

**ÉCOLE DOCTORALE SCIENCES DES MÉTIERS DE L'INGÉNIEUR**  
**Laboratoire d'étude des microstructures et de mécanique des matériaux –**  
**Campus de Metz**

# THÈSE

présentée par : **Younes ELHACHI**

soutenue le : **14 octobre 2020**

pour obtenir le grade de : **Docteur d'HESAM Université**

préparée à : **École Nationale Supérieure d'Arts et Métiers**

Spécialité : **Matériaux**

## **Approche couplée de diffraction à haute énergie et de modélisation numérique pour l'étude multi-échelles du comportement superélastique d'un alliage à mémoire de forme Cu-Al-Be**

THÈSE dirigée par :  
**Mme BERVEILLER Sophie**

et co-encadrée par :  
**M. MALARD Benoit**  
**M. PIOTROWSKI Boris**

### **Jury**

**Mme Sabine DENIS**, Professeur des universités, IJL, Université de Lorraine  
**Mme Shabnam ARBAB-CHIRANI**, Professeur des universités, IRDL, ENIB  
**M. Andras BORBELY**, Directeur de Recherche, LGF, ENSM-SE  
**M. Francisco BRAZ-FERNANDES**, Maitre de Conférences, CENIMAT, UNL  
**M. Manuel FRANCOIS**, Professeur des Universités, LASMIS, UTT  
**M. Romain QUEY**, Chargé de Recherche CNRS, LGF, ENSM-SE  
**M. Etienne PATOOR**, Professeur des Universités, Georgia Tech-Lorraine

Présidente  
Rapporteuse  
Rapporteur  
Examineur  
Examineur  
Examineur  
Invité

**T  
H  
È  
S  
E**



*A ma chérie Rokaya pour son amour,  
à mes parents, mes sœurs et mes frères pour leur soutien  
inconditionnel,  
à Amar et Mame pour leur amitié,*

*je dédie ce travail*



## Remerciements

Ce travail de thèse a été réalisé au laboratoire LEM3 d'Arts et Métiers – Metz en partenariat avec le laboratoire CIRIMAT de Toulouse. Je tiens tout d'abord à remercier encadrants de thèse pour tout ce qu'ils m'ont transmis, leur aide précieuse durant des années et, tout particulièrement, au cours des derniers mois. Je pense à ma directrice de thèse, Sophie Berveiller, et mes co-encadrants Benoit Malard et Boris Piotrowski.

Sophie, je ne peux te remercier assez pour tout ton soutien. Ta rigueur et ton exigence me seront d'une grande utilité tout au long de ma carrière professionnelle. Merci de m'avoir fait profiter de toute ton expérience sur le sujet. Benoit, merci de tout ton soutien et de la confiance que tu m'as accordée depuis mon entretien de stage de Master. Tu m'as encouragé au quotidien et tu as grandement apporté à la réussite de ce projet. Boris, ta précieuse implication active dans les longues heures de simulation numérique, ta méthodologie et tes conseils m'ont énormément aidé et réconforté dans des périodes clés de la thèse, sans oublier que tu m'as chaleureusement accueilli au CIRAM pendant plusieurs mois. Merci pour les repas qu'on a partagés ensemble. Merci pour tout.

Mes chaleureuses remerciements à Shabnam ARBAB-CHIRANI et Andras BORBELY d'avoir accepté d'être les rapporteurs de ce manuscrit, ainsi que tous les membres du jury qui ont eu l'amabilité de constituer le jury.

J'adresse mes remerciements également à Fodil Meraghni, Directeur de l'Ecole Doctorale SMI de m'avoir accueilli et de m'avoir assisté durant ma thèse. Je remercie chaleureusement Jonathan Wright, Wolfgang Ludwig, Romain Quey et Yves Chemisky de m'avoir accueilli avec sympathie lors de mes séjours à l'ESRF et à l'Ecole des Mines de Saint-Étienne. Leur expertise m'a guidé pour mener à bien cette étude.

Je souhaite remercier également Mame Daro Fall, Mohamed Elfallaki Idrissi, Xavier Morel, Denis Bouscaud, Marc Wary, Théophile Gross, Laurent Peltier, Pierre Charbonnier, Pavel Sedmak et Justin Favero et je leur adresse toute ma reconnaissance pour leurs contributions à mon travail de thèse.

C'est aussi l'occasion d'exprimer ma gratitude à tous mes collègues du LEM3 et du CIRAM, le personnel administratif de l'ENSAM, Laurent Schmidt du bureau d'accueil international ainsi que toute personne ayant contribué de près ou de loin à l'avancée de ma thèse.

Aussi, j'aimerais remercier mes amis avec lesquels j'ai partagé des moments splendides : Amar Moghrani, Mame Daro Fall, Abderraouf Bossif, Aziz Nasri, Abderrahim Nachit, Amal, Fares, Kevin, Théophile, Marc, les amis de foot.

Ma femme, mes parents et ma famille m'ont apporté un soutien infailible durant de longues années, qu'ils trouvent ici l'expression de ma sincère gratitude.

## Résumé

Ce travail vise à étudier le comportement multi-échelles d'un alliage à mémoire de forme (AMF) Cu-Al-Be austénitique subissant une transformation martensitique (TM) induite par traction. Du fait de sa forte anisotropie cet alliage est un candidat idéal pour explorer les inhomogénéités qui se développent à l'échelle inter et intragranulaire.

Ce travail de compréhension du comportement superélastique s'est réalisé par une approche couplée entre des méthodes de diffraction à haute énergie et la simulation numérique. La microstructure initiale a été imagée par TCD puis la déformation et la rotation élastiques moyennes sur 187 grains, a été mesurée par 3DXRD à chaque chargement mécanique. La microstructure réelle de l'échantillon a été finement maillée pour reproduire par un calcul en éléments finis l'essai de traction en champ complet. Pour cela, un modèle de comportement micromécanique simulant le comportement du Cu-Al-Be a été utilisé.

Les méthodologies développées, tant du point de vue expérimental que numérique, ont permis de révéler l'influence de l'orientation cristallographique, de la taille des grains, du voisinage, du champ de rotation et de contraintes locales sur la TM.

Mots-clés : Superélasticité, Cu-Al-Be, 3DXRD, TCD, modélisation, contraintes, inhomogénéités inter et intra-granulaires

## Résumé en anglais

This work aims to study the multi-scale behaviour of an austenitic Cu-Al-Be shape memory alloy (SMA) upon a stress-induced martensitic transformation (MT). Because of its strong anisotropy, this alloy is an ideal candidate to explore the inhomogeneities that develop at the inter and intragranular scales.

This study has been carried out using a coupled approach between high-energy diffraction methods and numerical simulation. The initial microstructure was imaged by TCD then the elastic deformation and rotation averaged over 187 grains were measured by 3DXRD at each mechanical loading. The actual microstructure of the specimen was finely meshed to reproduce the full field tensile test by finite element calculation. For this purpose, a micromechanical behaviour model simulating the behaviour of Cu-Al-Be was used.

The methodologies developed, from both experimental and numerical point of view, revealed the influence of crystallographic orientation, grain size, neighbourhood, rotational field and local stresses on the TM.

Keywords: Superelasticity, Cu-Al-Be, 3DXRD, DCT, modelling, stress, inter- and intragranular inhomogeneities



# Table des matières

Résumé .....	i
Résumé en anglais .....	ii
Table des matières .....	iii
Liste des tableaux .....	vii
Liste des figures .....	ix
Liste des annexes.....	xvii
Introduction .....	1
1. Étude bibliographique .....	5
Introduction .....	7
1.1 Transformation martensitique dans les alliages à mémoire de forme .....	8
1.1.1 Généralités sur la transformation martensitique.....	8
1.1.2 Thermodynamique de la transformation induite thermiquement.....	11
1.1.3 Transformation martensitique induite par contraintes mécaniques.....	12
1.2 Comportement superélastique des AMF .....	14
1.2.1 Comportements superélastiques du monocristal et du polycristal .....	14
1.2.2 Effets de la microstructure sur le comportement superélastique.....	15
1.2.2.1 Effet de l'orientation cristallographique et de l'anisotropie du polycristal	15
1.2.2.2 Effet de la taille des grains austénitiques – rôle des joints de grains .....	19
1.2.2.3 Effet de localisation (surface libre) et des grains voisins.....	20
1.3 Caractéristiques de l'alliage Cu-Al-Be.....	21
1.4 Techniques de diffraction des rayons-X synchrotron.....	24
1.4.1 La technique de diffraction des rayons-X 3D (3DXRD) .....	24
1.4.2 La tomographie à contraste de diffraction (TCD).....	29
Conclusion.....	33
2. Techniques expérimentales, matériau et démarche de l'étude.....	35
Introduction .....	37
2.1. Diffraction des rayons-X à haute énergie .....	38
2.1.1. Introduction .....	38
2.1.2. Mise en œuvre des montages expérimentaux.....	38
2.2. Détermination des propriétés moyennes à l'échelle du grain par diffraction des rayons- X en 3D (3DXRD) .....	42

2.2.1.	Acquisition et post-traitement des images de 3DXRD .....	43
2.2.2.	Etalonnage du diffractomètre .....	45
2.2.3.	Procédure d'indexation sous ImageD11 .....	47
2.2.3.1.	Génération des orientations de test « trial orientations » (étape A) .....	49
2.2.3.2.	Indexer les pics aux matrices UBI (étape B).....	50
2.2.3.3.	Affiner les propriétés moyennes du grain (étape C).....	51
2.2.4.	Affiner les paramètres globaux du diffractomètre .....	52
2.2.5.	Mesure de l'orientation, de la déformation élastique et détermination des contraintes moyennes dans le grain.....	54
2.2.6.	Conclusion partielle.....	57
2.3.	Reconstruction de la microstructure 3D par Tomographie à Contraste de Diffraction (TCD).....	57
2.3.1.	Post-traitement et segmentation des images brutes de TCD .....	57
2.3.2.	Indexation par symétrie des paires de Friedel .....	61
2.3.3.	Reconstruction tridimensionnelle du volume.....	63
2.4.	Démarche expérimentale .....	64
2.4.1.	Matériau de l'étude.....	64
2.4.2.	Démarche de l'étude.....	65
3.	Post-traitement et méthodologies de suivi des grains individuels d'austénite durant la traction.....	67
	Introduction .....	69
3.1.	Analyse de la microstructure initiale .....	69
3.1.1.	Détermination des propriétés moyennes par grain en 3DXRD .....	69
3.1.2.	Reconstruction tridimensionnelle de la microstructure par TCD.....	73
3.1.3.	Comparaison des résultats de la 3DXRD et de la TCD à l'état initial .....	75
3.2.	Essai de traction in-situ.....	78
3.2.1.	Conditions expérimentales et d'indexation .....	78
3.2.2.	Post-traitement et analyse des données d'indexation à l'état initial.....	81
3.2.3.	Approches d'indexation et de suivi des grains au cours de la traction .....	85
3.2.4.	Comparaison des méthodes d'indexation et de suivi des grains .....	87
3.2.5.	Optimisation de la procédure d'indexation .....	90
3.3.	Suivi de déformations et de contraintes moyennes sur les grains .....	95
3.3.1.	Détermination du paramètre de maille non contraint.....	96
3.3.2.	Comportement mécanique à l'échelle macroscopique.....	97

3.3.3.	Comportement mécanique à l'échelle mésoscopique .....	98
	Conclusion.....	104
4.	De l'expérimental au numérique : digitalisation de la microstructure et mise en données de la simulation numérique de l'essai de traction .....	107
	Introduction .....	109
4.1.	Modèle géométrique de discrétisation de microstructure 3D d'un polycristal.....	109
4.1.1.	Génération de tessellations de Laguerre à partir du polycristal .....	110
4.1.2.	Génération de maillage à partir de tessellations et Implémentation du modèle géométrique de la microstructure 3D.....	113
4.2.	Modèle constitutif du comportement thermomécanique d'un monocristal d'AMF	115
4.2.1.	Déformation dans un Volume Élémentaire Représentatif (VER).....	115
4.2.2.	Potentiel thermodynamique du système austénite – martensite.....	117
4.2.3.	Critères de transformation.....	119
4.2.4.	Loi d'évolution de la transformation :.....	121
4.3.	Mise en données de la simulation numérique de l'essai de traction.....	122
4.3.1.	Implémentation de la loi de comportement du monocristal .....	122
4.3.2.	Paramètres numériques et du matériau.....	123
4.3.3.	Conditions aux limites.....	124
4.4.	Résultats issus de la simulation numérique .....	126
4.4.1.	Post-traitement et validation des résultats de la simulation .....	127
4.4.2.	Comportement mécanique moyen sur le grain.....	128
	Conclusion.....	130
5.	Analyse multi-échelle de la transformation martensitique.....	133
	Introduction .....	135
5.1	Evolution de la transformation martensitique à l'échelle de l'éprouvette.....	136
5.2	Etude de la transformation martensitique à l'échelle de grains austénitiques .....	137
5.2.1	Evolution de la déformation et début de la transformation .....	137
5.2.2	Développement de la transformation dans le grain C1 .....	140
5.2.2.1	Analyse des variantes activées et de leur croissance .....	140
5.2.2.2	Evolution des cissions résolues.....	142
5.2.2.3	Analyse par far facteurs de Schmid mécaniques .....	145
5.2.3	Comparaison de la TM dans les grains orientés [100], [110] et [111].....	146
5.3	Influence de la microstructure sur le comportement à l'échelle mésoscopique .....	149
5.3.1	Choix des doublets de grains.....	149

5.3.2	Effet de l'orientation .....	151
5.3.3	Effet des grains voisins et des hétérogénéités à l'échelle microscopique .....	154
5.3.3.1	Grains de même orientation sans voisins communs .....	154
5.3.3.2	Grains d'orientation proches et ayant des voisins en commun .....	158
5.3.3.3	Effet des interfaces austénite / martensite sur la rotation des grains .....	163
5.3.4	Effet de localisation et de taille de grain .....	165
	Conclusion .....	167
	Conclusion générale et perspectives .....	169
	Bibliographie .....	173
	Annexes .....	185

## Liste des tableaux

<b>Tableau 1.1</b>	Plans d'habitat $n$ et directions de glissement $m$ des 24 variantes de martensite dans le cas de l'alliage Cu-Al-Be (Kajiwara, 1976) (Baron, 1998). .....	10
<b>Tableau 1.2</b>	Symétrie de la maille unitaire des phases martensitiques des AMF Cu-Al....	23
<b>Tableau 2.1</b>	Valeurs typiques de montage et d'acquisition par les détecteurs 3DXRD et TCD .....	41
<b>Tableau 2.2</b>	Paramètres globaux du montage expérimental de 3DXRD.....	45
<b>Tableau 2.3</b>	Paramètres de centre de masse de grains analysés par 3DXRD.....	45
<b>Tableau 2.4</b>	Angles non nuls possibles entre vecteurs du réseau réciproque d'une maille cubique, en prenant toutes les multiplicités. Les angles sont donnés en ( $^{\circ}$ ). .....	49
<b>Tableau 3.1</b>	Plans diffractants de l'austénite enregistrés sur le détecteur 2D pour une longueur d'onde $\lambda = 0,19 \text{ \AA}$ (65,3 KeV).....	70
<b>Tableau 3.2</b>	Pics de l'état initial, indexés avec des indices $h$ , $k$ , et $l$ de parité différente .	92
<b>Tableau 4.1</b>	Paramètres matériau utilisés dans le calcul MEF .....	124
<b>Tableau 4.2</b>	Paramètres numériques utilisés dans le calcul MEF .....	124
<b>Tableau 5.1</b>	Données accessibles à l'échelle microscopique par MEF ou à l'échelle intergranulaire par 3DXRD .....	135
<b>Tableau 5.2</b>	Facteur de Schmid des 24 variantes possibles de martensite dans le grain C1 .. ..	141
<b>Tableau 5.3</b>	Facteur de Schmid des 24 variantes possibles de martensite dans le grain A1 .. ..	146
<b>Tableau 5.4</b>	Facteur de Schmid des 24 variantes possibles de martensite dans le grain B1 .. ..	147
<b>Tableau 5.5</b>	Attributs microstructuraux des 11 grains étudiés .....	150



## Liste des figures

<b>Figure 1.1</b>	Schéma représentatif de la transformation martensitique à l'échelle atomique (Otsuka & Wayman, 1998). .....	9
<b>Figure 1.2</b>	Schéma de la décomposition d'une transformation martensitique (Entemeyer, 1996). .....	9
<b>Figure 1.3</b>	Représentation du plan d'habitat et de la direction de transformation pour une variante de martensite (Patoor & Berveiller, 1994). .....	10
<b>Figure 1.4</b>	Comportement d'hystérésis dans les AMF (a) Détermination des températures de transformation par DSC. (b) Evolution de la TM directe et inverse, en fonction de la température (Baron, 1998). .....	11
<b>Figure 1.5</b>	Variantes auto-accommodantes de martensite induites par refroidissement (Patoor & Berveiller, 1994). .....	11
<b>Figure 1.6</b>	Diagramme d'état contrainte-température dans les AMF (a) et effet de la température (b). $\varepsilon_e$ : déformation élastique, $\varepsilon_{tr}$ : déformation de transformation. ....	12
<b>Figure 1.7</b>	Transformation martensitique induite par contrainte dans un AMF Ni-Ti. (a) État initial 100% austénitique. (b) Variantes de martensite à 2% de déformation macroscopique (Brinson, Schmidt, & Lammering, 2004). .....	13
<b>Figure 1.8</b>	Comportement superélastique du monocristal et du polycristal. ....	14
<b>Figure 1.9</b>	Comportement superélastique dans un monocristal de Cu-Al-Ni (Horikawa, Ichinose, Morii, Miyazaki, & Otsuka, 1988). .....	16
<b>Figure 1.10</b>	Modélisation du comportement superélastique d'un alliage Cu-Al-Be monocristallin (Merzouki, 2008). .....	16
<b>Figure 1.11</b>	Effet de l'orientation sur le comportement élastique dans un polycristal de Cu-Al-Zn-Mn (a) (Sittner P. , Lukas, Neov, Novak, & Swallowe, 2002) et un polycristal Ni-Ti (b) (Sittner P. , Lukas, Daymond, Novak, & Swallowe, 2004). .....	17
<b>Figure 1.12</b>	Évolution de la déformation élastique (a) et des contraintes internes (b) dans l'austénite suivant la direction de traction, en fonction de la déformation macroscopique, à l'échelle de 3 grains au cours d'un essai de traction sur un polycristal Cu-Al-Be (El Hachi, Malard, Berveiller, & Wright, 2015). .....	18
<b>Figure 1.13</b>	Effet de la taille des grains sur le comportement superélastique du Cu-Al-Be (Sade, de Castro Bubani, Lovey, & Torra, 2014). .....	19

<b>Figure 1.14</b>	Contrainte critique de début de transformation, en fonction de la taille des grains (Sade, de Castro Bubani, Lovey, & Torra, 2014). d : taille de grains. e : largeur de l'éprouvette. ....	19
<b>Figure 1.15</b>	Effet de la localisation des grains dans l'éprouvette sur le comportement superélastique de l'alliage Ni-Ti dans un cycle charge – décharge (Paranjape, et al., 2017)..	20
<b>Figure 1.16</b>	Corrélation entre la déformation axiale d'un grain et le nombre de ses grains voisins (Paranjape, et al., 2017). ....	21
<b>Figure 1.17</b>	Diagramme d'équilibre de l'alliage Cu-Al (Belkahla, 1990).....	22
<b>Figure 1.18</b>	Ordres atomiques des alliages Cu-Al-X (Baron, 1998).....	23
<b>Figure 1.19</b>	Applications type de la microscopie 3DXRD (Jensen & Poulsen, 2012) .....	25
<b>Figure 1.20</b>	Évolution de la phase austénitique en fonction de l'orientation des grains et du chargement appliqué (Blondé, et al., 2014). ....	26
<b>Figure 1.21</b>	Comparaison des clichés de diffraction 3DXRD et des prédictions de l'algorithme TCM pour la détection du signal diffracté par des plans d'habitat de martensite dans des monocristaux de Ni-Ti (Bucsek, Dale, Ko, Chumlyakov, & Stebner, 2018). ....	27
<b>Figure 1.22</b>	Cartographie spatiale de la déformation du réseau sur une microstructure initiale d'un échantillon Ni-Ti (Bucsek, et al., 2019).....	28
<b>Figure 1.23</b>	Modèles de diffraction S3DXRD pour la reconstruction du champ de déformation (Henningsson, Hall, Wright, & Hektor, 2020). ....	28
<b>Figure 1.24</b>	Effet des grains voisins dans une éprouvette de titane commercial pur. L'angle $\beta$ représente la désorientation, en moyenne sur les grains voisins, entre l'axe de traction et l'axe-c de la maille hexagonale compacte de titane (Abdolvand, Wright, & Wilkinson, 2018).....	29
<b>Figure 1.25</b>	Reconstruction de la microstructure par la TCD et comparaison à des observations MEB dans un échantillon de SrTiO <sub>3</sub> (Syha, et al., 2012). ....	31
<b>Figure 1.26</b>	Reconstruction 3D et détermination par TCD du tenseur de déformation élastique dans une éprouvette de Ti sous traction uniaxiale (composante $\varepsilon_{33e}$ parallèle à la contrainte appliquée) (Ludwig, et al., 2010). ....	32
<b>Figure 1.27</b>	Maillage fin d'une éprouvette d'aluminium reconstruite par TCD (Renversade, 2016).....	33
<b>Figure 2.1</b>	Schéma d'introduction de la démarche globale de l'étude .....	37
<b>Figure 2.2</b>	Montages de DRX à haute énergie pour la technique 3DXRD (a) et la TCD (b). (Ludwig, Schmidt, Lauridsen, & Poulsen, 2008) c) Exemple d'images de diffraction, pour un même angle $\omega$ , en 3DRXD (c) et en TCD (d), obtenues sur l'alliage Cu-Al-Be.....	39



<b>Figure 2.3</b>	Algorithme de la procédure d'analyse de données en 3DXRD. ....	42
<b>Figure 2.4</b>	Suppression du bruit de fond. a) Image 3DXRD brute de l'échantillon à un $\omega$ donné. b) Image médiane des images dans tout l'intervalle de rotation représentant le bruit de fond. c) Soustraction de l'image a) par b). ....	44
<b>Figure 2.5</b>	Etalonnage de la géométrie 3DXRD sous PyFAI. a) Cliché de diffraction de la poudre CeO <sub>2</sub> . b) Détection des anneaux Debye-Scherrer par PyFAI.....	46
<b>Figure 2.6</b>	Algorithme de la procédure pour indexer et affiner les attributs de grains.....	48
<b>Figure 2.7</b>	Détermination de l'orientation, de la déformation élastique et des contraintes par la technique 3DXRD. ....	55
<b>Figure 2.8</b>	Traitement d'une image en niveaux de gris représentant les intensités captées par le détecteur de TCD sur un échantillon d'AMF. a) Image brute de TCD avec tout le spectre d'intensité. b) Distribution des intensités de l'image donnée en a). Une focalisation sur la zone délimitée par un nombre d'occurrences inférieur à 10000 est donnée rectangle est donnée en d). c) Spectre des signaux d'intensité faible de l'image en a). d) Distribution des intensités pour un nombre d'occurrences inférieur à 10000.....	58
<b>Figure 2.9</b>	Post-traitement d'une image de TCD de l'échantillon. a) Image de la région centrale contenant le faisceau transmis direct à un $\omega$ donné. b) Radiographie de l'échantillon, obtenu par filtre médian. c) Projection 2D des grains en taches d'extinction, obtenue par soustraction des images a) et b). d) Image finale avec les deux régions du détecteur. Les niveaux de gris sont inversés sur les 4 images, pour l'impression sur papier. ....	60
<b>Figure 2.10</b>	Représentation de la géométrie de diffraction d'une paire de Friedel sur le détecteur 2D (spot A) et sur un détecteur imaginaire (spot B) (Ludwig, et al., 2009).....	62
<b>Figure 2.11</b>	Microstructure 3D d'un volume cylindrique d'alliage $\beta$ -Ti contenant 1008 grains reconstruits par TCD (Ludwig, Schmidt, Lauridsen, & Poulsen, 2008).....	63
<b>Figure 2.12</b>	Observation de la microstructure du fil cylindrique de l'alliage Cu-Al-Be par microscope optique .....	64
<b>Figure 2.13</b>	Démarche expérimentale et numérique de l'étude. ....	66
<b>Figure 3.1</b>	Représentation de la microstructure initiale obtenue par la 3DXRD. Le centre d'une sphère est la position barycentre du grain, son diamètre est la taille de grain, et sa couleur est l'orientation cristallographique par rapport à l'axe de l'éprouvette cylindrique. ....	71
<b>Figure 3.2</b>	Propriétés des grains à l'état initial par 3DXRD. a) Positions radiales des grains (projection sur un plan XY). La taille des cercles correspond à $\mathcal{T}$ , b) Nombre de pics indexés	

$Npks$  en fonction de la taille de grain  $\mathcal{T}$  – Mise en évidence de l’influence de la distance radiale  $\mathcal{R}$ . c) Relation entre  $Npks$  du grain (couleur du pic) et l’intensité de ses pics. Chaque cercle correspond à un pic. d) Orientation cristallographique des grains (chacun est représenté par un cercle de diamètre proportionnel à  $\mathcal{T}$ ) –représentation de l’influence de la distance radiale  $\mathcal{R}$ .

.....	72
<b>Figure 3.3</b> Reconstruction de la microstructure initiale par TCD. <b>a)</b> Image voxelisée des 187 grains indexés et reconstruits en 3D. <b>b)</b> Coupe normale à l’axe de l’éprouvette. <b>c)</b> Coupe parallèle à l’axe de l’éprouvette. Les couleurs sont aléatoires. L’unité sur les axes X, Y et Z est le numéro de pixel. ....	74
<b>Figure 3.4</b> Propriétés des grains à l’état initial par TCD. <b>a)</b> Positions radiales des grains. La taille des cercles correspond à $\mathcal{T}$ . <b>b)</b> $\mathcal{T}$ , $\mathcal{R}$ et $Npks$ (complétude). Les grains n’ayant aucun voxel sur la surface de l’éprouvette (pas de surface libre) sont représentés par des carrés. ....	75
<b>Figure 3.5</b> Comparaison des résultats de TCD et de 3DXRD à l’état initial. Distribution des écarts en position spatiale (a) et en orientation cristallographique (b).....	76
<b>Figure 3.6</b> Comparaison des résultats de TCD et de 3DXRD à l’état initial. <b>a)</b> Taille de grains $\mathcal{T}$ pour chacune des deux mesures. <b>b)</b> Distribution de l’écart absolu en $\mathcal{T}$ . c) Distribution de l’écart en $\mathcal{T}$ relativement à la taille de grain par TCD.....	77
<b>Figure 3.7</b> Montage d’essai de traction 3DXRD <i>in-situ</i> . ....	78
<b>Figure 3.8</b> Courbe macroscopique de traction pour les chargements n°0 à n°8.....	79
<b>Figure 3.9</b> Évolution des taches de diffraction. Image 3DXRD au chargement n°0 (a) et au chargement n°8 (b) au même angle $\omega$ . L’échelle d’intensité est amplifiée dans les images du chargement n°8 pour les besoins de visualisation. ....	80
<b>Figure 3.10</b> Indexation des grains de l’échantillon au chargement n°0. <b>a)</b> Position radiale des grains. La taille des cercles correspond à la taille de grain. <b>b)</b> Angles de diffraction et intensités des pics indexés (en vert) et non indexés (en rouge).....	82
<b>Figure 3.11</b> Comparaison des pics indexés avant et après raffinage de la position des grains. <b>a)</b> Angles de diffraction $2\theta$ et $\eta$ avant (bleu) et après (rouge) raffinage des positions de grains. <b>b)</b> Écarts en angle $2\theta$ des pics en fonction de la position du grain par rapport à l’origine. <b>c)</b> Écarts en angle $\eta$ des pics en fonction de la position du grain et de l’anneau de diffraction. <b>d)</b> Écarts en angle $\eta$ des pics en fonction de la position du grain à l’origine du pic diffracté.....	83
.....	84
<b>Figure 3.12</b> Comparaison de l’angle de diffraction $\omega$ des pics avant et après raffinage. ....	84

<b>Figure 3.13</b> Évolution de la fraction de pics indexés, de nombre de grains suivis au cours de la traction et de l'intensité totale indexée par l'indexation standard (Méthode 1) et l'indexation incrémentale (Méthode 2). .....	87
<b>Figure 3.14</b> Écarts entre les grains indexés par les deux approches différentes d'indexation. <b>a)</b> Écarts en déformation $\varepsilon_{33e}$ . <b>b)</b> Écarts en contrainte $\sigma_{33}$ . <b>c)</b> Écarts en orientation. <b>d)</b> Écarts en position des barycentres des centres de masse. ....	89
<b>Figure 3.15</b> Pics de diffraction collectés à l'état initial (a) puis au cours de la transformation (b : chargement 7). <b>c)</b> Diffractogramme de l'échantillon dans le domaine de transformation (chargement n°7). ....	91
<b>Figure 3.16</b> Positions $(2\theta, \eta)$ des pics indexés, en tenant en compte la position des grains. Les 21 pics interdits par la maille cubique à faces centrées sont marqués par un cercle rouge... ..	92
<b>Figure 3.17</b> Pics indexés à l'austénite au chargement n°8 pour deux valeurs de tolérance : 0,02 (a) et 0,03 (b). ....	93
<b>Figure 3.18</b> Histogramme des écarts de contraintes avant et après enlèvement des pics aberrants, dans la direction de traction au chargement n°8. ....	95
<b>Figure 3.19</b> Corrélation entre le paramètre de maille et la distance radiale $\mathcal{R}$ des grains. ...	96
<b>Figure 3.20</b> Évolution des contraintes dans 187 grains d'austénite en fonction du chargement appliqué. Les contraintes de cisaillement ne sont pas tracées et les contraintes dans les directions 1 et 2 sont légèrement décalées horizontalement pour faciliter la visualisation. ....	97
<b>Figure 3.21</b> Evolution des déformations élastiques et des contraintes dans les grains A1, B1 et C1 en fonction du chargement appliqué. ....	99
<b>Figure 3.22</b> Évolution a) des déformations et b) contraintes dans la direction de traction dans 187 grains d'austénite en fonction du chargement appliqué. ....	102
<b>Figure 3.23</b> Rotation des 187 grains par rapport aux directions 1 (a), 2 (b) et 3 (c). ....	103
<b>Figure 4.1</b> Génération des tessellations de Voronoï à partir d'un ensemble de germes (Czaplicki, 2012). ....	110
<b>Figure 4.2</b> Ecarts à minimiser entre joints de grains expérimentaux (TCD) et numériques (Neper) de l'éprouvette Cu-Al-Be. a) Image de TCD pour une section 2D donnée. b) Cellules équivalentes de tessellations générées par Neper. ....	111
<b>Figure 4.3</b> Description des joints de grains expérimentaux par points de contrôle. (Quey & Renversade, 2018). a) Résolution $r = 15$ (lent). b) $r = 10$ . c) $r = 5$ (rapide). ....	112
<b>Figure 4.4</b> Génération de tessellations Laguerre des 187 grains à partir de la microstructure reconstruite par TCD. a) Image TCD post-traitée du polycristal. b) Tessellations finales. ...	113

<b>Figure 4.5</b>	Résultat final du maillage du volume analysé. a) Maillage complet des 187 grains. b) Visualisation de quelques grains maillés à l'intérieur de l'éprouvette. ....	114
<b>Figure 4.6</b>	Représentation schématique des énergies libres chimiques (Entemeyer, 1996). ...	117
<b>Figure 4.7</b>	Schématisation des choix de chargement et de conditions aux limites. a) Ajout de la matière. b) Déplacement imposé sur les deux extrémités du volume analysé. ....	125
<b>Figure 4.8</b>	Visualisation du calcul par éléments finis à $E33 = 1,08 \%$ . a) Contraintes de Von-Mises dans l'échantillon. b) Fractions volumiques de martensite dans l'échantillon, avec des demi-coupes dans les trois directions du repère universel. ....	127
<b>Figure 4.9</b>	Comparaison entre le comportement superélastique expérimental (tiret bleu continu) et le comportement macroscopique résultant de la simulation numérique. ....	128
<b>Figure 4.10</b>	Comparaison numérique – expérimental de l'évolution de l'état de contraintes dans trois grains de différentes orientations cristallographiques. ....	129
<b>Figure 5.1</b>	Comparaison entre la fraction de martensite obtenue par la MEF et la fraction d'intensité non indexée par 3DXRD. ....	136
<b>Figure 5.2</b>	Évolution des contributions de déformation dans la direction de traction, en fonction de la déformation macroscopique imposée, pour le grain C1. ....	138
<b>Figure 5.3</b>	Évolution des pentes de déformations élastique et de transformation dans les grains en fonction de la déformation imposée. a) Distribution des coefficients de détermination de régression linéaire. b) Comparaison de la pente de la droite $\epsilon_{ii} = f(E33)$ dans le domaine de transformation par rapport au domaine élastique et, pour les 3 composantes diagonales (axiales). La ligne en pointillés est la droite d'équation $y = x$ . ....	139
<b>Figure 5.4</b>	Fraction volumique des variantes individuelles de martensite dans le grain C1. ...	141
<b>Figure 5.5</b>	Cissions résolues des 24 variantes en fonction de la déformation macroscopique. a) par MEF, b) par 3DXRD. ....	143
<b>Figure 5.6</b>	Distribution de la fraction volumique de la variante 11 (a), de la variante 18 (b), de la variante 19 (c) et contraintes de Von-Mises (d) à l'échelle du grain C1. L'image complète du grain est donné à gauche avec une coupe donnée à droite pour visualiser l'intérieur du grain. ....	144
<b>Figure 5.7</b>	Facteur de Schmid apparent (mécanique) des trois variantes activées. ....	145
<b>Figure 5.8</b>	Évolution des fractions volumiques de variantes martensitiques dans le grain A1 (a) et B1 (b) ; ainsi que les cissions résolues moyennes sur le grain B1 obtenues par MEF (c) et par 3DXRD (d). ....	148

<b>Figure 5.9</b>	Orientation cristallographique des 11 grains par rapport à l'axe de traction. ...	150
<b>Figure 5.10</b>	Analyse du comportement des grains A2, B2 et C2 au cours de chargement de traction. a) : Evolution de $\epsilon_{33}$ obtenues par MEF, b) : Evolution de $\sigma_{33}$ obtenues par MEF, c) : Evolution de la fraction volumique de martensite, d) : Evolution de $\sigma_{33}$ obtenues par 3DXRD. .....	153
<b>Figure 5.11</b>	Déformations $\epsilon_{33}$ (a) et contraintes $\sigma_{vm}$ (b) sur les 187 grains à $E_{33} = 1,08\%$ . .....	154
<b>Figure 5.12</b>	Analyse du comportement des grains A2, A3, A4 et A5 au cours de chargement de traction. a) Evolution de la fraction de martensite, b) Evolution de la composante $\sigma_{33}$ obtenue par MEF. ....	155
<b>Figure 5.13</b>	Analyse à l'échelle mésoscopique du comportement moyen des grains austénitiques adjacents aux grains A2 et A4. a) : Evolution de la fraction de martensite, b) : Evolution de $\sigma_{33}$ obtenues par MEF. ....	156
<b>Figure 5.14</b>	Grains A2 et A4 à l'échelle intragranulaire. a) Fraction volumique de martensite $f$ (entre 0 et 1). b) Contrainte de Von-Mises $\sigma_{VM}$ . ....	158
<b>Figure 5.15</b>	Evolution de la fraction volumique moyenne de martensite. a) Dans les grains D1 et D2. b) Dans les grains adjacents de D1 et adjacents de D2. ....	160
<b>Figure 5.16</b>	Visualisation du grain D1, du grain D2 et des grains voisins propres à chacun. .....	161
<b>Figure 5.17</b>	Orientation cristallographique des grains voisins, non communs, de D1 et D2. .....	161
<b>Figure 5.18</b>	Distribution de la fraction de martensite dans le grain D1, le grain D2 et les grains voisins propres à chacun. ....	162
<b>Figure 5.19</b>	Distribution des déformations $\epsilon_{33}$ (b), des contraintes de Von-Mises $\sigma_{VM}$ (c) et de la fraction totale de martensite (d), sur une coupe 2D dans les trois grains D1 – D2 – grain adjacent (a). ....	163
<b>Figure 5.20</b>	Amplitude de rotation des grains A2 – A4 et D2 – D4 en fonction de leur degré de transformation. ....	165
<b>Figure 5.21</b>	Evolution des contraintes $\sigma_{33}$ moyennées sur toute l'éprouvette, sur les grains de surface externe et sur les grains au volume intérieur (cœur de l'éprouvette) selon le calcul MEF. ....	166
<b>Figure 5.22</b>	Effet de la taille du grain sur l'état de contraintes pour des grains de même orientation cristallographique. ....	166

---

**Figure 5.23** Évolution des déformations élastiques  $\varepsilon_{33e}$  (a) et des contraintes  $\sigma_{33}$  (b) moyennées sur toute l'éprouvette, sur les grains de surface externe et sur les grains au volume intérieur (cœur de l'éprouvette) selon les résultats de la 3DXRD. .... 167

## Liste des annexes

Annexes.....	185
Annexe 1    Symboles et conventions de notation.....	186
Annexe 2    Diffractomètre 3DXRD.....	187
Equation du diffractomètre 3DXRD pour un monocristal.....	187
Détermination de la matrice d'orientation d'un monocristal.....	191
Annexe 3    Résultats 3DXRD de l'essai de traction réalisé sur trois éprouvettes différentes. ....	193





# Introduction

De nombreuses applications industrielles ou de la vie quotidienne ont été développées grâce à des matériaux comportant eux-mêmes leurs propres fonctions, c'est-à-dire des matériaux multifonctionnels capables de s'adapter à leur environnement : c'est l'avènement des matériaux « intelligents ». Les alliages à mémoire de forme (AMF), de par leur comportement thermomécanique adaptatif et évolutif, constituent l'une des grandes familles de ces matériaux.

Les matériaux métalliques en général, et les AMF en particulier, développent des champs microstructuraux et mécaniques complexes à l'échelle microscopique lorsqu'ils sont sous sollicitations thermomécaniques macroscopiques. L'optimisation de leurs propriétés mécaniques, de leurs fonctions et de leur tenue en service nécessite donc une bonne compréhension des relations structure-propriétés au sein du matériau et de celle de la genèse des microstructures au cours des différents traitements de mise en œuvre auquel est soumis le matériau pour le transformer en produit.

Les techniques de diffraction sont largement utilisées pour étudier le comportement mécanique des polycristaux ; elles donnent accès aux contraintes induites dans chacune des phases, voire à l'échelle du grain. Les techniques classiques de laboratoire ont toutefois l'inconvénient de fournir une information limitée aux grains situés à la proche surface de l'échantillon. Depuis des dizaines d'années, le développement des grands instruments (neutrons (ILL-1967), synchrotron (ESRF-1994)) a permis d'accéder à des mesures dans le volume de l'échantillon, ce volume allant de quelques millimètres cube au centimètre cube. Depuis le début des années 2000, la microscopie à diffraction des rayons X en 3D (3DXRD en 1995 à HASYLAB et en 1999 à l'ESRF), qui utilise un rayonnement synchrotron de très haute énergie, permet de caractériser le comportement individuel de grains à l'intérieur d'un polycristal massif. La tomographie à contraste de diffraction (TCD), plus récente encore, permet une reconstruction tri-dimensionnelle de la microstructure de l'éprouvette (2010 à l'ESRF).

En parallèle de ces avancées expérimentales, les modèles micromécaniques ont été développés depuis les années 1990 (Patoor, Eberhardt, & Berveiller, 1989) (Huang, & Brinson, 1998) (Siredey, Patoor, Berveiller, & Eberhardt, 1999) : prenant en compte les mécanismes

physiques régissant le matériau aux échelles microscopiques, ils permettent une meilleure prédiction du comportement mécanique d'un polycristal. Ainsi l'effet de l'anisotropie du comportement et/ou des interactions entre grains peut être quantifié. Le couplage de ces modèles avec la simulation par éléments finis permet d'étendre cette approche aux calculs de structure. Ainsi il est possible d'obtenir les champs microstructuraux et mécaniques en tout point d'un grain, et pour tous les grains d'une structure. Toutefois, il y a peu de données expérimentales disponibles pour valider ces modélisations aux échelles fines de la microstructure.

Aussi, dans cette étude, dans un premier temps, les techniques 3DXRD et TCD ont été utilisées. Des méthodologies et des études de sensibilité permettant de prendre en compte l'apparition de la martensite ont été mises au point pour étudier le comportement d'un AMF superélastique au cours d'un essai de traction *in-situ*. Dans un deuxième temps, la microstructure 3D a été digitalisée puis introduite dans un code de calcul par éléments finis pour simuler numériquement ce même essai de traction, et comparer les résultats à différentes échelles, macroscopique, intergranulaire et intragranulaire.

Le premier chapitre de ce mémoire rappelle les caractéristiques générales de la transformation martensitique et du comportement superélastique. Les principales propriétés métallurgiques, cristallographiques, et mécaniques des AMF Cu-Al-Be sont exposées. Il présente également les potentialités des méthodes de diffraction dans le domaine de la mécanique des matériaux, que ce soit en laboratoire ou aux grands instruments ; un accent particulier est mis sur le cas des AMF.

Le second chapitre, également à caractère bibliographique, est consacré à la description des techniques expérimentales de diffraction mises en œuvre. Les spécificités de chacune d'entre elles et leur complémentarité sont exposées, depuis l'échelle macroscopique jusqu'aux hétérogénéités intragranulaires. Enfin, le matériau de l'étude est décrit. Le choix d'un AMF base cuivre, pouvant présenter des tailles de grains de 70  $\mu\text{m}$  à plus de 1 mm selon le traitement thermique subi, permet d'adapter la microstructure aux contraintes expérimentales.

La méthode 3DXRD a été adaptée au cas des AMF qui possèdent une microstructure évolutive : l'apparition d'une seconde phase au cours du chargement, la martensite, modifie le signal de

diffraction. La méthodologie développée est présentée au chapitre 3, ainsi que les premiers résultats expérimentaux.

Dans le chapitre 4, la digitalisation de la microstructure à partir des données expérimentales est explicitée. Le modèle de comportement utilisé pour la prédiction du comportement spécifique du Cu-Al-Be est introduit ; les équations constitutives de la loi de comportement sont détaillées, l'identification des paramètres du matériau ainsi que l'implémentation de cette loi dans un code de simulation par éléments finis. Enfin, une comparaison des résultats expérimentaux et numériques est présentée à l'échelle macroscopique, ainsi qu'à une échelle mésoscopique sur différentes orientations de grains.

Dans le dernier chapitre, le dialogue expérience – simulation illustre l'effet de la microstructure sur le développement de la transformation martensitique dans les AMF. Les résultats de la modélisation sont analysés jusqu'à l'échelle locale microscopique. Le comportement superélastique de l'AMF est alors discuté et interprété en prenant en compte l'effet de facteurs microstructuraux et géométriques (orientation, taille de grains, position du grain dans l'éprouvette, grains voisins).



# 1. Étude bibliographique

1. Étude bibliographique .....	5
Introduction .....	7
1.1 Transformation martensitique dans les alliages à mémoire de forme .....	8
1.1.1 Généralités sur la transformation martensitique.....	8
1.1.2 Thermodynamique de la transformation induite thermiquement.....	11
1.1.3 Transformation martensitique induite par contraintes mécaniques.....	12
1.2 Comportement superélastique des AMF .....	14
1.2.1 Comportements superélastiques du monocristal et du polycristal .....	14
1.2.2 Effets de la microstructure sur le comportement superélastique.....	15
1.2.2.1 Effet de l'orientation cristallographique et de l'anisotropie du polycristal	15
1.2.2.2 Effet de la taille des grains austénitiques – rôle des joints de grains.....	19
1.2.2.3 Effet de localisation (surface libre) et des grains voisins .....	20
1.3 Caractéristiques de l'alliage Cu-Al-Be.....	21
1.4 Techniques de diffraction des rayons-X synchrotron.....	24
1.4.1 La technique de diffraction des rayons-X 3D (3DXRD) .....	24
1.4.2 La tomographie à contraste de diffraction (TCD).....	29
Conclusion.....	33



## Introduction

Les alliages à mémoire de forme (AMF) présentent un comportement très différent des matériaux habituels. Leurs propriétés exceptionnelles, comme l'effet mémoire et la superélasticité, sont étroitement associées aux caractéristiques de la transformation martensitique (TM) dans ces alliages. Les évolutions microstructurales associées à cette transformation jouent un rôle considérable sur la nature des propriétés macroscopiques observées. La caractérisation fine de ces évolutions constitue un enjeu important dans la compréhension des interactions entre microstructures et propriétés.

Dans ce contexte, la mise en œuvre de technique de diffraction permet d'obtenir des informations extrêmement précieuses en ce qui concerne la détection, le dosage des phases et les mesures de déformations.

Ce premier chapitre a pour but de présenter les notions de base sur la TM dans les AMF, le matériau étudié et d'illustrer, à partir d'exemples issus de la bibliographie, les possibilités d'analyses offertes par l'emploi des techniques de diffraction aux grands instruments.

Les deux premières parties sont consacrées à la présentation de quelques notions de base concernant la TM et le comportement superélastique des AMF en fonction des caractéristiques de la microstructure (taille et orientation et voisinage des grains).

Dans la troisième partie de ce chapitre, les principales caractéristiques des AMF de type Cu-Al-Be sont présentées car cet alliage possédant une forte anisotropie est celui qui a été choisi comme support pour cette étude.

La dernière partie est dédiée aux techniques de diffraction utilisées pour caractériser la TM. La mise en œuvre de ces techniques, à différentes échelles, se trouve au cœur du présent mémoire. La présentation des techniques et des méthodes spécifiques pour l'analyse de la microstructure faisant l'objet du chapitre 2, l'accent porte ici sur une présentation de quelques résultats récents en 3DXRD et en tomographie par contraste de diffraction. Chacune de ces techniques permet des d'obtenir des informations à l'échelle du grain.

## 1.1 Transformation martensitique dans les alliages à mémoire de forme

Les AMF sont des alliages qui peuvent après déformation récupérer en partie ou totalement leur forme initiale par le simple fait de chauffer l'échantillon. Leur comportement thermomécanique particulier est dû au fait qu'ils subissent une TM réversible.

### 1.1.1 Généralités sur la transformation martensitique

Historiquement, la TM désigne la transformation de la phase austénite (phase haute température) en martensite (phase basse température) dans des aciers lors d'une trempe. Par extension, ce terme a été repris pour désigner toute transformation de phase ayant un mécanisme analogue.

Guénin définit la transformation martensitique comme étant « une transformation displacive du premier ordre présentant une déformation homogène de réseau cristallographique, constituée principalement par un cisaillement » (Guénin, 1986).

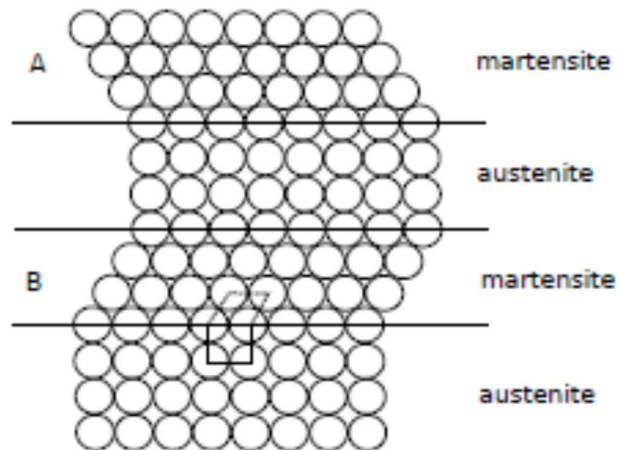
En effet, Les principales caractéristiques de la transformation martensitique sont :

- Transformation displacive : contrairement aux transformations par diffusion, la transformation displacive est régie par un faible déplacement collectif des atomes (de l'ordre d'un dixième de la distance interatomique) sans changer la composition chimique (**Figure 1.1**).
- Transformation de 1<sup>er</sup> ordre (classification actuelle des transitions de phase) : il y a coexistence de l'austénite et de la martensite.
- Déformation homogène par cisaillement : une maille cubique de l'austénite se transforme en maille de martensite de symétrie plus faible par un mécanisme appelé la déformation de Bain (**Figure 1.2**). Les deux phases appartenant à deux systèmes cristallins distincts, il s'en suit une faible variation du volume et une déformation homogène à l'échelle macroscopique, s'effectuant par un mécanisme de cisaillement. L'austénite et la martensite coexistent mais sont séparées par un plan invariant, le plan d'habitat, qui ne subit pas de déformation ou de rotation pendant toute la durée du processus. A l'échelle microscopique, il y a une déformation inhomogène due à la formation de macles pour accommoder les deux réseaux le long du plan d'habitat.

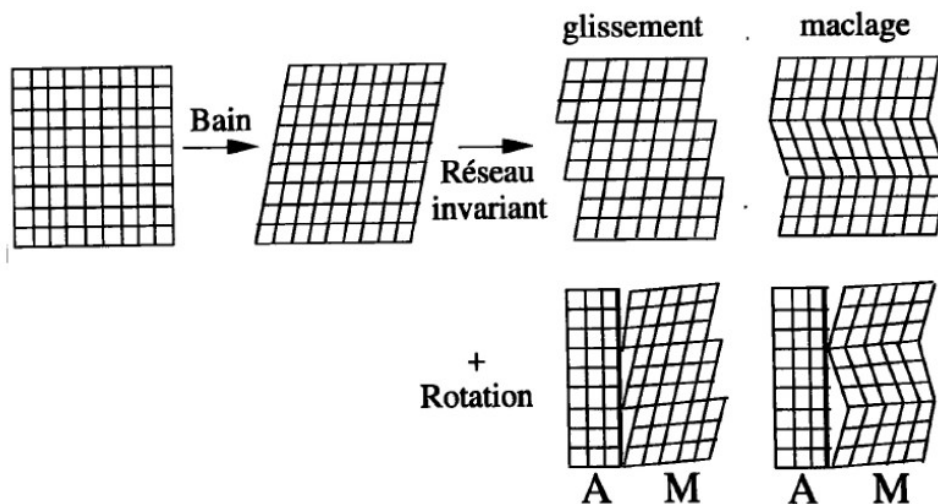


Les **Figure 1.1** et **Figure 1.2** proposent une représentation simplifiée en deux dimensions de cette transformation de phase, à l'échelle de la structure atomique ainsi que sa décomposition à l'échelle microscopique.

La TM génère plusieurs domaines de martensite correspondant à des plans d'habitat et à des cisaillements d'orientation différente, mais équivalents du point de vue cristallographique. Ces domaines martensitiques répartis dans tout l'échantillon sont appelés « variantes ».



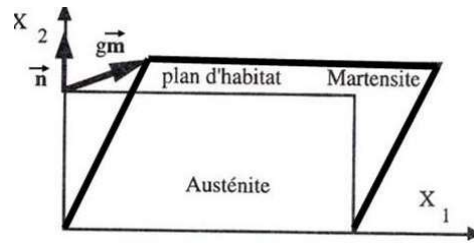
**Figure 1.1** Schéma représentatif de la transformation martensitique à l'échelle atomique (Otsuka & Wayman, 1998).



**Figure 1.2** Schéma de la décomposition d'une transformation martensitique (Entemeyer, 1996).

La **Figure 1.3** schématise la formation d'une variante de martensite et les vecteurs unitaires associés :  $\vec{n}$  étant la normale au plan d'habitat,  $\vec{m}$ , la direction de transformation et  $g$  l'amplitude de la TM.

Le **Tableau 1.1** reporte les composantes des vecteurs  $\vec{n}$  et  $\vec{m}$  des 24 variantes de martensite susceptibles d'être activées dans l'alliage Cu-Al-Be (Kajiwara, 1976) (Baron, 1998).



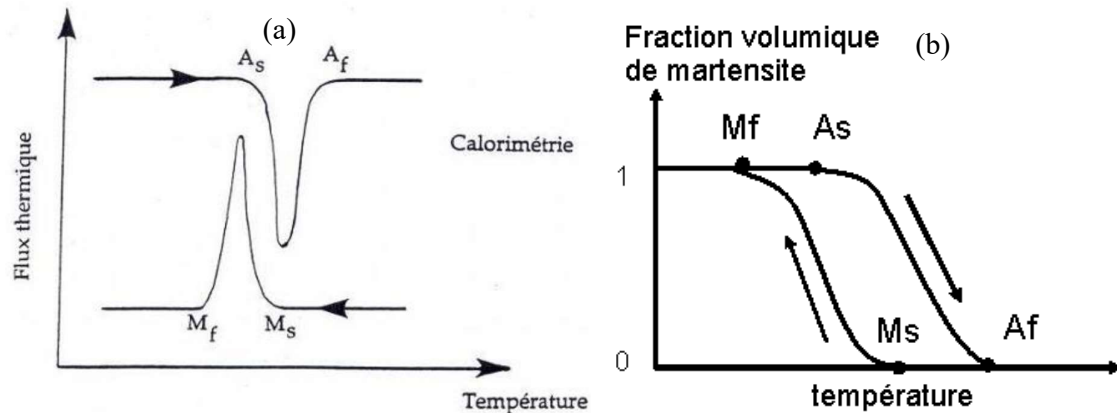
**Figure 1.3** Représentation du plan d'habitat et de la direction de transformation pour une variante de martensite (Patoor & Berveiller, 1994).

**Tableau 1.1** Plans d'habitat  $\vec{n}$  et directions de glissement  $\vec{m}$  des 24 variantes de martensite dans le cas de l'alliage Cu-Al-Be (Kajiwara, 1976) (Baron, 1998).

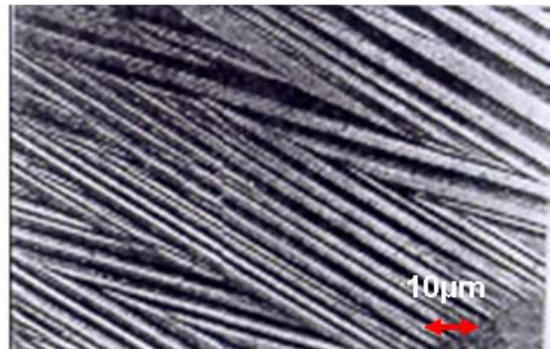
Variante	n1	n2	n3	m1	m2	m3
Var 1	0,1786	0,6628	0,7271	0,1606	-0,7448	0,6476
Var 2	0,1786	0,7771	0,6628	0,1606	0,6476	-0,7448
Var 3	-0,1786	0,6628	0,7271	-0,1606	-0,7448	0,6476
Var 4	-0,1786	0,7271	0,6628	-0,1606	0,6476	-0,7448
Var 5	-0,6628	0,1786	0,7271	0,7448	0,1606	0,6476
Var 6	-0,7271	0,1786	0,6628	-0,6476	0,1606	-0,7448
Var 7	-0,6628	-0,1786	0,7271	0,7448	-0,1606	0,6476
Var 8	-0,7271	-0,1786	0,6628	-0,6476	-0,1606	-0,7448
Var 9	0,1786	-0,6628	0,7271	0,1606	0,7448	0,6476
Var 10	0,1786	-0,7271	0,6628	0,1606	-0,6476	-0,7448
Var 11	-0,1786	-0,6628	0,7771	-0,1606	0,7448	0,6476
Var 12	-0,1786	-0,7271	0,6628	-0,1606	-0,6476	-0,7448
Var 13	0,7271	0,1786	0,6628	0,6476	0,1606	-0,7448
Var 14	0,6628	0,1786	0,7271	-0,7448	-0,1606	0,6476
Var 15	0,7271	-0,1786	0,6628	0,6476	-0,1606	-0,7448
Var 16	0,6678	-0,1786	0,7271	-0,7448	-0,1606	0,6476
Var 17	0,6628	-0,7271	-0,1786	-0,7448	-0,6476	-0,1606
Var 18	0,7271	-0,6628	-0,1786	0,6476	0,7448	-0,1606
Var 19	-0,6628	0,7271	-0,1786	0,7448	0,6476	-0,1606
Var 20	-0,6476	0,6628	-0,1786	-0,6476	-0,7448	-0,1606
Var 21	-0,7271	-0,6628	-0,1786	-0,6476	0,7448	-0,1606
Var 22	-0,6628	-0,7271	-0,1786	0,7448	-0,6476	-0,1606
Var 23	0,7271	0,6628	-0,1786	0,6476	-0,7448	-0,1606
Var 24	0,6628	0,7271	-0,1786	-0,7448	0,6476	-0,1606

### 1.1.2 Thermodynamique de la transformation induite thermiquement

Dans un état libre de contrainte mécanique, la TM se produit par refroidissement depuis la phase austénitique, à partir d'une température  $M_s$  (Martensite start) et se poursuit jusqu'à la température  $M_f$  (Martensite finish) pour laquelle le matériau est totalement martensitique.



**Figure 1.4** Comportement d'hystérésis dans les AMF (a) Détermination des températures de transformation par DSC. (b) Evolution de la TM directe et inverse, en fonction de la température (Baron, 1998).



**Figure 1.5** Variantes auto-accommodantes de martensite induites par refroidissement (Patoor & Berveiller, 1994).

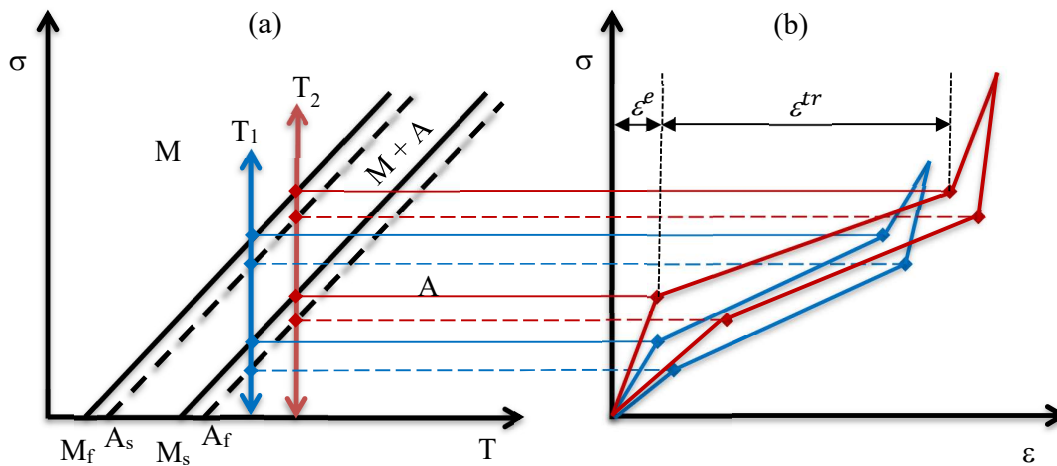
Le comportement d'hystérésis et la détermination des températures de transformation sont représentés dans la **Figure 1.4**. Au chauffage, la transformation est réversible : les températures  $A_s$  (Austenite start) et  $A_f$  (Austenite finish) sont supérieures aux températures  $M_f$  et  $M_s$  respectivement. L'effet d'hystérésis ( $A_f \neq M_s$  et  $M_f \neq A_s$ ) est dû au caractère dissipatif de la transformation martensitique, qui s'effectue par un processus de germination et de croissance avec une interface qui sépare les deux phases nécessitant une énergie supplémentaire (force motrice non nulle). Le système a donc besoin d'un sur-refroidissement pour déclencher la

transformation directe (ou un surchauffage pour la transformation inverse), par rapport à la température d'équilibre thermodynamique.

Lorsque la martensite est induite uniquement par refroidissement, les variantes se forment de façon à minimiser l'énergie de déformation. Il en résulte une structure auto-accommodée (**Figure 1.5**), dont les variantes s'organisent pour obtenir une déformation macroscopique globale nulle. Les 24 variantes possibles de martensite sont équiprobables en l'absence de chargement mécanique imposé.

### 1.1.3 Transformation martensitique induite par contraintes mécaniques

De par son caractère displacif, la TM peut aussi être induite sous l'action d'une contrainte externe. Les températures  $M_s^\sigma$ ,  $M_f^\sigma$ ,  $A_s^\sigma$  et  $A_f^\sigma$  seront décalées suivant la loi de Clausius-Clapeyron (Clapeyron, 1834) qui permet de déterminer un diagramme d'état comme le montre la **Figure 1.6**.



**Figure 1.6** Diagramme d'état contrainte-température dans les AMF (a) et effet de la température (b).  $\epsilon^e$  : déformation élastique,  $\epsilon^{tr}$  : déformation de transformation.

Quand la TM est induite par la contrainte, on observe la formation préférentielle de certaines variantes seulement : les efforts externes agissent donc de façon à favoriser la croissance des variantes les mieux orientées vis-à-vis du chargement.

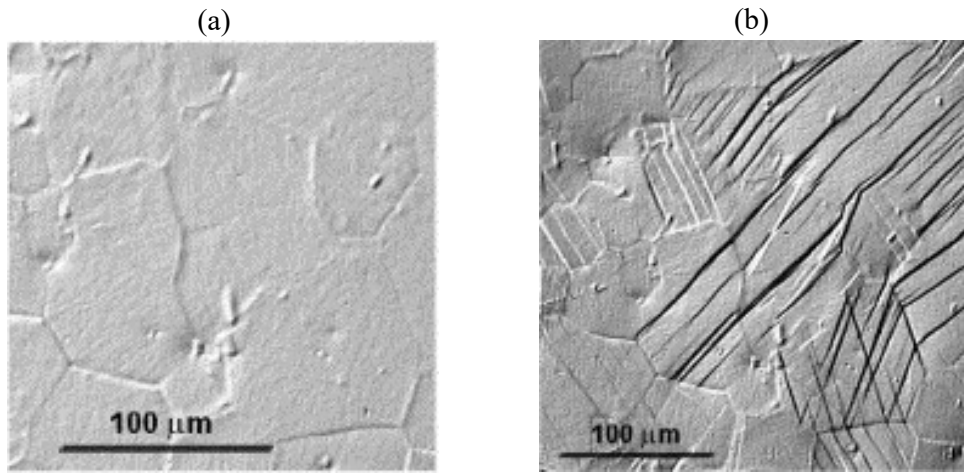
La **Figure 1.7** montre un exemple de micrographie avec des variantes de martensite activées par contrainte dans un alliage Ni-Ti.

En effet, une variante  $n$  de martensite apparaît sous l'effet d'un tenseur de contraintes mécaniques  $\underline{\underline{\sigma}}$  si la « cission résolue »  $\tau^n$  (aussi notée  $\sigma_{r_{ss}}^n$ ) de cette variante atteint une valeur cission résolue critique  $\tau_c$ . La cission résolue est définie comme suit :

$$\tau^n = \sum_{i,j} R_{ij}^n \sigma_{ij} \quad (1.1)$$

où  $\underline{\underline{R}}^n$  est le tenseur de Schmid symétrique de la variante  $n$ , défini à partir de ses vecteurs  $\vec{n}$  et  $\vec{m}$  par :

$$R_{ij}^n = \frac{1}{2}(n_i m_j + n_j m_i) \quad (1.2)$$



**Figure 1.7** Transformation martensitique induite par contrainte dans un AMF Ni-Ti. (a) État initial 100% austénitique. (b) Variantes de martensite à 2% de déformation macroscopique (Brinson, Schmidt, & Lammering, 2004).

La cission résolue de l'équation (1.1) s'écrit, dans le cas d'un chargement uniaxial dans la direction 3  $\Sigma_{33}$  appliqué sur un monocristal, par la loi de Schmid :

$$\tau^n = \cos\phi_n \cos\lambda_n \Sigma_{33} \quad (1.3)$$

où  $\phi_n$  désigne l'angle entre l'axe de la contrainte externe appliquée  $\Sigma_{33}$  et la normale au plan d'habitat de la variante  $n$ , et  $\lambda_n$  l'angle entre l'axe de la contrainte appliquée et la direction de transformation.

L'amplitude du cisaillement dépend donc du facteur  $\cos\phi_n \cos\lambda_n$ , appelé facteur de Schmid, propre à chaque variante. En augmentant la contrainte appliquée progressivement à partir de zéro, la contrainte de cisaillement critique  $\tau_c$  (cission critique donnée par la loi de Clausius-

Clapeyron) à partir de laquelle il y a transformation sera atteinte **en premier par la variante ayant le plus grand facteur de Schmid**, provoquant ainsi l'activation de cette variante bien orientée.

## 1.2 Comportement superélastique des AMF

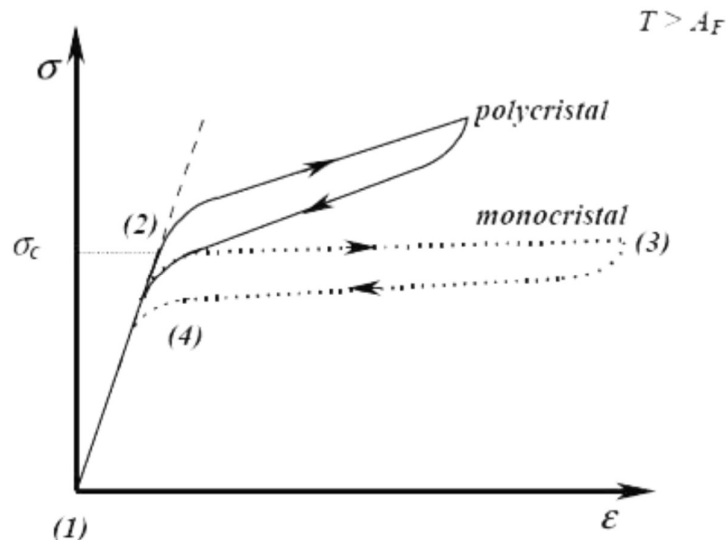
Du fait que la TM peut être induite thermiquement ou par chargement mécanique isotherme, différents comportements thermoélastiques peuvent être distingués dans les AMF selon le chargement thermomécanique appliqué, notamment :

- l'effet mémoire simple sens,
- l'effet mémoire double sens,
- l'effet superélastique.

Dans ce qui suit, nous nous intéresserons exclusivement au comportement superélastique dans les AMF.

### 1.2.1 Comportements superélastiques du monocristal et du polycristal

La superélasticité se produit en phase austénitique lorsque l'AMF est soumis à une contrainte mécanique à température constante. La **Figure 1.8** montre le comportement superélastique du monocristal et du polycristal lors d'un essai de traction charge-décharge.



**Figure 1.8** Comportement superélastique du monocristal et du polycristal.

Initialement, le matériau est à l'état austénitique. L'application d'une contrainte produit une déformation élastique de la phase austénitique (stade 1-2). Le début de la TM se manifeste par

l'apparition du point d'écoulement sur la courbe de traction. La contrainte à ce point est nommée contrainte critique  $\sigma_c$  ou contrainte de début de transformation. L'augmentation de la contrainte produit la croissance des variantes de martensite bien orientées par rapport à cette contrainte (variante ayant le facteur de Schmid le plus élevé). La transformation s'accompagne d'une importante déformation de l'échantillon (stade 2-3) qui peut atteindre 3-5% pour un polycristal et 10% pour un monocristal.

Le relâchement de la contrainte conduit à la transformation inverse : la martensite, hors équilibre thermodynamique ( $T > A_f$ ), se transforme en austénite avec une hystérésis en contrainte. Les contraintes de début et de fin de transformation inverse diffèrent des contraintes de début et de fin de transformation directe (stade 3-4). L'échantillon reprend sa forme initiale lorsque toute la martensite s'est retransformée en austénite (stade 1).

Pour un monocristal, une contrainte externe privilégie la variante la mieux orientée. Ceci conduit à une déformation réversible de l'ordre de 10% pour les Cu-Al-Be (Entemeyer, 1996).

Dans un polycristal, même si l'on peut également définir des variantes bien orientées pour chacun des grains, celles-ci ne transforment pas complètement l'échantillon. Gênée par la structure granulaire du polycristal, la TM engendre un champ de contrainte inter et intra granulaire, d'où, une déformation de transformation plus faible (3 à 5%) et une pente de contrainte plus prononcée pour le polycristal, en comparaison au monocristal.

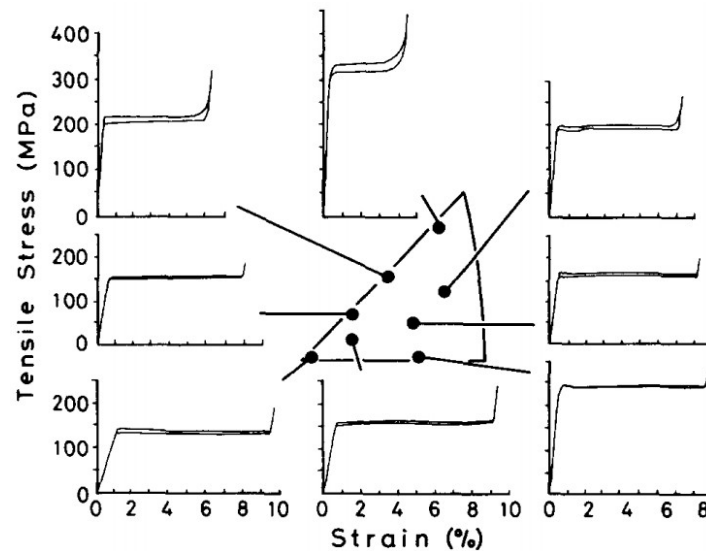
## **1.2.2 Effets de la microstructure sur le comportement superélastique**

Nous avons vu précédemment que, contrairement au cas du monocristal, la déformation macroscopique de transformation dans un polycristal est limitée du fait de l'interaction entre joints de grains de différentes orientations et variantes de martensite. Cet effet de pseudo-écrouissage, beaucoup moins présent dans un monocristal, est donc fortement relié à la microstructure du polycristal (morphologie, taille et orientation des grains, interaction avec les orientations adjacentes, surface libre, etc.). Dans ce qui suit, nous nous intéresserons aux effets de la microstructure sur le comportement des AMF à différentes échelles.

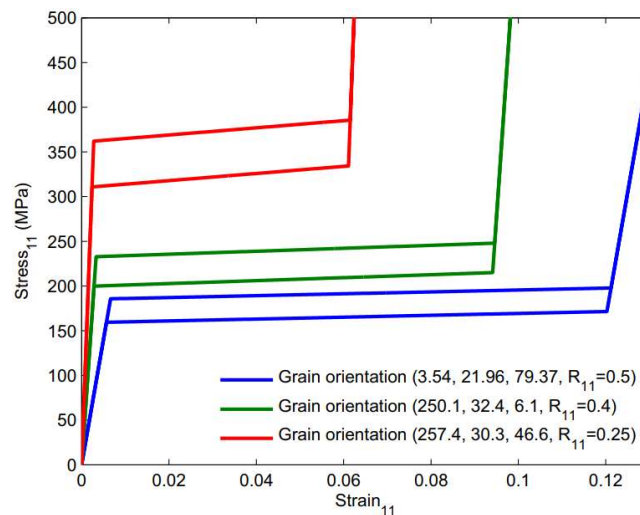
### **1.2.2.1 Effet de l'orientation cristallographique et de l'anisotropie du polycristal**

La TM implique une force motrice de cisaillement sur les plans invariants et un travail fourni pour déplacer les interfaces austénite / martensite. La croissance privilégiée de certaines variantes lors de la transformation induite par contraintes isothermes permet justement de

minimiser l'apport d'énergie nécessaire à ce processus. Par conséquent, le comportement superélastique est fortement lié à ces aspects cristallographiques qui définissent la thermodynamique de la transformation. L'orientation cristallographique par rapport aux contraintes agit donc fortement sur les contraintes de transformation et son hystérésis ainsi que sur la déformation totale macroscopique obtenue. Dans la littérature, cet effet d'orientation est largement étudié expérimentalement et modélisé également dans les lois de comportement.



