



**HAL**  
open science

# Analyse expérimentale et modélisation par champs de phase du couplage mécanique/diffusion

Wajih Jbara

► **To cite this version:**

Wajih Jbara. Analyse expérimentale et modélisation par champs de phase du couplage mécanique/diffusion. Matériaux. Université Paris sciences et lettres, 2024. Français. NNT : 2024UP-SLM012 . tel-04707117

**HAL Id: tel-04707117**

**<https://pastel.hal.science/tel-04707117v1>**

Submitted on 24 Sep 2024

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

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



**THÈSE DE DOCTORAT**  
**DE L'UNIVERSITÉ PSL**

Préparée à MINES Paris

**Analyse expérimentale et modélisation par champs de phase du couplage mécanique/diffusion**

**Experimental analysis and modeling by phase fields approach of mechanical/diffusion coupling**

Soutenue par  
**Wajih JBARA**  
Le 01 mars 2024

École doctorale n°621  
**Ingénierie des Systèmes,  
Matériaux, Mécanique,  
Energétique**

Spécialité  
**Mécanique**

Composition du jury :

|  |                           |
|--|---------------------------|
| Florence PETTINARI-STURMEL<br>Professeure des universités,<br>Université de Toulouse - CEMES | <i>Présidente</i>         |
| Jean-Briac LE GRAVEREND<br>Associate professor, Texas A&M University                         | <i>Rapporteur</i>         |
| Yann LE BOUAR<br>Directeur de recherche, UMR 104 CNRS/Onera                                  | <i>Rapporteur</i>         |
| Thomas GHENO<br>Docteur, Département des matériaux et structures<br>- ONERA                  | <i>Examineur</i>          |
| Julien JARAVEL<br>Docteur, Safran Helicopter Engines   | <i>Examineur</i>          |
| Kais AMMAR<br>Ingénieur de recherche, CNRS UMR 7633/Mines                                    | <i>Examineur</i>          |
| Vincent MAUREL<br>Directeur de recherche, CNRS UMR 7633/Mines                                | <i>Directeur de thèse</i> |
| Samuel FOREST<br>Directeur de recherche, CNRS UMR 7633/Mines                                 | <i>Directeur de thèse</i> |



# Remerciements

Tout d'abord, je tiens à remercier les membres du jury d'avoir accepté d'examiner mon travail et pour leurs précieuses contributions scientifiques qui m'ont guidé tout au long de ma thèse. Merci à Florence PETTINARI-STURMEL de m'avoir fait l'honneur de présider le jury. Je tiens également à remercier Jean-Briac LE GRAVEREND et Yann LE BOUAR pour leurs rapports détaillés et inspirants sur le manuscrit. Je remercie aussi Thomas GHENO et Julien JARAVEL pour les nombreuses discussions enrichissantes sur les essais expérimentaux et sur le modèle de champ de phases.

Je tiens à exprimer toute ma gratitude à mes directeurs de thèse Samuel FOREST, Vincent MAUREL et Kais AMMAR. Je leur suis profondément reconnaissant pour ces années passées ensemble, riches en enseignements tant scientifiques qu'humains. Merci à chacun de vous pour votre disponibilité et pour toutes les connaissances scientifiques que vous m'avez transmises. Samuel, ta rigueur et ton exigence m'ont permis de monter en compétences dans le domaine de la mécanique et me seront d'une grande utilité tout au long de ma carrière professionnelle. Un grand merci à Kais pour son aide précieuse dans l'implémentation du modèle dans le code Z-set. Je remercie également Vincent pour sa disponibilité, sa patience et surtout ses judicieux conseils tant sur les essais expérimentaux que sur le modèle numérique.

Ce travail est le fruit d'une collaboration. À ce titre, je remercie chaleureusement Matthieu RAMBAUDON pour son aide dans la réalisation des essais mécaniques, ainsi que Kevin BARRIERE et Antoine DEBRAY pour leur soutien durant la préparation des échantillons. Je remercie également Fabrice GASLAIN pour son assistance dans la caractérisation du matériau par la technique EBSD et les observations microstructurales au MEB. Un grand merci à Camille SALSI et Thomas GHENO pour la préparation des couples de diffusion et leur aide dans le traitement des résultats expérimentaux.

Mes remerciements vont également à ceux du Centre des Matériaux qui ont contribué d'une manière ou d'une autre à la préparation de cette thèse. Merci à Baptiste, Flavien, Mohamed, Mikel, Manon, Daniel, Said, Daniella, Juliette, Arjun, Nesrine et tous les autres pour l'ambiance conviviale et l'esprit d'entraide qui ont forgé nos relations internes et externes au Centre des Matériaux.

Enfin, tout cela n'aurait pas été possible sans le soutien indéfectible de ma famille. Si j'en suis là aujourd'hui, c'est grâce à eux.



# Table des matières

|   |           |
|---|-----------|
| <b>Introduction générale</b>  | <b>5</b>  |
| <b>I Couplage de la diffusion à la mécanique : théorie et simulations numériques</b>                            | <b>9</b>  |
| 1.1 Introduction  | 10        |
| 1.2 Diffusion multi-composants  | 10        |
| 1.2.1 État de l'art et théorie de la diffusion  | 10        |
| 1.2.2 Application : simulations numériques en utilisant la base de données Thermocalc / comparaison avec Dictra | 15        |
| 1.3 Modélisation du couplage diffusion-mécanique non linéaire   | 22        |
| 1.3.1 Introduction  | 22        |
| 1.3.2 Formulation thermodynamique et équations d'équilibre  | 23        |
| 1.3.3 Implémentation numérique  | 32        |
| 1.3.4 Applications numériques   | 36        |
| 1.4 Conclusion  | 40        |
| <b>II Étude expérimentale et numérique de la diffusion couplée à la mécanique</b>                               | <b>41</b> |
| 2.1 Introduction  | 42        |
| 2.2 État de l'art   | 42        |
| 2.2.1 Effet de la pression hydrostatique sur les coefficients de diffusion                                      | 42        |
| 2.2.2 Effet de la déformation viscoplastique sur le coefficient de diffusion                                    | 42        |
| 2.3 Méthodologie expérimentale  | 43        |
| 2.4 Résultats et discussion   | 45        |
| 2.4.1 État initial des matériaux  | 45        |
| 2.4.2 Essais réalisés   | 47        |
| 2.4.3 Modèle de comportement mécanique utilisé  | 56        |
| 2.4.4 Identification de comportement du couple Ni20Cr/Ni30Cr  | 57        |
| 2.4.5 Identification des coefficients d'interdiffusion  | 58        |
| 2.5 Modèle de couplage diffusion – mécanique  | 60        |
| 2.5.1 Rappel des équations du modèle  | 60        |
| 2.5.2 Validation de la diffusion sans couplage avec la mécanique  | 62        |
| 2.5.3 Validation du couplage diffusion – mécanique :  | 63        |
| 2.6 Discussion  | 64        |
| 2.7 Conclusion  | 64        |
| <b>III Mise en radeaux de microstructure <math>\gamma</math>-<math>\gamma'</math></b>                           | <b>65</b> |
| 3.1 Introduction  | 67        |
| 3.2 État de l'art   | 68        |
| 3.2.1 Superalliages à base du Nickel  | 68        |
| 3.2.2 Mise en radeaux   | 71        |
| 3.2.3 Sensibilités des paramètres thermo-mécaniques sur la mise en radeaux                                      | 76        |
| 3.2.4 Modélisation de la mise en radeaux  | 83        |
| 3.3 Comportement macroscopique de von Mises d'un superalliage monocristallin à base de Nickel                   | 85        |

|           |  |            |
|-----------|--|------------|
| 3.4       | Implémentation d'un modèle de champs de phases couplé à la mécanique pour les $\gamma/\gamma'$ . . . . .             | 87         |
| 3.4.1     | Couplage transformation de phase avec la viscoplasticité en utilisant l'approche de Gurtin . . . . .                 | 87         |
| 3.4.2     | La fonctionnelle d'énergie libre mésoscopique . . . . .  | 90         |
| 3.4.3     | Les équations d'évolution . . . . .  | 94         |
| 3.4.4     | Implémentation éléments finis . . . . .  | 95         |
| 3.5       | Stratégie d'identification des paramètres . . . . .  | 98         |
| 3.6       | Lien entre sollicitation et la mise en radeaux : calcul analytique . . . . .   | 100        |
| 3.7       | Les paramètres nécessaires pour la mise en radeau . . . . .  | 100        |
| 3.7.1     | Effet de désaccord paramétrique (misfit) . . . . .   | 100        |
| 3.7.2     | Effet de chargement sans misfit . . . . .  | 104        |
| 3.7.3     | Effet d'inhomogénéité élastique . . . . .  | 106        |
| 3.8       | Mise en radeaux d'un précipité $\gamma'$ . . . . .   | 107        |
| 3.8.1     | Mise en radeaux type N . . . . .   | 108        |
| 3.8.2     | Mise en radeaux type P . . . . .   | 109        |
| 3.8.3     | Mise en radeaux en 3D . . . . .  | 112        |
| 3.9       | Mise en radeaux d'une microstructure $\gamma-\gamma'$ . . . . .  | 114        |
| 3.9.1     | Maillage et valeurs des paramètres . . . . .   | 114        |
| 3.9.2     | Effet de type de chargement . . . . .  | 115        |
| 3.9.3     | Effet de la viscoplasticité et comparaison avec l'expérience . . . . .   | 116        |
| 3.10      | Conclusion . . . . .   | 118        |
| <b>IV</b> | <b>Évolution de microstructure <math>\gamma - \gamma'</math> sous chargements complexes, cas d'une surface libre</b> | <b>119</b> |
| 4.1       | Introduction . . . . .   | 120        |
| 4.2       | État de l'art des chargements complexes . . . . .  | 120        |
| 4.2.1     | Essai de fluage anisotherme . . . . .  | 120        |
| 4.2.2     | Effet de la surface libre en condition d'oxydation . . . . .   | 120        |
| 4.3       | Étude expérimentale : effet de surface libre sous fatigue anisotherme . . . . .                                      | 124        |
| 4.3.1     | Fatigue thermo-mécanique de superalliages revêtus (Ni,Pt)Al . . . . .  | 124        |
| 4.3.2     | Analyses complémentaires des essais de Pierre Sallot . . . . .   | 126        |
| 4.4       | Modélisation des chargements complexes . . . . .   | 131        |
| 4.4.1     | Essai de fatigue isotherme . . . . .   | 131        |
| 4.4.2     | Essai de fatigue-fluage isotherme . . . . .  | 134        |
| 4.4.3     | Essai de fluage anisotherme . . . . .  | 135        |
| 4.5       | Modélisation des effets de surface . . . . .   | 139        |
| 4.5.1     | Effet d'oxydation sur la microstructure . . . . .  | 139        |
| 4.5.2     | Effet d'oxydation et des chargements sur la microstructure . . . . .   | 140        |
| 4.5.3     | Prévision de la taille de la zone de déplétion . . . . .   | 142        |
| 4.6       | Conclusions et perspectives . . . . .  | 147        |
|           | <b>Conclusion générale</b>   | <b>149</b> |
| <b>V</b>  | <b>Annexes</b>   | <b>153</b> |
| <b>A</b>  | <b>Calcul de matrice tangente pour l'élément mixte</b>   | <b>155</b> |
| <b>B</b>  | <b>Calcul de la matrice tangente</b>   | <b>157</b> |
| <b>C</b>  | <b>Dérivation de l'énergie libre</b>   | <b>161</b> |
| 3.1       | Par rapport à la concentration $c$ : . . . . .   | 161        |
| 3.2       | Par rapport au paramètre d'ordre $\phi_m$ : . . . . .  | 162        |
| 3.3       | Par rapport à la déformation $\xi$ : . . . . .   | 163        |

|   |            |
|---|------------|
| 3.4 Gradient du potentiel chimique : . . . . .  | 164        |
| <b>D Calcul de la matrice jacobienne J et du vecteur résiduel R pour le modèle de champ de phase viscoplastique</b> | <b>165</b> |
| <b>Bibliographie</b>  | <b>177</b> |





## Introduction générale

---

Les problèmes de diffusion dans un matériau soumis à une charge mécanique se retrouvent dans de nombreuses applications généralement concernées par des températures homologues élevées, telles que les couches minces dans les dispositifs à semi-conducteurs, les centrales électriques ou les composants de moteurs d'avion. Podstrigach et ses collègues [Podstrigach and Pavlina, 1966] ont été les premiers à développer une théorie thermodynamique du couplage diffusion-contrainte basée sur le choix d'une énergie libre. [Larché and Cahn, 1973] ont ensuite développé une théorie du couplage contrainte-diffusion, où le couplage provient des lois constitutives mécaniques qui dépendent de la concentration des éléments de diffusion. Cette théorie peut être facilement généralisée pour traiter le couplage dans le cas de matériaux dans lesquels la transformation de phase diffusive subit des chargements thermomécaniques. Dans ce type de matériau, il a été constaté que la transformation de phase n'est pas due uniquement au processus de diffusion [An et al., 2000] et qu'elle est influencée par les chargements thermomécaniques. Afin de modéliser le couplage mécanique/diffusion/transformation de phase, l'analyse du champ de phase a été utilisée. Une simulation de la dissolution d'un précipité dans une matrice a été réalisée pendant le cisaillement plastique en utilisant la méthode du champ de phase [Ammar et al., 2021] et a montré ses résultats prometteurs pour rendre compte à la fois de la morphologie de la phase et de la cinétique de la transformation de la phase (cf. figure 0.1).

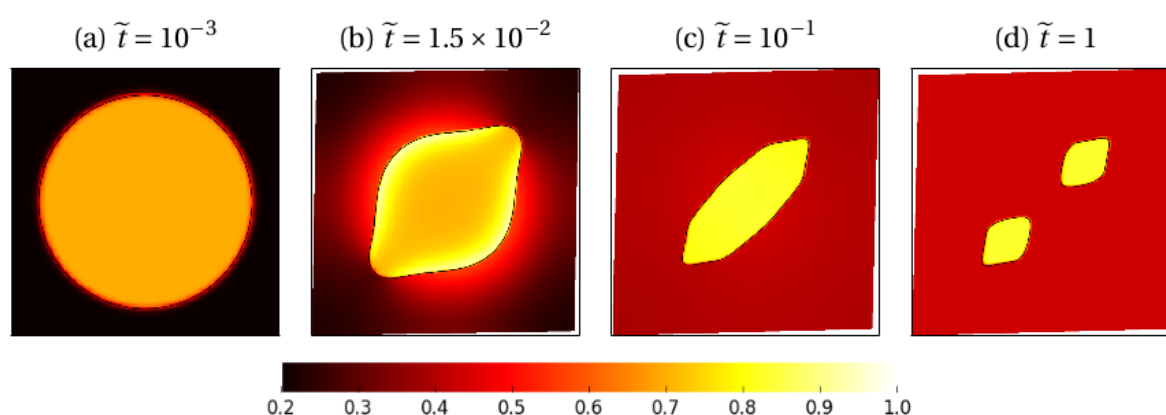


Figure 0.1: *Champ de concentration de la dissolution d'un précipité lors d'un cisaillement plastique [Ammar et al., 2021].*

Peu de modèles [Boussinot, 2007; Gaubert, 2009; Cottura et al., 2012, 2016] ont pris en compte la viscoplasticité dans la modélisation du couplage diffusion – mécanique – transformation des phases. Une application du couplage de la diffusion, avec la transformation de phase et la mécanique est la mise en radeaux observée dans les superalliages monocristallins à base de nickel ( $\gamma - \gamma'$ ), utilisés dans la fabrication des aubes de turbine haute pression de certains moteurs d'avions (cf. figure 0.2). Ces aubes subissent des chargements de type fluage, c'est-à-dire, un maintien à contrainte constante pendant de longues durées correspondant aux phases de vol en croisière. A haute température et sous chargement mécanique de fluage, le matériau constituant les aubes subit une évolution de sa microstructure. En effet, les précipités coalescent d'une manière anisotrope pour former une structure lamellaire constituée de radeaux dans les plans cubiques de type  $\{100\}$ .

L'objectif du présent travail est de fournir un cadre de modélisation étendu pour étudier la réponse d'un matériau à la présence et au transport des éléments de diffusion dans un matériau multi-phasé en tenant

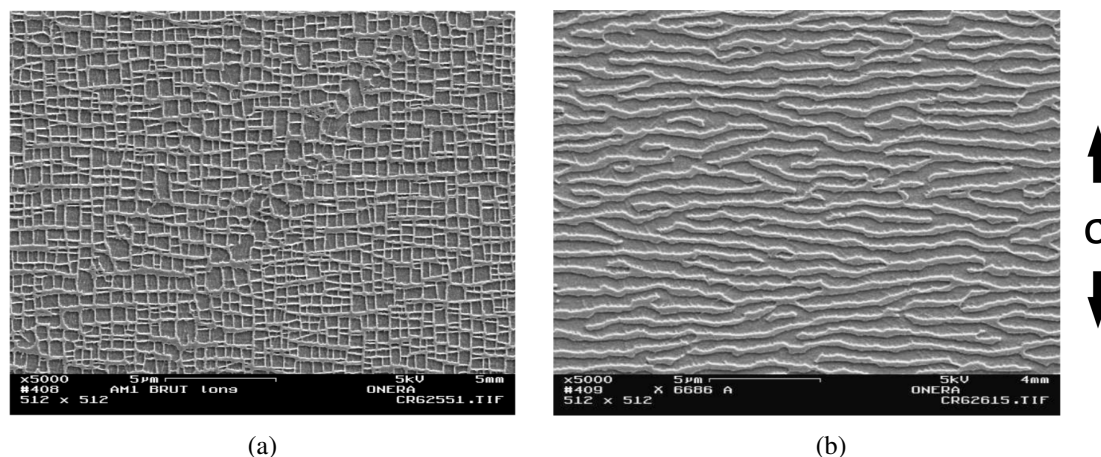


Figure 0.2: Observation MEB de superalliage monocristallin à base de Nickel AM1 : (a) avant et (b) après un essai de fluage en traction sous  $\sigma = 150 \text{ MPa}$  à  $1050^\circ\text{C}$  [Gaubert, 2009]

compte des différentes sources de couplage diffusion – mécanique (viscoplasticité) – transformation de phases en utilisant l’approche par champ de phase et une énergie libre qui contient les différentes contributions (chimiques, mécaniques). Après la validation des couplages à l’aide des simulations avec des cas de chargements simples dont les résultats numériques et expérimentaux sont connus, de nouveaux cas de chargements complexes sont testés comme le fluage anisotherme et la fatigue-fluage isotherme et comparés à des résultats expérimentaux réalisés pendant la thèse et issus de la littérature.

Le couplage diffusion — mécanique multi-composants multi-phases nécessite l’utilisation d’une base de données thermodynamiques pour prendre en compte la diffusion de tous les éléments chimiques présents dans un alliage. Cependant dans le cas d’étude de la mise en radeaux dans les superalliages monocristallins à base de Nickel, nous faisons l’hypothèse que les éléments d’alliage autres que l’Al ne modifient pas qualitativement les mécanismes physiques responsables de l’évolution microstructurale. Des essais expérimentaux ont été réalisés par [Sallot, 2012] permettent de mettre en évidence le couplage diffusion — mécanique — transformation de phase. Cependant, ces matériaux industriels sont trop complexes pour identifier les mécanismes de couplage et a priori la plasticité joue un rôle important. Pour cela, des couples de diffusion monophasés et biphasés simples avec deux et trois éléments chimiques sont utilisés pour réaliser différents essais dans le but d’étudier l’effet de la plasticité. La plupart des modèles dans la littérature utilise la méthode de la transformation de Fourier rapide (FFT) qui ne permet pas de prendre en compte des conditions aux limites non homogènes ou non périodiques. L’utilisation de la méthode des éléments finis permet d’éviter cette restriction. En effet, des conditions de chargements complexes sont testées. En plus, la prise en compte des effets des bords liés à l’oxydation. La figure 0.3 montre les outils numériques utilisés pour implémenter le couplage diffusion – mécanique – transformation de phases dans le but de modéliser l’évolution microstructurale du matériau.

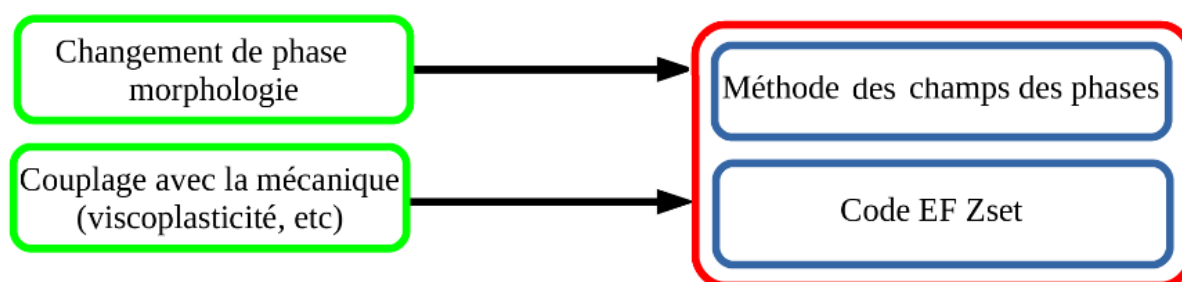


Figure 0.3: Les outils utilisés pour implémenter le couplage diffusion – mécanique – transformation des phases.

Afin d'étudier la problématique présentée dans les paragraphes précédents, ce travail est divisé en 4 chapitres :

- Chapitre 1 : Couplage de la diffusion à la mécanique : théorie et simulations numériques.  
Dans ce chapitre, une extension de la théorie de la diffusion couplée à la mécanique en prenant en compte l'élasto-viscoplasticité est proposée. Elle est implémentée en utilisant deux formulations: couplage direct au point de Gauss et le couplage avec une formulation mixte. De plus, un interface avec une base des données thermodynamiques de «ThermoCalc» pour simuler la diffusion multi-composants est validé en comparant ces résultats avec un module de diffusion multi-composants unidirectionnel commercial «Dictra».
- Chapitre 2 : Étude expérimentale et numérique de la diffusion couplée à la mécanique.  
Des essais mécaniques sont réalisés sur des couples de diffusion afin de mettre en évidence le couplage diffusion – mécanique dans des matériaux monophasés  $\gamma$  et biphasés  $\gamma - \gamma'$ . Les résultats expérimentaux sont utilisés pour identifier les valeurs des paramètres du modèle numérique. Un rappel des équations du modèle et la procédure d'identification des paramètres, ainsi que les résultats des simulations sont présentés dans ce chapitre.
- Chapitre 3 : Mise en radeaux de microstructure  $\gamma - \gamma'$ .  
Une étude bibliographique sur l'aspect expérimental et la modélisation de la mise en radeaux observée dans les superalliages monocristallins à base de Nickel est présentée. De plus, une présentation des équations du modèle numérique couplant diffusion – mécanique – transformation de phases et la stratégie d'identification des paramètres du modèle sont données. Ce modèle est utilisé pour simuler la mise en radeaux dans le cas d'un précipité  $\gamma'$  et dans le cas d'une microstructure composée de plusieurs précipités en étudiant les effets de types de chargements appliqués et de la viscoplasticité.
- Chapitre 4 : Evolution de microstructure  $\gamma - \gamma'$  sous chargements complexes, cas d'une surface libre.  
Dans ce chapitre, le modèle développé dans le chapitre précédent est utilisé pour étudier des chargements complexes comme le fluage anisotherme et la fatigue-fluage isotherme, ainsi que les effets de signe de contraintes moyennes et le temps de maintien. Des observations microstructurales au niveau du substrat, dans des zones proches d'un revêtement de diffusion et dans des zones proches d'une couche d'oxyde sont réalisées pour des cas de chargements complexes de fatigue fluage anisotherme. Ces observations permettent d'étudier l'effet de l'oxydation sur l'évolution de microstructure des superalliages monocristallins à base de Ni en présence de chargements de fatigue thermo-mécanique. Ces effets sont simulés avec le modèle numérique en imposant un flux sortant pour prendre compte de l'oxydation et en présence d'un chargement de fluage.

Cette thèse est financée par l'École des Mines de Paris, Université PSL. Les résultats obtenus dans ce travail sont utilisables pour des futures applications.



# Chapter I

## Couplage de la diffusion à la mécanique : théorie et simulations numériques

---

### Contents

---

|       |   |    |
|-------|---|----|
| 1.1   | Introduction  | 10 |
| 1.2   | Diffusion multi-composants  | 10 |
| 1.2.1 | État de l'art et théorie de la diffusion  | 10 |
| a     | Choix de référentiel  | 10 |
| b     | Diffusion sous l'effet d'un gradient de concentration   | 12 |
| c     | Diffusion sous l'effet d'un gradient de température   | 13 |
| d     | Théorie phénoménologique de la diffusion  | 14 |
| 1.2.2 | Application : simulations numériques en utilisant la base de données Thermocalc / comparaison avec Dictra | 15 |
| a     | Méthodes d'intégration des données thermodynamiques à partir de la base de données <i>Thermocalc</i>      | 17 |
| b     | Application 1 : Diffusion de Cr dans Ni   | 19 |
| c     | Application 2 : Diffusion de Cr et d'Al dans Ni   | 20 |
| 1.3   | Modélisation du couplage diffusion-mécanique non linéaire   | 22 |
| 1.3.1 | Introduction  | 22 |
| 1.3.2 | Formulation thermodynamique et équations d'équilibre  | 23 |
| a     | Les lois thermodynamiques   | 23 |
| b     | Formulations thermodynamiques   | 26 |
| c     | Équations d'équilibre   | 32 |
| 1.3.3 | Implémentation numérique  | 32 |
| a     | Formulation standard ou simplifiée  | 32 |
| b     | Formulation en utilisant l'élément mixte  | 34 |
| 1.3.4 | Applications numériques   | 36 |
| a     | Application 1 : Diffusion des lacunes dans un disque tournant   | 37 |
| b     | Application 2 : Diffusion des lacunes autour d'une dislocation coin                                       | 38 |
| 1.4   | Conclusion  | 40 |

---

## 1.1 Introduction

Ce chapitre est divisé en deux parties. Dans la première partie, la diffusion multi-composants va être traitée. En effet, la théorie de la diffusion ainsi que la simulation numérique en utilisant une base de données thermodynamiques seront présentées. Dans la deuxième partie, la modélisation du couplage diffusion-mécanique non linéaire sera développée en utilisant deux approches d'implémentation à savoir avec une formulation éléments finis standard et avec l'utilisation d'un élément mixte.

## 1.2 Diffusion multi-composants

### 1.2.1 État de l'art et théorie de la diffusion

La diffusion implique un mouvement net des atomes, causé par différentes forces motrices (chimique, thermique, mécanique...). Pour décrire ce phénomène et le quantifier macroscopiquement, les mesures doivent être faites dans un référentiel, constitué à partir d'un ensemble de points identifiables. Il existe une infinité de référentiels utilisables, ce qui implique une infinité de descriptions du processus de diffusion et de coefficients de diffusion. Pourtant, il est préférable d'utiliser le même référentiel afin de pouvoir comparer les résultats expérimentaux. En pratique cela peut être inadéquat pour toutes les applications. Dans ce qui suit, on présente les référentiels couramment utilisés :

#### a Choix de référentiel

**Référentiel du laboratoire :** Dans le cadre de ce référentiel, les flux et les vitesses des particules sont mesurées par rapport à un seul repère fixe identifiable. Malgré les avantages de ce référentiel, son utilisation est limitée à cause de sa multiplicité : il y a autant de référentiels que d'observateurs et les résultats sont difficiles ou impossibles à comparer. Par exemple, deux observateurs d'une expérience d'interdiffusion dans un solide peuvent choisir des extrémités différentes de couple de diffusion comme origine de référentiel.

**Référentiel de vitesse moyenne :** Les difficultés rencontrées dans le cadre du référentiel du laboratoire peuvent être surmontées en choisissant un référentiel dans lequel les mouvements des particules sont indépendants du choix de référentiel fait par l'observateur. Ce référentiel est défini par rapport à une moyenne pondérée de la vitesse de tous les éléments chimiques impliqués dans la diffusion, comme la vitesse du centre de masse. Quel que soit le référentiel laboratoire utilisé dans une expérience, tout observateur trouve la même vitesse des éléments chimiques relative au centre de masse. Cette approche a été utilisée par Hooyman en 1956 [Hooyman, 1956] pour décrire la diffusion multi-éléments.

Soit  $\underline{v}_i^L$  : la vitesse de l'élément  $i$  mesurée par un observateur par rapport à un référentiel du laboratoire  $L$  en un point de l'espace et à l'instant  $t$ .

Soit  $w_i^R$  : un facteur de pondération sans dimension mesuré dans un référentiel de vitesse moyenne  $R$ . Il peut être une fraction de masse, une fraction du nombre de moles ou une fraction de volume, telle que

$$\sum_{i=1}^n w_i^R = 1 \quad (1.1)$$

Soit  $\underline{\bar{v}}^{RL}$  la moyenne pondérée de  $n$  éléments chimiques d'un système donné et défini comme suit :

$$\underline{\bar{v}}^{RL} = \sum_{i=1}^n w_i^R \underline{v}_i^L \quad (1.2)$$

Il est vrai que les vitesses  $\underline{v}_i^L$  et  $\underline{\bar{v}}^{RL}$  peuvent varier d'un observateur à un autre, cependant la vitesse  $\underline{v}_i^R = \underline{v}_i^L - \underline{\bar{v}}^{RL}$  est la même pour tous les observateurs.

Le flux  $\underline{J}_i^R$  d'un élément chimique  $i$  dans un référentiel de vitesse moyenne  $R$  est le même pour tous les observateurs de la même expérience. Il est donné par :

$$\underline{J}_i^R = \rho_i \underline{v}_i^R \quad (1.3)$$

avec  $\rho_i$  la densité molaire de l'élément chimique  $i$  [ $mol.m^{-3}$ ].

Les  $n$  flux ( $\underline{J}_1^R, \underline{J}_2^R, \dots, \underline{J}_n^R$ ) ne sont pas tous indépendants et il existe une relation reliant ces derniers par :

$$\sum_{i=1}^n \frac{w_i^R}{\rho_i} \underline{J}_i^R = \underline{0} \quad (1.4)$$

L'équation précédente a été utilisée par Kirkwood et al. en 1960 [Kirkwood et al., 1960] pour donner une définition alternative du référentiel  $R$  et ils ont déduit qu'il existe une relation entre les flux d'un même élément chimique dans deux référentiels différents ( $R$  et  $S$ ), définie par :

$$\underline{J}_i^R = \underline{J}_i^S + \rho_i \underline{v}^{SR} \quad (1.5)$$

où  $\underline{v}^{SR}$  est la vitesse du référentiel  $S$  par rapport au référentiel  $R$ .

Pour des référentiels de vitesse moyenne :

$$\underline{v}^{SR} = \underline{v}^{SL} - \underline{v}^{RL} = \sum_{k=1}^n (w_k^S - w_k^R) \underline{v}_k^L \quad (1.6)$$

L'une des caractéristiques de ce type de référentiel est que les flux dans différents référentiels de vitesse moyenne sont reliés par les équations (1.5) et (1.6). Parmi les référentiels de vitesse moyenne couramment utilisés dans la littérature, on peut citer :

1. Référentiel de fraction molaire moyenne ( $N$ ): Dans ce type de référentiel, on a les relations suivantes :

$$w_i^N = N_i = \rho_i \bar{V} \quad \sum_{i=1}^n \underline{J}_i^N = \underline{0} \quad (1.7)$$

où  $N_i = \frac{n_i}{\sum_{i=1}^n n_i}$  est la fraction molaire de l'élément chimique  $i$  [-],  $\bar{V} = \frac{V}{\sum_{i=1}^n n_i}$  est le volume molaire de la phase dans laquelle la diffusion se produit [ $m^3/mol$ ] et  $\rho_i$  est la densité molaire de l'élément chimique  $i$  [ $mol/m^3$ ].

2. Référentiel de volume moyen ( $V$ ): Dans ce type de référentiel, on a les relations suivantes :

$$w_i^V = \rho_i \bar{V}_i \quad \sum_{i=1}^n \underline{V}_i \underline{J}_i^V = \underline{0} \quad (1.8)$$

où  $\bar{V}_i$  est le volume molaire partiel de l'élément chimique  $i$ .

3. Référentiel du  $K^{ieme}$  élément ( $K$ ): On a les relations suivantes dans ce référentiel :

$$w_i^K = \delta_{iK} \quad \underline{J}_K^K = \underline{0} \quad (1.9)$$

où  $\delta_{iK}$  est le symbole de Kronecker défini par  $\delta_{iK} = 0$  si  $i \neq K$  et  $\delta_{iK} = 1$  si  $i = K$ .

