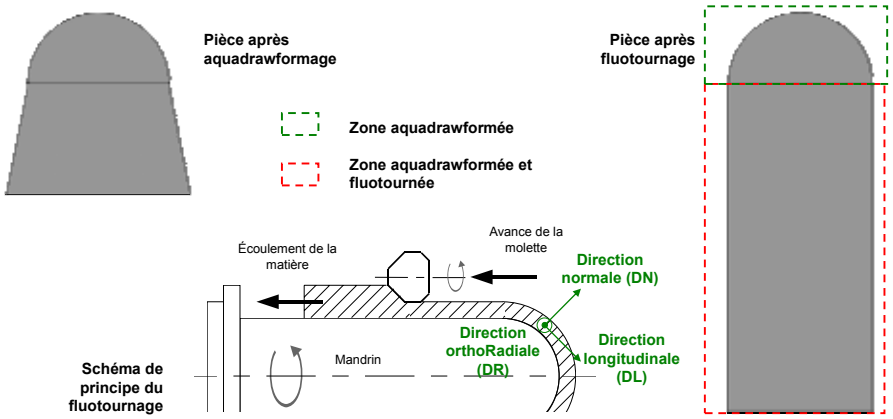


Figure 10. Principe du fluotournage et définition d'un repère macroscopique lié au procédé de mise en forme

Les étapes de déformation étant réalisées, on applique un traitement thermique à 1050°C pendant 60 min avec une pente de chauffage d'environ une dizaine de degrés par minute. Rappelons que ce recuit est réalisé sous vide secondaire pour éviter une absorption par le tantale de différents éléments présents dans l'atmosphère comme l'oxygène, l'hydrogène ou encore l'azote, qui ferait rapidement chuter ses propriétés mécaniques [7].

La pièce a été découpée en plusieurs secteurs (figure 11). Des filiations de dureté sont effectuées le long de l'épaisseur, de la surface intérieure vers la surface extérieure.

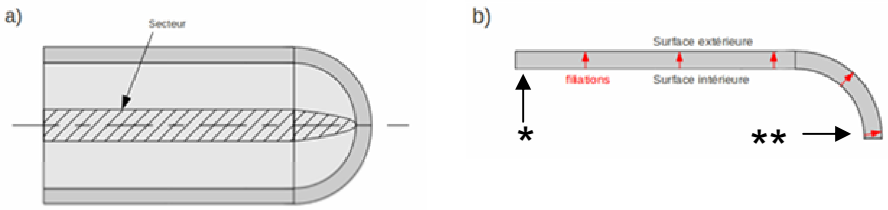


Figure 11. Schéma de la pièce après mise en forme

a) Coupe par rapport à un plan contenant l'axe de symétrie

b) vue d'un secteur découpé dans la pièce pour l'expertise métallurgique

Nous nous intéresserons ici à deux zones de la pièce n'ayant pas du tout subi le même processus de déformation :

- l'extrémité de la pièce, zone la plus déformée après fluotournage (indiquée par * sur la figure 11b)
- le dôme de la pièce, zone la moins déformée et uniquement par aquadrawformage (indiquée par ** sur la figure 11b)

Des mesures de dureté Vickers sont donc réalisées sur ces deux zones, à la fois sur l'état déformé et sur l'état recuit (figure 12). Ces deux parties sont déformées de manière quasi homogène dans l'épaisseur, la valeur de dureté indiquée représente donc une moyenne des mesures effectuées sur chaque zone. Suivant l'état de déformation, les duretés sont différentes, la zone la plus déformée présentant la dureté la plus importante.

Lorsque l'on réalise les mêmes mesures sur la pièce recuite, la dureté de la zone la plus déformée chute de 158 HV300 à 98 HV300 en moyenne, alors que le dôme de la pièce chute de 143 HV300 à 109 HV300. Ceci indique que la microstructure de ces deux zones n'a pas évolué de la même manière.