**Figure 1.9** Comportement superélastique dans un monocristal de Cu-Al-Ni (Horikawa, Ichinose, Morii, Miyazaki, & Otsuka, 1988).



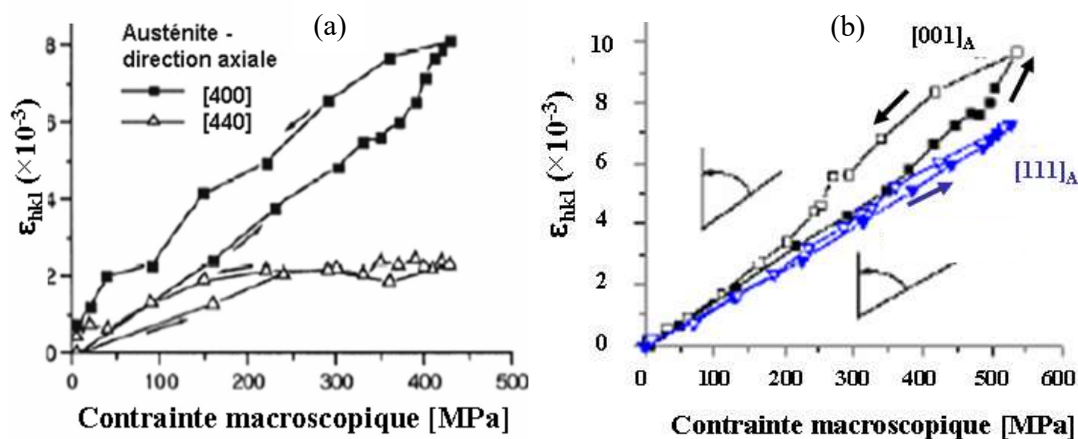
**Figure 1.10** Modélisation du comportement superélastique d'un alliage Cu-Al-Be monocristallin (Merzouki, 2008).



Par exemple, un comportement superélastique sensible à l'orientation cristallographique a été observé dans les travaux d'Horikawa (**Figure 1.9**) sur des monocristaux de Cu-Al-Ni (Horikawa, Ichinose, Morii, Miyazaki, & Otsuka, 1988).

De même, cet effet a été reproduit numériquement (**Figure 1.10**) à partir d'un modèle thermodynamique micromécanique de comportement du monocristal (Patoor, Eberhardt, & Berveiller, 1996) (Siredey, Patoor, Berveiller, & Eberhardt, 1999) (Collard, Zineb, Patoor, & Salah, 2008), implémenté dans un code de calcul par la méthode des éléments finis (Merzouki, 2008).

Grace à des mesures in-situ par diffraction des neutrons, les travaux de Sittner et al. ont suivi les déformations, en moyenne sur des polycristaux cette fois-ci, pour des AMF Cu-Al-Zn-Mn (Sittner P. , Lukas, Neov, Novak, & Swallowe, 2002) et Ni-Ti (Sittner P. , Lukas, Daymond, Novak, & Swallowe, 2004) lors d'une traction uniaxiale.



**Figure 1.11** Effet de l'orientation sur le comportement élastique dans un polycristal de Cu-Al-Zn-Mn (a) (Sittner P. , Lukas, Neov, Novak, & Swallowe, 2002) et un polycristal Ni-Ti (b) (Sittner P. , Lukas, Daymond, Novak, & Swallowe, 2004).

Pour l'alliage Cu-Al-Zn-Mn (**Figure 1.11(a)**), en moyenne sur l'échantillon, les grains ayant une direction [400] proche de la direction de traction se déforment plus facilement que les grains d'orientation [440] ; cela met en évidence l'anisotropie cristalline de cet AMF. L'état de déformation locale est clairement dépendant de l'orientation du grain ; il s'ensuit que le comportement macroscopique dépend, entre autres, de la distribution des orientations dans le polycristal. La **Figure 1.11(b)** montre que ce même effet est observé dans les AMF Ni-Ti mais qu'il est beaucoup moins prononcé que dans l'alliage à base de cuivre. L'anisotropie élastique de l'alliage Cu-Al-Zn-Mn est bien supérieure à celle de l'alliage Ni-Ti.

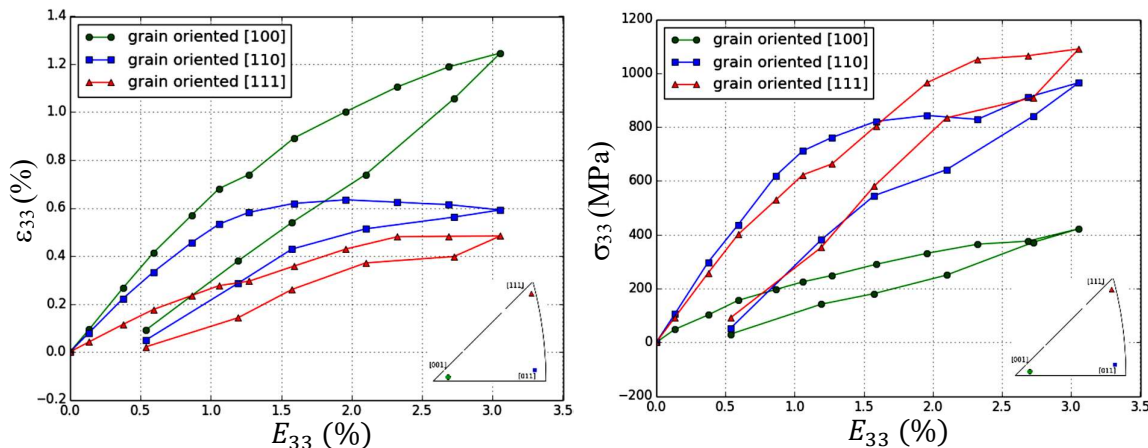
Cet effet de l'orientation et de la forte anisotropie élastique ont été également étudiés dans un AMF Cu-Al-Be par la diffraction des rayons X synchrotron (El Hachi, Malard, Berveiller, & Wright, 2015).

Comme le montre la **Figure 1.12**, le grain d'orientation proche de  $[100]$  par rapport à l'axe de traction est nettement moins rigide que les grains orientés  $[110]$  et  $[111]$ . Cette orientation constitue une orientation de facile déformation et de facile transformation dans les AMF Cu-Al-Be ; elle est caractérisée par un facteur de Schmid élevé.

Ainsi, une forte anisotropie est observée dans l'alliage Cu-Al-Be. Le coefficient d'anisotropie élastique peut être calculé à partir des constantes d'élasticité suivant la formule de Zener (Zener, 1948) :

$$a = 2C_{44}/(C_{11} - C_{12}) \quad (1.4)$$

Pour cet alliage Cu-Al-Be, les constantes élastiques de l'austénite sont  $C_{11} = 141,6$  GPa,  $C_{12} = 127,4$  GPa et  $C_{44} = 94,2$  GPa (Rios-Jara, Belkahla, Canales, Flores, & Guénin, 1991). Cela donne un coefficient d'anisotropie élevé  $a = 13,3$ .



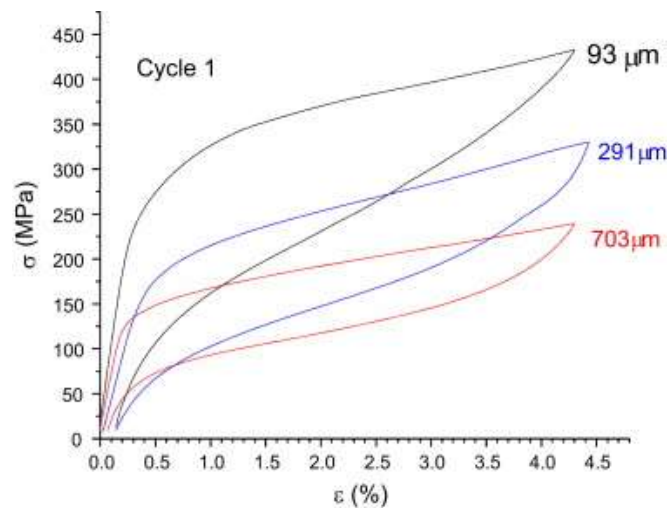
**Figure 1.12** Évolution de la déformation élastique (a) et des contraintes internes (b) dans l'austénite suivant la direction de traction, en fonction de la déformation macroscopique, à l'échelle de 3 grains au cours d'un essai de traction sur un polycristal Cu-Al-Be (El Hachi, Malard, Berveiller, & Wright, 2015).

L'effet de l'orientation et la forte anisotropie élastique augmentent l'hétérogénéité de comportement du polycristal.

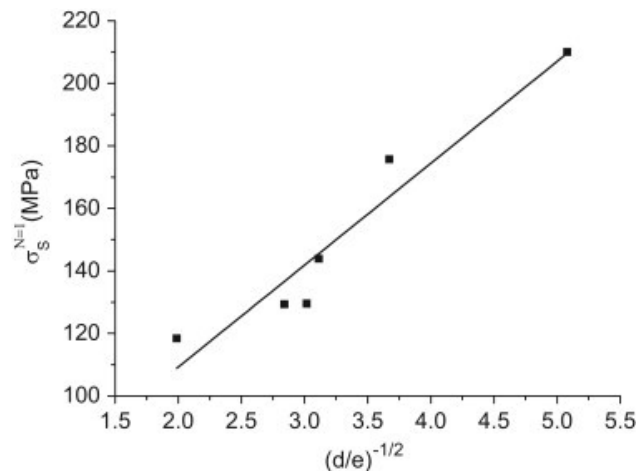
### 1.2.2.2 Effet de la taille des grains austénitiques – rôle des joints de grains

La TM dans les AMF se développe par la croissance et la propagation des micro-macles dans les grains d'austénite et grain à grain. La taille des grains et la distribution des joints de grains pourraient alors influencer le mécanisme de la transformation.

L'effet de la taille des grains a été étudié par Montecinos et al. dans un AMF Cu-Al-Be (Montecinos, Cuniberti, & Sepulveda, 2008) (Montecinos & Cuniberti, 2014) et également par les travaux de Sade et al. sur le même alliage de Cu-Al-Be (Sade, de Castro Bubani, Lovey, & Torra, 2014).



**Figure 1.13** Effet de la taille des grains sur le comportement superélastique du Cu-Al-Be (Sade, de Castro Bubani, Lovey, & Torra, 2014).



**Figure 1.14** Contrainte critique de début de transformation, en fonction de la taille des grains (Sade, de Castro Bubani, Lovey, & Torra, 2014). d : taille de grains. e : largeur de l'éprouvette.

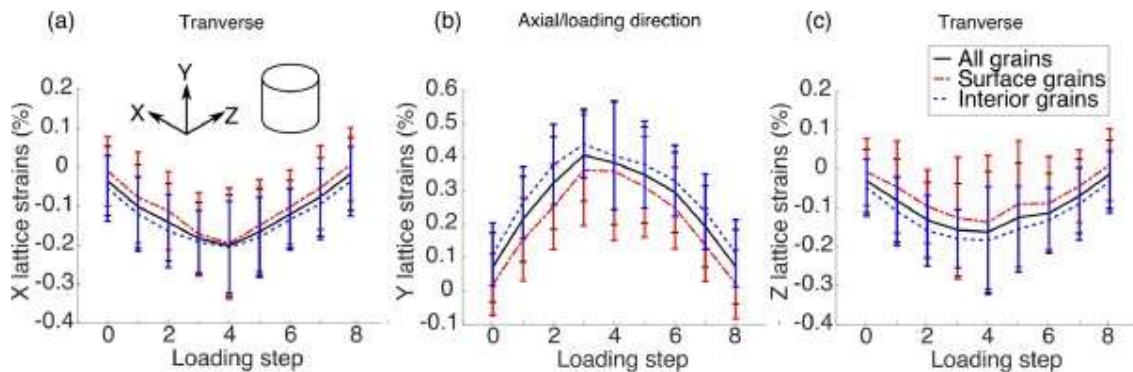
On observe sur les courbes de traction de la **Figure 1.13** que l'état de contraintes et le durcissement (pseudo-écrouissage) augmentent quand la taille des grains diminue. Plus la taille des grains est petite, plus importante sera l'énergie de déformation requise afin de fournir suffisamment de travail mécanique nécessaire à la création et la croissance de la martensite (surmonter la résistance du réseau cristallin et l'énergie des joints de grains).

Les travaux de Montecinos et ceux de Sade ont mis en évidence un effet Hall-Petch (Hall, 1951) dû au fait que les joints de grains agissent comme barrière à la propagation du cisaillement d'un grain à un autre. La droite de régression linéaire, représentée dans la **Figure 1.14**, indique un comportement Hall-Petch dans les alliages Cu-Al-Be.

Le même effet a été mis en évidence dans d'autres AMF à base de cuivre tels que le Cu-Al-Ni et le Cu-Zn-Al (Sommerday, Wert, & Comstock, 1997).

### 1.2.2.3 Effet de localisation (surface libre) et des grains voisins

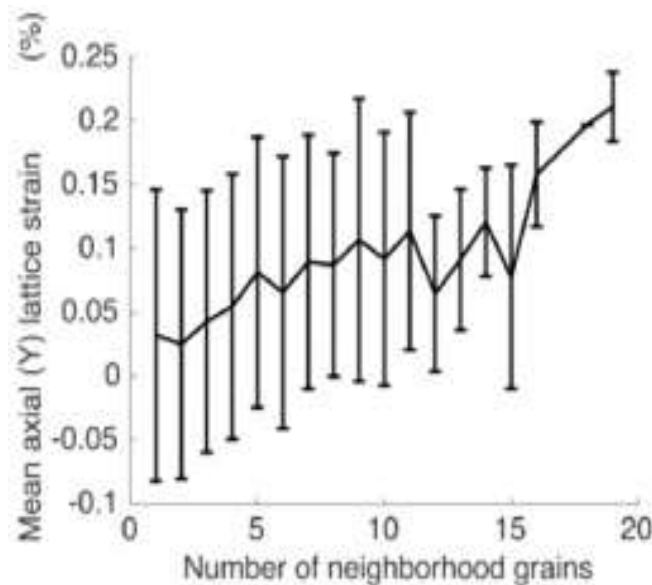
Pour déterminer l'effet de la surface libre et des grains voisins sur l'hétérogénéité de comportement dans les AMF, Paranjape et al. ont travaillé sur un AMF Ni-Ti en utilisant un montage de diffraction 3DXRD *in-situ* à champ éloigné et aux hautes énergies de synchrotron (Paranjape, et al., 2017). Les déformations dans la direction de chargement et les directions transverses ont été analysées pour les grains au cœur de l'éprouvette et ceux en sa périphérie.



**Figure 1.15** Effet de la localisation des grains dans l'éprouvette sur le comportement superélastique de l'alliage Ni-Ti dans un cycle charge – décharge (Paranjape, et al., 2017).

La **Figure 1.15** montre que les grains en surface, en moyenne, se déforment moins que les grains en volume, à chaque pas de chargement. Les grains en volume subissent davantage de contraintes que les grains en surface libre car la déformation transverse dans les grains en surface libre de l'éprouvette est due uniquement à l'effet de Poisson (relaxation de contraintes en surface libre).

Les travaux de Paranjape et al. ont montré également une corrélation entre la déformation axiale des grains et le nombre de grains voisins. Un critère de distance entre la position des centres de masse des grains a été utilisé pour estimer le nombre de grains adjacents à chaque grain individuel d'austénite (Paranjape, et al., 2017). La déformation dans la direction de traction est, en moyenne, supérieure pour les grains ayant un nombre élevé d'orientation voisine (**Figure 1.16**). Cependant, ces mesures sont moyennées sur plusieurs grains et ne donnent pas d'information sur les effets couplés de la microstructure de l'austénite (orientation, localisation et tailles des grains), ni sur les hétérogénéités intergranulaires à une échelle plus fine.



**Figure 1.16** Corrélation entre la déformation axiale d'un grain et le nombre de ses grains voisins (Paranjape, et al., 2017).

### 1.3 Caractéristiques de l'alliage Cu-Al-Be

Les alliages Cu-Al sont l'une des trois grandes familles d'alliages à base de cuivre, avec les alliages Cu-Zn et Cu-Sn. Pour l'alliage binaire Cu-Al (l'eutectoïde est à 11,6% massique d'Al), la température  $M_s$  de début de transformation directe se situe vers 400°C comme le montre le diagramme d'équilibre Cu-Al reporté sur la **Figure 1.17**.

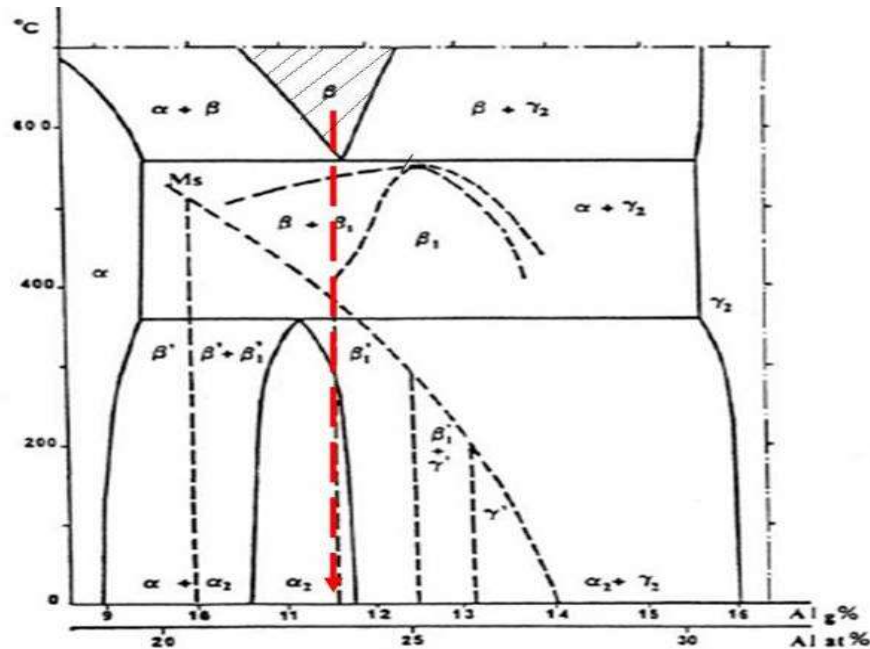
L'ajout d'un troisième élément, tel que le béryllium, en faibles quantités permet de baisser fortement la température de transformation  $M_s$  de l'alliage Cu-Al sans modifier ses autres propriétés.

Une relation linéaire entre  $M_s$  et la composition de l'alliage a été établie (Belkahla, 1990) :

$$M_s(^{\circ}\text{C}) = 1245 - 71\% \text{Al} - 893\% \text{Be} \quad (1.5)$$

Pour l'alliage eutectoïde par exemple (11,6% en masse d'Al), et un taux de Be de 0,6% massique, la température de transformation  $M_s$  est de l'ordre de  $-114^{\circ}\text{C}$ . C'est un alliage 100% austénitique à la température ambiante.

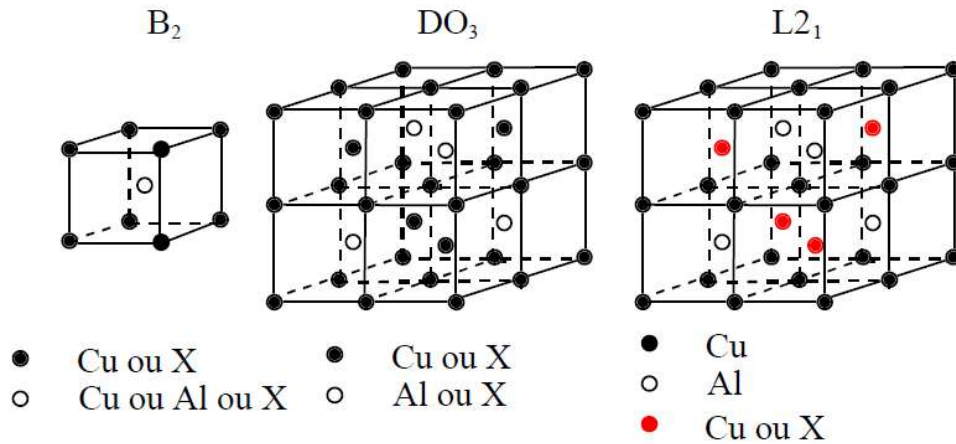
Le diagramme d'équilibre de la **Figure 1.17** montre quatre phases d'équilibre ( $\beta$ ,  $\alpha$ ,  $\alpha_2$ , et  $\gamma_2$ ) ainsi que quatre phases métastables ( $\beta_1$ ,  $\beta'$ ,  $\beta'_1$ ,  $\gamma'$ ).



**Figure 1.17** Diagramme d'équilibre de l'alliage Cu-Al (Belkahla, 1990)

- La phase austénite  $\beta$  (phase désordonnée à haute température) est de structure cubique centrée. En fonction de la composition chimique de l'alliage, cette phase peut subir des transitions d'ordre atomique différentes pour avoir une structure ordonnée :
  - Ordre  $B_2$  (du type CsCl)
  - Ordre  $DO_3$  (du type  $\text{Fe}_3\text{Al}$ )
  - Ordre Heusler  $L2_1$  (du type  $\text{Cu}_2\text{AlMn}$ ).
- La phase  $\alpha$  est une phase très malléable, de structure cubique à phase centrée, qui se forme soit à partir de la phase liquide, soit par décomposition de la phase  $\beta$  ( $\beta \rightarrow \alpha + \gamma_2$ ). Son paramètre de maille évolue en fonction de la composition et sa dureté augmente avec la teneur en aluminium.

- La phase  $\gamma_2$  a une structure ordonnée cubique complexe. C'est une phase dure et très fragile qui confère de mauvaises propriétés mécaniques à l'alliage. Tout comme la phase  $\alpha$ , la phase  $\gamma_2$  se forme à partir de l'état liquide ou par décomposition de la phase  $\beta$ .



**Figure 1.18** Ordres atomiques des alliages Cu-Al-X (Baron, 1998).

D'autre part, la martensite se présente sous plusieurs structures compactes en fautes d'empilement ( $\alpha'$ ,  $\beta'$ ,  $\beta'_1$ ,  $\gamma'_1$ ), selon la composition chimique et le chargement thermomécanique imposé (**Figure 1.18**). Ces structures sont classifiées en fonction de la périodicité des plans compacts et fautes d'empilement selon la nomenclature de Ramsdell (Ex : 3R, 9R, 2H). L'ordre DO<sub>3</sub> ou L2<sub>1</sub> de la phase mère  $\beta$  étant hérité par la martensite  $\beta'$ . Cette dernière peut apparaître sous forme plus complexe avec des fautes d'empilement doublées ( $\beta'$  de structure 9R ou  $\beta'_1$  de structure 18R). Le **Tableau 1.2** résume les phases de martensite et leur structure cristallographique.

**Tableau 1.2** Symétrie de la maille unitaire des phases martensitiques des AMF Cu-Al

Martensite	Classification de Ramsdell	Maille
$\alpha'$	6R	Orthorhombique
$\beta'$	9R	Orthorhombique
$\beta'$	M9R	Monoclinique
$\beta'_1$	18R	Orthorhombique
$\beta'_1$	M18R	Monoclinique
$\gamma'_1$	2H	Hexagonale compacte

## 1.4 Techniques de diffraction des rayons-X synchrotron

Les techniques de caractérisation par rayons X se sont imposées en tant qu'outil incontournable dans l'étude de la matière. Les différentes interactions « rayons-X – matière » (diffraction, absorption, magnétisme, etc.) sont utilisées dans des domaines aussi divers tels que la physique, la science des matériaux et la biologie. Le développement des sources de rayons X a permis de générer des rayonnements de plus en plus intenses, notamment dans les dernières générations des grands instruments de synchrotron.

En effet, les rayons X du rayonnement synchrotron ont des niveaux d'énergie pouvant atteindre plus de 750 keV. Ces niveaux permettent une pénétration du faisceau meilleure que celle des rayons X conventionnels de laboratoire, où le niveau d'énergie est de l'ordre de 8 keV en général avec des tubes cathodiques de cuivre (parfois jusqu'à 20 keV avec une cathode en molybdène). En science des matériaux, les techniques d'imagerie et de diffraction au rayonnement synchrotron ont permis donc de lever plusieurs contraintes liées à la radiocristallographie conventionnelle de laboratoire et ont offert de nouvelles possibilités pour la caractérisation tridimensionnelle, in-situ, en volume et non destructive des matériaux.

Dans ce sens, des techniques de diffraction des rayons-X à haute énergie telles que la 3DXRD et la Tomographie à Contraste de Diffraction (TCD) ont été développées sur des lignes de lumière des grands instruments synchrotron. Ces deux techniques sont présentées en détail dans le chapitre 2 de ce mémoire. Dans le paragraphe suivant, l'accent est sur des exemples de travaux impliquant la 3DXRD et la TCD.

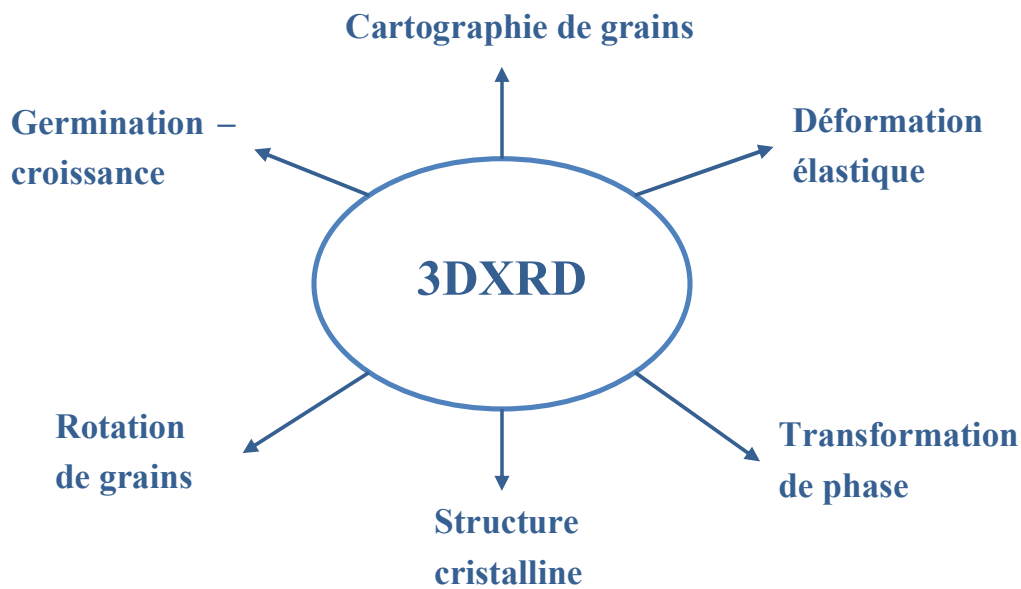
### 1.4.1 La technique de diffraction des rayons-X 3D (3DXRD)

Le principe de la caractérisation des matériaux cristallins en 3D, par la méthode dite 3DXRD, a été décrit pour la première fois en 1995 (Poulsen & Jensen, 1995). Le développement de cette technique a ensuite été entrepris notamment sur les lignes de lumière HASYLAB à Hambourg, à l'ESRF de Grenoble et au laboratoire Risø au Danemark. Le premier microscope 3DXRD opérationnel, dédié aux sciences des matériaux, a vu le jour en 1999 et a été mis au service des utilisateurs sur la ligne de lumière « ID11 » de l'European Synchrotron Radiation Facility (ESRF, Grenoble). (Poulsen H. F., 2004).

La microscopie 3DXRD a été utilisée dans plusieurs montages fournissant ainsi un large champ d'applications, que ce soit dans le domaine médico-pharmaceutique (caractérisation des



nouvelles molécules et substances chimiques) ou dans la science des matériaux (Jensen & Poulsen, 2012). La **Figure 1.19** présente quelques exemples d'applications de la 3DXRD.

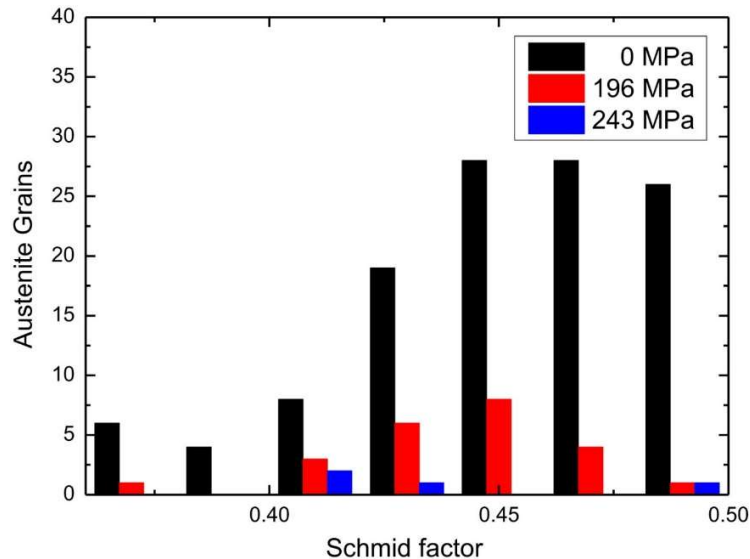


**Figure 1.19** Applications type de la microscopie 3DXRD (Jensen & Poulsen, 2012)

La technique 3DXRD a été appliquée notamment dans l'étude des transformations de phases ainsi que la cinétique germination/croissance. En effet, Iqbal et al. ont pu observer en temps réel la germination et croissance de grains lors de la solidification d'un alliage d'aluminium en utilisant un montage de 3DXRD (Iqbal, et al., 2005). Offerman et al. ont utilisé un montage in-situ 3DXRD pour caractériser la transformation de phase  $\gamma \rightarrow \alpha$  dans les aciers à faibles taux de carbone (Offerman, et al., 2004). Cette étude a permis d'observer que l'énergie d'activation, pour la germination de la ferrite, est plusieurs fois moins élevée que ce que postule la théorie de germination. Les implications de ce résultat sur les modèles de transformations de phases sont largement discutées dans la littérature et ont fait l'objet de plusieurs travaux (Offerman, et al., 2004) (Yang & Enomoti, 2005) (Aaronson, Lange, & Purdy, 2004).

La TM fait également l'objet de multiples travaux basés sur la microscopie 3DXRD. Par exemple, Blondé et al. ont étudié la stabilité mécanique des aciers TRIP (plasticité induite par transformation) en utilisant l'installation 3DXRD de la ligne de lumière ID11 de l'ESRF (Blondé, et al., 2012) (Blondé, et al., 2014). L'évolution du nombre de grains austénitiques a été suivie en fonction de l'orientation (facteur de Schmid) et de la contrainte de traction appliquée.

En comparant le nombre de grains d'austénite à 0 MPa et à 196 MPa, on observe que la transformation prend lieu préférentiellement dans les grains ayant un facteur de Schmid élevé. Tous les grains austénitiques dont le facteur de Schmid est supérieur à 0,43 sont transformés, à 243 MPa de contrainte appliquée, à part un seul grain ayant un facteur de Schmid de 0,49. La non-transformation de ce grain suggère que la stabilité des grains austénitiques ne dépend pas seulement de leur facteur de Schmid, leur taille et leur teneur en carbone, mais aussi de la résistance au flux plastique dans les grains environnants (Blondé, et al., 2014).



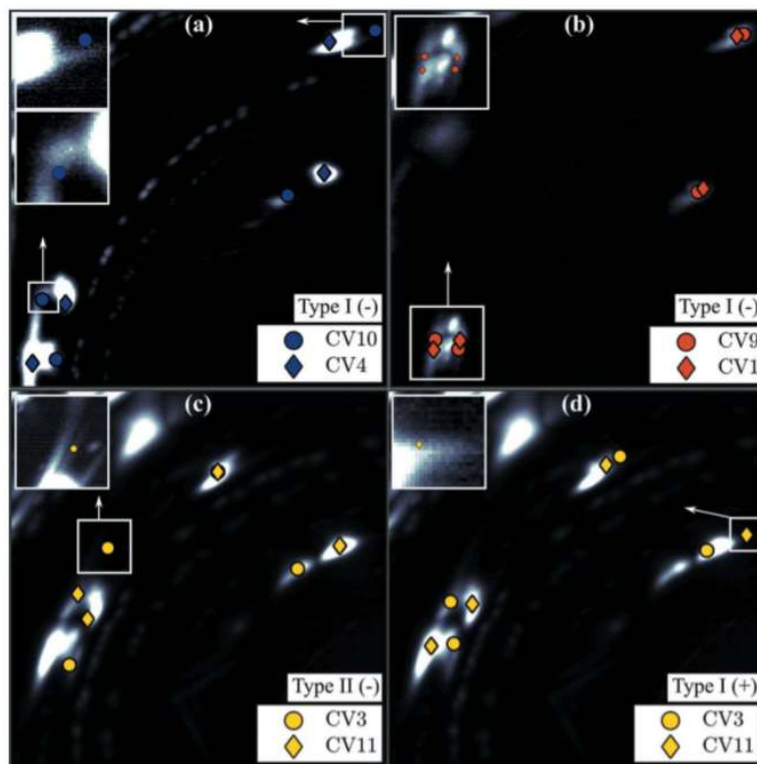
**Figure 1.20** Évolution de la phase austénitique en fonction de l'orientation des grains et du chargement appliqué (Blondé, et al., 2014).

Pour ce qui est de la TM dans les AMF, Malard et al. ont réalisé des caractérisations 3DXRD *in-situ* de quatre grains millimétriques de l'alliage Cu-Al-Be en traction, afin de déterminer le comportement superélastique à l'échelle du grain (Malard, 2009) (Berveiller, Malard, Wright, Patoor, & Geandier, 2011). Dans la continuité de cette étude, les travaux d'El Hachi et al. ont permis de suivre, par des mesures en 3DXRD, la rotation et les tenseurs de déformations élastiques et des contraintes dans une centaines de grains austénitiques (taille de grains de l'ordre de 180  $\mu\text{m}$ ) lors d'un essai de traction (El Hachi, Malard, Berveiller, & Wright, 2015).

L'effet superélastique dans les AMF Ni-Ti a aussi été étudié par la 3DXRD ; ainsi Sedmak et al. ont suivi le comportement de cet alliage sous déformation superélastique cyclique (Sedmak, Sittner, Pilchs, & Curfs, 2015). Ils ont montré que l'instabilité du comportement de l'AMF Ni-Ti, au cours de sollicitations cycliques, est due à l'augmentation graduelle des contraintes internes ayant pour origine l'accumulation de déformations plastiques accompagnant la TM.

De même, Héraud et al. ont fait une étude comparative du comportement superélastique des AMF Ni-Ti et Ti-27Nb, par des mesures *in-situ* en 3DXRD lors de cyclage (Héraud, Castany, Laillé, & Gloriant, 2015). L'étude a montré que les phases martensitiques de l'alliage Ni-Ti subissent des transitions de phase réversibles, contrairement à l'alliage Ti-27Nb où l'accumulation de la martensite au cours du cyclage engendre une importante déformation résiduelle (plus de 8% au bout de 13 cycles charge-décharge).

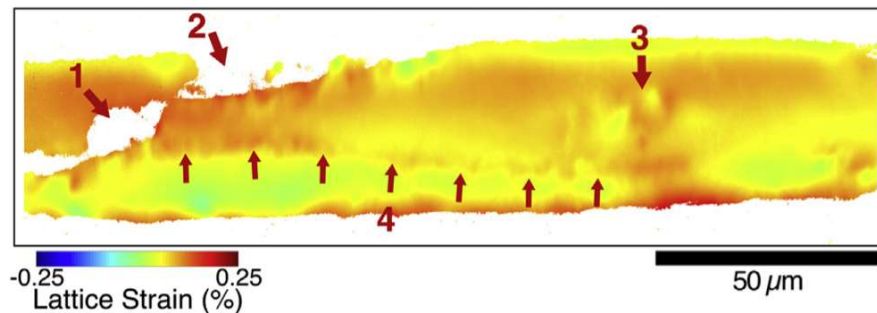
Durant les cinq dernières années en particulier, des travaux récents se sont basés sur la technique 3DXRD notamment pour suivre le développement des variantes de martensite ou mesurer les déformations à une échelle intragranulaire. Bucsek et al. ont mis en place une approche couplée « 3DXRD – modèle TCM » (Théorie Cristallographique de la Martensite) pour identifier les variantes activées de martensite (**Figure 1.21**) lors de la transformation induite par contraintes dans des monocristaux de Ni-Ti (Bucsek, Dale, Ko, Chumlyakov, & Stebner, 2018).



**Figure 1.21** Comparaison des clichés de diffraction 3DXRD et des prédictions de l'algorithme TCM pour la détection du signal diffracté par des plans d'habitat de martensite dans des monocristaux de Ni-Ti (Bucsek, Dale, Ko, Chumlyakov, & Stebner, 2018).

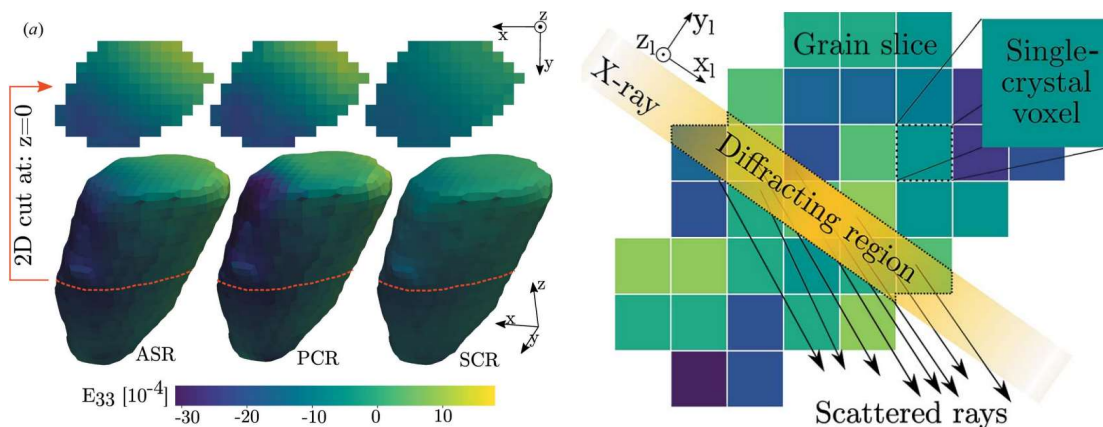
Une autre étude effectuée par Bucsek et al. a été consacrée au suivi de la martensite dans un alliage Ni-Ti, à partir de la mesure de déformation à l'échelle intragranulaire (**Figure 1.22**), par

un montage de 3DXRD utilisant un faisceau fin de 1  $\mu\text{m}$  de largeur pour mesurer la déformation à une échelle microscopique (Bucsek, et al., 2019). Cette variante de la 3DXRD, parfois appelée S3DXRD pour Scanning-3DXRD (Hayashi, Hirose et Seno), a permis de détecter une forte localisation de la transformation autour des défauts cristallins. Elle a également permis une analyse de la déformation et de la rotation aux interfaces austénite – martensite (Bucsek, et al., 2019).



**Figure 1.22** Cartographie spatiale de la déformation du réseau sur une microstructure initiale d'un échantillon Ni-Ti (Bucsek, et al., 2019).

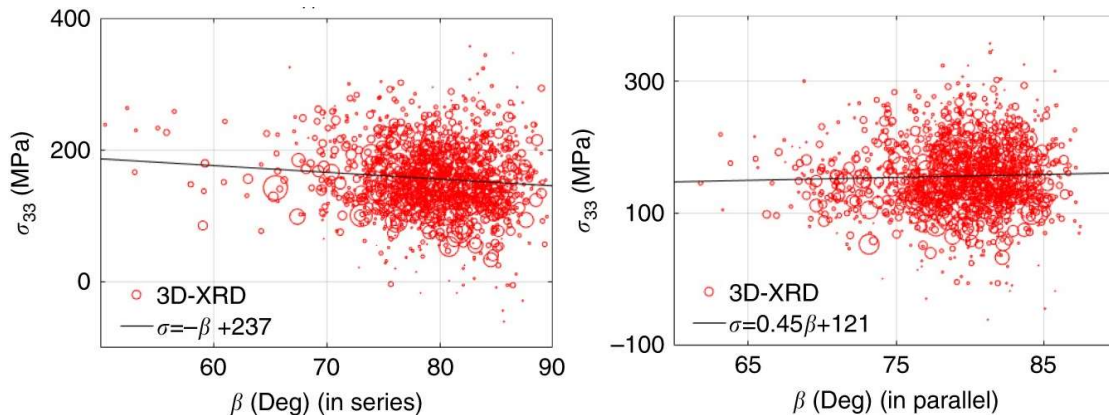
La détermination de la distribution des déformations intragranulaires avec la bonne précision, au lieu d'un tenseur moyen sur le grain, est désormais possible en combinant des conditions opératoires adéquates (microfaisceau incident, translation, rotation) et des méthodes de reconstruction optimisées (**Figure 1.23**) telles que la méthode ASR développée dans les travaux de Hayashi (Hayashi, Setoyama, & Seno, 2017) ou, plus récemment, les méthodes PCR et SCR développées par Henningsson et al. (Henningsson, Hall, Wright, & Hektor, 2020).



**Figure 1.23** Modèles de diffraction S3DXRD pour la reconstruction du champ de déformation (Henningsson, Hall, Wright, & Hektor, 2020).

La technique 3DXRD a aussi été largement utilisée pour caractériser le comportement élastoplastique des matériaux polycristallins en traction. A titre d'exemple, les travaux

d'Abdolvand et al. ont montré un fort effet de grains voisins (**Figure 1.24**) dans un échantillon de titane qui a été corrélé à la position des grains adjacents par rapport à l'axe de traction (Abdolvand, Wright, & Wilkinson, 2018). Les grains ont été classés en « grains en série » (grains voisins le long de l'axe de traction) et « grains en parallèle » (grains voisins dans le plan normal à l'axe de traction).



**Figure 1.24** Effet des grains voisins dans une éprouvette de titane commercial pur. L'angle  $\beta$  représente la désorientation, en moyenne sur les grains voisins, entre l'axe de traction et l'axe  $c$  de la maille hexagonale compacte de titane (Abdolvand, Wright, & Wilkinson, 2018).

De même, Renversade et al. ont mis en place un montage 3DXRD, couplé à la technique TCD, pour caractériser expérimentalement et numériquement le comportement mécanique d'un alliage d'aluminium lors d'un essai de traction cyclique (Renversade, 2016).

Enfin, grâce aux rénovations réalisées depuis 2019 et planifiées à l'horizon 2021 au synchrotron de l'ESRF – Grenoble, de nouvelles opportunités de la 3DXRD se concrétisent notamment à la ligne de lumière ID11. La mesure des champs de déformation intragranulaires d'ordre III et la S3DXRD seront encore plus optimisées dans un futur proche (Wright, Giacobbe, & Majkut, 2020).

### 1.4.2 La tomographie à contraste de diffraction (TCD)

Tandis que la technique 3DXRD, à champ éloigné, permet de déterminer des propriétés (orientation cristallographique, déformation élastique du réseau cristallin, volume, position) généralement moyennées sur chaque grain individuel, la tomographie à contraste de diffraction (TCD), une variante de la méthode 3DXRD basé sur un à champ proche, permet de déterminer la morphologie spatiale de ces mêmes grains et la microstructure 3D de l'échantillon.

Depuis son introduction dans la fin des années 2000, la TCD a été basée sur la combinaison du principe de la 3DXRD (méthode de rotation avec un faisceau monochromatique) et le principe de la micro-tomographie aux rayons X.

L'implémentation de la technique TCD dans des lignes de lumière synchrotron de 3<sup>ème</sup> génération a offert plusieurs avantages, par rapport à la tomographie de laboratoire (microCT) (Buffière, Maire, Adrien, Masse, & Boller, 2010) :

- possibilité d'utiliser un faisceau de rayon-X monochromatique, ce qui réduit les artefacts (hardening effect) et améliore la qualité du contraste,
- réduction du temps d'exposition, ce qui permet de capturer des processus relativement rapides à travers des caractérisations *in-situ*,
- possibilité de reconstruire le volume en effectuant une rotation de 180° seulement, au lieu de 360° pour la microCT,
- possibilité d'obtenir une tomographie à contraste de phase également (PCT).

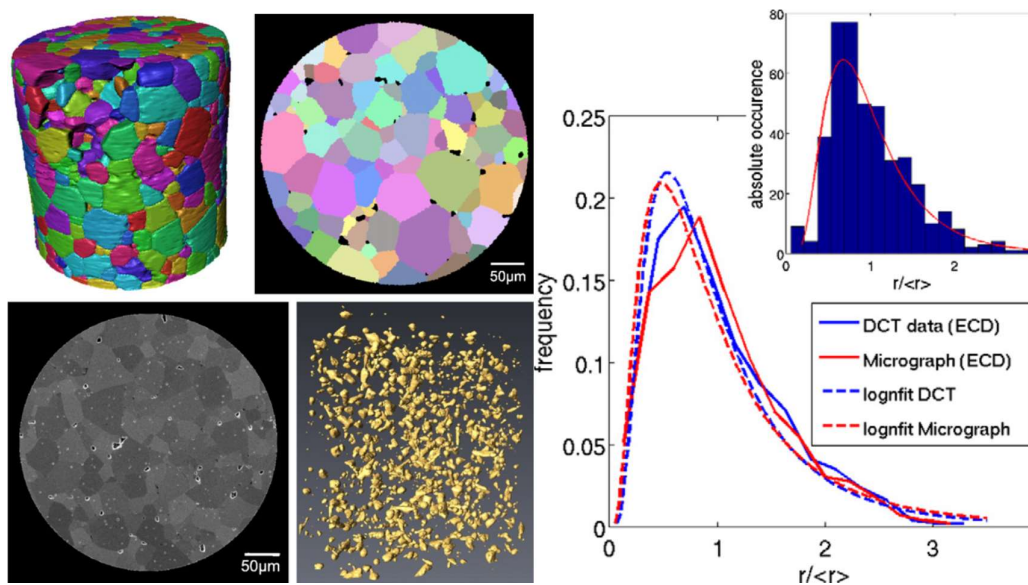
Au même titre que la 3DXRD, la TCD a offert plusieurs applications durant ces dernières années. Dès son implémentation pour la 1ère fois au synchrotron de l'ESRF (Grenoble), Ludwig et al. ont utilisé la TCD pour caractériser des mécanismes d'endommagement tels que la propagation des fissures courtes par fatigue et l'évolution de la corrosion sous contrainte dans des aciers inoxydables austénitiques (Ludwig, et al., 2010). La propagation des fissures par corrosion intergranulaire sous contrainte ayant lieu le long des joints de grains et étant fortement dépendante de la géométrie 3D de ces derniers, Ludwig et al. ont mis au point un essai *in-situ* permettant une description 3D complète des joints de grains, du front de fissure et des macles présentes (Ludwig, et al., 2010).

Dans le cas de la propagation de fissures courtes dans un alliage  $\beta$ -Ti, l'analyse des orientations cristallographiques obtenues par TCD a montré que la fissure se propage suivant des macles et des plans de glissement simultanément activés (Ludwig, et al., 2010) (Herbig, et al., 2011).

De plus, grâce aux travaux de Ludwig (Ludwig, et al., 2009) (Ludwig, et al., 2010), le mécanisme d'endommagement par propagation de fissures dans des polycristaux a été étudié par Proudhon et al. (Proudhon, Moffat, Sinclair, & Buffière, 2012), ainsi qu'Herbig et al. (Herbig, et al., 2011). L'ensemble de ces travaux a été effectué par TCD sur la ligne ID11 à l'ESRF à Grenoble.

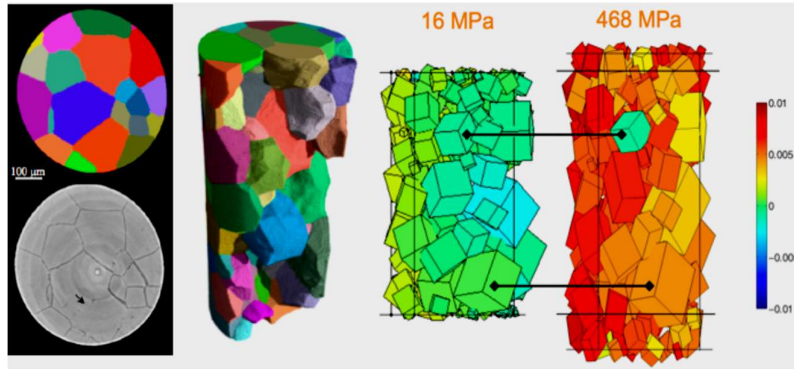
Par ailleurs, Nakai et Shiozawa ont mis en place la technique TCD au synchrotron SPring-8 au Japon pour caractériser ce même mécanisme d'endommagement (Shiozawa, et al., 2016) (Nakai, Shiozawa, Asakawa, Nonaka, & Kikuchi, 2017). Ces derniers se sont basés sur l'analyse de la dispersion des angles de rotations des grains au cours des essais de traction et d'autres essais de fatigue, couplés à la TCD.

En analysant les données de reconstruction de la géométrie 3D des polycristaux en termes d'orientation cristallographique, King et al. se sont intéressés à la détermination de la distribution d'orientation des interfaces qui composent les joints de grains (King, et al., 2010). Cette étude a montré qu'il était possible de déterminer localement les plans d'habitat relatifs à chaque grain et aussi de déterminer les paramètres de la distribution des joints de grains sans avoir recours aux méthodes destructives. L'analyse statistique de ce type de données permet de mieux caractériser tout processus de métallurgie physique régi par l'énergie de joints de grain. Dans la continuité des travaux de King, Syha et al. ont pu reconstruire la microstructure 3D de 849 grains de titanate de strontium ( $\text{SrTiO}_3$ ) et évaluer en détail l'orientation des joints de grains individuels (Syha, et al., 2012). L'applicabilité et la validité de cette approche ont été démontrées grâce à une comparaison des résultats de la TCD à des caractérisations métallographiques et à des modèles polycristallins statistiques (**Figure 1.25**).



**Figure 1.25** Reconstruction de la microstructure par la TCD et comparaison à des observations MEB dans un échantillon de  $\text{SrTiO}_3$  (Syha, et al., 2012).

La consistance de ces résultats montre que la TCD convient parfaitement à la reconstruction de la microstructure de matériaux poreux tels les oxydes pérovskite ( $\text{CaTiO}_3$ ,  $\text{SrTiO}_3$ , etc.) (Syha, et al., 2012).



**Figure 1.26** Reconstruction 3D et détermination par TCD du tenseur de déformation élastique dans une éprouvette de Ti sous traction uniaxiale (composante  $\varepsilon_{33}^e$  parallèle à la contrainte appliquée) (Ludwig, et al., 2010).

Tout comme la 3DXRD, la détermination du tenseur de déformation d'ordre II (à une échelle de moyenne sur le grain) constitue un autre exemple d'application de la TCD (**Figure 1.26**). Bien que cette dernière utilise un détecteur à champ proche qui privilégie la résolution spatiale au détriment de la résolution angulaire (contrairement à la 3DXRD à champ éloigné), une étude de faisabilité a montré que la TCD est tout de même capable de mesurer le tenseur de déformations dans un grain avec une résolution de l'ordre de  $5 \times 10^{-4}$  (Ludwig, et al., 2010). Cela donne un intervalle de confiance de l'ordre de 50 MPa pour le calcul des contraintes dans le cas d'un matériau avec un module d'Young de l'ordre de 50 GPa.

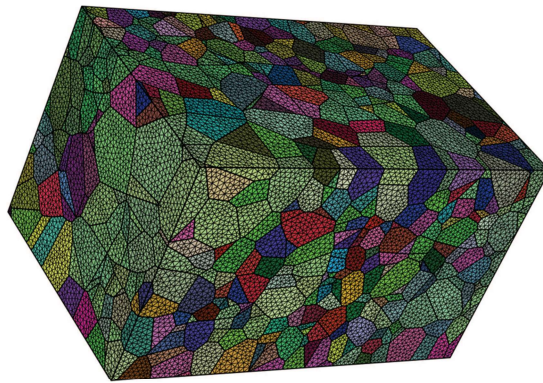
Les résultats obtenus dans cette étude ont montré une bonne correspondance entre les données de la 3DXRD et celles de la TCD, même en présence de gradients d'orientations intragranulaires à 1% de déformation plastique.

Pour surpasser certaines limites de la reconstruction par TCD telle qu'elle a été initialement introduite, notamment la sensibilité à la mosaïcité et au gradient d'orientation intragranulaire dans les polycristaux plastiquement déformés, Vigano et al. (Vigano, et al., 2016) ont introduit une nouvelle méthodologie mathématique de reconstruction par TCD, basée sur un problème d'optimisation de six dimensions. Le passage d'un formalisme 3D à un algorithme de reconstruction 6D a permis une amélioration notable dans la précision de reconstruction des grains (Vigano, et al., 2016). Suite à ces travaux, la reconstruction 6D-TCD des données de



diffraction synchrotron à champ proche a été implémentée dans le logiciel de TCD développé à l'ESRF – Grenoble.

Enfin, il y a lieu de noter que la reconstruction du volume par TCD (en particulier par 6D-TCD) peut servir en tant que données de départ dans des codes d'analyse mécanique par la méthode des éléments finis (MEF). Des simulations numériques en plasticité ont été effectuées dans la thèse de Renversade sur une éprouvette d'aluminium analysée en 3DXRD et en TCD (**Figure 1.27**) (Renversade, 2016). Proudhon et al. ont également expérimenté la performance du couplage TCD – MEF (Proudhon, et al., 2016). Le tenseur de déformation élastique a été correctement déduit via l'anisotropie élastique et en optimisant les conditions aux limites pour un échantillon de 1400 grains de titane pur déformé.



**Figure 1.27** Maillage fin d'une éprouvette d'aluminium reconstruite par TCD (Renversade, 2016).

En plus des opportunités offertes sur les lignes de lumière ID11 et ID19 de l'ESRF – Grenoble pour la TCD, la ligne de lumière PSICHE du synchrotron Soleil – Paris a également été optimisée pour ce type de tomographie (King, et al., 2016).

## Conclusion

La revue bibliographique présentée dans ce chapitre révèle l'influence de la microstructure sur le comportement des AMF. Une description complète de la microstructure initiale, et de son évolution lors des sollicitations thermomécaniques, est nécessaire pour une meilleure description de la relation microstructure – comportement superélastique. Comme le montre l'étude bibliographique du chapitre 1, les techniques de diffraction TCD et 3DXRD ont montré leur capacité à remplir cette tâche. Le principe de fonctionnement, le montage expérimental et l'analyse de données issues de la 3DXRD et de la TCD sont décrits dans le chapitre suivant.



## 2. Techniques expérimentales, matériau et démarche de l'étude

2. Techniques expérimentales, matériau et démarche de l'étude .....	35
Introduction .....	37
2.1. Diffraction des rayons-X à haute énergie .....	38
2.1.1. Introduction .....	38
2.1.2. Mise en œuvre des montages expérimentaux .....	38
2.2. Détermination des propriétés moyennes à l'échelle du grain par diffraction des rayons-X en 3D (3DXRD).....	42
2.2.1. Acquisition et post-traitement des images de 3DXRD.....	43
2.2.2. Etalonnage du diffractomètre .....	45
2.2.3. Procédure d'indexation sous ImageD11 .....	47
2.2.3.1. Génération des orientations de test « trial orientations » (étape A) .....	49
2.2.3.2. Indexer les pics aux matrices UBI (étape B) .....	50
2.2.3.3. Affiner les propriétés moyennes du grain (étape C).....	51
2.2.4. Affiner les paramètres globaux du diffractomètre.....	52
2.2.5. Mesure de l'orientation, de la déformation élastique et détermination des contraintes moyennes dans le grain.....	54
2.2.6. Conclusion partielle.....	57
2.3. Reconstruction de la microstructure 3D par Tomographie à Contraste de Diffraction (TCD).....	57
2.3.1. Post-traitement et segmentation des images brutes de TCD .....	57
2.3.2. Indexation par symétrie des paires de Friedel .....	61
2.3.3. Reconstruction tridimensionnelle du volume.....	63
2.4. Démarche expérimentale .....	64
2.4.1. Matériau de l'étude.....	64
2.4.2. Démarche de l'étude.....	65



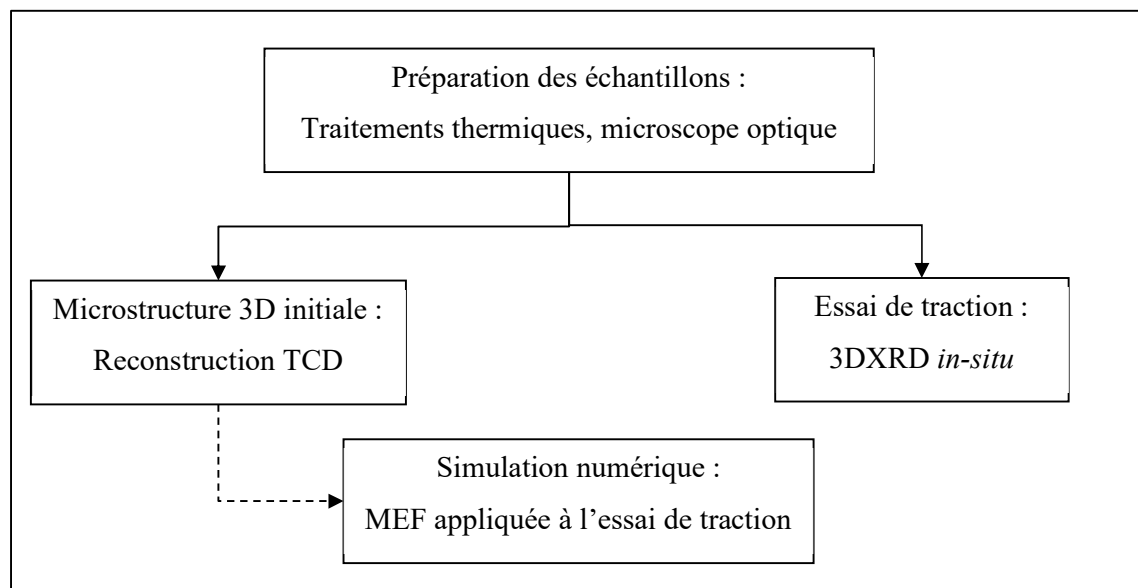
## Introduction

Ce chapitre présente les techniques expérimentales utilisées et le matériau étudié. Dans l'objectif d'examiner à la fois l'évolution microstructurale et le comportement micromécanique de l'alliage au cours d'un essai de traction *in-situ*, une campagne d'essais expérimentaux de caractérisation par diffraction à haute énergie, à champ proche (TCD) et à champ éloigné (3DXRD) *in-situ* a été réalisée.

La diffraction en 3 dimensions par rayons-X (3DXRD) a pour objectif de mesurer les déformations moyennes à l'échelle des grains dans la phase austénitique, pour différents niveaux de chargement et de transformation lors d'un essai de traction.

La tomographie à contraste de diffraction (TCD) permet d'obtenir la microstructure tridimensionnelle initiale de la zone analysée. Cette information est exploitée notamment pour digitaliser la microstructure expérimentale en 3 dimensions afin de prédire par simulation les effets de champs de contraintes locales dus aux grains voisins.

En parallèle, l'essai de traction a été simulé par la méthode des éléments finis (MEF) en partant de la microstructure digitalisée. La **Figure 2.1** résume la démarche générale de cette étude. Elle a été appliquée à l'étude du comportement superélastique d'un alliage Cu-Al-Be. Aussi, dans un premier temps, les différentes techniques expérimentales sont détaillées ; dans un deuxième temps, le matériau de l'étude est présenté, ainsi que les conditions expérimentales.



**Figure 2.1** Schéma d'introduction de la démarche globale de l'étude

## 2.1. Diffraction des rayons-X à haute énergie

### 2.1.1. Introduction

L'étude des évolutions de la microstructure et du comportement mécanique, à l'échelle des grains au cours de l'essai de traction superélastique, a été réalisée grâce au rayonnement synchrotron. Ce choix de caractérisation par rayonnement synchrotron à haute énergie est motivé par les multiples avantages qu'offrent ces techniques de diffraction (Poulsen, 2004a) :

- une énergie suffisante pour traverser les échantillons métalliques afin d'obtenir une caractérisation en volume du matériau à l'échelle microscopique ;
- des configurations et des montages expérimentaux adaptables pour identifier différents objets individuels dans le volume analysé (phases, grains, orientations cristallographiques, morphologie 3D, déformations) ;
- un large volume d'analyse, par rapport à l'échelle microscopique, permettant ainsi une représentativité suffisante des résultats d'un point de vue statistique ;
- une brillance importante qui permet d'obtenir une résolution temporelle suffisante pour acquérir des caractérisations *in-situ* relativement rapidement.

Les deux configurations utilisées dans cette étude sont décrites dans les paragraphes suivants.

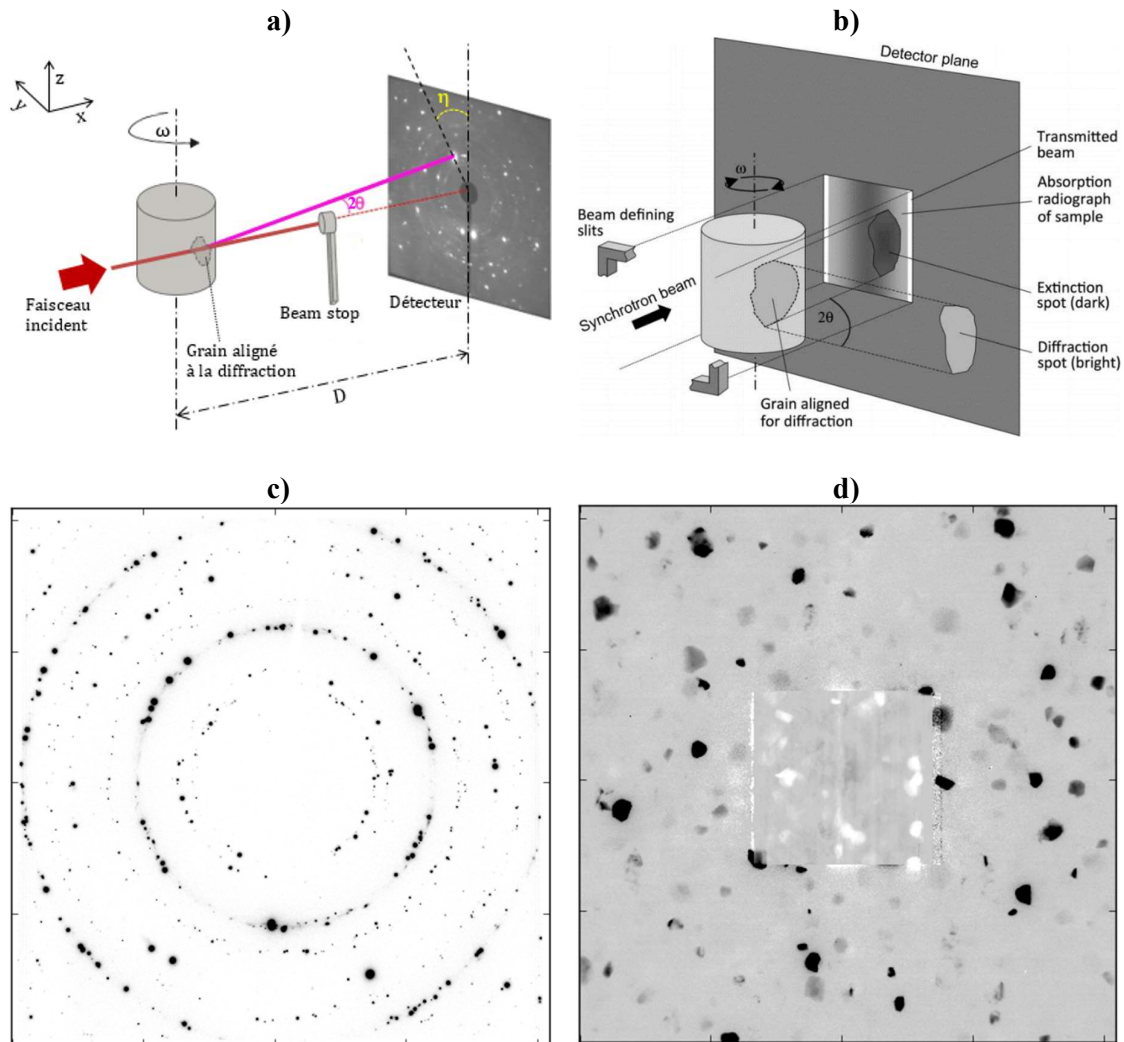
### 2.1.2. Mise en œuvre des montages expérimentaux

Les techniques de diffraction de rayons-X du rayonnement synchrotron à haute énergie (DRXHE) sont basées sur une extension de la « méthode de rotation » généralement utilisée dans la cristallographie de monocristal (Poulsen, 2004b) : l'échantillon est monté sur un support rotatif autour d'un axe noté  $\omega$  et illuminé par un faisceau monochromatique de photons à haute énergie ( $E = 60 - 100$  keV) perpendiculaire à  $\omega$  comme schématisé sur la **Figure 2.2**.

Deux variantes de la DRXHE se distinguent : la diffraction des rayons X en 3D (3DXRD ou far-field 3DXRD) et la tomographie à contraste de diffraction (TCD ou near-field DCT).

Dans le montage 3DXRD (**Figure 2.2a**), un détecteur 2D est positionné perpendiculairement au faisceau incident à une distance  $D$  relativement grande (supérieure à 20 cm) de l'échantillon, d'où le terme « champ éloigné ». Le faisceau incident traverse l'échantillon et le faisceau direct est arrêté par un « Beam stop ». En faisant tourner l'échantillon, les grains illuminés vérifiant la condition de Bragg génèrent un faisceau diffracté qui est intercepté par le détecteur 2D sous

forme de taches de diffraction (spots) positionnées sur des anneaux appelés anneaux de Debye-Scherrer (de diffraction de poudre). Chaque tache est définie par ses coordonnées cartésiennes dans le détecteur 2D. Elle est également définie par deux angles de diffraction : un angle radial  $2\theta$  et un angle azimutal  $\eta$  (Figure 2.2a).



**Figure 2.2** Montages de DRX à haute énergie pour la technique 3DRXD (a) et la TCD (b). (Ludwig, Schmidt, Lauridsen, & Poulsen, 2008) c) Exemple d'images de diffraction, pour un même angle  $\omega$ , en 3DRXD (c) et en TCD (d), obtenues sur l'alliage Cu-Al-Be.

Le détecteur est caractérisé par une résolution relativement faible en comparaison à la taille de grains (pixels de taille supérieure à  $40 \mu\text{m}$ ). Une image du détecteur (cliché de diffraction), en niveaux de gris, est enregistrée à chaque rotation  $\omega$  (Figure 2.2c). Pour une caractérisation complète du volume illuminé, un large intervalle d'angle  $\omega$  est balayé par petits pas successifs équidistants  $\delta\omega$ , appelés pas d'intégration. Cet intervalle peut être limité lorsque ce montage

est couplé à une machine de traction in-situ, du fait de l'encombrement géométrique de la machine qui peut interférer avec les faisceaux diffractés.

Dans le cas du montage TCD (**Figure 2.2b**), une rotation complète de  $360^\circ$  de l'échantillon autour de l'axe  $\omega$  est réalisée, avec un petit pas d'intégration  $\delta\omega$  typiquement entre  $0.05^\circ$  et  $0.5^\circ$ . Les faisceaux transmis directs et diffractés sont captés sur un détecteur à haute résolution en comparaison à la taille de grains, positionné à une faible distance échantillon – détecteur de l'ordre de 1 à 10 mm (champ proche) avec une taille de pixel typiquement entre  $0,3 \mu\text{m}$  et  $10 \mu\text{m}$ . Le faisceau incident étant plus large que l'échantillon, une radiographie d'absorption de l'échantillon se forme alors sur la zone centrale du détecteur délimitant le faisceau direct. Du fait de la rotation de l'échantillon, les grains vérifiant la condition de Bragg à un angle de rotation donnent lieu à des intensités diffractées qui sont captées sur le même détecteur dans la zone extérieure au faisceau direct (**Figure 2.2d**). Un contraste entre les grains diffractant et le reste de l'échantillon se forme également sur l'image arrière-plan d'absorption de l'échantillon, du fait qu'une partie de l'intensité incidente a été diffractée.

Le choix de l'un des deux montages et son paramétrage dépendent forcément du type d'information que l'on veut obtenir : l'utilisation d'un détecteur à champ éloigné, ayant une taille de pixel de l'ordre de la taille de grains, entraîne une résolution angulaire élevée au détriment de la résolution spatiale. Une telle résolution angulaire élevée de la 3DXRD permet de détecter les petites perturbations en angle de diffraction  $2\theta$  et donc une mesure précise des déformations élastiques (incertitude d'environ  $5 \times 10^{-4}$ ), idéale pour caractériser les orientations cristallographiques également. En revanche, le peu d'information spatiale dans les taches de diffraction de la 3DXRD n'est pas favorable à la reconstruction de la forme 3D de la microstructure. Seule la position moyenne (centre de masse) du grain dans l'échantillon est obtenue en 3DXRD.

Contrairement à la 3DXRD, la combinaison d'une faible distance échantillon – détecteur et d'une taille de pixel bien inférieure à la taille de grains confère à la TCD à champ proche une forte résolution spatiale. Ceci permet de reconstruire la microstructure 3D à partir de la forme des taches de diffraction et/ou du contraste d'absorption. En contrepartie, les mesures de la déformation ne sont pas suffisamment précises, du fait de la diminution de la résolution angulaire : les déplacements angulaires sont trop petits pour être observés. La faible résolution angulaire n'empêche néanmoins pas de mesurer les orientations grâce à la rotation complète de



360° qui rend possible l'utilisation de la symétrie des paires de Friedel présentées au paragraphe 2.3.

Aussi, la taille de grains et la largeur de l'échantillon analysé doivent être accommodées en fonction de la taille de pixel et de la dimension des détecteurs à champ-proche et à champ éloigné disponibles, surtout dans le cas où le même échantillon est analysé à la fois en 3DXRD et en TCD. Dans un montage 3DXRD, si le rapport taille de grains / taille de pixel est suffisamment grand, la forme spatiale des grains risque de submerger l'information angulaire et rendre la mesure des déformations moins précise. Quant à la TCD, si le rapport de la taille de grains sur la taille de pixel n'est pas adapté (trop grand ou trop petit), la reconstruction tridimensionnelle risque de souffrir de problématiques telles que la diminution de la résolution spatiale, le chevauchement des taches, ou encore l'augmentation du temps de calcul, en particulier si le nombre de grains dans la largeur de l'échantillon (section transversale) est relativement grand. De plus, l'échantillon ne doit pas occuper plus d'un tiers de la largeur du détecteur TCD pour permettre d'y capter suffisamment de signal diffracté. Des limites pratiques et des valeurs typiques, propres à chacune des deux techniques, sont données dans le **Tableau 2.1** (Reischig, et al., 2013) (Poulsen, 2004b) (Ludwig, Schmidt, Lauridsen, & Poulsen, 2008).