4. Référentiel de masse moyenne (référentiel barycentrique) ( $M$ ): Dans ce type de référentiel, on a les relations suivantes :



$$w_i^M = \tilde{N}_i = \tilde{\rho}_i \tilde{V} \quad \sum_{i=1}^n M_i \underline{J}_i^M = \underline{0} \quad (1.10)$$

où  $\tilde{N}_i$  est la fraction massique de l'élément chimique  $i$ ,  $\tilde{\rho}_i$  est la densité massique de l'élément chimique  $i$ ,  $M_i$  est la masse volumique de l'élément chimique  $i$ , et  $\tilde{V}$  est le volume spécifique.

En pratique, chacun de ces référentiels est bien adapté pour des cas d'applications particuliers. Par exemple, le référentiel de volume moyen est plus pratique s'il n'y a pas de changement de volume pendant la diffusion. Le référentiel du  $K^{ième}$  élément simplifie la modélisation de la diffusion dans le cas où le  $K^{ième}$  élément chimique ne participe pas activement à la diffusion.

## b Diffusion sous l'effet d'un gradient de concentration

La diffusion à l'état solide se fait de régions riches vers les plus pauvres en concentration afin de diminuer le gradient de concentration. En 1855, Fick a décrit la diffusion dans les solides en utilisant une équation simple qui relie le flux d'un élément chimique  $\underline{J}$  avec le gradient de concentration  $\nabla c$  par le coefficient de diffusion  $D$ . Cette relation dite 1<sup>ère</sup> loi de Fick s'écrit sous la forme :

$$\underline{J} = -D\nabla c \quad (1.11)$$

Selon le type de référentiel utilisé pour définir l'équation de diffusion, le flux et le coefficient de diffusion peuvent avoir différentes appellations et significations. Dans le référentiel de réseau fixe (référentiel parallèle à un référentiel galiléen), ils représentent respectivement le flux intrinsèque et le coefficient de diffusion intrinsèque. Cependant dans un référentiel de laboratoire, ils sont appelés respectivement le flux d'interdiffusion et le coefficient d'interdiffusion [Shewmon, 1989]. La relation entre le flux intrinsèque  $\underline{J}$  et le flux d'interdiffusion  $\tilde{\underline{J}}$  est décrite par :

$$\tilde{\underline{J}} = \underline{J} + c\underline{v}_m \quad (1.12)$$

où  $\underline{v}_m$  est la vitesse du référentiel de réseau fixe par rapport au référentiel de laboratoire [Shewmon, 1989].

La diffusion est plus complexe dans un système à  $n$  éléments chimiques. En effet, tous les éléments interagissent entre eux et la diffusion d'un élément n'est plus causée uniquement par le gradient de concentration associé, mais elle est également influencée par la diffusion d'autres éléments chimiques du système.

Le flux dépend directement du choix de référentiel alors que le gradient de potentiel chimique est indépendant de ce choix. Le flux de l'élément  $i$  par rapport au référentiel R est relié à la force produite par le gradient de potentiel chimique de l'élément  $j$  avec la matrice des coefficients de diffusion phénoménologique  $\tilde{L}_{ij}^R$ .

$$\underline{J}_i^R = - \sum_{j=1}^n \tilde{L}_{ij}^R \nabla \mu_j \quad (i = 1, 2, \dots, n) \quad (1.13)$$

Pour un système à  $n$  éléments exprimé dans un référentiel, il existe  $n^2$  coefficients phénoménologiques. Onsager a montré que pour un référentiel donné, la matrice  $\tilde{L}_{ij}^R$  est symétrique [Onsager, 1931]. Ceci permet de diminuer le nombre de coefficients indépendants pour chaque référentiel à  $\frac{n(n+1)}{2}$ . Hooyman et Groot [Hooyman and De Groot, 1954] ont montré que l'indépendance linéaire des flux ou des forces produites par le gradient de potentiel chimique est une condition suffisante pour que la condition d'Onsager reste valide. Pour les référentiels de vitesse moyenne, les flux et les forces de l'équation (1.13) ne sont pas indépendants. En effet, les flux sont reliés entre eux par la relation (1.4). Les forces sont reliées par l'équation suivante de Gibbs-Duhem à température et pression constantes [Schuhmann Jr, 1955] :

$$\sum_{i=1}^n N_i d\mu_i = 0 \quad (1.14)$$

où  $N_i = \frac{n_i}{\sum_{i=1}^n n_i}$  est la fraction molaire de l'élément chimique  $i$  [-].

En tenant compte de ces deux équations et en éliminant  $\underline{J}_n^R$  et  $\nabla\mu_n$  de l'équation de flux (1.13), les flux seront donnés par [Groot and Mazur, 1962]:

$$\underline{J}_i^R = - \sum_{j=1}^{n-1} \tilde{L}_{ij}^R \left[ \sum_{k=1}^{n-1} \left( \delta_{jk} + \frac{w_j^R N_k}{w_n^R N_j} \nabla\mu_k \right) \right] \quad (i = 1, 2, \dots, n-1) \quad (1.15)$$

Ceci permet de diminuer le nombre de coefficients de diffusion phénoménologiques indépendants  $\tilde{L}_{ij}^R$  à  $\frac{(n-1)n}{2}$ . Le gradient de potentiel chimique  $\nabla\mu_j$ , qui est défini comme la force motrice la plus adéquate à utiliser pour la diffusion, est difficile à mesurer expérimentalement. Il existe une deuxième définition du flux faisant appel au gradient de concentration  $\nabla c_j$ , qui est déduit de l'équation (1.15) et définie par :

$$\underline{J}_i^R = - \sum_{j=1}^{n-1} \tilde{D}_{ij}^{R,C} \nabla c_j \quad (1.16)$$

La matrice des coefficients de diffusion  $\tilde{D}_{ij}^{R,C}$  dépend du référentiel R et des concentrations  $c_l$ . Il y a uniquement  $\frac{(n-1)n}{2}$  coefficient indépendants qui sont définis par la formule suivante :

$$\tilde{D}_{il}^{R,C} = - \sum_{k=1}^{n-1} \sum_{j=1}^{n-1} \tilde{L}_{ij}^R \left( \delta_{jk} + \frac{w_j^R N_k}{w_n^R N_j} \right) \left( \frac{\partial \mu_k}{\partial c_l} \right)_{c_i \neq c_l} \quad (i, l = 1, 2, \dots, n-1) \quad (1.17)$$

Cette formulation est possible uniquement si la dérivée  $\left( \frac{\partial \mu_k}{\partial c_l} \right)$  est connue.

### c Diffusion sous l'effet d'un gradient de température

La diffusion peut être aussi causée par un gradient de température. Ce phénomène est appelé effet de "Ludwig – Soret" ou effet "Soret". Pour le cas d'un système bi-éléments où un seul élément diffuse sous l'effet d'un gradient de température unidirectionnel selon l'axe  $x$ , le flux intrinsèque d'un élément dans la direction du gradient de température est obtenu en modifiant la 1<sup>re</sup> loi de Fick [Manning and Bruner, 1968] :

$$\underline{J} = -D \frac{dc}{dx} - c\beta Q^* \frac{1}{T} \frac{dT}{dx} \quad (1.18)$$

où  $\beta$  est la mobilité atomique de l'élément chimique qui diffuse,  $Q^*$  est le terme de transport de chaleur déterminant la direction et l'amplitude de la contribution du gradient de température dans le flux total.

La détermination expérimentale de  $Q^*$  est généralement faite en régime stationnaire dans un système fermé avec  $\underline{J} = 0$ . En régime stationnaire, le flux de diffusion dû au gradient de concentration est égal au flux de diffusion dû au gradient de température :

$$D \frac{dc}{dx} = -c\beta \frac{Q^*}{T} \frac{dT}{dx} \quad (1.19)$$

En utilisant la relation d'Einstein  $D = \beta RT$  [Miller, 1924], l'équation (1.19) s'écrit :

$$RT \frac{1}{dx} \frac{dc}{c} = - \frac{Q^*}{T} \frac{dT}{dx} \quad (1.20)$$

$$\Rightarrow RT \frac{d \ln(c)}{dx} = - \frac{Q^*}{T} \frac{dT}{dx} \quad (1.21)$$

$$\Rightarrow \ln(c) = \frac{Q^*}{R} \left( \frac{1}{T} \right) \quad (1.22)$$

où  $R$  est la constante des gaz parfaits.

Les valeurs de  $Q_i^*$  pour plusieurs matériaux, présentés par Oriani [Oriani, 1969], sont déterminées à partir de la pente du courbe  $\ln(c)$  en fonction de  $\left(\frac{1}{T}\right)$ .

#### d Théorie phénoménologique de la diffusion

Dans les paragraphes précédents, le processus de diffusion est décrit en fonction de nombreuses lois d'écoulement en physique sans justification de la nature de ces forces motrices. Dans cette partie, la diffusion est abordée d'une façon plus fondée physiquement grâce à la thermodynamique des processus irréversibles, qui justifie les expressions posées naturellement suivant la première démarche.

Une transformation irréversible d'un système se traduit par une production d'entropie qui peut être décomposée en une partie conservative et une partie dissipative :

$$\frac{dS}{dt} = -\nabla \cdot \underline{J}_s + \sigma_s \quad \text{et} \quad \sigma_s \geq 0 \quad (1.23)$$

où  $\sigma_s$  est la source d'entropie,  $\underline{J}_s$  est le flux d'entropie et  $S$  est l'entropie.

La source d'entropie  $\sigma_s$  peut être écrite comme la somme de produit de flux  $\underline{J}_k$  par les forces  $\underline{X}_k$  correspondantes [Philibert, 1985]:

$$\sigma_s = \underline{J}_q \cdot \underline{X}_q + \sum_k \underline{J}_k \cdot \underline{X}_k \quad (1.24)$$

où  $\underline{J}_q$  est le flux de chaleur,  $\underline{J}_k$  est le flux du constituant  $k$ ,  $\underline{X}_q = \nabla \left(\frac{1}{T}\right)$  est la force motrice liée à la chaleur et  $\underline{X}_k = -\nabla \left(\frac{\mu_k}{T}\right)$  la force motrice du diffusion de l'espèce  $k$ .

Les flux sont exprimés en fonction des forces motrices ( $\underline{X}_q$  et  $\underline{X}_k$ ) comme suit :

$$\underline{J}_q = \sum_{k=1}^p \tilde{L}_{qk} \underline{X}_k + \tilde{L}_{qq} \underline{X}_q \quad (1.25)$$

$$\underline{J}_i = \sum_{k=1}^p \tilde{L}_{ik} \underline{X}_k + \tilde{L}_{iq} \underline{X}_q \quad i = 1, 2, \dots, p \quad (1.26)$$

Les coefficients de la matrice  $\tilde{L}_{ij}$  sont appelés coefficients phénoménologiques, supposés indépendants des forces motrices ( $\underline{X}_q$  et  $\underline{X}_k$ ). Les coefficients diagonaux relient les flux à leur force motrice associée, alors que les coefficients non diagonaux sont reliés aux phénomènes de couplage (effet Soret,...). La relation d'Onsager ( $\tilde{L}_{ij} = \tilde{L}_{ji}$ ) permet de diminuer le nombre d'inconnues. Dans un système en équilibre mécanique, les forces doivent vérifier l'équation de Gibbs-Duhem :

$$\sum_{k=1}^p \rho_k \nabla \mu_k = 0 \quad (1.27)$$

où  $\rho_k$  est la concentration massique (par unité de volume) de l'espèce  $k$ . La source d'entropie peut alors s'écrire :

$$\sigma_s = \underline{J}_q \cdot \underline{X}_q + \sum_{k=1}^{p-1} \underline{J}_k \cdot (\underline{X}_k - \underline{X}_p) \quad (1.28)$$

Chaque flux est exprimé en fonction de  $(p-1)$  forces indépendantes :

$$\underline{J}_i = \sum_{k=1}^{p-1} L_{ik} (X_k - X_p) \quad (1.29)$$

Tous les flux de matière sont définis par rapport à la vitesse barycentrique  $\underline{w}$  donnée par cette relation :

$$\underline{\omega} = \sum \frac{\rho_k \underline{v}_k}{\rho} \quad (1.30)$$

où  $\underline{v}_k$  est la vitesse du constituant  $k$  dans le référentiel fixe  $R^0$ .

Les flux sont définis dans le référentiel  $R^\omega$  comme suit :

$$\underline{J}_k = \rho_k (\underline{v}_k - \underline{\omega}) \quad (1.31)$$

$$\sum_k \underline{J}_k = 0 \quad (1.32)$$

En général, les mesures sont effectuées dans le référentiel fixe  $R^0$ , où les flux qui ne sont pas indépendants sont définis par :

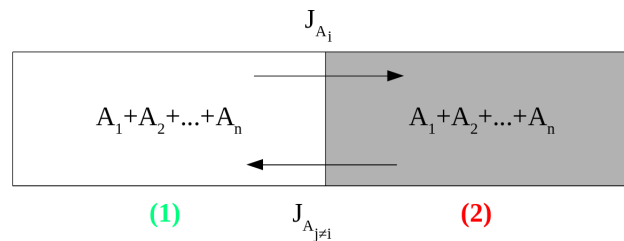
$$\underline{J}_k^0 = \rho_k \underline{v}_k = \underline{J}_k + \rho_k \underline{\omega} \quad (1.33)$$

### 1.2.2 Application : simulations numériques en utilisant la base de données Thermocalc / comparaison avec Dictra

La diffusion dans un système à  $n$  éléments est complexe car tous les éléments interagissent entre eux et la diffusion d'un élément est dû aux gradients de concentrations de l'ensemble des éléments.

On considère :

- $A_i$  les éléments chimiques où  $i \in \{1, 2, \dots, n\}$
- $A_0$  les lacunes
- $x_i$  fraction molaire de l'élément  $i$
- $M_i$  mobilité atomique de l'élément  $i$
- un couple de diffusion (1)/(2)
- $J_{A_i}$  flux de l'élément  $i$
- $\mu_i$  potentiel chimique de l'élément  $i$
- $L_{ij}$  coefficients de Onsager
- $L'_{ij}$  coefficients phénoménologiques
- $L''_{ij}$  coefficients phénoménologiques effectifs



La description de la diffusion multi-composants est basée sur la formalisme d'Onsager qui généralise la loi de Fick à un système multi-composants. Selon le type de référentiel utilisé, le flux et les coefficients de diffusion peuvent avoir différentes expressions. Le flux intrinsèque de l'élément  $i$  dans un référentiel de réseau fixe (référentiel parallèle à un référentiel galiléen) s'écrit sous la forme :

$$J_{A_i} = - \sum_{j=1}^n L_{ij} \nabla \mu_j = -L_{ii} \nabla \mu_i \quad (1.34)$$

$$\sum_{i=1}^n J_{A_i} = -J_{A_0} \quad (1.35)$$

avec  $L_{ij}$  coefficient phénoménologique donné par :

$$L_{ij} = \begin{cases} M_i c_i & \text{si } i = j \\ 0 & \text{si } i \neq j \end{cases}$$

Le flux d'interdiffusion de l'élément  $i$  dans un référentiel barycentrique mobile avec la diffusion des éléments est donné par la formule suivante [Shewmon, 1989]

$$\tilde{J}_{A_i} = J_{A_i} - c_i \left( \sum_{j=1}^n J_{A_j} \right) \quad (1.36)$$

$$\sum_{i=1}^n \tilde{J}_{A_i} = 0 \quad (1.37)$$

En remplaçant l'équation (1.34) dans l'équation (1.36), on obtient :

$$\tilde{J}_{A_i} = -(1 - c_i) L_{ii} \nabla \mu_i + c_i \sum_{\substack{j=1 \\ j \neq i}}^n (L_{jj} \nabla \mu_j) \quad (1.38)$$

En utilisant la relation du Gibbs-Duhem  $\sum_i c_i \nabla \mu_i = 0$  avec l'équation  $\sum_i c_i = 1$ , on obtient :

• **Pour le cas à 2 éléments A et B :**

$$\nabla \mu_A = (1 - c_A) \nabla \mu_A^{eff} \quad (1.39)$$

$$\nabla \mu_B = -c_A \nabla \mu_A^{eff} \quad (1.40)$$

avec  $\mu_A^{eff} = \mu_A - \mu_B$

$$\tilde{J}_A = - \left[ (1 - c_A)^2 c_A M_A + (1 - c_A) c_A^2 M_B \right] \nabla \mu_A^{eff} \quad (1.41)$$

Cette équation peut être écrite sous la forme :

$$\tilde{J}_A = -L''_{AA} \nabla \mu_A^{eff} \quad (1.42)$$

avec :

$$L''_{AA} = (1 - c_A)^2 c_A M_A + (1 - c_A) c_A^2 M_B \quad (1.43)$$

• **Pour le cas à 3 éléments A, B et C :**

$$\nabla \mu_A = (1 - c_A) \nabla \mu_A^{eff} - c_B \nabla \mu_B^{eff} \quad (1.44)$$

$$\nabla \mu_B = (1 - c_B) \nabla \mu_B^{eff} - c_A \nabla \mu_A^{eff} \quad (1.45)$$

$$\nabla \mu_C = -c_A \nabla \mu_A^{eff} - c_B \nabla \mu_B^{eff} \quad (1.46)$$

avec  $\mu_A^{eff} = \mu_A - \mu_C$  et  $\mu_B^{eff} = \mu_B - \mu_C$ .

En utilisant les équations (1.44), (1.45) et (1.46) dans l'équation (1.38), on obtient :

$$\tilde{J}_A = - [(1 - c_A)^2 L_{AA} + c_A^2 L_{BB} + c_A^2 L_{cc}] \nabla \mu_A^{eff} - [-(1 - c_A) c_B L_{AA} - c_A (1 - c_B) L_{BB} + c_A c_B L_{cc}] \nabla \mu_B^{eff} \quad (1.47)$$

$$\tilde{J}_B = - [-(1 - c_A) c_B L_{AA} - c_A (1 - c_B) L_{BB} + c_A c_B L_{cc}] \nabla \mu_A^{eff} - [(1 - c_B)^2 L_{BB} + c_B^2 L_{AA} + c_B^2 L_{cc}] \nabla \mu_B^{eff} \quad (1.48)$$

Ces équations peuvent être écrites sous forme matricielle :

$$\begin{bmatrix} \tilde{J}_A \\ \tilde{J}_B \end{bmatrix} = - \begin{bmatrix} L_{AA}'' & L_{AB}'' \\ L_{BA}'' & L_{BB}'' \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \nabla \mu_A^{eff} \\ \nabla \mu_B^{eff} \end{bmatrix} \quad (1.49)$$

avec

$$L_{AA}'' = (1 - c_A)^2 c_A M_A + c_A^2 c_B M_B + c_A^2 c_C M_C \quad (1.50)$$

$$L_{BB}'' = (1 - c_B)^2 c_B M_B + c_B^2 c_A M_A + c_B^2 c_C M_C \quad (1.51)$$

$$L_{AB}'' = L_{BA}'' = -(1 - c_A) c_B c_A M_A - c_A (1 - c_B) c_B M_B + c_A c_B c_C M_C \quad (1.52)$$

$$(1.53)$$

## a Méthodes d'intégration des données thermodynamiques à partir de la base de données *Thermocalc*

### • Méthode 1 :

La méthode est de supposer une forme donnée, par exemple une parabole Cette méthode consiste à supposer que l'énergie peut d'être décrite à l'aide d'une fonction donnée, par exemple une parabole et à identifier les coefficients à partir des données extraites d'une base de données thermodynamiques comme *Thermocalc*. La construction de l'énergie libre parabolique pour un système binaire s'écrit :

$$f_{ch}(c) = \frac{1}{2} K (c - a)^2 + b \quad (1.54)$$

Le potentiel chimique est calculé en dérivant l'énergie libre par rapport à la concentration  $c$  :

$$\mu = \frac{\partial f_{ch}(c)}{\partial c} = K(c - a) \quad (1.55)$$

La dérivée seconde de l'énergie permet d'avoir la courbure de la courbe de l'énergie  $K$  :

$$K = \frac{\partial^2 f_{ch}(c)}{\partial c^2} = \frac{\partial}{\partial c} \left( \frac{\partial f_{ch}(c)}{\partial c} \right) = \frac{\partial \mu}{\partial c} \quad (1.56)$$

Pour un système multi-éléments, la formulation de l'énergie libre est étendue en ajoutant l'interaction entre plusieurs éléments par [Plapp, 2011], [Mushongera, 2016].

$$f_{ch}(c_i) = \sum_i \left( \frac{1}{2} \sum_j K_{ij} (c_i - a_i)^2 \right) + b \quad (1.57)$$

où  $i$  et  $j$  représentent les espèces chimiques dans le système multi-éléments.

La première dérivation de l'énergie par rapport aux concentrations donne l'expression du potentiel chimique pour l'élément chimique  $i$  :

$$\mu_i = \frac{\partial f_{ch}(c_i)}{\partial c_i} = \sum_j K_{ij}(c_i - a_i) \tag{1.58}$$

En utilisant la définition du potentiel chimique, l'énergie peut être exprimée sous la forme suivante :

$$f_{ch}(c_i) = \sum_i \left( \frac{1}{2} \sum_j K_{ij}(c_i - a_i)^2 \right) + b = \sum_i \left( \frac{1}{2} \mu_i(c_i - a_i) \right) + b \tag{1.59}$$

• **Méthode 2 :**

La 2<sup>ème</sup> méthode consiste à utiliser une fonction d'interpolation spline cubique sur des données tabulées de ThermoCalc (énergie de Gibbs et les dérivées de l'énergie de Gibbs par rapport aux fractions molaire de différents constituants). En utilisant la fonction d'interpolation, les données deviennent continues et utilisables dans le code de calcul éléments finis Zset.

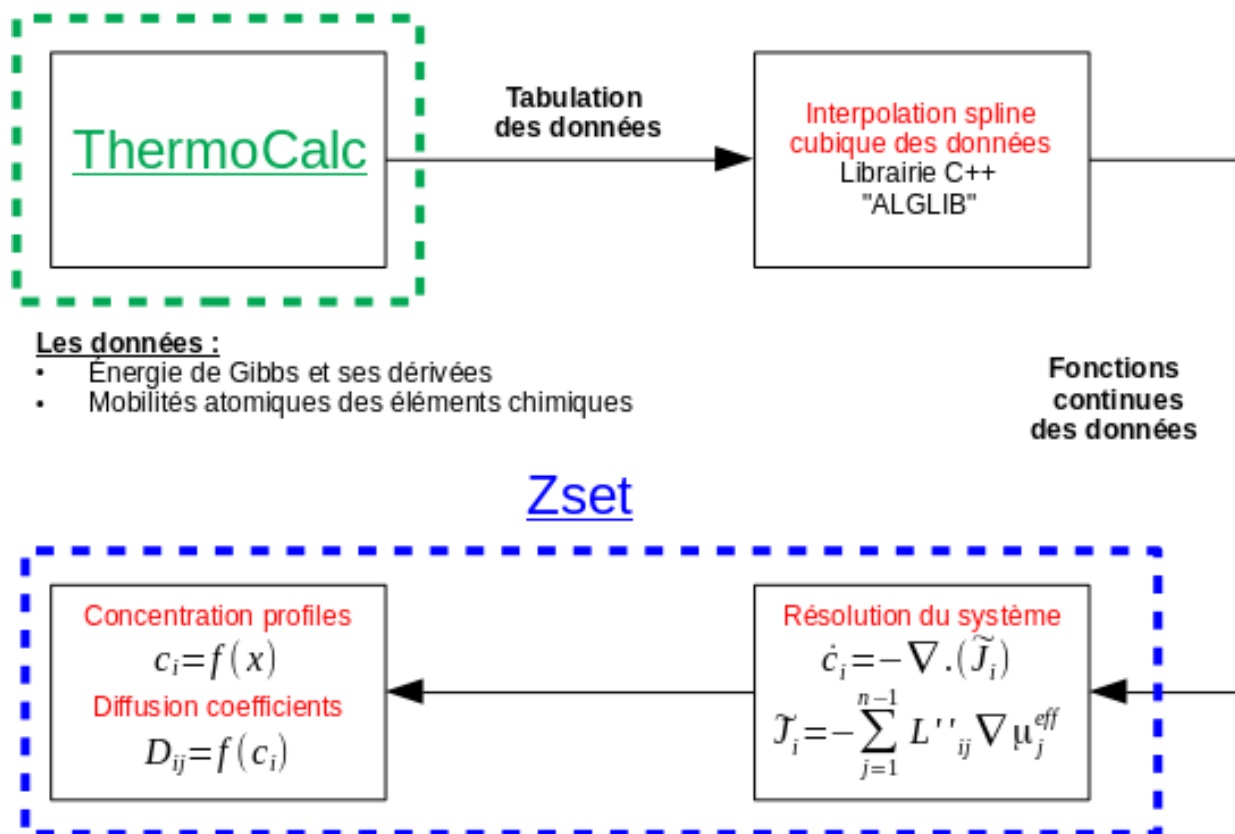


Figure 1.1: Démarche utilisée pour récupérer les données thermodynamiques

## b Application 1 : Diffusion de Cr dans Ni

Considérons un système binaire Ni-Cr. Afin de simuler la diffusion du Cr dans le Ni, un couple de diffusion Ni-20Cr/Ni-30Cr est utilisé. Les deux matériaux sont monophasés  $\gamma$ , la simulation est faite à  $T = 1000^\circ\text{C}$ . Afin d'utiliser la base de données Thermo-Calc, il faut extraire les données thermodynamiques (l'énergie de Gibbs et les mobilités des éléments chimiques) à partir de Thermo-Calc sous forme de tableaux et utiliser une interpolation spline cubique pour reconstruire ces données (cf. figure 1.2).

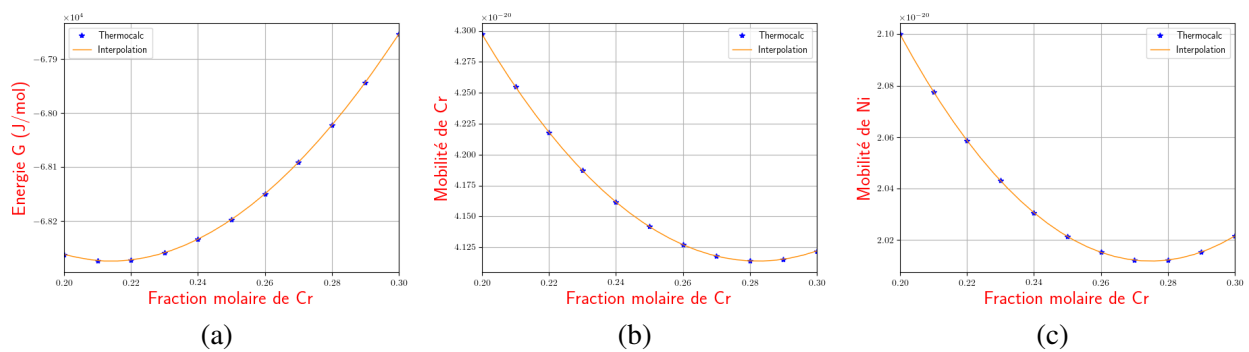


Figure 1.2: Évolution des données thermodynamiques du système binaire Ni-Cr en fonction de fraction molaire de Cr : (a) énergie de Gibbs, (b) Mobilité de Cr et (c) Mobilité de Ni

L'interdiffusion entre le couple de diffusion Ni-20Cr/Ni-30Cr est simulée sur un domaine de longueur totale 1 mm (0.5 mm pour chaque matériau). Le maillage est plus fin près de l'interface, 100 éléments ont été utilisés pour cette simulation (cf. figure 1.3).

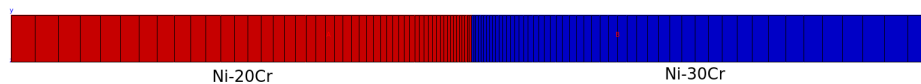


Figure 1.3: maillage utilisé pour simuler la diffusion de couple Ni-20Cr et Ni-30Cr

Le même problème a été simulé avec le module DICTRA de Thermo-Calc pour validation. La figure 1.4 ci-dessous donne une comparaison entre la simulation faite par DICTRA et celle faite avec le code élément finis avec les données thermodynamiques extraites de la base de données.

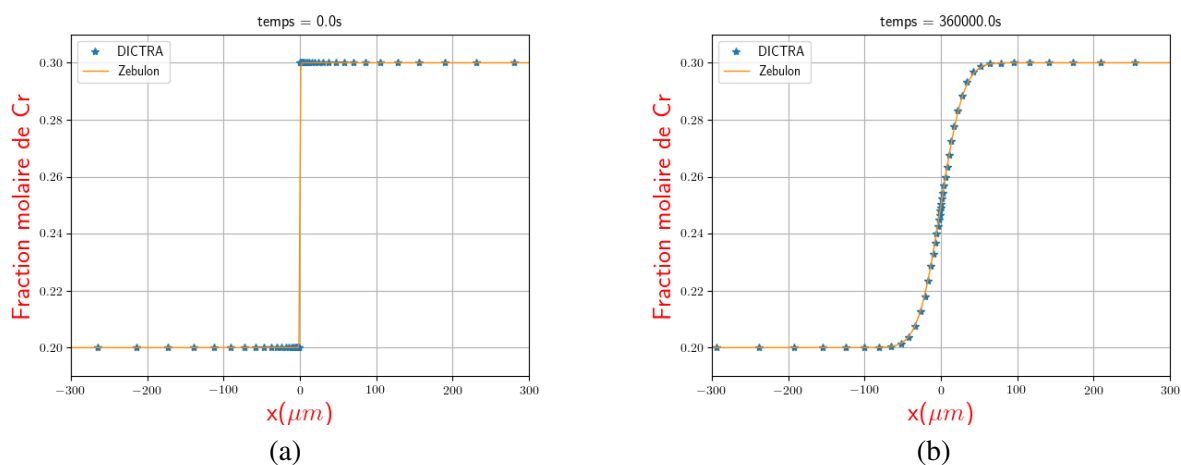


Figure 1.4: Simulation de diffusion de Cr dans le système binaire Ni-Cr : (a) profil de concentration initial et (b) profil de concentration après 100h de diffusion



Dans la figure 1.4.a, on trouve une comparaison du profil de concentration initial de Cr et dans la figure 1.4.b une comparaison du profil de concentration de Cr après 100h de diffusion à  $T=1000^{\circ}\text{C}$ . On constate qu'on reproduit bien l'évolution du profil de concentration simulé par DICTRA.

### c Application 2 : Diffusion de Cr et d'Al dans Ni

Dans ce cas, on considère un système ternaire Ni-Cr-Al. Le couple de diffusion considéré est Ni-12Cr-16Al/Ni-5Cr-22Al monophasé ( $\gamma$ s). La température utilisée est  $T=1000^{\circ}\text{C}$ . L'énergie de Gibbs de la phase  $\gamma$  et les mobilités des éléments chimiques Ni, Cr et Al sont extraites de la base de données Thermo-Calc et interpolées. L'énergie de Gibbs est extraite sous forme de tableau avec un pas de 0.10 sur le domaine de fraction atomique [-] de Cr  $X(\text{Cr})=[0:0.5]$  et d'Al  $X(\text{Al})=[0:0.5]$  et interpolée en utilisant une interpolation spline cubique. Une comparaison entre l'énergie interpolée et l'énergie tabulée avec un pas de 0.05, un maximum d'erreur relatif de 0.35% est trouvé (cf. figure 1.5). Le même maillage que dans l'exemple précédent est utilisé pour ce couple de diffusion (cf figure 1.6).

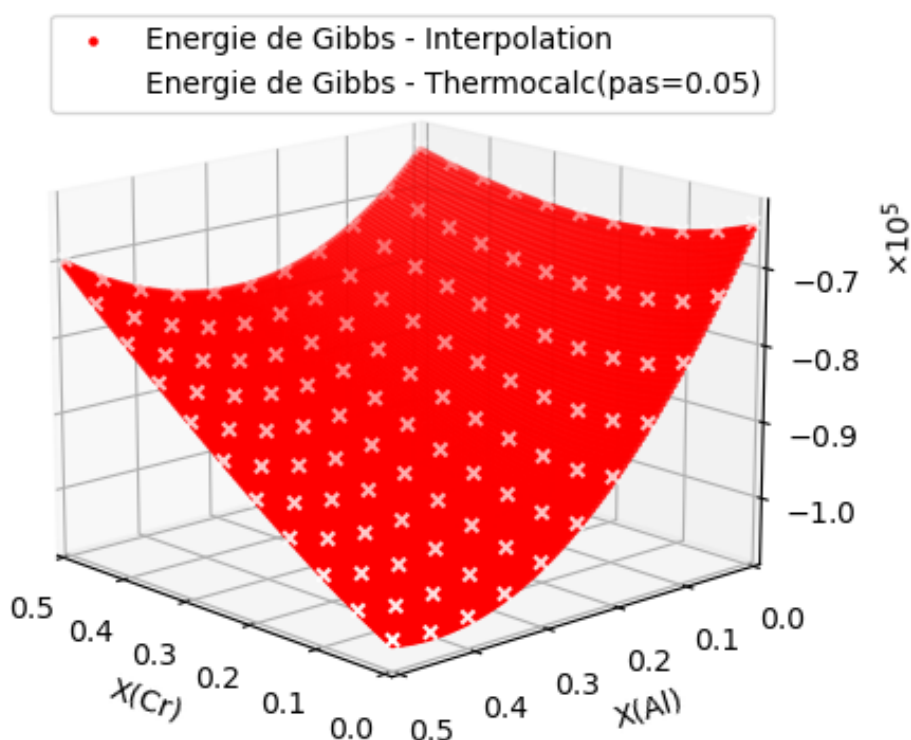


Figure 1.5: Comparaison entre l'énergie de Gibbs [J/mol] obtenue par Thermocalc et celle interpolée.