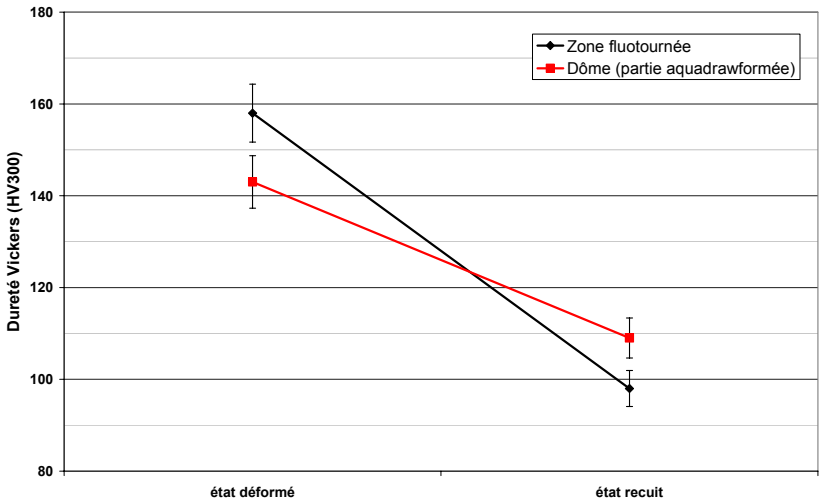


Figure 12. Valeur de dureté sur les deux zones étudiées pour l'état déformé et l'état recuit

Des mesures EBSD effectuées sur ces zones montrent que les microstructures de déformations sont complètement différentes (figure 13). En effet, la zone la plus déformée présente une structure en lamelle très fine avec une sous-structure de déformation qui recristallise pendant le recuit appliqué (figure 14). Le dôme a, quant à lui, une structure en gros grains présentant des désorientations intragranulaires faibles qui n'est quasiment pas modifiée par le recuit.

La chute de dureté plus importante dans le cas de la zone la plus déformée s'explique par la recristallisation qui s'y est produite, la densité de dislocations ayant drastiquement chuté. Dans la cas du dôme, la dureté initiale est moins importante entraînant une diminution de dureté après recuit, elle aussi moins importante. La structure initiale a simplement restauré mais présente toujours à l'issue du recuit une dureté supérieure à celle d'une structure recristallisée.

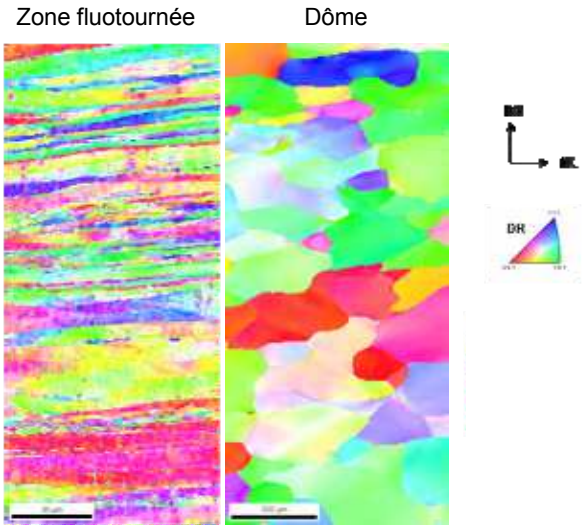


Figure 13. Microstructure de déformation des deux zones étudiées

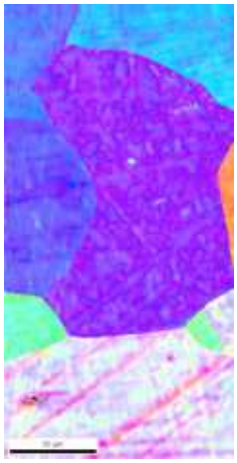


Figure 14. Microstructure après recuit sur la zone fluotournée

4. Discussion

Les observations qualitatives réalisées sur le tantale sont en accord avec les mécanismes physiques connus de recristallisation et de restauration. Les germes de recristallisation apparaissent dans les zones les plus fortement désorientées. Dans l'état de déformation étudié, ces zones se situent à proximité des joints grains. La restauration apparaît la plus part du temps au centre de gros grains et est susceptible de freiner la recristallisation par une diminution de l'énergie stockée dans le matériau.