**Tableau 2.1** Valeurs typiques de montage et d'acquisition par les détecteurs 3DXRD et TCD

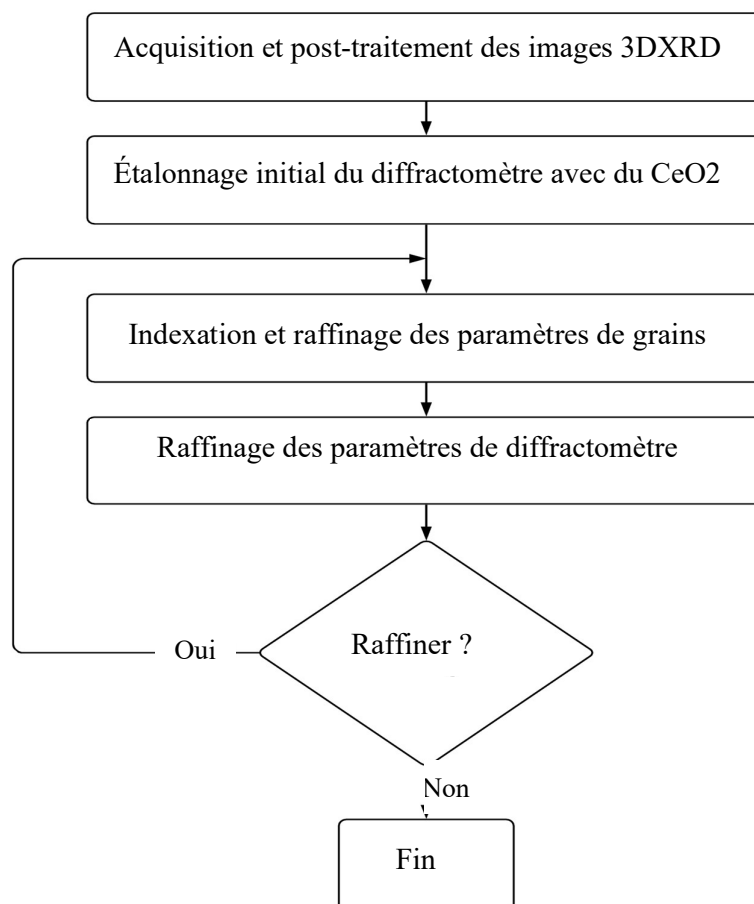
	3DXRD	TCD
Distance à l'échantillon	20 cm – 50 cm	1 mm – 20 mm
Taille de pixel	40 $\mu\text{m}$ – 200 $\mu\text{m}$	0,3 $\mu\text{m}$ – 10 $\mu\text{m}$
Nombre de pixels	1024 $\times$ 1024 – 4096 $\times$ 4096	
Ratio Taille de grain / taille de pixel	0,2 – 5	20 – 100
Résolution angulaire	0,0005°	0,05°
Incrément d'intégration	0,05° – 0,5°	0,05° – 0,5°
Intervalle de rotation	180° – 360°	360°

Dans le cadre de ces travaux de thèse, une campagne de caractérisation combinant la 3DXRD et la TCD a été effectuée sur la ligne de lumière ID11 du synchrotron ESRF à Grenoble, avec un faisceau monochromatique d'énergie 65,3 keV. Des détecteurs 2D de 2048  $\times$  2048 pixels ont été utilisés, avec une taille de pixels égale à 47,2  $\mu\text{m}$  pour la 3DXRD et 3,1  $\mu\text{m}$  pour la

TCD. Les plages en  $\omega$  et le pas d'intégration  $\delta\omega$  varient en fonction du type d'expériences ; ils sont donc indiqués dans la suite du manuscrit pour chaque condition d'essais (chapitre 3).

## 2.2. Détermination des propriétés moyennes à l'échelle du grain par diffraction des rayons-X en 3D (3DXRD)

Le montage expérimental du microscope 3DXRD a été utilisé pour mesurer l'orientation cristallographique, le tenseur de déformations élastiques et la position dans l'échantillon, de chacun des grains austénitiques du volume analysé. Ces grandeurs mesurées par la 3DXRD sont des valeurs moyennes sur le grain. Les hétérogénéités des champs de déformation et de contraintes à une échelle plus fine (intragranulaire) ne sont pas accessibles par cette technique avec la méthode et la taille de faisceau utilisée.



**Figure 2.3** Algorithme de la procédure d'analyse de données en 3DXRD.

La procédure globale de caractérisation des grains individuels par 3DXRD peut être divisée en trois parties, schématisées sur la **Figure 2.3**. Les principales étapes sont :

- l'acquisition et le post-traitement des images de diffraction : les images brutes acquises sont traitées de façon à y identifier les pics de diffraction individuels ;
- l'étalonnage de la géométrie du montage : les paramètres globaux du montage du diffractomètre 3DXRD sont déterminés dans cette étape ;
- l'indexation des pics et l'affinage des paramètres reliés aux grains et au diffractomètre : les paramètres propres aux grains (position des grains dans l'échantillon, paramètre de maille moyen et orientation moyenne) sont identifiés à partir des pics indexés, puis raffinés en même temps que les paramètres globaux du diffractomètre.

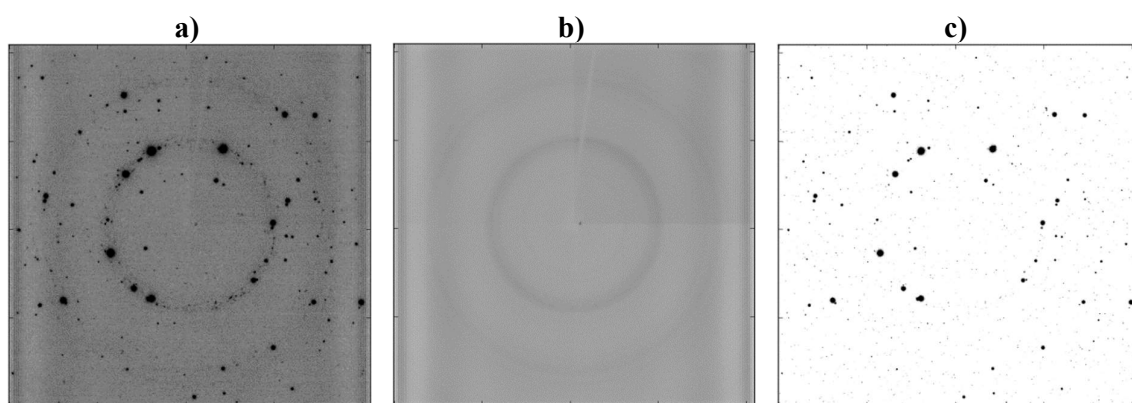
Différents algorithmes classiques, logiciels et méthodologies d'analyse sont disponibles et peuvent être utilisés pour aborder chacune des étapes d'analyse suscitées. Dans cette étude, l'analyse des données 3DXRD a été effectuée principalement en utilisant le code ImageD11 (Wright, ImageD11, 2017) développé à l'ESRF par J. Wright. D'autres outils du projet FABLE (ESRF, 2005), dont ImageD11 fait partie, ont été également utilisés ponctuellement. Par ailleurs, un ensemble de scripts et de routines en Python a été développé tout au long de la thèse pour permettre d'analyser les importantes quantités de données expérimentales obtenues par 3DXRD et par TCD. La **Figure 2.3** résume la démarche générale adoptée dans cette étude dans le cas d'une mesure par 3DXRD.

Chaque étape de la **Figure 2.3** est détaillée dans les paragraphes suivants.

### 2.2.1. Acquisition et post-traitement des images de 3DXRD

Un traitement d'image est réalisé sur tous les clichés de diffraction enregistrés après l'acquisition des données 3DXRD. La première étape du post-traitement consiste à soustraire le signal de bruit de fond des images 3DXRD. Pour ce faire, une image du détecteur avec le faisceau mais sans l'échantillon (pas de taches diffractées) est enregistrée, dans les mêmes conditions opératoires que l'expérience (faisceau incident stoppé par le beam stop, temps d'exposition, atténuateurs, etc.). Ce type d'image est désigné par « dark image ». Dans le cas où l'image de bruit de fond n'a pas été préalablement acquise, elle peut être créée directement à partir des images 3DXRD de l'expérience, par exemple en calculant simplement la médiane des intensités dans la direction de rotation  $\omega$  tel que le montre la **Figure 2.4**. D'autres filtres plus performants peuvent être développés pour mieux traiter les différents niveaux de bruit.

Après avoir enlevé le bruit de fond, la routine de recherche des taches de diffraction est réalisée en appliquant une méthode de seuillage d'image pour détecter les différentes intensités. Les régions de pixels connectés et ayant une intensité supérieure au seuil défini par l'utilisateur sont labélisées dans chaque image. Ensuite, les zones 2D labélisées adjacentes sont intégrées en fonction de la troisième dimension  $\omega$  en parcourant les images de rotations successives. Ceci permet de passer des taches 2D aux pics 3D de diffraction. Chaque pic est défini par son centre de masse, lui-même caractérisé par son intensité et ses coordonnées 3D (2 coordonnées cartésiennes liées à la position dans le détecteur 2D et une coordonnée liée à l'angle de rotation  $\omega$ ). Ces propriétés du pic reflètent les propriétés moyennées du grain (Poulsen, 2004b).



**Figure 2.4** Suppression du bruit de fond. a) Image 3DXRD brute de l'échantillon à un  $\omega$  donné. b) Image médiane des images dans tout l'intervalle de rotation représentant le bruit de fond. c) Soustraction de l'image a) par b). L'échelle des intensités dans l'image médiane est réduite (contraste élevé) par rapport à l'image brute, les anneaux fins qui apparaissent dans cette image sont d'une intensité négligeable.

La question du choix optimal du seuil d'intensité se pose dans cette procédure de segmentation à seuil unique. L'identification des taches les moins intenses nécessite de définir un seuil relativement bas et proche du niveau de bruit de fond. Cependant, cela augmente la probabilité de voir des taches intenses distinctes se chevaucher et donner lieu à une seule tache. Pour limiter cet effet, la segmentation des intensités est faite plusieurs fois en boucle avec des seuils de valeurs décroissantes. Les résultats obtenus pour l'ensemble des seuils sont parcourus et comparés de manière à mettre à jour la position du barycentre des taches dupliquées entre deux seuils ou bien rajouter les nouvelles taches qui n'apparaissaient pas dans les seuils précédents.

A la fin de la procédure de recherche de pics, une dernière étape est d'analyser et filtrer les données, notamment enlever les pics avec un nombre de pixels faibles ou les pics saturés.

### 2.2.2. Etalonnage du diffractomètre

On entend par étalonnage la détermination des paramètres globaux du montage 3DXRD, indépendants du matériau analysé. En effet, le montage de diffraction fait intervenir deux types de paramètres distincts : des paramètres globaux (de diffractomètre) liés à l'expérience et des paramètres locaux propres aux grains individuels. Ces paramètres sont résumés dans le **Tableau 2.2** et le **Tableau 2.3**, dans le cas d'un montage 3DXRD similaire à celui de la **Figure 2.2**.

**Tableau 2.2** Paramètres globaux du montage expérimental de 3DXRD

Paramètres	Description
$t_x, t_y, t_z$	Angles de tilt (désalignement) du détecteur suivant les directions $x, y$ et $z$
$w$	Angle de tilt de l'axe de rotation $\omega$ suivant la direction $y$ , appelé « wedge »
$y_d^0, z_d^0$	Coordonnées, dans le référentiel détecteur, du centre du faisceau incident (en pixels)
$P_y, P_z$	Taille des pixels du détecteur dans les directions $y$ et $z$
$D$	Distance échantillon-détecteur
$\lambda$	Longueur d'onde du faisceau monochromatique incident

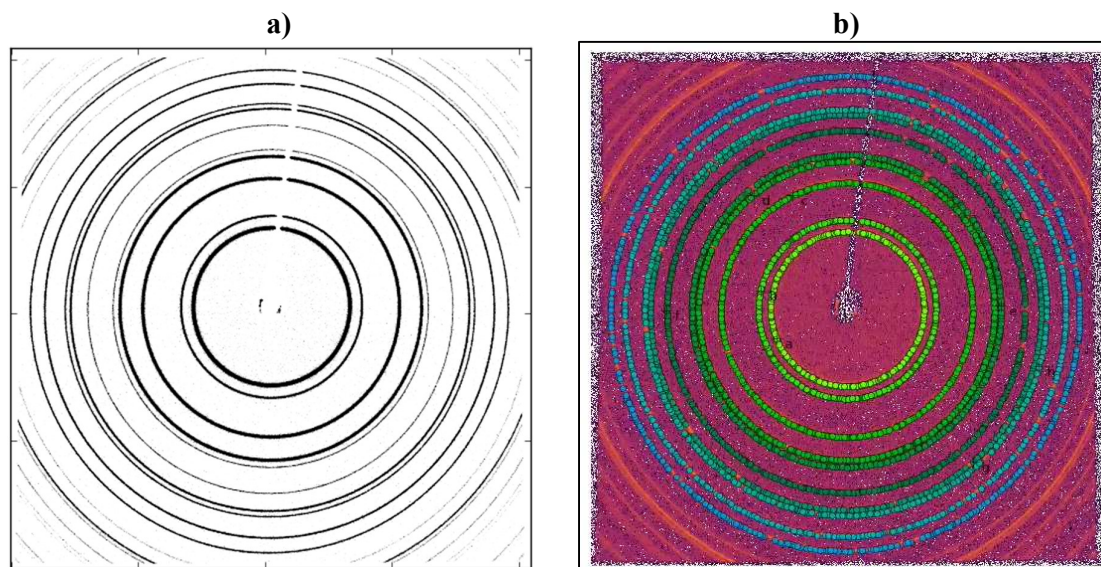
**Tableau 2.3** Paramètres de centre de masse de grains analysés par 3DXRD

Paramètres	Description
$\varphi_1, \Phi, \varphi_2$	Angles d'Euler définissant l'orientation cristallographique du grain
$a, b, c, \alpha, \beta, \gamma$	Maille unitaire du grain
$\bar{x}, \bar{y}, \bar{z}$	Position spatiale moyenne du centre de gravité du grain

Un calibrage préliminaire des paramètres globaux de l'expérience est évidemment essentiel pour obtenir la meilleure précision possible sur les paramètres des grains. Cette opération est particulièrement importante pour mesurer avec précision les déformations par 3DXRD. Dans ce paragraphe, la démarche d'étalonnage de la géométrie du montage est décrite. Deux approches différentes sont généralement utilisées pour étalonner le diffractomètre 3DXRD : l'utilisation d'un calibrant (Bernier, Barton, Lienert, & Miller, 2011), ou une approche numérique (Oddershede, et al., 2010).

La première approche est basée sur l'utilisation d'un étalon, c'est-à-dire une poudre de référence dont le cliché de diffraction est bien connu. L'approche numérique d'Oddershede consiste à affiner les paramètres globaux du diffractomètre directement à partir des résultats de

l'expérience elle-même. En effet, un résidu défini à partir de l'équation de diffraction (2.1) reliant les paramètres locaux et globaux (cf. paragraphe 2.3.3) est à minimiser pour affiner soit les paramètres du diffractomètre soit les paramètres de grains.



**Figure 2.5** Etalonnage de la géométrie 3DXRD sous PyFAI. a) Cliché de diffraction de la poudre  $\text{CeO}_2$ . b) Détection des anneaux Debye-Scherrer par PyFAI.

Dans cette étude, les deux approches ont été utilisées pour obtenir la meilleure précision. Dans un premier temps, une poudre de  $\text{CeO}_2$  a été utilisée pour étalonner la géométrie du montage 3DXRD selon l'approche de Bernier. Les anneaux de diffraction de poudre obtenus sont montrés dans la **Figure 2.5**. Les anneaux de Debye-Scherrer émanant de l'étalon ont été analysés par le logiciel PyFAI (Python Fast Azimuthal Integration) développé à l'ESRF (Kieffer & Wright, 2013) (Kieffer & Karkoulis, 2013).

Les principales données de départ introduites dans PyFAI sont :

- l'étalon utilisé ( $\text{CeO}_2$ ) parmi un ensemble de poudres connus dans la base de données du logiciel,
- la longueur d'onde du faisceau incident,
- la description du détecteur (type, taille de pixel, fichier de distorsion spatiale),
- le cliché de diffraction de l'étalon (**Figure 2.5a**).

En sortie, les paramètres globaux restants sont calculés : il s'agit de la distance détecteur-échantillon, de la position du faisceau direct sur le détecteur, et des angles de désalignement par rapport au montage idéal parfaitement aligné.

### 2.2.3. Procédure d'indexation sous ImageD11

L'indexation est la procédure de détermination des orientations de grains et de leur position dans l'échantillon, en reliant les pics de diffraction observés aux plans réticulaires ( $hkl$ ) diffractants de chaque grain. Les paramètres locaux (de grain) doivent être exprimés en fonction des paramètres de pics observés (coordonnées 3D, éventuellement l'intensité) et des paramètres globaux. Pour ce faire, le formalisme de Busing et Levy relatif à la diffraction d'un monocristal (Busing & Levy, 1967) est utilisé de façon à exprimer un vecteur de diffraction à la fois dans le réseau réciproque et dans les systèmes de coordonnées cartésiennes (laboratoire, échantillon, détecteur) du réseau direct en montage 3DXRD. Cette procédure est détaillée en **Annexe 2**.

$$\vec{G}_{hkl} = \mathbf{UBI} \mathbf{\Gamma}^{-1} \vec{G} \quad (2.1)$$

où :  $\vec{G}$  est un vecteur de diffraction exprimé dans le repère de laboratoire ( $\vec{x}, \vec{y}, \vec{z}$ ),  
 $\vec{G}_{hkl}$  le vecteur de diffraction exprimé dans le réseau réciproque par indices de Miller,  
 $\mathbf{\Gamma}$  est la matrice de passage définissant les paramètres globaux du montage 3DXRD,  
 $\mathbf{UBI}$  est la matrice de passage définissant les paramètres du grain diffractant. ( $\mathbf{U}$  est la matrice d'orientation et  $\mathbf{B}$  la matrice contenant ses paramètres de maille).

Donc, en généralisant l'équation (2.1) au cas du polycristal, la procédure d'indexation consiste à identifier des grains individuels où chacun de ces grains est défini par une matrice  $\mathbf{UBI}$  optimale vérifiant l'équation (2.1) pour un ensemble de pics.

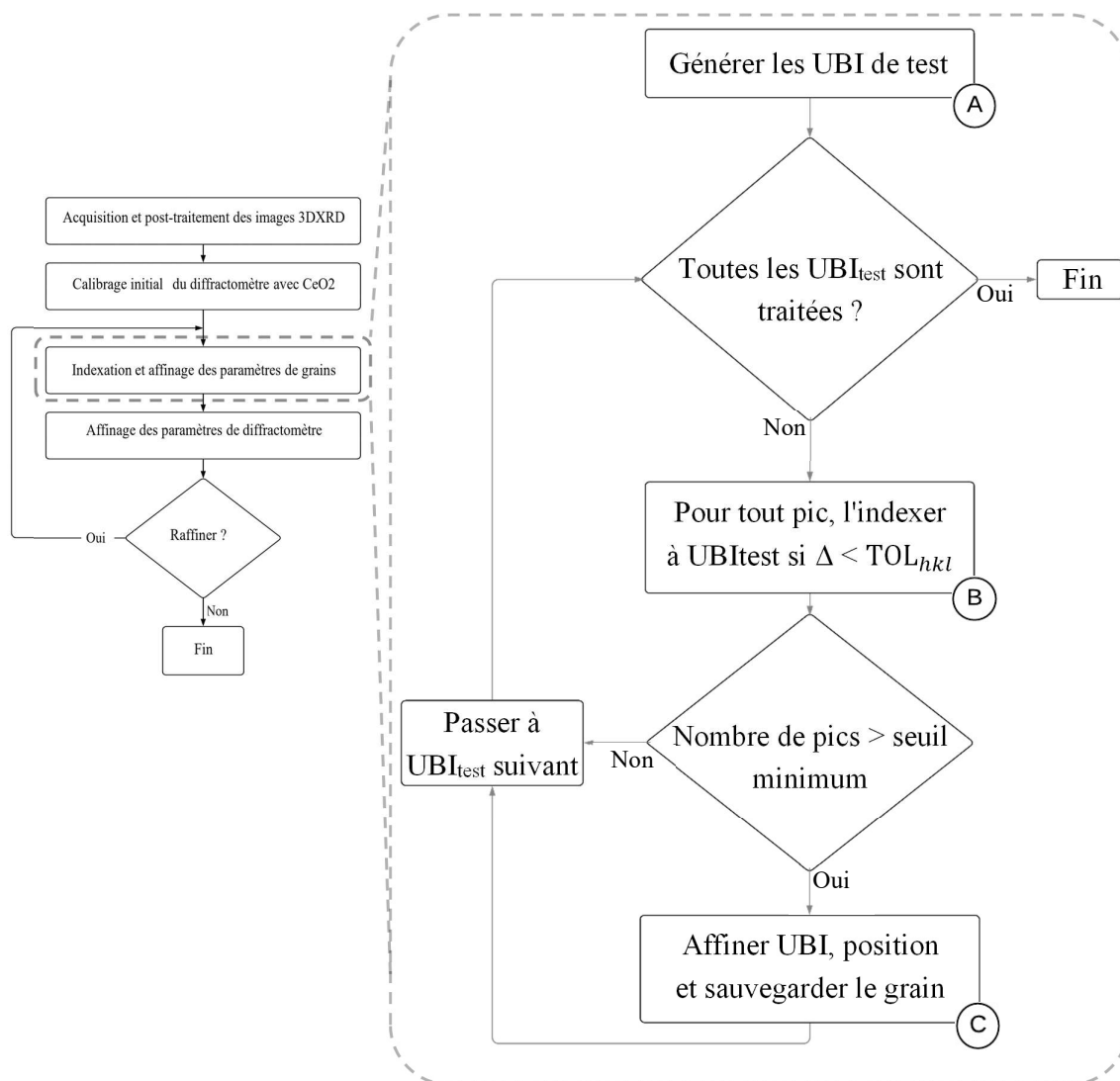
D'autre part, dans le cas particulier du monocristal présenté en annexe 2, la diffraction était supposée avoir lieu à l'origine du repère de laboratoire. Pour tenir compte de la position du grain diffractant dans le polycristal, les vecteurs de diffraction sont recalculés après translation de l'origine. En effet, dans le cas d'un polycristal, l'équation (A2.9) de l'annexe 2 se réécrit :

$$\vec{v} = \begin{pmatrix} D \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} + \mathbf{R} \begin{pmatrix} 0 \\ (y_d - y_d^0)P_y \\ (z_d - z_d^0)P_z \end{pmatrix} - \mathbf{\Gamma} \begin{pmatrix} \bar{x} \\ \bar{y} \\ \bar{z} \end{pmatrix} \approx \begin{pmatrix} D \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} + \mathbf{R} \begin{pmatrix} 0 \\ (y_d - y_d^0)P_y \\ (z_d - z_d^0)P_z \end{pmatrix} \quad (2.2)$$

où  $\bar{x}$ ,  $\bar{y}$  et  $\bar{z}$  expriment la position du centre de masse d'un grain à l'origine de la diffraction.

Étant inconnues de même que les matrices  $\mathbf{UBI}$ , les positions des grains sont négligées à la première itération d'indexation. Les angles  $\theta$  et  $\eta$  initiaux, utilisés pour déterminer les matrices  $\mathbf{UBI}$  à affiner, sont calculés sans translation de l'origine. Cette approximation est rendue

possible grâce au montage 3DXRD à champ éloigné où les distances euclidiennes entre barycentres de grains sont très inférieures à la distance échantillon – détecteur  $D$  (et au vecteur  $\vec{v}$  quelle que soit la direction). Les positions de grains sont donc affinées en post-indexation des orientations. Les étapes pour indexer et affiner les paramètres des grains ( $\mathbf{U}$ ,  $\mathbf{B}$ , position) sont énumérées dans la **Figure 2.6**.



**Figure 2.6** Algorithme de la procédure pour indexer et affiner les attributs de grains.

La procédure d'indexation est composée principalement des trois routines A, B et C de la **Figure 2.6**. Chacune de ces étapes est décrite dans les trois sous-paragraphes suivants.



## 2.2.3.1. Génération des orientations de test « trial orientations » (étape A)

Pour revenir à l'indexation sous ImageD11 dans le cas du polycristal, les vecteurs de diffraction des pics observés ont été préalablement calculés dans le repère de l'échantillon. Ils ont également été regroupés en familles  $\{hkl\}$ . Cependant, ces pics proviennent de différentes orientations (grains) dans l'échantillon contrairement au cas du monocristal. L'idée sur laquelle est basée la détermination des orientations sous ImageD11 consiste à comparer les angles entre toutes les paires de vecteurs de diffraction observés en se basant sur la méthode de Busing et Levy (Busing & Levy, 1967). La procédure permettant d'obtenir la matrice d'orientation  $\mathbf{U}$  d'un monocristal à partir de deux pics diffractés par ce dernier est détaillée dans l'annexe 2.

Dans le cas du polycristal, pour chaque paire de pics, si l'angle entre leur vecteur de diffraction est égal à l'un des angles théoriques entre les deux familles  $\{hkl\}$  à la tolérance  $TOL_{ori}$  près, alors cette paire de pics pourrait provenir du même grain dont l'orientation est calculée par les équations (A2.12) à (A2.16). Ainsi, une orientation potentielle (« trial orientation » ou  $\mathbf{U}_{test}$ ) est générée et stockée pour chaque paire de pics vérifiant la condition suscitée. Cet algorithme de génération des orientations potentielles est donc de l'ordre  $\mathcal{O}(n^2)$ . Pour réduire le nombre d'opérations de calcul, la génération des orientations peut se faire en utilisant seulement deux ou trois anneaux  $\{hkl\}$  sans que cela ne baisse la robustesse de la recherche des matrices  $\mathbf{U}_{test}$ . En ce qui concerne les angles théoriques entre deux vecteurs du réseau réciproque, ils sont calculés après transformation de ces derniers au réseau direct à l'aide du tenseur métrique. Un exemple d'angles théoriques est donné dans le cas le plus simple d'une maille cubique pour trois familles  $\{hkl\}$  choisies, dans le **Tableau 2.4**.

**Tableau 2.4** Angles non nuls possibles entre vecteurs du réseau réciproque d'une maille cubique, en prenant toutes les multiplicités. Les angles sont donnés en ( $^\circ$ ).

	$\{1\ 1\ 1\}$	$\{1\ 0\ 0\}$	$\{1\ 1\ 0\}$
$\{1\ 1\ 1\}$	70,5 ; 109,5 ; 180	54,7 ; 125,3	35,3 ; 90 ; 144,7
$\{1\ 0\ 0\}$		90 ; 180	45 ; 90 ; 135
$\{1\ 1\ 0\}$			60 ; 90 ; 120 ; 180

Les orientations potentielles  $\mathbf{U}_{test}$  sont transformées en matrices  $\mathbf{UBI}_{test}$  et enregistrées pour la prochaine étape d'indexation. Pour cela, la matrice  $\mathbf{B}$  est initiée en utilisant les paramètres de la maille non déformée.

### 2.2.3.2. Indexer les pics aux matrices **UBI** (étape B)

Si un grain défini par la matrice **UBI** diffracte à un angle de rotation  $\omega$  donné, le vecteur de diffraction du pic vérifie l'équation (2.1) du diffractomètre 3DXRD. L'indexation d'un pic observé expérimentalement au grain dont il est issu, se résume alors à trouver laquelle des matrices **UBI**<sub>test</sub> vérifie l'équation (2.1) pour ce pic, à la tolérance près. Pour chaque pic observé, défini par son vecteur de diffraction  $\vec{G}$  dans le repère du laboratoire et assigné à un anneau (famille  $\{hkl\}$  de plans réticulaires), un vecteur  $\overrightarrow{G_r^{UBI}}$  du réseau réciproque est calculé selon l'équation du diffractomètre pour chaque matrice **UBI** parmi les matrices **UBI**<sub>test</sub> :

$$\overrightarrow{G_r^{UBI}} = \begin{pmatrix} h_r^{UBI} \\ k_r^{UBI} \\ l_r^{UBI} \end{pmatrix} = \mathbf{\Gamma}^{-1} \vec{G} \quad (2.3)$$

L'indice  $r$  est utilisé pour rappeler qu'il s'agit de nombres réels contrairement aux indices  $h$ ,  $k$  et  $l$  qui sont des nombres entiers.

Le pic de vecteur de diffraction  $\vec{G}$  est donc indexé au grain de matrice **UBI** s'il existe un plan  $(hkl)$ , parmi les plans équivalents de la famille  $\{hkl\}$ , qui correspond au vecteur  $\overrightarrow{G_r^{UBI}}$  à la tolérance  $TOL_{hkl}$  près :

$$\Delta_{hkl} = \left\| \overrightarrow{G_r^{UBI}} - \overrightarrow{G_{hkl}} \right\| = \left\| \begin{pmatrix} h_r^{UBI} \\ k_r^{UBI} \\ l_r^{UBI} \end{pmatrix} - \begin{pmatrix} h \\ k \\ l \end{pmatrix} \right\| < TOL_{hkl} \quad (2.4)$$

où la tolérance  $TOL_{hkl}$  a une valeur unique imposée pour tous les anneaux  $\{hkl\}$ . Son choix dépendra de différents facteurs tels que le paramètre de maille, l'état des déformations et la robustesse de la détection des barycentres de pics.

A la fin de l'indexation des pics, le nombre de pics attribués à une matrice **UBI** est généralement utilisé en tant que critère de validation d'un grain. En effet, un « vrai » grain aura indexé un maximum de pics possibles avec un minimum d'erreur  $\Delta_{hkl}$  cumulée. Un seuil minimal en termes de nombre de pics par matrice **UBI** est imposé pour décider si une orientation doit être considérée comme étant un grain réel dans l'échantillon analysé.

Il convient aussi de définir ce seuil en termes de complétude minimale acceptée. Par définition, la complétude d'un grain est la fraction de pics observés qui lui sont attribués ( $N_{pks}$ ), par rapport au nombre maximal théorique de pics que ce grain devrait générer ( $N_{max}$ ) :

$$\begin{cases} Complétude = \frac{N_{pks}}{N_{max}} \\ N_{max} = \frac{\omega_{max} - \omega_{min}}{180} \sum_i m_i \end{cases} \quad (2.5)$$

avec :

- $\omega_{max} - \omega_{min}$  : l'intervalle de rotation appliquée durant l'acquisition par la 3DXRD, exprimée en degrés.
- $m_i$  : la multiplicité de la  $i^{\text{ème}}$  famille de plans  $\{hkl\}$  utilisés dans l'indexation.

L'utilisateur choisit une valeur de complétude minimale en fonction des données utilisées pour la recherche de pics et leur indexation.

### 2.2.3.3. Affiner les propriétés moyennes du grain (étape C)

Grâce à l'indexation effectuée lors des deux étapes précédentes, les pics de diffraction des plans ( $hkl$ ) sont identifiés et reliés aux grains définis par des matrices **UBI**. Les pics indexés à chaque grain seront maintenant utilisés pour affiner l'orientation (**U**) et les paramètres de maille (**B**) de ce dernier, ainsi que sa position moyenne dans l'échantillon. Rappelons qu'à ce stade :

- **U** a été estimée à partir de deux pics aléatoires observés,
- **B** décrit la maille introduite pour initialiser (maille non déformée),
- tout grain a été positionné au centre de diffraction (0, 0, 0) comme hypothèse de départ.

Affiner l'orientation et les paramètres de maille consiste à trouver la matrice **UBI** optimale qui minimise l'écart  $\Delta_{hkl}$  de l'équation (2.4) pour tout pic du grain. Pour  $n$  pics indexés au grain, elle correspond à la matrice **UBI** qui minimise le résidu  $\chi^2$  basé sur les  $n$  valeurs de  $\Delta_{hkl}$  :

$$\chi^2 = \sum_n \left\| (\mathbf{UBI}) \overrightarrow{G_{r,n}^{\mathbf{UBI}}} - \overrightarrow{G_{hkl,n}} \right\|^2 \quad (2.6)$$

Ce résidu atteint un minimum pour la matrice **UBI** définie selon Paciorek (Paciorek, Meyer, & Chapuis, 1999) par :

$$\begin{cases} \mathbf{UBI} = \mathbf{UBI}_{opt} = \mathbf{H} \mathbf{R}^{-1} \\ \mathbf{H} = \sum_n \overrightarrow{G_{hkl,n}} \overrightarrow{G_{hk,n}}^t \\ \mathbf{R} = \sum_n \overrightarrow{G_{r,n}^{UBI}} \overrightarrow{G_{hkl,n}}^t \end{cases} \quad (2.7)$$

où  $\overrightarrow{G_{hkl,n}}^t$  est de dimension  $(1 \times 3)$  et correspond au vecteur transposé de  $\overrightarrow{G_{hkl,n}}$  de dimension  $(3 \times 1)$ .

L'orientation cristallographique et les paramètres de maille sont ainsi optimisés par l'équation (2.7) pour tous les grains. Ensuite, la position spatiale moyenne du grain est optimisée en minimisant toujours le même résidu  $\chi^2$  de l'équation (2.6) :

$$\begin{cases} \chi^2 = \sum_n \left\| \mathbf{UBI}_{opt} \overrightarrow{G_{r,n}^{UBI_{opt}}} - \overrightarrow{G_{hkl,n}} \right\|^2 \\ \overrightarrow{G_{r,n}^{UBI_{opt}}} = f(\bar{x}, \bar{y}, \bar{z}) \end{cases} \quad (2.8)$$

En effet, les vecteurs de diffraction dépendent de la position spatiale du grain diffractant comme le décrit l'équation (2.2). Affiner la position du centre de masse du grain consiste alors à trouver les coordonnées  $(\bar{x}, \bar{y}, \bar{z})$  qui mènent à une valeur minimale de  $\chi^2$ . Pour cela, la méthode de Nelder-Mead, basée sur un algorithme simplexe de minimisation de fonctions multidimensionnelles non-linéaires (Nelder & Mead, 1965), est utilisée. Un pas de translation de  $0,2 \mu\text{m}$  est appliqué entre les itérations successives.

Une fois que les positions de grains sont obtenues en minimisant l'équation (2.8), les erreurs  $\Delta_{hkl}$  auront significativement diminué. L'ensemble des pics est à nouveau indexé à l'ensemble des grains avec des tolérances  $TOL_{hkl}$  plus strictes. De même, la minimisation peut être relancée plusieurs fois pour une meilleure convergence, en alternant entre l'optimisation de la matrice UBI et celle de la position spatiale du centre de gravité du grain.

#### 2.2.4. Affiner les paramètres globaux du diffractomètre

Comme mentionné précédemment, le diffractomètre 3DXRD est généralement étalonné par l'utilisation d'un étalon de référence. Cependant, les paramètres globaux du diffractomètre peuvent être affinés numériquement en utilisant les données de l'expérience. Autrement dit, les pics observés de l'échantillon sont utilisés comme données d'entrée tandis que les paramètres

globaux seront les variables optimisables du résidu à minimiser. A partir du formalisme de diffractomètre 3DXRD (C.f. 2.2.3), une fonction résiduelle contenant toutes les contributions des déviations par rapport à l'équation de diffraction idéale (tous les pics de tous les grains) a été introduite par Oddershede (Oddershede, et al., 2010) :

$$\left\{ \begin{array}{l} \chi^2 = \sum_{i,j(i)} (\Gamma_{i,j}^{-1} G_{i,j} - \text{UB}G_{hkl,i,j})^t V_{i,j}^{-1} (\Gamma_{i,j}^{-1} G_{i,j} - \text{UB}G_{hkl,i,j}) \\ G_{i,j} = \frac{1}{\lambda} \left[ \frac{v_{i,j}}{\|v_{i,j}\|} - \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} \right] \\ v_{i,j} = \begin{pmatrix} D \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} + R \begin{pmatrix} 0 \\ (y_{d,i,j} - y_d^0)P_y \\ (z_{d,i,j} - z_d^0)P_z \end{pmatrix} - \Gamma_{i,j} \begin{pmatrix} \bar{x}_i \\ \bar{y}_i \\ \bar{z}_i \end{pmatrix} \\ \Gamma_{i,j} = W\Omega_{i,j} \end{array} \right. \quad (2.9)$$

où  $V_{i,j}$  est la matrice de covariance de  $\Gamma_{i,j}^{-1} \overline{G_{i,j}}$  et  $()^t$  dénote la transposée. La somme est faite sur tous les grains  $i$  ayant  $j(i)$  pics indexés au  $i$ ème grain.

Donc le résidu de l'équation (2.9) fait intervenir :

- trois données observées que sont les coordonnées de pic  $y_{d,i,j}$ ,  $z_{d,i,j}$  et  $\omega_{i,j}$  ( $\Omega_{i,j}$ ) ;
- douze paramètres optimisables de grain :  $\bar{x}_i$ ,  $\bar{y}_i$ ,  $\bar{z}_i$ , 3 angles d'Euler (matrice  $\mathbf{U}$ ) et 6 paramètres de maille (matrice  $\mathbf{B}$ ) ;
- neuf paramètres optimisables globaux :  $D$  la distance échantillon-détecteur, 3 angles de tilt (matrice  $\mathbf{R}$ ),  $y_d^0$ ,  $z_d^0$ ,  $P_y$ ,  $P_z$  et le wedge  $w$  (Matrice  $\mathbf{W}$ ).

Si  $N_p$  dénote le nombre total de pics indexés et  $N_g$  le nombre de grains, la minimisation du résidu  $\chi^2$  est possible si  $3N_p \geq 12N_g + 9$ , ce qui implique  $N_p > 4N_g$ . Une telle inégalité est largement vérifiée pour quasiment toute expérience de 3DXRD car plusieurs grains et plans diffractent suite à la rotation  $\omega$ .

La fonction résiduelle de l'équation (2.9) est implémentée dans le code FitAllB (Oddershede, 2012). Elle est minimisée itérativement lors de plusieurs cycles successifs grâce à l'algorithme MINUIT développé au CERN (James & Roos, 1975). En plus d'affiner les paramètres globaux du diffractomètre et les paramètres de grains, cette méthode a l'avantage de donner des

estimations statistiques de la propagation des erreurs expérimentales à travers la matrice de covariance  $\mathbf{V}_{i,j}$ . En contrepartie, elle présente un temps de calcul élevé de plusieurs heures. De plus, la convergence vers un minimum n'est pas toujours assurée, en particulier s'il y a fortes hétérogénéités entre les grains comme dans le cas de contraintes résiduelles de surface.

Une variante plus facile à mettre en œuvre et moins coûteuse en temps de calcul a été implémentée dans le code ImageD11 : une fonction résiduelle de grain individuel a été construite de la même façon que l'équation (2.8) utilisée pour affiner les positions. Cette fois-ci, les paramètres locaux du grain (**UBI**, centre de masse) sont figés et les paramètres globaux optimisés par minimisation de  $\chi^2$  avec l'algorithme de Nelder-Mead. Un jeu de paramètres globaux, optimal pour le grain d'intérêt, est ainsi obtenu. En réitérant le processus sur tous les grains, les paramètres globaux du diffractomètre seront finalement déduits en prenant la moyenne sur tous les grains. Celle-ci peut être pondérée au volume des grains.

Quelle que soit l'approche utilisée, il convient de répéter le processus lors de plusieurs cycles. Les paramètres globaux optimisés sont réinjectés dans une réindexation et un ré-affinage des grains pour améliorer la convergence totale et réduire les erreurs. Dans cette étude, plusieurs cycles indexation / affinage des paramètres locaux / globaux, tour à tour, ont été effectués en imposant également des critères de rejet des valeurs aberrantes pour améliorer les niveaux de précision de la méthode.

### 2.2.5. Mesure de l'orientation, de la déformation élastique et détermination des contraintes moyennes dans le grain

La procédure d'indexation permet d'identifier les grains du volume analysé. Chaque grain est caractérisé à ce stade par :

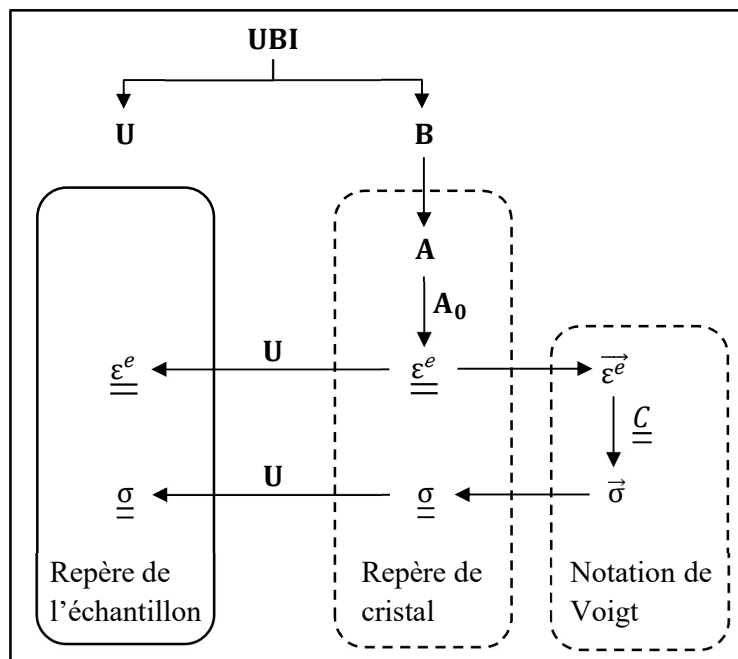
- la position spatiale de son barycentre dans l'échantillon,
- son volume qui peut être déduit de l'intensité des pics qu'il a générés,
- une matrice **UBI** contenant à la fois l'information de son orientation cristallographique et de ses paramètres de maille du réseau réciproque.

Il faut donc décomposer la matrice **UBI** pour obtenir des informations telles que les angles d'Euler et les paramètres de maille du réseau direct. Sachant que **U** est une matrice de rotation orthogonale et que **B** est une matrice triangulaire supérieure, une factorisation **QR** de la matrice **UB** ( $\mathbf{UBI}^{-1}$ ) suffit à obtenir **U** et **B** séparément, puis en déduire les angles d'Euler et les paramètres de maille réciproque.

Contrairement à la matrice  $\mathbf{B}$  d'entrée, propre à la phase à indexer et construite pour initialiser les opérations cristallographiques, les matrices  $\mathbf{B}$  raffinées sont propres aux grains et tiennent compte de l'état de déformation du grain. En effet, les paramètres de maille du réseau direct sont déduits du réseau réciproque pour chaque grain :

$$\begin{cases} \vec{a} = \frac{1}{V^*} \vec{b}^* \wedge \vec{c}^* \\ \vec{b} = \frac{1}{V^*} \vec{c}^* \wedge \vec{a}^* \\ \vec{c} = \frac{1}{V^*} \vec{a}^* \wedge \vec{b}^* \\ V^* = \vec{a}^* \cdot (\vec{b}^* \wedge \vec{c}^*) \end{cases} \quad (2.10)$$

Les étapes intermédiaires de décomposition des matrices  $\mathbf{UBI}$  en matrice  $\mathbf{U}$ , du calcul des tenseurs  $\underline{\underline{\varepsilon}}^e$  et  $\underline{\underline{\sigma}}$  dans le repère de l'échantillon sont résumés dans le schéma de la **Figure 2.7**.



**Figure 2.7** Détermination de l'orientation, de la déformation élastique et des contraintes par la technique 3DXRD.

Par définition, le tenseur de déformation élastique  $\underline{\underline{\varepsilon}}^e$  d'une phase cristalline exprime les petites perturbations de la maille élémentaire du réseau direct par rapport à un état de référence. Son expression dans la base orthonormée du cristal est donnée par :

$$\left\{ \begin{array}{l} \underline{\underline{\varepsilon}}^e = \frac{1}{2} [\mathbf{A}\mathbf{A}_0^{-1} + (\mathbf{A}\mathbf{A}_0^{-1})^t] - \mathbf{I} \\ \mathbf{A} = \begin{pmatrix} a & b \cos \gamma & c \cos \beta \\ 0 & b \sin \gamma & -c \sin \beta \cos \alpha^* \\ 0 & 0 & c \sin \beta \sin \alpha^* \end{pmatrix} \end{array} \right. \quad (2.11)$$

où, par analogie avec la matrice  $\mathbf{B}$  de l'équation (A2.4) (annexe A2),  $\mathbf{A}$  est la matrice de passage du réseau de Bravais au repère orthonormé du grain.  $\mathbf{A}_0$  correspond à l'état pris comme référence (maille non déformée) et  $\mathbf{I}$  est la matrice identité.

Un tenseur de contraintes  $\underline{\underline{\sigma}}$  du grain peut être obtenu à partir du tenseur de déformations élastiques  $\underline{\underline{\varepsilon}}^e$  selon la loi de Hooke généralisée. La notation de Voigt est souvent utilisée pour exprimer le module d'élasticité (tenseur d'ordre 4) par une matrice (tenseur d'ordre 2) et exprimer les déformations / contraintes (tenseurs d'ordre 2) par un vecteur (tenseur d'ordre 1). Cela donne :

$$\vec{\varepsilon}^e = \begin{pmatrix} \varepsilon_1^e \\ \varepsilon_2^e \\ \varepsilon_3^e \\ \varepsilon_4^e \\ \varepsilon_5^e \\ \varepsilon_6^e \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \varepsilon_{11}^e \\ \varepsilon_{22}^e \\ \varepsilon_{33}^e \\ 2\varepsilon_{23}^e \\ 2\varepsilon_{13}^e \\ 2\varepsilon_{12}^e \end{pmatrix}, \quad \vec{\sigma} = \begin{pmatrix} \sigma_1 \\ \sigma_2 \\ \sigma_3 \\ \sigma_4 \\ \sigma_5 \\ \sigma_6 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \sigma_{11} \\ \sigma_{22} \\ \sigma_{33} \\ \sigma_{23} \\ \sigma_{13} \\ \sigma_{12} \end{pmatrix}, \quad \vec{\sigma} = \underline{\underline{C}} \vec{\varepsilon}^e \quad (2.12)$$

où  $\underline{\underline{C}}$  est le module d'élasticité en notation de Voigt (tenseur d'ordre 2 de dimension  $6 \times 6$ ).

Enfin, les tenseurs de déformation et de contrainte doivent être exprimés dans le repère cartésien orthonormé de l'échantillon. Pour cela un changement de base est appliqué aux deux tenseurs grâce à la matrice de rotation  $\mathbf{U}$  :

$$\left\{ \begin{array}{l} \underline{\underline{\varepsilon}}^e = \mathbf{U} \underline{\underline{\varepsilon}}^e \mathbf{U}^t \\ \underline{\underline{\sigma}} = \mathbf{U} \underline{\underline{\sigma}} \mathbf{U}^t \end{array} \right. \quad (2.13)$$



### 2.2.6. Conclusion partielle

En résumé, à la fin du traitement des clichés de diffraction obtenus en 3DXRD, chaque grain du polycristal est caractérisé par :

- la position de son centre de masse,
- son volume approximatif, en supposant les grains sphériques,
- son orientation cristallographique,
- le tenseur des déformations élastiques.

Toutefois, comme cela a été présenté en introduction, cela ne permet pas d'avoir accès à la morphologie des grains, ni de déterminer avec exactitude les grains voisins d'un grain donné. Cette information est accessible par la TCD.

## 2.3. Reconstruction de la microstructure 3D par Tomographie à Contraste de Diffraction (TCD)

Le montage expérimental du microscope de TCD a été utilisé pour reconstruire la microstructure tridimensionnelle du volume analysé. La procédure globale peut être divisée en trois étapes principales :

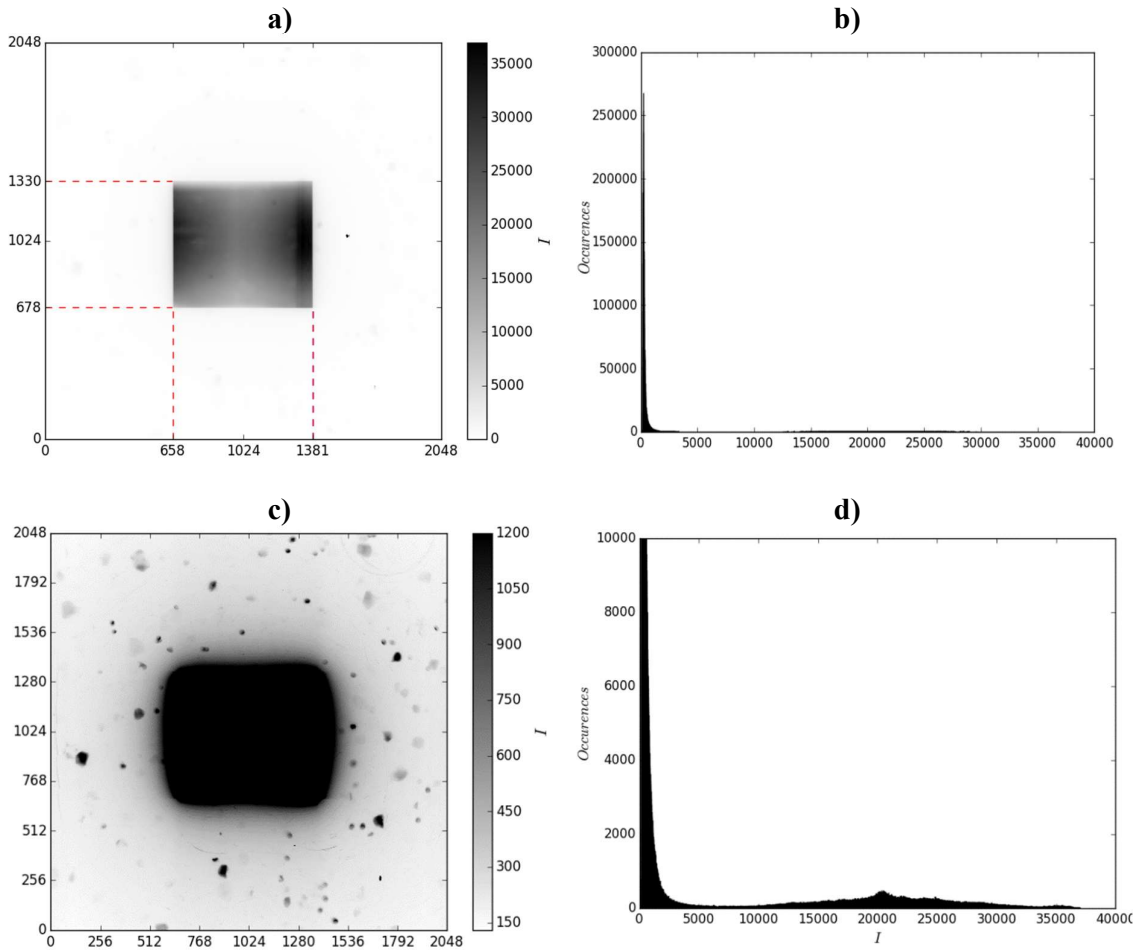
1. le post-traitement et segmentation des images brutes de TCD,
2. l'appariement des paires de Friedel et la mesure d'orientation et de position de grains à partir de l'indexation des paires de Friedel,
3. la reconstruction tridimensionnelle des grains individuels et l'assemblage de la carte de grains 3D pour tout le volume analysé.

Les trois paragraphes suivants décrivent les principales opérations effectuées à chaque étape.

### 2.3.1. Post-traitement et segmentation des images brutes de TCD

La **Figure 2.8** représente un exemple d'image TCD en niveaux de gris à un angle  $\omega$  donné pour l'alliage Cu-Al-Be, en utilisant un détecteur de 2048 x 2048 pixels. Dans la **Figure 2.8a**, le faisceau direct est visible sur le détecteur, donnant ainsi une image d'absorption de l'intensité incidente par l'échantillon. L'histogramme des intensités captées sur l'image TCD est tracé dans la **Figure 2.8b** dans le but d'identifier les différents signaux éventuellement présents. Un grossissement de la **Figure 2.8b** est donné dans la **Figure 2.8d** pour mieux visualiser la distribution des intensités. Cet histogramme montre qu'en plus du signal de forte intensité

provenant du faisceau direct transmis, il y a un signal additionnel de faible intensité. En diminuant l'échelle d'intensité pour l'image TCD donnée en **Figure 2.8a** comme le montre la **Figure 2.8c**, ce signal faible devient bien visible. Il s'agit en effet des intensités diffractées par les grains se trouvant dans les conditions de Bragg, bien identifiables par rapport au niveau de signal du bruit de fond.



**Figure 2.8** Traitement d'une image en niveaux de gris représentant les intensités captées par le détecteur de TCD sur un échantillon d'AMF. a) Image brute de TCD avec tout le spectre d'intensité. b) Distribution des intensités de l'image donnée en a). Une focalisation sur la zone délimitée par un nombre d'occurrences inférieur à 10000 est donnée rectangle en d). c) Spectre des signaux d'intensité faible de l'image en a). d) Distribution des intensités pour un nombre d'occurrences inférieur à 10000.

Ainsi, les images TCD doivent être post-traitées pour identifier les différentes taches et contrastes provenant des interactions faisceau incident – échantillon à chaque pas de rotation.

Les intensités brutes collectées sur l'ensemble des pixels du détecteur sont d'abord corrigées et calibrées ; l'intensité locale transmise normalisée,  $I_{tot}^\omega$ , s'écrit :

$$I_{tot}^\omega = \frac{image^\omega - dark}{flat - dark} \quad (2.14)$$

où *dark* correspond au bruit de fond, *flat* à la correction de champ plat, *image*<sup>ω</sup> à l'intensité brute de l'image TCD acquise à l'angle ω.

Dans un premier temps, la zone d'intérêt est limitée à la zone centrale du détecteur qui délimite le faisceau direct. L'atténuation du faisceau transmis direct par rapport au faisceau incident  $I_0$  peut être décrite par une loi exponentielle faisant intervenir le coefficient d'atténuation  $\mu$  (Ludwig, Schmidt, Lauridsen, & Poulsen, 2008) :

$$I_{tot}^\omega = I_0 \exp \left[ - \int \mu(r) dx \right] \quad (2.15)$$

$$\mu(r) = \mu_{abs}(r) + \mu_{diffr}(r) \quad (2.16)$$

où  $\mu_{abs}$  et  $\mu_{diffr}$  correspondant respectivement à la contribution de l'absorption et de la diffraction au coefficient d'atténuation du signal et  $r$  est le vecteur de position à l'intérieur de l'échantillon, avec la composante  $x$  selon la direction du faisceau.

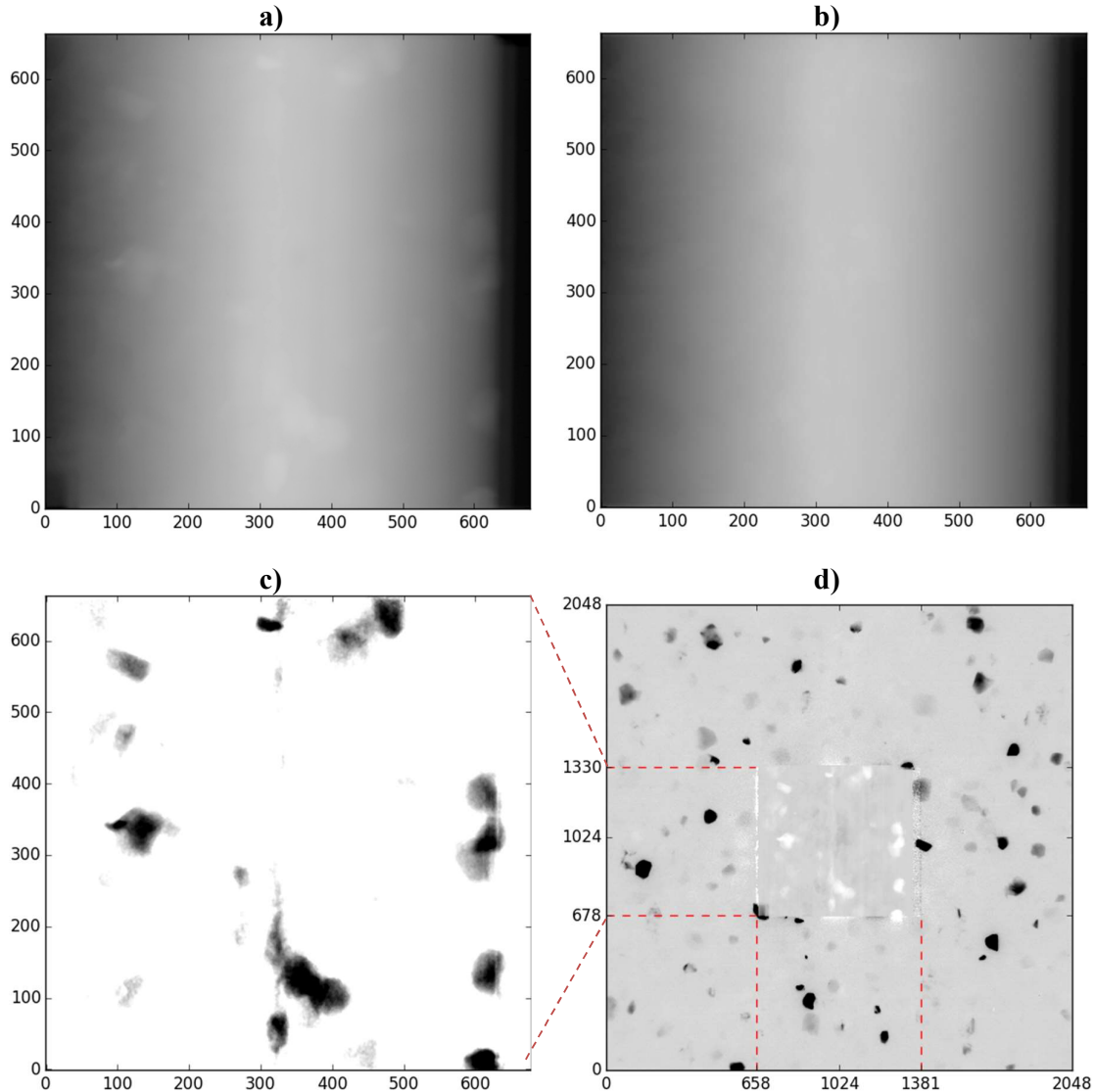
La contribution par diffraction au coefficient d'atténuation d'un grain est nulle sur une partie d'angle de rotation ω où la loi de Bragg n'est pas vérifiée. Lorsqu'il y a diffraction d'un plan ( $hkl$ ), cette contribution est proportionnelle aux facteurs de Lorentz  $L$  et de structure  $F_{hkl}$ . L'intervalle angulaire pour lequel la diffraction contribue significativement au coefficient d'atténuation reste négligeable en comparaison aux 360° de rotation réalisée en TCD. Ainsi, en prenant pixel par pixel l'intensité médiane sur un ensemble assez large de  $(2n + 1)$  images ω adjacentes, on peut minimiser efficacement le gradient de diffraction et obtenir une bonne estimation de l'arrière-plan d'absorption (radiographie) qui ne varie que peu entre les images ω (Ludwig, Schmidt, Lauridsen, & Poulsen, 2008). L'intensité moyenne vaut alors :

$$I_{abs}^\omega \simeq \text{Médiane}_\omega \{ I_{tot}^{\omega-n}, I_{tot}^{\omega-n+1}, \dots, I_{tot}^\omega, \dots, I_{tot}^{\omega+n-1}, I_{tot}^{\omega+n} \} \quad (2.17)$$

$$I_{abs}^\omega \cong \exp \left[ - \int \mu_{abs}(r) dx \right] \quad (2.18)$$

Après avoir calculé l'image d'absorption par l'application du filtre médian dans la dimension  $\omega$  selon l'équation (2.17), une image d'extinction, *i.e.* une projection de la contribution par diffraction à l'atténuation est obtenue simplement par une soustraction logarithmique de l'arrière-plan d'absorption :

$$P_{diff}^{\omega} = -\ln(I_{tot}^{\omega}/I_{abs}^{\omega}) = \int \mu_{diff}(r) dx \quad (2.19)$$



**Figure 2.9** Post-traitement d'une image de TCD de l'échantillon. a) Image de la région centrale contenant le faisceau transmis direct à un  $\omega$  donné. b) Radiographie de l'échantillon, obtenu par filtre médian. c) Projection 2D des grains en taches d'extinction, obtenue par soustraction des images a) et b). d) Image finale avec les deux régions du détecteur. Les niveaux de gris sont inversés sur les 4 images, pour l'impression sur papier.

Enfin, les régions extérieures au faisceau direct sont aussi post-traitées de façon à enlever l'arrière-plan constant de bruit de fond et normaliser les intensités par rapport à la région centrale du faisceau direct. Ainsi pour chaque image brute à un  $\omega$  donné, une image composite est formée par l'habillage de ces deux régions post-traitées. Les résultats de la procédure de post-traitement sont montrés dans la **Figure 2.9**, pour la même image TCD donnée à la **Figure 2.8**.

A la fin du traitement des images, les taches de diffraction et d'extinction sont segmentées pour toutes les images TCD post-traitées et intégrées suivant l'angle de rotation  $\omega$ . La segmentation des taches de diffraction se fait par un double seuillage. Le premier seuillage permet d'identifier une diffraction à travers les pixels adjacents brillants (ayant une intensité supérieure au seuil). Le deuxième seuil est proportionnel à l'intensité même du pixel de façon à faire croître des régions pour arriver à définir le contour d'une tache de diffraction. Cette méthode de segmentation à seuil double permet de tenir compte des écarts en intensité de taches diffractées par un même grain à cause des facteurs de structure et d'absorption d'une tache. Ainsi les taches de diffraction d'un même grain seront de taille similaire proportionnelle uniquement au volume de grain. Un seuil unique aurait donné des taches plus grandes pour les plans ( $hkl$ ) intenses en comparaison aux plans ( $hkl$ ) les moins intenses.

Les taches de diffraction sont additionnées suivant leurs contributions dans les images adjacentes tant qu'elles sont connectées par la même région sur le détecteur 2D. Les taches de diffraction / extinction sont triées, filtrées et reliées entre elles par corrélation d'image, ce qui donne une première liste de grains identifiés uniquement par une projection de leur forme géométrique. Les éventuels chevauchements de taches, venant de grains d'orientations proches et se trouvant dans la même section transversale, seront filtrés à travers les étapes successives d'indexation et de reconstruction 3D.

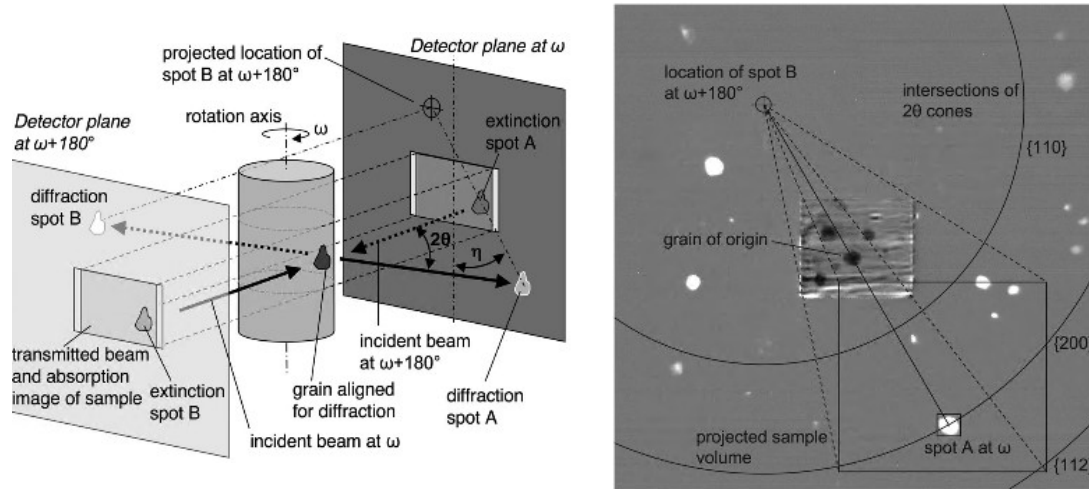
### 2.3.2. Indexation par symétrie des paires de Friedel

Les opérations initiales de segmentation et de corrélation d'image n'utilisent pas d'informations cristallographiques. Les taches de diffraction sont alors assemblées en paires de Friedel pour faciliter l'indexation et l'affinage des orientations et position des grains dans l'échantillon.

Les paires de Friedel sont les diffractions  $hkl$  et  $\overline{hkl}$  appartenant au même grain, provenant d'un plan réticulaire qui vérifie la condition de Bragg et se manifestant à  $180^\circ$  d'écart en  $\omega$ . En

l'absence de déformation, les deux taches de diffraction composant la paire ont également une information spatiale identique (forme, taille).

Pour faciliter la visualisation des paires de Friedel, il convient de fixer le référentiel lié à l'échantillon et de transposer sa rotation au faisceau incident et au détecteur à champ proche comme représenté dans la **Figure 2.10**.



**Figure 2.10** Représentation de la géométrie de diffraction d'une paire de Friedel sur le détecteur 2D (spot A) et sur un détecteur imaginaire (spot B) (Ludwig, et al., 2009).

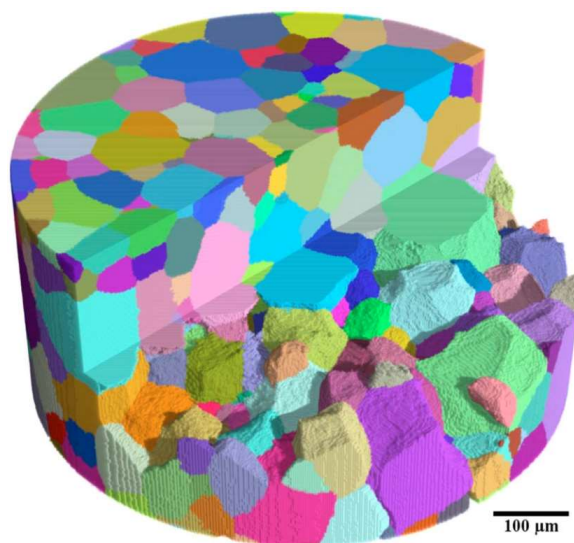
Comme le montre la **Figure 2.10**, la position du grain et le vecteur de diffraction peuvent être obtenus grâce aux paires de Friedel. Le centre de masse 2D du grain est positionné à mi-distance entre le centre de masse des deux taches de diffraction. Les angles de diffraction  $2\theta$  et  $\eta$  sont également calculés à partir des barycentres. Ceci permet de calculer le vecteur de diffraction et la famille de plans  $\{hkl\}$  diffractants en introduisant les informations cristallographiques de la phase d'intérêt (symétrie, paramètre de maille unitaire) et les paramètres globaux du montage.

Une fois les paires de Friedel identifiées, une routine robuste d'indexation itérative « Indexter » (Ludwig, et al., 2009) est exécutée en exploitant à la fois les informations cristallographiques et les informations spatiales des différentes paires de Friedel. Des critères statistiques d'affinage et de rejet des valeurs aberrantes sont utilisés et mis à jour à chaque itération. La procédure détaillée est décrite dans la littérature (Ludwig, et al., 2009) (Reischig, et al., 2013).

### 2.3.3. Reconstruction tridimensionnelle du volume

Après l'indexation, la forme tridimensionnelle de chaque grain est reconstruite par des techniques de reconstruction algébrique 3D « ARTs » (Kak & Slaney, 1988) ainsi que par l'algorithme SIRT faisant partie de la bibliothèque open source ASTRA (Van Aarle, et al., 2015). La procédure est appliquée pour chaque grain séparément en se basant sur les projections de ses taches de diffraction. La reconstruction est généralement réalisée à partir des taches de diffraction au lieu des taches d'extinction notamment pour limiter les cas de chevauchements (Ludwig, Schmidt, Lauridsen, & Poulsen, 2008).

A la fin de la reconstruction de la forme 3D des grains individuels, une carte de grains 3D est assemblée en tenant compte de la position des barycentres des grains dans le volume analysé et le radiographe d'absorption de ce dernier. Des opérations morphologiques 3D de dilatation et d'érosion sont utilisées pour combler les voxels non indexés ou corriger les voxels en conflit d'indexation et enlever les éventuels artefacts.



**Figure 2.11** Microstructure 3D d'un volume cylindrique d'alliage  $\beta$ -Ti contenant 1008 grains reconstruits par TCD (Ludwig, Schmidt, Lauridsen, & Poulsen, 2008).

Comme le montre l'exemple de la **Figure 2.11**, la TCD permet d'obtenir une microstructure 3D de volumes contenant un large nombre de grains de différentes tailles. La même méthodologie a été utilisée dans cette étude et les résultats sont présentés dans le chapitre 3.

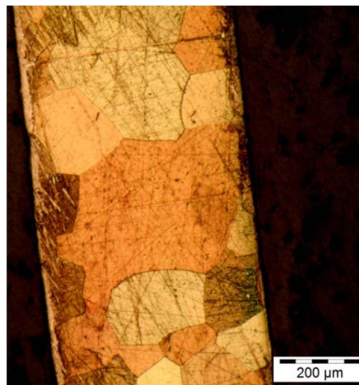
## 2.4. Démarche expérimentale

Les deux techniques présentées ont été appliquées pour étudier le comportement superélastique d'un alliage à mémoire de forme Cu-Al-Be ; celui-ci est présenté dans le paragraphe suivant. Pour terminer ce chapitre 2, la démarche globale de cette étude est introduite.

### 2.4.1. Matériau de l'étude

L'alliage étudié est un alliage à mémoire de forme Cu-Al-Be qui contient 87,9% du cuivre, 11,5% d'aluminium et 0,6% de béryllium. L'échantillon de l'étude se présente sous la forme d'un fil cylindrique de diamètre 0,86 mm, obtenu par un tréfilage à froid. Le diamètre du fil a été dimensionné en fonction des contraintes expérimentales des techniques 3DXRD et DCT. En effet, la taille de l'échantillon et la taille de grains doivent respecter certaines conditions relatives au mode opératoire de la 3DXRD présentée précédemment. Aussi, afin de limiter le nombre de grains dans le volume analysé, un traitement thermique de bétatisation a été réalisé pendant cinq minutes à 700°C, suivi d'une trempe à l'eau.

La microstructure a été observée par microscopie optique sur une coupe métallographique après polissage (papier et solution diamantée), suivi d'une attaque chimique au Mi14. Le résultat obtenu est reporté dans la **Figure 2.12**. La taille de grains moyenne est de 130  $\mu\text{m}$ .



**Figure 2.12** Observation de la microstructure du fil cylindrique de l'alliage Cu-Al-Be par microscope optique

La température théorique de début de transformation martensitique  $M_s$  est de -100°C. L'échantillon est donc 100% austénitique à température ambiante. Afin d'obtenir différentes tailles de grains, des traitements thermiques à 640°C et 680°C ont été réalisés ; toutefois, dans la suite de ce manuscrit, tous les résultats présentés ne concernent que l'échantillon traité à 700°C. Les résultats sur les autres échantillons sont présentés en **Annexe 3**.