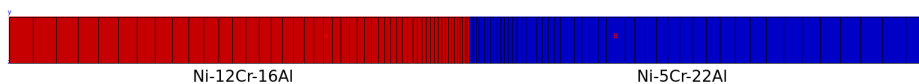


Figure 1.6: maillage utilisé pour simuler la diffusion de couple Ni-12Cr-16Al et Ni-5Cr-22Al (maillage progressif sur 1mm divisé en 100 éléments)

Les résultats des simulations des profils de concentrations d'Al, de Cr et de Ni en utilisant le code élément finis Zset ont été comparés à celles faites avec le module DICTRA de ThermoCalc. Les comparaisons montrent qu'on arrive à reproduire les profils de concentrations simulés par DICTRA (cf. figures 1.7, 1.8 et 1.9). On remarque dans ces simulations que la diffusion de Ni ne se fait pas dans le sens décroissant du gradient de Ni, mais dans l'autre sens. Elle n'est pas due uniquement au gradient de concentration de Ni, mais aussi aux gradients de concentrations des autres éléments (Cr et Al). Ce phénomène est connu sous le nom de **uphill diffusion**.

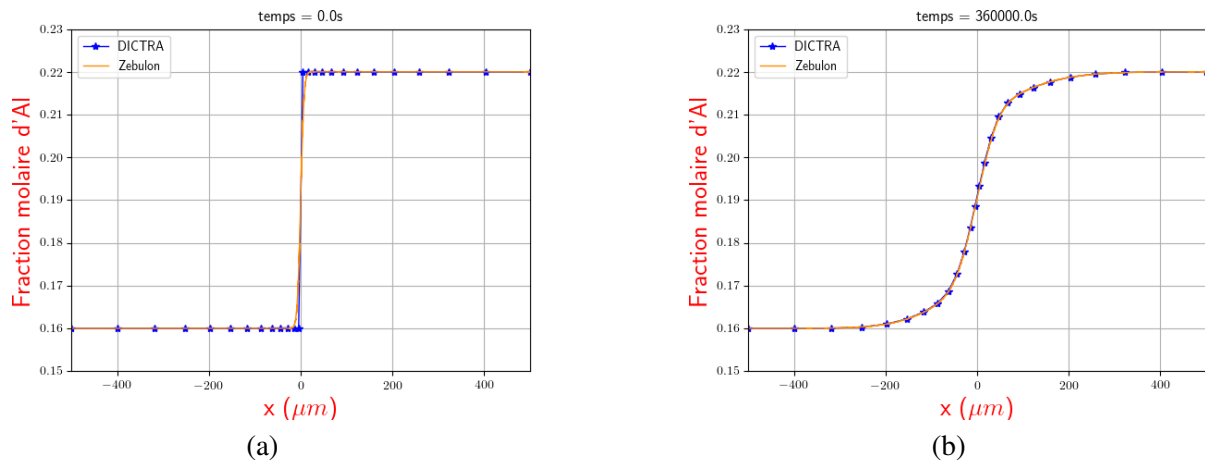


Figure 1.7: Simulation de diffusion d'Al dans le système ternaire Ni-Cr-Al : (a) profil de concentration initial et (b) profil de concentration après 100h de diffusion

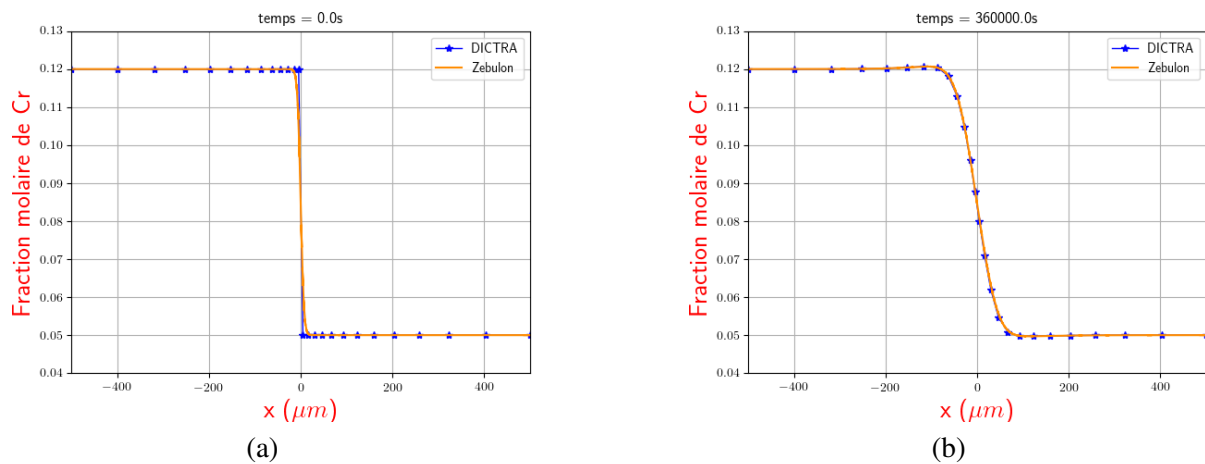


Figure 1.8: Simulation de diffusion du Cr dans le système ternaire Ni-Cr-Al : (a) profil de concentration initial et (b) profil de concentration après 100h de diffusion

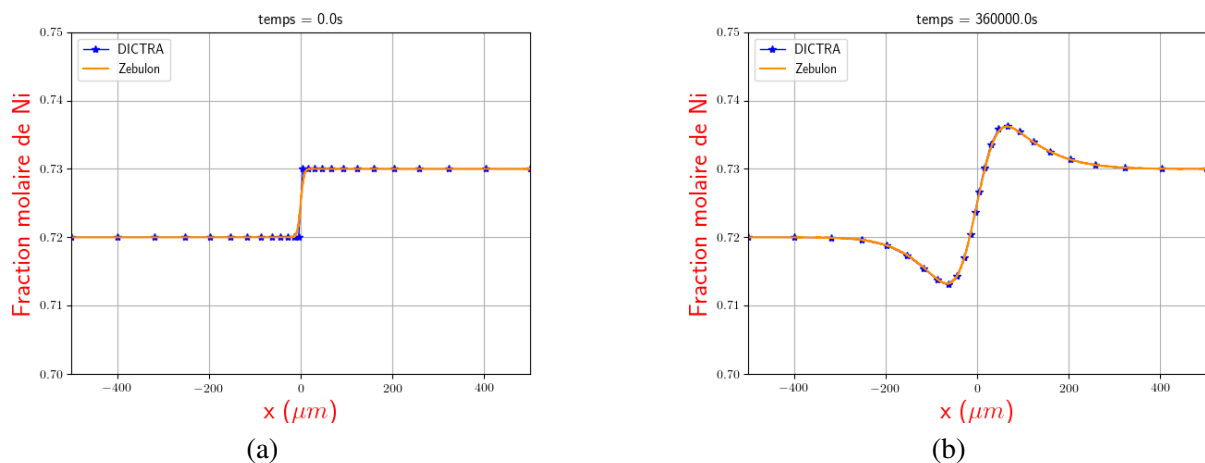


Figure 1.9: Simulation de diffusion de Ni dans le système ternaire Ni-Cr-Al : (a) profil de concentration initial et (b) profil de concentration après 100h de diffusion

## 1.3 Modélisation du couplage diffusion-mécanique non linéaire

### 1.3.1 Introduction

Gorsky [Gorsky, 1935] semble avoir été le premier à considérer l'interaction de la diffusion et de la contrainte en 1935. L'idée de modéliser un atome de soluté comme un centre de dilatation du champ de contrainte local, a ensuite été utilisée pour traiter divers aspects de l'interaction entre contrainte et diffusion. Des expériences ont montré que la présence et la diffusion d'une espèce chimique affectent les propriétés mécaniques de matériau considéré ; par exemple, la fonction d'élasticité pourrait dépendre de la concentration de l'espèce chimique [Swift, 1952].

Podstrigach et al. [Podstrigach and Pavlina, 1966] ont été les premiers à développer une théorie thermodynamique du couplage diffusion-mécanique. Cette théorie se base sur le choix de l'énergie libre. Des solutions analytiques pour une plaque trouée [Podstrigach and Shevchuk, 1969] et pour une plaque en flexion [Pavlina and Podstrigach, 1971] ont été proposées.

Larché et Cahn [Larché and Cahn, 1973] ont ensuite développé une théorie couplée contrainte-diffusion, où le couplage provient des lois mécaniques constitutives qui dépendent de la concentration des éléments de diffusion. Larché et Cahn ont également introduit le concept de système ouvert pour les constantes élastiques définies à potentiel de diffusion constant, afin d'obtenir une version linéarisée du problème couplé non linéaire.

D'autres approches ont été utilisées afin de modéliser des problèmes où le couplage diffusion-mécanique est important. La diffusion des lacunes dans un champ de contraintes hétérogènes autour d'une dislocation coin a été étudiée [Rauh and Simon, 1978]. Villani et al. [Villani et al., 2014] et Salvadori et al. [Salvadori et al., 2018] ont proposé des calculs couplés diffusion-contrainte pour déterminer la distribution des lacunes et la croissance des lacunes dans les domaines plastiques.

Larché et Voorhees [Larché and Voorhees, 1996] ont présenté le point de vue du milieu continu qui donne des résultats plus généraux que l'approche précédente. La contrainte peut affecter la diffusion en modifiant les forces motrices par son influence sur le potentiel de diffusion. Cet effet est purement thermodynamique et est dû à l'interaction de la contrainte avec la déformation libre résultant d'un changement de composition  $\varepsilon^*(c)$ .

$$\tilde{\varepsilon}^*(c) = (c - c_{ref})\tilde{\eta} \quad (1.60)$$

avec  $c_{ref}$  la concentration de référence d'une espèce chimique donnée dans un système binaire donné et  $\tilde{\eta} = \frac{\partial \tilde{\varepsilon}^*(c)}{\partial c}$  est le tenseur d'expansion chimique.

Pour le cas isotrope ou de symétrie cubique,  $\tilde{\eta}$  est isotrope. Dans l'équation ci-dessous,  $\Delta v$ , est le volume de la maille relaxée après qu'une mole d'atomes soit retirée du réseau, et  $v_a$ , le volume occupé par une mole d'atomes.

$$\tilde{\eta} = \eta \mathbf{1} \quad \eta = \frac{1}{3} \frac{\Delta v}{v_a} \quad (1.61)$$

Yang [Yang, 2005] a étudié l'interaction entre les contraintes et la diffusion a été étudiée en supposant une relation linéaire entre la déformation induite par la diffusion et la concentration du soluté. En suivant l'approche utilisée dans la théorie de l'élasticité linéaire, on constate que la contrainte hydrostatique, qui est une fonction harmonique, dépend de la concentration. Pour une plaque dont le déplacement et la diffusion sont bloqués à travers la surface ( $U_S = 0$ ), une distribution non linéaire du soluté a été simulée dans la plaque en raison de l'interaction entre les contraintes et la diffusion.

La plupart des études précédentes se sont concentrées sur l'effet de la contrainte chimique sur la diffusion en raison du transport de masse déséquilibré. Dans le travail de [Xuan et al., 2008], les effets de couplage de la contrainte mécanique externe et de la contrainte chimique sur la diffusion sont étudiés. Une équation de diffusion auto-cohérente incluant la contrainte chimique et le gradient de contrainte mécanique externe

a été développée sur la base des travaux de Zhang et al [Zhang et al., 2002] [Ko et al., 2007] en utilisant la théorie thermodynamique et la loi de Fick. Le problème d'une plaque mince de matériau isotrope soumise à un champ de contrainte de traction unidirectionnel a été résolu numériquement. Il est démontré que les contraintes mécaniques externes jouent un rôle essentiel dans le couplage de diffusion-mécanique. Lorsque la direction de la diffusion est identique à celle du gradient de contrainte, le gradient de contrainte externe accélère le processus de diffusion et donc augmente la valeur de la concentration et réduit la magnitude de la contrainte chimique. En revanche, lorsque la direction de la diffusion est opposée à celle du gradient de contrainte, le gradient de contrainte externe entravera le processus de diffusion du soluté et, par conséquent, réduira la magnitude de la contrainte chimique.

Le couplage est développé sur la base du fait que, dans une solution solide, la force des liaisons atomiques peut varier localement en ajoutant des atomes de soluté. Bien que cela ait été souligné il y a longtemps [Larché and Cahn, 1985], la dépendance de la composition de la matrice de rigidité a été largement négligée jusqu'à récemment lorsque son influence sur la précipitation a été étudiée par [Darvishi Kamachali et al., 2013], [Kamachali and Schwarze, 2017] et [Schwarze et al., 2017]. Dans ces travaux, une relation linéaire entre le tenseur d'élasticité et la variation de la concentration a été proposée :

$$\underset{\approx}{C}(c) = \underset{\approx}{C}^o \left( 1 + \underset{\approx}{k}(c - c_{ref}) \right) \quad (1.62)$$

avec  $\underset{\approx}{C}^o$  le tenseur d'ordre 4 d'élasticité pour la concentration  $c = c_{ref}$ ,  $\underset{\approx}{k}$  est un facteur de couplage ayant la même symétrie et les mêmes composantes que  $\underset{\approx}{C}^o$ .

### 1.3.2 Formulation thermodynamique et équations d'équilibre

#### a Les lois thermodynamiques

- 1<sup>re</sup> loi de la thermodynamique

Au cours d'une transformation quelconque d'un système fermé, la variation de son énergie est égale à la quantité d'énergie échangée avec le milieu extérieur, par transfert thermique (chaleur) et par transfert mécanique (travail).

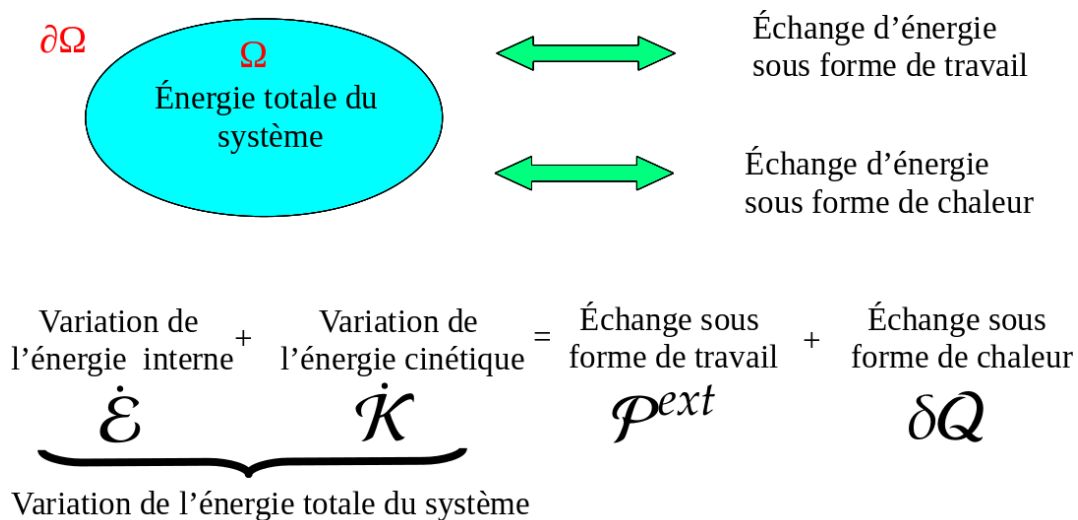


Figure 1.10: Schéma simplifié de la 1<sup>re</sup> loi de la thermodynamique

$$\left. \begin{array}{l} 1^{\text{re}} \text{ loi de la thermodynamique :} \\ \text{Théorème de l'énergie cinétique :} \end{array} \right\} \begin{array}{l} \dot{\mathcal{E}} + \dot{\mathcal{K}} = \dot{\mathcal{P}}^{ext} + \delta \mathcal{Q} \\ \dot{\mathcal{K}} = \dot{\mathcal{P}}^{int} + \dot{\mathcal{P}}^{ext} \end{array} \Rightarrow \dot{\mathcal{E}} = -\dot{\mathcal{P}}^{int} + \delta \mathcal{Q}$$

Supposons que la température soit constante ( $T = cte$ ) et que la transformation ait lieu sans échange de chaleur ( $\delta \mathcal{Q} = 0$ ). Soit  $e$  la densité d'énergie interne par unité de volume, la prise en compte du travail mécanique donne :

$$\dot{\mathcal{E}} = \int_V \dot{e} dv = \int_V \underline{\underline{\sigma}} : \underline{\underline{\dot{\varepsilon}}} dv \quad (1.63)$$

La forme locale de cette expression est :

$$\dot{e} = \underbrace{\underline{\underline{\sigma}} : \underline{\underline{\dot{\varepsilon}}}}_{\text{puissance mécanique}} \quad (1.64)$$

où  $\underline{\underline{\sigma}}$  est le tenseur de contraintes,  $\underline{\underline{\varepsilon}}$  est la déformation totale.

Le tenseur de déformation est composé de trois parties :

$$\underline{\underline{\varepsilon}} = \underline{\underline{\varepsilon}}^e + \underline{\underline{\varepsilon}}^{vp} + \underline{\underline{\varepsilon}}^*(c) \quad (1.65)$$

où  $\underline{\underline{\varepsilon}}^e$  est le tenseur de déformation élastique,  $\underline{\underline{\varepsilon}}^{vp}$  est le tenseur de déformation viscoplastique et  $\underline{\underline{\varepsilon}}^*$  est la déformation libre due aux changements de volume associé aux substitutions des espèces dans la maille (cf. figure 2.28), il dépend de la concentration  $c$  suivant la loi de Vegard :

$$\underline{\underline{\varepsilon}}^*(c) = (c - c_{ref}) \underline{\underline{\eta}} \quad \text{o} \quad \underline{\underline{\eta}} = \frac{\partial \underline{\underline{\varepsilon}}^*}{\partial c} \quad (1.66)$$

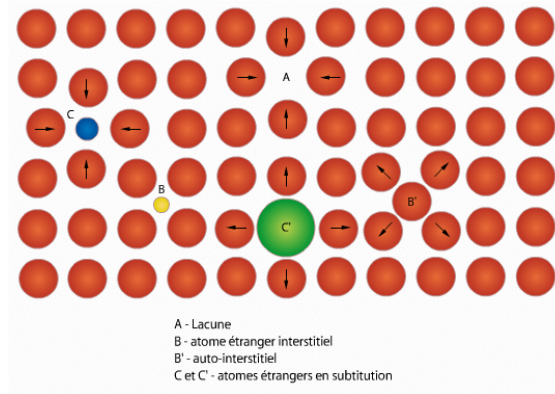


Figure 1.11: Différentes origines de la déformation libre  $\underline{\underline{\varepsilon}}^*$  (changements de volume associée aux substitutions des espèces dans la maille) [Kouadri Boudjelthia, 2012]

Pour le cas isotrope ou de symétrie cubique,  $\underline{\underline{\eta}}$  est isotrope. Dans l'équation ci-dessous,  $\Delta v$ , est le volume de la maille relaxée après qu'une mole d'atomes soit retirée du réseau, et  $v_a$ , le volume occupé par une mole d'atomes.

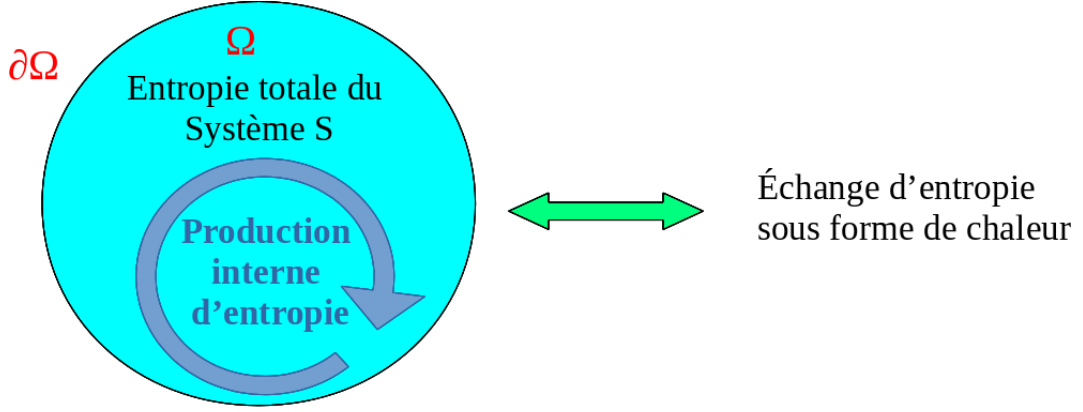
$$\underline{\underline{\eta}} = \eta \underline{\underline{1}} \quad \eta = \frac{1}{3} \frac{\Delta v}{v_a} \quad (1.67)$$

#### • 2<sup>me</sup> loi de la thermodynamique

Toute transformation d'un système thermodynamique s'effectue avec augmentation de l'entropie globale incluant l'entropie du système et du milieu extérieur. On dit alors qu'il y a création d'entropie.

La 2<sup>me</sup> loi de la thermodynamique, appelée aussi loi d'entropie, s'écrit sous la forme :

$$\dot{\mathcal{S}} \geq \mathcal{Q}_s \quad (1.68)$$



### Production interne d'entropie $\geq 0$

Figure 1.12: Schéma simplifié de la 2<sup>me</sup> loi de la thermodynamique

$$\dot{\mathcal{S}} = \int_V \dot{s} dv, \quad \mathcal{Q}_s = \int_{\partial V} \underline{J}_s \cdot \underline{n} ds \quad (1.69)$$

$s$  : densité d'entropie par unité de volume et  $\underline{J}_s$  : flux d'entropie issu de la diffusion de la matière.

$$\underline{J}_s = \frac{\mu \underline{J}}{T} \quad (1.70)$$

$$\int_V \dot{s} dv \geq \int_{\partial V} \left( \frac{\mu \underline{J}}{T} \right) \cdot \underline{n} ds \quad (1.71)$$

La forme locale de la 2<sup>me</sup> loi de la thermodynamique est :

$$\boxed{T\dot{s} - \nabla \cdot (\mu \underline{J}) \geq 0} \quad (1.72)$$

$$\nabla \cdot (\mu \underline{J}) = \mu \nabla \cdot (\underline{J}) + \underline{J} \cdot \nabla \mu = -\mu \dot{c} + \underline{J} \cdot \nabla \mu \quad (1.73)$$

$$\boxed{T\dot{s} + \mu \dot{c} - \underline{J} \cdot \nabla \mu \geq 0} \quad (1.74)$$

#### • Inégalité de Clausius-Duhem

La densité d'énergie par unité de volume à température constante est définie grâce à la transformation de Legendre :

$$\psi = e - Ts \quad (1.75)$$

Dans le cas isotherme,

$$\dot{\psi} = \dot{e} - T\dot{s} \Rightarrow T\dot{s} = \dot{e} - \dot{\psi} \quad (1.76)$$

En utilisant la forme locale du 1<sup>er</sup> principe de la thermodynamique (cf. équation 1.64) :

$$T\dot{s} = \underline{\sigma} : \underline{\dot{\varepsilon}} - \dot{\psi} \quad (1.77)$$

A l'aide de la 2<sup>me</sup> loi de la thermodynamique (cf. équation 1.74), on trouve l'inégalité de Clausius-Duhem :

$$\boxed{\mathcal{D}_{totale} = \underline{\sigma} : \underline{\dot{\varepsilon}} - \dot{\psi} + \mu \dot{c} - \underline{J} \cdot \nabla \mu \geq 0} \quad (1.78)$$

## b Formulations thermodynamiques

- 1<sup>re</sup> approche en utilisant les variables d'états  $\underline{\underline{\varepsilon}}^e$ ,  $c$  et  $V_i$

On suppose que la dérivée de l'énergie libre  $\psi(\underline{\underline{\varepsilon}}^e, c, V_i)$  est donnée par :

$$\dot{\psi}(\underline{\underline{\varepsilon}}^e, c, V_i) = \frac{\partial \psi}{\partial \underline{\underline{\varepsilon}}^e} : \dot{\underline{\underline{\varepsilon}}^e} + \frac{\partial \psi}{\partial c} \dot{c} + X_i \dot{V}_i \quad (1.79)$$

où  $V_i$  désigne l'ensemble des variables d'écroutissage.

En utilisant la décomposition de la déformation totale comme dans l'équation 1.65,

$$\underline{\underline{\sigma}} : \dot{\underline{\underline{\varepsilon}}} = \underline{\underline{\sigma}} : \dot{\underline{\underline{\varepsilon}}^e} + \underline{\underline{\sigma}} : \dot{\underline{\underline{\varepsilon}}^{vp}} + \underline{\underline{\sigma}} : \eta \dot{c} \quad (1.80)$$

avec

$$\underline{\underline{\eta}} = \frac{\partial \underline{\underline{\varepsilon}}^*}{\partial c} \quad X_i = \frac{\partial \psi}{\partial V_i}$$

En combinant les équations (1.78, 1.79 et 1.80), on obtient l'inégalité de Clausius-Duhem :

$$\mathcal{D}_{totale} = \left( \underline{\underline{\sigma}} - \frac{\partial \psi}{\partial \underline{\underline{\varepsilon}}^e} \right) : \dot{\underline{\underline{\varepsilon}}^e} + \left( \underline{\underline{\sigma}} : \underline{\underline{\eta}} - \frac{\partial \psi}{\partial c} + \mu \right) \dot{c} + \underline{\underline{\sigma}} : \dot{\underline{\underline{\varepsilon}}^{vp}} + X_i \dot{V}_i - \underline{J} \nabla \mu \geq 0 \quad (1.81)$$

L'équation de dissipation totale dépend linéairement des variables indépendantes ( $\underline{\underline{\varepsilon}}^e, \dot{c}$ ). Par conséquent, les termes entre parenthèses sont nuls et les forces thermodynamique  $\underline{\underline{\sigma}}$ ,  $X_i$  ainsi que le potentiel de diffusion  $\mu$  sont définis par :

$$\boxed{\underline{\underline{\sigma}} = \frac{\partial \Psi}{\partial \underline{\underline{\varepsilon}}^e} = \frac{\partial \Psi}{\partial \underline{\underline{\varepsilon}}} = - \frac{\partial \Psi}{\partial \underline{\underline{\varepsilon}}^{vp}}} \quad \boxed{\mu = \frac{\partial \Psi}{\partial c} - \underline{\underline{\sigma}} : \underline{\underline{\eta}}} \quad \boxed{X_i = \frac{\partial \psi}{\partial V_i}} \quad (1.82)$$

La dissipation résiduelle est donnée par :

$$D_{residuelle} = \underline{\underline{\sigma}} : \dot{\underline{\underline{\varepsilon}}^{vp}} - X_i \dot{V}_i - \underline{J} \nabla \mu \geq 0 \quad (1.83)$$

Afin d'assurer la positivité de la dissipation, l'existence d'un potentiel de dissipation convexe  $\Omega(\underline{\underline{\sigma}}, X_i, \nabla \mu) = \Omega^{chem}(\nabla \mu) + \Omega^{mech}(\underline{\underline{\sigma}}, X_i)$ , est supposée de sorte que

$$\boxed{\underline{J} = - \frac{\partial \Omega}{\partial \nabla \mu}} \quad \boxed{\dot{\underline{\underline{\varepsilon}}^{vp}} = \frac{\partial \Omega}{\partial \underline{\underline{\sigma}}}} \quad \boxed{\dot{V}_i = - \frac{\partial \Omega}{\partial X_i}} \quad (1.84)$$

Le couplage diffusion-mécanique est introduit à travers le choix de la fonction de densité volumique d'énergie libre. L'énergie libre dépend des variables d'états indépendantes comme la concentration de l'espèce qui diffuse  $c$ , le tenseur de déformation élastique  $\underline{\underline{\varepsilon}}^e$  et une variable d'écroutissage isotrope scalaire  $p$ . Cette dernière est composée d'une partie chimique et d'une partie mécanique.

$$\Psi(\underline{\underline{\varepsilon}}^e, c, p) = \Psi^{chem}(c) + \Psi^{mech,e}(\underline{\underline{\varepsilon}}^e, c) + \Psi^{mech,p}(c, p) \quad (1.85)$$

L'énergie chimique est donnée sous la forme quadratique suivante :

$$\Psi^{chem}(c) = \frac{1}{2} A (c - a)^2 + b \quad (1.86)$$

où  $A$  est la courbure de l'énergie libre,  $a$  est la concentration d'équilibre,  $b$  est l'ordonnée à l'origine.

En considérant un matériau dont le comportement est élasto-viscoplastique avec écroutissage isotrope et cinématique, l'énergie mécanique élastique est définie par :

$$\Psi^{mech,e}(\underline{\underline{\varepsilon}}^e, c) = \frac{1}{2} \underline{\underline{\varepsilon}}^e : \underline{\underline{C}}(c) : \underline{\underline{\varepsilon}}^e \quad (1.87)$$

L'énergie mécanique stockée par écrouissage s'écrit comme suit :

$$\Psi^{mech,p}(c,p) = \frac{1}{2}b(c)Q(c)p^2 + \frac{1}{2}H(c)p^2 \quad (1.88)$$

où  $b$  et  $Q$  sont des paramètres du matériau pour le cas d'un écrouissage isotrope.

Le potentiel de dissipation s'écrit sous la forme suivante :

$$\Omega(\underline{\sigma}, X_i, \nabla\mu) = \Omega^{mech}(\underline{\sigma}, X_i) + \Omega^{chem}(\nabla\mu) \quad (1.89)$$

Le potentiel de dissipation chimique est donné par :

$$\Omega^{chem}(\nabla\mu) = \frac{1}{2}L(\nabla\mu)^2 \quad (1.90)$$

Le potentiel de dissipation mécanique est donné par [Lemaitre and Chaboche, 1994]:

$$\Omega^{mech}(\underline{\sigma}, X_i) = \int_V \tilde{\Omega}(f) dV \quad \text{avec} \quad \tilde{\Omega}(f) = \frac{K}{N+1} \left\langle \frac{f}{K} \right\rangle^{N+1} \quad \text{et} \quad f = J_2(\underline{\sigma}) - (R_0 + R) \quad (1.91)$$

où  $R_0$ ,  $K$  et  $N$  sont des paramètres matériaux.