Cette discussion va principalement porter sur les méthodes utilisées, en essayant d'en ressortir les avantages et les limitations.

La technique de traitement thermique *in situ* permet d'observer l'évolution de la microstructure par mesures EBSD et d'identifier les mécanismes mis en jeu pendant un recuit.

Les hétérogénéités de la microstructure développées au cours de la déformation sont identifiables, par exemple, par un calcul des facteurs de Taylor ou des désorientations intragranulaires représentées par le Kernel Average Misorientation. Ces hétérogénéités conditionnent l'apparition de la recristallisation ou de la restauration comme vu précédemment.

Dans le premier cas présenté, les facteurs de Taylor sont accessibles car la déformation appliquée est simple et connue (compression uniaxiale). Dans l'autre cas où la sollicitation est plus complexe, ce facteur devient difficilement calculable compte tenu des hypothèses à faire et du mode de déformation difficilement modélisable pour ce type de procédé.

Dans le cas du tantale, même pour les zones les plus fortement déformées, les clichés de Kikuchi restent exploitables. Les désorientations intragranulaires restent ainsi accessibles. Ces désorientations intragranulaires développées lors de la déformation jouent un rôle important lors de la mise en place des mécanismes d'évolution microstructurale. Les germes de recristallisation apparaissent dans les zones de fortes désorientations du réseau cristallin.

Les mesures réalisées grâce à la technique *in situ* peuvent être affectées par des effets de surface libre sur le déplacement des dislocations et des joints de grains. Cependant le début de la recristallisation implique des forces motrices importantes, lesquelles sont supérieures aux forces d'interaction avec la surface libre. Des mesures EBSD couplées à des traitements thermiques *in situ* permettent de caractériser l'état déformé et d'identifier le déclenchement de la recristallisation et de la restauration et d'observer qualitativement la croissance de grain (sans vouloir rendre compte d'une cinétique de croissance à cause de l'effet de surface libre).

Cette technique serait idéale pour caractériser la microstructure de l'état déformé ainsi que les mécanismes de recristallisation et de restauration sur toute une pièce. A partir de ces données, il serait possible de prédire quelle serait la microstructure de l'état recuit. Cependant, l'échelle à laquelle nous nous trouvons pour ces analyses n'est compatible ni avec la taille des pièces ciblées ni avec le fait de vouloir utiliser une modélisation basée sur les éléments finis pour prédire l'état recuit. La technique de recuit *in situ* couplée à une analyse EBSD est beaucoup plus adaptée à l'identification des mécanismes de recristallisation et de restauration en fonction du type de microstructure mais elle n'est pas envisageable à l'échelle d'une pièce entière.

Une mesure de dureté permet d'accéder à une information plus moyennée sur la microstructure et entre autres à la densité de dislocations [8], variable d'état pertinente dans les modèles de recristallisation et de restauration. La mesure de dureté peut ainsi donner accès à l'énergie stockée sous forme de dislocations dans le matériau après déformation et est donc représentative de l'histoire thermomécanique subie. Sur une pièce réelle mise en forme suivant plusieurs procédés, il est possible de mettre en évidence les différences de microstructure induites par une simple mesure de dureté.