### 2.4.2. Démarche de l'étude

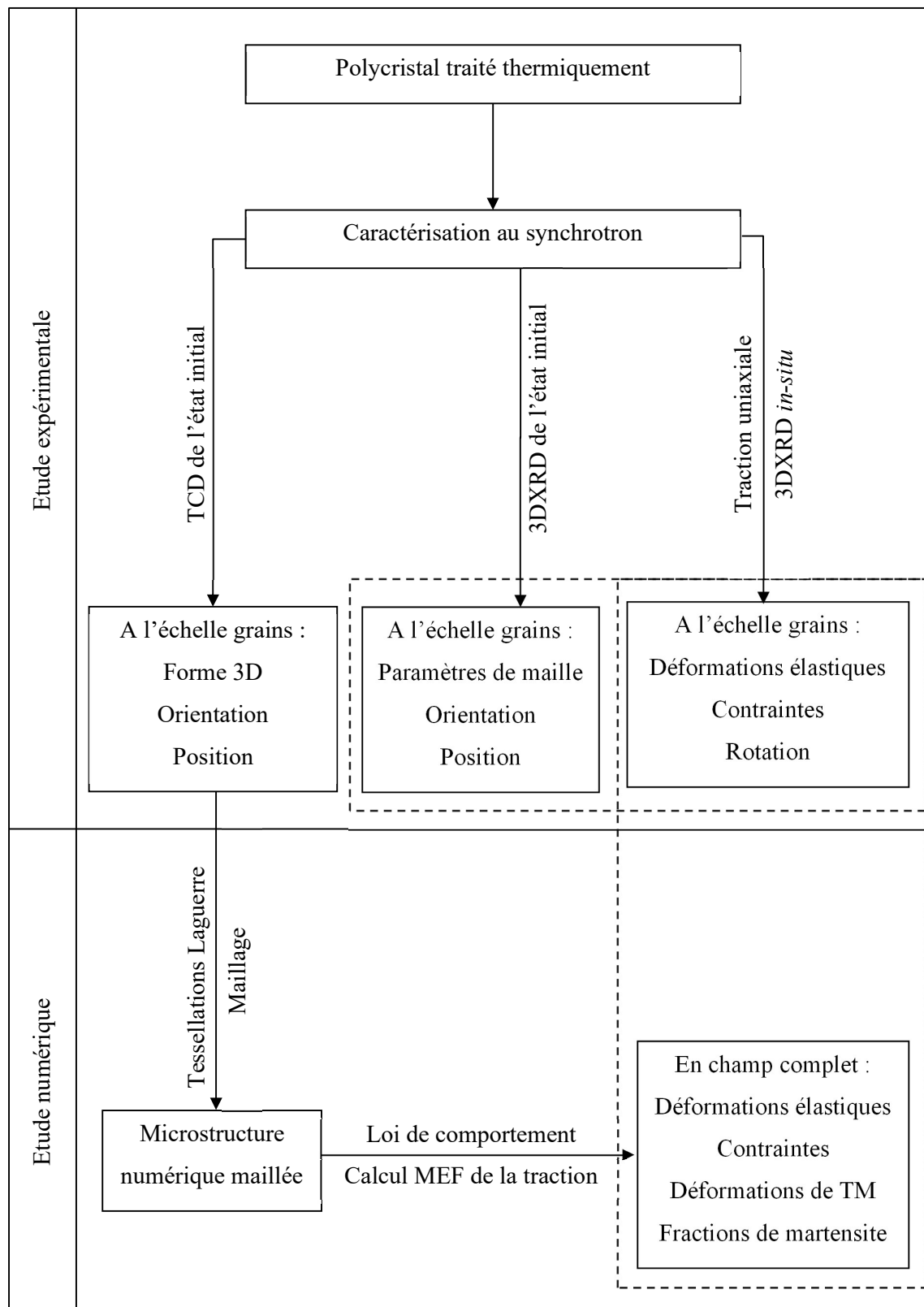
L'étude du comportement superélastique réalisée comprend deux volets : dans un premier temps, elle a été faite expérimentalement lors d'un essai de traction *in-situ* en utilisant les deux techniques synchrotron ; dans un deuxième temps, le polycristal a été simulé en utilisant la méthode des éléments finis. La **Figure 2.13** résume la procédure expérimentale et numérique mise en œuvre. La caractérisation expérimentale a été réalisée en deux étapes :

- a. Caractérisation de la microstructure initiale au synchrotron par TCD et 3DXRD afin d'avoir à la fois la microstructure 3D initiale et les propriétés moyennées de chaque grain avant le chargement superélastique ; notamment les paramètres de maille de référence.
- b. Caractérisation *in-situ* de la phase austénitique par 3DXRD lors d'un chargement superélastique uniaxial : les tenseurs de déformation élastique,  $\underline{\underline{\varepsilon}}^e$ , et de contraintes,  $\underline{\underline{\sigma}}$ , ont été obtenus pour chacun des grains austénitiques à chaque pas de chargement.

Puis ces résultats expérimentaux ont été introduits dans une simulation de l'essai de traction superélastique par la MEF. Cela a été fait en deux étapes principales :

- a. Maillage de la microstructure 3D (orientation et morphologie des grains) obtenue par la TCD : le volume est transformé en une microstructure 3D numérique par une modélisation géométrique. Il est ensuite discrétisé en un maillage d'éléments finis.
- b. Simulation d'un essai de traction uniaxial appliquée à la microstructure 3D numérique maillée : une loi de comportement thermomécanique de l'AMF a été implémentée dans le code de calcul par éléments finis Abaqus® utilisé via la fonctionnalité UMAT. Cette loi a été appliquée à chaque élément fini du maillage, sous un chargement et des conditions aux limites proches de l'essai expérimental.

Aussi, le chapitre 3 est consacré à la présentation des résultats expérimentaux. Après avoir défini les principales étapes du modèle dans le chapitre 4, les résultats de la simulation numérique sont confrontés aux résultats expérimentaux dans le chapitre 5.



**Figure 2.13** Démarche expérimentale et numérique de l'étude.

# 3. Post-traitement et méthodologies de suivi des grains individuels d'austénite durant la traction

3. Post-traitement et méthodologies de suivi des grains individuels d'austénite durant la traction.....	67
Introduction .....	69
3.1. Analyse de la microstructure initiale.....	69
3.1.1. Détermination des propriétés moyennes par grain en 3DXRD.....	69
3.1.2. Reconstruction tridimensionnelle de la microstructure par TCD.....	73
3.1.3. Comparaison des résultats de la 3DXRD et de la TCD à l'état initial .....	75
3.2. Essai de traction in-situ .....	78
3.2.1. Conditions expérimentales et d'indexation .....	78
3.2.2. Post-traitement et analyse des données d'indexation à l'état initial.....	81
3.2.3. Approches d'indexation et de suivi des grains au cours de la traction.....	85
3.2.4. Comparaison des méthodes d'indexation et de suivi des grains .....	87
3.2.5. Optimisation de la procédure d'indexation .....	90
3.3. Suivi de déformations et de contraintes moyennes sur les grains .....	95
3.3.1. Détermination du paramètre de maille non contraint.....	96
3.3.2. Comportement mécanique à l'échelle macroscopique.....	97
3.3.3. Comportement mécanique à l'échelle mésoscopique.....	98
Conclusion.....	104



## Introduction

Ce chapitre décrit l'analyse des données expérimentales de diffraction à haute énergie suite à l'essai de traction uniaxiale. L'analyse est effectuée en deux étapes. En premier lieu, les propriétés de la microstructure initiale à l'état non chargé (maille unitaire, orientation et forme en 3D des grains d'austénite du volume analysé) sont identifiées à partir des données de la 3DXRD et de la TCD. Ensuite, l'évolution du comportement des grains austénitiques individuels est quantifié grâce à la 3DXRD *in-situ*, par des acquisitions successives lors du chargement uniaxial appliqué. Pour cela, deux stratégies ont été testées et sont comparées dans ce chapitre.

### 3.1. Analyse de la microstructure initiale

L'éprouvette de traction a été analysée par 3DXRD et TCD avant qu'elle ne soit montée dans la machine de traction : en effet, les mesures en TCD nécessitent de positionner l'échantillon à une distance très faible du détecteur et de le faire tourner de  $360^\circ$  en  $\omega$ . Ces deux conditions ne peuvent être remplies avec l'échantillon positionné dans la machine de traction. L'objectif est d'obtenir à la fois la microstructure 3D initiale de la zone analysée et les propriétés cristallographiques moyennes des grains individuels (orientation cristallographique, paramètres de maille) avant le chargement superélastique.

#### 3.1.1. Détermination des propriétés moyennes par grain en 3DXRD

##### 3.1.1.1. Conditions expérimentales

L'analyse par 3DXRD a été effectuée sur l'éprouvette Cu-Al-Be cylindrique de diamètre de  $860\ \mu\text{m}$  et de longueur de  $33\ \text{mm}$ . Un faisceau de  $65,3\ \text{KeV}$  a servi à caractériser un volume de l'éprouvette sur une hauteur de  $700\ \mu\text{m}$  et sur l'intégralité du diamètre, la largeur du faisceau étant de  $1\ \text{mm}$ . Un pas d'intégration  $\delta\omega$  de  $0,25^\circ$  sur un intervalle de rotation de  $360^\circ$  autour de l'axe de rotation  $\omega$  a permis l'acquisition de 1440 images de diffraction, sur le détecteur (FReLoN, développé à l'ESRF) situé à  $242\ \text{mm}$  de l'échantillon. Grâce à ces paramètres expérimentaux 11 anneaux entiers de Debye-Scherrer ont été enregistrés dans chacune des 1440 images.

Les images de 3DXRD ont été analysées selon la procédure de post-traitement et d'indexation détaillée dans le chapitre 2. La maille cubique à faces centrées de la phase austénitique du Cu-Al-Be ( $a_0 = 5,81\ \text{\AA}$ ) a été introduite pour calculer les angles de diffraction théoriques de

l'austénite et initialiser son indexation. A partir des paramètres du montage décrit précédemment et de la maille élémentaire introduite, les angles de diffraction calculés selon la loi de Bragg sont donnés dans le **Tableau 3.1**. Rappelons que seuls les plans pour lesquels les indices h, k, l sont de même parité sont susceptibles de diffracter.

**Tableau 3.1** Plans diffractants de l'austénite enregistrés sur le détecteur 2D pour une longueur d'onde  $\lambda = 0,19 \text{ \AA}$  (65,3 KeV).

$\{hkl\}$	Multiplicité	$2\theta$ (°)
{111}	8	3,244
{200}	6	3,746
{220}	12	5,299
{311}	24	6,214
{222}	8	6,491
{400}	6	7,496
{331}	24	8,170
{420}	24	8,383
{422}	24	9,184
{511} (ou {333})	32	9,743
{440}	12	10,609

Le nombre théorique de pics par grain,  $N_{max}$ , est donc égal à 360 selon l'équation (2.5).

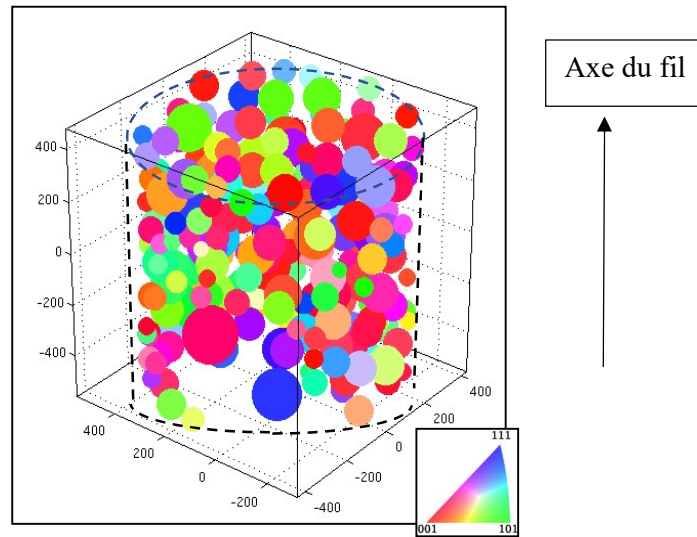
Les orientations cristallographiques et les paramètres de maille affinés sont obtenus pour chaque grain à partir des matrices **UBI** à la fin de l'indexation. De même, le volume de chaque grain et la position de son centre de masse dans l'échantillon sont déterminés à la fin de la procédure. En effet, le volume de grain est linéairement proportionnel aux intensités diffractées par différents plans réticulaires du grain. Pour limiter les dispersions liées aux différences en complétudes et aux facteurs de structure, le volume a été calculé en prenant la valeur médiane des intensités des pics {400} indexés au grain, normalisés par le facteur de Lorentz :

$$\left\{ \begin{array}{l} V^i = \frac{\text{Médiane}(I_{\{400\}}^i \times L_{\{400\}}^i)}{\sum_N \text{Médiane}(I_{\{400\}} \times L_{\{400\}})} \times V \\ \mathcal{J}^i = \sqrt[3]{6/\pi V^i} \end{array} \right. \quad (3.1)$$

où  $V^i$  est le volume du grain  $i$  par rapport au volume  $V$  analysé,  $\mathcal{T}^i$  est la taille équivalente (diamètre) en supposant une forme sphérique.  $I$  et  $L$  correspondent respectivement à l'intensité du pic et à son facteur de Lorentz. La somme est effectuée sur les  $N$  grains dans le volume  $V$ .

### 3.1.1.2. Résultats

Au total, 187 grains d'austénite ont été indexés dans le volume analysé. La **Figure 3.1** présente la carte de grains obtenue. Chaque grain est représenté par une sphère dont le centre correspond à la position du barycentre du grain et le diamètre est proportionnel à la taille de grain. L'orientation des grains est représentée par la couleur de la sphère qui correspond à la figure de pôles inverses suivant l'axe de l'éprouvette cylindrique.



**Figure 3.1** Représentation de la microstructure initiale obtenue par la 3DXRD. Le centre d'une sphère est la position barycentre du grain, son diamètre est la taille de grain, et sa couleur est l'orientation cristallographique par rapport à l'axe de l'éprouvette cylindrique.

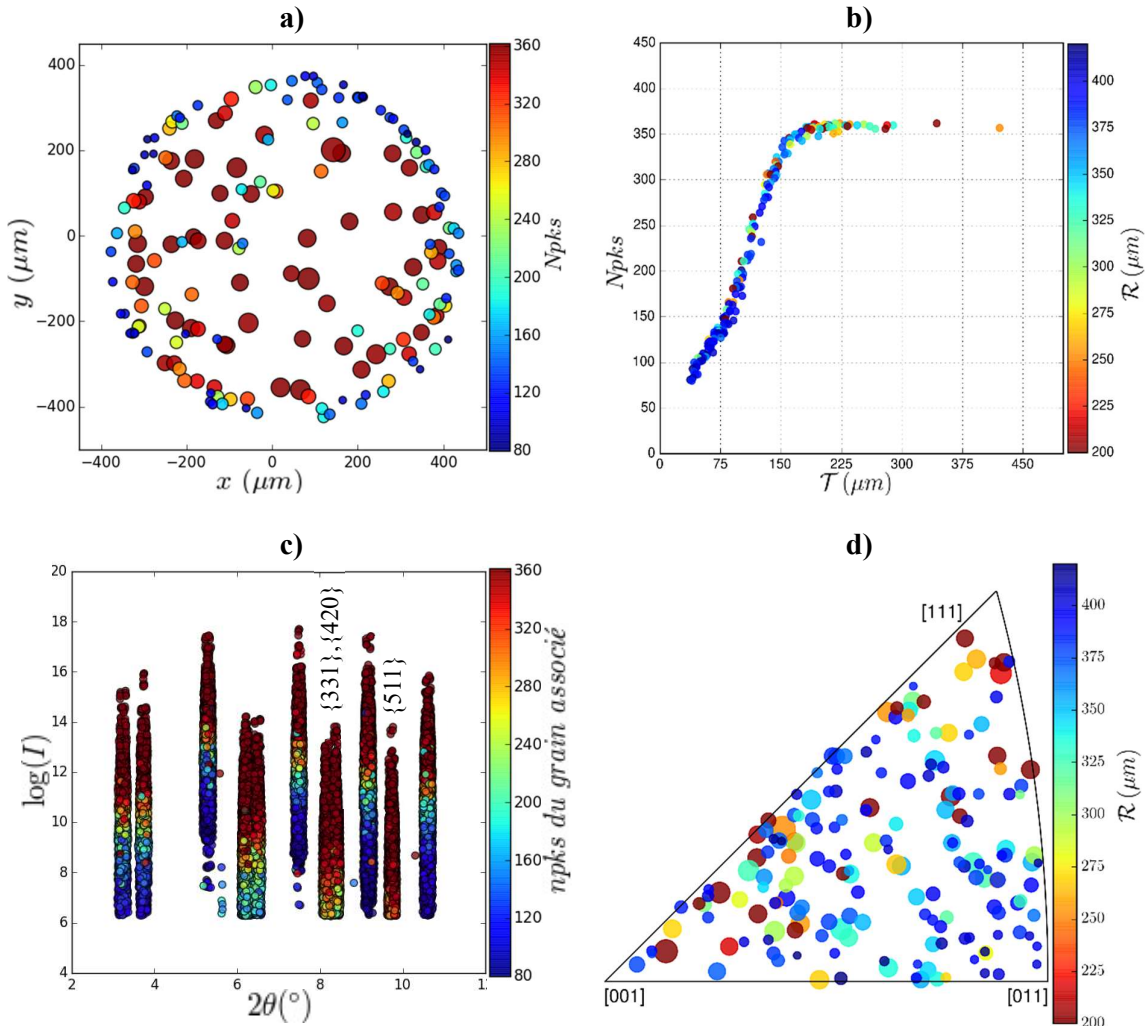
Une analyse des données à l'issue de l'indexation a été effectuée pour caractériser les propriétés moyennes des grains individuels. Cette analyse est réalisée en termes de :

- tailles de grains  $\mathcal{T}$ ,
- nombre de pics indexés au grain  $Npks$ ,
- distances des barycentres par rapport à l'axe de l'éprouvette (distance radiale  $\mathcal{R}$ ),
- paramètres de maille (volume de la maille),
- orientations cristallographiques.

La **Figure 3.2** présente l'ensemble de ces propriétés ainsi que les corrélations entre elles.

En moyenne, la taille de grains est égale à  $120 \mu\text{m}$ , ce qui est assez proche de l'observation expérimentale par microscope optique. A partir de la **Figure 3.2a**, on remarque que :

- les grains du volume intérieur sont plus gros que les grains en surface ;
- les gros grains ont environ 360 pics et donc une complétude de 100% ;
- le nombre de pics des petits grains, proches de la surface, diminue remarquablement. Leur complétude est comprise entre 25% et 50%.



**Figure 3.2** Propriétés des grains à l'état initial par 3DXRD. a) Positions radiales des grains (projection sur un plan XY). La taille des cercles correspond à  $T$ , b) Nombre de pics indexés  $N_{pks}$  en fonction de la taille de grain  $T$  – Mise en évidence de l'influence de la distance radiale  $R$ . c) Relation entre  $N_{pks}$  du grain (couleur du pic) et l'intensité de ses pics. Chaque cercle correspond à un pic. d) Orientation cristallographique des grains (chacun est représenté par un cercle de diamètre proportionnel à  $T$ ) –représentation de l'influence de la distance radiale  $R$ .



Ces tendances sont détaillées dans la **Figure 3.2-b**. En effet, les grains ayant une taille supérieure à 150  $\mu\text{m}$  ont un nombre de pics indexés plus ou moins égal au nombre de pics théorique, i.e. 360 pics. Cependant, pour les grains moyens à petit ( $\mathcal{T} > 150 \mu\text{m}$ ), le nombre  $N_{pks}$  décroît de façon linéaire avec  $\mathcal{T}$ . Les plus petits grains ( $\mathcal{T} < 100 \mu\text{m}$ ) sont les grains les plus proches de la périphérie du cylindre ( $\mathcal{R} > 350 \mu\text{m}$ ) et les plus faibles en termes de complétude ( $N_{pks} < 200$ ). La force motrice lors de la croissance de grains n'est donc pas la même entre la surface et le cœur de l'éprouvette.

La **Figure 3.2-c** représente l'intensité des pics en fonction de leur position  $2\theta$ . La couleur de chaque pic correspond au nombre de pics indexés du grain qui lui est associé. On note que les grains de faible  $N_{pks}$  n'ont pratiquement pas de pics {331}, {420} et {511} indexés (anneaux les moins intenses à  $2\theta$  entre  $8,1^\circ$  et  $8,4^\circ$  et  $2\theta$  proche de  $9,7^\circ$ ). En effet, ces plans réticulaires ont des faibles intensités relatives, à tel point qu'elles peuvent être au niveau du bruit de fond pour les plus petits grains et ne sont pas détectées lors de la segmentation des intensités. Donc le nombre de pics indexés baisse pour les petits grains proches de la surface ; d'autre part, leur faible intensité va générer une incertitude plus élevée sur la détermination de la position du pic, et donc sur le calcul des déformations élastiques.

Enfin, la **Figure 3.2-d** représente l'orientation des 187 grains sur une figure de pôles inverses suivant l'axe Z de l'éprouvette. Elle montre clairement l'absence d'orientation préférentielle et l'absence de corrélation entre l'orientation des grains et les caractéristiques  $\mathcal{R}$  et  $\mathcal{T}$ .

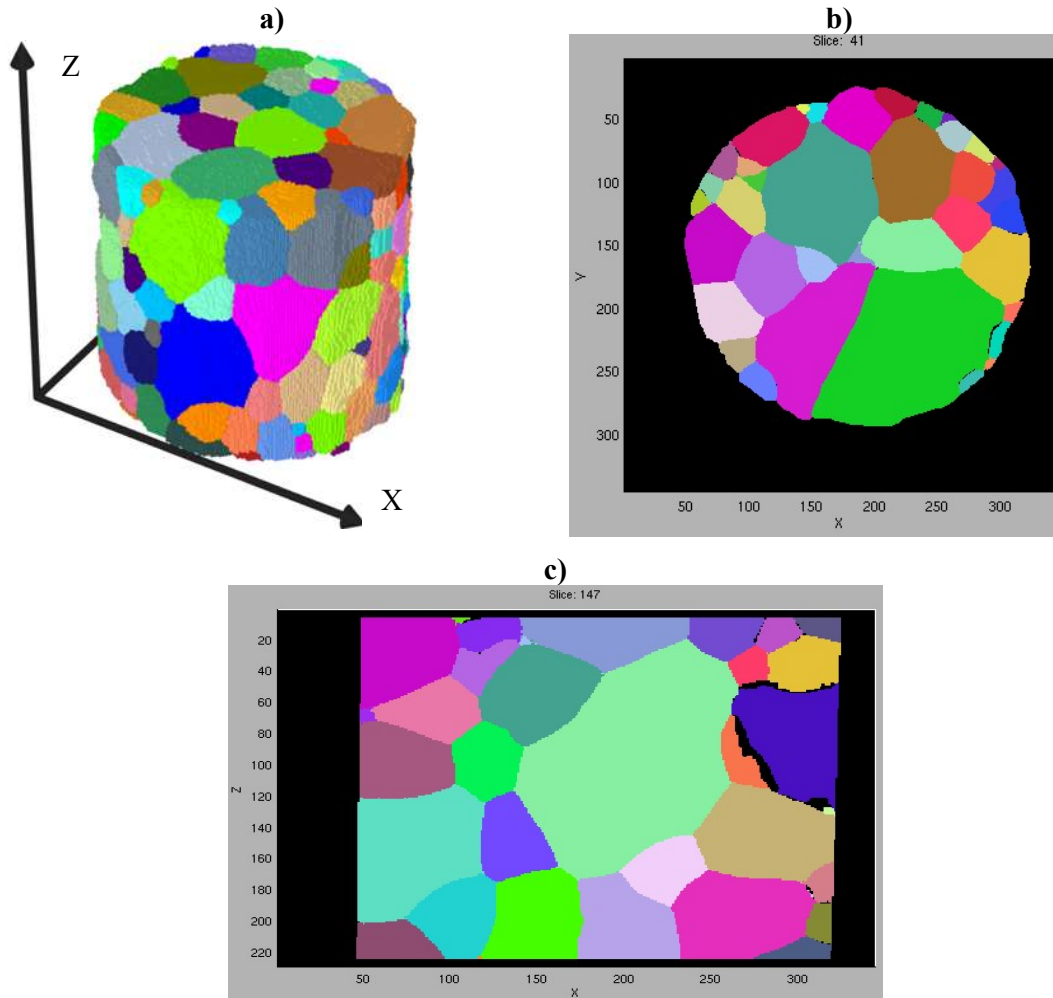
### 3.1.2. Reconstruction tridimensionnelle de la microstructure par TCD

Une caractérisation par TCD de l'état initial de l'éprouvette a été réalisée en utilisant le même faisceau incident (65,3 KeV et avec une hauteur de 700  $\mu\text{m}$ ). Un pas d'intégration  $\delta\omega$  de  $0,1^\circ$  sur un intervalle de rotation de  $360^\circ$  a permis l'acquisition de 3660 images de diffraction. Cette fois-ci, l'acquisition a été réalisée sur un détecteur 2D placé à 10 mm de l'échantillon et de taille de pixels de 3,1  $\mu\text{m}$ .

L'objectif de la mesure TCD est d'accéder à la forme tridimensionnelle des grains austénitiques et des joints de grains formant la microstructure. La **Figure 3.3** présente le résultat de la reconstruction par TCD des 187 grains austénitiques.

Les coupes « XY » et « XZ » données dans les figures **Figure 3.3-b** et **Figure 3.3-c** montrent que la reconstruction est suffisamment complète. Il y a très peu de voxels vides entre les grains

reconstruits en 3D. Il y a un nombre important de petits grains en périphérie de l'éprouvette ayant une surface libre.

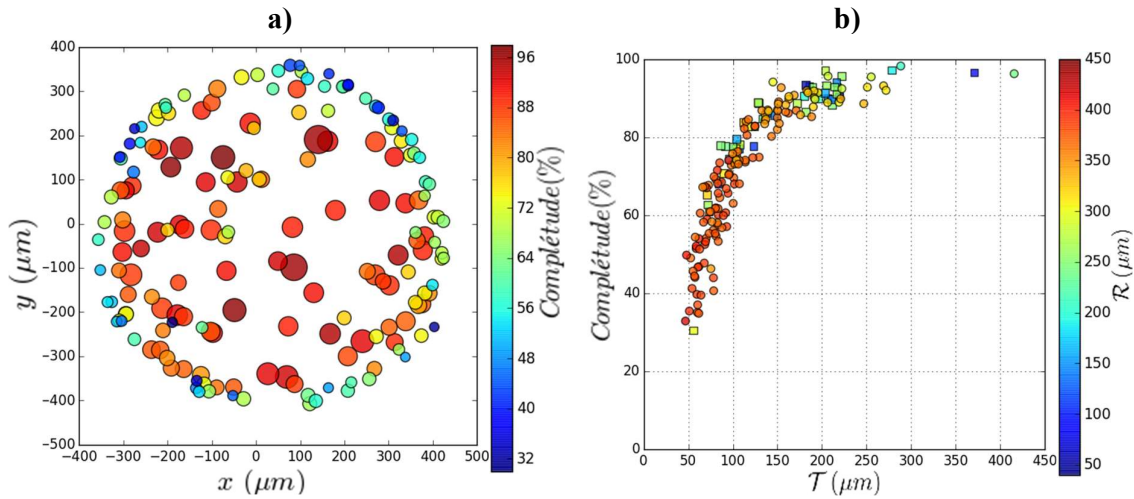


**Figure 3.3** Reconstruction de la microstructure initiale par TCD. **a)** Image voxelisée des 187 grains indexés et reconstruits en 3D. **b)** Coupe normale à l'axe de l'éprouvette. **c)** Coupe parallèle à l'axe de l'éprouvette. Les couleurs sont aléatoires. L'unité sur les axes X, Y et Z est le numéro de pixel.

De façon similaire à l'analyse réalisée en 3DXRD, les corrélations entre les propriétés de grains ( $Npks$ ,  $\mathcal{R}$  et  $\mathcal{T}$ ) ont été étudiées. L'ensemble des résultats est représenté dans la **Figure 3.4**.

Les volumes de grains sont obtenus directement par le nombre de voxels formant la géométrie 3D du grain multiplié par le volume d'un voxel élémentaire (résolution de l'image reconstruite). Ensuite, les tailles équivalentes de grains  $\mathcal{T}$  sont obtenues à partir des volumes en approximant la forme des grains à des sphères de même volume.

Les mêmes tendances générales mises en exergue par la 3DXRD (Figure 3.2-a et Figure 3.2-b) sont observées en TCD comme le montre la Figure 3.4.



**Figure 3.4** Propriétés des grains à l'état initial par TCD. **a)** Positions radiales des grains. La taille des cercles correspond à  $\mathcal{T}$ . **b)**  $\mathcal{T}$ ,  $\mathcal{R}$  et  $Npks$  (complétude). Les grains n'ayant aucun voxel sur la surface de l'éprouvette (pas de surface libre) sont représentés par des carrés.

On note néanmoins une augmentation des volumes des petits grains de surface en TCD et une amélioration de leur complétude par rapport à la 3DXRD. Une comparaison quantitative 3DXRD – TCD est présentée dans le paragraphe suivant.

### 3.1.3. Comparaison des résultats de la 3DXRD et de la TCD à l'état initial

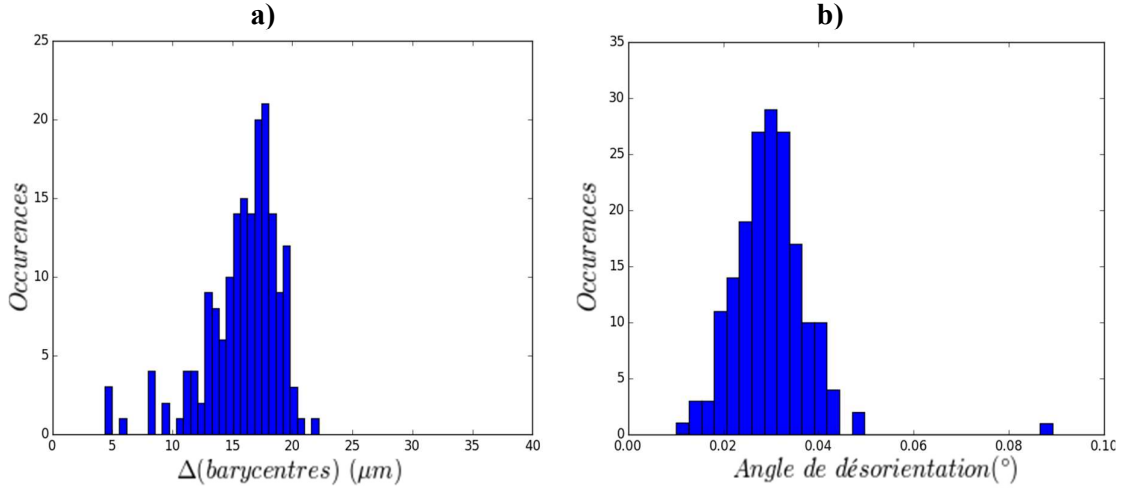
Une étude comparative de la microstructure obtenue par 3DXRD et celle obtenue par TCD a été réalisée. Les grains indexés par les deux mesures ont été comparés suivant leurs positions spatiales (position des barycentres), leurs orientations cristallographiques et leurs tailles  $\mathcal{T}$ . Pour cela, une procédure numérique a été développée pour relier les grains dans les deux jeux de données et enlever le mouvement de corps rigide entre la mesure en TCD et celle en 3DXRD.

Pour quantifier l'écart en position spatiale, la distance euclidienne entre barycentres de paires de grains reliés a été utilisée. Quant à l'écart en orientation, l'angle de désorientation entre le grain de TCD et son équivalent de 3DXRD a été calculé. L'angle de désorientation est la différence entre deux orientations cristallographiques  $A$  et  $B$ , exprimée par un angle de rotation  $\beta$  autour d'un axe défini par son vecteur unitaire directeur  $\vec{r}$  :

$$\left\{ \begin{array}{l} \Delta^{AB}(i) = O_i U_A U_B^{-1} \\ \cos \beta(i) = \frac{\Delta_{11}^{AB}(i) + \Delta_{22}^{AB}(i) + \Delta_{33}^{AB}(i) - 1}{2} \\ \vec{r}(i) = \frac{1}{2 \sin \beta(i)} \begin{pmatrix} \Delta_{23}^{AB}(i) - \Delta_{32}^{AB}(i) \\ \Delta_{31}^{AB}(i) - \Delta_{13}^{AB}(i) \\ \Delta_{12}^{AB}(i) - \Delta_{21}^{AB}(i) \end{pmatrix} \end{array} \right. \quad (3.2)$$

où  $U_A$  et  $U_B$  sont les matrices  $U$  d'orientation cristallographique suivant l'équation (2.6) ; tandis que  $O_i$  est un opérateur de symétrie, c'est-à-dire les  $i$  matrices permettant d'exprimer les  $i$  rotations menant à des symétries cristallographiquement équivalentes (24 symétries dans le cas cubique). L'angle  $\beta$  retenu correspond à l'angle le plus petit parmi les valeurs  $\beta(i)$ .

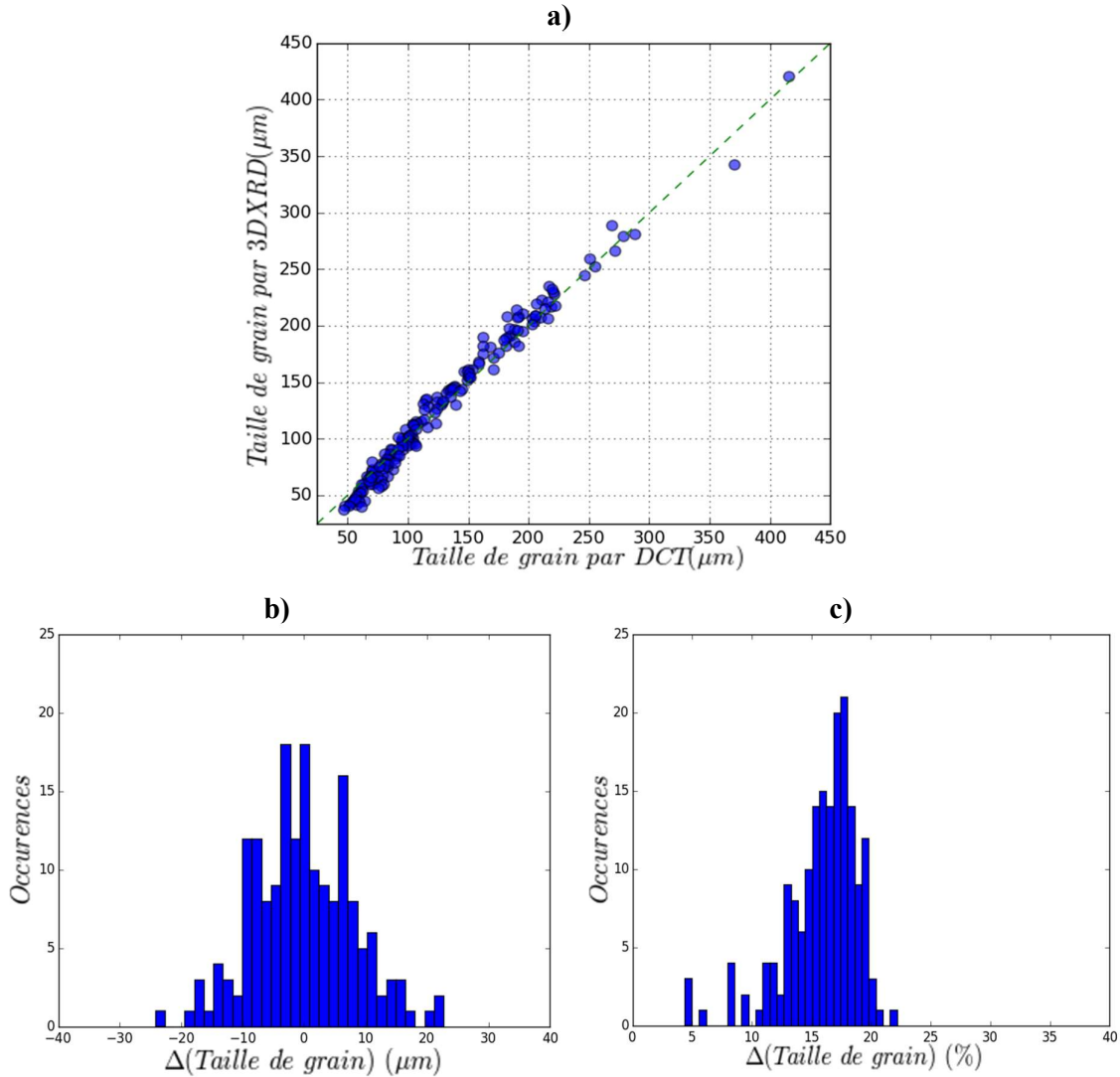
Les résultats des comparaisons sont résumés dans la **Figure 3.5** et la **Figure 3.6**.



**Figure 3.5** Comparaison des résultats de TCD et de 3DXRD à l'état initial. Distribution des écarts en position spatiale (a) et en orientation cristallographique (b).

La distribution de la différence en termes de positions de grains est donnée à la **Figure 3.5-a**. Sa valeur moyenne est égale à 16  $\mu\text{m}$ , c'est-à-dire 12% de la taille moyenne de grains et environ 30% de la taille du plus petit grain, ce qui donne un niveau de précision acceptable. En plus des différences liées aux méthodes de segmentation d'intensités et d'indexation en 3DXRD et en TCD, les imperfections du mouvement mécanique de l'échantillon (table de rotation) contribuent également aux écarts de position, en particulier dans le plan XY normal à l'axe de rotation. Les positions de la TCD sont plus précises et la différence vient surtout des données 3DXRD où la résolution spatiale (forme 3D des grains) est faible. De même, l'histogramme des

désorientations est donné dans la **Figure 3.5-b**. Les angles de désorientation sont très faibles et ont une moyenne de  $0,03^\circ$ . La désorientation maximale observée est de  $0,09^\circ$ , ce qui correspond au pas d'intégration de TCD fixé à  $0,1^\circ$  ( $0,25^\circ$  en 3DXRD). La TCD à petit pas d'intégration permet une mesure d'orientation aussi précise que la 3DXRD.



**Figure 3.6** Comparaison des résultats de TCD et de 3DXRD à l'état initial. **a)** Taille de grains  $\mathcal{T}$  pour chacune des deux mesures. **b)** Distribution de l'écart absolu en  $\mathcal{T}$ . **c)** Distribution de l'écart en  $\mathcal{T}$  relativement à la taille de grain par TCD.

Les tailles de grains obtenues par TCD et par 3DXRD sont tracées sur la **Figure 3.6-a**, la droite tracée en pointillés verts définissant une corrélation parfaite. Une très bonne correspondance est observée entre les deux mesures. Cependant, la 3DXRD tend à sous-estimer davantage la

taille des petits grains ( $\mathcal{T} < 100 \mu\text{m}$ ) du fait du seuil de segmentation appliqué au signal de diffraction.

Les déviations absolues et relatives en  $\mathcal{T}$  sont données dans les **Figure 3.6-b** et **Figure 3.6-c** respectivement. Les écarts sont inférieurs à  $16 \mu\text{m}$  pour la quasi-totalité des 187 grains. Relativement à la taille de grain TCD, les écarts sont inférieurs à 10% pour la majorité des grains, notamment les moyens et gros grains ( $\mathcal{T} > 100 \mu\text{m}$ ), et ce malgré l'hypothèse de grains sphériques. Les volumes de grains obtenus par TCD ont été retenus pour la suite de l'analyse.

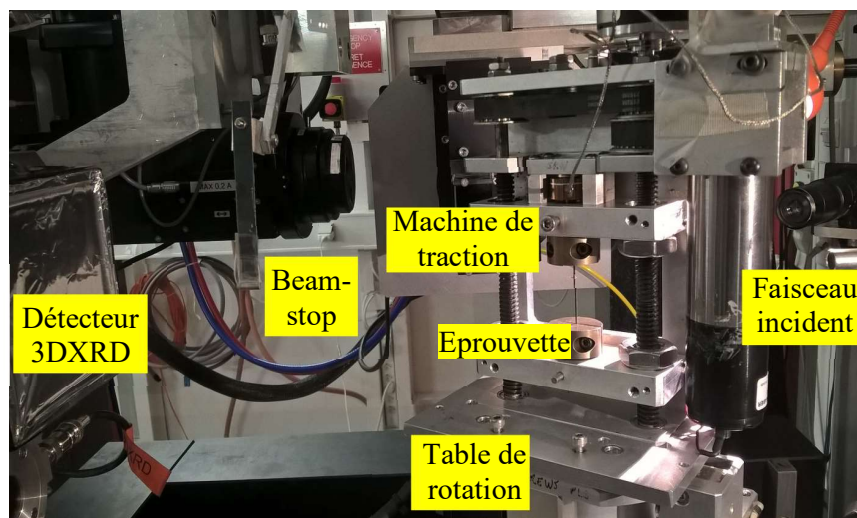
En conclusion, il y a une correspondance satisfaisante entre les deux mesures TCD et 3DXRD. Cela est en accord avec la littérature : des résultats similaires de comparaison 3DXRD – TCD ont été obtenus dans une étude sur des alliages de titane / magnésium de structures hexagonales (Nervo, 2015) ainsi que dans une étude sur un polycristal d'aluminium (Renversade, 2016).

## 3.2. Essai de traction in-situ

### 3.2.1. Conditions expérimentales et d'indexation

#### 3.2.1.1. Montage de diffraction

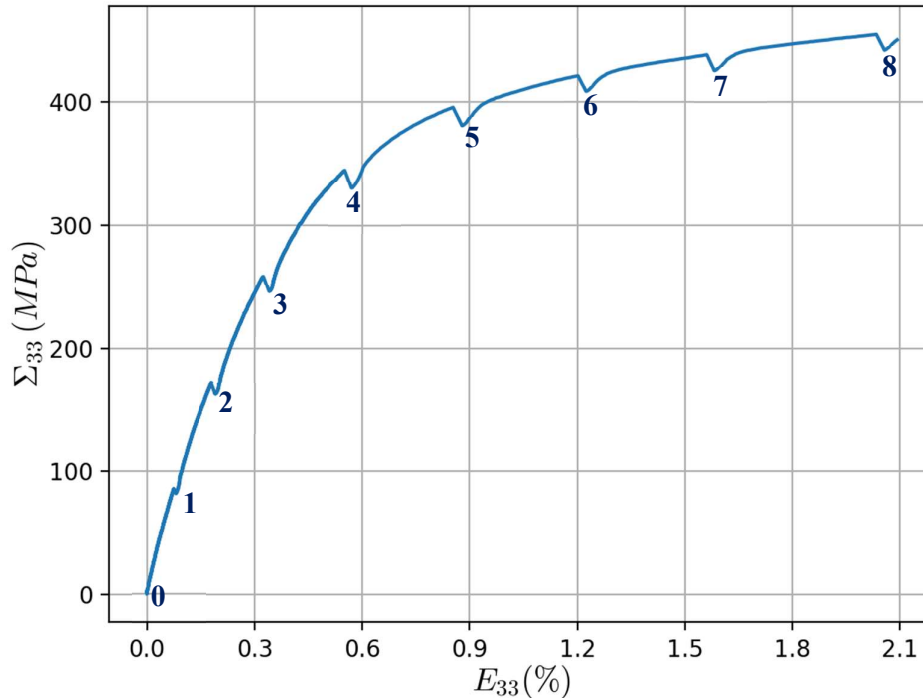
Un essai de traction uniaxiale à température ambiante a été effectué en utilisant une machine de traction fixée sur la table de rotation du montage 3DXRD de la ligne ID11 (**Figure 3.7**).



**Figure 3.7** Montage d'essai de traction 3DXRD *in-situ*.

La longueur utile du fil est de 33 mm. Un faisceau incident avec une hauteur de 1 mm a été centré sur la zone mesurée à l'état initial ; la largeur du faisceau est supérieure à celle de

l'échantillon. Deux fils de tungstène ont été collés sur l'échantillon de part et d'autre du volume analysé pour permettre le recentrage de ce dernier lors de l'acquisition grâce à un détecteur de fluorescence. Les montants de la machine de traction obstruent le faisceau incident sur une plage de rotation. L'intervalle de rotation a donc été réduit à  $220^\circ$ , avec un pas d'intégration de  $0,25^\circ$ , par rapport aux  $360^\circ$  possibles sans la machine lors de la caractérisation de la microstructure initiale ( $\omega = [-145^\circ, -35^\circ] \cup [145^\circ, 35^\circ]$ ). Cela a permis l'acquisition de 880 images par chargement. La distance entre l'échantillon et le détecteur est égale à 242 mm.



**Figure 3.8** Courbe macroscopique de traction pour les chargements n°0 à n°8.

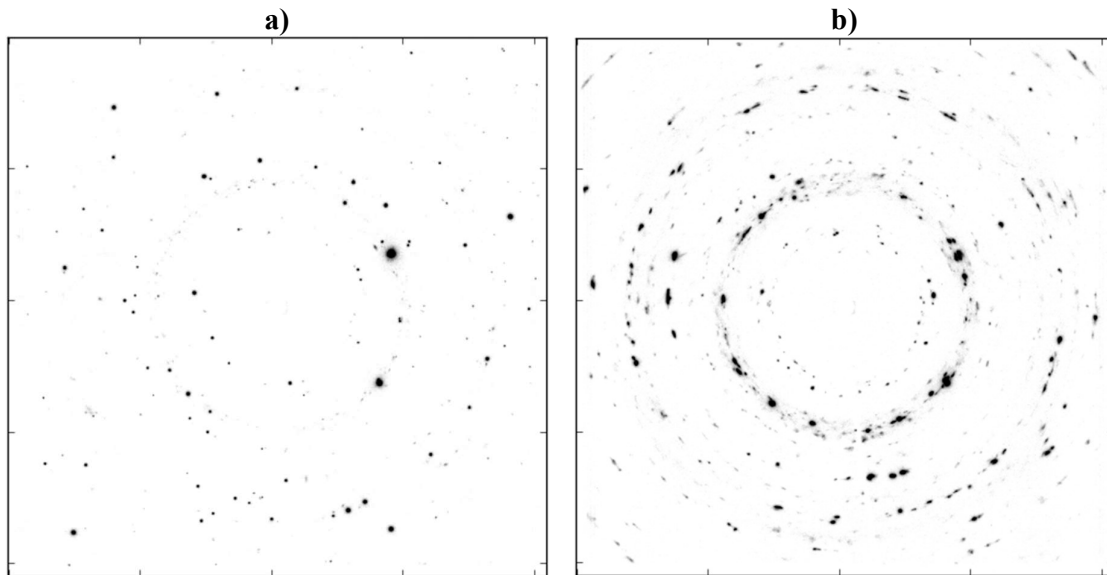
La courbe de traction est présentée en **Figure 3.8** pour les neuf premiers chargements. Onze mesures 3DXRD ont été effectuées à onze niveaux de chargement : le chargement n°0 représente l'état initial ; les chargements 1 à 3 sont dans le domaine élastique ; le début de la transformation martensitique est observé à partir du chargement 4. La déformation macroscopique est calculée à partir du déplacement longitudinal des deux mors de la machine de traction. Nous n'avons pas de mesures du déplacement restreint à la zone traversée par le faisceau car un extensomètre aurait encore réduit l'intervalle de rotation. Une post-correction de la pente élastique a donc été réalisée grâce à un calcul en éléments finis simulant une loi de comportement élastique. Une petite relaxation de contraintes est également observée pendant le temps de chaque mesure 3DXRD. L'acquisition des clichés de diffraction commence une fois que la relaxation est stabilisée.

### 3.2.1.2. Conditions d'indexation

La **Figure 3.9** montre deux clichés de diffraction à l'état initial (chargement 0) et au chargement 7, situé dans le domaine de la transformation martensitique.

Lors des premiers chargements (0 à 4), on observe sur le détecteur les taches de diffraction de l'austénite déformée élastiquement. En augmentant progressivement la charge appliquée, les grains subissent davantage de déformation élastique, de rotation par rapport à leur orientation initiale et se transforment tour à tour en martensite monoclinique. Cela se manifeste sur les images de diffraction par :

- un affaïssissement progressif de l'intensité des taches de l'austénite, accompagné d'un élargissement de ces taches en plusieurs pixels adjacents sur le détecteur ( $u$ ,  $v$ ) et plusieurs images successives ( $\omega$ ),
- l'apparition progressive de taches de diffraction issues de la phase martensitique. Les intensités diffractées par la martensite ne sont pas indexées en raison de la symétrie cristallographique complexe de la maille de martensite,
- l'augmentation du chevauchement des taches de diffraction de la phase austénitique, de plus en plus difficiles à isoler lors de la procédure de segmentation.



**Figure 3.9** Évolution des taches de diffraction. Image 3DXRD au chargement n°0 (a) et au chargement n°8 (b) au même angle  $\omega$ . L'échelle d'intensité est amplifiée dans les images du chargement n°8 pour les besoins de visualisation.



Les paramètres d'indexation tels que la complétude minimale et la tolérance  $TOL_{hkl}$  maximale doivent donc être moins stricts au fur et à mesure que la transformation martensitique avance afin de permettre de suivre l'évolution d'une grande partie de la phase austénitique.

### 3.2.2. Post-traitement et analyse des données d'indexation à l'état initial

Les images 3DXRD de l'état initial (chargement n°0) ont été post-traitées et une analyse de données a été faite de façon à identifier à la fois les propriétés initiales des grains après le positionnement de l'éprouvette dans la machine de traction ainsi que l'ensemble de paramètres d'indexation (seuils de segmentation, tolérances et paramètres de diffractomètre). Ces derniers seront ensuite utilisés pour indexer les grains austénitiques à chaque pas de chargement.

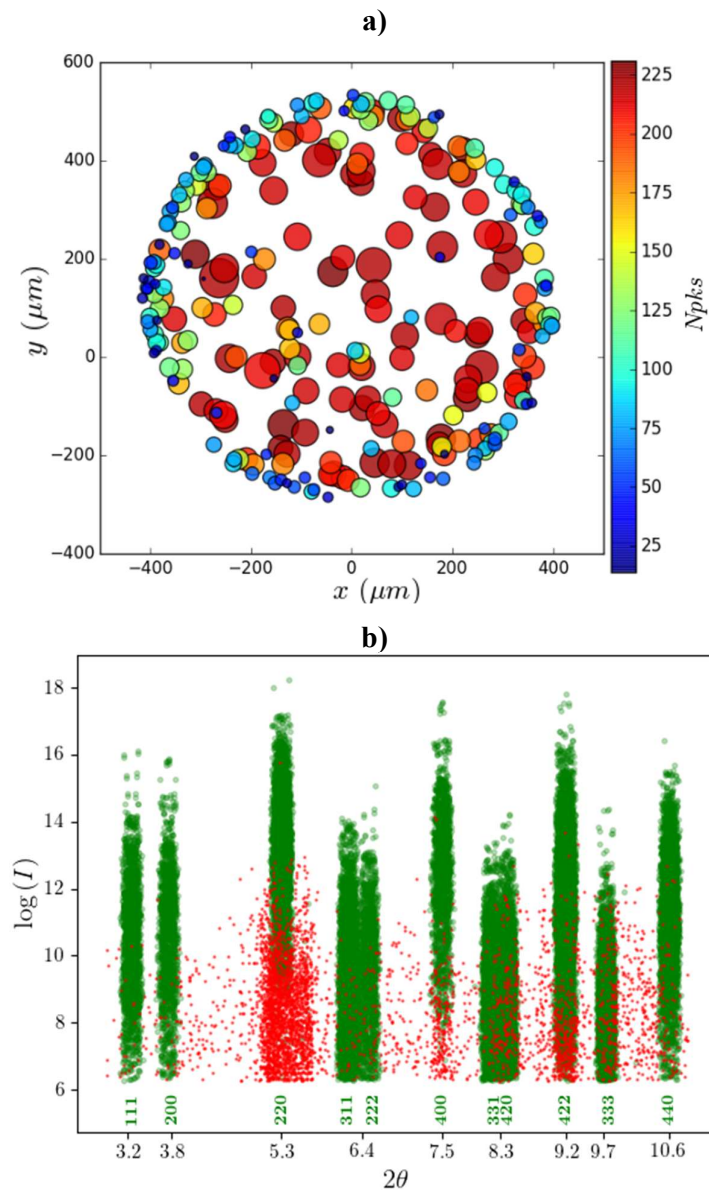
La **Figure 3.10** montre les positions radiales des grains obtenues par 3DXRD au chargement 0, ainsi que les angles de diffraction et les intensités des pics.

Dans ce volume de 1 mm de hauteur, 242 grains ont été indexés au total dont les 187 grains dans la zone centrale de 700  $\mu\text{m}$  en hauteur observés dans la partie 3.2. Leurs propriétés  $\mathcal{T}$ ,  $Npks$  et positions radiales sont représentées dans la **Figure 3.10-a**. La seule différence avec les résultats montrés à la **Figure 3.2** est le nombre supérieur de grains indexés du fait de la taille verticale du faisceau plus importante.

La **Figure 3.10-b** montre l'ensemble des intensités diffractées et met en évidence les pics indexés des 242 grains et les pics qui n'ont pas été indexés parmi toutes les intensités collectées, en utilisant une tolérance  $TOL_{hkl} = 0,02$ . Les angles de diffraction représentés  $2\theta$  sont les angles calculés avant l'indexation : la transformation des coordonnées des pics sur le détecteur en coordonnées radiales ( $\theta$ ,  $\eta$ ) est réalisée, dans un premier temps, en supposant que toutes les raies sont diffractées à l'origine O (0, 0, 0) du repère du laboratoire car les positions et orientations des grains ne sont pas encore connues. Ces valeurs seront affinées par la suite.

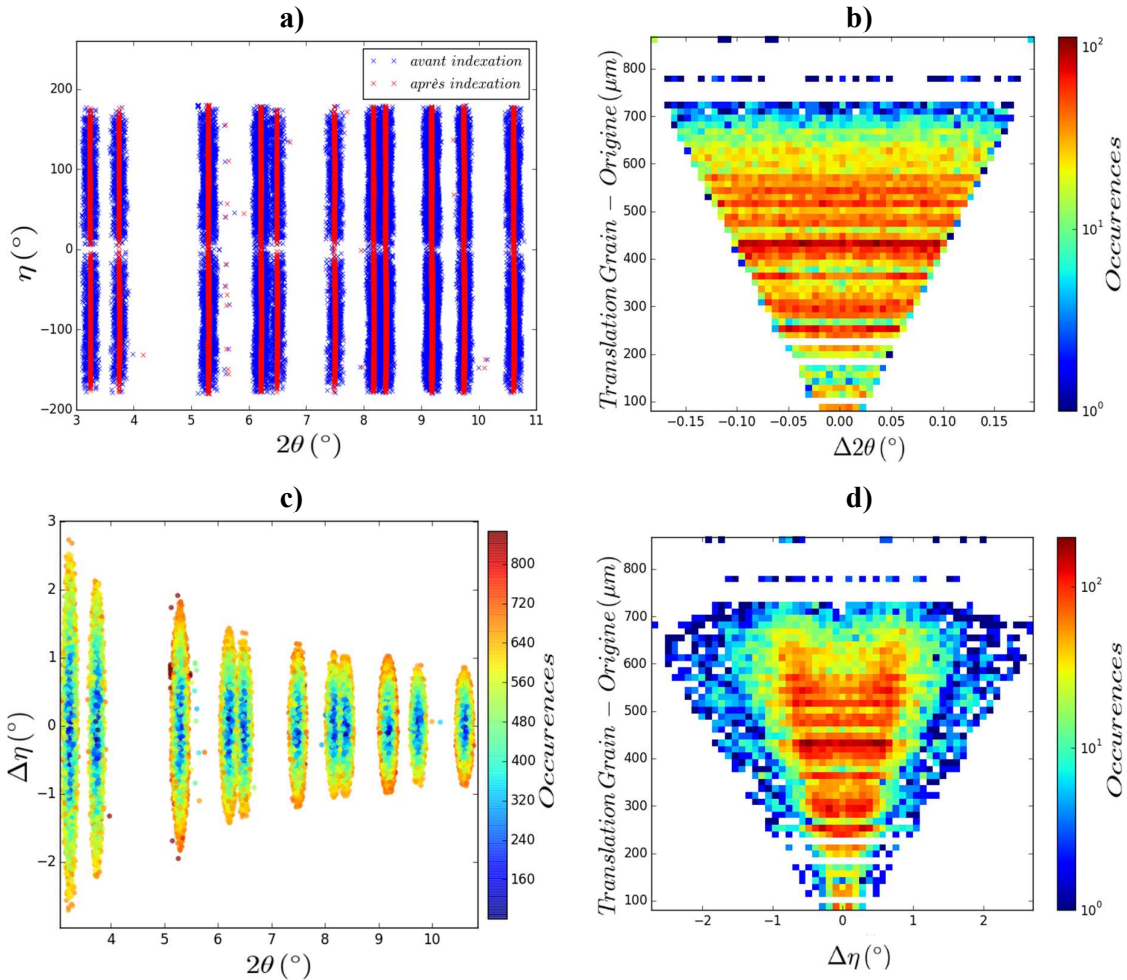
On remarque que quasiment tous les pics de forte intensité ( $\log(I) > 12$ ) ont été indexés. De même, une grande partie des intensités relativement faibles ( $\log(I) < 12$ ) a également été indexée. En revanche, certains pics moins intenses n'ont pas été indexés : ils se situent particulièrement aux angles de diffraction proches des raies  $\{220\}$  de l'austénite ( $3^{\text{ème}}$  anneau). Ils proviennent de la phase martensitique apparue lors du serrage de l'éprouvette dans les mors de la machine de traction ; cette observation sera détaillée dans le paragraphe 3.2.5.

Le nombre de pics indexés représente 91,13% de la totalité des pics diffractés collectés et ils ont une intensité totale égale à 99,57% de la somme globale de toutes les intensités diffractées. Les intensités étant proportionnelles aux volumes de la matière, on peut considérer que 99,57% du volume total illuminé a été indexé et identifié en tant que grains d'austénite avant l'application de la contrainte de traction.



**Figure 3.10** Indexation des grains de l'échantillon au chargement n°0. **a)** Position radiale des grains. La taille des cercles correspond à la taille de grain. **b)** Angles de diffraction et intensités des pics indexés (en vert) et non indexés (en rouge).

Après l'indexation des pics aux grains et le raffinement de la position spatiale de ces derniers, les angles de diffraction des pics indexés sont recalculés en tenant compte de la position des grains. Si l'indexation est correctement réalisée, et en l'absence de forts gradients de déformation, la distribution des pics de diffraction d'une même famille  $\{hkl\}$  forment des cônes parfaits de Debye-Scherrer.



**Figure 3.11** Comparaison des pics indexés avant et après raffinement de la position des grains.  
**a)** Angles de diffraction  $2\theta$  et  $\eta$  avant (bleu) et après (rouge) raffinement des positions de grains.  
**b)** Écarts en angle  $2\theta$  des pics en fonction de la position du grain par rapport à l'origine.  
**c)** Écarts en angle  $\eta$  des pics en fonction de la position du grain et de l'anneau de diffraction.  
**d)** Écarts en angle  $\eta$  des pics en fonction de la position du grain à l'origine du pic diffracté.

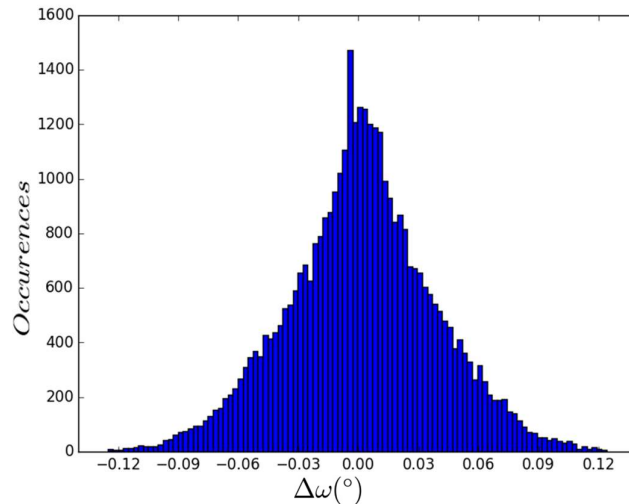
Les angles ( $2\theta$ ,  $\eta$ ) avant et après indexation sont tracés dans la **Figure 3.11**. La dispersion des angles de diffraction réels (droites rouges) est nettement plus étroite par rapport aux valeurs de départ (nuages de points en bleu) comme le montre la **Figure 3.11-a**. Les pics de diffraction

indexés se positionnent bel et bien sur des anneaux distincts non déformés. Les erreurs en  $2\theta$  et  $\eta$ , commises pour chaque pic, sont données dans les **Figure 3.11-b** et **Figure 3.11-d** respectivement, et ce en fonction de la distance entre le barycentre du grain associé au pic et l'origine (0, 0, 0). Ces deux histogrammes montrent que :

- moins le grain est éloigné de l'origine, moins il sera influencé par l'hypothèse de pré-indexation (diffractions émanant toutes de l'origine),
- les grains les plus éloignés du cœur de la zone analysée risquent d'avoir moins de pics indexés si les tolérances sont très strictes, ce qui pose une difficulté supplémentaire dans l'indexation des petits grains en surface.

L'erreur sur l'angle azimutal  $\eta$  dépend aussi de l'anneau de diffraction de rayon  $2\theta$ . En effet, plus l'angle  $2\theta$  augmente et moins l'erreur en angle azimutal est importante comme le montre la **Figure 3.11-c**.

De même que les angles  $2\theta$  et  $\eta$ , l'angle de rotation  $\omega$  pour lequel un plan réticulaire diffracte est recalculé pour l'ensemble de pics indexés après raffinement des grains. La distribution des écarts en angle  $\omega$  avant et après indexation est donnée dans la **Figure 3.12**.



**Figure 3.12** Comparaison de l'angle de diffraction  $\omega$  des pics avant et après raffinement.

L'erreur en  $\omega$  est comprise entre  $-0,125^\circ$  et  $0,125^\circ$ , ce qui correspond au pas de rotation autour de l'axe  $\omega$  (pas d'intégration  $\delta\omega = 0,25^\circ$ ). La diminution du pas d'intégration augmente le temps de la mesure et la quantité de données mais permet en même temps d'augmenter la précision et pourra rendre l'indexation et le raffinement des paramètres plus précis.

### 3.2.3. Approches d'indexation et de suivi des grains au cours de la traction

Après avoir identifié les propriétés des grains et de leurs pics à l'état initial ainsi que des paramètres numériques d'indexation, la démarche doit être reproduite pour les chargements successifs. La difficulté est de pouvoir associer les données relatives à un grain tout au long du chargement. Pour ce faire, deux approches différentes ont été proposées :

- une indexation dite « standard » : les cartes de grains sont indexées indépendamment, puis comparées entre elles pour associer les données d'un même grain ;
- une indexation « incrémentale » : les grains indexés au chargement  $i$  sont utilisés comme données d'entrée pour le chargement  $i+1$ .

#### 3.2.3.1. Indexation standard

L'indexation est réalisée à chaque pas de chargement selon la procédure détaillée dans le chapitre 2. Un ensemble d'orientations cristallographiques potentielles est construit à partir des pics collectés durant la mesure 3DXRD correspondante. Parmi ces matrices  $UBI_{test}$ , les grains correspondent aux matrices  $UBI$  qui indexent  $Npks$  pics avec des erreurs  $\Delta_{hkl} < TOL_{hkl}$  et  $Npks$  supérieures au seuil minimum imposé (complétude minimum). Une carte de grains est obtenue après raffinement des orientations, des paramètres de maille et des positions de centres de masse.

Une étape supplémentaire est requise pour relier les résultats de chaque pas de chargement en vue du suivi des grains individuels au cours de la traction. En effet, une procédure d'appariement des grains indexés à différents chargements, suivant des critères de similitude, a été mise en place. Les cartes de grains sont comparées deux à deux en termes de désorientations et de distances entre barycentres pour relier les grains après avoir enlevé les mouvements globaux de corps rigides. Une procédure d'appariement totalement automatisée comporte néanmoins un risque de superpositions et de fausses correspondances croissant aux chargements élevés, notamment en raison :

- d'un mouvement global de corps rigide,
- de la probabilité d'avoir des grains assez proches à la fois en orientation et en position de barycentres dans le même chargement, notamment les plus petits grains,
- de sous-domaines d'austénite qui apparaissent lors de la formation des variantes de martensite aux chargements élevés (Malard, 2008),

- de la rotation des grains et sous domaines d'austénite afin de minimiser les incompatibilités de déformation lors de la formation des variantes de martensite (Malard, 2008),
- de la translation des centres de masse des grains austénitiques due à la transformation d'une partie du grain en martensite et/ou à son mouvement par rapport à la hauteur fixe du faisceau (grains qui entrent ou sortent en partie du volume illuminé),
- de la propagation d'erreurs expérimentales et numériques.

Des contre-vérifications et des corrections manuelles ont donc été souvent nécessaires.

### 3.2.3.2. Indexation incrémentale

Dans cette deuxième méthode, les grains constituant la microstructure au chargement n°0 sont affinés par une indexation standard. Cette carte de grains est alors utilisée comme premier incrément à un raffinement itératif incrémental pour les mesures des chargements suivants. Le raffinement des propriétés d'un grain d'un chargement  $i$ , en utilisant les pics de diffraction du chargement  $i + 1$ , permet en théorie de converger vers les propriétés de ce même grain au chargement  $i + 1$ . La question est de savoir si l'évolution de la microstructure entre deux chargements reste à un niveau qui assure tout de même le raffinement incrémental. Plus les chargements successifs s'écartent de par leurs états mécanique et microstructural, moins strictes doivent être les tolérances de raffinement.

Par définition, aucune procédure d'appariement n'est nécessaire grâce au raffinement incrémental des grains initiaux. En revanche, tous les grains initiaux ne peuvent être suivis du premier au dernier chargements : certains grains sortent du volume analysé (donc pas ou peu de pics diffractés) ou sont fortement transformés en martensite au fur et à mesure de la traction. Ils seront alors identifiables lors du raffinement incrémental par des bifurcations soudaines dans certains attributs (nombre de pics, position du barycentre, paramètres de maille) entre deux chargements successifs. Un modèle d'apprentissage automatique de type Isolation Forest (Liu, 2008) a été entraîné pour automatiser la détection de ces grains aberrants et les écarter de la liste des grains suivis.

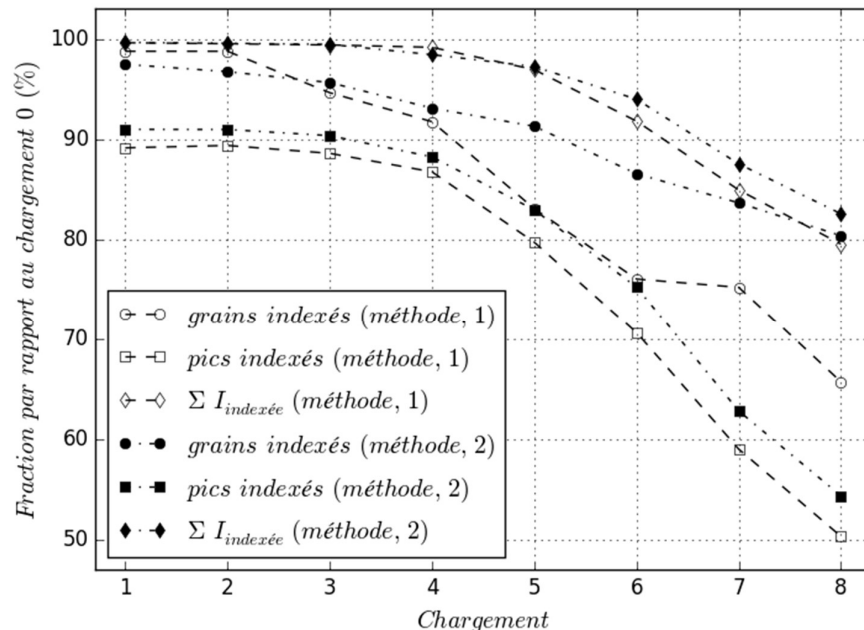
L'algorithme Isolation Forest nécessite d'introduire un taux de contamination (taux d'anomalies dans un jeu de données) ; ceci correspond dans notre cas à une tolérance de bifurcation. Des vérifications et des corrections ont alors été nécessaires pour trouver les bons paramètres numériques, tout comme dans le cas de la première approche.

### 3.2.4. Comparaison des méthodes d'indexation et de suivi des grains

L'ensemble des résultats d'indexation *in-situ* par les deux approches citées ci-dessus, jusqu'au 8<sup>ème</sup> chargement, est donné dans la **Figure 3.13** ; les chargements 9 et 10 n'ont pu être indexés car les taches de diffraction se recouvrent fortement du fait de la déformation importante. Deux tendances sont observées :

- du 1<sup>er</sup> au 4<sup>ème</sup> chargements, qui se situent dans le domaine élastique et au début de la transformation martensitique ;
- du 5<sup>ème</sup> au 8<sup>ème</sup> chargement où la transformation progresse dans l'échantillon.

Jusqu'au 4<sup>ème</sup> chargement, les écarts entre l'état initial et les mesures *in-situ* successives sont mineures en termes de nombre de pics indexés et de somme de leur intensité. Au 4<sup>ème</sup> chargement, 7% des grains de l'état initial ont été perdus sans qu'il y ait un effet notable sur la fraction d'intensité indexée. Cela suggère que les grains perdus sont des petits grains, situés vraisemblablement aux extrémités hautes et basses du volume analysé. Sachant que ces quatre premiers chargements correspondent au domaine élastique (Cf. **Figure 3.8**), l'indexation de l'austénite déformée élastiquement est satisfaisante et ne pose pas de problématiques particulières, quelle que soit l'approche utilisée.



**Figure 3.13** Évolution de la fraction de pics indexés, de nombre de grains suivis au cours de la traction et de l'intensité totale indexée par l'indexation standard (Méthode 1) et l'indexation incrémentale (Méthode 2).

A partir du 5<sup>ème</sup> chargement, une baisse progressive du nombre de pics et de grains indexés est observée. La fraction de pics indexés passe de 90% dans le domaine élastique à des valeurs de l'ordre de 55% au chargement n°8. Les grains austénitiques qui se transforment vont voir leurs pics de diffraction perdre progressivement en intensité jusqu'à devenir indécélabes lors du seuillage.

Seulement 66% des grains initiaux ont pu être suivis jusqu'au chargement n°8 par la méthode d'indexation standard, contre 80% pour l'indexation incrémentale. Cet écart entre les deux méthodes est moins flagrant en termes de somme d'intensités indexées au même chargement n°8 : elle est égale au total à 80% pour la méthode standard contre 83% pour la méthode incrémentale. Cela montre que, pour les paramètres d'indexation imposés ici, l'approche incrémentale gère mieux l'indexation des petits grains en comparaison à la méthode standard.

La fraction volumique de martensite étant plus ou moins proportionnelle à la somme des intensités non indexées à la phase austénitique, on en déduit que la transformation avance nettement à partir du chargement n°5. En assumant que la proportionnalité entre l'intensité collectée et le volume de la matière est respectée de façon identique dans les deux phases, et en assumant quelques variations liées aux choix des seuils et des erreurs de la méthode, la fraction volumique de martensite peut être estimée approximativement. Elle est de l'ordre de 15% – 20% au chargement n°8.