Le potentiel chimique est calculé par l'expression suivante :

$$\mu = \frac{\partial\Psi}{\partial c} - \underline{\sigma} : \underline{\eta} = A(c-a) + \frac{1}{2}\underline{\varepsilon}^e : \frac{\partial\tilde{C}(c)}{\partial c} : \underline{\varepsilon}^e + \frac{1}{2}\frac{\partial b(c)}{\partial c}Q(c)p^2 + \frac{1}{2}b(c)\frac{\partial Q(c)}{\partial c}p^2 + \frac{1}{2}\frac{\partial H(c)}{\partial c}p^2 - \underline{\sigma} : \underline{\eta} \quad (1.92)$$

$$\text{où } \underline{\eta} = \frac{\partial\underline{\varepsilon}^*}{\partial c} \text{ et } \underline{\sigma} = \tilde{C}(c) : (\underline{\varepsilon} - \underline{\varepsilon}^{vp} - \underline{\varepsilon}^*)$$

Le gradient du potentiel se déduit du potentiel chimique :

$$\begin{aligned} \nabla\mu = & \left( A + \frac{1}{2}\underline{\varepsilon}^e : \frac{\partial^2\tilde{C}(c)}{\partial c^2} : \underline{\varepsilon}^e + \frac{1}{2} \left( \frac{\partial^2 b(c)}{\partial c^2}Q(c) + 2\frac{\partial b(c)}{\partial c}\frac{\partial Q(c)}{\partial c} + b(c)\frac{\partial^2 Q(c)}{\partial c^2} + \frac{\partial^2 H(c)}{\partial c^2} \right) p^2 \right) \nabla c \\ & + \underline{\varepsilon}^e : \frac{\partial\tilde{C}(c)}{\partial c} : \nabla\underline{\varepsilon}^e + \left( \frac{\partial b(c)}{\partial c}Q(c) + b(c)\frac{\partial Q(c)}{\partial c} + \frac{\partial H(c)}{\partial c} \right) p \nabla p - \nabla(\underline{\sigma} : \underline{\eta}) \end{aligned} \quad (1.93)$$

$\nabla(\underline{\sigma} : \underline{\eta})$  peut être écrit en fonction de  $\nabla c$  et  $\nabla\underline{\varepsilon}^e$  :

$$\nabla(\underline{\sigma} : \underline{\eta}) = \nabla(\underline{\eta} : \underline{\sigma}) = \nabla \left( \underline{\eta} : \tilde{C}(c) : \underline{\varepsilon}^e \right) = \underline{\eta} : \frac{\partial\tilde{C}(c)}{\partial c} \nabla c : \underline{\varepsilon}^e + \underline{\eta} : \tilde{C}(c) : \nabla\underline{\varepsilon}^e \quad (1.94)$$

$$\begin{aligned} \Rightarrow \nabla\mu = & \left( A - \underline{\eta} : \frac{\partial\tilde{C}(c)}{\partial c} : \underline{\varepsilon}^e + \frac{1}{2}\underline{\varepsilon}^e : \frac{\partial^2\tilde{C}(c)}{\partial c^2} : \underline{\varepsilon}^e \right. \\ & \left. + \frac{1}{2} \left( \frac{\partial^2 b(c)}{\partial c^2}Q(c) + 2\frac{\partial b(c)}{\partial c}\frac{\partial Q(c)}{\partial c} + b(c)\frac{\partial^2 Q(c)}{\partial c^2} + \frac{\partial^2 H(c)}{\partial c^2} \right) p^2 \right) \nabla c \\ & + \left( \underline{\varepsilon}^e : \frac{\partial\tilde{C}(c)}{\partial c} - \underline{\eta} : \tilde{C}(c) \right) : \nabla\underline{\varepsilon}^e + \left( \frac{\partial b(c)}{\partial c}Q(c) + b(c)\frac{\partial Q(c)}{\partial c} + \frac{\partial H(c)}{\partial c} \right) p \nabla p \end{aligned} \quad (1.95)$$



Le flux chimique est donné par :

$$\underline{J} = -\underline{L}(c)\nabla\mu \quad (1.96)$$

La formule de  $\underline{L}(c)$  est choisi de façon à faire apparaître le premier terme  $-D\nabla c$  sous la forme :

$$\underline{L}(c) = L(c)\underline{1} = \frac{D}{\frac{\partial^2 \Psi}{\partial c^2}} \underline{1} = \frac{D}{A} \underline{1} \quad (1.97)$$

Hart [Hart, 1957] a étudié la contribution des dislocations au coefficient d'auto-diffusion des métaux. Il a trouvé que la diffusion est accélérée grâce à la diffusion au niveau des dislocations. Ceci est appelé *pipe diffusion*. Selon Hart, un atome dans le cristal peut être considéré, au cours de son historique de diffusion, passer une fraction de son temps dans le cœur des dislocations et le reste de son temps dans des sites de mailles réguliers. Par la suite, le coefficient de diffusion est divisé en deux parties : une partie due au gradient de concentration et une autre partie due à la dépendance à la densité des dislocations. La théorie a ensuite été étendue par Mortlock [Mortlock, 1960] au cas d'espèces de solutés diffusants. Il ne semble pas y avoir eu d'amélioration dans la méthode de calcul depuis le premier article. Comme la densité de dislocation est proportionnelle à la plasticité cumulée, on suppose que le coefficient de diffusion s'écrit sous la forme :

$$D_{eff} = D(1 + hp) \quad (1.98)$$

où  $h$  est une constante à déterminer,  $p$  est la plasticité cumulée. L'équation (1.96) dévient :

$$\begin{aligned} \underline{J} &= -D_{eff}\nabla c \\ &= -\frac{D_{eff}}{A} \left( -\underline{\eta} : \frac{\partial \underline{C}(c)}{\partial c} : \underline{\varepsilon}^e + \frac{1}{2} \underline{\varepsilon}^e : \frac{\partial^2 \underline{C}(c)}{\partial c^2} : \underline{\varepsilon}^e \right. \\ &\Rightarrow \left. + \frac{1}{2} \left( \frac{\partial^2 b(c)}{\partial c^2} Q(c) + 2 \frac{\partial b(c)}{\partial c} \frac{\partial Q(c)}{\partial c} + b(c) \frac{\partial^2 Q(c)}{\partial c^2} + \frac{\partial^2 H(c)}{\partial c^2} \right) p^2 \right) \nabla c \\ &= -\frac{D_{eff}}{A} \left( \underline{\varepsilon}^e : \frac{\partial \underline{C}(c)}{\partial c} - \underline{\eta} : \underline{C}(c) \right) : \nabla \underline{\varepsilon}^e - \frac{D_{eff}}{A} \left( \frac{\partial b(c)}{\partial c} Q(c) + b(c) \frac{\partial Q(c)}{\partial c} + \frac{\partial H(c)}{\partial c} \right) p \nabla p \end{aligned} \quad (1.99)$$

- dépendance du coefficient de diffusion à la plasticité
- dépendance du tenseur d'élasticité à la concentration
- dépendance de l'écroutissage à la concentration

- 2<sup>me</sup> approche en utilisant les variables d'états  $\underline{\varepsilon}$ ,  $\underline{\varepsilon}^{vp}$ ,  $c$  et  $V_i$

On suppose que la dérivée de l'énergie libre  $\psi(\underline{\varepsilon}, \underline{\varepsilon}^{vp}, c, V_i)$  est donnée par :

$$\psi(\underline{\varepsilon}, \underline{\varepsilon}^{vp}, c, V_i) = \frac{\partial \psi}{\partial \underline{\varepsilon}} : \underline{\dot{\varepsilon}} + \frac{\partial \psi}{\partial \underline{\varepsilon}^{vp}} : \underline{\dot{\varepsilon}}^{vp} + \frac{\partial \psi}{\partial c} \dot{c} + X_i \dot{V}_i \quad (1.100)$$

En combinant les équations (1.78 et 1.100)

$$\mathcal{D}_{totale} = \left( \underline{\sigma} - \frac{\partial \psi}{\partial \underline{\varepsilon}} \right) : \underline{\dot{\varepsilon}} + \left( -\frac{\partial \psi}{\partial c} + \mu \right) \dot{c} - \frac{\partial \psi}{\partial \underline{\varepsilon}^{vp}} : \underline{\dot{\varepsilon}}^{vp} - X_i \dot{V}_i - \underline{J} \nabla \mu \geq 0 \quad (1.101)$$

En suivant la même démarche utilisée pour la 1<sup>re</sup> approche, on obtient les mêmes équations pour les forces thermodynamique sauf pour  $\underline{\sigma}$  et le potentiel chimique  $\mu$  :

$$\boxed{\underline{\underline{\sigma}} = \frac{\partial \Psi}{\partial \underline{\underline{\varepsilon}}} = - \frac{\partial \Psi}{\partial \underline{\underline{\varepsilon}}^{vp}}} \quad \boxed{\underline{\underline{\mu}} = \frac{\partial \Psi}{\partial c}} \quad (1.102)$$

Le potentiel chimique est donné par :

$$\begin{aligned} \underline{\underline{\mu}} = & A(c-a) + \frac{1}{2} (\underline{\underline{\varepsilon}} - \underline{\underline{\varepsilon}}^{vp} - \underline{\underline{\varepsilon}}^*) : \frac{\partial \underline{\underline{C}}(c)}{\partial c} : (\underline{\underline{\varepsilon}} - \underline{\underline{\varepsilon}}^{vp} - \underline{\underline{\varepsilon}}^*) + \frac{1}{2} \frac{\partial b(c)}{\partial c} Q(c) p^2 + \frac{1}{2} b(c) \frac{\partial Q(c)}{\partial c} p^2 \\ & + \frac{1}{2} \frac{\partial H(c)}{\partial c} p^2 - \underline{\underline{\sigma}} : \underline{\underline{\eta}} \end{aligned} \quad (1.103)$$

$$\text{où } \underline{\underline{\eta}} = \frac{\partial \underline{\underline{\varepsilon}}^*}{\partial c} \text{ et } \underline{\underline{\sigma}} = \underline{\underline{C}}(c) : (\underline{\underline{\varepsilon}} - \underline{\underline{\varepsilon}}^{vp} - \underline{\underline{\varepsilon}}^*)$$

Le gradient de potentiel s'écrit :

$$\begin{aligned} \nabla \underline{\underline{\mu}} = & \left( A + \frac{1}{2} (\underline{\underline{\varepsilon}} - \underline{\underline{\varepsilon}}^{vp} - \underline{\underline{\varepsilon}}^*(c)) : \frac{\partial^2 \underline{\underline{C}}(c)}{\partial c^2} : (\underline{\underline{\varepsilon}} - \underline{\underline{\varepsilon}}^{vp} - \underline{\underline{\varepsilon}}^*(c)) \right. \\ & \left. + \frac{1}{2} \left( \frac{\partial^2 b(c)}{\partial c^2} Q(c) + 2 \frac{\partial b(c)}{\partial c} \frac{\partial Q(c)}{\partial c} + b(c) \frac{\partial^2 Q(c)}{\partial c^2} + \frac{\partial^2 H(c)}{\partial c^2} \right) p^2 \right) \nabla c \\ & + (\underline{\underline{\varepsilon}} - \underline{\underline{\varepsilon}}^{vp} - \underline{\underline{\varepsilon}}^*(c)) : \frac{\partial \underline{\underline{C}}(c)}{\partial c} : \nabla (\underline{\underline{\varepsilon}} - \underline{\underline{\varepsilon}}^{vp} - \underline{\underline{\varepsilon}}^*(c)) + \left( \frac{\partial b(c)}{\partial c} Q(c) + b(c) \frac{\partial Q(c)}{\partial c} + \frac{\partial H(c)}{\partial c} \right) p \nabla p - \nabla (\underline{\underline{\sigma}} : \underline{\underline{\eta}}) \end{aligned} \quad (1.104)$$

$\nabla (\underline{\underline{\sigma}} : \underline{\underline{\eta}})$  peut être écrit en fonction de  $\nabla c$ ,  $\nabla \underline{\underline{\varepsilon}}$  et  $\nabla \underline{\underline{\varepsilon}}^{vp}$  :

$$\begin{aligned} \nabla (\underline{\underline{\sigma}} : \underline{\underline{\eta}}) = & \nabla (\underline{\underline{\eta}} : \underline{\underline{\sigma}}) = \nabla \left( \underline{\underline{\eta}} : \underline{\underline{C}}(c) : (\underline{\underline{\varepsilon}} - \underline{\underline{\varepsilon}}^{vp} - \underline{\underline{\varepsilon}}^*(c)) \right) \\ = & \underline{\underline{\eta}} : \frac{\partial \underline{\underline{C}}(c)}{\partial c} \nabla c : (\underline{\underline{\varepsilon}} - \underline{\underline{\varepsilon}}^{vp} - \underline{\underline{\varepsilon}}^*(c)) + \underline{\underline{\eta}} : \underline{\underline{C}}(c) : \nabla (\underline{\underline{\varepsilon}} - \underline{\underline{\varepsilon}}^{vp} - \underline{\underline{\varepsilon}}^*(c)) \end{aligned} \quad (1.105)$$

$$\text{or } \nabla (\underline{\underline{\varepsilon}} - \underline{\underline{\varepsilon}}^{vp} - \underline{\underline{\varepsilon}}^*(c)) = \nabla \underline{\underline{\varepsilon}} - \nabla \underline{\underline{\varepsilon}}^{vp} - \nabla \underline{\underline{\varepsilon}}^*(c) = \nabla \underline{\underline{\varepsilon}} - \nabla \underline{\underline{\varepsilon}}^{vp} - \underline{\underline{\eta}} \nabla c \quad (1.106)$$

$$\Rightarrow \nabla (\underline{\underline{\sigma}} : \underline{\underline{\eta}}) = \left( -\underline{\underline{\eta}} : \underline{\underline{C}}(c) : \underline{\underline{\eta}} + \underline{\underline{\eta}} : \frac{\partial \underline{\underline{C}}(c)}{\partial c} : (\underline{\underline{\varepsilon}} - \underline{\underline{\varepsilon}}^{vp} - \underline{\underline{\varepsilon}}^*(c)) \right) \nabla c + \underline{\underline{\eta}} : \underline{\underline{C}}(c) : \nabla \underline{\underline{\varepsilon}} - \underline{\underline{\eta}} : \underline{\underline{C}}(c) : \nabla \underline{\underline{\varepsilon}}^{vp} \quad (1.107)$$

$$\begin{aligned}
 \nabla \mu = & \left( A + \underline{\eta} : \underline{\underline{C}}(c) : \underline{\eta} - 2\underline{\eta} : \frac{\partial \underline{\underline{C}}(c)}{\partial c} : (\underline{\varepsilon} - \underline{\varepsilon}^{vp} - \underline{\varepsilon}^*(c)) \right. \\
 & \left. + \frac{1}{2} (\underline{\varepsilon} - \underline{\varepsilon}^{vp} - \underline{\varepsilon}^*(c)) : \frac{\partial^2 \underline{\underline{C}}(c)}{\partial c^2} : (\underline{\varepsilon} - \underline{\varepsilon}^{vp} - \underline{\varepsilon}^*(c)) \right) \nabla c \\
 \Rightarrow & + \frac{1}{2} \left( \frac{\partial^2 b(c)}{\partial c^2} Q(c) + 2 \frac{\partial b(c)}{\partial c} \frac{\partial Q(c)}{\partial c} + b(c) \frac{\partial^2 Q(c)}{\partial c^2} + \frac{\partial^2 H(c)}{\partial c^2} \right) p^2 \nabla c \\
 & + \left( \frac{\partial b(c)}{\partial c} Q(c) + b(c) \frac{\partial Q(c)}{\partial c} + \frac{\partial H(c)}{\partial c} \right) p \nabla p \\
 & + \left( (\underline{\varepsilon} - \underline{\varepsilon}^{vp} - \underline{\varepsilon}^*(c)) : \frac{\partial \underline{\underline{C}}(c)}{\partial c} - \underline{\eta} : \underline{\underline{C}}(c) \right) : \nabla \underline{\varepsilon} \\
 & - \left( (\underline{\varepsilon} - \underline{\varepsilon}^{vp} - \underline{\varepsilon}^*(c)) : \frac{\partial \underline{\underline{C}}(c)}{\partial c} - \underline{\eta} : \underline{\underline{C}}(c) \right) : \nabla \underline{\varepsilon}^{vp}
 \end{aligned} \tag{1.108}$$

$$\text{où } \underline{\eta} = \frac{\partial \underline{\varepsilon}^*}{\partial c}$$

Le flux chimique est donné par :

$$\underline{J} = -\underline{L}(c) \nabla \mu \tag{1.109}$$

La formule de  $\underline{L}(c)$  est choisi de façon à faire apparaitre le premier terme  $-D \nabla c$  sous la forme :

$$\underline{L}(c) = L(c) \underline{1} = \frac{D_{eff}}{\frac{\partial^2 \Psi}{\partial c^2}} \underline{1} = \frac{D_{eff}}{A} \underline{1} \tag{1.110}$$

L'équation (1.109) dévient :

$$\begin{aligned}
 \underline{J} = & -D_{eff} \nabla c \\
 - \frac{D_{eff}}{A} & \left( \underline{\eta} : \underline{\underline{C}}(c) : \underline{\eta} - 2\underline{\eta} : \frac{\partial \underline{\underline{C}}(c)}{\partial c} : (\underline{\varepsilon} - \underline{\varepsilon}^{vp} - \underline{\varepsilon}^*(c)) \right. \\
 & \left. + \frac{1}{2} (\underline{\varepsilon} - \underline{\varepsilon}^{vp} - \underline{\varepsilon}^*(c)) : \frac{\partial^2 \underline{\underline{C}}(c)}{\partial c^2} : (\underline{\varepsilon} - \underline{\varepsilon}^{vp} - \underline{\varepsilon}^*(c)) \right) \nabla c \\
 \Rightarrow & - \frac{1}{2} \frac{D_{eff}}{A} \left( \frac{\partial^2 b(c)}{\partial c^2} Q(c) + 2 \frac{\partial b(c)}{\partial c} \frac{\partial Q(c)}{\partial c} + b(c) \frac{\partial^2 Q(c)}{\partial c^2} + \frac{\partial^2 H(c)}{\partial c^2} \right) p^2 \nabla c \\
 & - \frac{D_{eff}}{A} \left( \frac{\partial b(c)}{\partial c} Q(c) + b(c) \frac{\partial Q(c)}{\partial c} + \frac{\partial H(c)}{\partial c} \right) p \nabla p \\
 & - \frac{D_{eff}}{A} \left( (\underline{\varepsilon} - \underline{\varepsilon}^{vp} - \underline{\varepsilon}^*(c)) : \frac{\partial \underline{\underline{C}}(c)}{\partial c} - \underline{\eta} : \underline{\underline{C}}(c) \right) : \nabla \underline{\varepsilon} \\
 & + \frac{D_{eff}}{A} \left( (\underline{\varepsilon} - \underline{\varepsilon}^{vp} - \underline{\varepsilon}^*(c)) : \frac{\partial \underline{\underline{C}}(c)}{\partial c} - \underline{\eta} : \underline{\underline{C}}(c) \right) : \nabla \underline{\varepsilon}^{vp}
 \end{aligned} \tag{1.111}$$

- dépendance du coefficient de diffusion à la plasticité
- dépendance du tenseur d'élasticité à la concentration
- dépendance de l'écroutissage à la concentration

On voit que les deux formulations en utilisant les variables d'états  $(\underline{\xi}^e, c, V_i)$  et  $(\underline{\xi}, \underline{\xi}^{vp}, c, V_i)$  sont équivalentes. Les équations sont rassemblées dans les tableaux suivants.

Formulation en utilisant les variables d'états  $\underline{\xi}^e, c$  et  $V_i$

$$\underline{\sigma} = \frac{\partial \Psi}{\partial \underline{\xi}^e} = \underline{\mathbb{C}}(c) : \underline{\xi}^e$$

$$\mu = \frac{\partial \Psi}{\partial c} - \underline{\sigma} : \underline{\eta} = A(c-a) + \frac{1}{2} \underline{\xi}^e : \frac{\partial \underline{\mathbb{C}}(c)}{\partial c} : \underline{\xi}^e + \frac{1}{2} \frac{\partial b(c)}{\partial c} Q(c) p^2 + \frac{1}{2} b(c) \frac{\partial Q(c)}{\partial c} p^2 + \frac{1}{2} \frac{\partial H(c)}{\partial c} p^2 - \underline{\sigma} : \underline{\eta}$$

$$\underline{J} = -D_{eff} \nabla c - \frac{D_{eff}}{A} \left( -\underline{\eta} : \frac{\partial \underline{\mathbb{C}}(c)}{\partial c} : \underline{\xi}^e + \frac{1}{2} \underline{\xi}^e : \frac{\partial^2 \underline{\mathbb{C}}(c)}{\partial c^2} : \underline{\xi}^e + \frac{1}{2} \left( \frac{\partial^2 b(c)}{\partial c^2} Q(c) + 2 \frac{\partial b(c)}{\partial c} \frac{\partial Q(c)}{\partial c} + b(c) \frac{\partial^2 Q(c)}{\partial c^2} + \frac{\partial^2 H(c)}{\partial c^2} \right) p^2 \right) \nabla c - \frac{D_{eff}}{A} \left( \underline{\xi}^e : \frac{\partial \underline{\mathbb{C}}(c)}{\partial c} - \underline{\eta} : \underline{\mathbb{C}}(c) \right) : \nabla \underline{\xi}^e - \frac{D_{eff}}{A} \left( \frac{\partial b(c)}{\partial c} Q(c) + b(c) \frac{\partial Q(c)}{\partial c} + \frac{\partial H(c)}{\partial c} \right) p \nabla p$$

Table 1.1: Équations des contraintes, de potentiel du diffusion et du flux pour la formulation en utilisant les variables d'états  $\underline{\xi}^e, c$  et  $V_i$ .

Formulation en utilisant les variables d'états  $\underline{\xi}, \underline{\xi}^{vp}, c$  et  $V_i$

$$\underline{\sigma} = \frac{\partial \Psi}{\partial \underline{\xi}^e} = \frac{\partial \Psi}{\partial \underline{\xi}} = \underline{\mathbb{C}}(c) : (\underline{\xi} - \underline{\xi}^{vp} - \underline{\xi}^*(c))$$

$$\mu = \frac{\partial \Psi}{\partial c} = A(c-a) + \frac{1}{2} (\underline{\xi} - \underline{\xi}^{vp} - \underline{\xi}^*) : \frac{\partial \underline{\mathbb{C}}(c)}{\partial c} : (\underline{\xi} - \underline{\xi}^{vp} - \underline{\xi}^*) + \frac{1}{2} \frac{\partial b(c)}{\partial c} Q(c) p^2 + \frac{1}{2} b(c) \frac{\partial Q(c)}{\partial c} p^2 + \frac{1}{2} \frac{\partial H(c)}{\partial c} p^2 - \underline{\sigma} : \underline{\eta}$$

$$\underline{J} = -D_{eff} \nabla c - \frac{D_{eff}}{A} \left( \underline{\eta} : \underline{\mathbb{C}}(c) : \underline{\eta} - 2 \underline{\eta} : \frac{\partial \underline{\mathbb{C}}(c)}{\partial c} : (\underline{\xi} - \underline{\xi}^{vp} - \underline{\xi}^*(c)) + \frac{1}{2} (\underline{\xi} - \underline{\xi}^{vp} - \underline{\xi}^*(c)) : \frac{\partial^2 \underline{\mathbb{C}}(c)}{\partial c^2} : (\underline{\xi} - \underline{\xi}^{vp} - \underline{\xi}^*(c)) \right) \nabla c - \frac{D_{eff}}{2A} \left( \frac{\partial^2 b(c)}{\partial c^2} Q(c) + 2 \frac{\partial b(c)}{\partial c} \frac{\partial Q(c)}{\partial c} + b(c) \frac{\partial^2 Q(c)}{\partial c^2} + \frac{\partial^2 H(c)}{\partial c^2} \right) p^2 \nabla c - \frac{D_{eff}}{A} \left( \frac{\partial b(c)}{\partial c} Q(c) + b(c) \frac{\partial Q(c)}{\partial c} + \frac{\partial H(c)}{\partial c} \right) p \nabla p - \frac{D_{eff}}{A} \left( (\underline{\xi} - \underline{\xi}^{vp} - \underline{\xi}^*(c)) : \frac{\partial \underline{\mathbb{C}}(c)}{\partial c} - \underline{\eta} : \underline{\mathbb{C}}(c) \right) : \nabla \underline{\xi} + \frac{D_{eff}}{A} \left( (\underline{\xi} - \underline{\xi}^{vp} - \underline{\xi}^*(c)) : \frac{\partial \underline{\mathbb{C}}(c)}{\partial c} - \underline{\eta} : \underline{\mathbb{C}}(c) \right) : \nabla \underline{\xi}^{vp}$$

Table 1.2: Équations des contraintes, de potentiel du diffusion et du flux pour la formulation en utilisant les variables d'états  $\underline{\xi}, \underline{\xi}^{vp}, c$  et  $V_i$ .

### c Équations d'équilibre

#### • Conservation de la matière

Les espèces qui diffusent peuvent être des atomes, des solutés ou des lacunes. Leurs concentrations obéissent à l'équation de conservation de la masse qui permet de relier la concentration  $c$  à son vecteur de flux  $\underline{J}$  :

$$\begin{aligned} \dot{c} &= -\text{div}(\underline{J}) \text{ dans le volume } V \\ \underline{J} \cdot \underline{n} &= j_0 \text{ sur les bords } \partial V \end{aligned} \quad (1.112)$$

où  $\underline{n}$  est la normale au bord  $\partial V$  et  $j_0$  est le flux agissant sur  $\partial V$ .

#### • L'équilibre mécanique

En l'absence des forces de volume, l'équilibre mécanique statique est défini par :

$$\begin{aligned} \text{div}(\underline{\sigma}) &= 0 \text{ dans le volume } V \\ \underline{\sigma} \cdot \underline{n} &= \underline{t}_0 \text{ sur le bord } \partial V \end{aligned} \quad (1.113)$$

avec  $\underline{t}_0$  le vecteur de contrainte agissant sur  $\partial V$ .

### 1.3.3 Implémentation numérique

La partie problématique dans l'implémentation de la formulation thermodynamique est le terme  $\nabla(\underline{\sigma} : \underline{\eta})$  présent dans l'expression de flux chimique (cf. équation 1.93). Deux approches sont possibles afin d'implémenter  $\nabla(\underline{\sigma} : \underline{\eta})$ . La première possibilité consiste à décomposer ce terme en deux parties proportionnelles à  $\nabla c$  et  $\nabla \underline{\varepsilon}^e$  (cf. équation 1.94). Par la suite, il faut calculer  $\nabla \underline{\varepsilon}^e$  en post-traitement à la fin de chaque incrément. La deuxième possibilité consiste à ajouter deux degrés de liberté supplémentaires à savoir la pression hydrostatique  $h = \frac{1}{3} \text{tr}(\underline{\sigma})$  et le changement de volume  $g = \text{tr}(\underline{\varepsilon})$ . L'implémentation de ces deux approches va être détaillée dans les parties suivantes.

#### a Formulation standard ou simplifiée

La formulation faible de l'équation de la diffusion est obtenue en multipliant l'équation de diffusion par un champ arbitraire virtuel  $c^*$  et en intégrant par parties sur un élément arbitraire et en tenant compte des conditions aux limites :

$$\int_V (\dot{c}c^* - \underline{J} \cdot \nabla c^*) dv + \int_{\partial V} c^* \underline{J} \cdot \underline{n} ds = 0 \quad (1.114)$$

En utilisant la même démarche, on déduit la formulation faible de l'équilibre mécanique statique :

$$\int_V \left( -\underline{\sigma} : \underline{\varepsilon}(\underline{v}) + \underline{f} \cdot \underline{u} \right) dv + \int_{\partial V} \underline{t} \cdot \underline{v} ds = 0 \quad (1.115)$$

Afin d'obtenir une solution éléments finis, le domaine spatial est divisé en  $N$  éléments. Les degrés de liberté sont les valeurs aux nœuds de la concentration  $c$  et du déplacement  $\underline{u}$ . Les champs  $c$  et  $\underline{u}$  sont approximés dans chaque élément et à chaque temps  $t$  en termes de valeurs nodales à l'aide des fonctions d'interpolation :

$$c(\underline{x}, t) = \sum_{i=1}^n N_i^e(\underline{x}) c_i(t) \quad u_i(\underline{x}, t) = \sum_{j=1}^n N_{ij}^e(\underline{x}) u_j(t) \quad (1.116)$$

$$c^*(\underline{x}, t) = \sum_{i=1}^n N_i^e(\underline{x}) c_i^*(t) \quad u_i^*(\underline{x}, t) = \sum_{j=1}^n N_{ij}^e(\underline{x}) u_j^*(t) \quad (1.117)$$

$$(1.118)$$

où  $n$  est le nombre de nœuds dans l'élément  $e$  et  $N_i$  sont les fonctions de forme.

$N_i$  et  $N_{ij}$  sont respectivement le vecteur et la matrice de fonction des formes qui sont exprimés comme suit :

$$\{N(\underline{x})\} = \{N_1(\underline{x}), N_2(\underline{x}), \dots, N_n(\underline{x})\} \quad (1.119)$$

$$[N(\underline{x})] = \begin{bmatrix} N_1^e & 0 & N_2^e & 0 & \dots & N_n^e & 0 \\ 0 & N_1^e & 0 & N_2^e & \dots & 0 & N_n^e \end{bmatrix} \quad (1.120)$$

$$\nabla c(\underline{x}, t) = \sum_{i=1}^n B_i^e(\underline{x}) c_i(t) \quad \nabla u_i(\underline{x}, t) = \sum_{j=1}^n \tilde{B}_{ij}^e(\underline{x}) u_j(t) \quad (1.121)$$

Les matrices  $[B^e(\underline{x})]$  et  $[\tilde{B}^e(\underline{x})]$  désignent les dérivées des fonctions de forme qui ont la forme suivante dans le cas 2D :

$$[B^e(\underline{x})] = \begin{bmatrix} \frac{\partial N_1^e}{\partial x} & \frac{\partial N_2^e}{\partial x} & \dots & \frac{\partial N_n^e}{\partial x} \\ \frac{\partial N_1^e}{\partial y} & \frac{\partial N_2^e}{\partial y} & \dots & \frac{\partial N_n^e}{\partial y} \end{bmatrix} \quad (1.122)$$

$$[\tilde{B}^e(\underline{x})] = \begin{bmatrix} \frac{\partial N_1^e}{\partial x} & 0 & \frac{\partial N_2^e}{\partial x} & 0 & \dots & \frac{\partial N_n^e}{\partial x} & 0 \\ 0 & \frac{\partial N_1^e}{\partial y} & 0 & \frac{\partial N_2^e}{\partial y} & \dots & 0 & \frac{\partial N_n^e}{\partial y} \\ \frac{\partial N_1^e}{\partial y} & \frac{\partial N_1^e}{\partial x} & \frac{\partial N_2^e}{\partial y} & \frac{\partial N_2^e}{\partial x} & \dots & \frac{\partial N_n^e}{\partial y} & \frac{\partial N_n^e}{\partial x} \end{bmatrix} \quad (1.123)$$

La discrétisation temporelle est faite en utilisant la méthode d'Euler implicite.

$$\dot{c}(t + \delta t) = \frac{c(t + \delta t) - c(t)}{\delta t} \quad c(0) = c_0 \quad (1.124)$$

où  $\delta t$  est l'incrément du temps et  $c_0$  la condition initial de concentration.

Après la discrétisation des équations de formulations faibles de concentration et de l'équilibre mécanique statique, on déduit le résidu pour un élément :

$$R^e(u, c) = \begin{Bmatrix} R_u^e \\ R_c^e \end{Bmatrix} \quad (1.125)$$

où  $R_u^e$  et  $R_c^e$  sont respectivement le résidu pour l'équilibre mécanique statique et pour la concentration définis comme suit :

$$\begin{aligned}\{R_u\} &= \int_V \left( -\{\tilde{\sigma}\}^T [B] + [N] \{f\} \right) dv + \int_{\partial V} [N] \{t\} ds = 0 \\ \{R_c\} &= \int_V \left( \{N\} \{N\}^T \{\tilde{c}\} - [B]^T \{j\} \right) dv + \int_{\partial V} [N] \{j\} ds = 0\end{aligned}$$

La méthode de Newton-Raphson est utilisée pour résoudre le système d'équations non-linéaires de manière itérative. Il est nécessaire de calculer la matrice tangente obtenue en dérivant le vecteur résidu par rapport aux degrés de libertés ( $\underline{u}$  et  $c$ ).

$$[K] = \begin{bmatrix} [K_{uu}] & [K_{uc}] \\ [K_{cu}] & [K_{cc}] \end{bmatrix}$$

$$\begin{aligned}(K_{uu})_{ij} &= \frac{\partial (R_u)_i}{\partial u_j^e} = \int_V -[B]_{ik} \left[ \frac{\partial \tilde{\sigma}}{\partial u_j^e} \right] dv = \int_V -[B]_{ik} \left[ \frac{\partial^2 \Psi}{\partial \tilde{\varepsilon} \partial \tilde{\varepsilon}} \right]_{km} [B]_{mj} dv \\ (K_{uc})_{ij} &= \frac{\partial (R_u)_i}{\partial c_j^e} = \int_V -[B]_{ik} \left[ \frac{\partial \tilde{\sigma}}{\partial c_j^e} \right] dv = \int_V -[B]_{ik} \left[ \frac{\partial^2 \Psi}{\partial c \partial \tilde{\varepsilon}} \right]_k N_j dv \\ (K_{cu})_{ij} &= \frac{\partial (R_c)_i}{\partial u_j^e} = \int_V -[B]_{ik} \left[ \frac{\partial J_k}{\partial u_j^e} \right] dv = 0 \\ (K_{cc})_{ij} &= \frac{\partial (R_c)_i}{\partial c_j^e} = \int_V \left( \frac{1}{\Delta t} N_i \otimes N_j - [B]_{ik} \left[ \frac{\partial J_k}{\partial c} \right] N_j - [B]_{ik} \left[ \frac{\partial J}{\partial \nabla c} \right] [B]_{kj} \right) dv \\ &= \int_V \left( \frac{1}{\Delta t} N_i \otimes N_j - [B]_{ik} \left[ -\frac{\partial L}{\partial c} \frac{\partial u}{\partial x_k} - L \frac{\partial^3 \Psi}{\partial c^3} \frac{\partial c}{\partial x_k} \right] N_j - [B]_{ik} \left[ -L \frac{\partial^2 \Psi}{\partial \nabla c} \right] [B]_{kj} \right) dv\end{aligned}$$

## b Formulation en utilisant l'élément mixte

Dans cette section, on traite séparément la partie sphérique et la partie déviatorique du tenseur de déformation :

$$\tilde{\varepsilon} = \tilde{\varepsilon}^D(\underline{u}) + \frac{g}{3} \tilde{1} \quad (1.126)$$

$$\tilde{\varepsilon}^D(\underline{u}) = \tilde{\varepsilon} - \frac{tr(\tilde{\varepsilon})}{3} \tilde{1} \quad (1.127)$$

$$g = tr(\tilde{\varepsilon}) \quad (1.128)$$

Le problème précédent se ramène à la résolution d'un problème à deux variables  $\underline{u}$  et  $g$  sous la contrainte  $g = tr(\tilde{\varepsilon})$ . Il peut être ramené à la résolution d'un problème sous contrainte en introduisant un multiplicateur de Lagrange qui est la pression  $h$ .