A partir de cette caractérisation d'un état déformé, une zone présentant une dureté plus élevée qu'une autre aura ainsi stocké plus d'énergie sous forme de dislocations et sera plus encline à recristalliser et restaurera beaucoup moins. Cependant, la compétition entre restauration et recristallisation n'est pas uniquement dépendante de la quantité de dislocations. Elle dépend également de la sous-structure développée lors de la déformation, de la taille, de la morphologie et de l'orientation cristallographique des grains. Les modèles visant à traduire une mesure de dureté en « potentiel de recristallisation » devront prendre en compte ces éléments et pas uniquement la densité de dislocations. Cette remarque prend encore plus de sens en tenant compte des niveaux de dureté très proches que l'on a pu observer sur le tantale entre deux zones déformées à des niveaux très différents. Il conviendra donc de compléter les mesures de dureté avec une observation de la microstructure (microscopie optique par exemple).

5. Conclusion

Deux approches sont utilisées pour aborder la recristallisation du tantale, une approche microscopique et une autre plutôt macroscopique.

La première approche permet de comprendre les mécanismes mis en jeu pendant un recuit en fonction de la microstructure de départ. Pour cela, une platine chauffante a été développée et installée dans la chambre d'un microscope électronique à balayage afin de réaliser des traitements thermiques *in situ* et d'analyser la microstructure par mesure EBSD. Il est possible d'observer la germination et la croissance de nouveaux grains lors d'une séquence de recuits. Les désorientations intragranulaires développées lors de la déformation jouent un rôle important lors de la mis en place des mécanismes d'évolution microstructurale. Les germes apparaissent dans les zones de fortes désorientations du réseau cristallin correspondant aux joints de grains pour l'état déformé considéré.

A l'échelle macroscopique, une mesure de dureté Vickers permet d'évaluer de manière globale une densité de dislocations, variable d'état d'un modèle de recristallisation/restauration statique. Deux zones présentant des duretés différentes vont présenter des comportements différents pendant le recuit. Cette différence de mécanismes peut être mise en évidence par des mesures de dureté sur l'état recuit.

REMERCIEMENTS

Les auteurs souhaitent remercier le Pôle Nucléaire de Bourgogne (PNB) ainsi que tous les participants au projet ANR THERMIDE.

REFERENCES

[1] R.A. Vandermeer and W.B. Snyder, *Recovery and recrystallization in rolled tantalum single-crystals*, Metallurgical Transactions a-Physical Metallurgy and Materials Science, 10(8), 1031-1044, 1979.

[2] M.F. Hupalo and H.R.Z. Sandim, *The annealing behavior of oligocrystalline tantalum deformed by cold swaging*, Materials Science and Engineering a-Structural Materials Properties Microstructure and Processing, 318(1-2),216-223, 2001.

[3] K.T. Hartwig, S.N. Mathaudhu, H.J. Maier and I. Karaman, *Hardness and microstructure changes in severely deformed and recrystallized tantalum*, Ultrafine Grained Materials II, 151-160, 2002.

[4] H.R.Z. Sandim, J.P. Martins, A.L. Pinto and A.F. Padilha. *Recrystallization of* oligocrystalline tantalum deformed by cold rolling, Materials Science and Engineering a-Structural Materials Properties Microstructure and Processing, 392(1-2), 209-221, 2005.

[5] S.N. Mathaudhu and K.T. Hartwig, *Grain refinement and recrystallization of heavily worked tantalum,* Materials Science and Engineering a-Structural Materials Properties Microstructure and Processing, 426(1-2),128-142, 2006.

[6] N. Bozzolo et al., *EBSD coupled to SEM in situ annealing as a tool to identify recrystallization mechanisms – application to Zr and Ta alloys -*, Proceedings of the 4th Recrystallization and Grain Growth conference, Sheffield (UK), 4-9 July 2010.

[7] F. Buy, *Étude expérimentale et modélisation du comportement plastique du tantale - prise en compte de la vitesse de déformation et du trajet de chargement-*, Thèse de doctorat, ISGMP, Université de Metz, 1996.

[8] M. Houillon, *Modélisation du procédé de fluotournage du tantale et du traitement thermique associé*, Thèse de doctorat, CEMEF, Mines Paristech, 2009.