Les cartes de grains obtenues par les deux approches d'indexation ont été comparées pour les huit premiers chargements en termes d'état relatif de déformation  $\varepsilon_{33}^e$ , de contraintes  $\sigma_{33}$  dans la direction de traction mais aussi selon l'orientation cristallographique et la position moyenne des barycentres des centres de masse. Les résultats de la comparaison sont résumés à la **Figure 3.14**.

Pour cela, un tenseur de déformation est calculé de façon à comparer les paramètres de maille obtenus par les deux approches différentes :

$$\varepsilon^e = \frac{1}{2} [\mathbf{A}_2 \mathbf{A}_1^{-1} + (\mathbf{A}_2 \mathbf{A}_1^{-1})^t] - \mathbf{I} \quad (3.3)$$

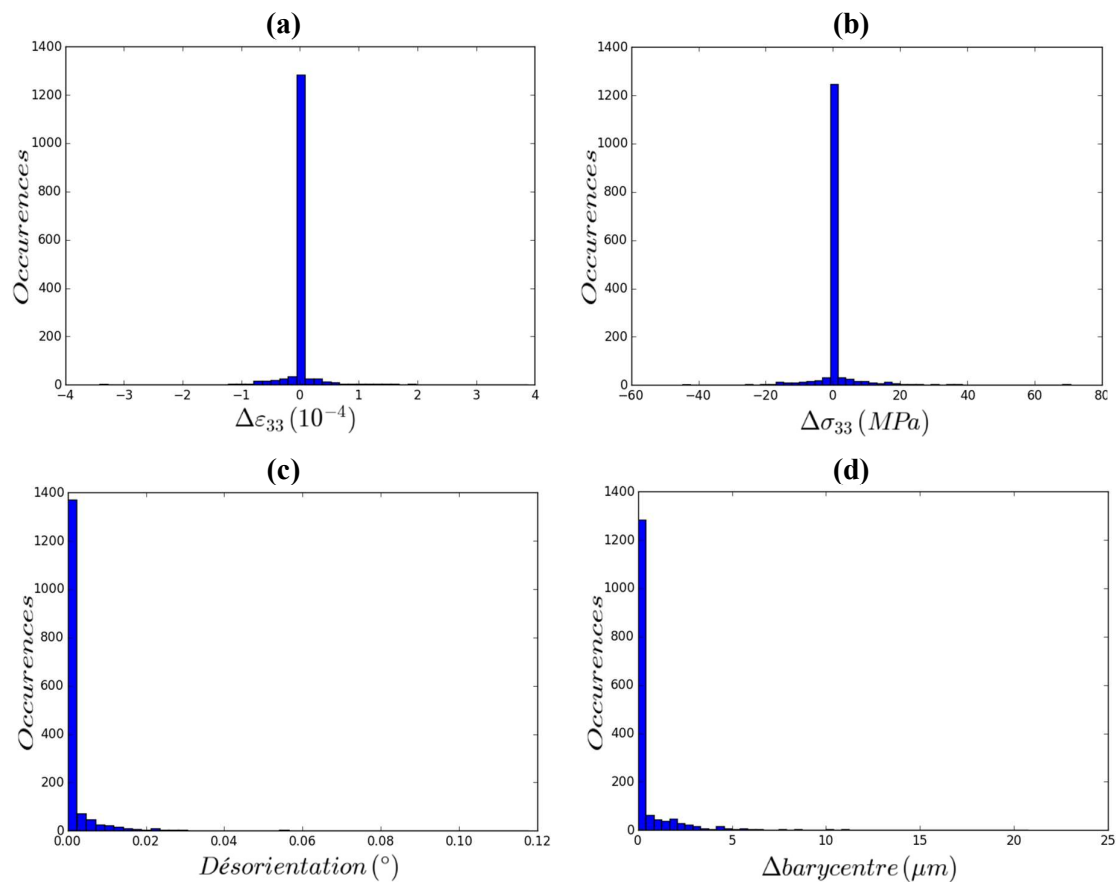
où  $\mathbf{A}_1$  et  $\mathbf{A}_2$  représentent les deux matrices A, définies selon l'équation (2.26), et construites par les paramètres de maille obtenus respectivement par l'approche standard et incrémentale.

On remarque de la **Figure 3.14** que :

- les écarts en déformation sont inférieurs à  $10^{-4}$ ;



- les écarts en contraintes sont inférieurs à 20 MPa ;
- les désorientations sont inférieures à  $0,02^\circ$  ;
- les écarts en position de grains sont inférieurs à  $5 \mu\text{m}$ .



**Figure 3.14** Écarts entre les grains indexés par les deux approches différentes d’indexation. **a)** Écarts en déformation  $\varepsilon_{33}^e$ . **b)** Écarts en contrainte  $\sigma_{33}$ . **c)** Écarts en orientation. **d)** Écarts en position des barycentres des centres de masse.

Ces résultats montrent que les deux approches d’indexation convergent vers la même microstructure et le même comportement mécanique. Les écarts restent de l’ordre des niveaux de précision de la technique 3DXRD. L’indexation incrémentale sera utilisée pour présenter les résultats suivants.

### 3.2.5. Optimisation de la procédure d'indexation

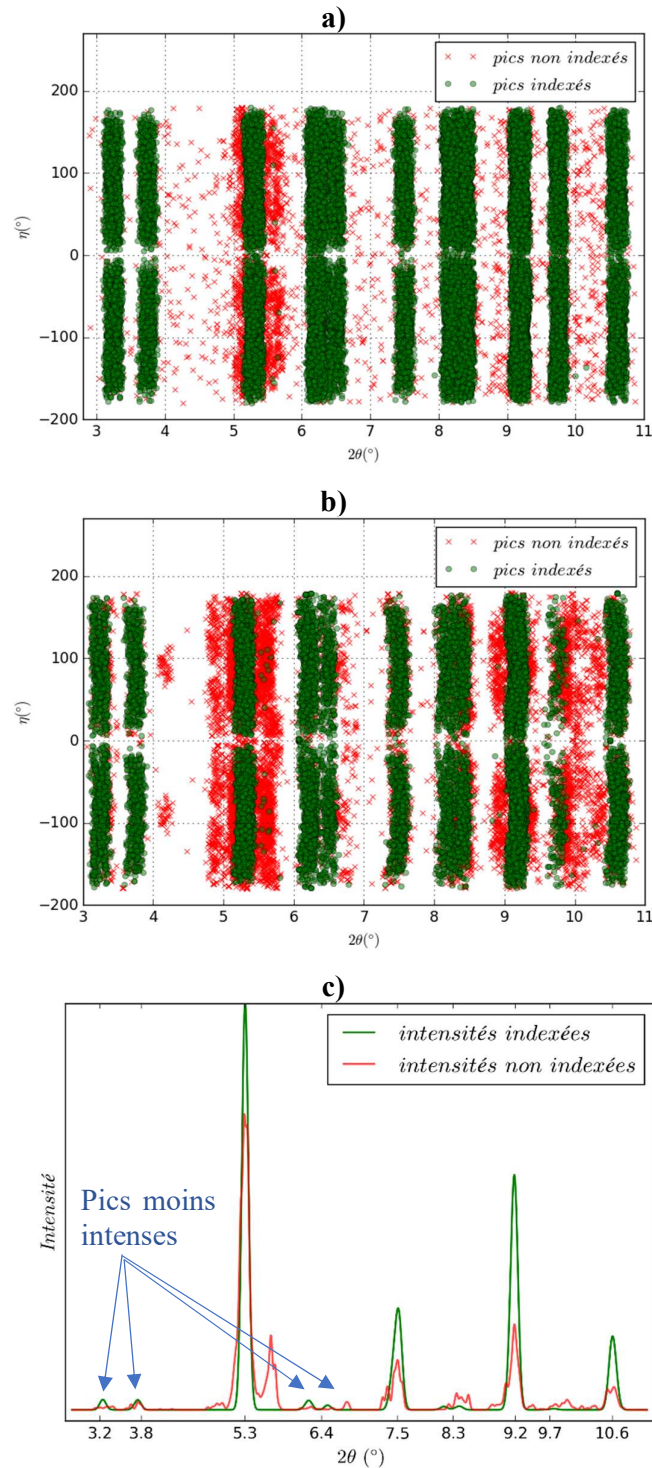
#### 3.2.5.1. Analyse des pics de diffraction non indexés

Des pics de diffraction non indexés à l'austénite, sont observés sur la **Figure 3.10-b** précédente de l'état initial. Ils représentent 9% des pics collectés (1937 sur 21858), mais leur intensité totale représente seulement 0,43% de l'intensité totale collectée. Ces pics non indexés peuvent être issus :

- de l'austénite non indexée totalement à cause de tolérances numériques trop strictes,
- d'une autre phase présente en faible fraction (martensite résiduelle, agrégats métalliques  $\text{Cu}_x\text{-Al}_y$ , oxydes),
- du bruit de fond.

Afin d'identifier leur(s) origine(s), les pics non indexés à l'état initial ont été analysés en termes d'intensité et d'angle de diffraction. Une comparaison des pics non indexés de l'état initial et du domaine de la transformation a été effectuée.

Nous avons observé un renforcement du nombre de pics non indexés au cours de la transformation (**Figure 3.15-b**) aux mêmes positions angulaires que ceux de l'état initial (**Figure 3.15-a**). De plus, le diffractogramme intégré (**Figure 3.15-c**) est en bon accord avec les données expérimentales de Moreau (Moreau, 1998) en ce qui concerne les angles de diffraction de la martensite, ce qui confirme que les intensités non indexées correspondent majoritairement à la martensite. Celle-ci était déjà présente à l'état initial : malgré les précautions de traitement, il semblerait donc que l'échantillon n'était pas complètement austénitique suite au traitement thermique.



**Figure 3.15** Pics de diffraction collectés à l'état initial (a) puis au cours de la transformation (b : chargement 7). c) Diffractogramme de l'échantillon dans le domaine de transformation (chargement n°7).

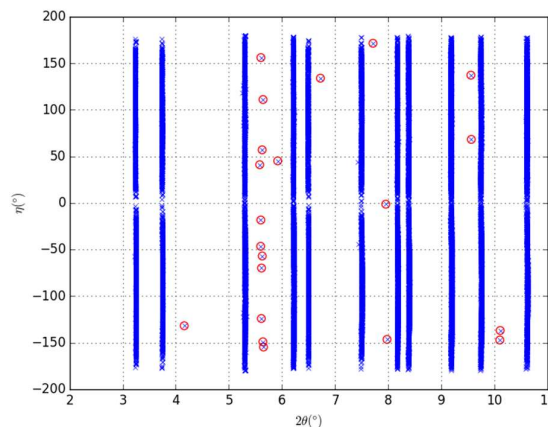
### 3.2.5.2. Choix des tolérances d'indexation

Les résultats de l'indexation montrés jusqu'ici ont été obtenus en imposant une tolérance  $TOL_{hkl} = 0,02$ . Une analyse des pics de diffraction indexés à l'austénite de l'état initial (19921 pics sur 21858 pics collectés) a été effectuée : elle a montré que 21 pics (sur 19921) correspondaient à des indices de Miller de parités différentes (**Tableau 3.2**). Or, ceci correspond à des conditions d'extinction dans le cas d'une maille cubique à faces centrées où seuls les plans dont les indices  $h$ ,  $k$ , et  $l$  sont de même parité peuvent diffracter (**Tableau 3.1**).

**Tableau 3.2** Pics de l'état initial, indexés avec des indices  $h$ ,  $k$ , et  $l$  de parité différente

$2\theta$	$\eta$	$(h_r$	$k_r$	$l_r)$	$(h$	$k$	$l)$	$\Delta_{hkl}$
5.65	-154.8	(-1.009	-2.013	-2.009)	(-1	-2	-2)	0.018
5.60	156.0	(0.998	1.995	-1.994)	(1	2	-2)	0.008
7.71	171.3	(-0.001	0.994	-3.998)	(0	1	-4)	0.007
6.72	133.9	(1.993	-2.987	-0.003)	(2	-3	0)	0.015
9.56	68.1	(4.002	-1.000	3.001)	(4	-1	3)	0.002
5.92	45.1	(0.994	0.007	2.999)	(1	0	3)	0.009
5.64	110.9	(1.002	-2.014	-2.001)	(1	-2	-2)	0.014
7.97	-146.6	(-1.006	1.006	-4.016)	(-1	1	-4)	0.018
10.10	-137.0	(-3.001	1.997	-4.013)	(-3	2	-4)	0.013
5.61	-70.0	(-1.008	2.006	1.984)	(-1	2	2)	0.019
5.60	-18.4	(-0.993	1.990	2.004)	(-1	2	2)	0.013
5.63	-57.0	(-1.002	2.008	1.999)	(-1	2	2)	0.008
5.61	-124.2	(-1.994	1.000	-2.001)	(-2	1	-2)	0.006
9.55	137.1	(-4.998	-1.002	-0.009)	(-5	-1	0)	0.009
5.64	-149.2	(2.016	-0.997	-2.004)	(2	-1	-2)	0.017
7.95	-1.4	(-1.017	-1.009	3.997)	(-1	-1	4)	0.019
5.63	56.9	(-1.002	2.004	2.003)	(-1	2	2)	0.005
10.10	-147.2	(3.999	2.008	-2.998)	(4	2	-3)	0.008
5.60	-46.6	(1.991	-1.008	1.991)	(2	-1	2)	0.016
5.58	41.0	(-0.001	0.003	2.982)	(0	0	3)	0.018
4.16	-131.9	(-0.003	-0.998	-2.006)	(0	-1	-2)	0.007

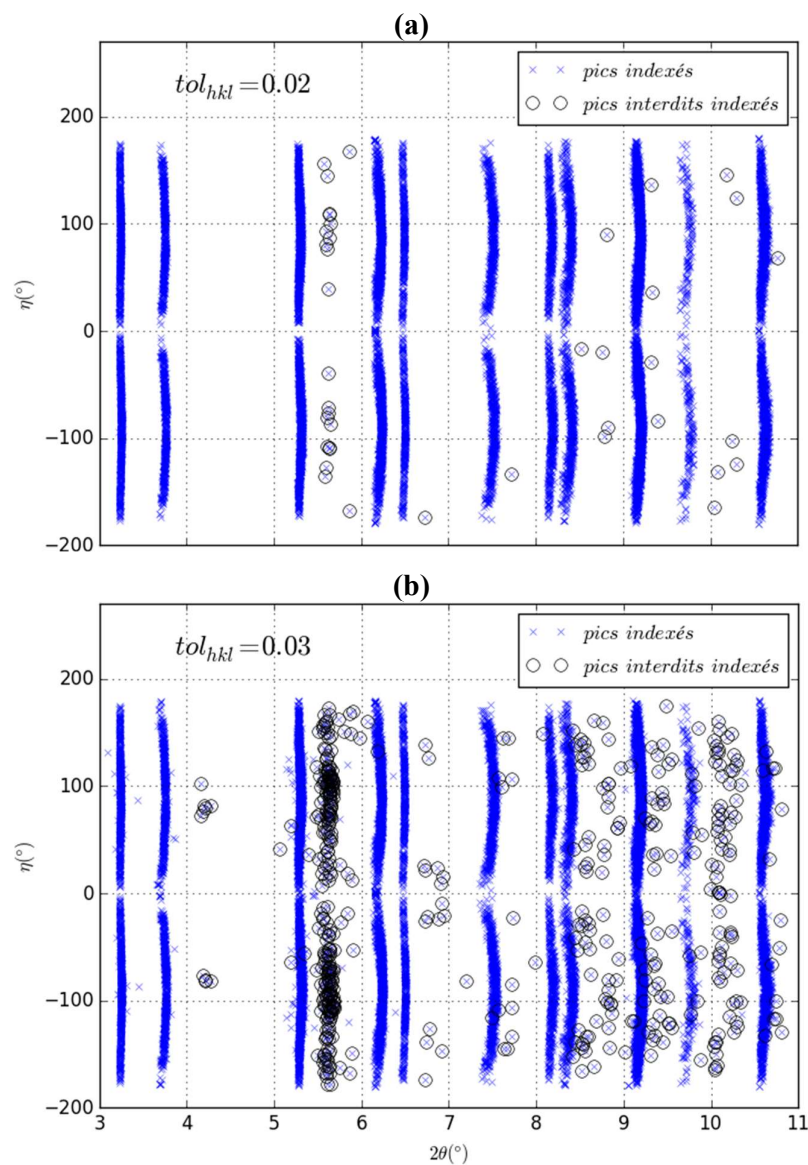
Ces « fausses indexations » sont listées dans le **Tableau 3.2** ainsi que sur la **Figure 3.16**.



**Figure 3.16** Positions  $(2\theta, \eta)$  des pics indexés, en tenant en compte la position des grains. Les 21 pics interdits par la maille cubique à faces centrées sont marqués par un cercle rouge.

En effet, leurs erreurs  $\Delta_{hk}$  sont bien inférieures à la tolérance imposée ( $TOL_{hkl} = 0,02$ ) comme le montre le **Tableau 3.2**. On remarque à partir des valeurs de  $\Delta_{hkl}$  qu'au minimum la moitié de ces pics n'aurait pas été indexée par une tolérance  $TOL_{hkl}$  réduite à 0,01. Cependant, une large quantité de pics corrects ne serait pas indexée en contrepartie selon les tests effectués.

Le **Tableau 3.2** et la **Figure 3.16** montrent également que les angles  $2\theta$  des pics interdits ne correspondent pas aux angles de diffraction de l'austénite de l'état initial. On peut donc supposer que ce sont des pics de diffraction de la martensite résiduelle, indexés par erreur comme de l'austénite.



**Figure 3.17** Pics indexés à l'austénite au chargement n°8 pour deux valeurs de tolérance : 0,02 (a) et 0,03 (b).

La même analyse suscitée a été effectuée dans le domaine de transformation et en imposant différentes valeurs de tolérance  $TOL_{hkl}$ . Les résultats d'indexation du chargement n°8 sont montrés dans la **Figure 3.17** pour deux valeurs de tolérance  $TOL_{hkl} = 0,02$  et  $TOL_{hkl} = 0,03$ .

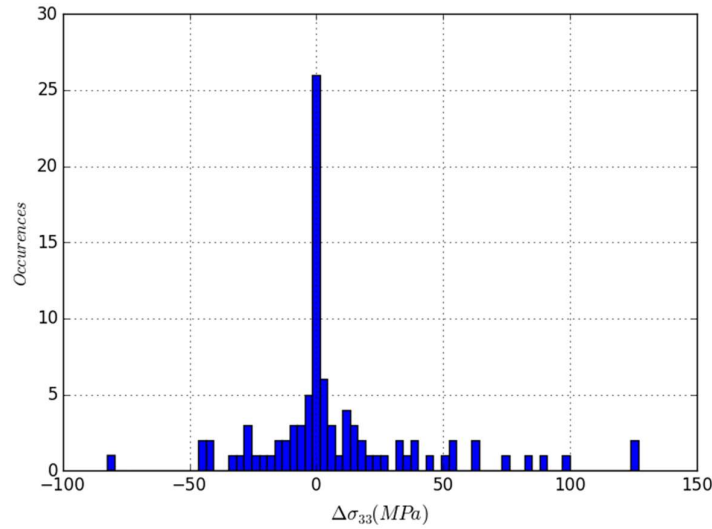
Sur 11642 pics indexés à l'austénite au chargement n°8 et à la tolérance 0,02, une quarantaine de pics interdits a été identifiée (**Figure 3.17a**). L'augmentation du nombre de pics diffractés par la martensite, suite à la transformation, augmente alors le risque d'indexer faussement des pics de martensite à l'austénite.

L'augmentation de la tolérance  $TOL_{hkl}$  à 0,03 permet d'indexer à l'austénite une quantité de pics supplémentaires. Néanmoins, la majorité d'entre eux sont des pics émanant de la martensite comme le montre la **Figure 3.17b**. On remarque en particulier la forte densité de pics interdits proches des pics  $\{2\ 2\ 0\}$  de l'austénite (3<sup>ème</sup> anneau de gauche à droite). La proximité des angles de diffraction de la martensite par rapport aux angles de diffraction de certains plans d'austénite déformée constitue une difficulté supplémentaire pour la procédure d'indexation.

Aussi, l'influence des pics de martensite indexés comme de l'austénite a été étudiée. Des attributs de grains tels que les paramètres de maille ont été comparés avant et après élimination des pics faussement indexés de la liste des pics utilisés lors de l'affinage des grains. Les contraintes ont été calculées en comparant les paramètres de maille affinés de chaque grain avant et après enlèvement des pics aberrants, selon l'équation (2.26) et la loi de Hooke généralisée. La **Figure 3.18** représente les écarts en contraintes  $\sigma_{33}$  avant et après enlèvement des pics interdits, et ce pour ce qui est des grains austénitiques auxquels ses réflexions interdites ont été indexées ( $TOL_{hkl} = 0,03$ ).

L'influence des pics de martensite sur les valeurs de contraintes est quasiment nulle pour une bonne partie de grains austénitiques comme le montre la **Figure 3.18**. Une partie des pics aberrants conduit cependant à des erreurs plus prononcées, qui peuvent être supérieures même à  $\pm 50$  MPa pour certains grains. Pour relativiser ces valeurs par rapport à l'erreur moyenne dans les grains correctement indexés, une analyse statistique de type « Bootstrap » (Efron, 1979) a été effectuée de façon à comparer la contribution d'un pic aberrant par rapport à un pic correctement indexé. Sachant que cinq pics aberrants en moyenne sont indexés par grain à la tolérance 0,03, des valeurs de contraintes ont été calculées par un raffinement des matrices **UBI** en enlevant aléatoirement cinq pics de la population de pics correctement assignés à chacun des grains. Cette opération d'échantillonnage aléatoire a été effectuée 500 fois pour chaque grain. Selon la loi des grands nombres, l'écart-type de l'ensemble des sous-échantillons Bootstrap

pour une variable tend vers l'erreur standard de cette variable lorsque le nombre de sous-échantillons tend vers l'infini.



**Figure 3.18** Histogramme des écarts de contraintes avant et après enlèvement des pics aberrants, dans la direction de traction au chargement n°8.

Ainsi, une erreur standard égale à 18 MPa en  $\sigma_{33}$  a été obtenue à partir des pics correctement indexés au chargement n°8. En comparant cette valeur d'erreur standard à l'historgramme d'erreurs émanant des pics aberrants (**Figure 3.18**), on s'aperçoit qu'un pic aberrant peut avoir un poids de contribution important sur les paramètres de maille, par rapport à un pic réel d'austénite. Il est donc recommandé d'enlever ces pics lors du raffinage des attributs de grain, même si leur nombre est petit par rapport au nombre de pics indexés au grain, pour réduire la probabilité que les résultats soient biaisés.

Le choix final a donc été d'indexer l'austénite avec une tolérance  $TOL_{hkl} = 0,02$  à tous les chargements en enlevant à chaque itération les éventuels pics indexés qui vérifient la condition d'extinction (pics aberrants émanant de la martensite).

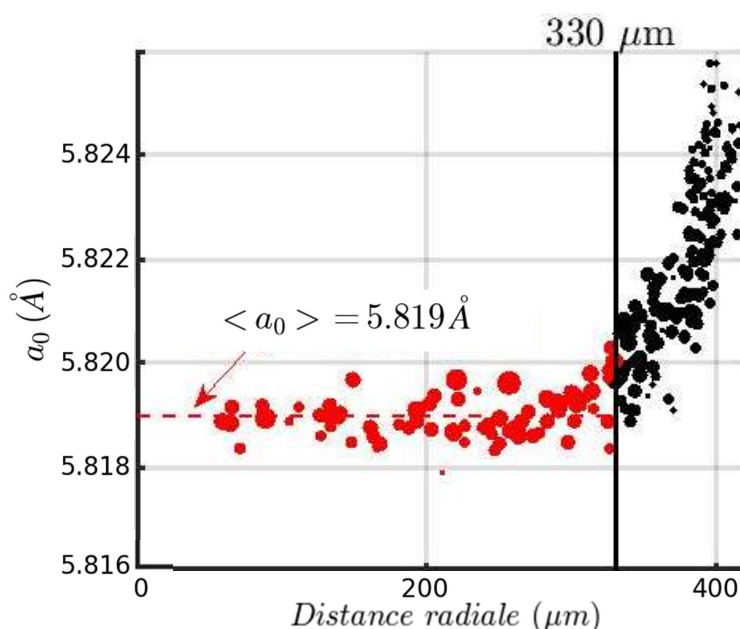
### 3.3. Suivi de déformations et de contraintes moyennes sur les grains

La procédure présentée dans le paragraphe précédent a permis d'indexer et relier les grains à chaque pas de chargement. Ainsi les propriétés moyennes de tous les grains telles que leur position, leur orientation, leur volume et leurs paramètres de maille ont été identifiées pour chaque chargement imposé. Cela permet d'étudier l'évolution des grains individuels, au cours

de la traction, en termes de différentes propriétés microstructurales et mécaniques (rotation des grains, déformations élastiques, contraintes, cissons résolues...). Dans ce paragraphe, l'accent est mis sur le suivi des déformations élastiques, rotations et contraintes des grains individuels.

### 3.3.1. Détermination du paramètre de maille non contraint

Les tenseurs de déformation élastique et de contraintes sont calculés à partir des paramètres de maille mesurés par 3DXRD et affinés selon la méthodologie discutée dans le chapitre 2. Un état non déformé de référence doit être introduit. Pour cela, les paramètres de maille obtenus pour les grains affinés au chargement n°0 ont été analysés et sont présentés dans la **Figure 3.19**.



**Figure 3.19** Corrélation entre le paramètre de maille et la distance radiale  $\mathcal{R}$  des grains.

De telles hétérogénéités sont potentiellement dues à la présence de martensite résiduelle à la surface de l'éprouvette et à des contraintes résiduelles. Rappelons également que les grains de surface sont plus difficiles à indexer (faible complétude) et que leurs paramètres de maille ne sont souvent affinés qu'avec les pics intenses ( $\{220\}$  et  $\{422\}$ ), ce qui affecte la précision.

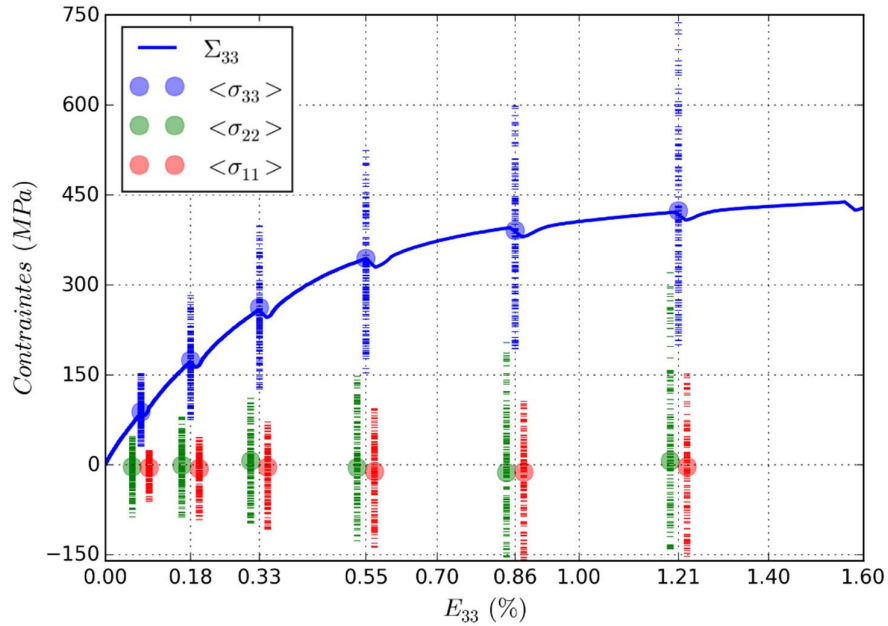
Sachant que le paramètre de maille initial,  $a_0$ , réel de l'éprouvette ne peut pas être obtenu par diffraction de poudre car des contraintes relativement fortes s'introduisent lors de la préparation de la poudre (Malard, 2008), et étant données les hétérogénéités surface – volume et la perte en précision particulièrement dans les grains de surface au cours du chargement, le choix a finalement été porté sur une mesure de déformations par rapport à des paramètres de maille



adaptables. Au lieu de considérer une maille unique de référence imposée pour tous les grains, le paramètre de maille de chaque grain déterminé à l'état initial a été utilisé. Les déformations élastiques ont donc été calculées relativement à l'état initial : cela implique que, dans la suite de ce manuscrit, les contraintes résiduelles ne sont pas prises en compte.

### 3.3.2. Comportement mécanique à l'échelle macroscopique

Après avoir choisi la maille élémentaire non contrainte de l'austénite, les tenseurs complets de déformations élastiques et de contraintes peuvent être calculés pour chaque grain à chaque point de mesure 3DXRD (cf. annexe A2). Dans la suite de cette étude, nous utiliserons les résultats de l'indexation incrémentale et nous nous limiterons aux 187 grains indexés dans la zone de 700  $\mu\text{m}$  de l'éprouvette comme dans le cas de la simulation numérique.



**Figure 3.20** Évolution des contraintes dans 187 grains d'austénite en fonction du chargement appliqué. Les contraintes de cisaillement ne sont pas tracées et les contraintes dans les directions 1 et 2 sont légèrement décalées horizontalement pour faciliter la visualisation.

À partir des 187 tenseurs de contraintes  $\underline{\sigma}$  obtenus par la 3DXRD à chaque chargement, un tenseur de contraintes moyen est calculé en tenant compte du volume  $V^{(k)}$  de chaque grain ( $k$ ) :

$$\langle \underline{\underline{\sigma}} \rangle = \frac{\sum_{k=1}^{187} (\underline{\underline{\sigma}}^{(k)} V^{(k)})}{\sum_{k=1}^{187} V^{(k)}} = \begin{pmatrix} \langle \sigma_{11} \rangle & \langle \sigma_{12} \rangle & \langle \sigma_{13} \rangle \\ \langle \sigma_{12} \rangle & \langle \sigma_{22} \rangle & \langle \sigma_{23} \rangle \\ \langle \sigma_{13} \rangle & \langle \sigma_{23} \rangle & \langle \sigma_{33} \rangle \end{pmatrix} \quad (3.6)$$

Le comportement des grains individuels (échelle mésoscopique) et le comportement moyen (échelle macroscopique) sont comparés à la courbe de comportement macroscopique de l'éprouvette sont tracées dans la **Figure 3.20**.

Les distributions des valeurs de contraintes (187 grains  $\times$  3 composantes axiales) sont tracées avec des tirets horizontaux. La moyenne des contraintes sur les 187 grains, intégrée aux volumes de grains, est représentée par un cercle.

Une large hétérogénéité de contraintes est observée entre les différents grains dans les domaines élastique et de transformation martensitique. Cependant, la contrainte est en moyenne égale à la contrainte appliquée, dans la direction de traction, et est nulle dans les autres directions comme le montre la **Figure 3.20** ; ce qui donne :

$$\langle \underline{\underline{\sigma}} \rangle = \frac{\sum_{k=1}^{187} (\underline{\underline{\sigma}}^{(k)} V^{(k)})}{\sum_{k=1}^{187} V^{(k)}} \approx \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \Sigma_{33} \end{pmatrix} \quad (3.6)$$

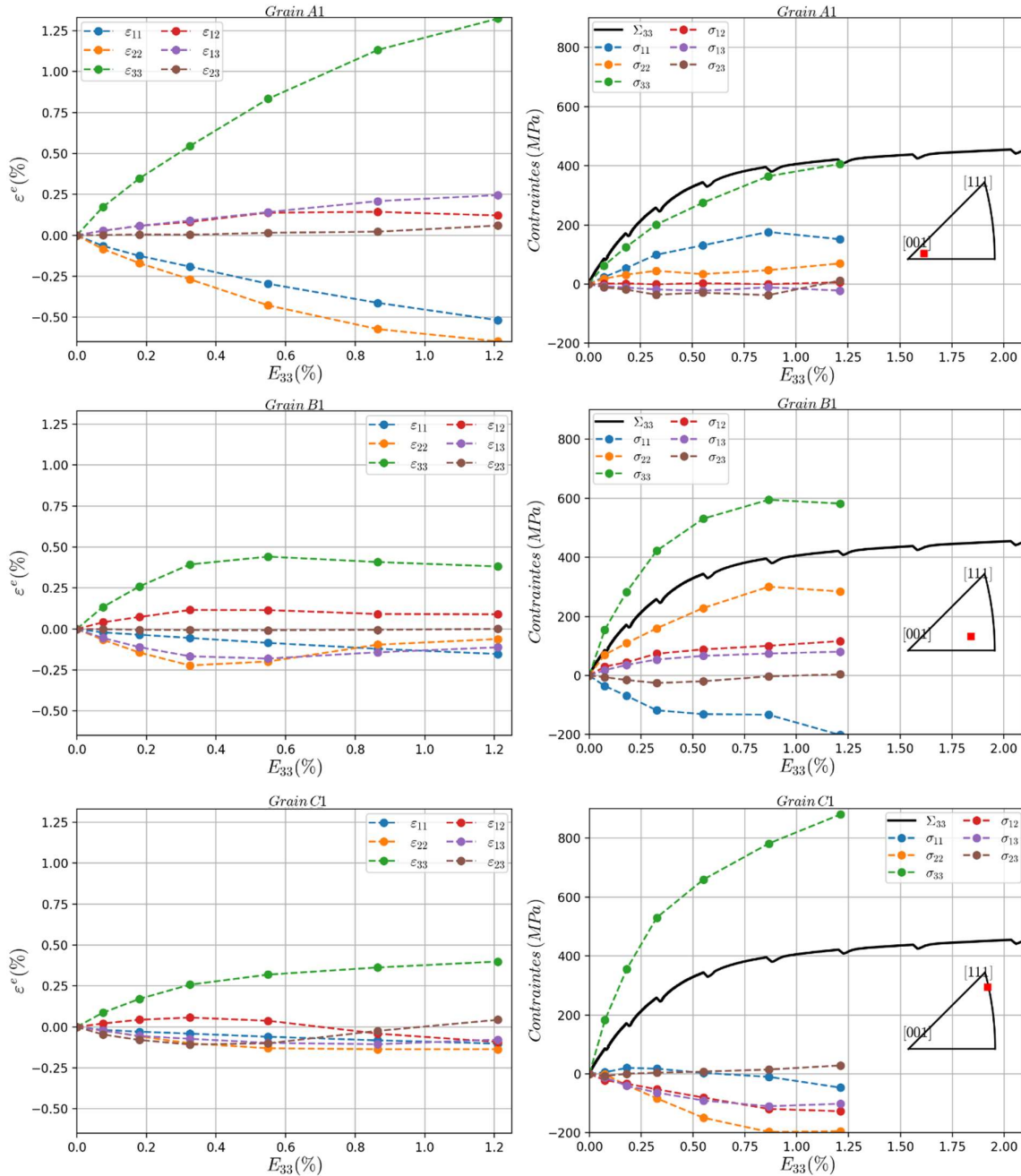
Le tenseur moyen  $\langle \sigma_{ij} \rangle$  de la zone analysée donc quasi égal au chargement imposé à toute la longueur utile de l'éprouvette. La zone analysée contenant 187 grains d'austénite est donc bien représentative du comportement de toute l'éprouvette en traction.

### 3.3.3. Comportement mécanique à l'échelle mésoscopique

Les résultats reportés à la **Figure 3.20** ont permis de vérifier que le comportement macroscopique mesuré en 3DXRD est en accord avec la sollicitation mécanique imposée. Ils montrent également une large dispersion entre les grains individuels, *i.e.* à l'échelle mésoscopique. Cette différence de comportement à l'échelle des grains est à étudier vis-à-vis des propriétés microstructurales comme l'orientation des grains par rapport à l'axe de traction, la position du grain dans l'échantillon, la taille et les interactions avec les grains voisins.

### 3.3.3.1. Effet de l'orientation cristalllographique

L'évolution des tenseurs complets de déformation élastique et de contraintes internes en fonction du pas de chargement est représentée dans les courbes de la **Figure 3.21** pour trois grains notés A1, B1 et C1. L'axe de traction est proche de la direction réticulaire [001] pour le grain A1, [011] pour le grain B1 et [111] pour le grain C1.



**Figure 3.21** Evolution des déformations élastiques et des contraintes dans les grains A1, B1 et C1 en fonction du chargement appliqué.

Le grain A1 orienté [001] se distingue par une large déformation élastique  $\varepsilon_{33}^e$  d'allongement longitudinale accompagnée d'une large déformation (rétrécissement) transversale  $\varepsilon_{11}^e$  et  $\varepsilon_{22}^e$ . Même dans le domaine de transformation, la déformation élastique  $\varepsilon_{33}^e$  de ce grain dans la direction de sollicitation continue à croître et reste légèrement supérieure à la déformation totale macroscopique  $E_{33}$ . D'autre part, sa composante de contrainte  $\sigma_{33}$  suit de près la contrainte macroscopique  $\Sigma_{33}$ . Le grain A1 est légèrement moins contraint dans la direction de sollicitation que la charge de traction imposée et ce même dans le domaine élastique. Ses contraintes de cisaillement restent pareillement très faibles que ce soit dans le domaine élastique ou dans le domaine de transformation.

Quant aux grains B1 et C1 orientés [011] et [111] respectivement, leur déformation élastique  $\varepsilon_{33}^e$  évolue linéairement avec le chargement dans le domaine élastique. En revanche, ils ne se déforment pas élastiquement (grain B1), ou peu (grain C1), dans le domaine de transformation. La déformation  $\varepsilon_{33}^e$  reste de l'ordre de 0,4% pour le grain B1 entre les chargements  $E_{33} = 0,33\%$  et  $E_{33} = 1,21\%$ . Pour le grain C1,  $\varepsilon_{33}^e$  augmente légèrement et passe de 0,25% à 0,41%.

Par ailleurs, contrairement au grain A1 [001], la contrainte  $\sigma_{33}$  est nettement plus élevée dans les grains B1 et C1 dans le domaine élastique. Ceci est particulièrement vrai pour le grain C1 proche de [111] dont la contrainte  $\sigma_{33}$  est deux fois plus importante que la contrainte macroscopique dans la direction de traction. Une contrainte de compression transverse se développe également assez rapidement dans les deux grains dans le domaine élastique ( $\sigma_{11}$  pour le grain B1 et  $\sigma_{22}$  pour le grain C1).

Dans le domaine de la transformation martensitique, la contrainte  $\sigma_{33}$  continue à augmenter mais avec une pente moins prononcée dévoilant une accommodation partielle de la contrainte dans la direction de sollicitation, en particulier pour le grain C1 [111]. Une telle accommodation est observée également dans les deux autres contraintes axiales transverses. Les contraintes de cisaillement sont en revanche clairement plus élevées dans les grains B1 et C1 que dans le grain A1 orienté [001].

Il ressort de l'ensemble de ces observations qu'il y a une forte corrélation entre l'orientation cristallographique du grain de l'alliage Cu-Al-Be et son comportement superélastique. Dans le domaine élastique, la forte anisotropie élastique de la phase austénitique ( $a = 13,3$ ) de cet alliage provoque une forte hétérogénéité de déformation élastique et de contraintes intergranulaires. Les grains bien orientés (proches de [001]) tel que le grain A1 ont le module d'Young le plus faible, ce qui fait que la direction [001] constituent une direction de facile déformation élastique. Les

grains proches de [011] et [111] par rapport à l'axe de traction sont des grains durs. Le module d'Young des grains [111] est de l'ordre de dix fois supérieur au module d'Young [001], ce qui explique les fortes contraintes  $\sigma_{33}$  du grain C1 par rapport à  $\Sigma_{33}$  dans le domaine élastique. De tels niveaux élevés de contraintes provoquent vraisemblablement l'activation d'une ou plusieurs variantes de martensite lorsque l'on continue à charger l'éprouvette dans le domaine de transformation, ce qui se traduit par une certaine relaxation de contraintes axiales de l'austénite et un développement de plus en plus large du cisaillement. La triaxialité des contraintes des grains B1 et C1 respectivement passe de 0,34 et 0,31 dans le domaine élastique à 0,30 et 0,21 dans le domaine de transformation (chargement n°6). Ceci démontre que l'état de traction dans ces grains, initialement largement uniaxial dans le domaine élastique, tend de plus en plus vers un cisaillement dans le domaine de transformation martensitique.

Le comportement superélastique d'un grain dans le polycristal est donc fortement dépendant de l'orientation cristallographique du grain par rapport à l'axe de traction uniaxiale.

### 3.3.3.2. Effets de la microstructure du polycristal

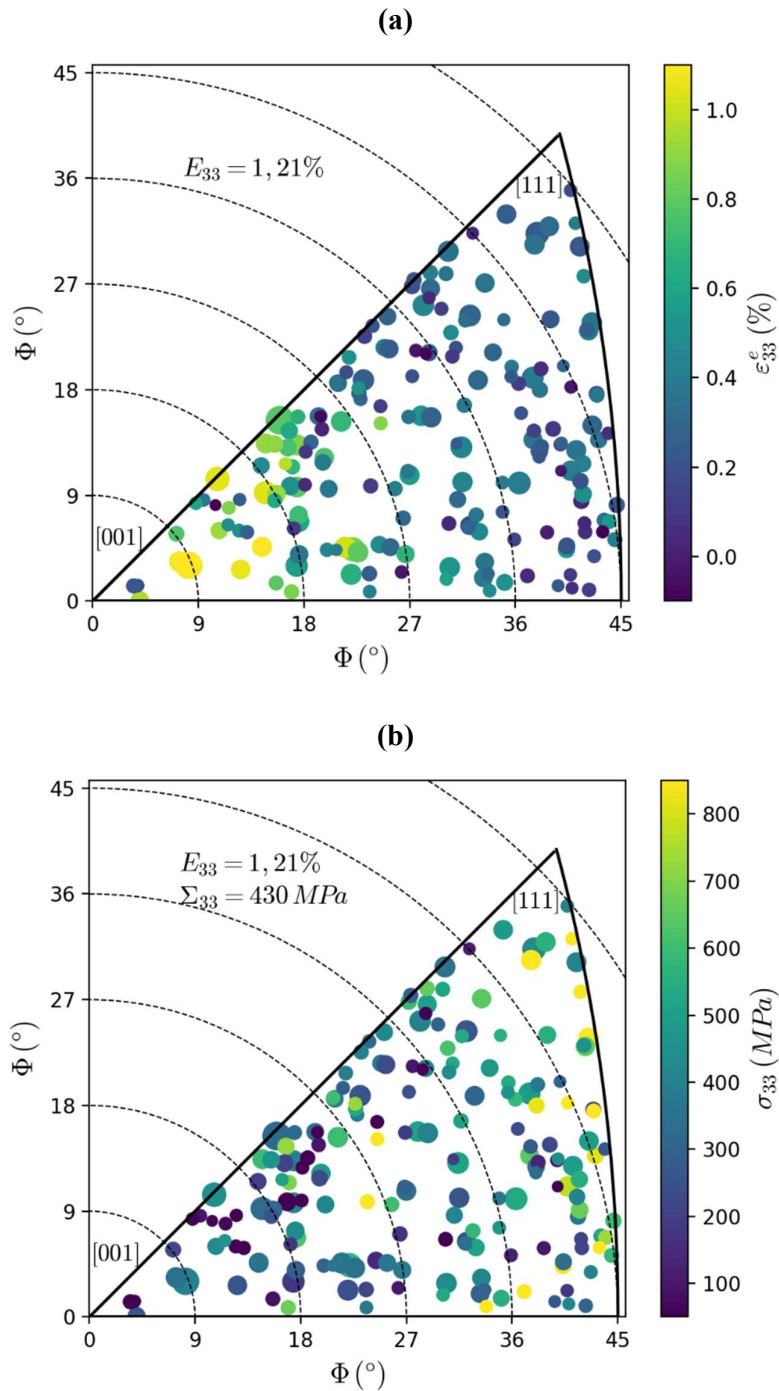
Les déformations élastiques et contraintes dans la direction de traction sont reportées dans les figures de pôles inverses de la **Figure 3.22** dans le cas du chargement n°6 pour les 187 grains.

On remarque à partir de la **Figure 3.22-a** que les déformations élastiques  $\varepsilon_{33}^e$  sont inférieures à 1% pour la majorité des grains. En moyenne, la déformation élastique  $\langle \varepsilon_{33}^e \rangle$  est bien inférieure à la déformation totale  $E_{33}$ . La différence entre  $E_{33}$  et  $\langle \varepsilon_{33}^e \rangle$  correspond à la déformation de transformation martensitique.

Les grains bien orientés par rapport à l'axe de traction, *i.e.* les grains dont la direction [001] est proche de la direction de la traction uniaxiale, sont nettement plus déformés élastiquement dans cette direction que les grains mal orientés (grains orientés [011] ou [111]). Plus les grains sont mal orientés par rapport à la direction de traction (angle  $\Phi$  élevé) moins leur déformation élastique  $\varepsilon_{33}^e$  est importante. Cependant, ce gradient de déformation  $\varepsilon_{33}^e$  en fonction de  $\Phi$  n'est pas parfaitement homogène. Des grains de même orientation par rapport à l'axe de traction peuvent avoir un niveau de déformation élastique  $\varepsilon_{33}^e$  différent.

De même, on remarque sur la **Figure 3.22-b** que les grains bien orientés par rapport à l'axe de traction (proches de [001]) sont moins contraints que les grains mal orientés (proches de [011])

ou [111]). Des grains d'orientations proches les unes aux autres peuvent tout de même avoir des niveaux de contraintes  $\sigma_{33}$  différents.

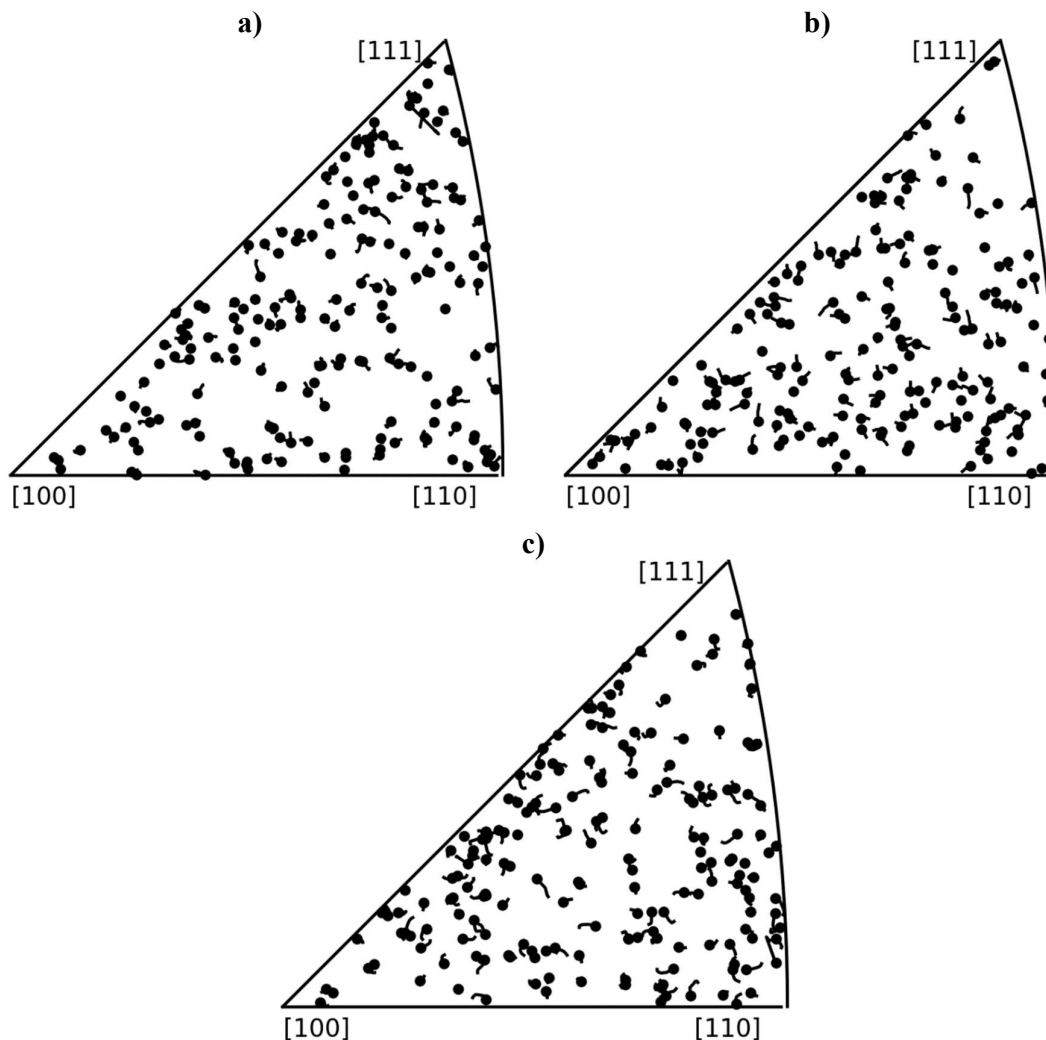


**Figure 3.22** Évolution a) des déformations et b) contraintes dans la direction de traction dans 187 grains d'austénite en fonction du chargement appliqué.

Ces observations montrent des hétérogénéités de comportement importantes même entre des grains d'orientations cristallographiques similaires. Aussi, l'orientation cristallographique est insuffisante à elle seule pour décrire complètement le comportement superélastique de l'austénite à une échelle mésoscopique. D'autres propriétés microstructurales telles que la position du grain dans l'échantillon, sa taille et les interactions avec les grains voisins doivent être prises en compte. Ces comportements seront décrits en détails dans le chapitre 5.

### 3.3.3.3. Suivi de la rotation moyenne des grains

L'orientation de chaque grain a été calculée (matrice  $U$ ) à chaque pas de chargement. Cela permet de suivre la rotation des grains au cours de la traction. L'évolution de l'orientation cristallographique des grains entre le chargement n°0 et le chargement n°8 est reportée dans les figures de pôles inverses de la **Figure 3.23**. Le point représente la position finale.



**Figure 3.23** Rotation des 187 grains par rapport aux directions 1 (a), 2 (b) et 3 (c).

Pour une représentation complète des orientations, les trois figures de pôles inverses précédentes ont été tracées par rapport aux trois axes du repère de l'échantillon : la direction « 3 » de traction et les deux directions transverses « 1 » et « 2 ». L'amplitude de rotation est différente d'un grain à un autre comme le montre la **Figure 3.23**. La rotation maximale observée est de 3°. D'autre part, il n'y a visiblement pas de corrélation entre l'orientation initiale du grain et sa rotation au cours de la traction. L'effet de la croissance de la martensite sur l'amplitude de rotation sera en revanche étudié dans le chapitre 5 en s'appuyant sur les fractions de martensite à l'échelle microscopiques fournies par la simulation numérique.

## Conclusion

Au total, 187 grains d'austénite ont été indexés dans le volume analysé à l'état initial par la 3DXRD et reconstruit par la TCD. Une très bonne correspondance a été observée entre les résultats de la 3DXRD et de la TCD en termes d'orientation des grains et de leurs positions moyennes dans l'échantillon. De même, les tailles de grains obtenues par la TCD et par la 3DXRD sont très proches avec une taille moyenne équivalente à celle observée expérimentalement (130  $\mu\text{m}$ ) par le microscope optique.

Cela dit, les grains de surface sont généralement plus petits en 3DXRD par rapport à la TCD. En effet, l'éprouvette analysée contient des grains de surface plus petits que les grains au cœur de l'éprouvette ; les pics des grains de petite taille sur la surface sont moins intenses et parfois indiscernables du bruit de fond, en particulier dans le cas de la 3DXRD. La procédure de l'indexation et de raffinage des paramètres des grains (tels que  $a_0$  et les déformations élastiques) est alors plus précises dans le cas des grains au cœur de l'éprouvette par rapport aux grains de surface. D'autre part, l'analyse des pics collectés à l'état initial a montré la présence d'une petite fraction de martensite estimée à 0,4% du volume analysé.

La 3DXRD a ensuite été utilisée pour suivre les grains austénitiques individuels lors de la traction in-situ. Deux approches différentes d'indexation ont été mises en place et comparées. Pour des chargements allant jusqu'à 1,5% de déformation macroscopique, les deux approches ont donné des résultats très concordants. L'approche incrémentale a été choisie au dépend de l'approche classique car elle a permis de suivre un nombre plus élevé de grains. Parmi les analyses importantes de méthodologie et de post-traitement effectuées dans ce travail, une démarche d'analyse des pics a été mise en place pour limiter les fausses indexations dans le domaine biphasé et aider également au choix des tolérances.



Après post-traitement des données de la 3DXRD, les déformations élastiques, contraintes et rotations ont été obtenues pour chaque grain individuel. La démarche adoptée ne tient pas compte des contraintes résiduelles. Une première validation de ces résultats a été effectuée à l'échelle macroscopique ; les grains suivis sont représentatifs du comportement macroscopique de l'éprouvette.

A l'échelle moyen de grains, une relation orientation cristallographique – comportement a été observée : les grains proches de [100] subissent une large déformation dans la direction de traction et ont moins de contraintes contrairement aux grains [111] qui présentent un comportement nettement plus rigide. Ceci dit, cet effet d'orientation n'a pas été suffisant à lui seul pour expliquer les hétérogénéités de comportement entre les grains. Des effets de polycristal tels que les interactions avec les orientations voisines et la croissance des variantes de martensite doivent être pris en compte.

Bien que la fraction de martensite dans un grain austénitique ne puisse pas être directement quantifiée par la méthodologie de la 3DXRD (contrairement à la simulation), les effets du début de transformation dans un grain et sa croissance sont discernables en 3DXRD grâce à la relaxation des contraintes axiales et l'augmentation des contraintes de cisaillement.



# **4. De l'expérimental au numérique : numérisation de la microstructure et mise en données de la simulation numérique de l'essai de traction**

4. De l'expérimental au numérique : numérisation de la microstructure et mise en données de la simulation numérique de l'essai de traction .....	107
Introduction .....	109
4.1. Modèle géométrique de discrétisation de microstructure 3D d'un polycristal....	109
4.1.1. Génération de tessellations de Laguerre à partir du polycristal .....	110
4.1.2. Génération de maillage à partir de tessellations et Implémentation du modèle géométrique de la microstructure 3D .....	113
4.2. Modèle constitutif du comportement thermomécanique d'un monocristal d'AMF	115
4.2.1. Déformation dans un Volume Élémentaire Représentatif (VER).....	115
4.2.2. Potentiel thermodynamique du système austénite – martensite.....	117
4.2.3. Critères de transformation.....	119
4.2.4. Loi d'évolution de la transformation : .....	121
4.3. Mise en données de la simulation numérique de l'essai de traction .....	122
4.3.1. Implémentation de la loi de comportement du monocristal.....	122
4.3.2. Paramètres numériques et du matériau .....	123
4.3.3. Conditions aux limites .....	124
4.4. Résultats issus de la simulation numérique .....	126
4.4.1. Post-traitement et validation des résultats de la simulation .....	127
4.4.2. Comportement mécanique moyen sur le grain .....	128
Conclusion.....	130



## Introduction

Afin de reproduire numériquement le comportement mécanique du polycristal, il est nécessaire d'une part de digitaliser la microstructure obtenue par les méthodes expérimentales, et d'autre part, de définir les équations constitutives du comportement de l'AMF.

La microstructure reconstruite par tomographie TCD a été maillée par des tessellations de Laguerre optimisées. La modélisation géométrique, permettant d'obtenir une microstructure 3D numérique à partir d'une microstructure expérimentale, est décrite à travers le code numérique Neper utilisé dans les présents travaux. La démarche est présentée dans la première partie de chapitre.

Puis, le modèle de comportement adopté, qui est un modèle basé sur un potentiel thermodynamique, est décrit dans la deuxième partie de ce chapitre.

Enfin, l'essai de traction a été simulé en utilisant le code de calcul par éléments finis Abaqus®. L'implémentation dans Abaqus®, à la fois de la loi de comportement du monocristal et de la microstructure numérique du polycristal, est décrite dans la dernière partie du chapitre et est accompagnée des résultats numériques obtenus.

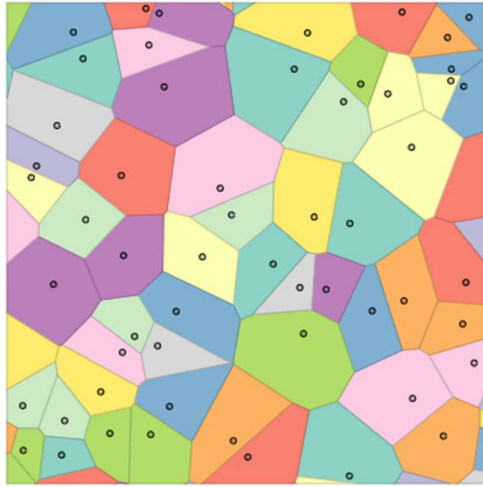
### 4.1. Modèle géométrique de discrétisation de microstructure 3D d'un polycristal

La microstructure 3D du polycristal, obtenue par une reconstruction par TCD (*Cf.* chapitre 2), a été discrétisée en maillage de type éléments finis. Pour cela, il a été nécessaire d'effectuer une modélisation géométrique, permettant de passer de l'objet réel (microstructure tridimensionnelle) à un modèle virtuel approximé discrétisé.

Parmi les méthodes de génération de modèles géométriques, les tessellations de Voronoï ainsi que leur généralisation en tessellations de Laguerre (Ghazvinian, Diederichs, & Quey, 2016) (Lautensack & Zuyev, 2008) sont souvent utilisées pour exploiter des données issues d'imagerie 3D. Ces modélisations géométriques sont utiles pour interpréter des résultats expérimentaux et effectuer des simulations en éléments finis.

Les tessellations de Voronoï consistent en un découpage du plan en cellules adjacentes à partir d'un ensemble de points « germes » de façon à ce que, pour chaque point d'une cellule, la

distance euclidienne entre le point et son germe soit inférieure à toutes les distances entre ce point et les autres germes. Un exemple de diagramme de Voronoï est donné dans la Figure 4.1.



**Figure 4.1** Génération des tessellations de Voronoï à partir d'un ensemble de germes (Czaplicki, 2012).

Les tessellations de Laguerre sont une généralisation des tessellations de Voronoï où une contribution (un poids) individuelle différente est attribuée à chaque germe. De plus, les distances sont élevées à une puissance  $n$  pour mesurer la proximité entre les points ( $n = 1$  dans le cas de Voronoï). Il a été montré que les tessellations de Laguerre sont bien adaptées pour modéliser géométriquement des processus tels que la croissance des grains et la représentation des joints de grain dans les matériaux polycristallins (Suzudo & Kaburaki, 2009) (Morfa, de Farias, Morales, de Navarra, & Valera, 2018). Dans notre cas, la microstructure numérique maillée de l'échantillon a été générée en utilisant le code Neper (Quey, Dawson, & Barbe, 2011) (Quey & Renversade, 2018) (Quey R. , 2019). Dans ce qui suit, la génération des tessellations de Laguerre et du maillage par Neper du volume contenant 187 grain est présentée.

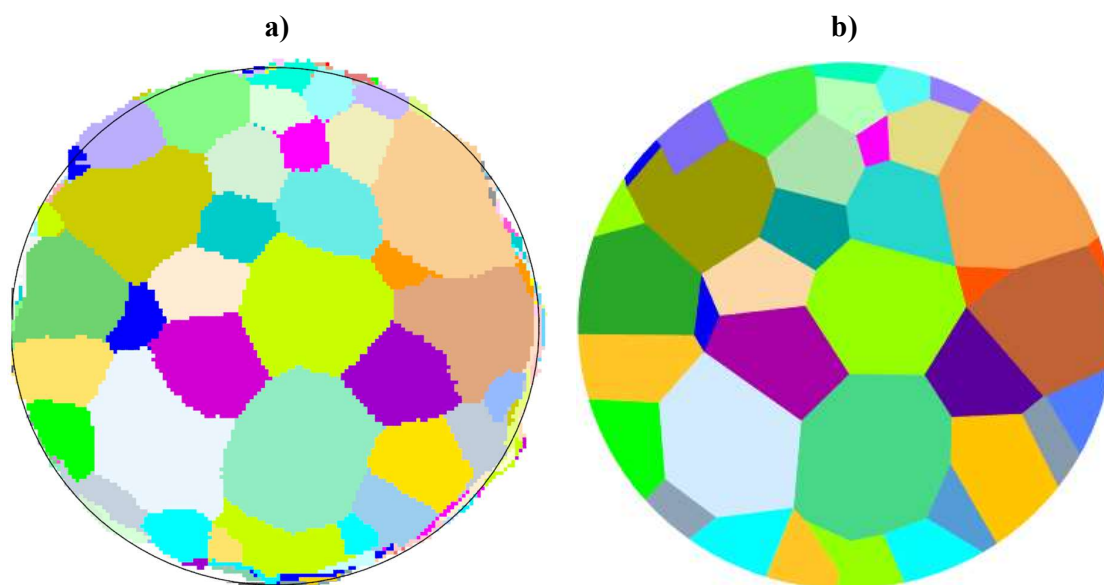
#### 4.1.1. Génération de tessellations de Laguerre à partir du polycristal

Le logiciel Neper permet de générer un modèle de polycristal à partir de propriétés géométriques de grains, obtenues expérimentalement ou imposées numériquement, en utilisant des tessellations de Laguerre « optimales ». Les propriétés des grains (nombre, taille, centre de masse, etc.) sont utilisées comme données d'entrée pour générer une première solution, *i.e.* un ensemble de germes  $i$  ( $i = 1, \dots, N$  grains) aux positions  $x_i$  ayant un poids  $w_i$  qui généreront des cellules polyédriques assimilées aux grains. Une « fonction objectif » qui quantifie la

différence entre le polycristal initial et sa description polyédrique (ou entre deux itérations successives) est à minimiser à chaque itération.

Un exemple d'application des tessellations Laguerre sous Neper est la génération d'une microstructure 3D numérique à partir de données de la 3DXRD. Les positions de centres de masse et les volumes de grains, issus de la 3DXRD, sont repris en tant que positions  $x_i$  et poids  $w_i$  des tessellations pour constituer un modèle initial, lequel est optimisé en comparant itérativement les cellules de tessellations aux grains de la 3DXRD.

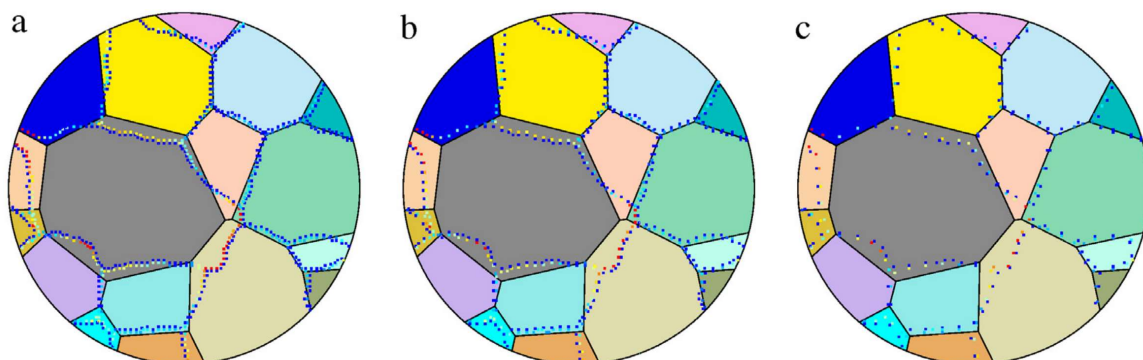
Dans cette étude, nous disposons de la forme 3D des grains à partir de la TCD. La microstructure reconstruite par la TCD a alors été utilisée pour créer des tessellations Laguerre à mailler. En effet, les résultats de la TCD sont fournis en forme d'images tramées, *i.e.* une image 3D composée de voxels (pixels en 3D) où, à chaque voxel, une orientation (ou un identifiant de grain) est assignée. L'un des intérêts de générer des tessellations à partir d'un volume TCD est de pouvoir complètement automatiser, contrôler et post-traiter le maillage (Quey & Renversade, 2018). Cela dit, l'idéalisation des joints de grains dans la microstructure numérique peut conduire à des écarts entre les comportements réel et simulé à l'échelle microscopique, en particulier aux voisinages de points quadruples susceptibles d'être générés (autour desquels de fortes concentrations de contraintes, qui n'ont pas de réalité physique, peuvent être obtenues lors de la simulation).



**Figure 4.2** Ecarts à minimiser entre joints de grains expérimentaux (TCD) et numériques (Neper) de l'éprouvette Cu-Al-Be. a) Image de TCD pour une section 2D donnée. b) Cellules équivalentes de tessellations générées par Neper.

La solution initiale est générée à partir des centroïdes et volumes de grains TCD. En revanche, la fonction objectif à minimiser itérativement est construite par la comparaison des écarts de position entre les joints de grains de TCD (**Figure 4.2-a**) et les joints de cellules de tessellations (**Figure 4.2-b**).

En effet, un domaine cylindrique (polygone de 100 facettes) a été préalablement défini pour contenir le volume brut de TCD et rogner les voxels qui dépassent. Les images TCD d'un polycristal contiennent un grand nombre de voxels avec typiquement des résolutions de l'ordre du micromètre. Rappelons que la taille de pixel du détecteur de TCD utilisé pour cette éprouvette est de  $3\ \mu\text{m}$  ; Cela implique un nombre élevé de voxels aux joints de grains, ce qui rend la fonction objectif très « couteuse » d'un point de vue numérique. La solution implémentée dans Neper consiste à réduire le nombre de voxels de comparaisons en choisissant des « points de contrôle » pour décrire les joints de grains. La description des joints de grains par des points de contrôle est schématisée dans la **Figure 4.3**.



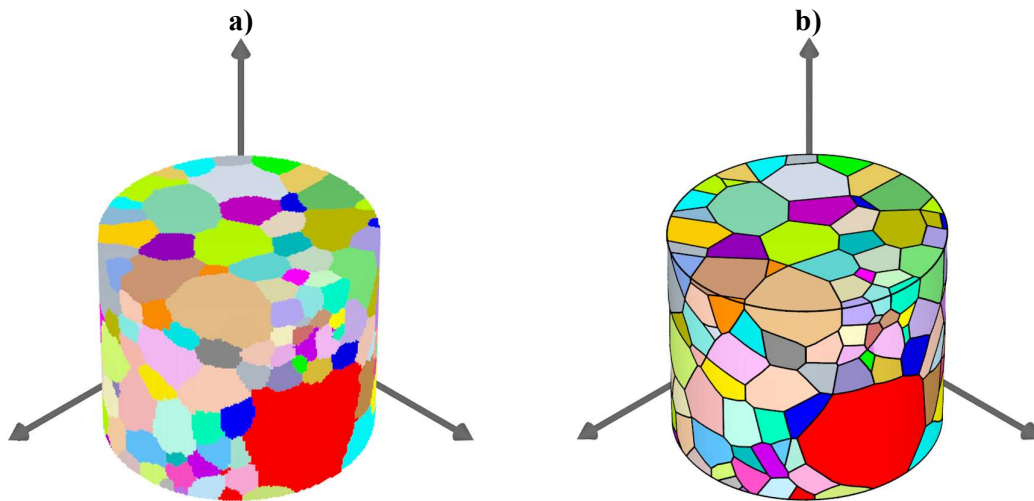
**Figure 4.3** Description des joints de grains expérimentaux par points de contrôle. (Quey & Rensversade, 2018). a) Résolution  $r = 15$  (lent). b)  $r = 10$ . c)  $r = 5$  (rapide).

Les points de contrôle sont obtenus par l'intersection des voxels des joints de grains avec une grille de résolution  $r$ . La résolution de la grille est définie par le rapport entre la taille du pixel de cette dernière et le diamètre moyen des grains. Un compromis est alors à chercher entre le nombre de points de contrôle (précision) et les temps de calcul.

Pour cette étape, les paramètres automatiques fournis par défaut sous Neper ont été utilisés. Une opération de « régularisation » des tessellations a également été effectuée pour enlever les faces de surface trop petites par rapport à la moyenne, en utilisant l'option « reg » de Neper.



La **Figure 4.4** montre le résultat final de la tessellation par Neper du volume analysé contenant 187 grains d'austénite.



**Figure 4.4** Génération de tessellations Laguerre des 187 grains à partir de la microstructure reconstruite par TCD. a) Image TCD post-traitée du polycristal. b) Tessellations finales.

Le pourcentage d'intersection volumique  $I^V$  (équation (4.1)) entre les grains  $G_i$  reconstruits en TCD et les cellules polyédriques  $C_i$  des tessellations peut atteindre des valeurs de l'ordre de 90% (Quey & Renversade, 2018), ce qui est assez proche du niveau de précision de la TCD (Syha, Trenkle, Lodermann, Graff, & Ludwig, 2013).

$$I^V = \frac{1}{V} \sum_{i=1}^N G_i \cap C_i \quad (4.1)$$

Le pourcentage exact d'intersection volumique entre les grains en TCD et les tessellations n'a pas été calculé pour le volume analysé. On peut cependant voir sur la **Figure 4.4** qu'il y a une correspondance satisfaisante entre les microstructures expérimentale et numérique.

#### 4.1.2. Génération de maillage à partir de tessellations et Implémentation du modèle géométrique de la microstructure 3D

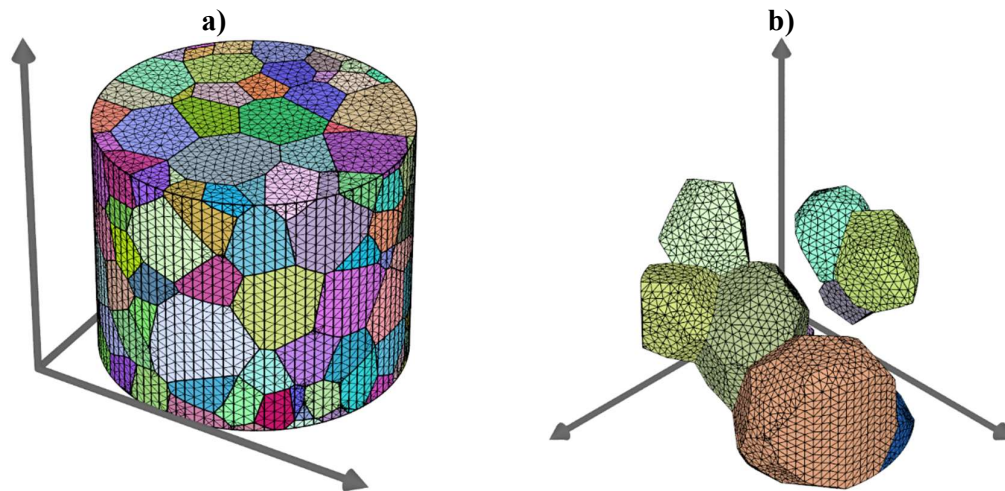
En plus du module « Neper – T » dédié aux tessellations de Laguerre, Neper dispose d'un mailleur qui génère un maillage de type éléments finis à partir des cellules de tessellations ou à partir d'un autre maillage (module Neper – M).

Dans notre travail, un maillage de la forme et l'agencement des 187 cellules polyédriques de tessellations (**Figure 4.4-b**) a été réalisé sous Neper.

Pour contrôler la qualité du maillage, Neper propose plusieurs options à introduire par l'utilisateur, notamment le type des éléments finis (options : « dim », « eltype », « order ») et la longueur caractéristique moyenne d'une arête (option « cl » ou « rcl »). Après plusieurs maillages générés avec différentes valeurs de « cl », le choix a porté sur le maillage obtenu pour une longueur caractéristique « cl » égale à 0,035. Cette valeur donne un bon compromis entre un maillage relativement fin et un nombre d'éléments finis gérable.