Le problème dévient : trouver  $\underline{u}$ ,  $h$ ,  $g$  et  $c$  solutions du problème pour le lagrangien :

$$L(\underline{u}, h, g, c) = \int_{\Omega} \left[ \tilde{\sigma} : \left( \tilde{\varepsilon}^D(\underline{u}) + \frac{g}{3} \tilde{1} \right) + h (div(\underline{u}) - g) + c (\dot{c} + div(J)) \right] d\Omega - \int_{\partial\Omega} \underline{f} \cdot \underline{u} ds - \int_{\partial\Omega'} \underline{t} \cdot \underline{u} ds - \int_{\partial\Omega} \underline{c} \cdot \underline{J} \cdot \underline{n} ds \quad (1.129)$$

Ce problème est résolu en écrivant les conditions d'optimalité :

$$\frac{\partial L}{\partial u} = \int_{\Omega} [(\underline{\sigma}^D + h\mathbf{1}) : \underline{\delta \varepsilon}] d\Omega - \int_{\partial\Omega} \underline{f} \cdot \underline{\delta u} ds - \int_{\partial\Omega'} \underline{t} \cdot \underline{\delta u} ds = 0 \quad (1.130)$$

$$\frac{\partial L}{\partial h} = \int_{\partial\Omega} (\text{div}(\underline{u}) - g) \delta h d\Omega = 0 \quad (1.131)$$

$$\frac{\partial L}{\partial g} = \int_{\partial\Omega} \left( \frac{1}{3} \text{tr}(\underline{\sigma}) - h \right) \delta g d\Omega = 0 \quad (1.132)$$

$$\frac{\partial L}{\partial c} = \int_{\partial\Omega} (\dot{c} + \text{div}(\underline{J})) \delta c d\Omega - \int_{\partial\Omega} \delta c \underline{J} \cdot \underline{n} ds = 0 \quad (1.133)$$

En utilisant l'équation (1.93), le flux s'écrit sous la forme suivante :

$$\begin{aligned} \underline{J} &= -\underline{L}(c)\nabla\mu \\ &= -D_{eff}\nabla c \\ &= -\frac{D_{eff}}{A} \left( \frac{1}{2} \underline{\varepsilon}^e : \frac{\partial^2 \underline{C}(c)}{\partial c^2} : \underline{\varepsilon}^e + \frac{1}{2} \left( \frac{\partial^2 b(c)}{\partial c^2} Q(c) + 2 \frac{\partial b(c)}{\partial c} \frac{\partial Q(c)}{\partial c} + b(c) \frac{\partial^2 Q(c)}{\partial c^2} \right) p^2 \right) \nabla c \\ &= -\frac{D_{eff}}{A} \left( \underline{\varepsilon}^e : \frac{\partial \underline{C}(c)}{\partial c} \right) : \nabla \underline{\varepsilon}^e - \frac{D_{eff}}{A} \left( \frac{\partial b(c)}{\partial c} Q(c) + b(c) \frac{\partial Q(c)}{\partial c} + \frac{\partial H(c)}{\partial c} \right) p \nabla p + \frac{D_{eff}}{A} \nabla(\underline{\sigma} : \underline{\eta}) \end{aligned}$$

$$\text{or } \underline{\sigma} = h\mathbf{1} + \underline{\sigma}^D \quad \text{et} \quad \underline{\eta} = \eta\mathbf{1} \quad \Rightarrow \nabla(\underline{\sigma} : \underline{\eta}) = 3\eta \nabla h \quad \text{pour le cas isotrope} \quad (1.134)$$

$$\Rightarrow \begin{aligned} \underline{J} &= -\underline{L}(c)\nabla\mu \\ &= -D_{eff}\nabla c \\ &= -\frac{D_{eff}}{A} \left( \frac{1}{2} \underline{\varepsilon}^e : \frac{\partial^2 \underline{C}(c)}{\partial c^2} : \underline{\varepsilon}^e + \frac{1}{2} \left( \frac{\partial^2 b(c)}{\partial c^2} Q(c) + 2 \frac{\partial b(c)}{\partial c} \frac{\partial Q(c)}{\partial c} + b(c) \frac{\partial^2 Q(c)}{\partial c^2} \right) p^2 \right) \nabla c \\ &= -\frac{D_{eff}}{A} \left( \underline{\varepsilon}^e : \frac{\partial \underline{C}(c)}{\partial c} \right) : \nabla \underline{\varepsilon}^e - \frac{D_{eff}}{A} \left( \frac{\partial b(c)}{\partial c} Q(c) + b(c) \frac{\partial Q(c)}{\partial c} + \frac{\partial H(c)}{\partial c} \right) p \nabla p + \frac{3\eta D_{eff}}{A} \nabla h \end{aligned} \quad (1.135)$$

- dépendance du coefficient de diffusion à la plasticité
- dépendance du tenseur d'élasticité à la concentration
- dépendance de l'écroutissage à la concentration

Dans cette formulation, cinq degrés de liberté (ddl) sont considérés : le déplacement dans la plan  $\underline{u} = (u_1, u_2)$ , le changement de volume  $g$ , la pression  $h$  et la concentration  $c$ . Les fonctions de forme  $N^u$ ,  $N^g$ ,  $N^h$  et  $N^c$  sont définies telles que :

$$\underline{u} = N^u u^e \quad g = N^g g^e \quad h = N^h h^e \quad c = N^c c^e$$

$B$  est la matrice permettant de passer de  $\underline{u}^e$  à  $\underline{\varepsilon}$  :

$$\underline{\varepsilon} = B \underline{u}^e \quad (1.136)$$



Dans la formulation, on distingue  $e_{dev} = \underline{\underline{\varepsilon}}^D$  et  $e_{dil} = \frac{tr(\underline{\underline{\varepsilon}})}{3}$ , ce qui nous ramène à définir les opérateurs  $B_{dev}$  et  $B_{dil}$  tels que :

$$\underline{\underline{\varepsilon}}^D = B_{dev} \underline{U}^e \quad \frac{tr(\underline{\underline{\varepsilon}})}{3} = B_{dil} \underline{U}^e \quad (1.137)$$

$G$  est la matrice qui permet de passer de  $h^e$  à  $\nabla h$  et de  $c^e$  à  $\nabla c$  :

$$\nabla h = G_h h^e \quad \nabla c = G_c c^e \quad (1.138)$$

Le résidu est donné par les équations suivantes :

$$\{R_u\} = \int_{\Omega} B^T (\underline{\underline{\sigma}}^D + p \underline{1}) d\Omega = F_{u_{ext}} \quad (1.139)$$

$$\{R_g\} = \int_{\Omega} (N^p)^T \left( \frac{1}{3} tr(\underline{\underline{\sigma}}) - h \right) d\Omega = 0 \quad (1.140)$$

$$\{R_h\} = \int_{\Omega} (N^g)^T (B_{dil} u - g) d\Omega = 0 \quad (1.141)$$

$$\{R_c\} = \int_{\Omega} ((N^c)^T N^c \dot{c} - G_c^T j) d\Omega = F_{c_{ext}} \quad (1.142)$$

La matrice tangente s'écrit sous la forme :

$$[K] = \begin{bmatrix} [K_{uu}] & [K_{ug}] & [K_{uh}] & [K_{uc}] \\ [K_{gu}] & [K_{gg}] & [K_{gh}] & [K_{gc}] \\ [K_{hu}] & [K_{hg}] & [K_{hh}] & [K_{hc}] \\ [K_{cu}] & [K_{cg}] & [K_{ch}] & [K_{cc}] \end{bmatrix}$$

Les composantes de la matrice tangente sont données dans l'annexe A.

### 1.3.4 Applications numériques

Dans cette partie, la diffusion des lacunes couplée avec l'élasticité est simulée en utilisant deux approches numériques pour simuler le couplage diffusion-mécanique. La première méthode utilise le couplage direct au point de Gauss pour calculer le terme en  $\nabla(\underline{\underline{\sigma}} : \underline{\underline{\eta}})$ , alors que la deuxième approche utilise un élément mixte en ajoutant deux nouveaux degrés de libertés  $h = \frac{1}{3} tr(\underline{\underline{\sigma}})$  et  $g = tr(\underline{\underline{\varepsilon}})$ . La comparaison de ces deux approches est faite en utilisant les exemples de l'article de [Villani et al., 2014].

L'énergie chimique de diffusion des lacunes dans le Nickel est donnée par [Villani et al., 2014]:

$$\Psi(c) = \frac{E_f c}{V_a} + \frac{RT}{V_a} [c \ln(c) + (1-c) \ln(1-c)] \quad (1.143)$$

où  $E_f$  l'enthalpie de formation d'une mole de Nickel,  $T$  la température en K et  $R$  la constante des gaz parfaits.

La déformation libre  $\underline{\underline{\varepsilon}}^*$  représentant le changement de volume associé à la substitution des atomes de Nickel par des lacunes dans certains sites des mailles est exprimée par :

$$\underline{\underline{\varepsilon}}^*(c) = (c - c_{ref}) \underline{\underline{\eta}} + \underline{\underline{\varepsilon}}_{ref}^* \quad (1.144)$$

où  $\underline{\underline{\varepsilon}}_{ref}^*$  est la déformation libre pour la concentration de référence  $c_{ref}$ ,  $\underline{\underline{\eta}} = \frac{\partial \underline{\underline{\varepsilon}}}{\partial c}$

Le potentiel chimique est donné par :

$$\mu = \frac{\partial \Psi}{\partial c} - \underline{\underline{\sigma}} : \underline{\underline{\eta}} = \frac{RT}{V_a} \left[ \ln \left( \frac{c}{1-c} \right) + \frac{E_f}{RT} \right] - \underline{\underline{\sigma}} : \underline{\underline{\eta}} \quad (1.145)$$

Le gradient du potentiel chimique :

$$\nabla \mu = \frac{RT}{V_a} \frac{1}{c(1-c)} \nabla c - \nabla (\underline{\underline{\sigma}} : \underline{\underline{\eta}}) \quad (1.146)$$

Le flux s'en déduit :

$$\underline{J} = -D \nabla c + \frac{1}{3} \frac{D 3 \eta V_a}{RT} c(1-c) \nabla (\text{tr}(\underline{\underline{\sigma}})) \quad (1.147)$$

Dans le cas de formulation utilisant les variables d'états  $\underline{\underline{\xi}}$  et  $c$  couplée avec l'élasticité, le flux est donné par :

$$\underline{J} = - \left( D + \frac{D V_a}{RT} c(1-c) \eta^2 (\underline{\underline{1}} : \underline{\underline{C}} : \underline{\underline{1}}) \right) \nabla c + \frac{D V_a}{RT} c(1-c) \eta (\underline{\underline{C}} : \underline{\underline{1}}) : \nabla \underline{\underline{\xi}} \quad (1.148)$$

Dans le cas de formulation mixte de diffusion couplée avec l'élasticité, le flux est donné par :

$$\underline{J} = -D \nabla c + 3 \frac{D V_a \eta}{RT} c(1-c) \nabla h \quad (1.149)$$

où  $h = \frac{\text{tr}(\underline{\underline{\sigma}})}{3}$

### a Application 1 : Diffusion des lacunes dans un disque tournant

Dans cet exemple, la diffusion des lacunes dans un disque tournant à une vitesse de rotation angulaire  $\omega$  est simulée. La concentration des lacunes  $c_0$  est initialement homogène (cf figure 1.13). Les valeurs de différents paramètres utilisés sont données dans le tableau 1.3. Uniquement le couplage avec l'élasticité est pris en compte et un flux nul est appliqué aux bords.

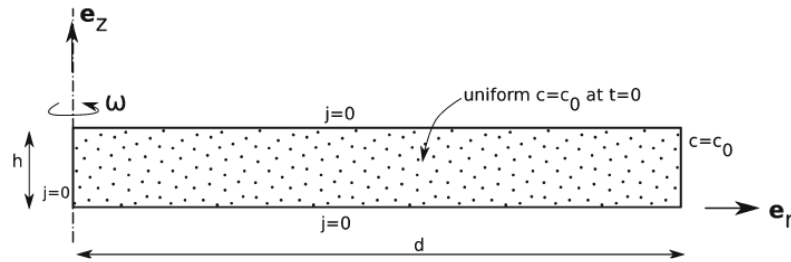


Figure 1.13: Définition de problème de disque tournant : géométrie, condition aux limites et chargements appliquées [Villani et al., 2014]

| d [mm] | $\omega$ [rad.s <sup>-1</sup> ] | $c_0$ [-] | T [K] | $V_a$ [mm <sup>3</sup> mol <sup>-1</sup> ] | $\eta$ [-] | E [GPa] | $\nu$ [-] |
|--------|---------------------------------|-----------|-------|--|------------|---------|-----------|
| 400    | $2.09 \times 10^3$              | $10^{-4}$ | 900   | $5.82 \times 10^{-12}$                     | -0.05      | 200     | 0.34      |

Table 1.3: Valeurs des paramètres utilisés

Les résultats des simulations obtenues analytiquement, en utilisant la formulation standard et avec l'élément mixte sont données par la figure 1.14. On trouve les mêmes résultats pour les différentes approches : une erreur relative de  $2.10^{-6}$  est calculée pour la concentration et une erreur relative de  $4.10^{-5}$  pour la pression hydrostatique.

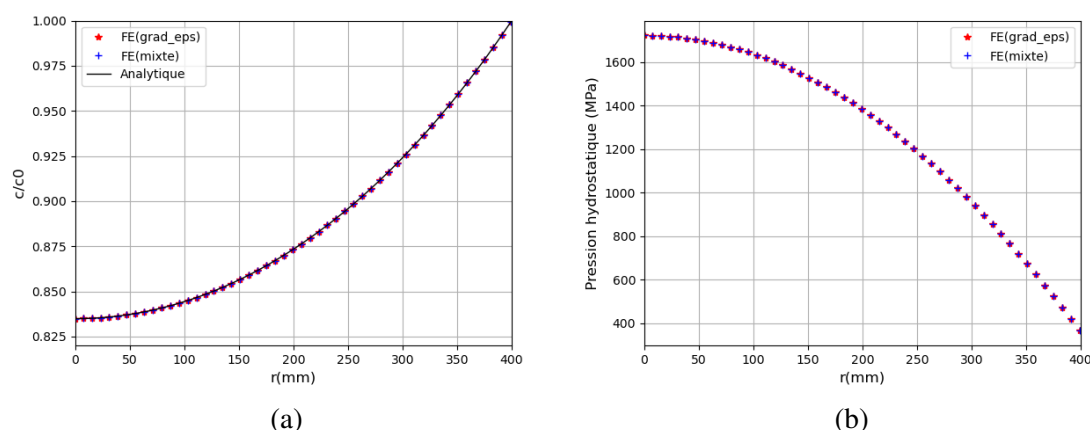


Figure 1.14: Comparaison des résultats entre les trois approches (analytique, formulation standard et avec l'élément mixte) : (a) concentration des lacunes (b) pression hydrostatique  $h = \frac{1}{3}\text{tr}(\sigma)$

## b Application 2 : Diffusion des lacunes autour d'une dislocation coin

Considérant une dislocation coin avec un vecteur de Burgers  $b$  au point  $(x,y) = (0,0)$  dans un disque infini avec une concentration initiale homogène  $c = c_0$ . La dislocation est introduite dans le modèle par éléments finis en imposant une déformation libre de cisaillement dans une partie mince de disque d'épaisseur  $h$ . Un flux nul est appliqué au cœur de dislocation et une concentration constante  $c_0$  est appliquée sur la frontière extérieure du disque (cf figure 1.15). Les valeurs des paramètres utilisés sont données dans le tableau 1.4.

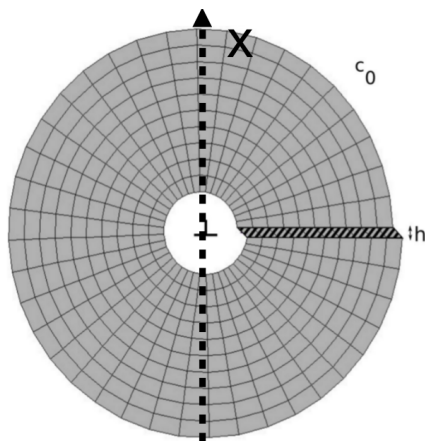


Figure 1.15: maillage utilisé pour simuler la diffusion des lacunes autour d'une dislocation coin [Villani et al., 2014].

| $h$ [nm] | $c_0$ [-] | $T$ [K] | $V_a$ [ $m^{-3}.mol^{-1}$ ] | $\eta$ [-] | $E$ [GPa] | $\nu$ [-] |
|----------|-----------|---------|-----------------------------|------------|-----------|-----------|
| 0.5      | $10^{-4}$ | 700     | $10^{-5}$                   | -0.05      | 70        | 0.34      |

Table 1.4: Les valeurs des différentes paramètres utilisées [Villani et al., 2014].

Les champs de concentration, de pression et la trace de la déformation sont tracés (cf. figures 1.16-a, 1.17-a et 1.18-a). Une comparaison des résultats numériques des deux approches, ainsi que la solution analytique sont données dans les figures 1.16-b, 1.17-b et 1.18-b. L'erreur est calculée par rapport à la solution analytique.

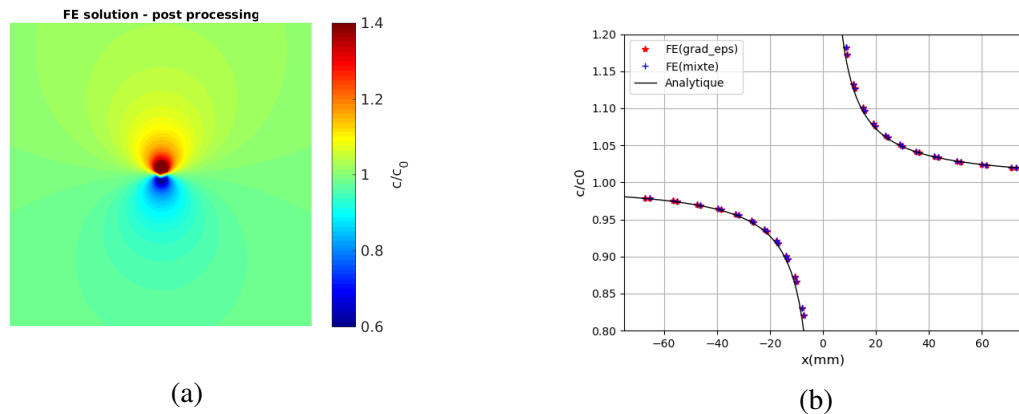


Figure 1.16: (a) Champs de concentration obtenu en utilisant le couplage direct au point de Gauss (b) Comparaison de concentration des calculs analytiques et numériques pour les deux approches sur la ligne verticale  $X$  (cf. figure 1.15) : erreur relative =  $10^{-2}$ .

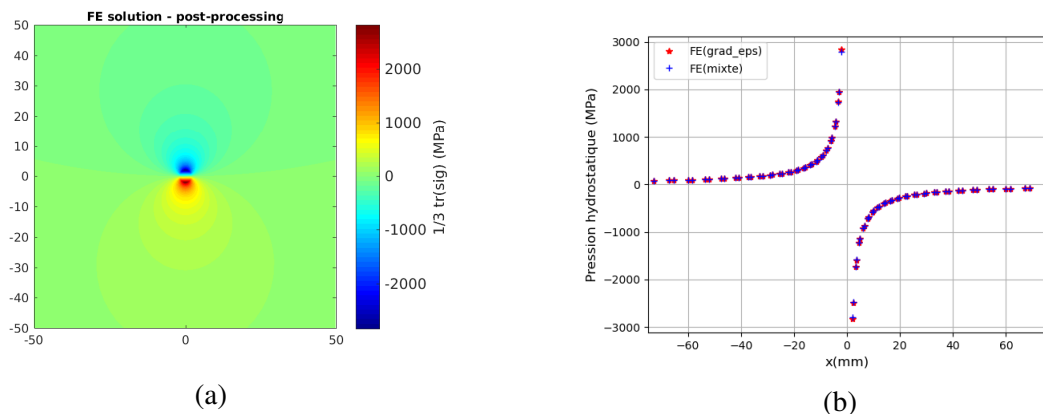


Figure 1.17: (a) Champs du pression hydrostatique obtenu en utilisant le couplage direct au point de Gauss (b) Comparaison du pression hydrostatique des calculs numériques pour les deux approches sur la ligne verticale  $X$  (cf. figure 1.15) : erreur relative =  $2.10^{-2}$  de calcul avec formulation standard par rapport à la formulation avec l'élément mixte.

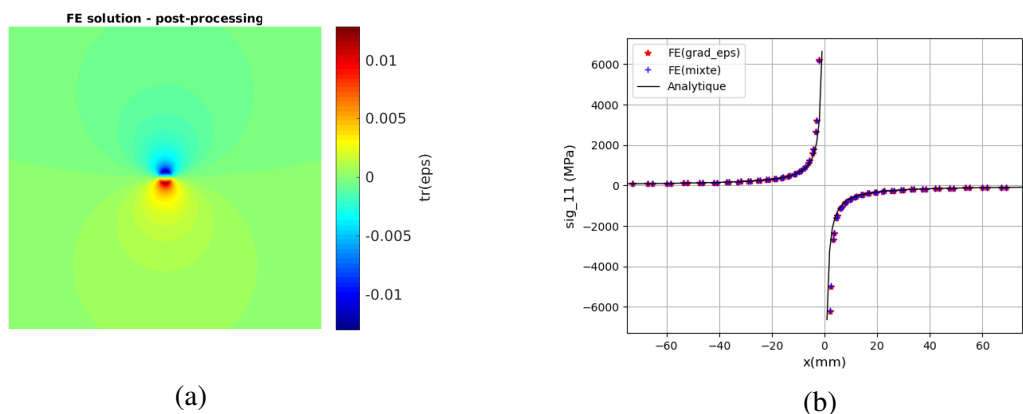


Figure 1.18: (a) Champs de la trace de la déformation obtenu en utilisant le couplage direct au point de Gauss (b) Comparaison de la contrainte des calculs analytiques et numériques pour les deux approches sur la ligne verticale  $X$  (cf. figure 1.15) : erreur relative =  $10^{-2}$ .

Un élément axisymétrique (cax8) a été utilisé pour l'exemple de disque tournant, tandis que pour le cas de dislocation un élément c2d8 en déformation plane a été utilisé. Une comparaison de performance des approches standard et élément mixte est donnée dans le tableau 1.5. On remarque que la méthode de couplage direct au point de Gauss est plus performante pour une erreur relative faible.

| exemple     | formulation standard  | formulation avec l'élément mixte  |
|-------------|---|---|
| Disque      | Nombre ddl = 3009<br>Nombre d'itérations = 77<br>Taille mémoire = 2 Mb<br>Nombre d'éléments = 200<br>Temps CPU = 5.88 s     | Nombre ddl = 5015<br>Nombre d'itérations = 628<br>Taille mémoire = 4 Mb<br>Nombre d'éléments = 200<br>Temps CPU = 43.39 s   |
| Dislocation | Nombre ddl = 44979<br>Nombre d'itérations = 46<br>Taille mémoire = 251 Mb<br>Nombre d'éléments = 5325<br>Temps CPU = 1161 s | Nombre ddl = 74965<br>Nombre d'itérations = 153<br>Taille mémoire = 417 Mb<br>Nombre d'éléments = 5325<br>Temps CPU = 6056s |

Table 1.5: Comparaison de performance des méthodes standard et élément mixte pour les deux cas d'applications.

## 1.4 Conclusion

Dans la première partie de ce chapitre, une modélisation de la diffusion multi-composants a été implémentée sous Zset en utilisant la base de données thermodynamique *ThermoCalc*. Une comparaison des profils de concentration des éléments chimiques considérés obtenus avec Zset et avec le module de diffusion de ThermoCalc *Dictra* permet de valider cette implémentation.

Dans la deuxième partie, la modélisation du couplage diffusion-mécanique a été traitée. En effet, deux formulations thermodynamiques avec différentes variables d'états ( $\underline{\xi}^e, c, V_i$ ) et ( $\underline{\xi}, \underline{\xi}^{vp}, c, V_i$ ) ont été comparées. Ces deux formulations sont équivalentes. Deux approches d'implémentation différentes ont été considérées. La première approche utilisant la formulation standard ou simplifiée consiste à calculer le gradient de déformation  $\nabla \underline{\xi}$  par post-traitement à partir des valeurs de déformation aux point de Gauss à la fin de chaque incrément du temps. La deuxième approche utilise la formulation avec l'élément mixte en ajoutant deux degrés de liberté supplémentaires ( $h = \frac{1}{3} tr(\underline{\sigma})$  et  $g = tr(\underline{\xi})$ ). Deux applications traitant la diffusion des lacunes dans un disque tournant et autour d'une dislocation coin dont leurs solutions analytiques sont connues permet la vérification des deux formulations. Une comparaison entre les deux approches a montré que l'approche avec la formulation standard est plus performante en temps de calcul et en nombre de degrés de liberté nécessaire que l'approche avec l'élément mixte.

# Chapter III

## Étude expérimentale et numérique de la diffusion couplée à la mécanique

---

### Contents

---

|       |   |    |
|-------|---|----|
| 2.1   | Introduction  | 42 |
| 2.2   | État de l'art   | 42 |
| 2.2.1 | Effet de la pression hydrostatique sur les coefficients de diffusion  | 42 |
| 2.2.2 | Effet de la déformation viscoplastique sur le coefficient de diffusion  | 42 |
| 2.3   | Méthodologie expérimentale  | 43 |
| 2.4   | Résultats et discussion   | 45 |
| 2.4.1 | État initial des matériaux  | 45 |
| 2.4.2 | Essais réalisés   | 47 |
| a     | Cas monophasé ( $\gamma$ ) Ni20Cr/Ni30Cr : compression interrompu + diffusion à haute température               | 47 |
| b     | Cas monophasé ( $\gamma$ ) Ni20Cr/Ni30Cr : fluage en compression à haute température                            | 50 |
| c     | Cas monophasé ( $\gamma$ ) Ni20Cr/Ni30Cr : compression interrompu + fluage en compression à haute température   | 52 |
| d     | Cas biphasé ( $\gamma/\gamma'$ ) Ni5Cr22Al/Ni12Cr16Al : compression interrompue + diffusion à haute température | 53 |
| 2.4.3 | Modèle de comportement mécanique utilisé  | 56 |
| 2.4.4 | Identification de comportement du couple Ni20Cr/Ni30Cr  | 57 |
| 2.4.5 | Identification des coefficients d'interdiffusion  | 58 |
| 2.5   | Modèle de couplage diffusion – mécanique  | 60 |
| 2.5.1 | Rappel des équations du modèle  | 60 |
| 2.5.2 | Validation de la diffusion sans couplage avec la mécanique  | 62 |
| 2.5.3 | Validation du couplage diffusion – mécanique :  | 63 |
| a     | Caractérisation des fonctions $b(c)$ et $Q(c)$  | 63 |
| b     | Simplification de l'expression du flux  | 63 |
| c     | Simulation des essais expérimentaux   | 63 |
| 2.6   | Discussion  | 64 |
| 2.7   | Conclusion  | 64 |

---

## 2.1 Introduction

L'état de contrainte peut influencer la diffusion des espèces chimiques dans un matériau. Cela peut être observé par exemple dans le cas où une pression hydrostatique est appliquée de l'ordre de plusieurs GPa ou en présence d'une déformation viscoplastique. Dans le 2<sup>me</sup> cas, l'effet peut être causé par la diffusion des lacunes ou par la montée de dislocations [Girifalco and Grimes, 1959]. En plus du flux de diffusion, d'autres flux causés par l'effet de contrainte peuvent avoir lieu. La force motrice de ces flux est le gradient de potentiel élastique. Cet effet a été observé par exemple dans le cas de la mise en radeaux dans les superalliages  $\gamma/\gamma'$  [Li and Chen, 1997].

Dans ce chapitre, l'effet de la contrainte sur la diffusion sera étudié expérimentalement et une tentative de simuler cet effet en utilisant le modèle décrit dans le premier chapitre sera donnée par la suite.

## 2.2 État de l'art

### 2.2.1 Effet de la pression hydrostatique sur les coefficients de diffusion

Mehrer a réalisé une revue sur la diffusion dans les solides sous pression [Mehrer, 2011]. Une baisse importante de la cinétique de la diffusion du système NiAl suite à l'application d'une pression hydrostatique de 5 GPa à  $T = 1200 - 1500^\circ\text{C}$  a été observée par Nakamura et al. [Nakamura et al., 2003]. En effet, le coefficient d'interdiffusion est divisé par 10. L'effet de la pression hydrostatique sur la diffusion est plus important que celui d'une contrainte uniaxiale. En effet, une hausse de l'énergie de migration des lacunes a été mise en évidence dans le cas d'une contrainte uniaxiale en compression de 1.5 GPa par [Jang et al., 2010]. Cependant, elle reste constante dans le cas de pression hydrostatique. Cette énergie représente un obstacle à franchir pour qu'une migration de lacunes ait lieu. [Jang et al., 2010] ont aussi montré que l'énergie de formation des lacunes s'intensifie dans le cas de la pression hydrostatique comme dans le cas de la contrainte uniaxiale.

### 2.2.2 Effet de la déformation viscoplastique sur le coefficient de diffusion

La plupart des études sur l'effet de la déformation ou de la contrainte sur la diffusion s'intéressent à l'effet de la pression hydrostatique de l'ordre de plusieurs GPa. Les contraintes en service vues par des pièces de structure sont moins importantes. Peu d'études sont réalisées sur l'effet de la déformation viscoplastique ou sur d'autres états de chargement que la pression hydrostatique.

Girifalco et Grimes [Girifalco and Grimes, 1959] ont écrit une revue sur la théorie de la diffusion dans des systèmes déformés. Selon eux, l'effet de la viscoplasticité sur la diffusivité des espèces chimiques se manifeste par deux mécanismes qui peuvent avoir lieu :

- mécanisme  $n^\circ 1$ , dans le cas où la diffusion est pilotée par la montée des dislocations.
- mécanisme  $n^\circ 2$ , dans le cas où la diffusion des lacunes domine.

Le coefficient de diffusion dépend linéairement de la vitesse de déformation en régime stationnaire.

$$\frac{D_d}{D_{nd}} = 1 + \frac{K_1 \dot{\epsilon}}{K_2 C_v^{nd}} \quad (2.1)$$

avec  $D_d$  est le coefficient de diffusion dans l'état déformé

$D_{nd}$  est le coefficient de diffusion dans l'état non-déformé

$K_1$  est lié à la formation de lacunes causée par la déformation viscoplastique

$K_2$  est lié à la formation de lacunes par d'autres sources ou puits

$C_v^{nd}$  est la concentration de lacunes dans l'état non-déformé

$\dot{\epsilon}$  est la vitesse de déformation

Buffington et Cohen ont vérifié expérimentalement cette relation linéaire en étudiant l'autodiffusion dans le fer BCC [Buffington and Cohen, 1952] où  $\dot{\epsilon}$  est exprimée en  $h^{-1}$

$$\frac{D_d}{D_{nd}} = 1 + 50\dot{\epsilon} \quad (2.2)$$

Nguejio [Nguimatsia, 2016] a étudié l'effet d'un essai de fluage sur la diffusion d'un traceur du Cr dans le Ni pur avec  $\sigma = [50 - 75] MPa$  et différentes valeurs de vitesse de déformation  $\dot{\epsilon} = 1.4 \times 10^{-3} - 1.19 \times 10^{-2} h^{-1}$  à haute température  $T = 500^\circ C$ . Une hausse d'un facteur 10 de diffusivité du traceur a été constatée. Trois hypothèses ont été données par Nguejio afin d'expliquer cette hausse:

- mobilité importante des dislocations,
- "pipe diffusion": diffusion plus rapide au cœur des dislocations,
- fluage qui crée de nouvelles lacunes.