Ainsi nous avons obtenu un maillage comportant 96161 éléments finis de forme tétraédrique et de type C3D10. Les éléments finis notés C3D10 sont des éléments tétraédriques de second ordre à dix nœuds par élément. La solution numérique au problème discrétisé est obtenue sur quatre points d'intégration par extrapolation des résultats dans les nœuds en utilisant une fonction de forme de type quadratique où les éléments sont de second ordre (Zienkiewicz & Taylor, 1989).

La **Figure 4.5** montre la microstructure TCD de départ, les tessellations correspondantes ainsi que le maillage final importé dans Abaqus.



**Figure 4.5** Résultat final du maillage du volume analysé. a) Maillage complet des 187 grains. b) Visualisation de quelques grains maillés à l'intérieur de l'éprouvette.

Le maillage obtenu par Neper est ensuite exporté sous Abaqus pour des calculs par la méthode des éléments finis.

## 4.2. Modèle constitutif du comportement thermomécanique d'un monocristal d'AMF

Dans cette étude, le modèle de comportement thermomécanique du monocristal, développé au sein du laboratoire LEM3, a été utilisé (Siredey, Patoor, Berveiller, & Eberhardt, 1999). Il est basé sur une approche thermodynamique qui décrit la transformation directe et inverse (avec hystérésis) des domaines de martensite et leurs interactions, dans un AMF.

### 4.2.1. Déformation dans un Volume Élémentaire Représentatif (VER)

L'objectif est de prédire la déformation totale d'un AMF monocristallin lorsqu'il est soumis à un chargement en contrainte ou température (variables de pilotage). Cette déformation est composée de différentes contributions que sont la déformation élastique  $\underline{\underline{\varepsilon}}^e$ , la déformation thermique  $\underline{\underline{\varepsilon}}^{th}$  et la déformation de transformation  $\underline{\underline{\varepsilon}}^{tr}$ . en supposant que les niveaux de chargement n'induisent pas de plasticité, la déformation totale locale  $\underline{\underline{\varepsilon}}$  s'écrit :

$$\varepsilon_{ij} = \varepsilon_{ij}^e + \varepsilon_{ij}^{th} + \varepsilon_{ij}^{tr} \quad (4.2)$$

La déformation élastique est reliée au champ de contrainte locale par le module de souplesse  $\underline{\underline{S}} = \underline{\underline{C}}^{-1}$  où  $\underline{\underline{C}}$  est le module de rigidité élastique, selon la loi de Hooke :

$$\varepsilon_{ij}^e = S_{ijkl} \sigma_{kl} \quad (4.3)$$

La déformation thermique est reliée au changement de température par le coefficient de dilatation thermique  $\underline{\underline{\alpha}}$ :

$$\varepsilon_{ij}^{th} = \alpha_{ij} \Delta T \quad (4.4)$$

La déformation  $\underline{\underline{\varepsilon}}^n$  associée à l'activation de la variante  $n$  est reliée à son tenseur d'orientation  $\underline{\underline{R}}^n$  par une amplitude de glissement  $g$  caractéristique de l'AMF :

$$\varepsilon_{ij}^n = g R_{ij}^n = \frac{1}{2} g (n_i m_j + m_i n_j) \quad (4.5)$$

où  $n_i$  et  $m_j$  correspondent aux composantes  $i$  et  $j$  des vecteurs unitaires  $\vec{n}$  et  $\vec{m}$  associés respectivement à la normale au plan d'habitat et à la direction de transformation (cf. Chapitre 1).

La déformation de transformation correspond alors à la résultante des déformations de toute variante active :

$$\varepsilon_{ij}^{tr} = \sum_n \varepsilon_{ij}^n = g \sum_n R_{ij}^n f^n \quad (4.6)$$

où  $f^n$  est la fraction volumique de la variante  $n$  par rapport au volume total  $V$  composé de l'austénite ( $V^A$ ) et de la martensite ( $V^M$ ), ce qui donne :

$$\begin{cases} 0 \leq f^n = \frac{V^n}{V} \leq 1 \\ \sum_n f^n = f = \frac{V^M}{V} \leq 1 \end{cases} \quad (4.7)$$

On obtient alors, en notation indicielle :

$$\varepsilon_{ij} = S_{ijkl} \sigma_{kl} + \alpha_{ij} \Delta T + g \sum_n R_{ij}^n f^n \quad (4.8)$$

Les déformations macroscopiques  $\underline{\underline{E}}$  et les contraintes macroscopiques  $\underline{\underline{\Sigma}}$  sont obtenues par une moyenne sur le volume total  $V$  :

$$E_{ij} = \frac{1}{V} \int_v \varepsilon_{ij} dV \quad (4.9)$$

$$\Sigma_{ij} = \frac{1}{V} \int_v \sigma_{ij} dV \quad (4.10)$$

En faisant l'hypothèse que le module de souplesse élastique est uniforme et égal dans les deux phases, et que le coefficient de dilatation thermique et la température sont uniformes dans le volume, la déformation totale  $E_{ij}$  du monocristal s'écrit à partir de l'équation (4.8) :

$$E_{ij} = S_{ijkl} \Sigma_{kl} + \alpha_{ij} \Delta T + g \sum_n R_{ij}^n f^n \quad (4.11)$$

La déformation totale dépend donc des variables de pilotage  $\underline{\underline{\Sigma}}$  et  $T$ , mais aussi de l'évolution microstructurale reliée aux variables internes  $f^n$ . Afin de prédire l'évolution du comportement mécanique à travers la déformation totale du VER (point matériel), il faut déterminer l'évolution des variables internes que sont les fractions volumiques des variantes. Un potentiel thermodynamique est défini pour aboutir à ces lois d'évolution.

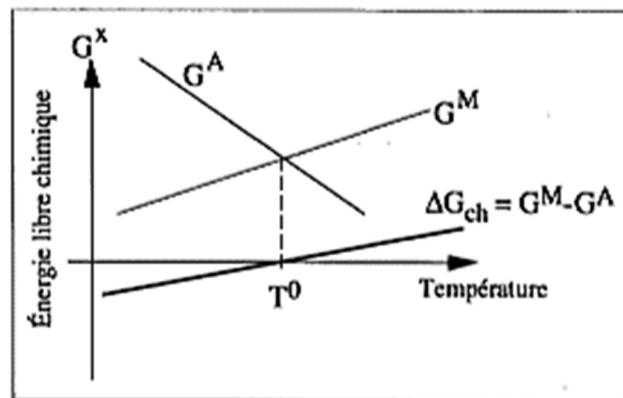
### 4.2.2. Potentiel thermodynamique du système austénite – martensite

Considérons un AMF de volume  $V$  soumis à une contrainte mécanique appliquée  $\Sigma$  et ayant un état de déformation  $E_{ij}$  à la température  $T$ . L'énergie libre d'Helmholtz  $\Phi$  associée au système austénite – martensite est composée de différentes contributions :

- a. Une énergie chimique (cristallographique) liée à la différence des énergies libres cristallographiques des deux phases  $G^M$  et  $G^A$  de fraction  $f$  et  $(1 - f)$  respectivement, en fonction de la température. Cette énergie est couramment linéarisée aux températures proches de la température d'équilibre thermodynamique ( $G^A = G^M$ ) comme schématisé dans la **Figure 4.6**. Elle s'écrit :

$$W_{ch} = \frac{1}{V} \int_V \Delta G dV = G^A + (G^M - G^A)f = B(T - T_0) \sum_n f^n \quad (4.12)$$

où  $T_0$  (température d'équilibre thermodynamique du système A/M) et  $B$  sont des paramètres du matériau.



**Figure 4.6** Représentation schématique des énergies libres chimiques (Entemeyer, 1996).

- b. Une énergie interfaciale associée aux surfaces d'interfaces austénite – martensite et martensite – martensite. Cette énergie est généralement négligée dans le cas de la transformation martensitique car la déformation de Bain est dominée par l'énergie de déformation. De même, les énergies libres provenant des défauts cristallins (dislocations, lacunes, ...) sont négligées.
- c. Une énergie élastique associée aux déformations élastiques résultant du chargement imposé et du champ de contraintes internes :

$$W_{\text{élas}} = \frac{1}{V} \int_V \frac{1}{2} \sigma_{ij} \varepsilon_{ij}^e dV \quad (4.13)$$

Dans le cas d'absence de chargement thermique appliqué, en supposant un chargement mécanique quasi-statique (contribution  $\underline{\underline{\varepsilon}}^{th}$  ne produisant pas de contraintes internes car la vitesse de transformation est suffisamment lente pour ne pas avoir des réactions endo ou exothermiques) ; et en décomposant d'autre part le champ de contraintes internes en un champ imposé  $\Sigma$  et un champ local  $\tau$  relié seulement aux incompatibilités de déformation  $\varepsilon^{tr}$  des variantes (moyenne nulle dans le volume), on définit l'énergie d'interaction par :

$$\left\{ \begin{array}{l} W_{int} = \frac{1}{2V} \int_V \tau_{ij} \varepsilon_{ij}^{tr} dV \\ \tau_{ij} = \sigma_{ij} - \Sigma_{ij} \end{array} \right. \quad (4.14)$$

L'énergie élastique se réécrit alors :

$$\begin{aligned} W_{\text{élas}} &= \frac{1}{2} \Sigma_{ij} E_{ij} - \Sigma_{ij} E_{ij}^{tr} - \frac{1}{2V} \int_V \tau_{ij} \varepsilon_{ij}^{tr} dV \\ &= \frac{1}{2} \Sigma_{ij} E_{ij} - \Sigma_{ij} \sum_n \varepsilon_{ij}^n f^n - W_{int} \end{aligned} \quad (4.15)$$

où  $\underline{\underline{E}}^{tr}$  est le tenseur macroscopique de déformation de transformation.

L'énergie libre d'Helmholtz par unité de volume est donc ainsi exprimée :

$$\Phi(\underline{\underline{E}}, T, f^n) = \frac{1}{2} \Sigma_{ij} E_{ij} + B(T - T_0) \sum_n f^n - \Sigma_{ij} \sum_n \varepsilon_{ij}^n f^n - W_{int} \quad (4.16)$$

Par transformée de Legendre, l'enthalpie libre (énergie de Gibbs) en fonction des variables de pilotage  $\underline{\underline{\Sigma}}$ , T et des variables internes  $f^n$ , est égale à  $(\Sigma_{ij} E_{ij} - \Phi)$  et s'écrit alors :

$$\Psi(\Sigma, T, f^n) = \frac{1}{2} \Sigma_{ij} S_{ijkl} \Sigma_{kl} + \Sigma_{ij} \sum_n \varepsilon_{ij}^n f^n - B(T - T_0) \sum_n f^n + W_{int} \quad (4.17)$$

L'équation (4.17) montre qu'en plus des variables internes et de pilotage, l'énergie libre du système dépend aussi de la microstructure par le biais de l'énergie d'interaction  $W_{int}$  qui décrit une énergie élastique associée aux contraintes locales d'incompatibilité de la transformation.

En se basant sur le fait que la croissance des interfaces et sous-domaines de martensite se fait sans dissipation, des analyses micromécaniques (Fassi-Fehri, Hihi, & Berveiller, 1987) (Bensalah, 1992) ont permis d'exprimer l'énergie d'interaction sous forme d'une matrice d'interaction,  $H^{nm}$ , telle que :

$$W_{int} = \frac{1}{2V} \int_V \tau_{ij} \varepsilon_{ij}^{tr} dV = \frac{1}{2} \sum_n \tau_{ij}^n \varepsilon_{ij}^n f^n = -\frac{1}{2} \sum_{n,m} H^{nm} f^n f^m \quad (4.18)$$

On obtient finalement :

$$\begin{aligned} \Psi(\underline{\underline{\Sigma}}, T, f^n) &= \frac{1}{2} \Sigma_{ij} S_{ijkl} \Sigma_{kl} + \Sigma_{ij} \sum_n \varepsilon_{ij}^n f^n - B(T - T_0) \sum_n f^n \\ &\quad - \frac{1}{2} \sum_{n,m} H^{nm} f^n f^m \end{aligned} \quad (4.19)$$

Ce potentiel thermodynamique de l'enthalpie libre décrit l'état du système austénite – martensite. Il est alors utilisé par la suite pour prédire l'évolution de la transformation.

### 4.2.3. Critères de transformation

Les valeurs  $\underline{\underline{\Sigma}}$ ,  $\underline{\underline{\varepsilon}}^n$ ,  $B$ ,  $T_0$  et  $H^{nm}$  étant des constantes propres au matériau, les variables internes  $f^n$  prennent la valeur qui minimise le potentiel  $\Psi$  du système austénite – martensite soumis au chargement thermomécanique défini par  $\underline{\underline{\Sigma}}$  et  $T$ . La minimisation de l'équation (4.19) doit cependant prendre en compte les  $n + 1$  restrictions physiques existantes sur ces variables internes et exprimées par les inégalités de l'équation (4.7). Les conditions de Karush-Kuhn-Tucker (Karush, 1939) (Tucker & Kuhn, 1951) sont utilisées pour résoudre le problème d'optimisation :

$$\text{Trouver } f^{n*} = \arg \min \Psi(\underline{\underline{\Sigma}}, T, f^n) \text{ sous les contraintes } \begin{cases} \sum_n f^n < 1 \\ -f^n < 0 \end{cases} \quad (4.20)$$

Ainsi, le Lagrangien de l'énergie libre s'écrit :

$$L(\underline{\underline{\Sigma}}, T, f^n) = \Psi(\underline{\underline{\Sigma}}, T, f^n) - \lambda_0 \left( \sum_n f^n - 1 \right) - \sum_n \lambda_n (-f^n) \quad (4.21)$$

Avec  $\lambda_0$  et  $\lambda_n$  sont les  $n + 1$  multiplicateurs de Lagrange associés aux  $n + 1$  contraintes d'inégalité et définis par :

$$\begin{cases} \lambda_0 \left( \sum_n f^n - 1 \right) \geq 0 \\ \lambda_n (-f^n) \geq 0, \text{ pour chaque } n \end{cases} \quad (4.22)$$

La force motrice de transformation  $F^n$ , agissant sur la variante  $n$ , est obtenue par la dérivée du Lagrangien par rapport à la variable interne  $f^n$  :

$$\begin{aligned} F^n &= \frac{\partial L}{\partial f^n} = \frac{\partial \Psi}{\partial f^n} - \lambda_0 + \lambda_n \\ &= -B(T - T_0) + \Sigma_{ij} \varepsilon_{ij}^n - \sum_m \mathbf{H}^{nm} f^m - \lambda_0 + \lambda_n \end{aligned} \quad (4.23)$$

La croissance d'une variante  $n$  ne peut avoir lieu que si la force motrice  $F^n$  atteint une valeur critique  $F_c^n$ . Etant donné que les variantes de martensite correspondent à des changements de symétries équivalentes, la force critique est supposée identique pour toutes les variantes. Elle est égale à  $F_c$  dans le cas de la transformation directe et à  $-F_c$  pour la transformation inverse. Le critère de transformation d'une variante s'écrit alors :

$$-B(T - T_0) + \Sigma_{ij} \varepsilon_{ij}^n - \sum_m \mathbf{H}^{nm} f^m - \lambda_0 + \lambda_n = \pm F_c \quad (4.24)$$

A contrainte nulle, les fractions  $f^n$  de martensite sont nulles jusqu'à ce que la force motrice critique atteigne les températures  $M_s$  et  $A_f$  (Transformation direct et inverse). Dans ce cas l'équation (4.24) s'écrit, suivant le sens de la transformation :

$$\begin{cases} -B(M_s - T_0) = F_c \\ -B(A_f - T_0) = -F_c \end{cases} \quad (4.25)$$

Cela permet d'exprimer  $F_c$  :

$$\begin{cases} F_c = -B(M_s - T_0) = -B(T_0 - A_f) \\ T_0 = (M_s + A_f)/2 \end{cases} \quad (4.26)$$

L'équation (4.24) montre qu'une variante de martensite est activée lorsqu'elle satisfait un critère de transformation dépendant des variantes déjà formées, du durcissement cumulé par l'interaction entre ces variantes ( $\mathbf{H}^{nm}$ ) et du chargement mécanique ( $\underline{\Sigma}, T$ ). A la frontière



définissant le début de transformation directe, toutes les fractions  $f^n$  sont encore nulles. Le critère de transformation s'écrit alors :

$$-B(T - T_0) + \Sigma_{ij} \varepsilon_{ij}^n = F_c \quad (4.27)$$

En introduisant les équations (4.5) et (4.26) dans l'équation (4.27), on obtient :

$$\Sigma_{ij} R_{ij}^n = \frac{B}{g}(T - M_s) \quad (4.28)$$

L'équation ci-dessus montre que l'apparition d'une variante  $n$  aura lieu lorsque la contrainte résolue de cette variante ( $\Sigma_{ij} R_{ij}^n$ ) atteint une valeur critique commune à toutes les variantes et égale à  $\frac{B}{g}(T - M_s)$ . Aussi, les variantes les mieux orientées par rapport au chargement ont des facteurs de Schmid  $R_{ij}^n$  élevés et seront alors les premiers à s'activer en étant les premiers à atteindre cette contrainte critique de transformation. Si par contre les contraintes  $\underline{\Sigma}$  sont nulles, toutes les variantes s'activent à  $T = M_s$  comme le prédit l'équation (4.28) ci-dessus.

#### 4.2.4. Loi d'évolution de la transformation :

Le critère de transformation permet de vérifier si une variante de martensite est susceptible de s'activer ou non pour un chargement ( $\underline{\Sigma}, T$ ) donné, en tenant compte de l'état microstructural. La loi d'évolution permet d'exprimer comment la fraction de martensite  $f^n$  évolue lorsque les variables de contrôle ( $\underline{\Sigma}, T$ ) changent.

La condition de consistance permet d'écrire :

$$\dot{F}^n = \frac{\partial F^n}{\partial \Sigma_{ij}} \dot{\Sigma}_{ij} + \frac{\partial F^n}{\partial T} \dot{T} + \frac{\partial F^n}{\partial f^n} \dot{f}^n = \dot{F}_c \quad (4.29)$$

Dans le cas du monocristal, la force critique de transformation est pratiquement indépendante de la fraction de martensite et du chargement. La dérivée  $\dot{F}_c$  est alors supposée égale à zéro. Cela donne en dérivant l'expression de la force motrice :

$$\varepsilon_{ij}^n \dot{\Sigma}_{ij} - B\dot{T} - \sum_m H^{nm} \dot{f}^n = 0 \quad (4.30)$$

Donc :

$$\dot{f}^n = \left[ \sum_m H^{nm} \right]^{-1} (\varepsilon_{ij}^n \dot{\Sigma}_{ij} - B\dot{T}) \quad (4.31)$$

Pour résumer, un critère de transformation a été établi pour déterminer les variantes de martensite qui s'activent. L'évolution des fractions volumiques de celles-ci est déterminée en fonction des variables de contrôle thermomécanique que sont la température et la contrainte. Ces différentes équations ont été implémentées dans le code Abaqus© pour simuler le comportement du polycristal.

### 4.3. Mise en données de la simulation numérique de l'essai de traction

La méthode des éléments finis a été utilisée pour simuler le comportement superélastique de l'éprouvette lors de l'essai expérimental de traction uniaxiale. La démarche suivie et les résultats obtenus sont présentés dans ce paragraphe.

#### 4.3.1. Implémentation de la loi de comportement du monocristal

Le code de calcul par éléments finis Abaqus® permet à l'utilisateur d'implémenter ses propres lois de comportement via des routines UMAT. Pour cela, la bibliothèque scientifique **Simcoon** a été utilisée (Chemisky, 2019). Il s'agit d'une interface API développée en C++ pour optimiser les performances des UMAT. Simcoon est développé et maintenu par Yves Chemisky, Professeur à l'Université de Bordeaux, en partie avec des modèles développés au LEM3 (Siredey, Patoor, Berveiller, & Eberhardt, 1999) (Peultier, Zineb, & Patoor, 2006) (Chemisky Y. , 2009) (Chemisky, Duval, Patoor, & Zineb, 2011) (Chatziathanasiou, Chemisky, Chatzigeorgiou, & Meraghni, 2016). Une implémentation du modèle de comportement thermomécanique d'un monocristal d'AMF est intégrée à Simcoon sous forme d'UMAT d'Abaqus®.

Pour cela, deux modules tangents  $\underline{\underline{l}}$  et  $\underline{\underline{m}}$  sont obtenus en combinant la loi d'évolution des fractions  $\dot{f}^n$ , l'expression de la déformation totale  $\underline{\underline{\varepsilon}}$  et la loi de Hooke. La loi de comportement s'écrit :

$$\dot{\sigma}_{ij} = l_{ijkl} \dot{\varepsilon}_{kl} - m_{ij} \dot{T} \quad (4.32)$$

où les deux opérateurs tangents sont exprimés en fonction des paramètres propres au matériau : tenseur d'élasticité, tenseurs de Schmid, tenseur d'interaction des variantes, amplitude de transformation, et coefficients de dilatation et de transformation thermiques  $\alpha$  et  $B$ .

La loi de comportement est intégrée par la méthode explicite d'Euler. A chaque pas de calcul, l'état des contraintes et les variables internes  $\Delta f^n$  sont recalculés en actualisant l'incrément de déformation et de température ainsi que les  $(n + 1)$  multiplicateurs positifs de Lagrange.

Les  $n$  multiplicateurs de Lagrange  $\lambda_n$  définis par les équations (4.21) et (4.22), correspondant aux contraintes  $f^n \geq 0$ , sont calculés en utilisant une loi de puissance dérivable :

$$\lambda_n(x) = \begin{cases} p_0(1-x)x^{-n_0} & \text{si } x \geq c_0 \\ p_0(c_0-x)(c_0^{-n_0} + n_0(1-c_0)c_0^{-n_0-1}) + \alpha_0(c_0-x)^2 & \text{si } x < c_0 \end{cases} \quad (4.33)$$

De même, le multiplicateur de Lagrange  $\lambda_0$ , correspondant à la contrainte  $f \leq 1$ , est modélisé par :

$$\lambda_0(x) = \begin{cases} p_1x(1-x)^{-n_1} & \text{si } x \leq c_1 \\ p_1(x-c_1)((1-c_1)^{-n_1} + n_1c_1(1-c_1)^{-n_1-1}) + \alpha_1(c_1-x)^2 & \text{si } x > c_1 \end{cases} \quad (4.34)$$

où les 8 paramètres  $p_0, c_0, n_0, \alpha_0, p_1, c_1, n_1$  et  $\alpha_1$  sont des paramètres numériques de lissage permettant de gérer le début de transformation et sa saturation.

Ceci signifie que les paramètres de Lagrange prennent une valeur proche d'une valeur nulle lors des transformations de phase, et que leurs valeurs augmentent exponentiellement, de manière continue et dérivable, lorsque la fraction de martensite se rapproche des valeurs extrêmes de sa plage de variation (0 et 1).

Cette procédure est effectuée à chaque point de Gauss (point d'intégration) de l'élément fini par le biais de l'UMAT, ce qui permet d'assembler la matrice de rigidité de tous les éléments finis de la structure par Abaqus® à chaque incrément.

### 4.3.2. Paramètres numériques et du matériau

Les paramètres caractéristiques de l'alliage Cu-Al-Be utilisés dans cette simulation ont été pris soit de la littérature, soit des spécifications du fournisseur. Ils sont donnés dans le Tableau 4.1.

Les vecteurs  $\vec{m}$  et  $\vec{\bar{m}}$  définissant les 24 variantes de martensite ainsi que leur matrice d'interaction  $H^{nm}$  sont décrits dans la thèse de Niclaeys (Niclaeys, 2002).

**Tableau 4.1** Paramètres matériau utilisés dans le calcul MEF

$C_{11}$ (GPa)	$C_{12}$ (GPa)	$C_{44}$ (GPa)	$M_s$ (K)	$A_f$ (K)	$B$ (MPa/K)	$g$
141,6	127,4	94,2	173	193	0,2	0,22

Des simulations ont été effectuées sur un volume géométrique simple pour optimiser le choix des 8 paramètres numériques liés aux multiplicateurs de Lagrange : un volume cylindrique maillé, divisé en 8 domaines identiques orientés aléatoirement, a été utilisé pour identifier les paramètres numériques qui permettent de gérer au mieux la saturation de la transformation (directe et réversible) et la convergence de la simulation. Des simulations ont été réalisées sur ce volume en changeant un des paramètres alternativement. L'ensemble de paramètres choisi à la fin de l'étude paramétrique est donné dans **Tableau 4.2**.

**Tableau 4.2** Paramètres numériques utilisés dans le calcul MEF

$c_0$	$p_0$	$\alpha_0$	$n_0$	$c_1$	$p_1$	$\alpha_1$	$n_1$
$10^{-6}$	0,1	$10^8$	0,5	$1-10^{-6}$	0,1	$10^8$	0,5

En raison de temps de calcul qui se mesure en semaines, l'étude paramétrique n'est pas réalisable sur le volume total de la microstructure finement maillée.

### 4.3.3. Conditions aux limites

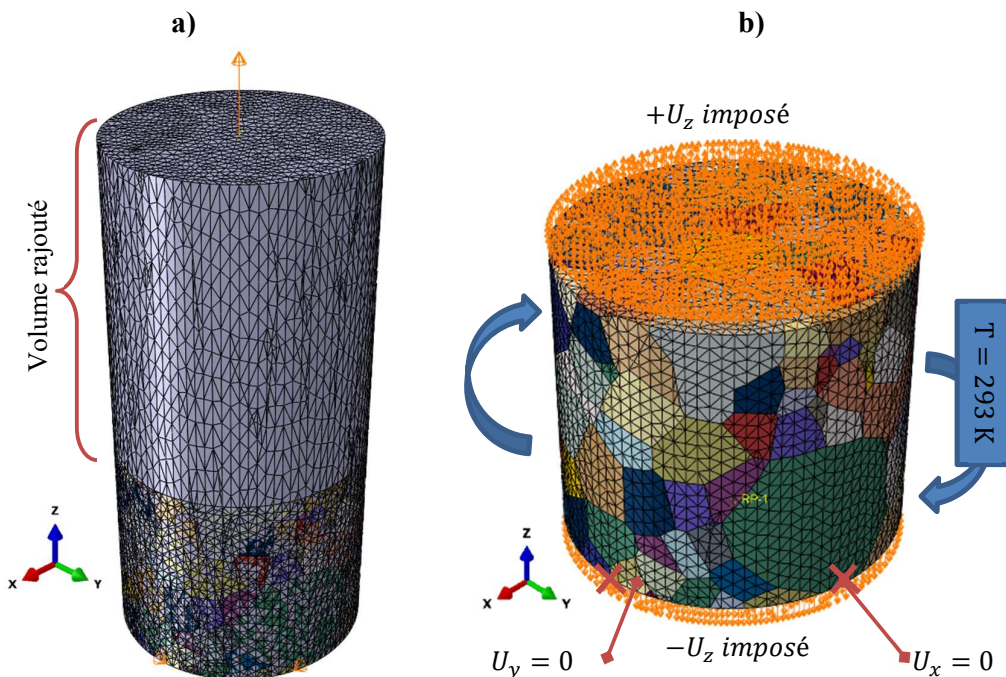
Après avoir importé le maillage de Neper dans Abaqus, chaque élément fini a été orienté selon l'orientation cristallographique moyenne du grain auquel l'élément appartient, l'orientation des grains étant obtenue expérimentalement par 3DXRD. Ensuite, un chargement a été appliqué à température constante égale à la température ambiante comme dans l'essai de traction expérimental.

Pour s'approcher au mieux des conditions expérimentales, le choix des conditions aux limites a été étudié. En effet la zone centrale, caractérisée par le faisceau de synchrotron et modélisée ici, est assez éloignée des mors de la machine de traction. La microstructure maillée est 40 fois inférieure à la longueur utile de l'éprouvette. Trois scénarios ont alors été proposés :

- a. Ajouter de la matière « réelle » de part et d'autre de la zone centrale pour pouvoir appliquer des conditions aux limites sur des régions bien éloignées de la zone du faisceau. Des grains de formes et orientations aléatoires peuvent être générés et rajoutés en utilisant Neper.

- b. Ajouter de la matière « fictive » via de longs ressorts artificiels, ayant un comportement équivalent au comportement élastique de l'éprouvette, attachés à la zone centrale et dont l'extrémité libre est soumise aux conditions aux limites du chargement.
- c. Appliquer les conditions aux limites directement sur la zone analysée en imposant le chargement sur ses surfaces supérieure et inférieure. Ensuite, les grains aux extrémités inférieure et supérieure seront exclus de l'analyse finale pour étudier des phénomènes intragranulaires, mais seront conservés pour des analyses et comparaisons macroscopiques.

Le premier scénario est très couteux en temps de calcul et ce même en faisant un maillage grossier de la (des) zone(s) rajoutée(s) et en imposant une loi de comportement élastique (cf. **Figure 4.7-a**). Il a donc été abandonné.



**Figure 4.7** Schématisation des choix de chargement et de conditions aux limites. a) Ajout de la matière. b) Déplacement imposé sur les deux extrémités du volume analysé.

Quant à l'utilisation des ressorts, des simulations préliminaires ont été effectuées en utilisant une loi de comportement élastique. Ces tests ont montré un très fort gradient de contraintes autour de la zone de contact surface – ressort, avec des valeurs aberrantes en contraintes aux extrémités, ce qui risquait de faire diverger le calcul avec la loi de comportement d'AMF. De ce fait, le troisième scénario a été retenu : un déplacement uniforme homogène  $U_z$  a été imposé

sur les deux surfaces extrêmes de la zone modélisée et sondée par le rayonnement synchrotron. Un déplacement nul a également été imposé dans les directions transverses sur deux nœuds aléatoires pour empêcher le mouvement de corps rigide (**Figure 4.7-b**). Le nombre de grains analysés reste représentatif de la réponse de l'éprouvette à l'essai de traction comme détaillé dans le chapitre 5.

#### 4.4. Résultats issus de la simulation numérique

Un calcul Abaqus/Standard a été effectué sur le cluster de calcul intensif Cassiopee de l'ENSAM. En effet, la librairie Simcoon est adaptée de façon à permettre des calculs parallélisés sur un large nombre de microprocesseurs.

L'implémentation informatique et le suivi de l'avancement de calcul (sauvegardes, lancements) ont été accomplis grâce aux compétences des administrateurs du cluster de calcul B. Piotrowski et T. Gross.

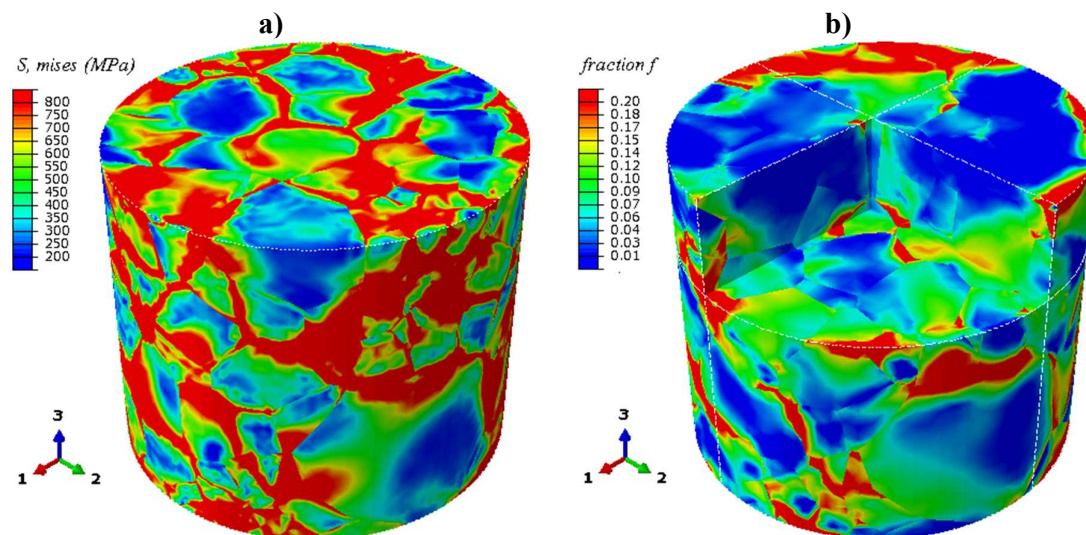
Les résultats seront décrits, analysés et comparés par les résultats expérimentaux dans le prochain chapitre. Dans ce paragraphe, une rapide présentation du type de résultats obtenu par la simulation est présentée.

Différents incréments de temps fixes et adaptatifs ont été testés. En fonction de ces paramètres, le temps de calcul variait de plusieurs jours à plusieurs semaines. La simulation est particulièrement lente dans le domaine de la transformation martensitique. Une divergence dans un seul point de Gauss parmi les 96161 éléments de la structure complète entraîne la divergence de toute la simulation. Ceci a constitué une grande difficulté à atteindre un stade avancé de la transformation. Chaque fois que le calcul diverge, il est relancé à partir d'un incrément antérieur en adaptant le pas incrémental et en utilisant l'option « restart » d'Abaqus.

Ainsi, nous avons réussi à atteindre une déformation totale  $E_{33} = 1,08\%$  ; ce qui correspond à un niveau de déformation compris entre les chargements n°5 et n°6 de l'essai de traction expérimental.

La **Figure 4.8** présente une illustration du résultat de la simulation numérique au dernier incrément du calcul MEF ( $E_{33} = 1,08\%$ ) en termes de contraintes de Von-Mises et de fraction volumique  $f$  (entre 0 et 1) de la martensite, pour tout le volume cylindrique simulé.

En effet, la simulation numérique permet d'accéder à des informations non accessibles expérimentalement (par 3DXRD), notamment la fraction de la phase martensitique à chaque élément fini des grains maillés et la déformation de transformation.



**Figure 4.8** Visualisation du calcul par éléments finis à  $E_{33} = 1,08 \%$ . a) Contraintes de Von-Mises dans l'échantillon. b) Fractions volumiques de martensite dans l'échantillon, avec des demi-coupes dans les trois directions du repère universel.

Une forte hétérogénéité de contraintes et de transformation martensitique est effectivement observée dans l'échantillon comme le montre la **Figure 4.8**. Ces résultats ont été post-traités et seront analysés à l'échelle de grain (quantitativement) ainsi qu'à l'échelle microscopique (qualitativement) dans la suite de ce manuscrit.

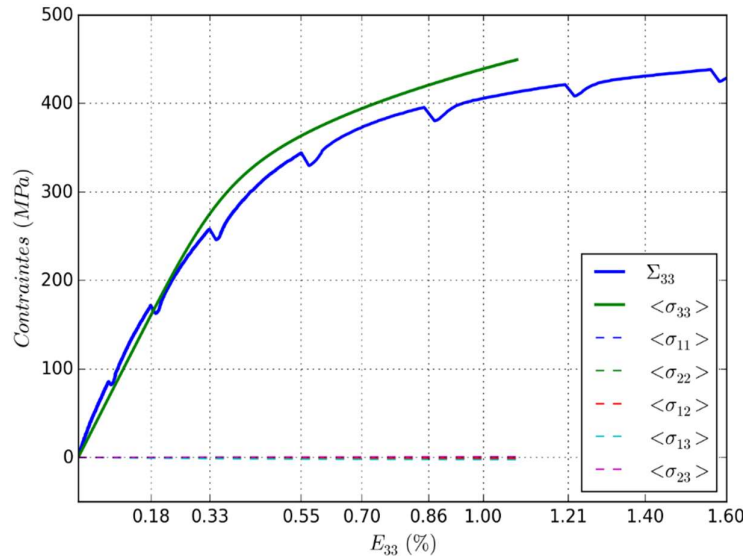
#### 4.4.1. Post-traitement et validation des résultats de la simulation

Le résultat de la simulation numérique a été post-traité en vue d'une analyse à différentes échelles et un dialogue avec l'essai de traction expérimental. Des scripts de post-traitement ont été codés en Python pour extraire les données à chaque incrément de temps, pour chaque élément fini dans chacun des 187 grains.

La courbe de traction expérimentale et le tenseur de contraintes moyen sur les 96161 éléments, obtenu après post-traitement de la simulation, sont tracés dans la **Figure 4.9**.

La **Figure 4.9** montre une très bonne correspondance entre le tenseur moyen  $\langle \sigma_{ij} \rangle$  obtenu par la simulation numérique et le chargement uniaxial imposé à l'éprouvette lors de l'essai

expérimental de traction. La contrainte moyenne dans la direction de traction  $\langle \sigma_{33} \rangle$  numérique est très proche du chargement expérimental  $\Sigma_{33}$  imposé. L'écart entre  $\langle \sigma_{33} \rangle$  de simulation et  $\Sigma_{33}$  est de l'ordre de 30 MPa à 1% de déformation expérimentale  $E_{33}$ . Les cinq autres composantes du tenseur des contraintes extraites de la simulation sont, en moyenne, nulles et n'évoluent pas au cours du chargement uniaxial.



**Figure 4.9** Comparaison entre le comportement superélastique expérimental (tiret bleu continu) et le comportement macroscopique résultant de la simulation numérique.

Ce résultat démontre qu'à l'échelle macroscopique la simulation numérique (donc le modèle de comportement) reproduit très bien l'essai de traction expérimental.

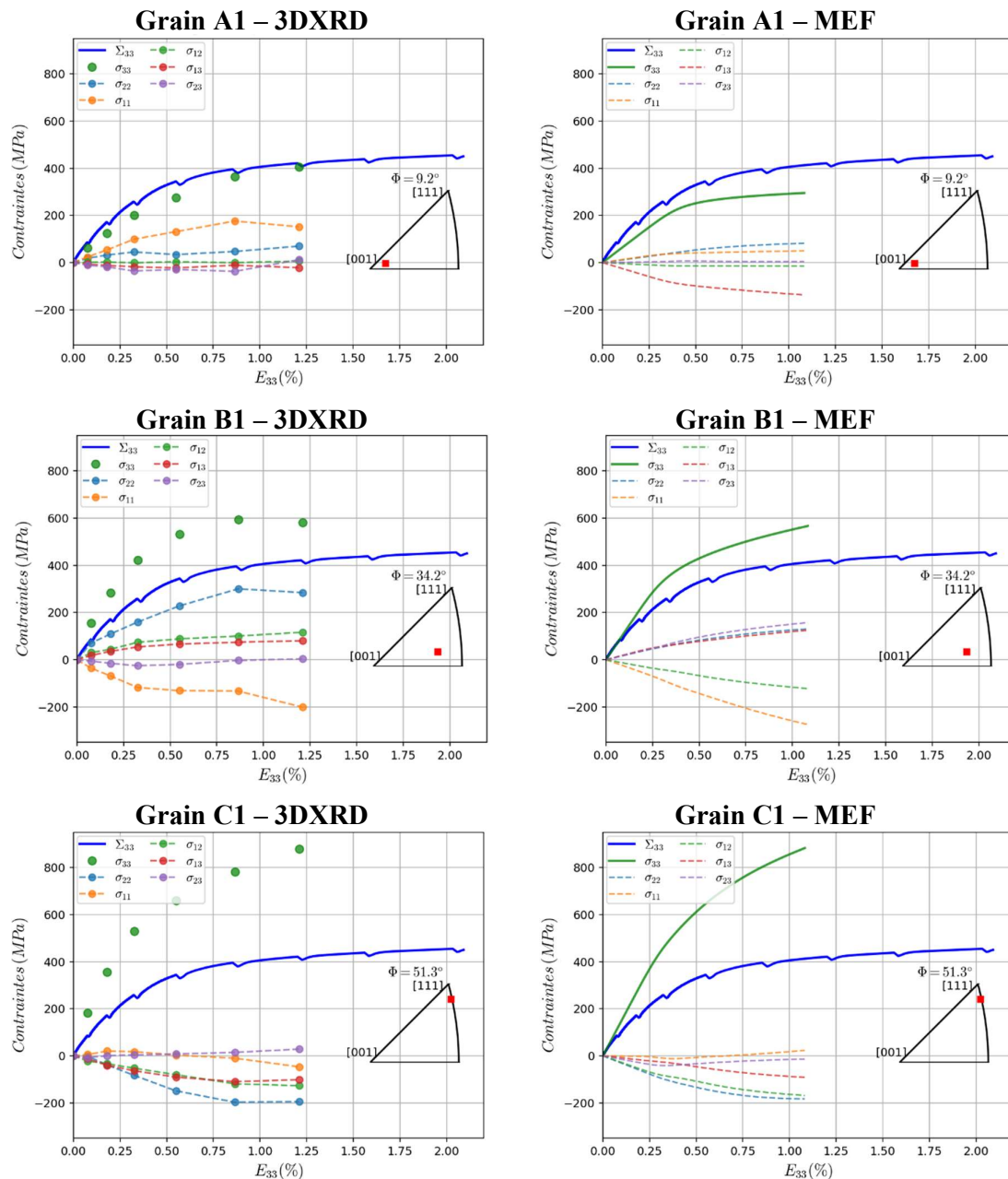
#### 4.4.2. Comportement mécanique moyen sur le grain

Les différents tenseurs reliés à chaque élément fini peuvent être moyennés grain à grain en pondérant par le volume des éléments finis appartenant au grain considéré. Ainsi, un tenseur de contraintes moyennes du grain, par exemple, est obtenu et peut être comparé au tenseur moyen du grain obtenu expérimentalement par la 3DXRD.

L'évolution des tenseurs de contraintes internes expérimentales et numériques en fonction du pas de chargement est représentée dans les courbes de la **Figure 4.10** pour les trois grains A1, B1 et C1 analysés en 3DXRD dans le chapitre 3. La même légende des graphes est utilisée pour comparer visuellement les contraintes numériques et expérimentales.



La **Figure 4.10** montre que, d'une manière générale, il y a une très bonne correspondance entre les valeurs expérimentales et numériques à l'échelle de la moyenne dans les grains individuels de l'austénite. Pour ces trois grains pris au hasard à différentes orientations, les seuls écarts relativement significatifs sont observés dans la contrainte  $\sigma_{12}$  du grain B1 et, à un degré moindre, la contrainte  $\sigma_{13}$  du grain A1.



**Figure 4.10** Comparaison numérique – expérimental de l'évolution de l'état de contraintes dans trois grains de différentes orientations cristallographiques.

Le degré de correspondance MEF – 3DXRD est plus ou moins différent d'un grain à un autre dans le polycristal, comme le montre le grain C1 où la concordance MEF – 3DXRD est nettement visible. Cette comparaison des résultats numériques et expérimentaux, à l'échelle macroscopique comme à l'échelle mésoscopique (moyenne par grain), a permis de valider la démarche suivie dans la modélisation et la simulation numérique de l'essai de traction dans le polycristal.

Cette dernière reproduit très bien le résultat expérimental et ce malgré différentes sources de divergence qui sont entre autres :

- un volume simulé 40 fois plus petit que la longueur utile de l'éprouvette,
- des contraintes résiduelles non prises en compte dans la simulation,
- des constantes élastiques supposées égales dans l'austénite et la martensite,
- des températures de transformation dans le calcul MEF égales aux valeurs théoriques données par le fournisseur, en ignorant les éventuels changements suite aux traitements thermiques,
- des propagations d'erreurs expérimentales et numériques (simplifications du modèle, microstructure numérique idéalisée, conditions aux limites).

Enfin, ce type de dialogue expérimental – numérique sera abordé plus en détail dans le cinquième et dernier chapitre de ce manuscrit. Le comportement intergranulaire hétérogène observé expérimentalement dans le chapitre 3 sera étudié vis-à-vis la microstructure 3D, en tenant compte des informations supplémentaires fournies par la simulation, notamment les fractions de variantes de la martensite à chaque incrément, la déformation de transformation et les éventuelles hétérogénéités intragranulaires.

## Conclusion

La microstructure 3D obtenue expérimentalement par la TCD a été digitalisée et maillée en utilisant les algorithmes de Neper®. Des tessellations de Laguerre optimisées et régularisées ont été créées à partir des voxels de la TCD définissant 187 grains austénitiques. Visuellement, une correspondance satisfaisante a été observée entre la microstructure expérimentale de la TCD et la microstructure idéalisée des tessellations. Cette dernière a été maillée en 96161 éléments tétraédriques à dix nœuds et quatre points d'intégration ; le maillage a été exporté à Abaqus® en vue de calculs par la méthode d'éléments finis (MEF).

D'autre part, un modèle thermodynamique de comportement du monocristal d'AMF a été importé dans Abaqus® grâce à la bibliothèque d'UMAT Simcoon®. Cette loi de comportement a été appliquée à chaque élément fini de volume à simuler. L'intérêt de ce modèle, par rapport à la technique de diffraction 3DXRD, est la prédiction du comportement mécanique à l'échelle microscopique intragranulaire et la description du domaine biphasé en fournissant les fractions des différentes variantes activées de la martensite.

Après la mise en données de la simulation en introduisant les paramètres numériques et matériaux, les conditions aux limites et le chargement (déplacement uniaxial) imposé, les calculs MEF ont été réalisés au niveau du cluster de calcul intensif de l'ENSAM. Le calcul a convergé jusqu'au 1,08% de déformation macroscopique dans la direction de traction.

Ceci est suffisant pour avoir des résultats dans les domaines élastiques et de la transformation martensitique, lesquels peuvent être utilisés pour un dialogue 3DXRD – MEF pour les six premiers pas de chargement mesurés expérimentalement. En effet, les résultats MEF de chaque élément fini à chaque incrément de déformation ont été post-traités et comparés aux résultats de la 3DXRD. Malgré les incertitudes expérimentales et les hypothèses sur les modélisations géométrique et mécanique, une très bonne correspondance a été montrée entre l'expérimental et la simulation numérique à l'échelle macroscopique sur l'éprouvette et à l'échelle mésoscopique moyen sur le grain.

Dans le chapitre 5, nous détaillerons le dialogue expérimental – numérique à l'échelle mésoscopique et nous discuterons les résultats supplémentaires fournis par le calcul MEF, notamment la transformation martensitique et le comportement à l'échelle local microscopique.



## 5. Analyse multi-échelle de la transformation martensitique

5. Analyse multi-échelle de la transformation martensitique.....	133
Introduction .....	135
5.1 Evolution de la transformation martensitique à l'échelle de l'éprouvette.....	136
5.2 Etude de la transformation martensitique à l'échelle de grains austénitiques .....	137
5.2.1 Evolution de la déformation et début de la transformation.....	137
5.2.2 Développement de la transformation dans le grain C1 .....	140
5.2.2.1 Analyse des variantes activées et de leur croissance .....	140
5.2.2.2 Evolution des cissions résolues.....	142
5.2.2.3 Analyse par far facteurs de Schmid mécaniques .....	145
5.2.3 Comparaison de la TM dans les grains orientés [100], [110] et [111].....	146
5.3 Influence de la microstructure sur le comportement à l'échelle mésoscopique ..	149
5.3.1 Choix des doublets de grains.....	149
5.3.2 Effet de l'orientation .....	151
5.3.3 Effet des grains voisins et des hétérogénéités à l'échelle microscopique ....	154
5.3.3.1 Grains de même orientation sans voisins communs .....	154
5.3.3.2 Grains d'orientation proches et ayant des voisins en commun.....	158
5.3.3.3 Effet des interfaces austénite / martensite sur la rotation des grains ....	163
5.3.4 Effet de localisation et de taille de grain .....	165
Conclusion.....	167



## Introduction

L'analyse des résultats expérimentaux (TCD et 3DXRD) et numériques (MEF) permet d'étudier le comportement superélastique de l'austénite et l'évolution de la microstructure initiale par transformation en martensite. Les résultats de 3DXRD se limitent à la phase austénite et donnent accès à une information moyennée dans chaque grain austénitique. A titre d'exemple, la déformation de transformation dans le grain d'austénite n'est pas mesurée en 3DXRD car les variantes de martensite n'ont pas été indexées.

L'information relative à l'activation et la croissance de la martensite est en revanche accessible par les résultats numériques de simulation. En effet, la loi de comportement considérée dans modélisation par MEF permet de prédire la fraction volumique de chaque variante de martensite, dans chacun des éléments du maillage. Ceci permet par exemple de calculer la déformation de transformation dans l'élément, en plus de la déformation élastique. Le **Tableau 5.1** résume les principales données accessibles expérimentalement et/ou numériquement.

**Tableau 5.1** Données accessibles à l'échelle microscopique par MEF ou à l'échelle intergranulaire par 3DXRD

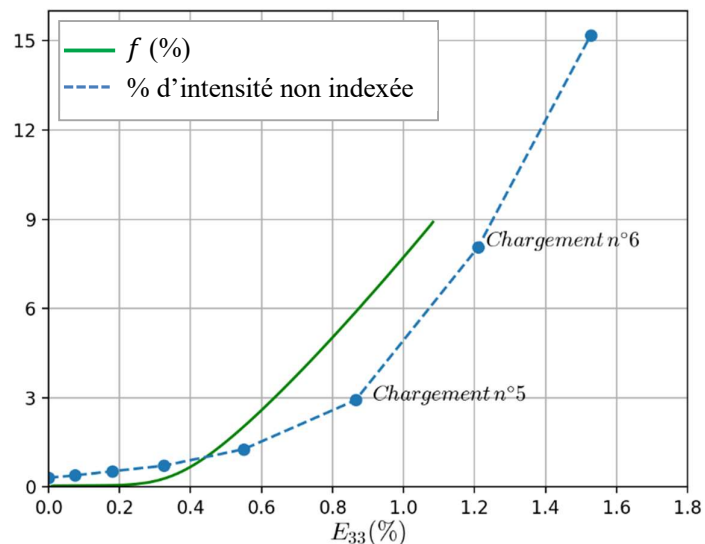
3DXRD	MEF
Tenseur de déformation élastique $\underline{\underline{\varepsilon}}^e$	Tenseur de déformation élastique $\underline{\underline{\varepsilon}}^e$
-	Tenseur de déformation de transformation $\underline{\underline{\varepsilon}}^{tr}$
-	Déformation totale $\underline{\underline{\varepsilon}} = \underline{\underline{\varepsilon}}^e + \underline{\underline{\varepsilon}}^{tr}$
Tenseur de contraintes $\underline{\underline{\sigma}}$	Tenseur de contraintes $\underline{\underline{\sigma}}$
Orientation cristallographique initiale	Orientation cristallographique initiale
Rotation des grains	-
-	Fraction volumique des 24 variantes de martensite $f_i$

Dans cette dernière partie du manuscrit, nous allons exploiter et faire dialoguer ces données expérimentales et numériques pour étudier la relation entre la transformation de phase, l'état mécanique et la microstructure initiale, depuis l'échelle macroscopique jusqu'à l'échelle microscopique ou intragranulaire.

## 5.1 Evolution de la transformation martensitique à l'échelle de l'éprouvette

La simulation de l'essai de traction par MEF fournit la fraction volumique totale de martensite (notée  $f$ ) par rapport au volume austénitique initial de l'éprouvette. Quant à la méthode de diffraction 3DXRD, il a été montré dans le chapitre 3 de ce mémoire que l'intensité d'un pic collecté est proportionnelle au volume diffractant, d'une part. D'autre part, uniquement les pics émanant de l'austénite ont été indexés à chaque mesure 3DXRD liée à un chargement. Une estimation de l'ordre de grandeur de la fraction volumique de martensite a alors été proposée comme étant le rapport de la somme des intensités non indexées (à l'austénite) sur la somme des toutes les intensités collectées pour un chargement donné.

La fraction du signal de diffraction non indexé à l'austénite à chaque chargement est reportée dans la **Figure 5.1**, accompagnée de la fraction de martensite obtenue par MEF à chaque incrément de déformation.



**Figure 5.1** Comparaison entre la fraction de martensite obtenue par la MEF et la fraction d'intensité non indexée par 3DXRD.

On observe de la **Figure 5.1** que jusqu'au 2<sup>ème</sup> chargement ( $E_{33} < 0,2\%$ ) l'éprouvette est quasiment 100% austénitique. En 3DXRD, une fraction de 0,4% d'intensités n'est pas indexée à l'austénite, ce qui peut être attribué en partie à une petite fraction de martensite résiduelle à l'état initial comme discuté dans le chapitre 3.



Au-delà de ce chargement imposé, la fraction de martensite par MEF augmente au cours de la traction jusqu'à atteindre une fraction volumique finale de 9% à la fin de la simulation à  $E_{33} = 1,08\%$ . On observe cependant que la vitesse d'évolution de la fraction estimée de martensite, entre le chargement n°3 et le chargement n°5, est nettement inférieure à celle obtenue par MEF.

En effet, cette sous-estimation du volume martensitique en 3DXRD peut s'expliquer par les limites de segmentation des intensités. Au début de la transformation, les pics émanant des domaines martensitiques sont de faibles intensités car la croissance de ces domaines n'en est qu'à ses débuts. Il en résulte qu'une partie relativement importante de ces pics de martensite ne sera pas collectée puisqu'elle est considérée au même niveau que le bruit de fond lors du seuillage et de la segmentation des intensités.

Au-delà du chargement n°5, la transformation a avancé au point d'avoir un volume de martensite suffisant pour que les pics de martensite soient bien plus intenses que le seuil de sensibilité de 3DXRD, ce qui se traduit par un dosage de phase qui se rapproche de celui de la simulation comme le montre la **Figure 5.1**. Au-delà du chargement n°7, de plus en plus de pics émanant de l'austénite déformée seront difficiles à collecter et à indexer, ce qui peut produire cette fois-ci une surestimation de la fraction de martensite par 3DXRD.

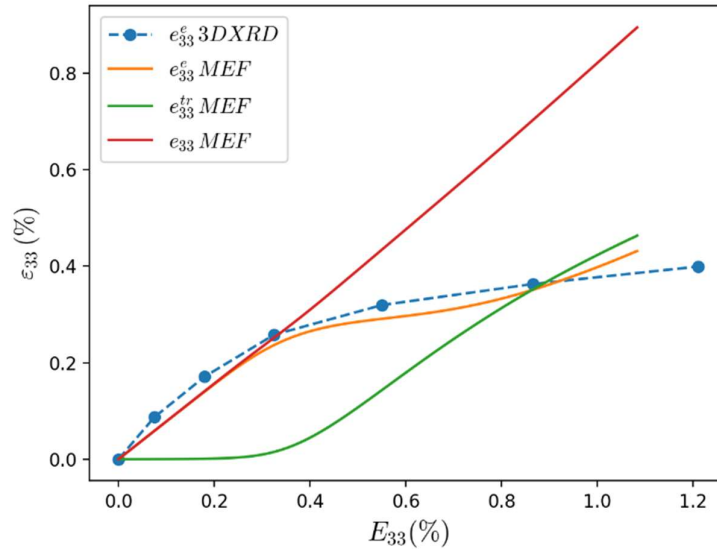
En conclusion, une estimation de la fraction de martensite dans l'échantillon peut être réalisée à partir des mesures 3DXRD. Cependant, cette fraction sera sous-estimée aux faibles chargements et surestimée aux chargements très élevés.

## 5.2 Etude de la transformation martensitique à l'échelle de grains austénitiques

### 5.2.1 Evolution de la déformation et début de la transformation

La déformation totale  $\varepsilon_{33}$ , la déformation de transformation  $\varepsilon_{33}^{tr}$  et la déformation élastique  $\varepsilon_{33}^e$  peuvent être estimées par MEF pour chaque grain lors du chargement superélastique. La **Figure 5.2** reporte le cas du grain C1 d'orientation proche de [111], en fonction de la déformation imposée  $E_{33}$ . Deux domaines de comportement sont observés sur cette **Figure 5.2**. Lorsque la déformation imposée  $E_{33}$  est inférieure à 0,3% (domaine 1), la déformation de transformation  $\varepsilon_{33}^{tr}$  est nulle et la déformation totale  $\varepsilon_{33}$  est égale à la déformation élastique  $\varepsilon_{33}^e$  qui augmente linéairement avec la déformation imposée. Au moment où la déformation

imposée est supérieure à 0,3% (domaine 2), le grain affiche une déformation de transformation croissante, au détriment de sa déformation élastique qui évolue nettement moins rapidement par rapport au 1<sup>er</sup> domaine. Donc le grain a un comportement purement élastique jusqu'au chargement  $E_{33} = 0,3\%$  qui constitue le début de transformation dans le grain C1. Ensuite la déformation de transformation augmente rapidement jusqu'à dépasser la déformation élastique pour  $E_{33} = 0,85\%$ .



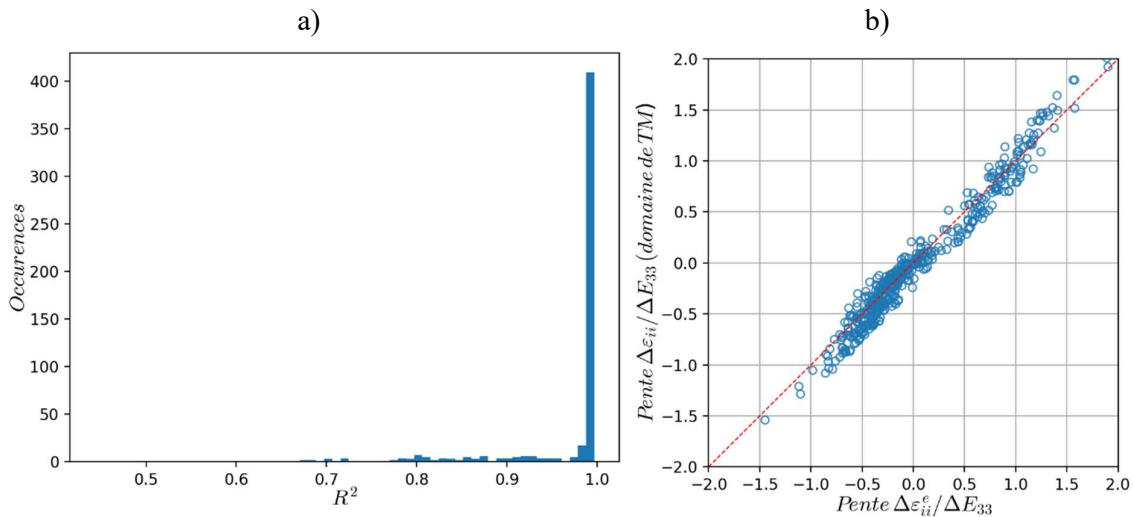
**Figure 5.2** Évolution des contributions de déformation dans la direction de traction, en fonction de la déformation macroscopique imposée, pour le grain C1.

L'analyse des deux contributions de déformation a donc permis de confirmer que le début de la TM dans le grain C1 a lieu autour du chargement expérimental n°3, ce qui rejoint le résultat reporté dans le chapitre 3 (Figure 3.21). Aussi, le début de transformation dans un grain est bel et bien prédictible expérimentalement en se basant sur l'allure des courbes de comportement du grain par 3DXRD. D'autre part, la **Figure 5.2** montre que la déformation obtenue par 3DXRD à l'échelle du grain est effectivement limitée à la contribution élastique. Une très bonne correspondance entre les déformations  $\varepsilon_{33}^e$  expérimentale et numérique est observée dans ce grain, que ce soit avant ou après l'apparition de la martensite. Le même constat a été fait pour les autres composantes du tenseur  $\underline{\underline{\varepsilon}}^e$ , numérique et expérimental. L'analyse grain à grain a permis de confirmer une bonne correspondance entre les valeurs numériques et expérimentales de  $\underline{\underline{\varepsilon}}^e$  pour au moins 80% des grains dans l'échantillon.

D'autre part, on observe de la **Figure 5.2** que la déformation totale  $\varepsilon_{33}$  (courbe en rouge) évolue quasi-linéairement en fonction de  $E_{33}$  dans le domaine de transformation, avec une pente

quasiment identique à celle observée en élasticité. Cette large conservation de linéarité, entre  $\varepsilon_{33}$  et la déformation macroscopique  $E_{33}$  dans les deux domaines de comportement, est observée également pour les 5 autres composantes tensorielles et la majeure partie des grains de l'échantillon comme le montre la **Figure 5.3**.

En effet, une régression linéaire a été réalisée entre les composantes du tenseur de déformation totale  $\varepsilon$  de chaque grain et la déformation imposée  $E_{33}$ , en utilisant les résultats MEF dans le domaine de TM. La distribution des coefficients  $R^2$  de régression linéaire obtenus est tracée dans la **Figure 5.3-a** pour les 3 composantes axiales des 187 grains. L'historgramme de la **Figure 5.3-a** montre que le coefficient de régression est très proche de 1. Les composantes du tenseur de déformation varient donc bien linéairement avec la déformation macroscopique  $E_{33}$ . Puis, les pentes des droites de régression pour chaque composante de déformation ( $\varepsilon_{11} = f(E_{33})$ ,  $\varepsilon_{22} = f(E_{33})$  et  $\varepsilon_{33} = f(E_{33})$ ) après transformation ont été tracées dans la **Figure 5.3-b** en fonction des mêmes pentes avant transformation (domaine élastique), pour tous les grains dont le coefficient de régression linéaire  $R^2$  est supérieur à 0,95. Les composantes de cisaillement ne sont pas incluses dans le tracé pour simplifier sa visualisation.



**Figure 5.3** Évolution des pentes de déformations élastique et de transformation dans les grains en fonction de la déformation imposée. a) Distribution des coefficients de détermination de régression linéaire. b) Comparaison de la pente de la droite  $\varepsilon_{ii} = f(E_{33})$  dans le domaine de transformation par rapport au domaine élastique et, pour les 3 composantes diagonales (axiales). La ligne en pointillés est la droite d'équation  $y = x$ .

La **Figure 5.3-b** montre que les pentes dans le domaine de transformation sont proches de celles du domaine élastique. Ce résultat est particulièrement utile dans le cas d'un essai expérimental de 3DXRD : la déformation totale lors de la transformation d'un grain, n'étant pas accessible expérimentalement, peut tout de même être approximée par une extrapolation du tenseur élastique linéaire suivant  $E_{33}$ . Cette démarche permet alors de donner une estimation de la fraction de martensite dans le grain à partir de la 3DXRD, notamment en supposant qu'uniquement la variante la mieux orientée selon le critère de Schmid est activée. Une telle estimation par 3DXRD de la fraction de martensite, basée sur la réponse mécanique du grain, peut être combinée aux prédictions basées sur l'analyse cristallographique des pics diffractés (indexés ou non à l'austénite) telles qu'elles sont discutées dans le chapitre 3 du manuscrit pour obtenir un ordre de grandeur de la fraction de martensite à l'échelle moyenne du grain. De telles estimations de la phase martensitique à partir des composantes de déformation élastique  $\underline{\underline{\varepsilon}}^e$  de 3DXRD seraient de moins en moins précises pour des déformations imposées plus élevées que la présente simulation ( $E_{33} \gg 1,1\%$ ) et accompagnées d'une croissance plus importante de différentes variantes de martensite ( $f \gg 9\%$ ).

## 5.2.2 Développement de la transformation dans le grain C1

Les 24 fractions volumiques des variantes de martensite, susceptibles de croître dans un volume initial austénitique, sont données numériquement pour chaque élément fini à chaque incrément de déformation imposée. Aussi, il est possible d'étudier l'évolution de la microstructure dans chaque grain en analysant les 24 variantes martensitiques activées et leur croissance en fonction de la microstructure initiale et du chargement appliqué.

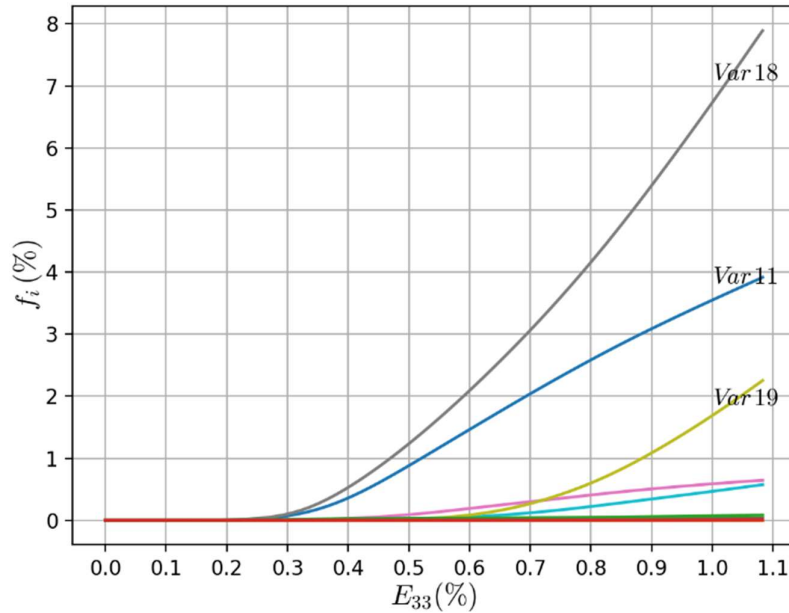
### 5.2.2.1 Analyse des variantes activées et de leur croissance

La **Figure 5.4** présente les 24 fractions volumiques  $f_i$ , moyennées sur tous les éléments finis du grain C1, en fonction de la déformation macroscopique.

On remarque que les deux variantes n°18 et n°11 apparaissent à  $E_{33} = 0,3\%$  et atteignent des fractions proches de 8% et de 4%, respectivement, à  $E_{33} = 1,08\%$ . La variante 19 s'active en revanche à  $E_{33} = 0,6\%$  pour atteindre une fraction de 2,2% à  $E_{33} = 1,08\%$ . Deux autres variantes s'activent à  $E_{33} = 0,5\%$  et  $E_{33} = 0,6\%$  mais leur croissance est gênée vu leur fraction finale ( $E_{33} = 1,08\%$ ) qui ne dépasse pas 0,7%.

Le **Tableau 5.2** présente les 24 facteurs de Schmid du grain C1 calculés par rapport à son orientation initiale. Le facteur de Schmid maximal est égal à 0,18 pour ce grain – ce qui est

faible – car il s’agit de grain proche de [111] et donc mal orienté par rapport à l’axe de chargement. On remarque à partir du **Tableau 5.2** que les variantes 11 et 18 qui se développent dans le grain C1 sont les deux variantes ayant le facteur de Schmid le plus élevé (0,17 et 0,18).



**Figure 5.4** Fraction volumique des variantes individuelles de martensite dans le grain C1.

Ce résultat montre que le mode de début de transformation dans le grain suit le critère de Schmid : la transformation s’initie par l’activation des variantes les mieux orientées, *i.e.* les variantes ayant le facteur de Schmid le plus élevé.

**Tableau 5.2** Facteur de Schmid des 24 variantes possibles de martensite dans le grain C1

Var 1	Var 2	Var 3	Var 4	Var 5	Var 6	Var 7	Var 8
0,00	-0,13	0,13	-0,05	-0,05	0,08	0,09	-0,06
Var 9	Var 10	Var 11	Var 12	Var 13	Var 14	Var 15	Var 16
0,00	0,01	<b>0,18</b>	-0,14	-0,07	-0,06	0,02	0,03
Var 17	Var 18	Var 19	Var 20	Var 21	Var 22	Var 23	Var 24
-0,13	<b>0,17</b>	0,02	-0,00	-0,01	-0,13	0,12	-0,04

La variante 7 ayant un facteur de Schmid moins élevé égal à 0,09 s’active à  $E_{33} = 0,4\%$  mais sa croissance, en moyenne volumique sur tout le grain, reste assez faible. Cela suggère une croissance potentiellement très localisée des plaquettes de la variante 7 dans le grain.

A  $E_{33} = 0,6\%$ , les deux variantes les mieux orientées atteignent des fractions volumiques  $f_{18} = 2\%$  et  $f_{11} = 1,5\%$ . A ce stade une variante de faible facteur de Schmid, en l’occurrence la

variante 19 ayant un facteur de Schmid de 0,02, s'active et croit au cours du chargement superélastique avec une augmentation similaire aux variantes bien orientées.

Ces deux résultats montrent que, contrairement au début de transformation, le facteur de Schmid n'est probablement pas le seul critère qui régit l'apparition de nouvelles variantes au fur et à mesure que la microstructure et le champ de contraintes locales évoluent durant la transformation.

### 5.2.2.2 Evolution des cissions résolues

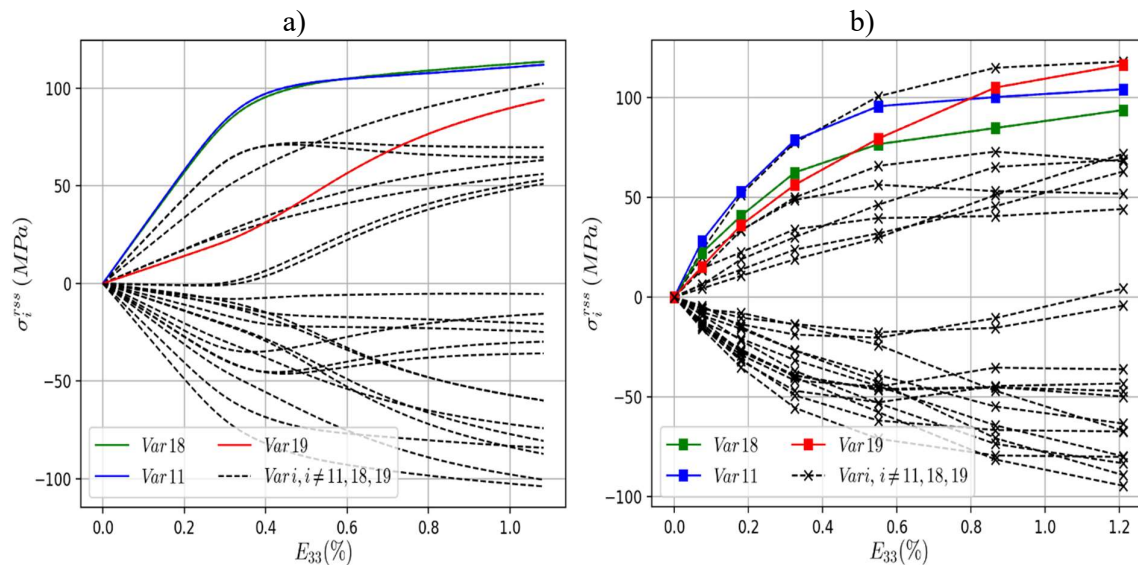
La **Figure 5.5** donne l'évolution des cissions résolues dans le grain C1 pour les 24 variantes, calculées à partir des tenseurs obtenus par 3DXRD et par MEF. Il y a lieu de noter que la simulation ne donne pas le changement de l'orientation cristallographique (rotation) du grain au cours de chargement. Le tenseur de Schmid utilisé pour le calcul des cissions MEF et 3DXRD a donc été réalisé à partir de l'orientation initiale. Cependant, les tenseurs de contraintes utilisés pour les cissions en 3DXRD tiennent compte de la rotation des grains à chaque pas de chargement.

La **Figure 5.5-a** montre que les deux variantes bien orientées, 18 et 11, présentent des cissions résolues très proches et plus élevées que les 22 autres variantes. Ce sont alors les 2 variantes qui atteignent en premier une cission assez élevée pour initier la transformation. En effet, la cission résolue des variantes 18 et 11 augmente relativement vite linéairement jusqu'à une valeur de 80 MPa au début de la transformation à  $E_{33} = 0,3\%$ .

La cission de la transformation martensitique pour ce grain est donc de l'ordre de 80 MPa selon les résultats du calcul MEF. Cette valeur est obtenue en considérant le tenseur de contraintes moyen dans le grain austénitique au moment où la fraction moyenne de martensite devienne non nulle. A noter que cette cission de début de la TM est obtenue en moyenne sur le grain ; elle n'est pas à confondre avec la cission critique de transformation qui agit sur l'activation locale de la TM. Au-delà du chargement de début de transformation, la cission résolue n'augmente que peu comme le montre le palier de faible pente entre  $E_{33} = 0,3\%$  et  $1,08\%$ .

Sur la **Figure 5.5-b** présentant les cissions résolues expérimentales, les mêmes tendances (figure 4-a) sont plus ou moins observées. Bien que la rotation du grain au cours du chargement ne soit pas pris en compte dans la simulation numérique, il y a une concordance assez bonne entre ces deux dernières.

Il n'est pas évident d'avoir la valeur exacte de la cission de début de transformation en 3DXRD car les variantes activées et leurs fractions ne sont pas déterminées expérimentalement. Néanmoins, on peut l'estimer à une valeur de l'ordre de 55 à 75 MPa à partir de la **Figure 5.5-b**. Hormis la propagation des erreurs expérimentales, et les hypothèses de la loi de comportement simulée, un écart entre les températures de transformation ( $M_s$ ,  $A_f$ ) réelles de l'éprouvette et les températures utilisées dans la simulation donnera une cission critique locale différente entre l'expérimental et la simulation, ce qui impacte les valeurs de cissions résolues moyennes dans le grain.

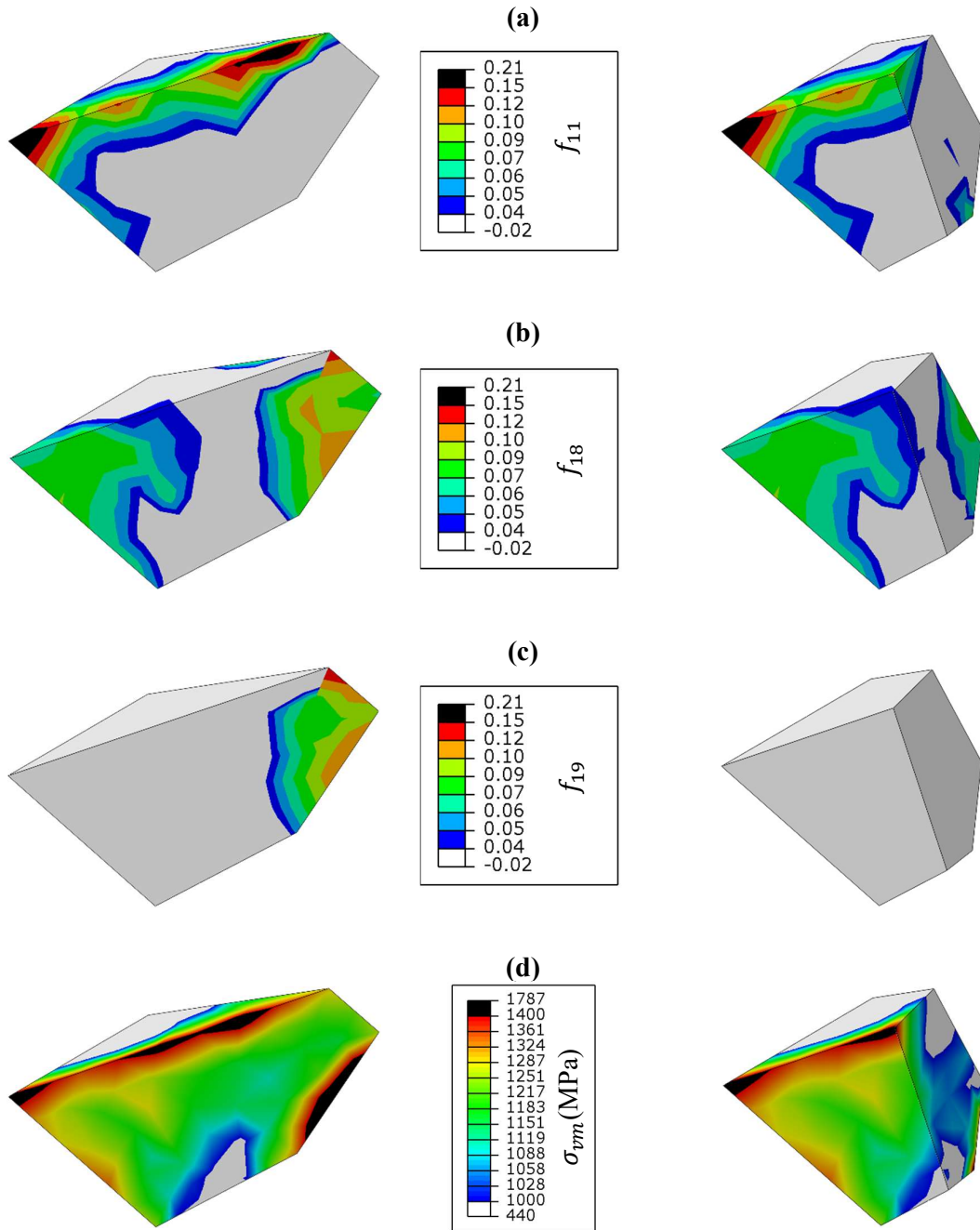


**Figure 5.5** Cissions résolues des 24 variantes en fonction de la déformation macroscopique. a) par MEF, b) par 3DXRD.

L'ensemble de ces résultats fournit plusieurs conclusions. Les variantes les mieux orientées selon le critère de Schmid s'activent au début de la transformation dans le grain ( $E_{33} = 0,3\%$  pour C1) en ayant une cission de l'ordre de 80 MPa et leur croissance progresse à différentes vitesses. Dans le domaine biphasé résultant, si certaines variantes bien orientées ne peuvent plus croître en présence des autres lattes de martensite déjà développées, d'autres variantes moins bien orientées sont susceptibles d'être activées comme c'est le cas de la variante 19 du grain C1 qui s'active à  $E_{33} = 0,6\%$ .

La cission moyenne de transformation du domaine biphasé (60 MPa pour la variante 19) est différente de celle de l'initiation de transformation dans le grain totalement austénitique (80 MPa pour les variantes 11 et 18). Pour comprendre ces observations, il est nécessaire d'analyser le développement des variantes à l'échelle locale microscopique.

La **Figure 5.6** présente des images du grain C1 avec les fractions volumiques des variantes 11, 18 et 19 les plus développées dans ce grain ainsi que les contraintes de Von-Mises.



**Figure 5.6** Distribution de la fraction volumique de la variante 11 (a), de la variante 18 (b), de la variante 19 (c) et contraintes de Von-Mises (d) à l'échelle du grain C1. L'image complète du grain est donné à gauche avec une coupe donnée à droite pour visualiser l'intérieur du grain.

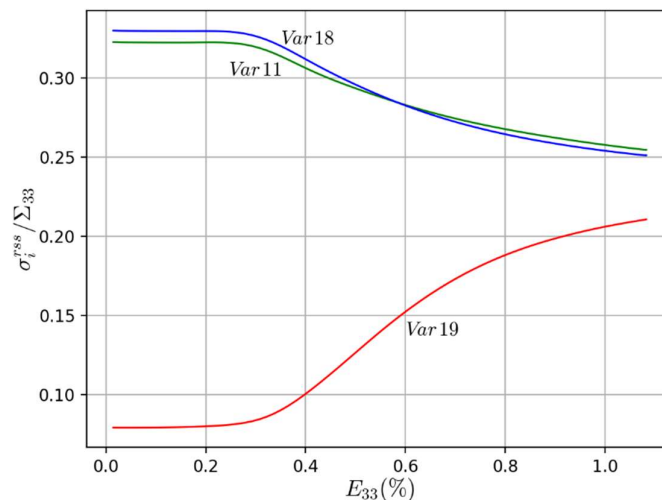
On remarques sur ces images que les variantes 11 et 18 les mieux orientées se sont développées dans plusieurs régions différentes du grain, avec une forte concentration aux voisinages de



jointes de grain. La variante 19, qui s'est développée après la variante 18, est concentrée dans un seul domaine qu'elle partage avec la variante 18. Il semble donc que le développement d'une variante bien orientée puisse s'accompagner par la croissance localisée d'une variante de facteur de Schmid plus faible pour mieux accommoder le champ de contraintes locales. Une forte concentration de contraintes est en effet observée sur la **Figure 5.6** particulièrement aux voisinages des joints de grain sur les régions où l'on observe une forte transformation. Il faut alors intégrer le champ de contraintes locales à l'étude du développement des variantes martensitiques au lieu de se limiter au critère de Schmid.

### 5.2.2.3 Analyse par far facteurs de Schmid mécaniques

Les facteurs de Schmid donnés plus hauts dans le **Tableau 5.2** sont des facteurs cristallographiques fixes reliés à la microstructure initiale. Du fait que ce facteur cristallographique, bien que déterminant, n'est pas suffisant pour décrire l'évolution de la TM, un facteur « mécanique » est introduit sous la forme  $\frac{\sigma_i^{rss}}{\Sigma_{33}}$ , *i.e.* le rapport entre la cission résolue sur une variante  $i$  est la contrainte macroscopique  $\Sigma_{33}$ . Un tel rapport est par définition analogue au facteur de Schmid cristallographique mais a l'avantage d'être évolutif en fonction du chargement imposé pour tenir compte de l'état de contraintes. La **Figure 5.7** donne un tracé de ce facteur de Schmid apparent en fonction du chargement dans le cas des trois variantes développées.



**Figure 5.7** Facteur de Schmid apparent (mécanique) des trois variantes activées.

Deux observations importantes sont mises en évidence par la **Figure 5.7**. Premièrement, les variantes 11 et 18 les mieux orientées ont un facteur de Schmid apparent qui avoisine 0,33 au

moment où elles sont activées ( $E_{33} = 0,3\%$ ), ce qui correspond pratiquement à deux fois leur facteur de Schmid cristallographique de 0,18. Les deux variantes présentent alors les facteurs de Schmid cristallographique et mécanique les plus élevés et sont les premières à être activées comme prédit par le critère de transformation de Schmid. La deuxième observation concerne la variante 19 mal orientée selon son faible facteur de Schmid de 0,02. Son facteur de Schmid mécanique augmente néanmoins pour passer de moins de 0,08 (à  $E_{33} < 0,3\%$ ) à plus de 0,15 au moment de son activation ( $E_{33} = 0,6\%$ ). Elle devient alors candidate à être activée suivant son facteur de Schmid mécanique relativement élevé par rapport aux autres variantes, contrairement à ce que prévoit le facteur de Schmid basé uniquement sur l'orientation cristallographique.

De plus, les valeurs de  $\frac{\sigma_{19}^{rSS}}{\Sigma_{33}}$  locales dans la zone où la variante 19 s'est développée sont inévitablement supérieures à la valeur moyenne dans le grain (0,15 à  $E_{33} = 0,6\%$ ) vu l'état de contraintes locales reporté sur la **Figure 5.6**.

En conclusion, ce facteur de Schmid apparent  $\sigma_i^{rSS}/\Sigma_{33}$  fournit une meilleure prédiction des variantes susceptibles d'être activées que le facteur de Schmid cristallographique classique, même à une échelle mésoscopique, du fait qu'il intègre le champ de contraintes local et donc l'anisotropie de comportement du grain.

### 5.2.3 Comparaison de la TM dans les grains orientés [100], [110] et [111]

Les résultats présentés dans le paragraphe 5.2.2 ont été obtenus pour le grain C1 d'orientation proche de [111] par rapport à l'axe de traction. Une analyse similaire a été effectuée pour les grains A1 orienté [100], et B1 orienté [110].

Les 24 facteurs de Schmid des grains A1 et B1 sont reportés respectivement dans le **Tableau 5.3** et le **Tableau 5.4**.

**Tableau 5.3** Facteur de Schmid des 24 variantes possibles de martensite dans le grain A1

<b>Var 1</b>	Var 2	Var 3	Var 4	Var 5	Var 6	<b>Var 7</b>	Var 8
<b>0,49</b>	-0,49	<b>0,43</b>	-0,48	<b>0,44</b>	-0,48	<b>0,46</b>	-0,48
<b>Var 9</b>	Var 10	Var 11	Var 12	Var 13	<b>Var 14</b>	Var 15	<b>Var 16</b>
<b>0,50</b>	-0,49	<b>0,44</b>	-0,47	-0,46	<b>0,45</b>	-0,47	<b>0,47</b>
Var 17	Var 18	Var 19	Var 20	Var 21	Var 22	Var 23	Var 24
0,00	0,00	0,01	0,06	0,06	-0,01	-0,00	0,03

**Tableau 5.4** Facteur de Schmid des 24 variantes possibles de martensite dans le grain B1

Var 1	Var 2	<b>Var 3</b>	Var 4	Var 5	Var 6	Var 7	Var 8
0,24	-0,29	<b>0,42</b>	-0,35	0,22	-0,19	0,17	-0,16
Var 9	Var 10	<b>Var 11</b>	Var 12	Var 13	Var 14	Var 15	Var 16
0,23	-0,33	<b>0,41</b>	-0,34	-0,21	0,17	-0,23	0,14
Var 17	<b>Var 18</b>	Var 19	Var 20	Var 21	Var 22	Var 23	Var 24
-0,13	0,23	-0,14	0,06	0,06	-0,09	0,25	-0,16

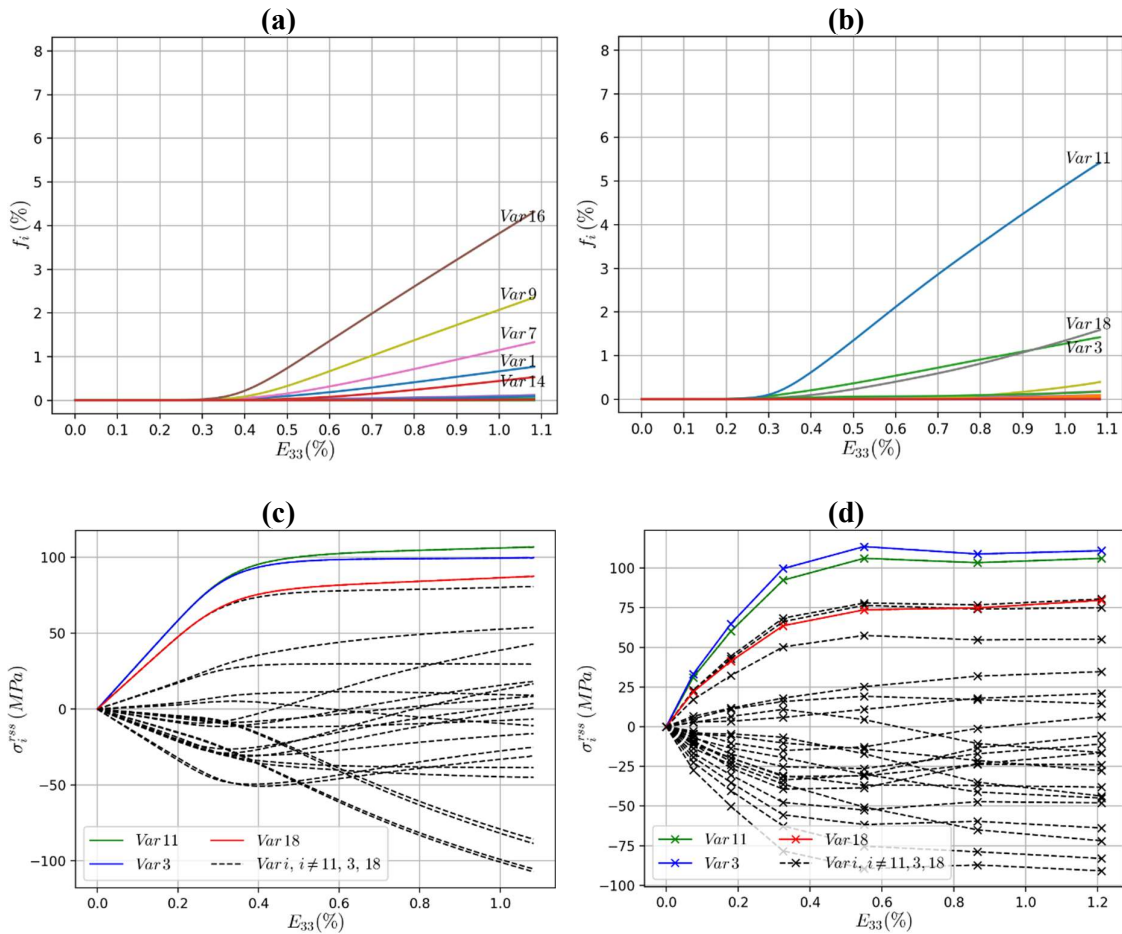
Pour le grain A1 orienté [100], le **Tableau 5.3** montre qu'il y a un ensemble de huit variantes ayant un facteur de Schmid élevé supérieur à 0,43. Le grain A1 est bien orienté par rapport à la direction de traction et a donc plusieurs facteurs de Schmid proches de 0,5. Sur ces huit variantes, cinq d'entre elles ont été activées selon le résultat du calcul MEF tracé dans la **Figure 5.8-a**. Il s'agit des variantes n°16, n°9, n°7, n°1 et n°14, ayant des facteurs de Schmid supérieurs à 0,45. Ces variantes apparaissent à différents niveaux de chargement entre  $E_{33} = 0,3\%$  et  $E_{33} = 0,5\%$  et leur croissance évolue à différentes vitesses vis-à-vis du chargement appliqué. La variante 16, par exemple, atteint une fraction volumique de 4,3% contre 0,6% seulement pour la variante 14 à la fin de la simulation. Les trois variantes n°3, n°5 et n°11, ayant un facteur de Schmid entre 0,43 et 0,44 n'ont pas été activées (ou très peu).

De même, les variantes 3 et 11 sont les mieux orientées dans le cas du grain B1 [110] comme le montre le **Tableau 5.4**. Ce grain est moins bien orienté que le grain A1 [100] et présente alors uniquement deux variantes ayant un facteur de Schmid supérieur à 0,4. La deuxième classe de variantes (n°1, n°5, n°9, n°18 et n°23) a des facteurs de Schmid compris entre 0,22 et 0,25.

Les variantes n°11 et n°3, ayant des facteurs de Schmid respectifs de 0,41 et 0,42 dans le grain B1, sont activées à  $E_{33} = 0,3\%$  comme le montre la **Figure 5.8-b**. L'activation de la variante n°18, de facteur de Schmid égale à 0,23, est également observé à  $E_{33} = 0,4\%$ . Ce résultat est similaire aux résultats discutés précédemment dans le grain C1. En effet, les premières variantes à s'activer dans un grain sont celles ayant les facteurs de Schmid les plus élevés. D'autres variantes ayant un facteur de Schmid moins élevé sont susceptibles d'être activées lorsque la déformation imposée augmente.

Un suivi des cisssions résolues numériques et expérimentales du grain B1 est reporté dans la **Figure 5.8-c** et la **Figure 5.8-d**. Ces deux figures montrent que les variantes 3 et 11 les mieux orientées atteignent rapidement des cisssions supérieures à 80 MPa avant de saturer à des

cissions proches de 100 MPa dans leur domaine de croissance ( $E_{33} > 0,3\%$ ). La variante 18 et une autre variante atteignent des cissions de l'ordre de 75 MPa dans le domaine élastique avant de se stabiliser. Le même constat est observé en 3DXRD où la variante 18 et deux autres variantes atteignent un pallier de cission de 75 MPa. Si l'on disposait uniquement de mesures expérimentales de 3DXRD, il serait possible de supposer, grâce au calcul des cissions résolues, que les variantes 3 et 11 sont les plus probables d'avoir été développées dans le grain B1 et que 3 autres variantes (dont la variante n°18) sont susceptibles d'avoir été activées, quoique moins probables ou fortement localisées.



**Figure 5.8** Évolution des fractions volumiques de variantes martensitiques dans le grain A1 (a) et B1 (b) ; ainsi que les cissions résolues moyennes sur le grain B1 obtenues par MEF (c) et par 3DXRD (d).

Ces observations sur les trois grains A1, B1 et C1 montrent d'une part qu'il y a une très bonne similitude entre les résultats de modélisation et les résultats de la technique de diffraction 3DXRD. D'autre part, elles montrent que le critère de Schmid n'est pas le seul facteur

déterminant vis-à-vis de l'apparition des variantes de martensite ; des variantes de faible facteur de Schmid peuvent se développer localement au voisinage du joint de grain comme dans le cas de la variante 19 du grain C1. Par ailleurs, la croissance des domaines martensitiques et l'évolution de la microstructure par TM sont différentes entre les 3 orientations. A titre d'exemple, la fraction volumique totale  $f$  de martensite est égale à 0,9%, 1,5% et 1,6% pour les grains A1, B1 et C1 respectivement à  $E_{33} = 0,45\%$ . Ces fractions atteignent respectivement 9,6%, 9,5% et 15,5% à  $E_{33} = 1,08\%$ .

En conclusion, la comparaison des 3 grains semble montrer une influence de l'orientation du grain sur son état de contraintes et le développement de la transformation. Toutefois, comme cela a été montré au chapitre 3, si cette observation est valable pour la majorité des cas, tous les grains d'une orientation donnée n'obéissent pas à cette règle. Il est alors important de prendre en compte d'autres paramètres tels que la position du grain dans l'éprouvette, sa taille ou encore l'interaction avec ses grains voisins. L'influence de ces différents facteurs fait l'objet de la quatrième partie de ce chapitre.

### 5.3 Influence de la microstructure sur le comportement à l'échelle mésoscopique

Les effets de la position du grain dans l'échantillon, sa taille et des interactions avec les grains voisins pouvant être couplés, dans un premier temps, il a fallu choisir avec précaution un ensemble de grains permettant de faire des comparaisons croisées. Après avoir présenté les grains sélectionnés, l'influence des différents facteurs est ensuite discutée.

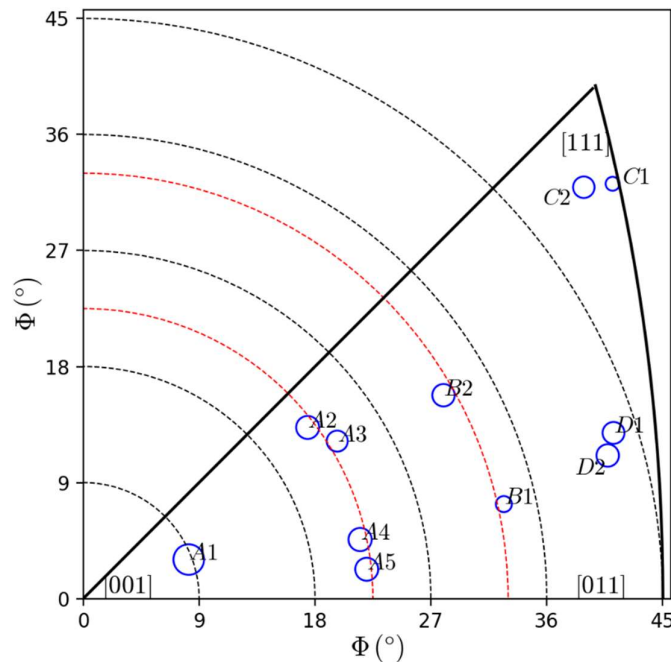
#### 5.3.1 Choix des doublets de grains

Pour étudier la relation microstructure – comportement mécanique à l'échelle de grains individuels, 11 grains ont été sélectionnés parmi les 187 grains dans la zone de 700  $\mu\text{m}$ . Ils ont différentes orientations, tailles et positions dans l'échantillon. Les principales propriétés microstructurales des 11 grains sont résumées dans le **Tableau 5.5**.

La taille relative donnée dans le **Tableau 5.5** correspond au rapport arithmétique entre la taille du grain et la taille moyenne des 187 grains du volume analysé. Leur orientation cristallographique initiale, par rapport à l'axe de traction, est tracée dans la **Figure 5.9** de pôles inverses. Chaque grain est représenté dans la **Figure 5.9** par un cercle de taille proportionnelle à la taille de grain.

**Tableau 5.5** Attributs microstructuraux des 11 grains étudiés

Grain	Orientation	Position	Taille	$[\varphi_1 \ \Phi \ \varphi_2] \ (^{\circ})$	Taille relative
A1	$\approx [001]$	Cœur	Très gros	$[-71 \ \mathbf{9} \ 110]$	2,89
A2			Gros	$[-68 \ \mathbf{23} \ 37]$	1,63
A3			Gros	$[59 \ \mathbf{24} \ -32]$	1,36
A4			Gros	$[80 \ \mathbf{23} \ -78]$	1,66
A5			Gros	$[52 \ \mathbf{23} \ 84]$	1,64
B1	intermédiaire	Cœur	Petit	$[-83 \ \mathbf{34} \ 102]$	0,79
B2			Gros	$[40 \ \mathbf{33} \ -61]$	1,55
C1	$\approx [111]$	Cœur	Petit	$[-36 \ \mathbf{51} \ 52]$	0,60
C2			Gros	$[-29 \ \mathbf{54} \ 53]$	1,43
D1	$\approx [011]$	Surface	Gros	$[-85 \ \mathbf{43} \ 107]$	1,47
D2			Gros	$[-50 \ \mathbf{42} \ 75]$	1,56

**Figure 5.9** Orientation cristallographique des 11 grains par rapport à l'axe de traction.

Le choix des 11 grains a été fait de façon à séparer au mieux les effets couplés de l'orientation du grain, des orientations voisines, de la taille et la position du grain (au cœur ou à la surface de l'éprouvette). Aussi, des doublets ou triplets de grains qui partagent des propriétés

microstructurales similaires sont analysés, où une seule donnée microstructurale est nettement différente entre les grains étudiés.

Les grains A1, B1 et C1 commentés précédemment dans ce manuscrit sont différents en termes d'orientation, de taille, de localisation ou encore en termes d'orientations voisines. Pour confirmer la conclusion sur l'effet de l'orientation en limitant les autres éventuels effets couplés de microstructure, le triplet de grains (A2, B2, C2) est étudié. Les grains A2, B2 et C2 sont tous les trois positionnés au cœur de l'éprouvette et ont une taille très similaire. De plus, ces trois grains partagent plusieurs grains voisins communs. L'intersection volumique entre les voisins du grain A2 et ceux du grain B2 s'élève à 55% et à 59% entre les voisins des grains A2 et C2, ce qui est grand en comparaison aux valeurs possibles obtenues pour chaque doublet aléatoire de grains. Cela permet d'éviter le cas où l'un des grains est entouré par une large majorité de grains durs alors que l'autre grain est entouré avec une large majorité de grains beaucoup moins rigides. La principale différence entre ces 3 grains est donc leur orientation cristallographique (angles  $\Phi$ ).

En outre, l'effet des grains voisins est étudié notamment en comparant le comportement des grains A2, A3, A4 et A5. En effet, ces 4 grains sont relativement proches de l'orientation [100] par rapport à l'axe de traction ( $\Phi = 23^\circ$ ). D'autre part, ils sont équivalents en termes de propriétés mécaniques dans la direction de traction (modules d'Young  $E_{33}^{Young}$  compris entre 33 et 34 GPa) ainsi qu'en termes de taille et de localisation (cœur de l'éprouvette). On peut alors admettre qu'ils sont différents exclusivement en termes de leurs grains voisins.

### 5.3.2 Effet de l'orientation

Comme introduit dans le paragraphe précédent, les grains (A2, B2, C2) sont très proches en termes de positions spatiales et de tailles et partagent également plusieurs grains voisins. En effet, le volume voisin commun a été quantifié comme suit :

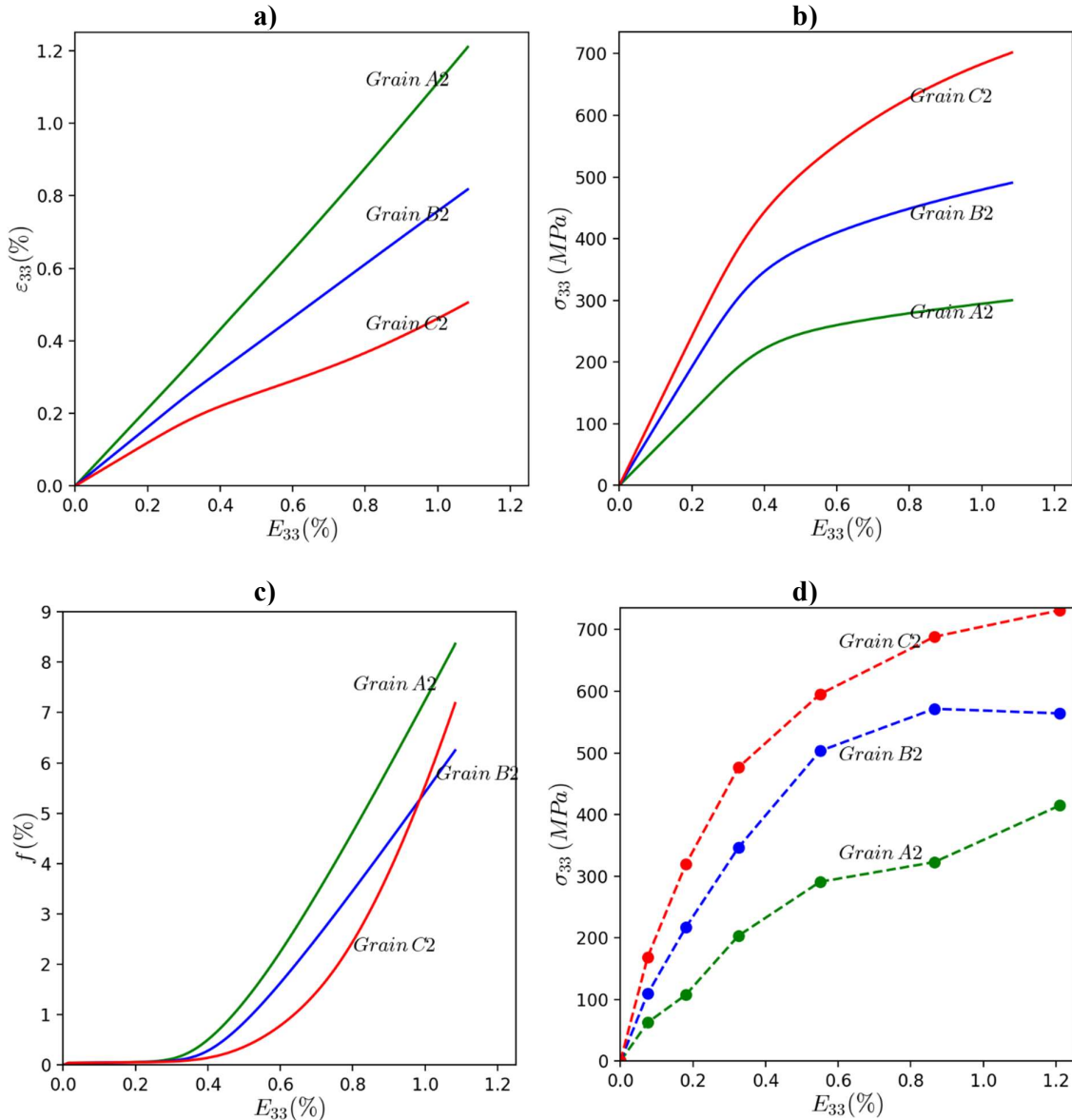
$$\frac{\text{Volume}(\text{Voisins de A2} \cap \text{Voisins de B2})}{\text{Volume}(\text{Voisins de A2} \cup \text{Voisins de B2})} = 59\% \quad (5.1)$$

$$\frac{\text{Volume}(\text{Voisins de A2} \cap \text{Voisins de C2})}{\text{Volume}(\text{Voisins de A2} \cup \text{Voisins de C2})} = 55\%$$

Cependant, ces grains ont des orientations différentes par rapport à l'axe de traction. L'angle de désorientation  $\Phi$  par rapport à l'axe de traction est égal à  $23^\circ$ ,  $33^\circ$  et  $54^\circ$  pour les grains A2, B2 et C2 respectivement.

Les évolutions de la déformation totale  $\varepsilon_{33}$ , de la contrainte interne  $\sigma_{33}$  et de la fraction de martensite, dans chacun des 3 grains au cours de la traction, sont reportées dans la **Figure 5.10**.

Sans surprise, plus un grain est bien orienté par rapport à l'axe de traction plus il se déforme facilement dans cette direction comme le montre la **Figure 5.10-a**. Pour  $E_{33} = 1,08\%$ , la déformation totale  $\varepsilon_{33}$  atteint une valeur de 1,2% pour le grain A2 ayant un angle  $\Phi = 23^\circ$ , contre 0,5% pour le grain C2 ayant  $\Phi = 54^\circ$ .



**Figure 5.10** Analyse du comportement des grains A2, B2 et C2 au cours de chargement de traction. a) : Evolution de  $\varepsilon_{33}$  obtenues par MEF, b) : Evolution de  $\sigma_{33}$  obtenues par MEF, c) : Evolution de la fraction volumique de martensite, d) : Evolution de  $\sigma_{33}$  obtenues par 3DXRD.



De même, on observe à la **Figure 5.10-b** que l'état de contrainte dans la direction de traction  $\sigma_{33}$  est plus élevé lorsque le grain est mal orienté ( $\Phi$  élevé). Le grain C2 d'orientation proche de [111] est plus rigide que les grains A2 et B2 d'orientations intermédiaires. En plus de l'effet de l'anisotropie élastique, on remarque de la **Figure 5.10-b** que la déformation du grain dans le domaine de la TM s'accompagne par une accommodation de contrainte  $\sigma_{33}$  moyenne dans le grain ; mais un durcissement plus important est observé dans les grains mal orientés B2, et plus particulièrement le grain C2, par rapport au grain A2. Un comportement plus ou moins concordant à la simulation est observé en ce qui concerne les contraintes  $\sigma_{33}$  obtenues par la technique 3DXRD et reportées dans la **Figure 5.10-d**.

La croissance de la martensite s'initie d'abord dans le grain A2, puis dans le grain B2 et enfin dans le grain C2 comme le montre la **Figure 5.10-c**. En effet, le facteur de Schmid de la variante la mieux orientée (noté  $R_{33}$ ) est égal à 0,45 pour A2, 0,4 pour B2 et 0,19 pour C2. Là aussi, l'effet de l'orientation du grain par rapport à l'axe de traction est nettement observé : les grains les mieux orientés ayant un facteur de Schmid élevé sont les premiers à transformer.

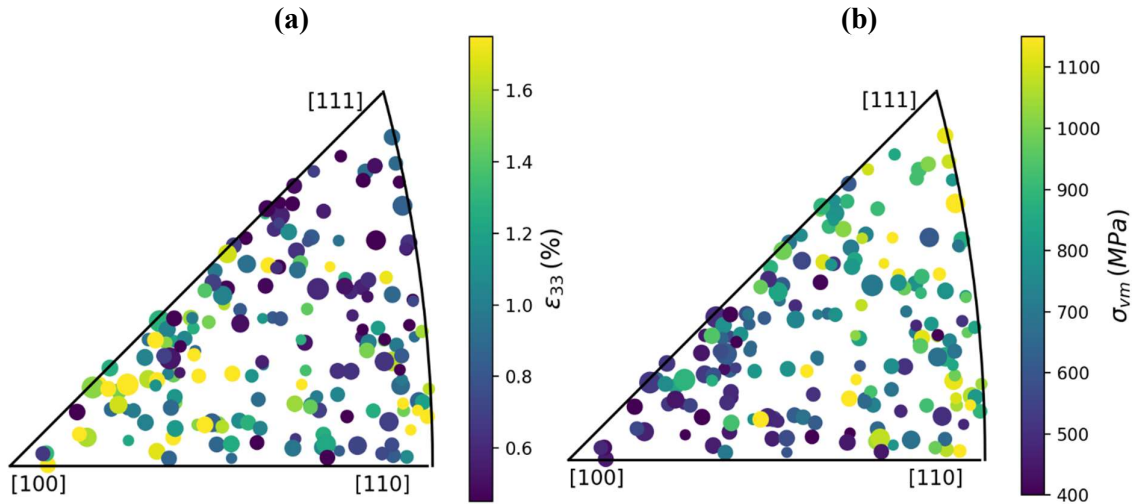
Dans le cas des grains A2 et B2 ayant un facteur de Schmid supérieur à 0,4, une évolution fortement linéaire est observée en termes de déformation (**Figure 5.10-a**) et de fraction de martensite (**Figure 5.10-c**) au cours du chargement imposé.

Pour le grain mal orienté C2, on observe en revanche une faible croissance de la martensite au début de la TM, suivie d'une croissance clairement plus importante pour les chargements  $E_{33} > 0,6\%$ . En effet, l'analyse de ce grain a montré que deux variantes sont activées aux voisinages de  $E_{33} = 0,35\%$  mais cela ne permet évidemment pas d'accommoder partiellement les contraintes dans ce grain rigide. Quatre autres variantes moins bien orientées sont activées entre les chargements  $E_{33} = 0,45\%$  et  $E_{33} = 0,6\%$ . Tout comme la variante 19 du grain C1, certaines variantes parmi les six présentes dans le grain C2 se sont développées d'une façon plutôt soutenue, sous l'effet des fortes contraintes locales concentrées et développées aux joints de grain, pour les déformations imposées  $E_{33} > 0,7\%$ .

En conclusion, ces résultats confirment l'effet de l'orientation en termes de déformation totale, de contraintes moyennes sur le grain ainsi que le développement de variantes prédites par le critère de Schmid.

Cependant, ce critère n'est pas le seul facteur qui pilote la TM et l'état des contraintes. Nous avons observé le développement de variantes martensitiques de faible facteur de Schmid là où

des variantes de facteur de Schmid élevé ne se développent pas. De même, des grains de même orientation peuvent avoir des comportements différents à l'échelle mésoscopique comme le montre l'état des déformations totales  $\varepsilon_{33}$  et des contraintes de Von-Mises  $\sigma_{vm}$  reportées sur la **Figure 5.11**.



**Figure 5.11** Déformations  $\varepsilon_{33}$  (a) et contraintes  $\sigma_{vm}$  (b) sur les 187 grains à  $E_{33} = 1,08\%$ .

Il est donc nécessaire d'étudier l'influence d'autres facteurs microstructuraux tels que les interactions avec les orientations voisines et les contraintes intergranulaires qui en résultent.

### 5.3.3 Effet des grains voisins et des hétérogénéités à l'échelle microscopique

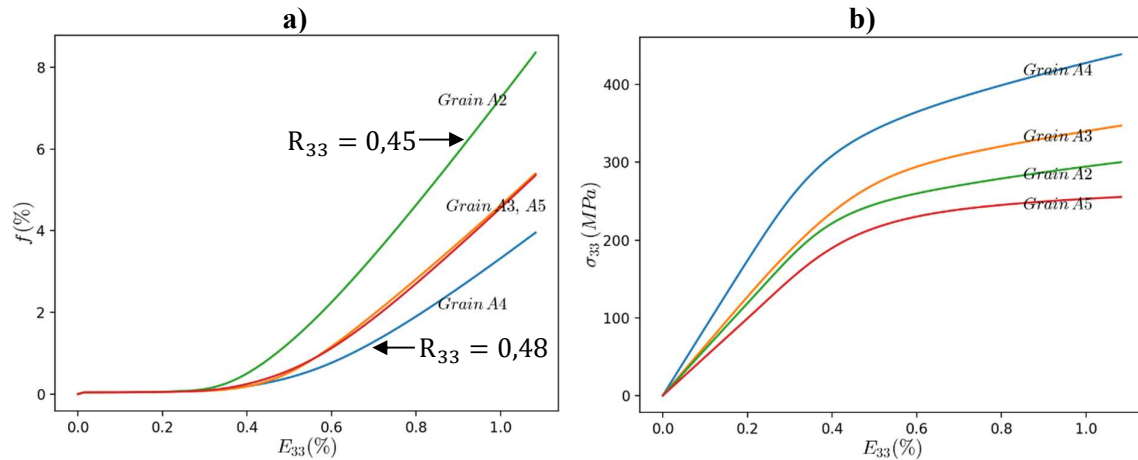
#### 5.3.3.1 Grains de même orientation sans voisins communs

Pour identifier les effets des grains voisins d'un grain dans le polycristal, une étude comparative du grain précédent A2 a été réalisée par rapport aux 3 grains A3, A4 et A5 avec lesquels il partage une orientation proche de [100], un même module d'Young dans la direction de traction et une taille de grains équivalente. Les quatre grains sont par ailleurs positionnés à différentes zones au cœur de l'éprouvette et ont des grains voisins largement distincts.

L'évolution des fractions de martensite  $f$  et des contraintes  $\sigma_{33}$  moyennées dans chacun des grains A2 à A5 est reportée dans la **Figure 5.12**.

On remarque de la **Figure 5.12-a** que l'état de transformation est très similaire dans les grains A3 et A5. Cependant, il est assez différent par rapport aux deux autres grains. Le grain A2 est le premier grain du quadruplet à se transformer et sa fraction de martensite évolue rapidement

pour atteindre 8,4% au dernier incrément de la simulation. D'autre part, le grain A4 commence à transformer après le grain A2 et n'atteint que 3,9% de volume en martensite à la fin du calcul MEF. Il y a donc un effet d'interaction avec les orientations voisines qui se manifeste, à l'échelle moyen du grain, par une croissance différente de la phase martensitique dans des grains ayant la même orientation.

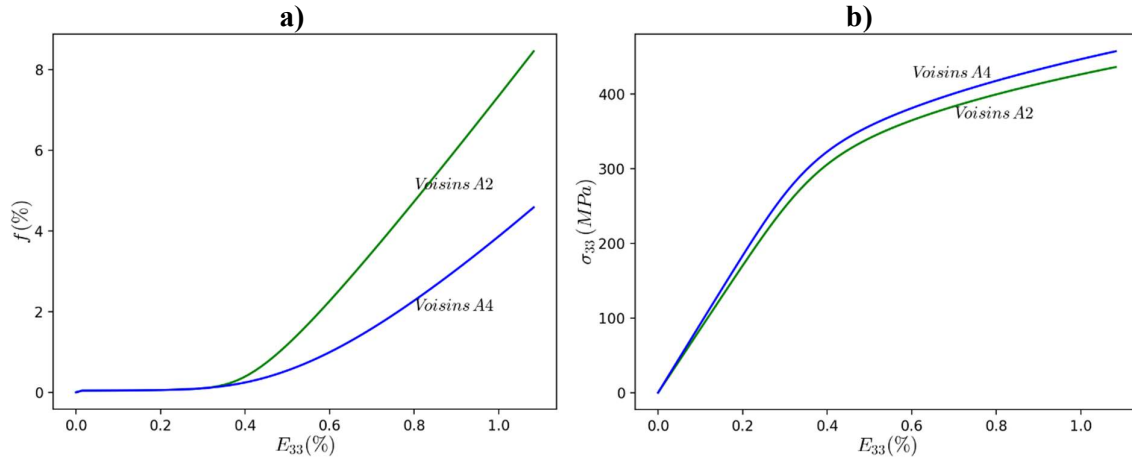


**Figure 5.12** Analyse du comportement des grains A2, A3, A4 et A5 au cours de chargement de traction. a) Evolution de la fraction de martensite, b) Evolution de la composante  $\sigma_{33}$  obtenue par MEF.

Les grains A2, A3, A4 et A5 sont bien orientés par rapport à l'axe de traction et ont des facteurs de Schmid élevés. Le grain A2 a un facteur de Schmid  $R_{33} = 0,45$  tandis que le grain A4 possède un  $R_{33} = 0,48$ . Là aussi, l'effet de l'orientation n'est pas prépondérant car le grain A2, par exemple, commence à transformer avant le grain A4, bien que le facteur de Schmid de ce dernier soit plus élevé. De plus, l'évolution de la contraintes  $\sigma_{33}$  (**Figure 5.12-b**) dans chaque grain montre une disparité de la distribution des contraintes. Une telle disparité de l'état mécanique que l'on peut attribuer aux interactions avec les grains adjacents et l'état microstructural local qui évolue distinctement au sein de ces grains au cours de la traction, en dépit de leurs modules d'Young analogues suivant l'axe de chargement uniaxial. La forte anisotropie élastique de cet alliage favorise également les hétérogénéités intergranulaires et amplifie l'effet d'interaction des orientations adjacentes. Ces résultats montrent que l'orientation cristallographique propre à un grain (critère de Schmid) est loin d'être le seul critère déterminant dans l'évolution mécanique et microstructural des domaines austénitiques. Il y a lieu de tenir compte des hétérogénéités microscopiques locales et défauts

microstructuraux notamment les orientations des voisins, les joints de grains et les interfaces austénite / martensite.

Pour discuter de ces différentes interactions entre l'état microstructural avoisinant et le comportement du grain à l'échelle moyenne mésoscopique, une analyse de l'état des grains voisins de A2 et de ceux voisins de A4 a été effectuée. L'évolution des fractions de martensite  $f$  et de  $\sigma_{33}$  moyennées dans les deux voisinages est reportée dans la **Figure 5.13**.



**Figure 5.13** Analyse à l'échelle mésoscopique du comportement moyen des grains austénitiques adjacents aux grains A2 et A4. a) : Evolution de la fraction de martensite, b) : Evolution de  $\sigma_{33}$  obtenues par MEF.

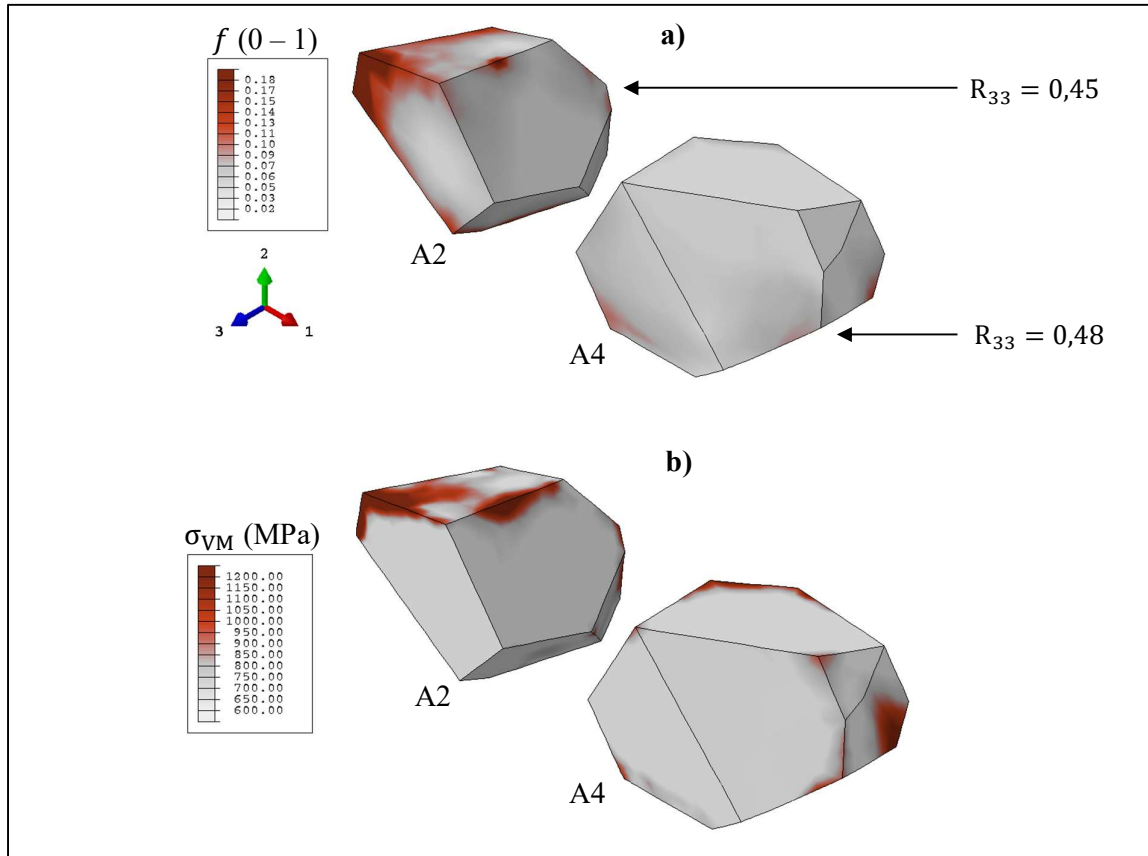
Comme on peut l'observer sur la **Figure 5.13-a**, il y a en moyenne deux fois plus de martensite dans le voisinage du grain A2 par rapport au voisinage du grain A4. Aussi, la martensite apparaît d'abord dans certains voisins du grain A2 avant que la TM ne s'initie dans la plu

part des grains voisins de A4. En comparant la **Figure 5.13-a** à la **Figure 5.12-a**, on observe une corrélation positive entre la transformation d'un grain austénitique et la transformation de ces grains voisins. En d'autres termes, l'apparition et la croissance de la martensite dans les grains voisins d'un grain donné va favoriser la transformation de celui-ci. Cela s'explique notamment par deux éléments :

- La déformation de transformation d'un grain peut induire une transformation dans les grains adjacents comme il a été observé dans d'autres travaux sur l'alliage Cu-Al-Be (Kaouache, 2006) ou sur des alliages Ni-Ti (Xu & Wang, 1995).

- Les incompatibilités de déformation entre grains voisins, plus particulièrement dans cet alliage à forte anisotropie élastique (Kaouache, Berveiller, Inal, Eberhardt, & Patoor, 2004) (Liu, Huang, & Xie, 2014) (Miyazaki, Kawai, & Otsuka, 1982).

Ces deux facteurs mènent à de fortes concentrations de contraintes à l'échelle microscopique, localisées particulièrement aux joints de grains (contraintes intergranulaires), ce qui facilite l'activation et la croissance de domaines martensitiques. L'état de contraintes  $\sigma_{33}$  moyen dans les voisins du grain A2 est pratiquement identique à celui dans les voisins du grain A4 comme observé dans la **Figure 5.13-b**. Les zones de forte concentration de contraintes sont alors très localisées à une échelle microscopique et donc difficilement révélées à une échelle mésoscopique ou macroscopique.



**Figure 5.14** Grains A2 et A4 à l'échelle intragranulaire. a) Fraction volumique de martensite  $f$  (entre 0 et 1). b) Contrainte de Von-Mises  $\sigma_{VM}$ .

La **Figure 5.14** fournit une visualisation de la fraction de martensite et du champ de contraintes de Von-Mises dans les grains A2 et A4 à l'échelle microscopique selon le résultat de simulation. On observe à partir de la **Figure 5.14** qu'il y a effectivement un fort gradient de contraintes et de transformation dans le grain A2. La fraction de martensite atteint des valeurs supérieures à

15% pour les éléments situés autour des joints de grain en haut du grain A2 ayant une fraction moyenne de martensite de 8%. Les zones où la fraction de transformation est élevée (**Figure 5.14-a**) sont caractérisées par une forte concentration de contraintes comme le montre la **Figure 5.14-b**.

Cela montre que l'analyse du comportement superélastique du polycristal à l'échelle moyenne de grains austénitiques n'est pas toujours suffisant. La transformation martensitique est contrôlée plutôt par les contraintes locales microscopiques et les fortes hétérogénéités qui puissent y exister sous l'effet des défauts de microstructure (joints de grains, interfaces A/M et incompatibilités entre les variantes martensitiques).

### 5.3.3.2 Grains d'orientation proches et ayant des voisins en commun

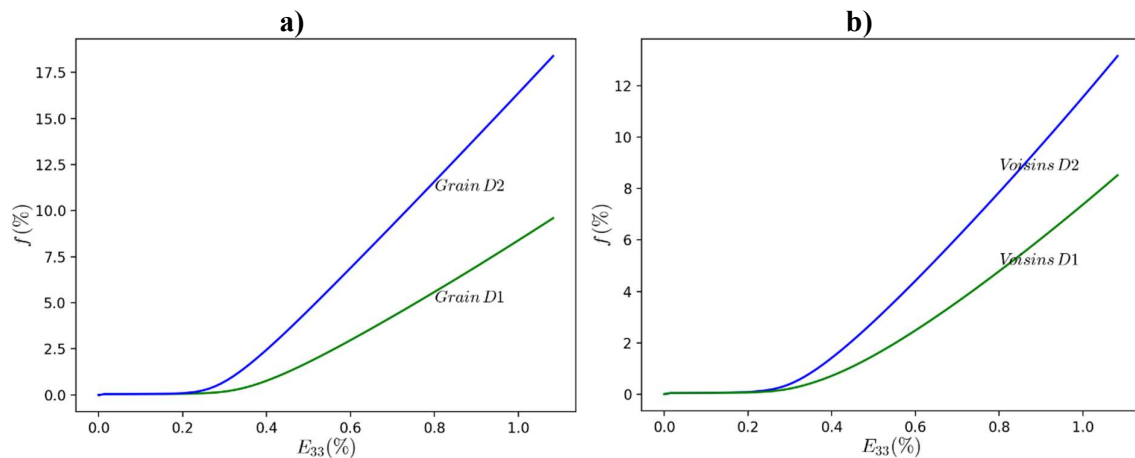
#### 5.3.3.2.1 Analyse à l'échelle mésoscopique (ou intergranulaire)

Nous allons étudier dans ce qui suit les effets des joints de grains et des interfaces austénite/martensite à l'échelle moyenne de façon à identifier leur influence sur les hétérogénéités locales qui gouvernent la croissance de la martensite. Pour ce faire, une étude comparative de la TM dans le doublet de grains (D1 – D2) et de leur voisinage a été effectuée. Les grains D1 et D2 ont pratiquement la même orientation cristallographique par rapport à l'axe de traction et le même module d'Young dans la direction de traction en étant tous les deux proches du pôle [110]. Le facteur de Schmid  $R_{33}$  est égal à 0,35 pour D1 et 0,36 pour D2. Ils ont également une taille de grain similaire et sont tous les deux localisés sur la surface libre de l'éprouvette. Par ailleurs, les grains D1 et D2 sont adjacents et partagent un large volume commun de voisins égal à 76% en leur appliquant l'équation (5.1), contrairement aux grains (A2 – A4) qui possèdent des grains voisins totalement distincts.

L'évolution de la fraction totale de martensite dans les grains D1 et D2 ainsi que dans leurs grains adjacents est tracée dans la **Figure 5.15**. La transformation s'active d'abord dans le grain D2 ( $R_{33} = 0,36$ ) pour une déformation appliquée proche de  $E_{33} = 0,25\%$ , et ensuite dans le grain D1 ( $R_{33} = 0,35$ ) pour une déformation appliquée proche de  $E_{33} = 0,35\%$  comme le montre la **Figure 5.15-a**. Cette observation est en accord avec le critère de Schmid qui prévoit que le grain ayant le plus grand facteur  $R_{33}$  est le premier à transformer. Cela dit, ce critère ne justifie pas complètement l'écart relativement grand entre le début de transformation en D2 et en D1 vu leurs facteurs de Schmid assez proches. D'autre part, la fraction de martensite dans

le grain D2 est nettement supérieure à celle du grain D1 : elle atteint 18,4% pour D2 contre 9,6% pour le grain D1 à la fin du calcul MEF.

Par conséquent, l'évolution microstructurale par TM des grains D1 et D2 est largement différente malgré le fait qu'ils aient la même orientation, la même taille et plusieurs grains voisins communs. Là aussi, les effets des hétérogénéités microstructurales et mécaniques à une échelle plus fine sont largement impliqués. Le comportement superélastique d'un grain dans le polycristal est donc très sensible à son voisinage local.



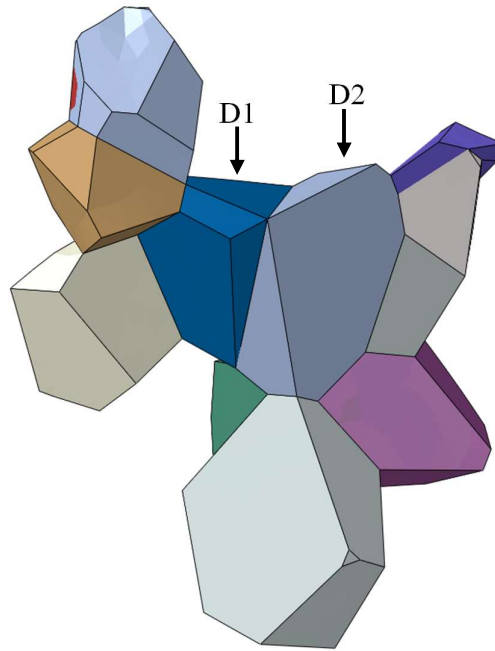
**Figure 5.15** Evolution de la fraction volumique moyenne de martensite. a) Dans les grains D1 et D2. b) Dans les grains adjacents de D1 et adjacents de D2.

En limitant l'analyse des effets de voisinage à une échelle moyenne mésoscopique, on retrouve le même résultat que celui observé précédemment pour les grains (A2 – A4). L'apparition et la croissance de la martensite, en moyenne volumique, est plus avancée dans les grains adjacents de D2 que dans les grains adjacents de D1. Là aussi, on peut observer même à l'échelle mésoscopique que la transformation d'un grain favorise la transformation de ses grains voisins.

### 5.3.3.2.2 Analyse à l'échelle microscopique (ou intragranulaire)

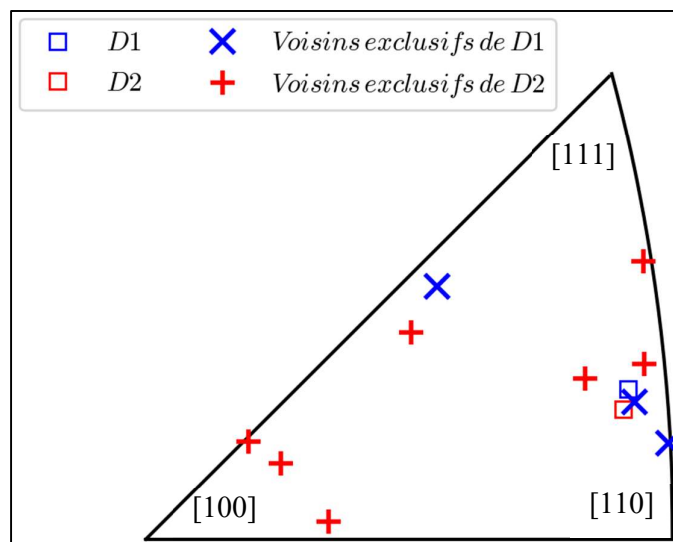
Le grain D1 est entouré par 12 grains voisins tandis que le grain D2 possède 16 grains voisins. Il y a 9 grains voisins communs entre D1 et D2. Bien que les 9 grains communs n'interagissent pas forcément de la même façon sur les grains D1 et D2, le choix le plus judicieux est de commencer par une analyse des grains voisins non communs (3 grains pour D1 et 7 pour D2).

Une image de ces grains dans le polycristal est reportée sur la . L'orientation initiale des grains adjacents exclusivement à D1 ou à D2 est tracée par rapport à la direction de traction sur la figure de pôles inverse **Figure 5.17**.



**Figure 5.16** Visualisation du grain D1, du grain D2 et des grains voisins propres à chacun.

On remarque à partir de la **Figure 5.17** que les désorientations entre le grain D2 et ses 7 grains voisins sont clairement plus grandes que celles entre D1 et ses 3 grains voisins. Plus particulièrement, le grain D2 orienté  $[110]$  possède 3 grains voisins orientés  $[100]$  et qui sont beaucoup moins rigides que D2 et faciles à transformer selon le critère de Schmid.

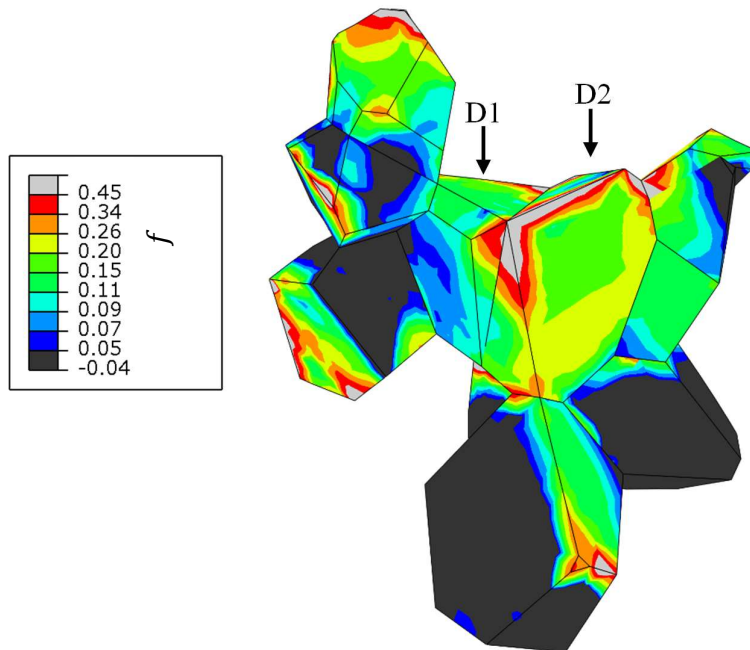


**Figure 5.17** Orientation cristallographique des grains voisins, non communs, de D1 et D2.



Il semble en conséquence que la croissance de la martensite dans un grain dur mal orienté peut relativement être accélérée si ce grain est entouré de grains bien orientés, notamment sous l'action des fortes contraintes concentrées autour des joints de grain. Cela expliquerait la forte transformation du grain D2 par rapport au grain D1 alors qu'ils ont la même orientation cristallographique. Pour étudier cette hypothèse, une analyse à l'échelle microscopique a été réalisée.

La **Figure 5.18** présente la fraction totale de martensite développée à l'échelle microscopique dans chacun des grains D1 et D2 ainsi que leurs voisins exclusifs.

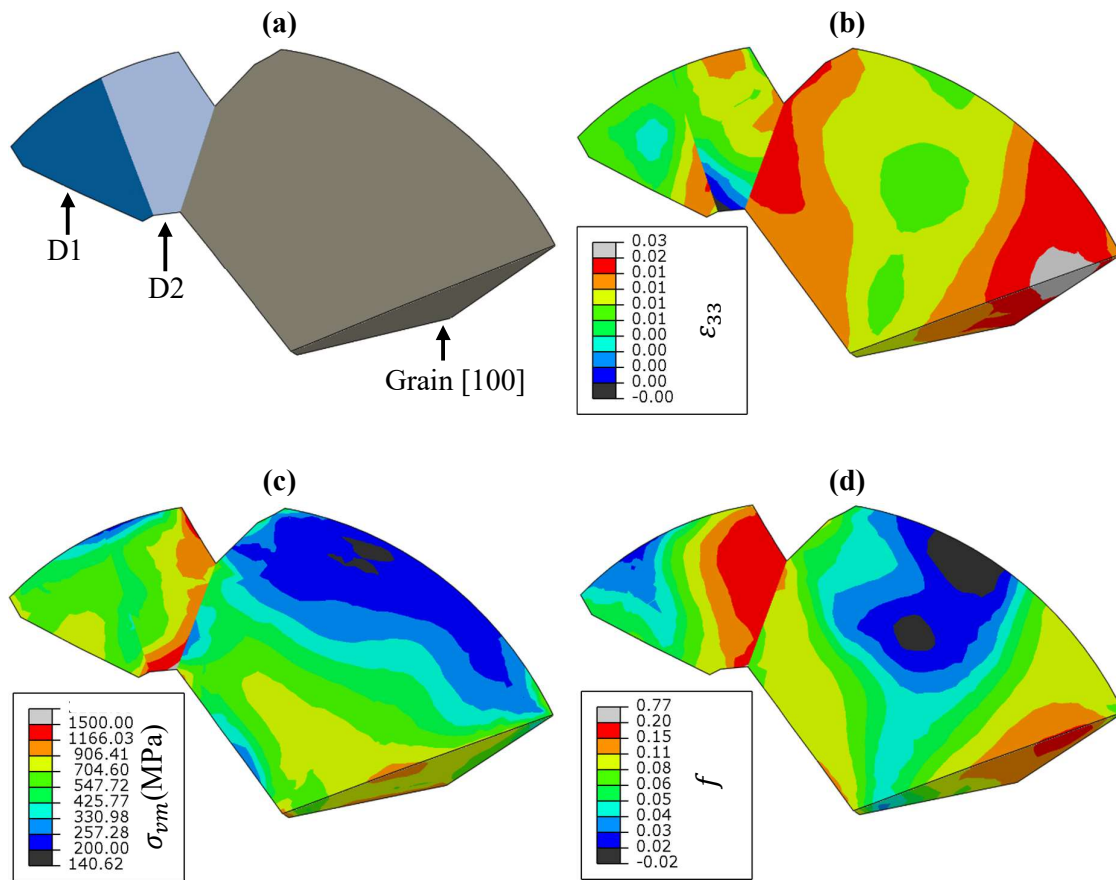


**Figure 5.18** Distribution de la fraction de martensite dans le grain D1, le grain D2 et les grains voisins propres à chacun.

On observe sur la **Figure 5.18** que la martensite développée dans les grains voisins du grain D2 est effectivement localisée essentiellement sur les zones proches des joints de grains les séparant du grain D2, tandis que les voisins du grain D1 ont subi une transformation localisée plutôt dans des régions relativement distantes du grain D1. Cela confirme le fait qu'un développement important de la martensite au voisinage d'un joint de grain va favoriser la transformation au voisinage du joint dans le grain adjacent. Les incompatibilités de déformation aux joints de grains, particulièrement entre des grains adjacents fortement désorientés l'un par rapport à l'autre, constitue un facteur important dans l'apparition et la croissance localisées de différentes variantes de martensite aux voisinages de ces interfaces

intergranulaires. C'est d'ailleurs ces incompatibilités aux joints de grains, aléatoirement orientés dans le polycristal, qui sont à l'origine du pseudo-écrouissage (durcissement) / rupture intergranulaire et de la déformation superélastique limitée par rapport au monocristal (Miyazaki, Kawai, & Otsuka, 1982) (Liu, Huang, & Xie, 2014). En texturant les grains d'un polycristal Cu-Al-Mn dans une direction [100] par solidification unidirectionnelle contrôlée, Liu *et al.* ont pu obtenir une déformation superélastique de 10% au lieu des 3% usuellement observée dans ces alliages polycristallins à mémoire de forme (Liu, Huang, & Xie, 2014).

Pour faciliter la visualisation 3D des grains, le plus gros grain parmi les voisins exclusifs du grain D2 n'a pas été montré sur la **Figure 5.16** et la **Figure 5.18** précédentes. Ce grain, orienté [100] par rapport à l'axe de traction, est en revanche visualisé sur la **Figure 5.19** suivante par une coupe montrant l'intérieur de ce grain et des grains D2 et D1.



**Figure 5.19** Distribution des déformations  $\epsilon_{33}$  (b), des contraintes de Von-Mises  $\sigma_{VM}$  (c) et de la fraction totale de martensite (d), sur une coupe 2D dans les trois grains D1 – D2 – grain adjacent (a).

On s'aperçoit sur la **Figure 5.19(b)** et (c) que le grain orienté [100] s'est largement déformé dans la direction de traction tout en subissant moins de contraintes, en comparaison aux grains D1 et D2 orientés [110].

Ces deux derniers, étant proches en termes d'orientation, développent un comportement proche au sein de leur centre, en particulier en termes de contraintes où une certaine continuité des couleurs iso-valeurs est observée (**Figure 5.19(c)**). Cependant, une forte discontinuité de comportement est observée entre le grain D2 et son grain adjacent orienté [100], que ce soit en termes de déformations (**Figure 5.19(b)**) ou de contraintes (**Figure 5.19(c)**). Cette large hétérogénéité de déformation aux voisinages de grain D2 / grain [100] s'est dont traduit par une forte concentration de contraintes sur le grain D2 près du joint de grain en question (**Figure 5.19(c)**) et une forte transformation de ce grain dans cette même région (**Figure 5.19(d)**).

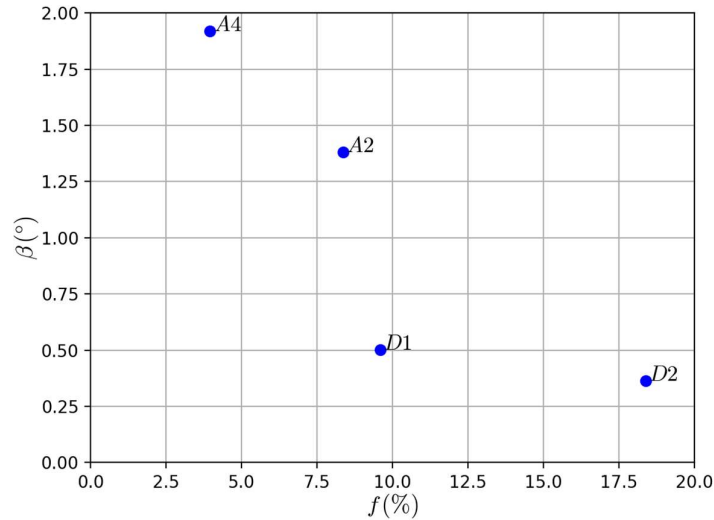
Cette analyse effectuée à une échelle microscopique confirme donc les observations et les conclusions révélées auparavant dans l'analyse à l'échelle moyenne mésoscopique. Bien qu'elle ne permette pas une description complète et explicite de l'état mécanique et microstructural, une analyse à l'échelle mésoscopique a tout de même permis d'identifier certaines sources d'hétérogénéités qui agissent à une échelle microscopique plus fine et a montré une bonne aptitude de transition d'échelle sur ces résultats de modélisation.

### 5.3.3.3 Effet des interfaces austénite / martensite sur la rotation des grains

Hormis les effets des joints de grains et des orientations cristallographiques adjacentes, les hétérogénéités induites par les interfaces austénite-martensite influencent à leur tour les comportements locaux (intragranulaire) et moyen (intergranulaire) des grains dans le polycristal. Cependant, il est plus difficile d'étudier numériquement ses effets vu la complexité de décrire entièrement la microstructure des domaines microscopiques biphasés et toutes les variantes martensitiques induites par traction dans une éprouvette à grains micrométriques.

A défaut de pouvoir analyser l'effet du voisinage des interfaces austénite / martensite à l'échelle microscopique, le choix fait dans cette étude est de réduire l'analyse aux fractions  $f$  de martensite, en admettant que l'effet des interfaces A/M augmente avec l'augmentation de  $f$ . La rotation élastique des grains (A2 – A4) ainsi que les grains (D1 – D2) est tracée dans la **Figure 5.20** en fonction de la fraction  $f$  totale de martensite dans chacun de ces 4 grains. L'évolution de l'orientation (rotation) des éléments finis de chaque grain n'a pas été suivie dans cette simulation numérique. Cependant, la rotation moyenne d'un grain peut être obtenue en 3DXRD

en calculant l'angle de désorientation  $\beta$  du grain entre deux chargements (mesures 3DXRD) différents, par sa matrice d'orientation  $U$  qui évolue au cours de la traction. L'amplitude de rotation donnée dans la **Figure 5.20** est calculée entre l'état initial et le chargement n°8 selon l'équation (3.3).