## 2.3 Méthodologie expérimentale

Cette partie expérimentale a été réalisée en collaboration avec Thomas Gheno de l'ONERA dans le cadre de la thèse de Camille Salsi. La matière, le protocole expérimental pour préparer les couple de diffusion sont faits à l'ONERA par l'intermédiaire de Thomas Gheno et Camille Salsi tandis que les traitements thermiques de diffusion, l'usinage de éprouvettes, les essais mécaniques, les observations au MEB et les mesures de profils de concentration sont réalisés au Centre des Matériaux.

Les couples de diffusion ont été préparés à partir d'alliages monphasés de compositions nominales (at. %) : Ni20Cr (phase  $\gamma$ ), Ni30Cr (phase  $\gamma$ ), Ni5Cr22Al (phase  $\gamma'$ ) et d'alliages biphasés Ni12Cr16Al (phase  $\gamma+\gamma'$ ) (cf. figure 2.1). Les lingots ont été produits par fusion par induction sous vide (VIM), homogénéisés à  $1250^\circ C$  pendant 24 h sous vide, puis découpés en échantillons de  $40 \times 20 \times 8 \text{ mm}^3$ . Afin de ne considérer que la diffusion en volume, et non la diffusion aux joints de grains, le temps et la température du traitement d'homogénéisation ont été choisis pour obtenir des alliages à taille de grain millimétrique. Pour former un couple de diffusion (Ni20Cr/Ni30Cr ou bien Ni5Cr22Al/Ni12Cr16Al), une face  $40 \times 8$  de chaque alliage à assembler a été polie avec du papier SiC jusqu'à un grade P4000. Des particules de  $Gd_2Zr_2O_7$  de diamètre moyen  $1 \mu m$  ont été déposées sur un alliage, pour servir de marqueurs inertes.

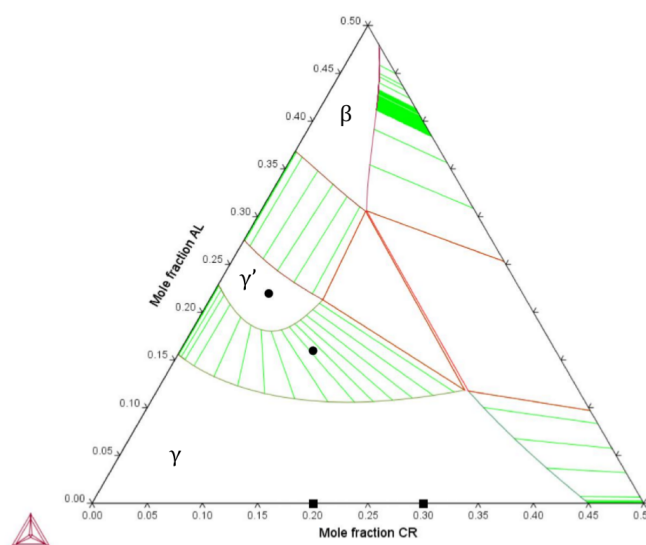


Figure 2.1: Diagramme de phase pour le système Ni-Cr-Al à  $T=1273.15K$  fourni par Thomas GHENO



Les alliages ont ensuite été placés entre deux plaques de superalliage à base de Ni (UDIMET 720) maintenues ensemble par des vis et des écrous en molybdène (cf. figure 2.2), et l'ensemble a été traité thermiquement 1 h à 1050°C sous vide. Les alliages à assembler ont un coefficient de dilatation thermique beaucoup plus élevé que les vis en molybdène. La contrainte résultant de cette différence, de l'ordre de 50 MPa dans les conditions qui nous intéressent, provoque l'adhésion des alliages. De plus, les conditions du traitement d'assemblage ont été choisies pour que la distance de diffusion (due à l'assemblage) soit négligeable par rapport à la distance de diffusion de l'essai. Après l'assemblage de deux plaques de chaque matériau, quatre éprouvettes ont été usinées à partir de chaque couple (cf. figure 2.3).

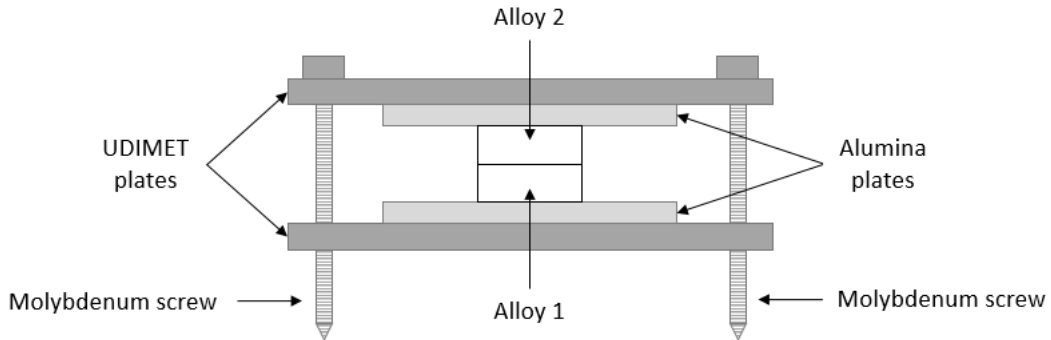


Figure 2.2: Schéma du dispositif d'assemblage des couples de diffusion [Salsi et al., 2022]

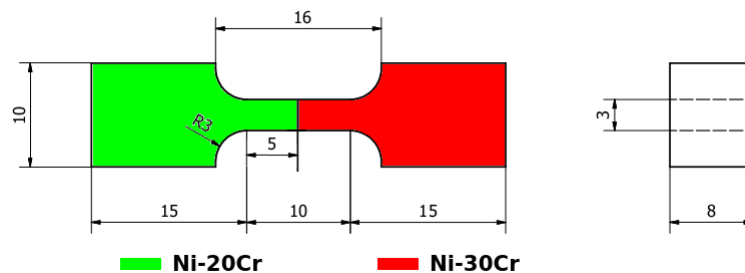


Figure 2.3: Plan de l'éprouvette bi-matériaux

Afin de mettre en évidence le couplage de la diffusion – mécanique, le problème a été simplifié en utilisant trois types des matériaux modèles :

- Ni20Cr et Ni30Cr : 1 phase ( $\gamma$ ) + 2 éléments (Ni et Cr)
- Ni5Cr22Al : 1 phase ( $\gamma'$ ) + 3 éléments (Ni, Cr et Al)
- Ni12Cr16Al : 2 phases ( $\gamma$  et  $\gamma'$ ) + 3 éléments (Ni, Cr et Al)

Les deux couples de diffusion Ni20Cr/Ni30Cr et Ni5Cr22Al/Ni12Cr16Al ont subi différents traitements thermiques de diffusion pour servir comme la référence pour le profil de concentration :

- Pour le couple de diffusion Ni20Cr/Ni30Cr : un traitement thermique de diffusion à 1000 °C pendant 75 h et un autre traitement à 1050 °C pendant 20 h.
- Pour le couple de diffusion Ni5Cr22Al/Ni12Cr16Al : un traitement thermique de diffusion à 1000 °C pendant 75 h.

Quatre essais sont réalisés sur les éprouvettes bi-matériaux Ni20Cr/Ni30Cr et Ni5Cr22Al/Ni12Cr16Al afin de tester l'effet d'un chargement mécanique sur la diffusion :

- **Essai 1** : Cas monophasé ( $\gamma$ ) Ni20Cr/Ni30Cr :  
compression interrompu + diffusion à haute température.
- **Essai 2** : Cas monophasé ( $\gamma$ ) Ni20Cr/Ni30Cr :  
fluage en compression à haute température. Ici, nous présentons les résultats des essais de Camille Salsi [Salsi et al., 2022].
- **Essai 3** : Cas monophasé ( $\gamma$ ) Ni20Cr/Ni30Cr :  
compression interrompu + fluage en compression à haute température.
- **Essai 4** : Cas biphasé ( $\gamma/\gamma'$ ) Ni5Cr22Al/Ni12Cr16Al :  
compression interrompu + diffusion à haute température.

## 2.4 Résultats et discussion

### 2.4.1 État initial des matériaux

Le couple de diffusion Ni20Cr/Ni30Cr est constitué de deux matériaux monophasés ( $\gamma$  : Ni), tandis que le couple Ni12Cr16Al/Ni5Cr22Al est composé d'un matériau monophasé ( $\gamma'$  : Ni<sub>3</sub>Al) et un matériau biphasé ( $\gamma+\gamma'$ ).

Une observation MEB des couples de diffusion Ni5Cr22Al/Ni12Cr16Al au niveau de l'interface montre une bonne cohérence entre Ni20Cr et Ni30Cr, alors que le liseré noir observé entre Ni12Cr16Al et Ni5Cr22Al indique une adhésion probablement moins bonne. De plus, on observe une différence de tailles de grains entre les deux matériaux, moins importante pour le couple Ni20Cr/Ni30Cr que dans le couple Ni5Cr22Al/Ni12Cr16Al (cf. figure 2.4).

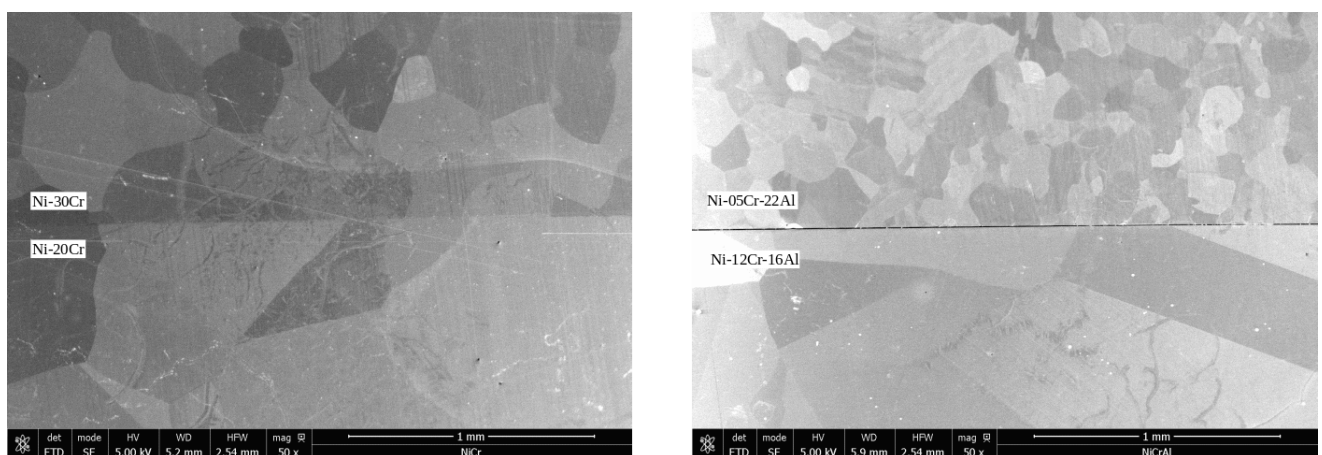


Figure 2.4: Observations MEB de couples de diffusion Ni20Cr / Ni30Cr (à gauche) et Ni12Cr16Al / Ni5Cr22Al (à droite)

Les observations EBSD qui sont réalisées loin de l'interface au milieu de chaque matériau permettent d'avoir une étude quantitative des tailles de grains et une idée sur la texture obtenue pour chaque matériau. En effet, la taille de grains est choisie de l'ordre d'un millimètre afin de maximiser la diffusion en volume et minimiser la diffusion en joints de grains (cf. figure 2.6). Du fait de tailles de grains millimétriques et la taille faible de la partie utile (10 mm), les matériaux sont texturés (cf. figure 2.5).

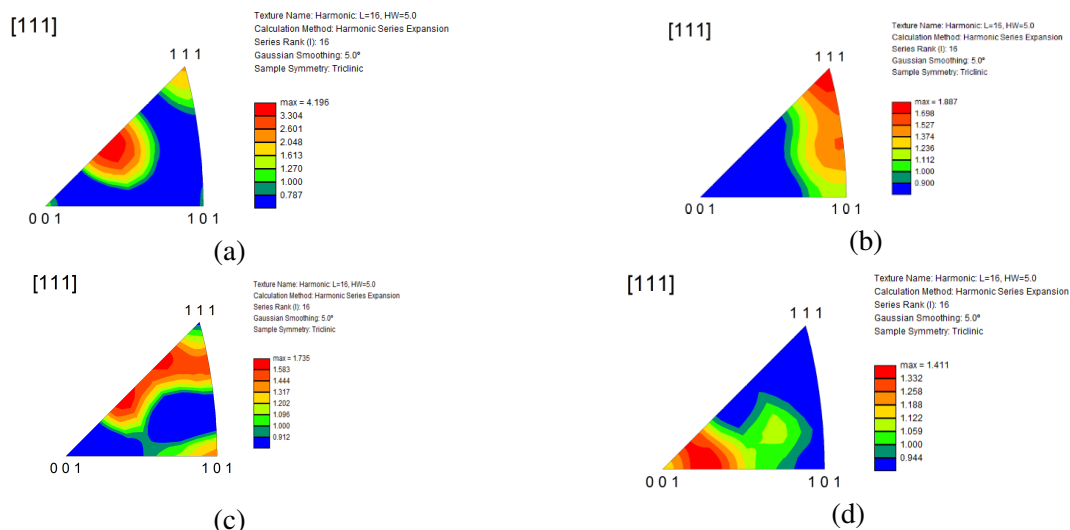


Figure 2.5: Texture de (a) Ni20Cr, (b) Ni30Cr, (c) Ni12Cr16Al et (d) Ni5Cr22Al. La direction présentée dans le triangle standard est la normale aux faces latérales de l'éprouvette.

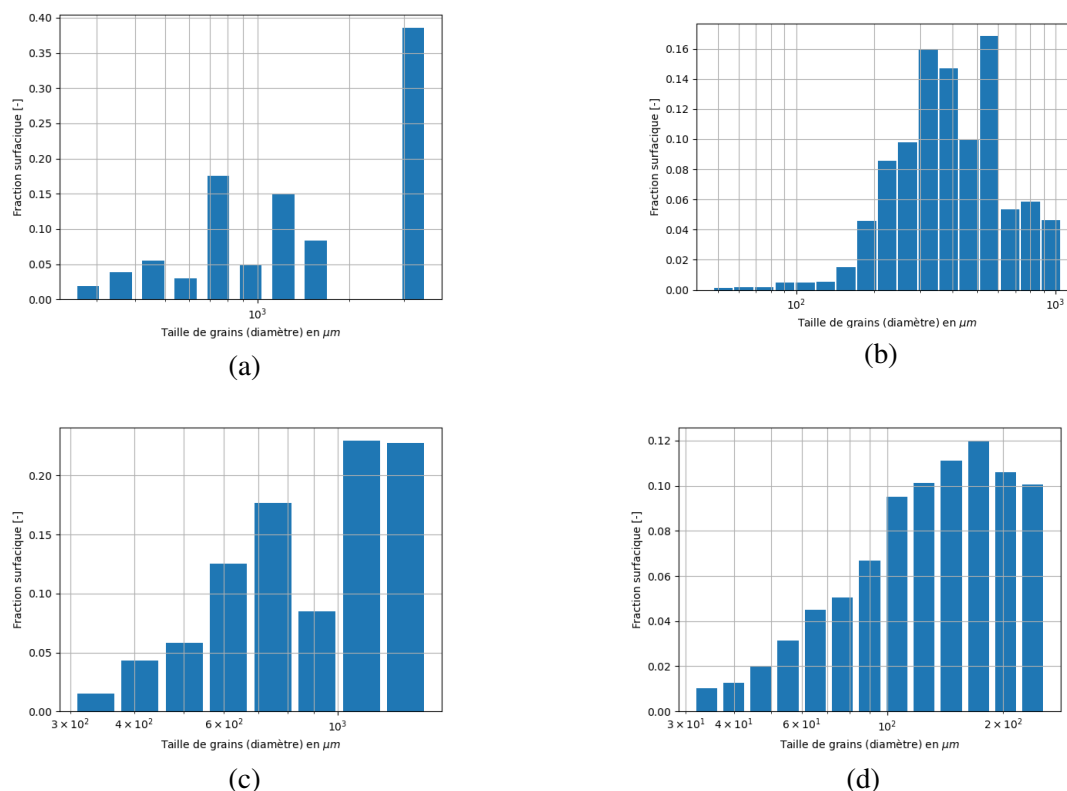


Figure 2.6: Distribution des tailles des grains de : (a) Ni20Cr, (b) Ni30Cr, (c) Ni12Cr16Al et (d) Ni5Cr22Al

Les profils de concentration initiaux d'Al, de Cr et de Ni obtenus par des mesures EDS avec un pas de  $0.5\mu\text{m}$  après l'assemblage de deux couples sont tracés (cf. figure 2.7). Au niveau de l'interface, on observe le gradient de concentration dû aux différences de compositions entre les deux matériaux constituant le couple de diffusion. On observe une continuité dans les profils de concentration pour le couple Ni12Cr16Al/Ni5Cr22Al qui indique a priori l'absence d'une fissure sur toute l'épaisseur de l'échantillon.

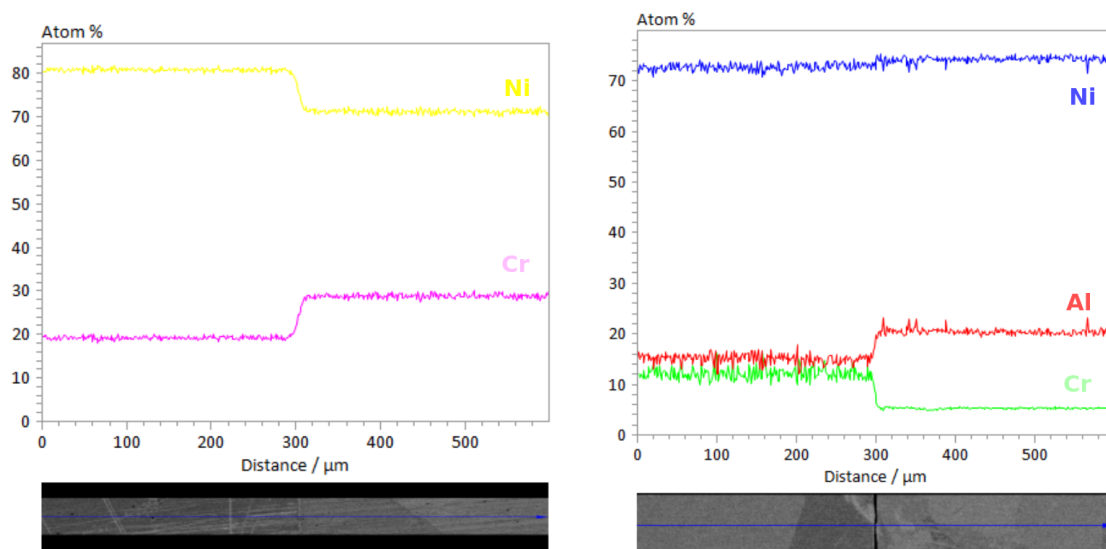


Figure 2.7: Mesures EDS des couples de diffusion Ni20Cr/Ni30Cr (à gauche) et Ni12Cr16Al/Ni5Cr22Al (à droite)

## 2.4.2 Essais réalisés

Un essai de diffusion pendant  $t=75$  h à  $T=1000$  °C réalisé sur les couples de diffusion Ni20Cr/Ni30Cr et Ni12Cr16Al/Ni5Cr22Al sert comme essai de référence pour déterminer l'effet des chargements mécaniques. Les autres essais sont détaillés dans les paragraphes qui suivent.

### a Cas monophasé ( $\gamma$ ) Ni20Cr/Ni30Cr : compression interrompu + diffusion à haute température

Un essai de compression interrompu avec plusieurs paliers de déformation (-0.2%, -0.3%, -0.4%, -0.6%, -0.8%, -1.0%) pendant 5 min a été réalisé sur le couple Ni20Cr/Ni30Cr suivi par un essai de diffusion pendant 75 h à  $T=1000$  °C (cf. figure 2.8).

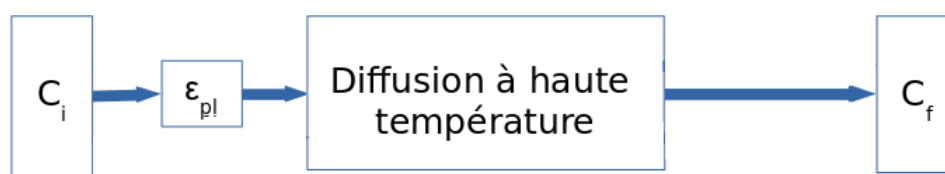


Figure 2.8: Schéma de l'essai de compression interrompu suivi par un essai de diffusion à haute température ( $T = 1000$  °C)

Dans cet essai, le comportement de chaque matériau (Ni20Cr et Ni30Cr), ainsi que celui du couple de diffusion (Ni20Cr/Ni30Cr) a été déterminé (cf. figures 2.9 et 2.10). Grâce à cet essai, l'effet de la plasticité à basse température sur la diffusion à haute température ( $T = 1000$  °C) est étudié. Pour éviter la rupture de l'éprouvette à l'interface entre les deux matériaux, une contrainte maximale nulle a été imposée pendant la phase de déchargement de chaque cycle.

La zone utile de l'éprouvette a été suivie par corrélation d'images pendant tout l'essai. La figure 2.11 correspond au champs de déformation dans la direction horizontale ( $\epsilon_{xx}$ ) pour le couple Ni20Cr/Ni30Cr. Les profils de concentration sont détaillés suivant 7 lignes  $L_1, L_2, \dots, L_7$  (cf. figure 2.12). Une localisation de déformation est observée dans le Ni20Cr.

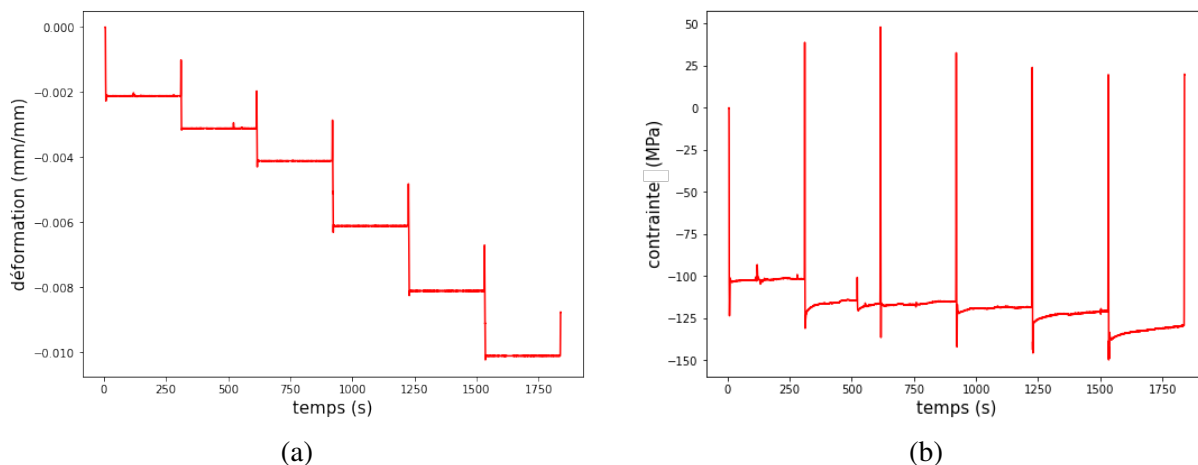


Figure 2.9: (a) Évolution de la déformation appliquée de l'ensemble bi-matériaux en fonction du temps (b) évolution de la contrainte de l'ensemble bi-matériaux en fonction du temps

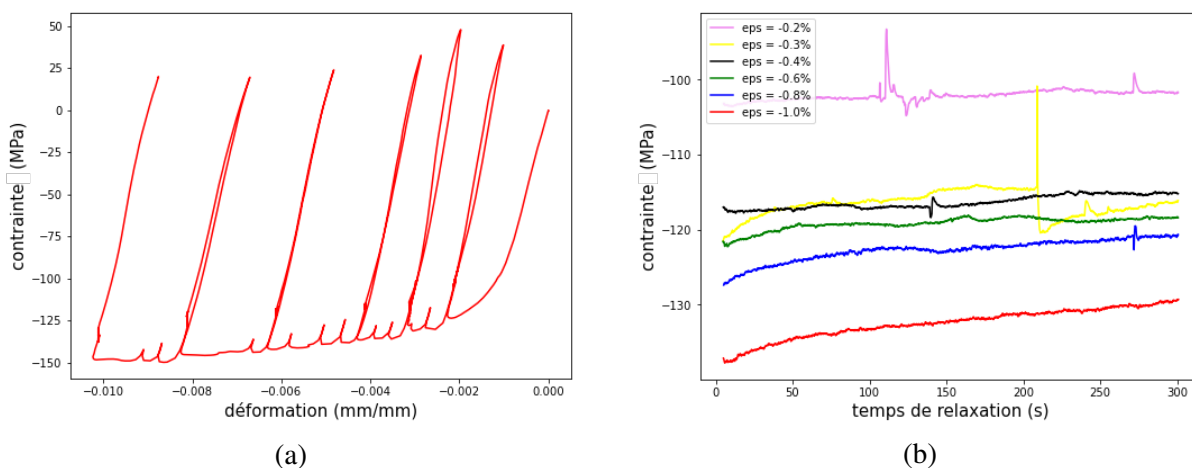


Figure 2.10: (a) Courbe de compression interrompu de l'ensemble bi-matériaux (b) Courbe de relaxation de contrainte de l'ensemble bi-matériaux pendant les paliers de déformation

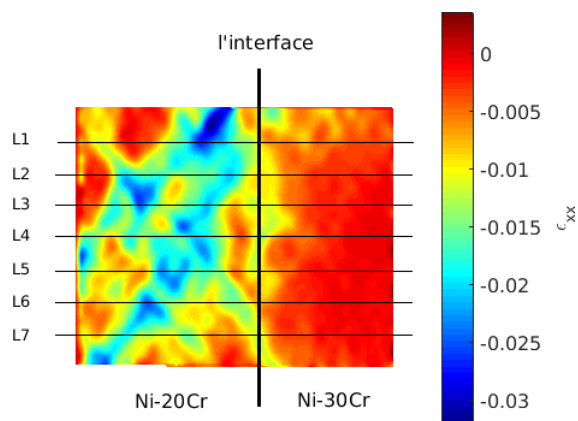


Figure 2.11:  $\epsilon_{xx}$  après 5 cycles d'écroutissage ( $\epsilon = 0.2\%$ ,  $0.4\%$ ,  $0.6\%$ ,  $0.8\%$  et  $1.0\%$ ) à  $25^\circ\text{C}$

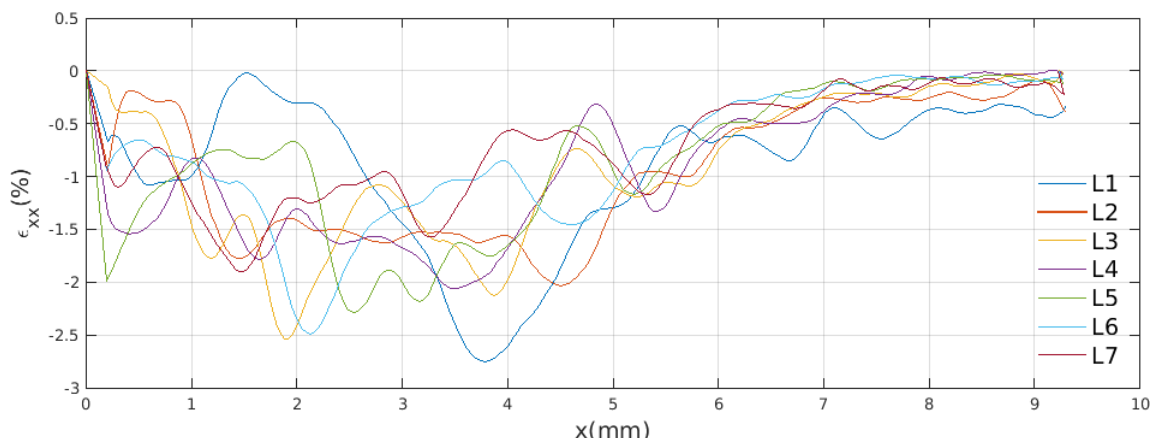


Figure 2.12:  $\epsilon_{xx}$  suivant les lignes L1,L2,...,L7 (cf. figure 2.11)

Des extensomètres virtuels sont utilisés pour déterminer les niveaux de déformation moyenne dans chaque matériau. Comme les deux matériaux sont en “série”, on considère que la contrainte est la même dans chaque matériau à chaque instant. Par conséquent, les comportements des deux matériaux Ni20Cr et Ni30Cr sont déterminés en traçant la contrainte de l’ensemble des deux matériaux en fonction de la déformation de chaque matériau obtenue par les extensomètres virtuels (cf. figure 2.13).

Par la suite, cette même éprouvette a subi un essai de diffusion pendant  $t = 75h$  et à température  $T = 1000^{\circ}C$ . Le profil de diffusion a été comparé à l’essai de référence (diffusion seule). Les deux courbes sont superposées et les coefficients de diffusion sont égaux ( $\bar{D}_{NiCr}^{EBT} = 9.28 \times 10^{-16} m^2/s \simeq \bar{D}_{NiCr} = 9.30 \times 10^{-16} m^2/s$ ). Ainsi, il n’y a pas d’effet du pré-écrouissage sur la diffusion (cf. figure 2.14).