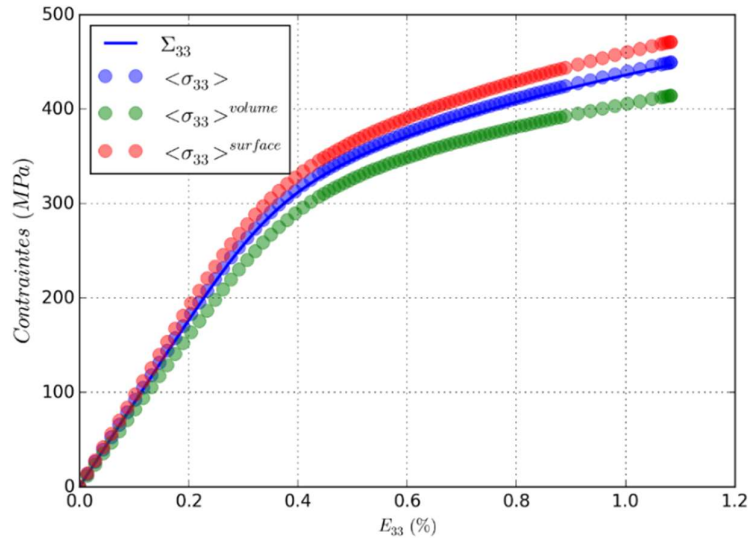


**Figure 5.20** Amplitude de rotation des grains A2 – A4 et D2 – D4 en fonction de leur degré de transformation.

Le grain A2 a subi, en moyenne, moins de rotation que son binôme A4. Comme le grain A2 est en moyenne plus transformé que le grain A4, il semble donc que la rotation soit d'autant plus faible que le grain transforme beaucoup ; la même observation est valable pour le doublet de grains (D1 – D2). Cela est dû à la croissance des interfaces A/M et l'apparition des sous-domaines d'austénite séparées par les variantes de martensite. En effet, les travaux de Bucsek sur un AMF Ni-Ti (Bucsek, et al., 2019) ont montré que la désorientation intragranulaire est nettement plus faible aux voisinages des variantes martensitiques par rapport aux régions fortement austénitiques. Cela aura pour effet de donner lieu à une dispersion d'orientation entre les différents sous-domaines et, par conséquent, une évolution relativement moins prononcée de l'amplitude de rotation lorsqu'elle est moyennée sur tout le grain comme dans le cas de 3DXRD. Cet effet de dispersion d'orientation à l'intérieur du grain a également été observé expérimentalement par diffraction de neutrons dans un alliage Cu-Al-Be à gros grains millimétriques (Malard, 2008) (Berveiller, Malard, Wright, Patoor, & Geandier, 2011) (Malard, Sittner, Berveiller, & Patoor, 2012).

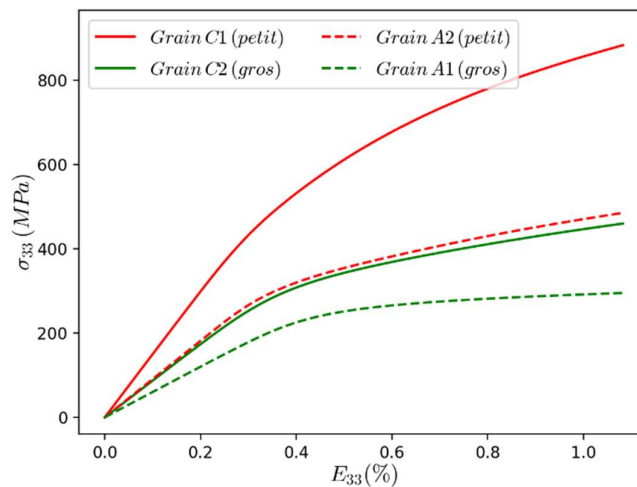
### 5.3.4 Effet de localisation et de taille de grain

Dans ce paragraphe, les effets potentiels de localisation du grain (cœur / surface de l'éprouvette) et de sa taille sont étudiés. Une comparaison du comportement macroscopique moyen entre le cœur de l'éprouvette et sa périphérie est donnée à la **Figure 5.21**, en termes de  $\sigma_{33}$  moyennées pondérées par le volume des grains, en se basant sur les résultats du calcul MEF.



**Figure 5.21** Evolution des contraintes  $\sigma_{33}$  moyennées sur toute l'éprouvette, sur les grains de surface externe et sur les grains au volume intérieur (cœur de l'éprouvette) selon le calcul MEF.

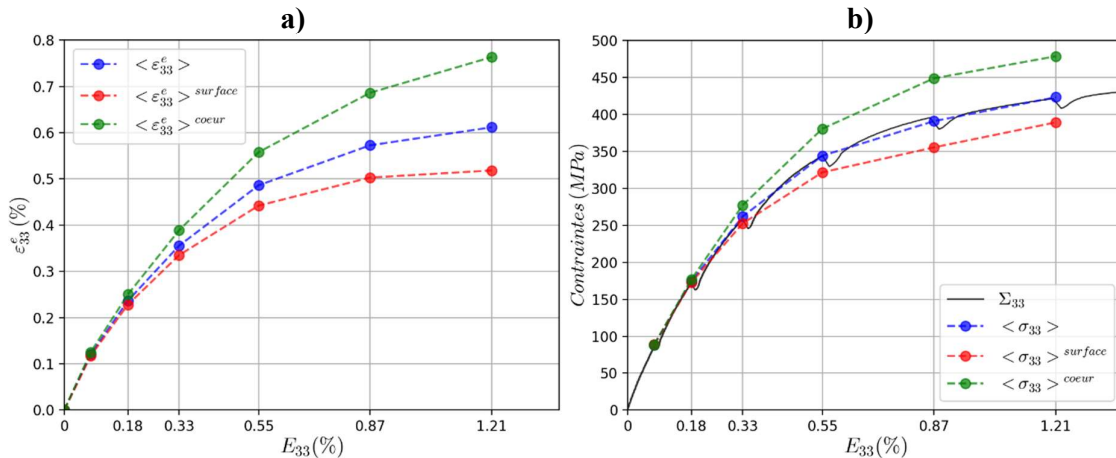
On remarque qu'il y a, en moyenne, plus de contraintes sur les grains de surface que sur les grains du cœur de l'éprouvette. Cette observation est justifiée par le fait qu'il y a beaucoup de petits grains en surface de l'éprouvette.



**Figure 5.22** Effet de la taille du grain sur l'état de contraintes pour des grains de même orientation cristallographique.

En effet, pour des orientations équivalentes, l'analyse a montré que les petits grains subissent souvent davantage de contraintes moyennes sur le grain, comme observé par exemple sur le doublet A1 – A2 ou encore le doublet de grains C1 – C2 (**Figure 5.22**). Le nombre élevé d'orientations aléatoires adjacentes des petits grains de surface et la forte densité de joints de grains dans cette région de l'éprouvette semblent rendre ces grains plus durs à déformer et subissant de fortes densités de contraintes intergranulaires ; Aussi cela se traduit aux échelles mésoscopique et macroscopique par un état de contraintes relativement plus élevé aux voisinages de la surface, par rapport au cœur de l'éprouvette constitué de grains plus gros. Cet effet de la taille des grains est en accord avec la littérature : en comparant le comportement pseudo-élastique d'éprouvettes de l'alliage Cu-Al-Be de différentes tailles de grain, une augmentation des niveaux de contraintes a été observée lorsque la taille de grain diminue (Montecinos, Cuniberti, & Sepulveda, 2008) (Montecinos & Cuniberti, 2012) (Sade, de Castro Bubani, Lovey, & Torra, 2014).

L'analyse de cet effet de localisation a également été effectuée sur les résultats expérimentaux de 3DXRD. La **Figure 5.23** montre les déformations élastiques et les contraintes moyennes, au cours du chargement, pour les grains de surface et les grains de volume.



**Figure 5.23** Évolution des déformations élastiques  $\varepsilon_{33}^e$  (a) et des contraintes  $\sigma_{33}$  (b) moyennées sur toute l'éprouvette, sur les grains de surface externe et sur les grains au volume intérieur (cœur de l'éprouvette) selon les résultats de la 3DXRD.

A partir de la **Figure 5.23**, on observe moins de déformations élastiques et moins de contraintes à la surface par rapport au cœur de l'éprouvette. Ceci est en contradiction avec les prédictions du modèle.

La déformation élastique  $\varepsilon_{33}^e$  sature à 0,5 % en moyenne dans les grains de surface alors qu'elle continue de monter à l'intérieur de l'échantillon. De même, le domaine de transformation est observé à des contraintes  $\sigma_{33}$  plus faibles en surface par rapport au cœur. Le changement de pente pour  $\sigma_{33}$  aux chargements n°2 à n°4 est visiblement plus brusque en surface qu'en cœur. Ces trois observations suggèrent un avancement plus important de la transformation martensitique en surface.

Les différences observées peuvent être dues à différents facteurs. Hormis l'effet de relaxation de contraintes dû à la surface, la différence de comportement cœur – surface est due aux hétérogénéités observées préalablement entre ces deux régions à l'état initial (*Cf.* Chapitre 3). En effet, les petits grains proches de la surface de l'échantillon sont plus susceptibles d'être localisés dans un champ de contraintes résiduelles non négligeables dès l'état initial (chargement n°0). Un tel champ de contraintes locales contribue à un début anticipé de la transformation dans les grains de surface, par rapport aux grains positionnés au cœur de l'éprouvette. Ce constat va de paire avec les observations retenues du post-traitement 3DXRD et décrites dans le chapitre 3 ; à savoir :

- la présence d'une petite fraction de martensite dès le serrage de l'éprouvette dans la machine de traction,
- la faible complétude des grains de surface et les difficultés à les indexer et les affiner,
- un paramètre de maille relativement différent entre la surface et le cœur de l'échantillon.

Cet écart de comportement cœur – surface n'a cependant pas été reproduit dans la simulation numérique car tous les grains ont été pris comme étant 100% austénitiques et sans contraintes résiduelles.

## Conclusion

L'ensemble de données expérimentales et de modélisation numériques ont été exploitées dans ce chapitre pour étudier les relations microstructure – transformation – comportement mécanique tant aux échelles macro/méso qu'à l'échelle microscopique.

A l'échelle macroscopique de l'éprouvette, 9% du volume austénitique analysé a été transformé en martensite à la fin de la simulation où la déformation macroscopique était égale à 1,08%. A une échelle mésoscopique, une corrélation linéaire entre les déformations totales dans le domaine élastiques et dans le domaine de transformation a été observée sur le modèle. Cela

peut servir, lors d'un essai expérimental de traction, à estimer la fraction moyenne de la martensite dans un grain à un chargement donné en extrapolant les déformations élastiques moyennes dans sur le grain, mesurées par la 3DXRD.

Une analyse des variantes de martensite développées à l'échelle de grain a été effectuée. Elle a montré que le critère de Schmid, bien qu'il est influant, n'est pas suffisant à prédire l'apparition et la croissance des variantes martensitiques. Un facteur mécanique, introduit en intégrant les cisssions résolues et le chargement imposé, a été mieux adapté à prédire le développement des variantes de martensite.

Aussi, l'analyse mésoscopique grain à grain en se limitant au seul effet de l'orientation cristallographique a montré son insuffisance à expliquer entièrement les hétérogénéités de comportement. Tout comme dans l'analyse expérimentale (conclusion du chapitre 3), le modèle a montré que des grains de même orientation peuvent avoir des comportement sensiblement différents. Les effets des orientations voisines, des joints de grains et contraintes intergranulaires, des interfaces austénite / martensite, de la localisation et de la taille de grains ont été alors étudiés et discutés.

A l'échelle mésoscopique, nous avons montré que le développement de la transformation martensitique dans un grain peut favoriser la transformation dans ses grains adjacents. Ce résultat a été confirmé par la suite à une échelle microscopique. L'étude à l'échelle microscopique a en effet montré que de fortes incompatibilités de déformations intergranulaires créent des fortes concentrations de contraintes intergranulaires qui agissent sur les régions contiguës des joints de grains et contribuent ainsi au développement de variantes martensitiques localisées particulièrement aux joints de grains. Les contraintes intergranulaires aux joints de grains augmentent avec la désorientation entre les grains voisins ; un grain dur mal orienté peut rapidement se transformer s'il est entouré de grains moins rigides tels que les grains [100].

D'autre part, un effet de la transformation martensitique a été observé sur les amplitudes de rotation des grains : le développement de domaines martensitiques et interfaces austénite / martensite dans un grain austénitique ralentissent la rotation de ce dernier.

Enfin, un effet de taille de grain a été montré. Les petits grains subissent plus de contraintes et de transformation que les gros grains, à orientation équivalente. Cependant, l'effet de taille de grains ne peut être découplé de l'effet de localisation des grains dans l'éprouvette étudiée car celle-ci est composée de gros grains à l'intérieur et de petits grains en périphérie.



# Conclusion générale et perspectives

## Conclusion :

L'objectif de ce travail était d'étudier à la fois numériquement et expérimentalement le comportement superélastique d'un alliage à mémoire de forme, à l'échelle des grains individuels d'un polycristal. Une simulation par éléments finis a été utilisée, avec la loi de comportement AMF développée par ailleurs au laboratoire. En parallèle, deux techniques expérimentales, basées sur le rayonnement synchrotron, ont été mises en œuvre pour étudier les champs microstructuraux et mécaniques du polycristal étudié ; grâce au couplage entre la 3DXRD et la TCD (tomographie à contraste de diffraction), des comparaisons entre données expérimentales et numériques ont été possibles.

Après avoir présenté les principes généraux des deux techniques expérimentales utilisées dans le chapitre 2, le matériau de l'étude a été introduit. Il s'agit d'une éprouvette de traction cylindrique en alliage Cu-Al-Be austénitique à température ambiante et de diamètre 0,86 mm. Elle a fait l'objet d'une caractérisation initiale par TCD, ce qui permet une reconstruction 3D de la microstructure réelle. Puis la 3DXRD a été utilisée au cours de l'essai de traction in-situ afin de suivre le comportement mécanique en temps réel.

Si ces deux techniques étaient déjà utilisées pour des matériaux présentant de la plasticité par mouvement de dislocations, il a fallu les adapter au cas des alliages à mémoire de forme qui présentent une microstructure évolutive : au cours du chargement, une seconde phase, la martensite, apparaît venant perturber le signal de diffraction. La méthodologie développée ainsi que l'étude de sensibilité réalisée ont été présentées dans le chapitre 3. Ainsi, pour la première fois, 187 grains d'un polycristal d'AMF ont pu être suivis en 3DXRD lors d'un essai de traction in-situ : leur orientation cristallographique, leur position dans l'échantillon ont pu être mesurées, de même que leur état de déformation élastique et de contraintes et leur rotation. De fortes hétérogénéités de contraintes ont été mises en évidence entre les grains, le rapport entre le maximum et le minimum pouvant être supérieur à 2. Cela a été corrélé, pour la majorité des grains, à leur orientation cristallographique : les grains orientés [111] sont en général plus

contraints que ceux orientés [100]. Toutefois, certains grains ne suivaient pas cette constatation. Il a donc été nécessaire d'avoir recours à la simulation numérique afin de pouvoir interpréter plus en détail les résultats expérimentaux. C'était l'objet du chapitre 4.

Les équations constitutives du comportement de l'AMF ont été introduites dans le logiciel ABAQUS®. Dans un premier temps, seul un monocristal a été simulé, avant d'étendre le modèle au polycristal réel. Pour cela, la microstructure reconstruite par TCD a été maillée et optimisée à l'aide du logiciel NEPER, en appliquant différents paramètres de tessellations. Les paramètres de la loi de comportement ont été pris soit dans la littérature, soit dans les données expérimentales de l'alliage. A l'échelle macroscopique, la courbe contrainte-déformation simulée reproduit parfaitement l'essai expérimental. Les données issues de la modélisation ont été comparées aux données obtenues par 3DXRD à l'échelle du grain ; c'est la première fois qu'une telle comparaison a pu être faite sur un nombre de grains aussi important dans un polycristal subissant une transformation martensitique induite par traction! Les évolutions des contraintes moyennes, calculées sur l'ensemble des éléments finis présents dans le grain, sont en très bon accord pour 90% des grains.

Le suivi des variantes martensitiques à l'échelle mésoscopique, en tenant compte à la fois des cissions résolues expérimentales et numériques et des facteurs de Schmid de la microstructure initiale, a mis en évidence une forte contribution du champ local (intragranulaire) des contraintes internes, des variantes de martensite de faible facteur de Schmid pouvant se développer localement où une forte concentration de contraintes est observée. Ce résultat a été confirmé grâce aux investigations des données de la simulation à l'échelle microscopique.

Si la simulation a confirmé l'importance de l'orientation du grain sur son comportement, elle a également permis de montrer que les grains voisins influencent également fortement l'état de contraintes d'un grain individuel : les plus fortes contraintes sont atteintes au niveau des joints grains. La valeur maximale est d'autant plus élevée que les grains sont petits. A l'échelle des grains individuels, la fraction volumique moyenne de martensite développée dans un grain a été corrélée aux fractions de martensite dans les grains adjacents : la croissance de la phase martensitique dans un grain favorise souvent la transformation dans ces grains voisins.

L'analyse des résultats de la simulation à l'échelle inter et intragranulaire a mis en évidence une corrélation significative entre la fraction de martensite, les contraintes intergranulaires et les incompatibilités de déformation entre les grains voisins. Par conséquent, un fort effet de

grains voisins sur l'état mécanique et microstructural a été démontré à l'échelle mésoscopique et microscopique.

Ainsi, en conclusion, un dialogue détaillé et quantitatif des résultats expérimentaux et numériques a été entrepris dans un alliage à mémoire de forme superélastique, sur plus de 180 grains. Les méthodologies développées, tant du point de vue expérimental que numérique, ont permis de comparer les positions de grains, les états de déformation élastique et de contrainte sur l'ensemble des grains et de les relier au développement de la transformation martensitique dans cet alliage. Cette approche a grandement contribué à une meilleure compréhension de la relation microstructure – comportement dans l'alliage étudié, notamment les importants effets de l'orientation, de l'anisotropie élastique et des interactions entre grains voisins. La complexité de la microstructure, avec l'apparition de la martensite au cours du chargement, a pointé les limitations de la méthodologie développée, la martensite ne pouvant être entièrement caractérisée par la méthode mise au point.

### **Perspectives :**

D'un point de vue méthodologie, les évolutions entreprises en 2019 sur la source de l'ESRF permettent d'envisager de futures investigations expérimentales plus poussées en 3DXRD – TCD.

Pour la 3DXRD, des mesures supplémentaires effectuées avec un faisceau micro-focalisé (S-3DXRD) permettrait de déterminer l'évolution des champs mécaniques intragranulaires là où l'approche actuelle est limitée à une analyse moyennée sur le grain.

Dans cette étude, nous ne nous sommes pas intéressés à la martensite car sa structure cristallographique complexe rend difficile l'indexation de son signal de diffraction en 3DXRD ; nous n'avons donc pas pu déterminer l'évolution de son état de déformation. Il serait donc intéressant d'étendre la méthodologie développée à la structure M18R de la martensite. Une solution envisageable serait de modéliser les angles de diffraction des variantes susceptibles d'être activées dans chaque grain austénitique, en vue d'une comparaison au signal expérimental de diffraction.

La TCD a été utilisée uniquement pour imager la microstructure initiale. Une résolution améliorée et des temps de comptage plus réduits permettraient un suivi par TCD de l'évolution de la microstructure et une observation directe des variantes de martensite dans le volume de l'échantillon, lors d'essais de traction in-situ, ce qui n'est actuellement possible par aucune autre technique.

Une approche couplée entre la 3DXRD, la S-3DXRD et la TCD in-situ permettrait une description complète multi-échelles de l'état mécanique et microstructural dans les deux phases, l'austénite et la martensite. Les récentes évolutions également en termes d'algorithmes de reconstruction et de post-traitement seraient très utiles au développement de cette méthodologie.

De manière générale, les conditions d'acquisition des clichés, que ce soit en 3DXRD ou en TCD, seront à optimiser compte tenu de la faible intensité du signal de diffraction de la martensite par rapport à l'austénite mère. Les résultats expérimentaux envisagés pourraient également servir dans l'optimisation de la loi de comportement et devraient rendre plus performant le modèle micromécanique utilisé.

Si une différence d'état de contraintes entre les grains en surface et les grains en volume de l'échantillon a été mise en évidence, son origine n'a pu être déterminée avec certitude. En effet, plusieurs facteurs couplés ont été identifiés :

- les grains de surface présentaient des tailles plus faibles que ceux du volume,
- le traitement thermique a conduit à des contraintes résiduelles et de la martensite en surface, avant même tout chargement.

Il serait donc souhaitable de pouvoir reproduire l'expérience sur un polycristal avec des tailles de grains plus homogènes afin de pouvoir découpler ces deux facteurs.

# Bibliographie

- Aaronson, H. I., & Purdy, G. R. (2004). Discussion to "Grain nucleation and growth during phase transformations" by SE Offerman et al., *Science*, 298, 1003 (November 1, 2002). *Scripta materialia*, 51(9), 931-935.
- Abdolvand, H., Wright, J., & Wilkinson, A. J. (2018). Strong grain neighbour effects in polycrystals. *Nature communications*, 9(1), 171, 1-11.
- Baron, M. P. (1998). Etude du comportement des interfaces austénite/martensite et martensite/martensite de deux alliages à effet mémoire de forme: le CuZnAl et le CuAlBe (*Doctoral dissertation, Lyon, INSA*).
- Belkahla, S. (1990). Elaboration et caractérisation de nouveaux alliages à mémoire de forme basse température type Cu-Al-Be (*Doctoral dissertation, Lyon, INSA*).
- Bensalah, M. O. (1992). Contribution à l'étude des comportements thermomécaniques des mono et polycristaux en plasticité de transformation (*Doctoral dissertation, Rabat, Université Mohammed V*).
- Bernier, J. V., Barton, N. R., Lienert, U., & Miller, M. P. (2011). Far-field high-energy diffraction microscopy: a tool for intergranular orientation and strain analysis. *The Journal of Strain Analysis for Engineering Design*, 46(7), 527-547.
- Berveiller, S., Malard, B., Wright, J., Patoor, E., & Geandier, G. (2011). In situ synchrotron analysis of lattice rotations in individual grains during stress-induced martensitic transformations in a polycrystalline CuAlBe shape memory alloy. *Acta Materialia*, 59(9), 3636-3645.
- Blondé, R., Jimenez-Melero, E., Zhao, L., Wright, J. P., Brück, E., Van der Zwaag, S., & Van Dijk, N. H. (2012). High-energy X-ray diffraction study on the temperature-dependent mechanical stability of retained austenite in low-alloyed TRIP steels. *Acta Materialia*, 60(2), 565-577.

- Blondé, R., Jimenez-Melero, E., Zhao, L., Wright, J. P., Brück, E., Van der Zwaag, S., & Van Dijk, N. H. (2014). Mechanical stability of individual austenite grains in TRIP steel studied by synchrotron X-ray diffraction during tensile loading. *Materials Science and Engineering: A*, 618, 280-287.
- Brinson, L. C., Schmidt, I., & Lammering, R. (2004). Stress-induced transformation behavior of a polycrystalline NiTi shape memory alloy: micro and macromechanical investigations via in situ optical microscopy. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 52(7), 1549-1571.
- Bucsek, A. N., Dale, D., Ko, J. Y. P., Chumlyakov, Y., & Stebner, A. P. (2018). Measuring stress-induced martensite microstructures using far-field high-energy diffraction microscopy. *Acta Crystallographica Section A: Foundations and Advances*, 74(5), 425-446.
- Bucsek, A., Seiner, H., Simons, H., Yildirim, C., Cook, P., Chumlyakov, Y., ... & Stebner, A. P. (2019). Sub-surface measurements of the austenite microstructure in response to martensitic phase transformation. *Acta Materialia*, 179, 273-286.
- Buffiere, J. Y., Maire, E., Adrien, J., Masse, J. P., & Boller, E. (2010). In situ experiments with X ray tomography: an attractive tool for experimental mechanics. *Experimental mechanics*, 50(3), 289-305.
- Busing, W. R., & Levy, H. A. (1967). Angle calculations for 3-and 4-circle X-ray and neutron diffractometers. *Acta Crystallographica*, 22(4), 457-464.
- Chatziathanasiou, D., Chemisky, Y., Chatzigeorgiou, G., & Meraghni, F. (2016). Modeling of coupled phase transformation and reorientation in shape memory alloys under non-proportional thermomechanical loading. *International Journal of Plasticity*, 82, 192-224.
- Chemisky, Y. (2009). Modélisation du comportement macroscopique des alliages à mémoire de forme: application aux matériaux composites (*Doctoral dissertation, Metz, Université Paul Verlaine*).
- Chemisky, Y., Duval, A., Patoor, E., & Zineb, T. B. (2011). Constitutive model for shape memory alloys including phase transformation, martensitic reorientation and twins accommodation. *Mechanics of Materials*, 43(7), 361-376.
- Chemisky, Y. (2019). "Simcoon". [<https://github.com/3MAH/simcoon>].

- Clapeyron, É. (1834). Mémoire sur la puissance motrice de la chaleur. *Journal de l'École polytechnique*, 14, 153-190.
- Collard, C., Zineb, T. B., Patoor, E., & Salah, M. O. B. (2008). Micromechanical analysis of precipitate effects on shape memory alloys behaviour. *Materials Science and Engineering: A*, 481, 366-370.
- Czaplicki, E. (2012). "VoronoiDiagram2d", Elm's package. [<https://package.elm-lang.org/packages/ianmackenzie/elm-geometry/latest/VoronoiDiagram2d>].
- Efron, B. (1979). The 1977 RIETZ lecture. *The annals of Statistics*, 7(1), 1-26.
- El Hachi, Y., Malard, B., Berveiller, S., & Wright, J. (2015). Measurement of lattice rotations and internal stresses in over one hundred individual grains during a stress-induced martensitic transformation. In *MATEC Web of Conferences*, EDP Sciences, 33, 02003.
- Entemeyer, D. (1996). *Etude micromécanique du comportement thermomécanique des alliages à mémoire de forme (Doctoral dissertation, Metz, Université Paul Verlaine)*.
- ESRF (2005). "FABLE". [<https://github.com/FABLE-3DXRD>].
- Fassi-Fehri, O., Hihi, A., & Berveiller, M. (1987). Elastic interactions between variants in pseudoelastic single crystals. *Scripta metallurgica*, 21(6), 771-775.
- Ghazvinian, E., Diederichs, M. S., & Quey, R. (2014). 3D random Voronoi grain-based models for simulation of brittle rock damage and fabric-guided micro-fracturing. *Journal of Rock Mechanics and Geotechnical Engineering*, 6(6), 506-521.
- Guénin, G. (1988). Effet mémoire de forme et phénomènes associés. *Revue d'Orthopédie Dento-Faciale*, 22(1), 17-28.
- Hall, E. O. (1951). The deformation and ageing of mild steel: III discussion of results. *Proceedings of the Physical Society. Section B*, 64(9), 747-753.
- Hayashi, Y., Hirose, Y., & Seno, Y. (2015). Polycrystal orientation mapping using scanning three-dimensional X-ray diffraction microscopy. *Journal of Applied Crystallography*, 48(4), 1094-1101.

- Hayashi, Y., Setoyama, D., & Seno, Y. (2017). Scanning three-dimensional x-ray diffraction microscopy with a high-energy microbeam at SPring-8. In *Materials Science Forum*, Trans Tech Publications Ltd, 905, 157-164.
- Henningsson, N. A., Hall, S. A., Wright, J. P., & Hektor, J. (2020). Reconstructing intragranular strain fields in polycrystalline materials from scanning 3DXRD data. *Journal of Applied Crystallography*, 53(2), 314-325.
- Héraud, L., Castany, P., Laillé, D., & Gloriant, T. (2015). In situ synchrotron X-ray diffraction of the martensitic transformation in superelastic Ti-27Nb and NiTi alloys: a comparative study. *Materials Today: Proceedings*, 2, 917-920.
- Herbig, M., King, A., Reischig, P., Proudhon, H., Lauridsen, E. M., Marrow, J., ... & Ludwig, W. (2011). 3-D growth of a short fatigue crack within a polycrystalline microstructure studied using combined diffraction and phase-contrast X-ray tomography. *Acta Materialia*, 59(2), 590-601.
- Horikawa, H., Ichinose, S., Morii, K., Miyazaki, S., & Otsuka, K. (1988). Orientation dependence of  $\beta_1 \rightarrow \beta_1'$  stress-induced martensitic transformation in a Cu-Al-Ni alloy. *Metallurgical Transactions A*, 19(4), 915-923.
- Huang, M., & Brinson, L. C. (1998). A multivariant model for single crystal shape memory alloy behavior. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 46(8), 1379-1409.
- Iqbal, N., Van Dijk, N. H., Offerman, S. E., Moret, M. P., Katgerman, L., & Kearley, G. J. (2005). Real-time observation of grain nucleation and growth during solidification of aluminium alloys. *Acta Materialia*, 53(10), 2875-2880.
- James, F., & Roos, M. (1975). MINUIT: a system for function minimization and analysis of the parameter errors and corrections. *Comput. Phys. Commun.*, 10(CERN-DD-75-20), 343-367.
- Jensen, D. J., & Poulsen, H. F. (2012). The three dimensional X-ray diffraction technique. *Materials characterization*, 72, 1-7.
- Kajiwara, S. (1976). Experimental aspects of the crystallography of the martensitic transformation of BCC to 9R close-packed structure. *Transactions of the Japan Institute of Metals*, 17(7), 447-456.



- Kak, A. C., & Slaney, M. (1988). Principles of computerized tomographic imaging, *IEEE Press*. New York.
- Kaouache, B. (2006). Analyse multiéchelles de la transformation martensitique induite par contrainte dans les alliages à mémoire de forme. Corrélation contraintes-microstructure (*Doctoral dissertation, Metz, ENSAM*).
- Kaouache, B., Berveiller, S., Inal, K., Eberhardt, A., & Patoor, E. (2004). Stress analysis of martensitic transformation in Cu–Al–Be polycrystalline and single-crystalline shape memory alloy. *Materials Science and Engineering: A*, 378(1-2), 232-237.
- Karush, W. (1939). Minima of functions of several variables with inequalities as side constraints. *M. Sc. Dissertation. Dept. of Mathematics, Univ. of Chicago*.
- Kieffer, J., & Karkoulis, D. (2013, March). PyFAI, a versatile library for azimuthal regrouping. In *J. Phys. Conf. Ser.*, 425(202012), 1-5.
- Kieffer, J., & Ashiotis, G. (2014). PyFAI: a Python library for high performance azimuthal integration on GPU. *arXiv preprint arXiv:1412.6367*.
- King, A., Herbig, M., Ludwig, W., Reischig, P., Lauridsen, E. M., Marrow, T., & Buffière, J. Y. (2010). Non-destructive analysis of micro texture and grain boundary character from X-ray diffraction contrast tomography. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 268(3-4), 291-296.
- King, A., Guignot, N., Zerbino, P., Boulard, E., Desjardins, K., Bordessoule, M., ... & Bornert, M. (2016). Tomography and imaging at the PSICHE beam line of the SOLEIL synchrotron. *Review of Scientific Instruments*, 87(9), 093704.
- Lautensack, C., & Zuyev, S. (2008). Random Laguerre tessellations. *Advances in applied probability*, 40(3), 630-650.
- Le Page, Y., & Gabe, E. J. (1979). Application of a segment description of the unique set of reflections to data collection and data reduction. *Journal of Applied Crystallography*, 12(5), 464-466.
- Liu, F. T., Ting, K. M., & Zhou, Z. H. (2008, December). Isolation forest. In *2008 Eighth IEEE International Conference on Data Mining*, IEEE, 413-422.

- Liu, J. L., Huang, H. Y., & Xie, J. X. (2014). The roles of grain orientation and grain boundary characteristics in the enhanced superelasticity of Cu71. 8Al17. 8Mn10. 4 shape memory alloys. *Materials & Design*, 64, 427-433.
- Ludwig, W., King, A., Herbig, M., Reischig, P., Marrow, J., Babout, L., ... & Buffiere, J. Y. (2010). Characterization of polycrystalline materials using synchrotron X-ray imaging and diffraction techniques. *JOM*, 62(12), 22-28.
- Ludwig, W., Schmidt, S., Lauridsen, E. M., & Poulsen, H. F. (2008). X-ray diffraction contrast tomography: a novel technique for three-dimensional grain mapping of polycrystals. I. Direct beam case. *Journal of Applied Crystallography*, 41(2), 302-309.
- Ludwig, W., Reischig, P., King, A., Herbig, M., Lauridsen, E. M., Johnson, G., ... & Buffiere, J. Y. (2009). Three-dimensional grain mapping by x-ray diffraction contrast tomography and the use of Friedel pairs in diffraction data analysis. *Review of scientific instruments*, 80(3), 033905.
- Ludwig, W., King, A., Herbig, M., Reischig, P., Marrow, J., Babout, L., ... & Buffiere, J. Y. (2010). Characterization of polycrystalline materials using synchrotron X-ray imaging and diffraction techniques. *JOM*, 62(12), 22-28.
- Malard, B. (2008). Caractérisation multiéchelle par diffraction de neutrons et rayonnement synchrotron de la transformation martensitique sous contrainte dans un alliage à mémoire de forme CuAlBe (*Doctoral dissertation, Metz, ENSAM*).
- Malard, B., Sittner, P., Berveiller, S., & Patoor, E. (2012). Advances in martensitic transformations in Cu-based shape memory alloys achieved by in situ neutron and synchrotron X-ray diffraction methods. *Comptes Rendus Physique*, 13(3), 280-292.
- Merzouki, T. (2008). Identification expérimentale et modélisation micromécanique du comportement d'un multicristal en alliage à mémoire de forme (*Doctoral dissertation, Metz, ENSAM*).
- Miyazaki, S., Kawai, T., & Otsuka, K. (1982). On the origin of intergranular fracture in  $\beta$  phase shape memory alloys. *Scripta Metallurgica*, 16(4), 431-436.
- Montecinos, S., Cuniberti, A., & Sepúlveda, A. (2008). Grain size and pseudoelastic behaviour of a Cu–Al–Be alloy. *Materials Characterization*, 59(2), 117-123.

- Montecinos, S., & Cuniberti, A. (2012). Martensitic transformation and grain size in a Cu-Al-Be alloy. *Procedia Materials Science*, 1, 149-155.
- Montecinos, S., & Cuniberti, A. (2014). Effects of grain size on plastic deformation in a  $\beta$  CuAlBe shape memory alloy. *Materials Science and Engineering: A*, 600, 176-180.
- Moreau, F. (1998). Etude par diffraction des rayons X des effets du cyclage pseudo-élastique de l'alliage à mémoire de forme Cu-Al-Be (*Doctoral dissertation, Metz*).
- Morfa, C. R., de Farias, M. M., Morales, I. P. P., de Navarra, E. O. I., & Valera, R. R. (2018). Virtual modeling of polycrystalline structures of materials using particle packing algorithms and Laguerre cells. *Computational Particle Mechanics*, 5(2), 213-226.
- Nakai, Y., Shiozawa, D., Asakawa, N., Nonaka, K., & Kikuchi, S. (2017). Change of misorientation of individual grains in fatigue of polycrystalline alloys by diffraction contrast tomography using ultrabright synchrotron radiation. *Procedia Structural Integrity*, 3, 402-410.
- Nelder, J. A., & Mead, R. (1965). A simplex method for function minimization. *The computer journal*, 7(4), 308-313.
- Nervo, L. (2015). Characterisation of the deformation mechanisms in hcp metals by combined use of X-ray imaging and diffraction techniques (*Doctoral dissertation, The University of Manchester*).
- Niclaeys, C. (2002). Comportement des monocristaux en AMF. Application au comportement des polycristaux (*Doctoral dissertation, Metz, Université Paul Verlaine*).
- Oddershede, J., Schmidt, S., Poulsen, H. F., Sørensen, H. O., Wright, J., & Reimers, W. (2010). Determining grain resolved stresses in polycrystalline materials using three-dimensional X-ray diffraction. *Journal of Applied Crystallography*, 43(3), 539-549.
- Oddershede, J. (2012). "FitAllB". [<https://github.com/FABLE-3DXRD/fitAllB>].
- Offerman, S. E., Van Dijk, N. H., Sietsma, J., Lauridsen, E. M., Margulies, L., Grigull, S., ... & Van Der Zwaag, S. (2004). Solid-state phase transformations involving solute partitioning: modeling and measuring on the level of individual grains. *Acta Materialia*, 52(16), 4757-4766.

- Otsuka, K., & Wayman, C. M. (Eds.). (1999). Shape memory materials. *Cambridge university press*.
- Paciorek, W. A., Meyer, M., & Chapuis, G. (1999). On the geometry of a modern imaging diffractometer. *Acta Crystallographica Section A: Foundations of Crystallography*, 55(3), 543-557.
- Paranjape, H. M., Paul, P. P., Sharma, H., Kenesei, P., Park, J. S., Duerig, T. W., ... & Stebner, A. P. (2017). Influences of granular constraints and surface effects on the heterogeneity of elastic, superelastic, and plastic responses of polycrystalline shape memory alloys. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 102, 46-66.
- Patoor, E., Eberhardt, A., & Berveiller, M. (1989). Thermomechanical behavior of shape memory alloys. In *European Symposium on Martensitic Transformations*. EDP Sciences, 133-140
- Patoor, E., & Berveiller, M. (1994). Technologie des alliages à mémoire de forme: comportement mécanique et mise en œuvre. *Hermès*.
- Patoor, E., Eberhardt, A., & Berveiller, M. (1996). Micromechanical modelling of superelasticity in shape memory alloys. *Le Journal de Physique IV(6)*, C1-277.
- Peultier, B., Zineb, T. B., & Patoor, E. (2006). Macroscopic constitutive law of shape memory alloy thermomechanical behaviour. Application to structure computation by FEM. *Mechanics of Materials*, 38(5-6), 510-524.
- Poulsen, H. F., & Juul Jensen, D. (1995). *Synchrotron radiation diffraction. A novel tool for recrystallization studies in bulk  $\mu\text{m}$  3 sized local areas* (No. NEI-DK--2144).
- Poulsen, H. F. (2004). 3DXRD – a new probe for materials science. *Roskilde: Risø National Laboratory*.
- Poulsen, H. F. (2004). Three-dimensional X-ray diffraction microscopy: mapping polycrystals and their dynamics. *Springer Science & Business Media*.
- Proudhon, H., Moffat, A., Sinclair, I., & Buffiere, J. Y. (2012). Three-dimensional characterisation and modelling of small fatigue corner cracks in high strength Al-alloys. *Comptes Rendus Physique*, 13(3), 316-327.

- Proudhon, H., Li, J., Reischig, P., Guéinichault, N., Forest, S., & Ludwig, W. (2016). Coupling diffraction contrast tomography with the finite element method. *Advanced Engineering Materials*, 18(6), 903-912.
- Quey, R., Dawson, P. R., & Barbe, F. (2011). Large-scale 3D random polycrystals for the finite element method: Generation, meshing and remeshing. *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering*, 200(17-20), 1729-1745.
- Quey, R., & Renversade, L. (2018). Optimal polyhedral description of 3D polycrystals: method and application to statistical and synchrotron X-ray diffraction data. *Computer Methods in Applied Mechanics and Engineering*, 330, 308-333.
- Quey, R. (2019). "NEPER". [<http://neper.info/>].
- Reischig, P., King, A., Nervo, L., Viganó, N., Guilhem, Y., Palenstijn, W. J., ... & Ludwig, W. (2013). Advances in X-ray diffraction contrast tomography: flexibility in the setup geometry and application to multiphase materials. *Journal of Applied Crystallography*, 46(2), 297-311.
- Renversade, L. (2016). Experimental and numerical analysis of single grain plasticity in an aluminium polycrystal deformed in uniaxial tension (*Doctoral dissertation, Lyon*).
- Rios-Jara, D., Belkahla, S., Canales, A., Flores, H., & Guénin, G. (1991). Elastic constants measurements of  $\beta$  Cu-Al-Be alloys. *Scripta metallurgica et materialia*, 25(6), 1351-1355.
- Sade, M., de Castro Bubani, F., Lovey, F. C., & Torra, V. (2014). Effect of grain size on stress induced martensitic transformations in a Cu–Al–Be polycrystalline shape-memory alloy. Pseudoelastic cycling effects and microstructural modifications. *Materials Science and Engineering: A*, 609, 300-309.
- Sedmák, P., Sittner, P., Pilch, J., & Curfs, C. (2015). Evolution of internal stresses during cyclic superelastic deformation of NiTi investigated by X-ray synchrotron diffraction. *Materials Today: Proceedings*, 2, S731-S734.
- Shiozawa, D., Nakai, Y., Miura, R., Masada, N., Matsuda, S., & Nakao, R. (2016). 4D evaluation of grain shape and fatigue damage of individual grains in polycrystalline alloys by diffraction contrast tomography using ultrabright synchrotron radiation. *International Journal of Fatigue*, 82, 247-255.

- Siredey, N., Patoor, E., Berveiller, M., & Eberhardt, A. (1999). Constitutive equations for polycrystalline thermoelastic shape memory alloys.: Part I. Intragranular interactions and behavior of the grain. *International Journal of Solids and Structures*, 36(28), 4289-4315.
- Šittner, P., Lukáš, P., Neov, D., Daymond, M. R., Novák, V., & Swallowe, G. M. (2002). Stress-induced martensitic transformation in Cu–Al–Zn–Mn polycrystal investigated by two in-situ neutron diffraction techniques. *Materials Science and Engineering: A*, 324(1-2), 225-234.
- Šittner, P., Lukáš, P., Novák, V., Daymond, M. R., & Swallowe, G. M. (2004). In situ neutron diffraction studies of martensitic transformations in NiTi polycrystals under tension and compression stress. *Materials Science and Engineering: A*, 378(1-2), 97-104.
- Somerday, M., Wert, J. A., & Comstock, R. J. (1997). Effect of grain size on the observed pseudoelastic behavior of a Cu-Zn-Al shape memory alloy. *Metallurgical and Materials Transactions A*, 28(11), 2335-2341.
- Suzudo, T., & Kaburaki, H. (2009). An evolutionary approach to the numerical construction of polycrystalline structures using the Voronoi tessellation. *Physics Letters A*, 373(48), 4484-4488.
- Syha, M., Rheinheimer, W., Bäurer, M., Lauridsen, E. M., Ludwig, W., Weygand, D., & Gumbsch, P. (2012). Three-dimensional grain structure of sintered bulk strontium titanate from X-ray diffraction contrast tomography. *Scripta Materialia*, 66(1), 1-4.
- Syha, M., Trenkle, A., Lödermann, B., Graff, A., Ludwig, W., Weygand, D., & Gumbsch, P. (2013). Validation of three-dimensional diffraction contrast tomography reconstructions by means of electron backscatter diffraction characterization. *Journal of applied crystallography*, 46(4), 1145-1150.
- Tucker, H., & Kuhn, W. (1951). Nonlinear programming. *Proceedings of 2nd Berkeley Symposium*. University of California Press, 481-492.
- Van Aarle, W., Palenstijn, W. J., De Beenhouwer, J., Altantzis, T., Bals, S., Batenburg, K. J., & Sijbers, J. (2015). The ASTRA Toolbox: A platform for advanced algorithm development in electron tomography. *Ultramicroscopy*, 157, 35-47.

- Viganò, N., Tanguy, A., Hallais, S., Dimanov, A., Bornert, M., Batenburg, K. J., & Ludwig, W. (2016). Three-dimensional full-field X-ray orientation microscopy. *Scientific reports*, 6(1), 1-9.
- Wright, J. (2017). "ImageD11". [<https://github.com/FABLE-3DXRD/ImageD11>].
- Wright, J., Giacobbe, C., & Majkut, M. (2020). New opportunities at the Materials Science Beamline at ESRF to exploit high energy nano-focus X-ray beams. *Current Opinion in Solid State and Materials Science*, 100818.
- Xu, Y. B., Wang, R. J., & Wang, Z. G. (1995). In-situ investigation of stress-induced martensitic transformation in the Ti-Ni shape memory alloy during deformation. *Materials Letters*, 24(6), 355-358.
- Yang, Z., & Enomoti, M. (2005). International Conference on Solid-Solid Phase Transformations in Inorganic Materials. *Warrendale*.
- Zener, C. (1948). Elasticity and anelasticity of metals. *University of Chicago press*.
- Taylor, R. L., & Zienkiewicz, O. (1989). The Finite Element Method, Volume 1 and 2, *McGraw-Hill Book Company*.





# Annexes

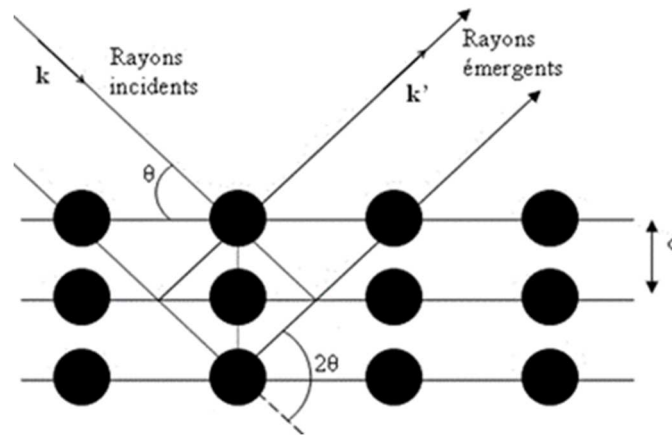
## Annexe 1      Symboles et conventions de notation

« $x$ » ou « $X$ » :	lettre minuscule ou majuscule pour désigner des scalaires.
« $\vec{x}$ » ou « $\vec{X}$ » :	flèche pour désigner des vecteurs de 2 dimensions ou plus.
« <b><math>X</math></b> » ou « <b><math>X</math></b> » :	gras majuscule pour désigner des matrices.
« $\underline{\underline{x}}$ » ou « $\underline{\underline{X}}$ » :	2 barres inférieures pour désigner des tenseurs d'ordre 2.
« $\underline{\underline{\underline{\underline{x}}}}$ » ou « $\underline{\underline{\underline{\underline{X}}}}$ » :	4 barres inférieures pour désigner des tenseurs d'ordre 4.

## Annexe 2      Diffractomètre 3DXRD

### Equation du diffractomètre 3DXRD pour un monocristal

Considérons dans un premier temps, le cas d'un monocristal positionné en (0,0,0). Le vecteur de diffraction  $\vec{G}$  est défini par la différence (bissectrice) entre le vecteur de l'onde incidente  $\vec{k}$  (faisceau incident) et le vecteur de l'onde diffusée  $\vec{k}'$  (faisceau diffracté) comme schématisé dans la **Figure A2.1**.



**Figure A2.1** Représentation de la diffraction d'un plan cristallin. L'angle  $\theta$  est l'angle de diffraction. Il est relié à la distance interréticulaire  $d$  par la loi de Bragg  $\lambda = 2d \sin \theta$ .

Le vecteur de faisceau incident  $\vec{k}$  exprime un vecteur d'onde de longueur  $\lambda$ . Sa norme euclidienne  $\|\vec{k}\|$  est donc exprimée par  $1/\lambda$  (ou  $2\pi/\lambda$ ). Si la diffraction est supposée parfaitement élastique (pas de perte d'énergie), les vecteurs  $\vec{k}$  et  $\vec{k}'$  ont la même norme, ce qui permet d'écrire, en tenant compte aussi de la loi de Bragg :

$$\begin{cases} \vec{G} = \vec{k}' - \vec{k} \\ \|\vec{k}\| = \|\vec{k}'\| = \frac{1}{\lambda} \\ \|\vec{G}\| = 2\|\vec{k}\| \sin \theta = \frac{1}{d} \end{cases} \quad (\text{A2.1})$$

Le vecteur de diffraction étant parallèle à la normale au plan réticulaire diffractant selon les conditions de diffraction de Laue, il peut donc être exprimé par  $\vec{G}_{hkl}$  dans la base du réseau réciproque  $(\vec{a}^*, \vec{b}^*, \vec{c}^*)$  tel que :

$$\vec{G}_{hkl} = \begin{pmatrix} h \\ k \\ l \end{pmatrix} \quad (\text{A2.2})$$

où  $h, k, l$  sont les indices de Miller du plan diffractant.

Le passage du réseau réciproque au réseau direct permet d'exprimer le vecteur de diffraction dans les deux réseaux en effectuant trois changements successifs de repères :

$$\vec{G} = \mathbf{\Gamma} \mathbf{U} \mathbf{B} \vec{G}_{hkl} \quad (\text{A2.3})$$

où  $\mathbf{\Gamma}$ ,  $\mathbf{U}$  et  $\mathbf{B}$  sont des matrices  $3 \times 3$  de changement de repère (matrices de passage).

L'équation (A2.3) est l'équation du diffractomètre 3DXRD. En effet, le vecteur de diffraction  $\vec{G}_{hkl}$  du réseau réciproque peut s'exprimer :

- dans le repère cartésien orthonormé relié au grain par la matrice  $\mathbf{B}$ .
- puis dans le repère de l'échantillon par la matrice d'orientation  $\mathbf{U}$  du grain.
- et dans le repère fixe  $(\vec{x}, \vec{y}, \vec{z})$  de laboratoire, par la matrice  $\mathbf{\Gamma}$  exprimant la rotation  $\omega$  autour de  $z$ .

La matrice  $\mathbf{B}$  permet d'écrire tout vecteur de réseau réciproque dans une base orthonormée. Les trois vecteurs de la base orthonormée du grain ont été choisis par rapport à  $\vec{a}^*$ ,  $\vec{b}^*$ ,  $\vec{c}^*$  de façon à ce que  $\mathbf{B}$  s'écrive (Poulsen, 2004b) :

$$\left\{ \begin{array}{l} \mathbf{B} = \begin{pmatrix} a^* & b^* \cos \gamma^* & c^* \cos \beta^* \\ 0 & b^* \sin \gamma^* & -c^* \sin \beta^* \cos \alpha \\ 0 & 0 & c^* \sin \beta^* \sin \alpha \end{pmatrix} \\ \cos \alpha = \frac{\cos \beta^* \cos \gamma^* - \cos \alpha^*}{\sin \beta^* \sin \gamma^*} \end{array} \right. \quad (\text{A2.4})$$

La matrice  $\mathbf{U}$  est une matrice de rotation permettant de passer du repère du grain au repère de l'échantillon. Elle est alors exprimée en fonction des trois angles d'Euler  $(\varphi_1, \Phi, \varphi_2)$  en suivant le formalisme de Poulsen :

$$\mathbf{U} = \begin{pmatrix} U_{11} & U_{12} & U_{13} \\ U_{21} & U_{22} & U_{23} \\ U_{31} & U_{32} & U_{33} \end{pmatrix} \quad (\text{A2.5})$$

Avec :

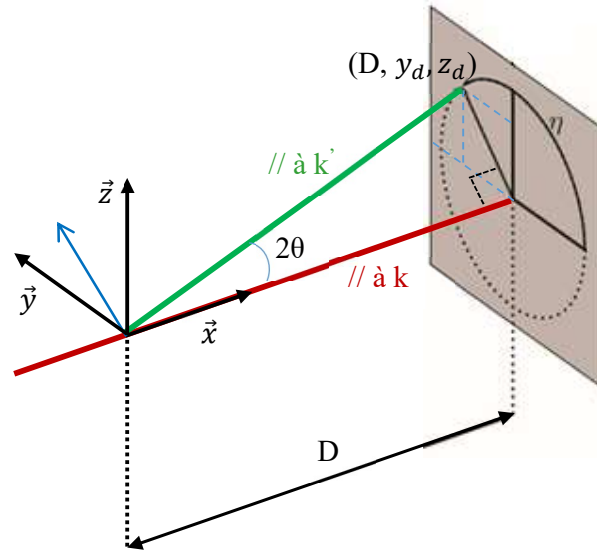
$$\left\{ \begin{array}{l} U_{11} = \cos(\varphi_1) \times \cos(\varphi_2) - \sin(\varphi_1) \times \sin(\varphi_2) \times \cos(\Phi) \\ U_{21} = \sin(\varphi_1) \times \cos(\varphi_2) + \cos(\varphi_1) \times \sin(\varphi_2) \times \cos(\Phi) \\ U_{31} = \sin(\varphi_2) \times \sin(\Phi) \\ U_{12} = -\cos(\varphi_1) \times \sin(\varphi_2) - \sin(\varphi_1) \times \cos(\varphi_2) \times \cos(\Phi) \\ U_{22} = -\sin(\varphi_1) \times \sin(\varphi_2) + \cos(\varphi_1) \times \cos(\varphi_2) \times \cos(\Phi) \\ U_{32} = \cos(\varphi_2) \times \sin(\Phi) \\ U_{13} = \sin(\varphi_1) \times \sin(\Phi) \\ U_{23} = -\cos(\varphi_1) \times \sin(\Phi) \\ U_{33} = \cos(\Phi) \end{array} \right. \quad (\text{A2.6})$$

La matrice  $\Gamma$  permet de passer du repère relié à l'échantillon au repère global de laboratoire. Elle exprime donc la rotation de l'échantillon par un angle  $\omega$  autour de l'axe z. Elle s'exprime, en tenant compte de l'éventuel petit écart (wedge  $w$ ) autour de l'axe y, par :

$$\left\{ \begin{array}{l} \Gamma = \mathbf{W}\Omega \approx \Omega \\ \Omega = \begin{pmatrix} \cos \omega & -\sin \omega & 0 \\ \sin \omega & \cos \omega & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \\ \mathbf{W} = \begin{pmatrix} \cos w & 0 & \sin w \\ 0 & 1 & 0 \\ -\sin w & 0 & \cos w \end{pmatrix} \end{array} \right. \quad (\text{A2.7})$$

Quant au vecteur de diffraction  $\vec{G}$  dans le repère du laboratoire, il peut être exprimé soit en fonction des coordonnées radiales ( $\theta, \eta$ ) soit en fonction des coordonnées cartésiennes du pic dans le repère détecteur. A partir de l'équation (A2.1) et de la géométrie schématisée dans la **Figure A2.2** montrant les composantes de  $\vec{k}$  et  $\vec{k}$  dans le repère  $(\vec{x}, \vec{y}, \vec{z})$ , on peut voir que :

$$\vec{G} = \|\vec{k}'\| \begin{pmatrix} \cos 2\theta \\ -\sin 2\theta \sin \eta \\ \sin 2\theta \cos \eta \end{pmatrix} - \|\vec{k}\| \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} = \frac{1}{\lambda} \begin{pmatrix} \cos 2\theta - 1 \\ -\sin 2\theta \sin \eta \\ \sin 2\theta \cos \eta \end{pmatrix} = \frac{1}{d} \begin{pmatrix} -\sin \theta \\ -\cos \theta \sin \eta \\ \cos \theta \cos \eta \end{pmatrix} \quad (\text{A2.8})$$



**Figure A2.2** Représentation de la diffraction dans la géométrie de la 3DXRD.

D'autre part, la **Figure A2.2** montre que chaque pic de coordonnées  $(y_d, z_d)$  sur le détecteur peut être exprimé dans le repère du laboratoire par un vecteur  $\vec{v}$  parallèle à  $\vec{k}'$ , en tenant compte des petits tilts par rapport au montage idéal (détecteur normal au faisceau), tel que :

$$\left\{ \begin{array}{l} \vec{v} = \begin{pmatrix} D \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} + \mathbf{R} \begin{pmatrix} 0 \\ (y_d - y_d^0)P_y \\ (z_d - z_d^0)P_z \end{pmatrix} \\ \frac{\vec{v}}{\|\vec{v}\|} = \frac{\vec{k}'}{\|\vec{k}'\|} = \begin{pmatrix} \cos 2\theta \\ -\sin 2\theta \sin \eta \\ \sin 2\theta \cos \eta \end{pmatrix} \end{array} \right. \quad (\text{A2.9})$$

avec :

- $D$ , la distance détecteur-échantillon
- $\mathbf{R}$ , la matrice de rotation pour passer du détecteur désaligné au détecteur aligné (trois rotations successives suivant les 3 axes  $\vec{x}$ ,  $\vec{y}$  et  $\vec{z}$ ) :

$$\left\{ \begin{array}{l}
 \mathbf{R} = \mathbf{R}_x \mathbf{R}_y \mathbf{R}_z \\
 \mathbf{R}_x = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & \cos t_x & -\sin t_x \\ 0 & \sin t_x & \cos t_x \end{pmatrix} \\
 \mathbf{R}_y = \begin{pmatrix} \cos t_y & 0 & \sin t_y \\ 0 & 1 & 0 \\ -\sin t_y & 0 & \cos t_y \end{pmatrix} \\
 \mathbf{R}_z = \begin{pmatrix} \cos t_z & -\sin t_z & 0 \\ \sin t_z & \cos t_z & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}
 \end{array} \right. \quad (\text{A2.10})$$

Les coordonnées des pics observés sur le détecteur  $(y_d, z_d, \omega)$  sont obtenues à l'issue de la procédure de recherche des pics. Elles sont transformées en coordonnées radiales  $(\theta, \eta, \omega)$  à partir de l'équation (A2.9). Ensuite, tout vecteur de diffraction  $\vec{G}$ , relié à un pic expérimental observé, est calculé dans le repère du laboratoire par l'équation (A2.8). En introduisant les propriétés cristallographiques initiales de la phase à indexer (symétrie, paramètre de maille), les angles théoriques de diffraction  $\theta_{hkl}$  relatifs aux familles de plans  $\{hkl\}$  qui sont générés selon la méthode décrite par Le Page et Gabe (Le Page & Gabe, 1979). Cela permet d'assigner les pics observés à des anneaux  $\{hkl\}$ , sous une tolérance  $TOL_\theta$ . En réarrangeant l'équation (A2.3), l'équation du diffractomètre 3DXRD s'écrit également par :

$$\vec{G}_{hkl} = (\mathbf{UB})^{-1} \mathbf{\Gamma}^{-1} \vec{G} \quad (\text{A2.11})$$

La matrice  $(\mathbf{UB})^{-1}$  est souvent désignée par le terme « **UBI** ».

## Détermination de la matrice d'orientation d'un monocristal

Soit  $\vec{h}_1$  et  $\vec{h}_2$  deux vecteurs de diffraction non parallèles du monocristal, exprimés dans le réseau réciproque par leurs indices de Miller (vecteurs de réseau réciproque). Ils sont alors réécrits par  $\vec{h}_{1c}$  et  $\vec{h}_{2c}$ , dans la base du réseau direct du cristal, tels que :

$$\left\{ \begin{array}{l}
 \vec{h}_{1c} = \mathbf{B} \vec{h}_1 \\
 \vec{h}_{2c} = \mathbf{B} \vec{h}_2
 \end{array} \right. \quad (\text{A2.12})$$

A partir des deux vecteurs de réseau direct  $\vec{h}_{1c}$  et  $\vec{h}_{2c}$ , une matrice  $3 \times 3$   $\mathbf{T}_c$  dont les colonnes sont constituées de trois vecteurs unitaires  $\vec{t}_{1c}, \vec{t}_{2c}, \vec{t}_{3c}$  est construite telle que :

$$\left\{ \begin{array}{l} \vec{t}_{1c} \parallel \vec{h}_{1c} \\ \vec{t}_{2c} \text{ dans le plan de } \vec{h}_{1c} \text{ et } \vec{h}_{2c} \\ \vec{t}_{3c} \perp (\text{plan de } \vec{h}_{1c} \text{ et } \vec{h}_{2c}) \end{array} \right\} \Leftrightarrow \left\{ \begin{array}{l} \vec{t}_{1c} = \frac{\vec{h}_{1c}}{\|\vec{h}_{1c}\|} \\ \vec{t}_{3c} = \frac{\vec{h}_{1c} \wedge \vec{h}_{2c}}{\|\vec{h}_{1c} \wedge \vec{h}_{2c}\|} \\ \vec{t}_{2c} = \frac{\vec{h}_{1c} \wedge \vec{t}_{3c}}{\|\vec{h}_{1c} \wedge \vec{t}_{3c}\|} \end{array} \right. \quad (\text{A2.13})$$

Soit  $\vec{h}_{1s}$  et  $\vec{h}_{2s}$  les deux vecteurs de diffraction  $\vec{h}_1$  et  $\vec{h}_2$  précédents, exprimés cette fois-ci dans le repère global relié à l'échantillon. On peut de même construire, à partir de  $\vec{h}_{1s}$  et  $\vec{h}_{2s}$ , une matrice  $\mathbf{T}_s$  dont les colonnes sont constituées de trois vecteurs unitaires  $\vec{t}_{1s}$ ,  $\vec{t}_{2s}$ ,  $\vec{t}_{3s}$  telle que :

$$\left\{ \begin{array}{l} \vec{t}_{1s} \parallel \vec{h}_{1s} \\ \vec{t}_{2s} \text{ dans le plan de } \vec{h}_{1s} \text{ et } \vec{h}_{2s} \\ \vec{t}_{3s} \perp (\text{plan de } \vec{h}_{1s} \text{ et } \vec{h}_{2s}) \end{array} \right\} \Leftrightarrow \left\{ \begin{array}{l} \vec{t}_{1s} = \frac{\vec{h}_{1s}}{\|\vec{h}_{1s}\|} \\ \vec{t}_{3s} = \frac{\vec{h}_{1s} \wedge \vec{h}_{2s}}{\|\vec{h}_{1s} \wedge \vec{h}_{2s}\|} \\ \vec{t}_{2s} = \frac{\vec{h}_{1s} \wedge \vec{t}_{3s}}{\|\vec{h}_{1s} \wedge \vec{t}_{3s}\|} \end{array} \right. \quad (\text{A2.14})$$

La matrice d'orientation recherchée correspond alors à une matrice orthogonale de rotation  $\mathbf{U}$  qui satisfait l'équation matricielle :

$$\mathbf{T}_s = \mathbf{U} \mathbf{T}_c \quad (\text{A2.15})$$

La matrice d'orientation est donc égale à :

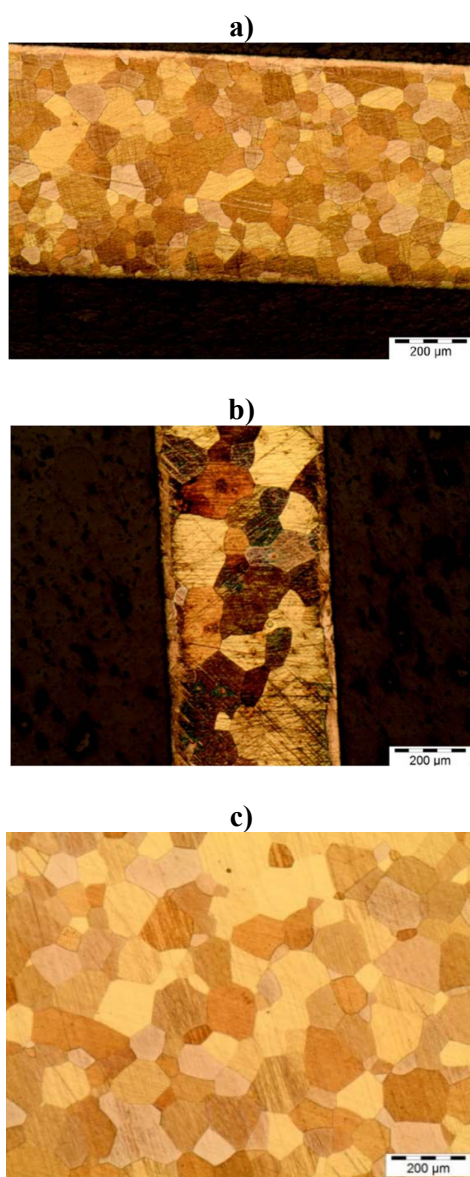
$$\mathbf{U} = \mathbf{T}_s \mathbf{T}_c^{-1} \quad (\text{A2.16})$$



## Annexe 3 Résultats 3DXRD de l'essai de traction réalisé sur trois éprouvettes différentes.

### Préparation des échantillons

Hormis l'éprouvette analysée dans les chapitres 3 à 5 du manuscrit, trois échantillons supplémentaires de l'alliage à mémoire de forme Cu-Al-Be (11,5% massique d'aluminium et 0,6% de béryllium) ont été élaboré et analysé en 3DXRD in-situ. Ils sont nommés **R117-640**, **R117-680** et **AH35** en rapport avec les températures de traitement thermique.



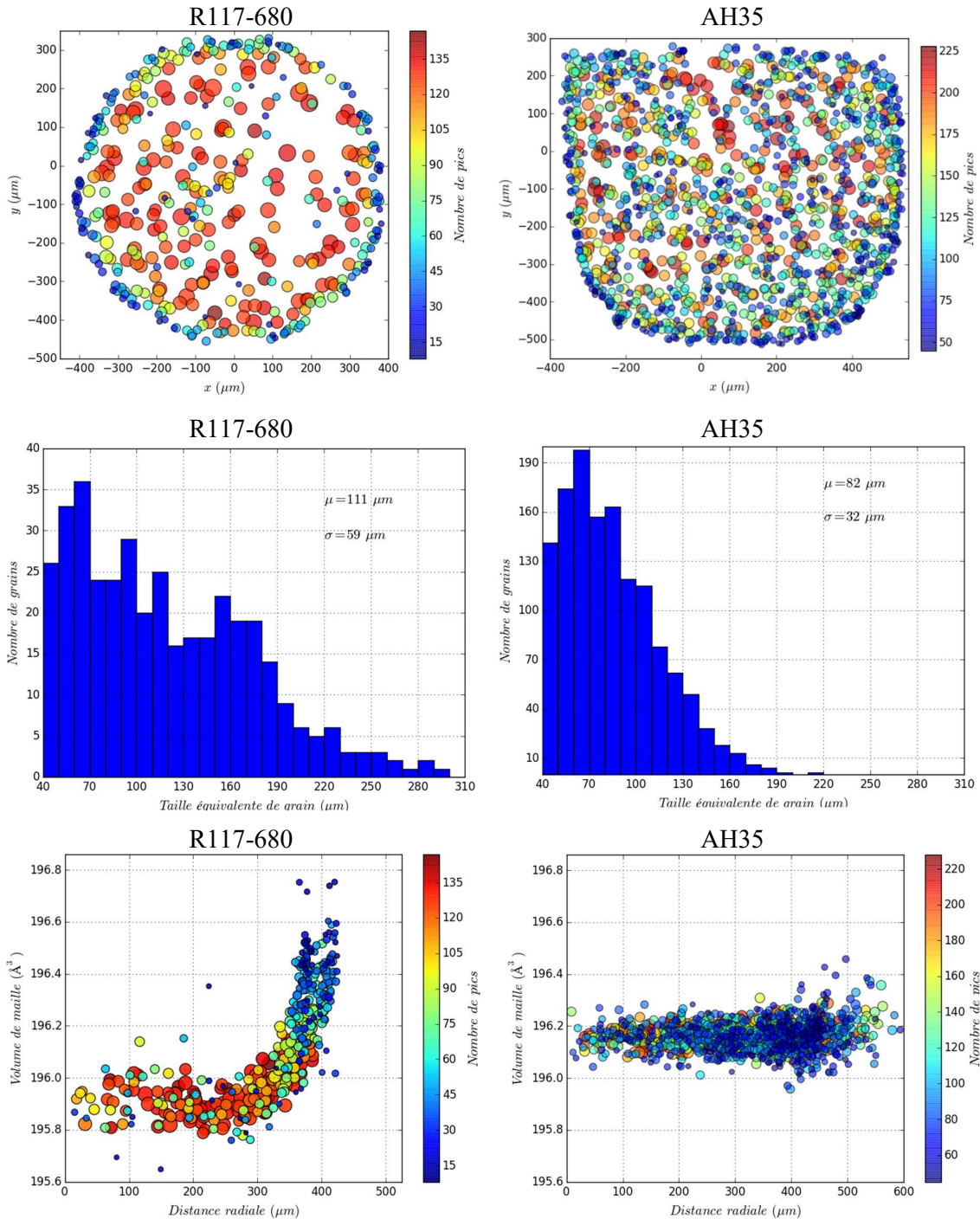
**Figure A3.3** Microstructure des échantillons. a) R117-640. b) R117-680. c) AH35.

Les deux échantillons désignés par « R117 » sont des éprouvettes cylindriques similaires à l'éprouvette analysée dans ce manuscrit mais traités thermiquement à différentes températures pour avoir différentes tailles de grain. Un traitement thermique de recuit a été réalisé pendant cinq minutes à 640°C pour l'éprouvette (R117-640) et à 680°C pour l'éprouvette (R117-680).

L'échantillon désigné par « AH35 » est un brut de filage à chaud, recristallisé à la sortie de filière (grains équiaxes) et non traité thermiquement. L'éprouvette AH35 a été découpée par jet d'eau pour obtenir une largeur de 0,8 mm à partir d'une bande de 3 mm de largeur. L'échantillon AH35 a une température théorique de début de transformation martensitique  $M_s$  de -65°C. L'intérêt ici est d'avoir un échantillon de différente température de transformation et de taille de grains plus petite (pas de TTH de grossissement de grain). La **Figure A3.3** présente la microstructure obtenue chaque échantillon.

## Résultats sur les éprouvettes R117-680 et AH35

La figure ci-dessous décrit l'état initial des éprouvettes R117-680 et AH35.



**Figure A3.4** Analyse de l'état initial de l'échantillon R117-680 (à gauche) et AH35 (à droite).

Contrairement aux échantillons « R117 » tréfilés à froid, l'échantillon AH35 recristallisé à la sortie du filage à chaud présente en effet moins de contraintes de surface.





# **Approche couplée de diffraction à haute énergie et de modélisation numérique pour l'étude multi-échelles du comportement superélastique d'un alliage à mémoire de forme Cu-Al-Be**

## **Résumé**

Ce travail vise à étudier le comportement multi-échelles d'un alliage à mémoire de forme Cu-Al-Be austénitique subissant une transformation martensitique (TM) induite par traction. Du fait de sa forte anisotropie cet alliage est un candidat idéal pour explorer les inhomogénéités qui se développent à l'échelle inter et intragranulaire.

Ce travail de compréhension du comportement superélastique s'est réalisé par une approche couplée entre des méthodes de diffraction à haute énergie et la simulation numérique. La microstructure initiale a été imagée par TCD puis la déformation et la rotation élastiques moyennes sur 187 grains, a été mesurée par 3DXRD à chaque chargement mécanique. La microstructure réelle de l'échantillon a été finement maillée pour reproduire par un calcul en éléments finis l'essai de traction en champ complet. Pour cela, un modèle de comportement micromécanique simulant le comportement du Cu-Al-Be a été utilisé.

Les méthodologies développées, tant du point de vue expérimental que numérique, ont permis de révéler l'influence de l'orientation cristallographique, de la taille des grains, du voisinage, du champ de rotation et de contraintes locales sur la TM.

Mots-clés : Superélasticité, Cu-Al-Be, 3DXRD, TCD, modélisation, contraintes, inhomogénéités inter et intragranulaires

## **Résumé en anglais**

This work aims to study the multi-scale behaviour of an austenitic Cu-Al-Be shape memory alloy (SMA) upon a stress-induced martensitic transformation (MT). Because of its strong anisotropy, this alloy is an ideal candidate to explore the inhomogeneities that develop at the inter and intragranular scales.

This study has been carried out using a coupled approach between high-energy diffraction methods and numerical simulation. The initial microstructure was imaged by TCD then the elastic deformation and rotation averaged over 187 grains were measured by 3DXRD at each mechanical loading. The actual microstructure of the specimen was finely meshed to reproduce the full field tensile test by finite element calculation. For this purpose, a micromechanical behaviour model simulating the behaviour of Cu-Al-Be was used.

The methodologies developed, from both experimental and numerical point of view, revealed the influence of crystallographic orientation, grain size, neighbourhood, rotational field and local stresses on the MT.

Keywords: Superelasticity, Cu-Al-Be, 3DXRD, DCT, modelling, stress, inter and intra-granular inhomogeneities