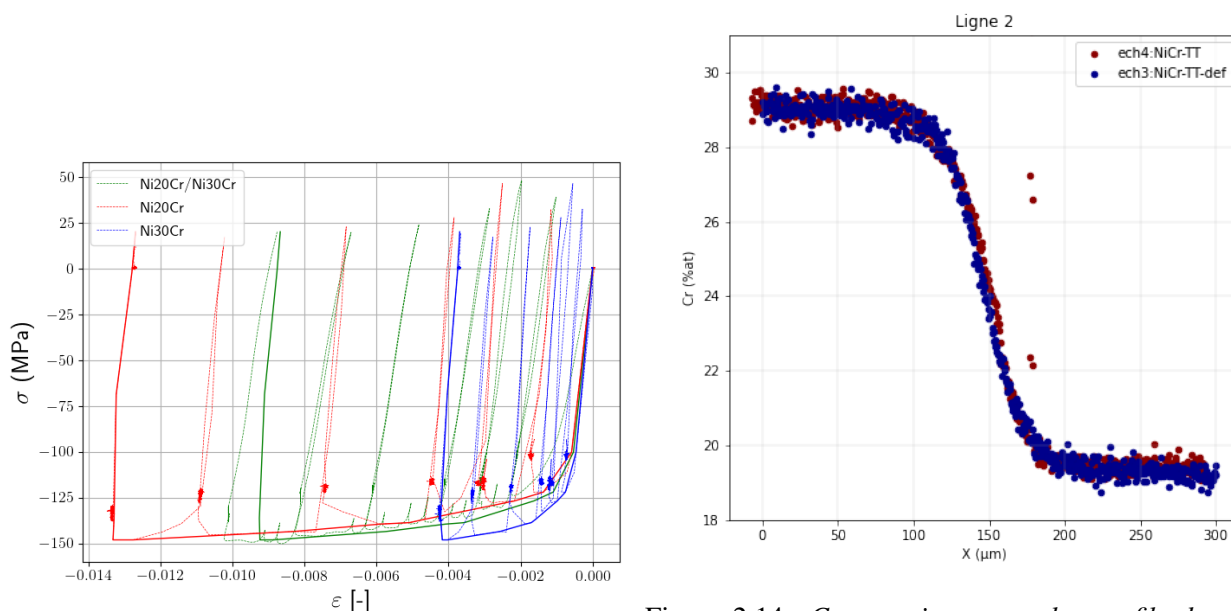


Figure 2.13: Courbes de compression interrompu avec des paliers successives expérimentale et complet pour Ni20Cr, Ni30Cr et Ni20Cr/Ni30Cr

Figure 2.14: Comparaison entre les profils de concentration de Cr suite à un traitement thermique seul pendant  $t = 75h$  et à température  $T = 1000^{\circ}C$  (ech4: NiCr-TT) et suite à un essai de compression interrompu à température ambiante suivi par un traitement thermique pendant  $t = 75h$  et à température  $T = 1000^{\circ}C$  (ech3: NiCr-TT-def)

### b Cas monophasé ( $\gamma$ ) Ni20Cr/Ni30Cr : fluage en compression à haute température

Dans cette partie, nous présentons les résultats des essais de Camille Salsi qui a étudié l'effet de fluage en compression à haute température sur la diffusion de Cr dans les couples monophasés Ni20Cr/Ni30Cr avec une contrainte  $\sigma = [12, 25] \text{ MPa}$  à haute température  $T = [885, 940, 1000]^\circ\text{C}$  [Salsi et al., 2022]. Ces essais ont été réalisés avec des éprouvettes de géométrie différente (parallélépipèdes rectangles). La direction du chargement est normale à l'interface entre les matériaux qui composent le couple de diffusion. Les déformations, obtenues à l'essai de fluage en compression, sont tracées (cf. figure 2.15)

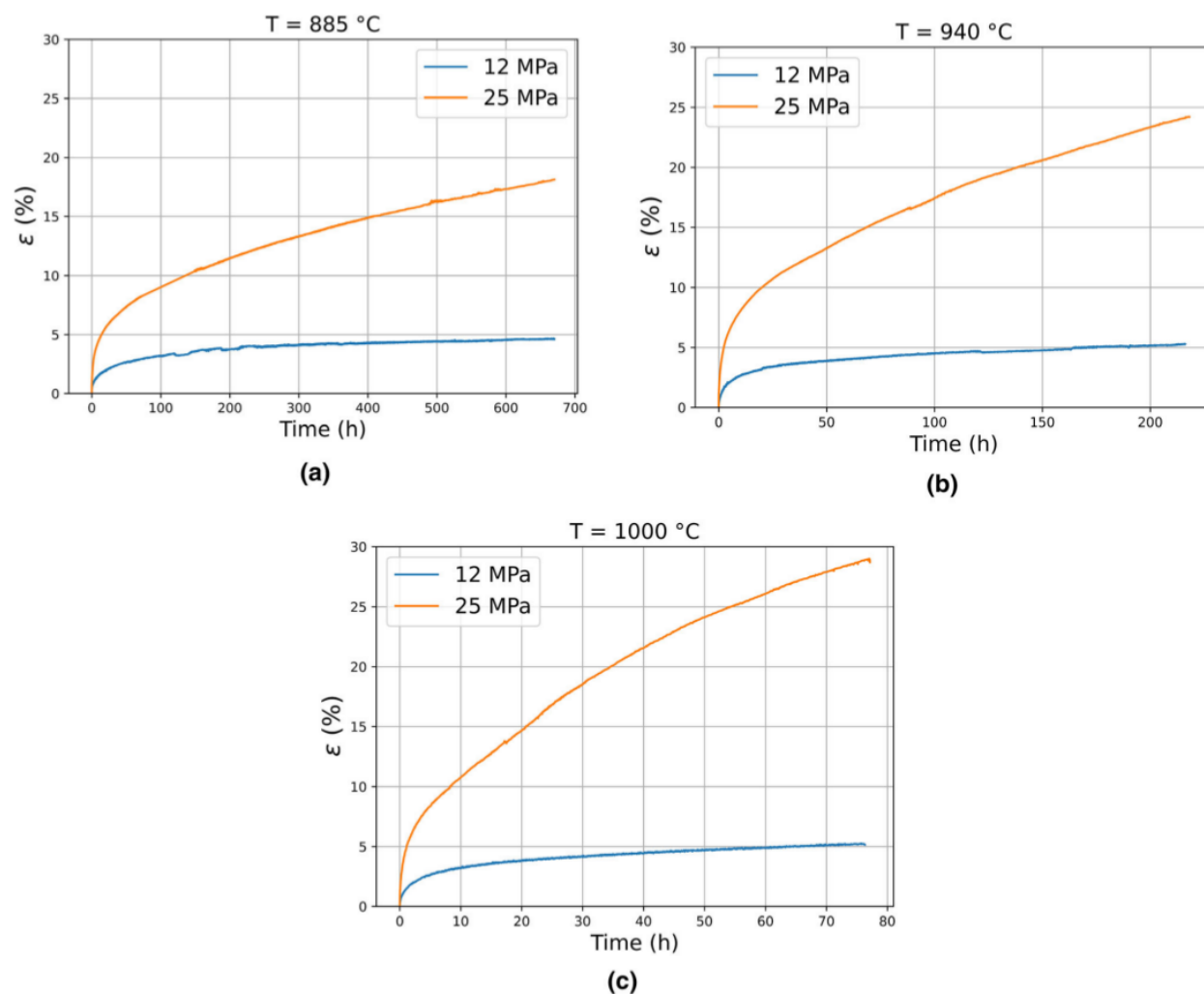


Figure 2.15: Courbes d'évolution de la déformation pour le couple Ni20Cr/Ni30Cr : (a)  $885^\circ\text{C}$ , (b)  $940^\circ\text{C}$  et (c)  $1000^\circ\text{C}$  [Salsi et al., 2022]

Après l'essai de fluage en compression à haute température, les profils de concentration de Cr sont mesurés par EDS. Les profils à chaque température et pour différentes valeurs de contraintes sont donnés par la figure 2.16. Ces profils sont presque superposés quelle que soit la valeur de contrainte pour la même température. Les coefficients d'interdiffusion sont déterminés à partir de ces profils. Une légère diminution du coefficient d'interdiffusion a été observée avec l'augmentation de la contrainte appliquée à  $T = 1000^\circ\text{C}$  (cf. figure 2.17). Cependant, les résultats à  $T = 940^\circ\text{C}$  et  $T = 885^\circ\text{C}$  ne présentent pas les mêmes tendances d'évolution.

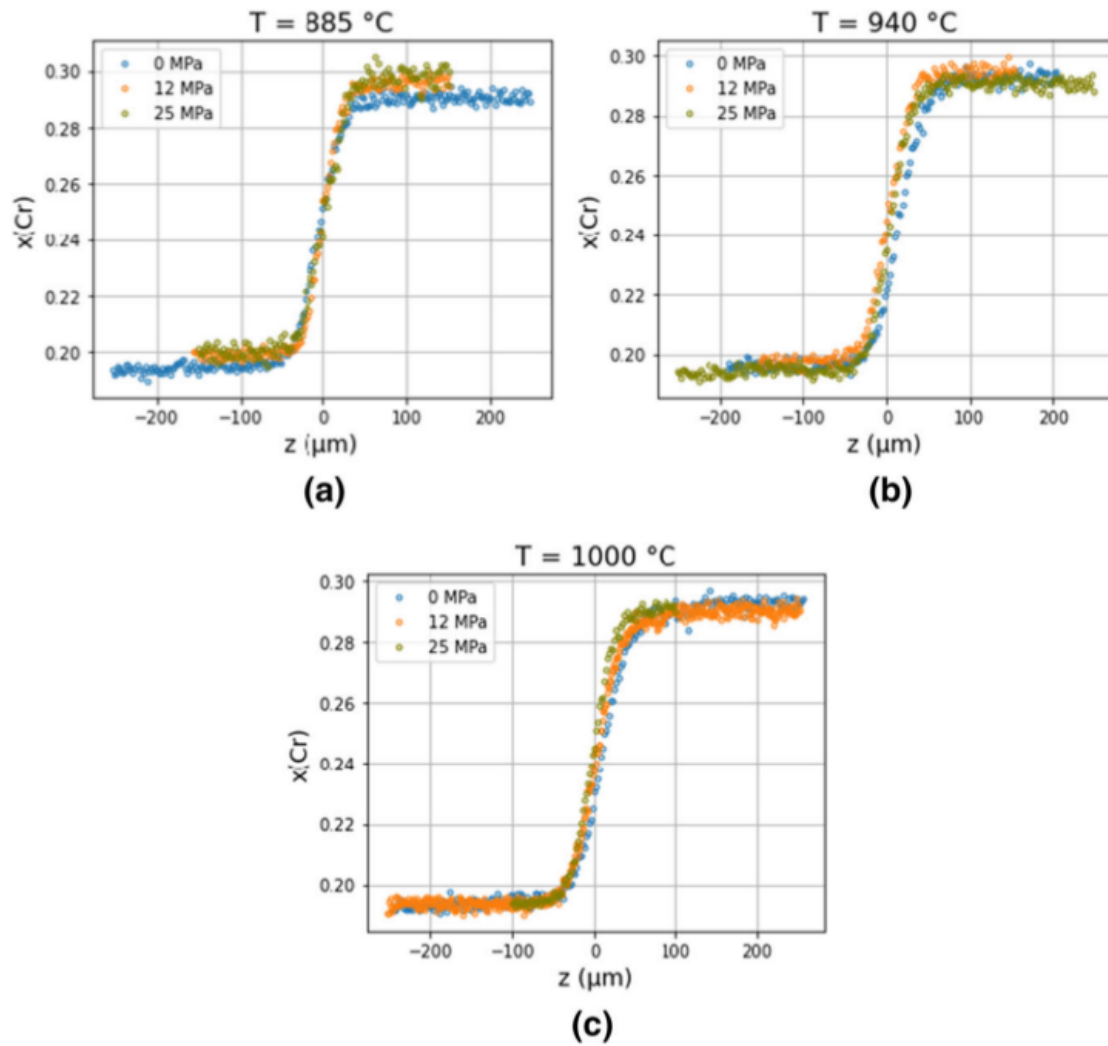


Figure 2.16: Profils de concentration de Cr pour le couple  $\text{Ni}_{20}\text{Cr}/\text{Ni}_{30}\text{Cr}$  : (a)  $885\text{ }^\circ\text{C}$ , (b)  $940\text{ }^\circ\text{C}$  et (c)  $1000\text{ }^\circ\text{C}$  [Salsi et al., 2022].  $X(\text{Cr})$  représente la fraction atomique de Cr.

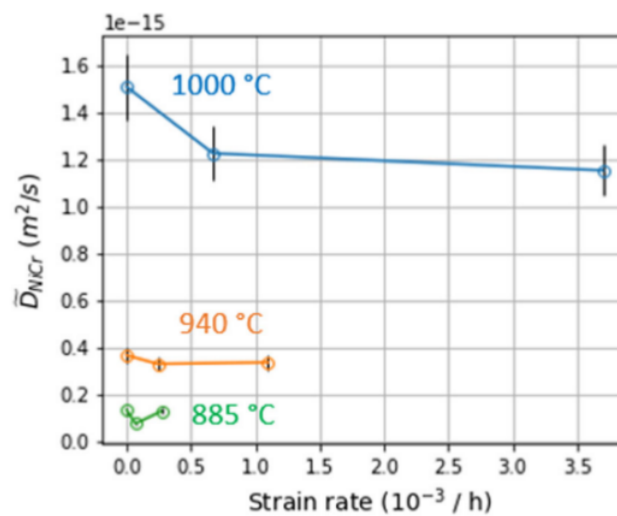


Figure 2.17: Coefficient d'interdiffusion du couple  $\text{Ni}_{20}\text{Cr}/\text{Ni}_{30}\text{Cr}$  pour différentes valeurs de vitesse de déformation [Salsi et al., 2022]



**c Cas monophasé ( $\gamma$ ) Ni20Cr/Ni30Cr : compression interrompu + fluage en compression à haute température**

Cet essai consiste à faire des compressions successives avec plusieurs paliers de déformation (-0.2%, -0.3%, -0.4%, -0.6%, -0.8%, -1.0%) sur le couple Ni20Cr/Ni30Cr (cf. sous-section 4.2.a suivi d'un essai de fluage pendant 75h à  $T=1000^{\circ}\text{C}$  avec  $\sigma_{app} = -15\text{ MPa}$  (cf. figure 2.18) sur la même éprouvette. L'objectif est d'identifier le comportement à haute température et de déterminer l'effet d'introduction de la plasticité à température ambiante sur la diffusion en fluage à  $T = 1000^{\circ}\text{C}$ . C'est-à-dire qu'on cherche à déterminer si le profil de concentration de Cr après le fluage est affecté par la compression interrompue à température ambiante.

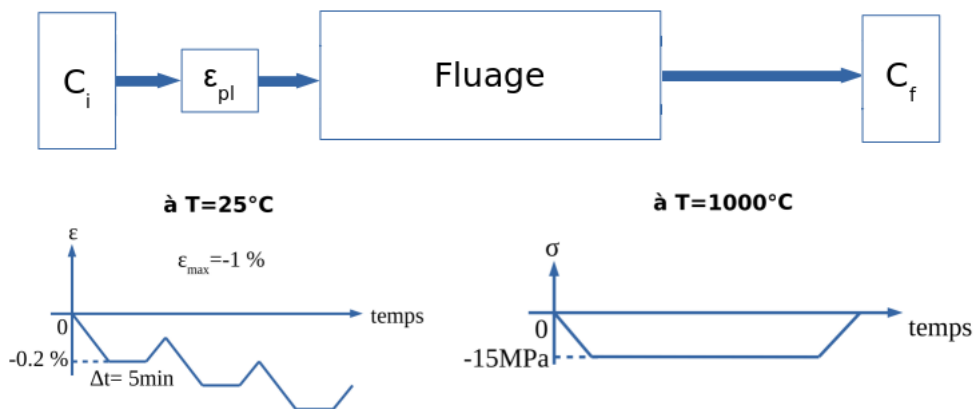


Figure 2.18: Schéma de l'essai de fluage  $\sigma_{app} = -15\text{ MPa}$  pendant 75h à  $T=1000^{\circ}\text{C}$

Les courbes de fluage sont obtenues à l'aide des extensomètres virtuels placés de chaque côté de matériau Ni20Cr et Ni30Cr pendant le post-traitement de corrélation d'images et à l'aide d'un extensomètre physique pour le couple de diffusion Ni20Cr/Ni30Cr (cf. figure 2.19).

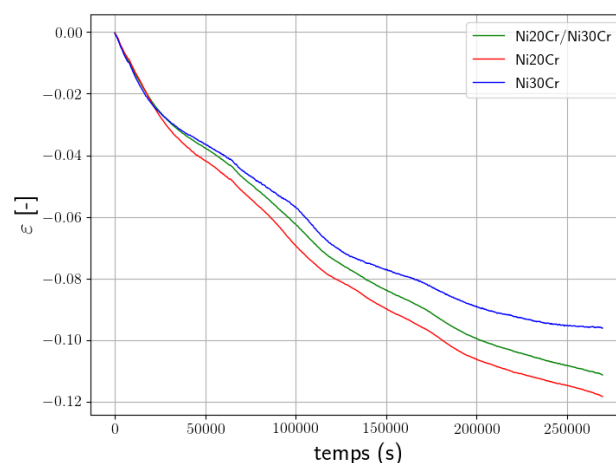


Figure 2.19: Courbes de fluage expérimentales pour Ni20Cr, Ni30Cr et le couple Ni20Cr/Ni30Cr

Des profils de concentration, obtenus par microsonde de Castaing traversant l'interface sur une distance de  $150\ \mu\text{m}$ , sont analysés avec une distance de  $0.5\text{ mm}$  entre les profils (cf. figure 2.20). Un effet combiné de l'introduction de la plasticité à température ambiante suivi d'un fluage à haute température ( $T = 1000^{\circ}\text{C}$ ) est observé en comparant les profils de concentration avec le cas de diffusion seul avec les mêmes conditions (cf.

figure 2.20). Cela peut être expliqué par le fait que l'hétérogénéité de la plasticité introduite à température ambiante a créé de nouvelles dislocations. À haute température et sous l'effet de la contrainte de fluage, ces dislocations ont créé des court-circuits de diffusion qui permettent d'accélérer la cinétique de la diffusion. Ce phénomène est appelé *pipe diffusion*.

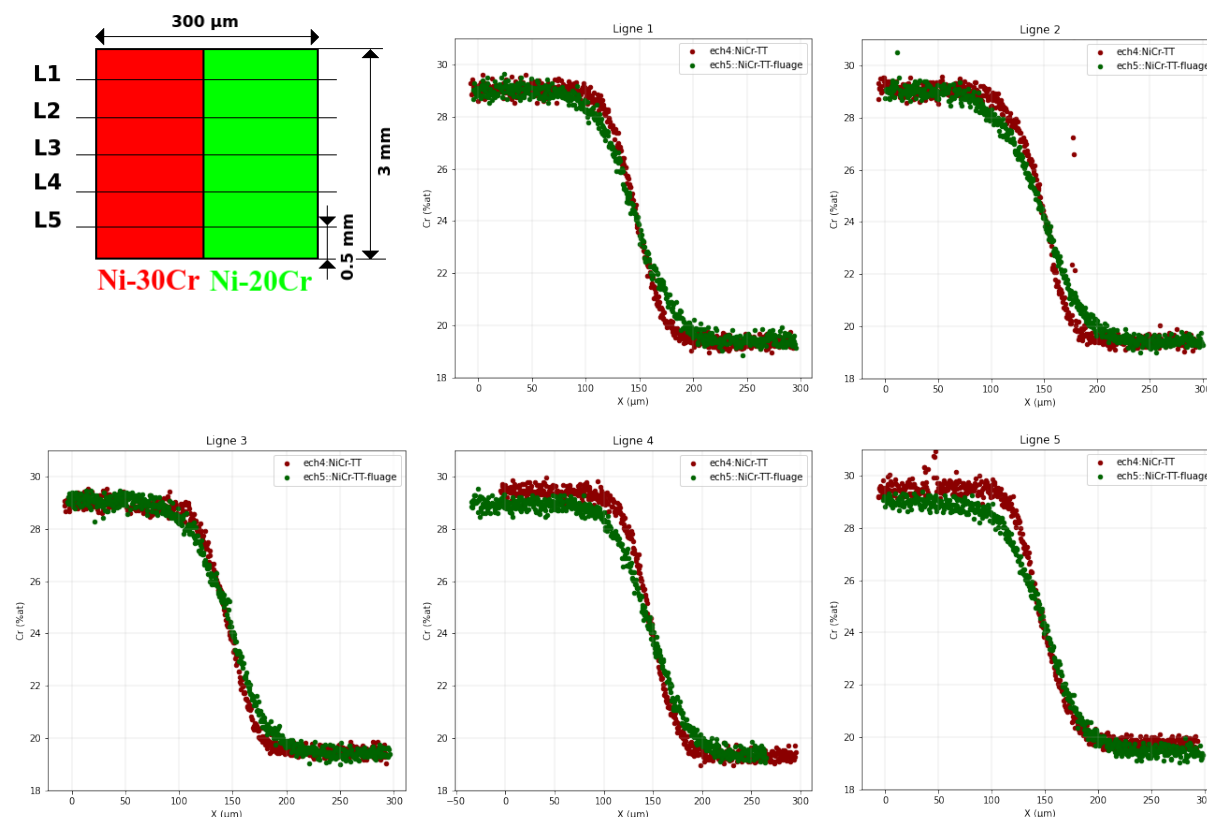


Figure 2.20: Les profils de concentration de Cr autour de l'interface entre les deux matériaux

#### d Cas biphasé ( $\gamma/\gamma'$ ) Ni5Cr22Al/Ni12Cr16Al : compression interrompue + diffusion à haute température

Dans cet essai, le couple de diffusion considéré est composé de Ni5Cr22Al monophasé  $\gamma$  et de Ni12Cr16Al biphasé  $\gamma - \gamma'$ . Un essai de compression avec plusieurs paliers de déformation (-0.2%, -0.3%, -0.4%, -0.6%) a été réalisé sur ce couple à température ambiante, comme dans le sous-section a page 47, suivi d'un essai de diffusion pendant  $t = 75h$  à  $T = 1000^\circ C$ . Cet essai permet à la fois d'identifier le comportement à température ambiante et de vérifier s'il y a un effet de la plasticité introduite à température ambiante sur la diffusion à haute température.

Les courbes de chargement et de la réponse mécanique pour le couple de diffusion sont données par la figure 2.21. Le comportement mécanique est très différent entre Ni12Cr16Al biphasé ( $\gamma/\gamma'$ ) très ductile et Ni5Cr22Al monophasé ( $\gamma$ ) très rigide.

Les observations MEB après un essai de diffusion à  $T = 1000^\circ C$  et après l'essai de compression interrompu suivi d'un essai de diffusion sont données par la figure 2.22. On observe un déplacement de l'interface qui sépare les deux matériaux. Ce déplacement est causé par une transformation de phase ( $\gamma + \gamma' \rightarrow \gamma'$ ) qui a lieu au niveau de l'interface. Dans les deux échantillons, on observe une forte coalescence des précipités  $\gamma'$  et une inversion topologique. Cela est plus prononcé dans l'échantillon qui subit en plus la compression interrompue (cf. figure 2.22).

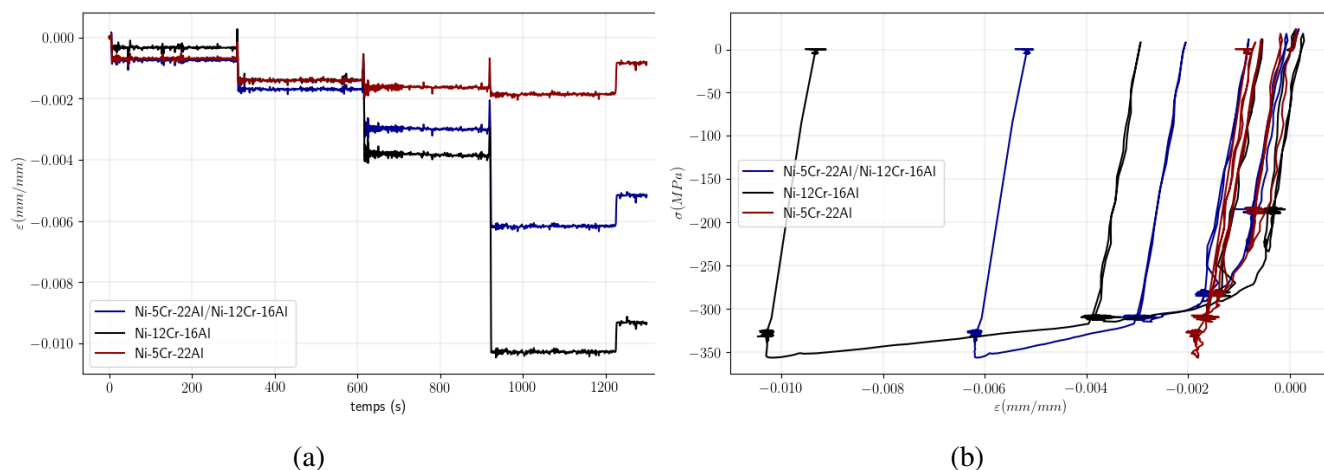


Figure 2.21: (a) Courbe de compression interrompue avec des paliers à ( $\epsilon = 0.2\%$ ,  $0.3\%$ ,  $0.4\%$  et  $0.6\%$ ) à  $T = 25^\circ\text{C}$  (b) courbe contrainte-déformation de couple Ni5Cr22Al/Ni12Cr16Al pour Ni12Cr16Al, Ni5Cr22Al et le couple de diffusion Ni12Cr16Al/Ni5Cr22Al

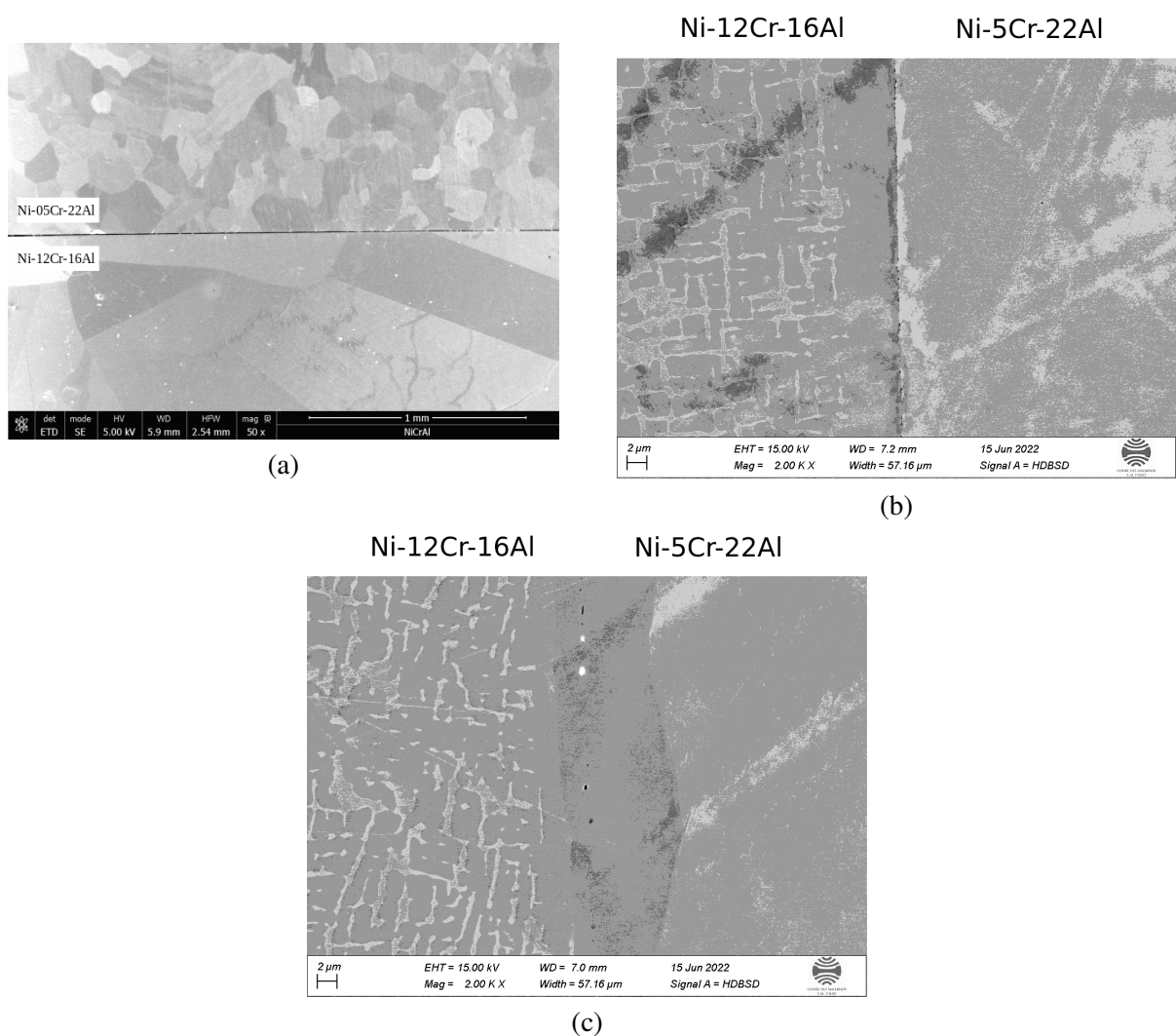


Figure 2.22: Observations MEB : (a) état initial (b) après l'essai de diffusion (c) après l'essai de compression interrompue suivi par l'essai de diffusion

Les profils de concentration pour les deux essais (diffusion seul et compression interrompue à température ambiante + diffusion à haute température) ont été calés en utilisant les particules  $Gd_2Zr_2O_7$  qui ont été déposées dans l'interface entre les deux matériaux et servant comme des marqueurs inertes. En comparant les profils de concentration des éléments chimiques (Al, Cr et Ni), on observe un petit décalage entre les deux courbes de l'ordre de  $10\mu m$  sur le zoom de profil de Cr au niveau de l'interface (cf. figure 2.23.b).

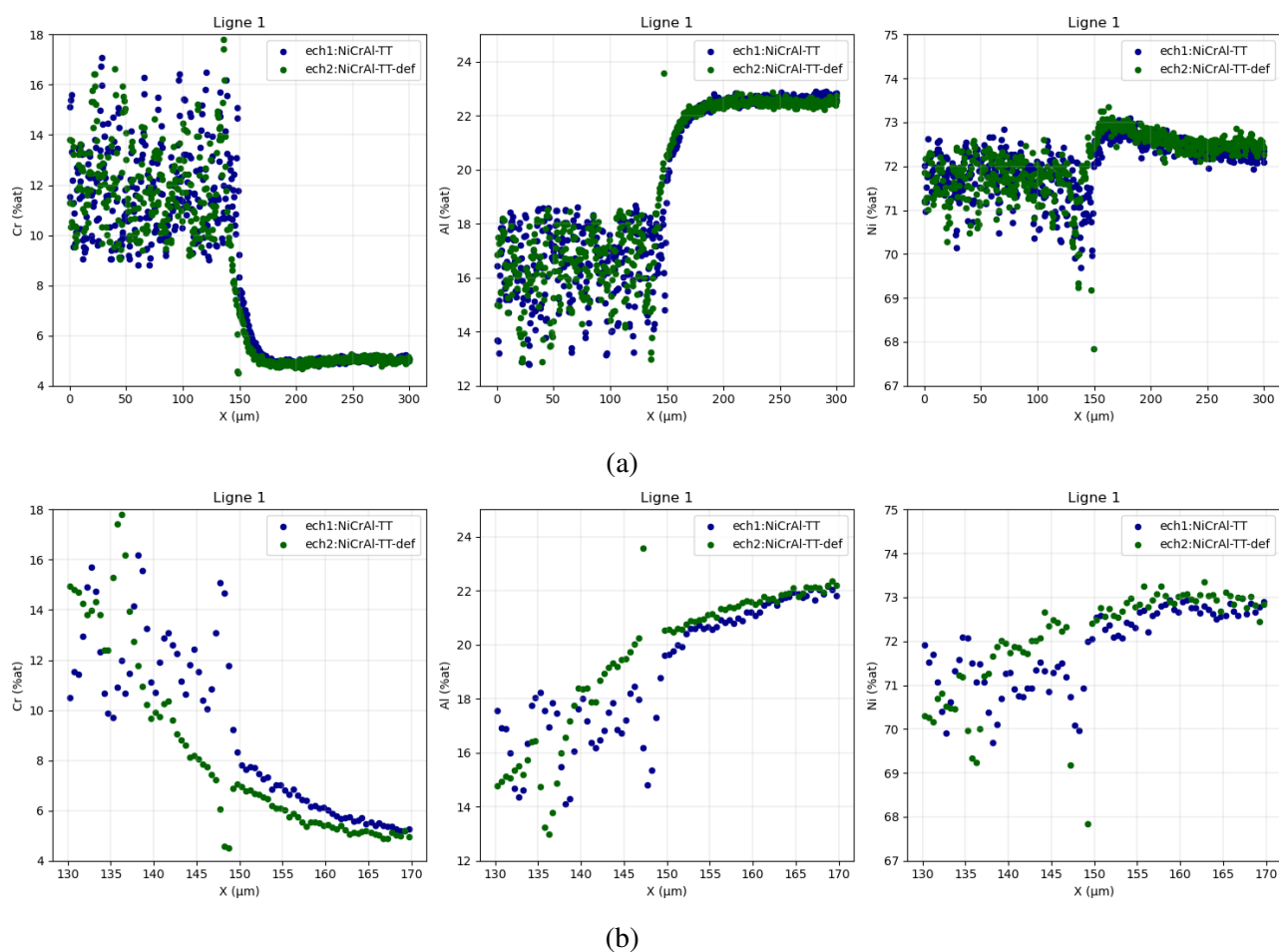


Figure 2.23: Comparaison des profils de concentration de Cr, Al et Ni entre l'essai de diffusion seul et l'essai de compression interrompu suivi par l'essai de diffusion (a) sur une distance de  $150\mu m$  de chaque côté de l'interface de deux matériaux (b) proche de l'interface

Les tableaux 2.1 et 2.2 regroupent les différents essais réalisés et leurs effets sur le couplage diffusion-mécanique. On a remarqué que le fait d'introduire la plasticité à  $T = 25^\circ C$  suivi d'un essai de fluage en compression accélère la diffusion de Cr. Cela peut être expliqué par la création des dislocations à température ambiante suite à l'introduction de la plasticité. Ces dislocations sont des court-circuits de diffusion à haute température. Le déplacement des dislocations accélère le déplacement des atomes de Cr et par conséquent la diffusion de Cr. À travers ces essais, une mise en évidence expérimentale du couplage diffusion-mécanique a été établie. La compétition entre la plasticité à basse température et le fluage à haute température détermine l'amplitude de l'effet de ce couplage.

| couple | $\varepsilon$ à 25°C | fluage            | diffusion    | effet du couplage    |
|--------|----------------------|-------------------|--------------|----------------------|
| NiCr   |                      |                   | 75h à 1000°C | référence            |
| NiCr   | $\varepsilon_{BT}$   |                   | 75h à 1000°C | $\emptyset$          |
| NiCr   |                      | $\sigma = -25MPa$ | 75h à 1000°C | + - [C. Salsi et al] |
| NiCr   | $\varepsilon_{BT}$   | $\sigma = -15MPa$ | 75h à 1000°C | ++                   |

Table 2.1: Résumé des essais réalisés sur le couple Ni20Cr/Ni30Cr et leurs effets sur le couplage diffusion-mécanique ( $\emptyset$  : pas d'effet, + - : faible effet, + : effet constaté et ++ : effet important)

| couple | $\varepsilon$ à 25°C | diffusion    | effet sur le profil de $C_{Cr}$ |
|--------|----------------------|--------------|---------------------------------|
| NiCrAl |                      | 75h à 1000°C | référence                       |
| NiCrAl | $\varepsilon_{BT}$   | 75h à 1000°C | + -                             |

Table 2.2: Résumé des essais réalisés sur le couple de diffusion Ni12Cr16Al/Ni5Cr22Al et leurs effets sur le couplage diffusion-mécanique ( $\emptyset$  : pas d'effet, + - : faible effet, + : effet constaté et ++ : effet important)

### 2.4.3 Modèle de comportement mécanique utilisé

L'énergie mécanique visco-plastique :

$$\Psi^{mech,p}(c, p) = \frac{1}{2} b(c) Q(c) p^2 \quad (2.3)$$

où  $b$  et  $Q$  sont des paramètres d'érouissage du matériau et  $c$  la concentration de Cr. L'érouissage isotrope s'écrit sous la forme :

$$R = \frac{\partial \Psi^{mech,p}}{\partial p} = b(c) Q(c) p \quad (2.4)$$

Potentiel de dissipation mécanique :

$$\Omega^{mech}(\tilde{\sigma}, X_i) = \int_V \tilde{\Omega}(f) dV \quad \text{avec} \quad \tilde{\Omega}(f) = \frac{K}{n+1} \left\langle \frac{f}{K} \right\rangle^{n+1} \quad \text{et} \quad f = J_2(\tilde{\sigma}) - (R_0 + R) \quad (2.5)$$

où  $R_0$ ,  $K$  et  $n$  sont des paramètres matériaux et  $J_2(\tilde{\sigma}) = \sqrt{\frac{3}{2} \tilde{\sigma}^{dev} : \tilde{\sigma}^{dev}} = \sigma_{eq}$  avec  $\tilde{\sigma}^{dev}$  la partie déviatorique de  $\tilde{\sigma}$ .

L'évolution de la déformation viscoplastique et de la plasticité cumulée sont décrits par les équations :

$$\dot{\tilde{\varepsilon}}^{vp} = \dot{\lambda} \frac{3}{2} \frac{\tilde{\sigma}^{dev}}{\sigma_{eq}} \quad (2.6)$$

$$p = \sqrt{\frac{2}{3} \tilde{\varepsilon}^{vp} : \tilde{\varepsilon}^{vp}} \quad (2.7)$$

### 2.4.4 Identification de comportement du couple Ni20Cr/Ni30Cr

Comme le couple de diffusion est composé de deux matériaux en série, il peut être modélisé comme deux ressorts en série. Par conséquent, la déformation de l'ensemble de couple de diffusion est égale à la somme des déformations de chaque matériau  $\varepsilon = \varepsilon_{mat1} + \varepsilon_{mat2}$ . La contrainte totale est égale à la contrainte du matériau 1 et du matériau 2 :  $\sigma = \sigma_{mat1} = \sigma_{mat2}$ . En utilisant la corrélation d'images, la déformation dans chaque matériau est déterminée par un extensomètre virtuel placé dans chaque matériau. La déformation totale est suivie par un extensomètre physique.

En utilisant le module  $Z_{sopt}$  de Zset et un modèle de comportement élasto-viscoplastique, les paramètres des comportements de chaque matériau sont identifiés à température ambiante et à haute température. À température ambiante, les courbes de compression expérimentales et les courbes avec les paramètres identifiés pour chaque matériau sont données sur la figure 2.24. Les paramètres identifiés sont regroupés dans le tableau 2.3. À haute température  $T = 1000^\circ C$ , les courbes de fluage en compression ( $\sigma = -15MPa$ ) expérimentales et les courbes avec les paramètres identifiés pour chaque matériau sont données par la figure 2.25. Les paramètres identifiés sont regroupés dans le tableau 2.4.

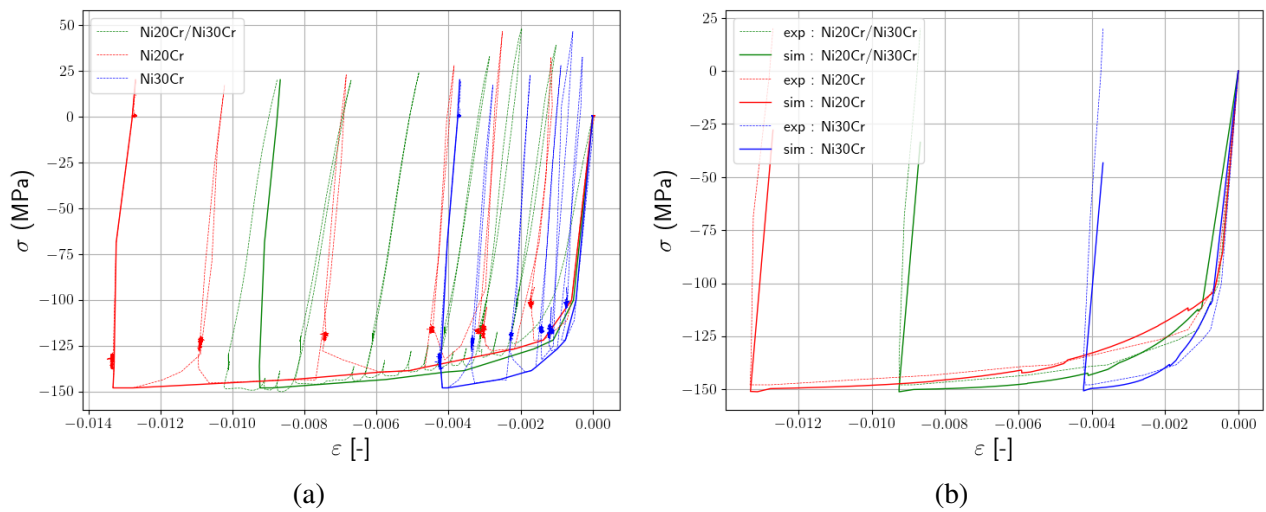


Figure 2.24: (a) Courbe de compression interrompue avec des paliers successifs expérimentales et courbe de compression continue pour Ni20Cr, Ni30Cr et Ni20Cr/Ni30Cr (b) comparaison entre les courbes de compression expérimentales et identifiées pour Ni20Cr, Ni30Cr et Ni20Cr/Ni30Cr

| Matériau | $Q$ (MPa) | $b$ (-) | $K$ (MPa.s <sup>1/n</sup> ) | $n$ (-) | $R_0$ (MPa) | $f_v$ |
|----------|-----------|---------|-----------------------------|---------|-------------|-------|
| Ni30Cr   | 53        | 1250    | 10                          | 20      | 92          | 0.55  |
| Ni20Cr   | 50        | 315     | 10                          | 20      | 95          | 0.45  |

Table 2.3: Les paramètres identifiés en compression de deux matériaux à température ambiante

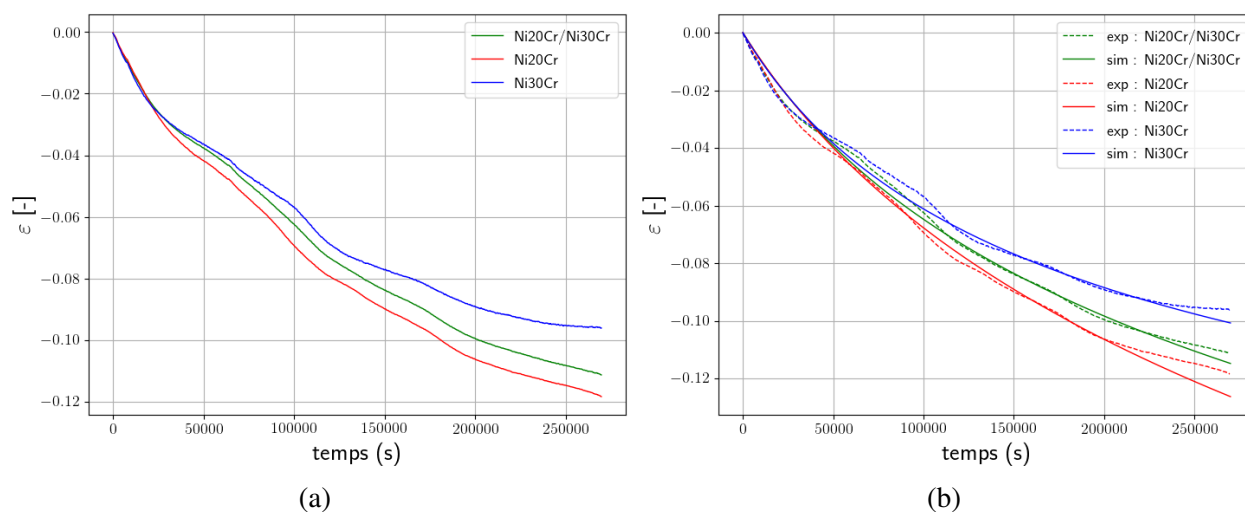


Figure 2.25: (a) Courbes de fluage expérimentales pour Ni20Cr, Ni30Cr et Ni20Cr/Ni30Cr (b) comparaison entre courbes de fluage expérimentales et identifiées pour Ni20Cr, Ni30Cr et Ni20Cr/Ni30Cr

| Matériau | $Q$ (MPa) | $b$ (-) | $K$ (MPa.s <sup>1/n</sup> ) | $n$ (-) | $R_0$ (MPa) | $f_v$ |
|----------|-----------|---------|-----------------------------|---------|-------------|-------|
| Ni30Cr   | 55        | 1.5     | 1400                        | 3       | 0           | 0.55  |
| Ni20Cr   | 75        | 0.68    | 1400                        | 3       | 0           | 0.45  |

Table 2.4: Les paramètres identifiés en fluage de deux matériaux à haute température  $T = 1000^\circ\text{C}$

#### 2.4.5 Identification des coefficients d'interdiffusion

La correction des profils de concentration suite aux essais mécaniques et l'identification des coefficient de diffusion sont réalisée par Thomas Gheno et Camille Salsi à l'aide d'un script développé dans le cadre de la thèse de Camille Salsi.

Avant de déterminer les coefficients d'interdiffusion, afin de pouvoir caractériser l'effet de la mécanique sur la diffusion, il faut que les profils de diffusion soient tracés dans le même référentiel. Comme les essais sont réalisés en déformations ou en contraintes de compression, les distances de diffusion sont "rétrécies". Il faut donc faire les corrections des distances de diffusion en déterminant les champs de déplacement à partir des champs de déformation expérimentale. Les profils de diffusion corrigés sont donnés sur la figure 2.26.

Parmi les méthodes utilisées pour évaluer le coefficient d'interdiffusion, on distingue des méthodes analytiques comme celle de Boltzmann–Matano et des méthodes numériques comme la méthode inverse. Cette dernière est utilisée en laissant le coefficient de diffusion comme un variable à déterminer en diminuant l'écart entre les profils de diffusion expérimental et simulé. Le profil simulé est obtenu en résolvant l'équation de diffusion :

$$\frac{\partial c}{\partial t} = -\nabla \cdot (\underline{J}) = \tilde{D}_{NiCr} \nabla \cdot (\nabla c) \quad (2.8)$$

Le coefficient d'interdiffusion  $\tilde{D}_{NiCr}$  est constant dans l'intervalle de composition considéré et à la température des essais selon les données de Du et Schuster [Schuster and Du, 2000] [Du and Schuster, 2001]. Les coefficients d'interdiffusion pour les différents essais sont donnés dans le tableau 2.5.

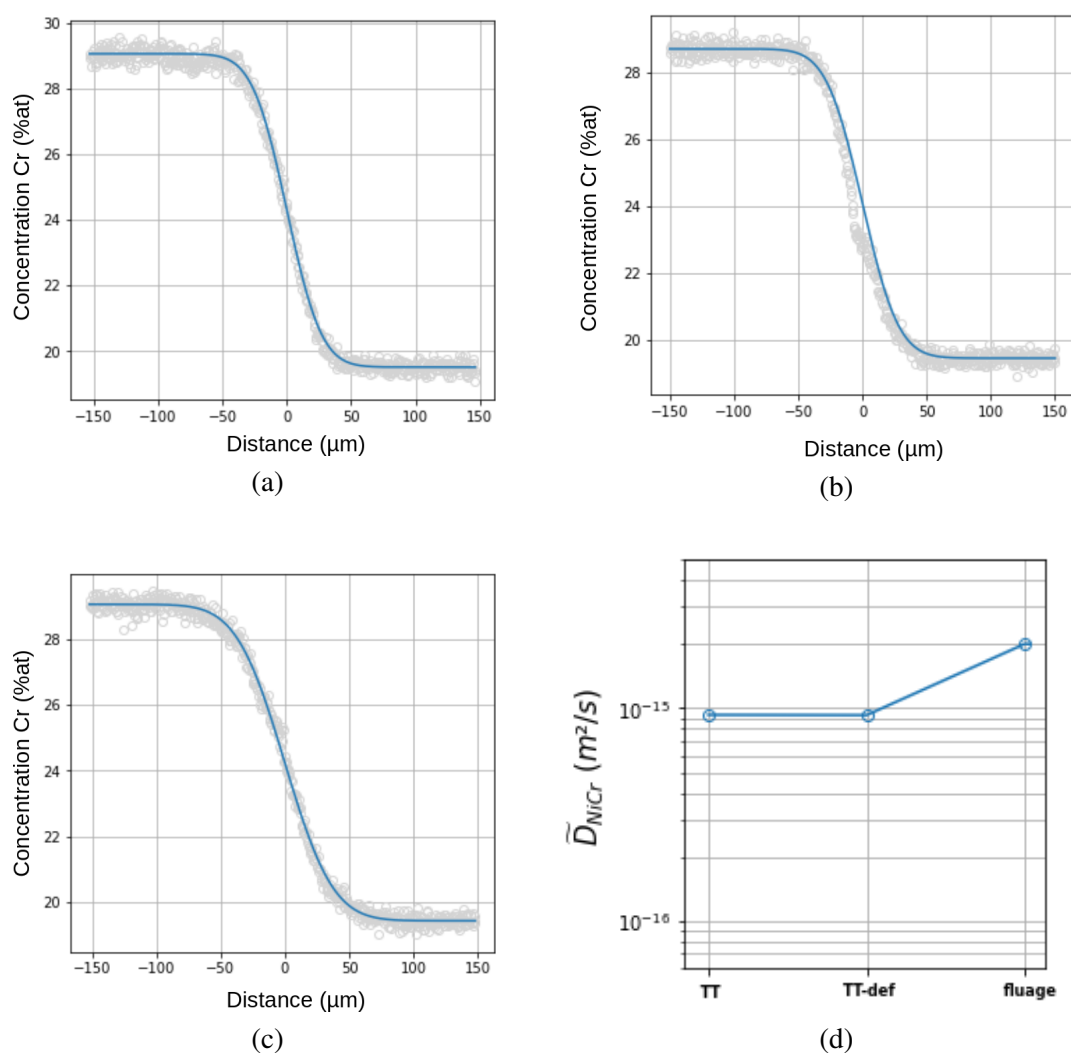


Figure 2.26: Profils de diffusion corrigés des différents essais des couples Ni-20Cr/Ni-30Cr : (a) Référence : diffusion 75h à 1000°C (**TT**), (b) Pré-écrouissage à  $T=25^\circ\text{C}$  + diffusion 75h à 1000°C (**TT-def**), (c) Pré-écrouissage à  $T=25^\circ\text{C}$  + fluage 75h à 1000°C (**fluage**) et (d) coefficient d'interdiffusion

| couple | $\varepsilon$ à $25^\circ\text{C}$ | fluage                   | diffusion    | effet du couplage    | $\bar{D}_{NiCr}(\text{m}^2/\text{s})$ |
|--------|------------------------------------|--------------------------|--------------|----------------------|---------------------------------------|
| NiCr   |                                    |                          | 75h à 1000°C | référence            | $9,3 \cdot 10^{-16}$                  |
| NiCr   | $\varepsilon_{BT}$                 |                          | 75h à 1000°C | $\emptyset$          | $9,28 \cdot 10^{-16}$                 |
| NiCr   |                                    | $\sigma = -25\text{MPa}$ | 75h à 1000°C | + - [C. Salsi et al] | $1,2 \cdot 10^{-15}$                  |
| NiCr   | $\varepsilon_{BT}$                 | $\sigma = -15\text{MPa}$ | 75h à 1000°C | ++                   | $2 \cdot 10^{-15}$                    |

Table 2.5: Résumé des essais réalisés sur le couple Ni20Cr/Ni30Cr et leurs effets sur le couplage diffusion-mécanique ( $\emptyset$  : pas d'effet, + - : faible effet, + : effet constaté et ++ : effet important)



## 2.5 Modèle de couplage diffusion – mécanique

Dans le premier chapitre, le couplage diffusion-mécanique a été traité en considérant les différentes origines de couplage possible. Grâce aux essais mécaniques présentés dans ce chapitre, il est possible de simplifier les équations de couplage en éliminant les termes dont l'effet est négligeable.

### 2.5.1 Rappel des équations du modèle

Dans cette section, nous présentons un résumé des équations de couplage et leurs possibles simplifications. Considérant un domaine  $\Omega_t$  du volume de matière divisé en deux sous-domaines :  $\Omega_u$  sur lequel un déplacement  $\underline{u}^d$  est appliqué et  $\Omega_{td}$  sur lequel des forces  $\underline{t}^d$  sont appliquées (cf. figure 2.27). Les termes liés à la diffusion sont en rouge.

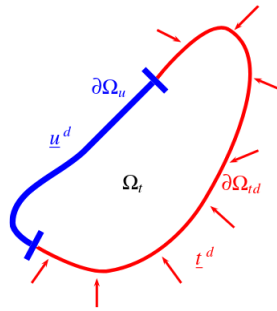


Figure 2.27: Schéma simplifié d'un domaine  $\Omega_t$  du volume de matière.

- Équation d'équilibre mécanique

$$\operatorname{div}(\underline{\sigma}) + \underline{f} = 0 \text{ dans le } \Omega_t \quad \underline{\sigma} \cdot \underline{n} = \underline{t}_0 \text{ à la surface } \partial\Omega_{td} \quad (2.9)$$

- Conservation de la matière :

$$\frac{\partial c}{\partial t} = -\operatorname{div}(\underline{j}) \text{ dans } \Omega_t \quad \underline{j} \cdot \underline{n} = j_0 \text{ à la surface } \partial\Omega_{td} \cup \Omega_u \quad (2.10)$$

$$(2.11)$$

$c$  est la concentration de Cr dans le système Ni-Cr.

- La déformation totale  $\underline{\varepsilon}$  s'écrit :

$$\underline{\varepsilon} = \underline{\varepsilon}^e + \underline{\varepsilon}^p + \underline{\varepsilon}^*(c) \quad (2.12)$$

où

$$\left\{ \begin{array}{l} \underline{\varepsilon}^e : \text{la déformation élastique} \\ \underline{\varepsilon}^p : \text{la déformation plastique} \\ \underline{\varepsilon}^*(c) : \text{la déformation libre} \end{array} \right.$$

$\underline{\varepsilon}^*(c)$  représente le changement de volume associé à la substitution d'espèces sur les sites du réseau (cf. figure 2.28). Elle est donnée par la loi de Vegard :

$$\underline{\varepsilon}^*(c) = \underline{H}(c - c_{ref}) \quad \text{avec} \quad \underline{H} = \frac{\partial \underline{\varepsilon}^*}{\partial c} \quad (2.13)$$

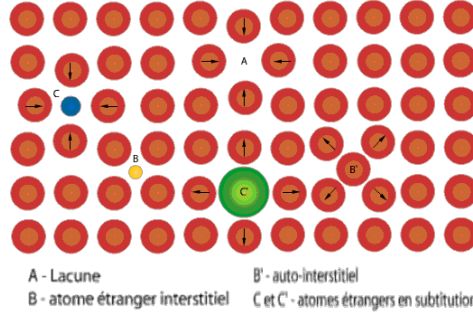


Figure 2.28: Différents défauts de réseau origine de la déformation libre.

- Choix de l'énergie libre :

$$\Psi(\underline{\varepsilon}^e, p, c) = \Psi^{mech,e}(\underline{\varepsilon}^e, c) + \Psi^{mech,p}(p, c) + \Psi^{chem}(c)$$

avec :

$$\begin{cases} \Psi^{chem}(c) = \frac{1}{2}K(c - a_1)^2 + a_2 \\ \Psi^{mech,e}(\underline{\varepsilon}^e, c) = \frac{1}{2}\underline{\varepsilon}^e : \underline{\lambda}(c) : \underline{\varepsilon}^e \\ \Psi^{mech,p}(p, c) = \frac{1}{2}b(c)Q(c)p^2 \text{ [Lemaitre and Chaboche, 1994]} \end{cases}$$

$K$  est la courbure de l'énergie chimique du système Ni-Cr,  $a_1$  est la concentration d'équilibre chimique de Cr et  $a_2$  est l'ordonnée à l'origine.

$b$  et  $Q$  sont les paramètres d'écroutissage isotrope.

$p$  est la plasticité cumulée.

- Modèle thermodynamique, principe des puissances virtuels (PPV), variables d'état =  $(\underline{\varepsilon}^e, p, c)$

$$\mu = \frac{\partial \Psi^{chem}}{\partial c} - \underline{\sigma} : \underline{H} \text{ avec } \underline{H} = \frac{\partial \underline{\varepsilon}^*}{\partial c}$$

$$\underline{\sigma} = \frac{\partial \Psi^{mech}}{\partial \underline{\varepsilon}^e}$$

$$R_p = \frac{\partial \Psi^{mech}}{\partial p} = b(c)Q(c)p$$

- Le coefficient de diffusion dépend de la densité des dislocations [Hart, 1957]. Comme la densité des dislocations est proportionnelle à la plasticité cumulée, le coefficient de diffusion peut être écrit en fonction de la plasticité cumulée :

$$\tilde{D}_{eff} = \tilde{D}_{NiCr}(1 + hp) \quad (2.14)$$

où  $h$  est un paramètre à déterminer

- L'équation de flux chimique sans couplage mécanique-diffusion :

$$\underline{J} = -\tilde{D}_{NiCr}\nabla c$$

- L'équation de flux chimique avec couplage mécanique-diffusion :

$$\underline{J} = A_1(c, \underline{\varepsilon}^e, p)\nabla c + \underline{A}_2(c, \underline{\varepsilon}^e) : \nabla \underline{\varepsilon}^e + A_3(c, p)\nabla p - \nabla(\underline{\sigma} : \underline{H}) \quad (2.15)$$

avec

$$\left\{ \begin{array}{l} \tilde{D}_{eff} = \tilde{D}_{NiCr} (1 + hp) \\ A_1 = -\tilde{D}_{eff} + \frac{\tilde{D}_{eff}}{K} \left[ \frac{1}{2} \tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}^e : \frac{\partial^2 \lambda(c)}{\partial c^2} : \tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}^e + \frac{1}{2} \left( \frac{\partial^2 b(c)}{\partial c^2} Q(c) + 2 \frac{\partial b(c)}{\partial c} \frac{\partial Q(c)}{\partial c} + b(c) \frac{\partial^2 Q(c)}{\partial c^2} \right) p^2 \right] \\ A_2 = \frac{\tilde{D}_{eff}}{K} \left( \tilde{\boldsymbol{\varepsilon}}^e : \frac{\partial \lambda(c)}{\partial c} \right) \\ A_3 = \frac{\tilde{D}_{eff}}{K} \left( \frac{\partial b(c)}{\partial c} Q(c) + b(c) \frac{\partial Q(c)}{\partial c} \right) p \end{array} \right.$$

→ dépendance du coefficient de diffusion à la plasticité

→ dépendance du tenseur d'élasticité à la concentration

→ dépendance de l'écroutissage à la concentration

## 2.5.2 Validation de la diffusion sans couplage avec la mécanique

Afin de valider la diffusion dans le modèle sans tenir compte du couplage avec la mécanique, une fonction parabolique d'énergie chimique  $\psi^{chem}(c) = \frac{1}{2}K(c - a_1) + a_2$  et un coefficient d'interdiffusion constant ont été utilisés. Les paramètres ( $K$ ,  $a_1$  et  $a_2$ ) de l'énergie chimique  $\psi^{chem}(c)$  sont identifiés à l'aide de l'énergie de Gibbs de système binaire Ni-Cr issue de Thermocalc. Enfin, les résultats de simulation sont validés en les comparant aux profils de concentration de Cr expérimentaux (cf. figure 2.29).

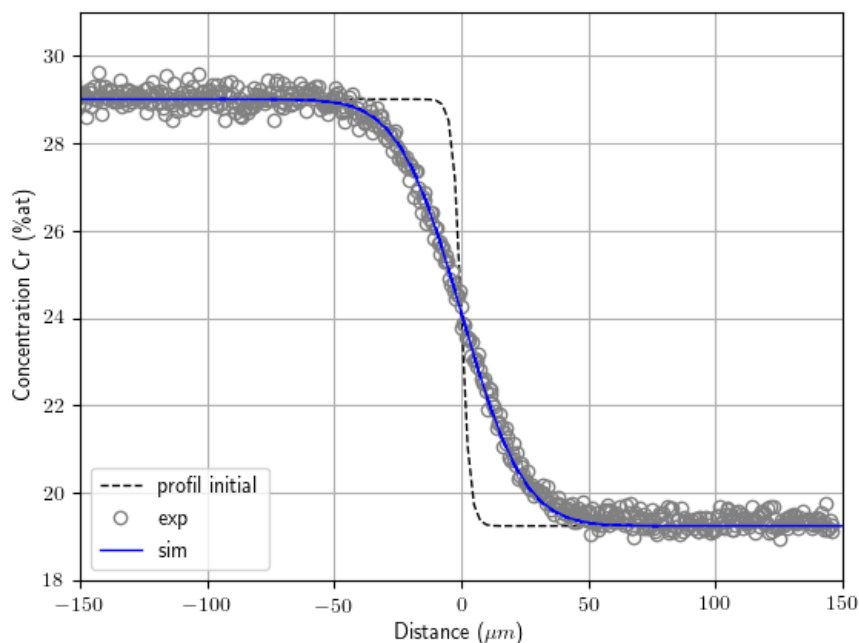


Figure 2.29: Comparaison des profils de concentration de Cr expérimental et simulé pour la diffusion à 1000°C pendant 75h

### 2.5.3 Validation du couplage diffusion – mécanique :

#### a Caractérisation des fonctions $b(c)$ et $Q(c)$

Au niveau de l'interface entre les deux matériaux, la concentration de Cr varie entre les concentrations d'équilibre  $c_1^{eq}$  et  $c_2^{eq}$ . Les paramètres  $b$  et  $Q$  n'ont pas les mêmes valeurs dans les deux matériaux, ils varient en fonction de la concentration en Cr. Une dépendance linéaire des fonctions  $b(c)$  et  $Q(c)$  en fonction de concentration en Cr est considérée. Comme les valeurs de  $b(c)$  et  $Q(c)$  à l'extrémité de l'interface sont connues avec  $c = c_1^{eq}$  et  $c = c_2^{eq}$ , ces valeurs sont utilisées pour déterminer l'expression de fonction  $b(c)$  et  $Q(c)$ . Ci-après les fonctions  $b(c)$  et  $Q(c)$  et leurs dérivées sont données.

$$\left\{ \begin{array}{l} Q(c) = Q_2 \left( \frac{c - c_1^{eq}}{c_2^{eq} - c_1^{eq}} \right) - Q_1 \left( \frac{c - c_2^{eq}}{c_2^{eq} - c_1^{eq}} \right) \\ \frac{dQ(c)}{dc} = \frac{Q_2 - Q_1}{c_2^{eq} - c_1^{eq}} \\ \frac{d^2Q(c)}{dc^2} = 0 \end{array} \right. \quad \left\{ \begin{array}{l} b(c) = b_2 \left( \frac{c - c_1^{eq}}{c_2^{eq} - c_1^{eq}} \right) - b_1 \left( \frac{c - c_2^{eq}}{c_2^{eq} - c_1^{eq}} \right) \\ \frac{db(c)}{dc} = \frac{b_2 - b_1}{c_2^{eq} - c_1^{eq}} \\ \frac{d^2b(c)}{dc^2} = 0 \end{array} \right.$$

où les indices 1 et 2 font références respectivement aux Ni-20Cr et Ni-30Cr.

#### b Simplification de l'expression du flux

On considère qu'il y a indépendance du tenseur d'élasticité à la concentration. Ainsi, le terme  $A_2$  de l'expression de flux avec couplage mécanique et le terme qui contient la dérivée seconde du tenseur d'élasticité s'annulent. Les termes de  $A_1$  qui contiennent les dérivées secondes de  $b(c)$  et  $Q(c)$  sont nulles quand on considère une interpolation linéaire de ces fonctions. En tenant compte de ces simplifications, l'expression de flux avec couplage mécanique s'écrit :

$$\underline{J} = A_1(c, p) \nabla c + A_3(c, p) \nabla p - \nabla(\underline{\sigma} : \underline{H}) \quad (2.16)$$

avec

$$\left\{ \begin{array}{l} \tilde{D}_{eff} = \tilde{D}_{NiCr} (1 + hp) \\ A_1 = -\tilde{D}_{eff} + \frac{\tilde{D}_{eff}}{K} \left[ \frac{\partial b(c)}{\partial c} \frac{\partial Q(c)}{\partial c} p^2 \right] \\ A_3 = \frac{\tilde{D}_{eff}}{K} \left( \frac{\partial b(c)}{\partial c} Q(c) + b(c) \frac{\partial Q(c)}{\partial c} \right) p \end{array} \right.$$

#### c Simulation des essais expérimentaux

L'essai où un pré-écrouissage à température ambiante suivi par un essai de fluage à  $T = 1000^\circ C$  sur le couple de diffusion Ni-20Cr/Ni-30Cr est l'essai où un effet notable de la mécanique sur la diffusion a été constaté (cf. section 4.2.c). C'est pour cela qu'une tentative de simuler cet essai sera présentée dans ce paragraphe. Le profil de concentration de Cr en tenant compte de couplage diffusion-mécanique est donnée dans la figure 2.30. Dans ce cas, les mouvements de dislocations et la diffusion des espèces chimiques sont amplifiés par l'essai de fluage appliqué à haute température. Une valeur de  $h = 14.5$  permet de reproduire le profil de concentration de Cr.

À température ambiante il n'y a pas de diffusion des espèces chimiques, mais des nouvelles dislocations sont introduites dans le matériau suite à l'application du pré-écrouissage. À haute température, il y a deux phénomènes : la diffusion des espèces chimiques et le mouvement des dislocations introduites à température ambiante. Par conséquent, "**On peut considérer que tout atome du cristal passe, au cours de son histoire de diffusion, une fraction de son temps à faire partie d'un noyau de dislocation et le reste du temps dans des sites réguliers du réseau**" [Hart, 1957]. Cela modifie la diffusion des espèces chimiques.

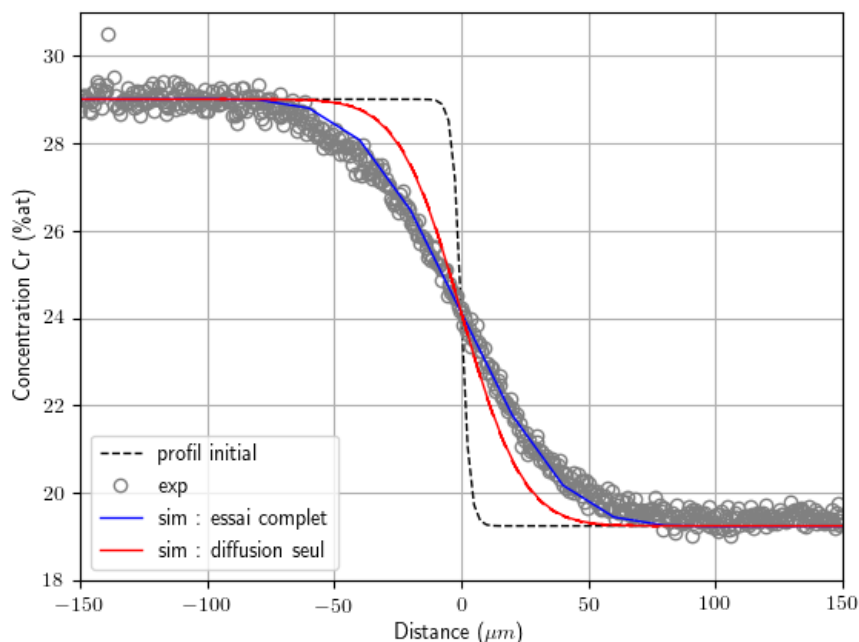


Figure 2.30: Essai de fluage sur le couple de diffusion Ni20Cr/Ni30Cr

## 2.6 Discussion

Afin de bien identifier les coefficients caractérisant le comportement des matériaux et pour s'assurer d'avoir des coefficients de couplage bien identifiés, il faut réaliser d'autres essais comme des essais cycliques, compressions à différentes vitesses, etc. Mais vu la quantité limitée des matériaux disponibles, ces essais n'ont pas été réalisés. La réalisation de ces essais n'a pas été facile, il y a eu des échecs à cause de la faible tenue des quelques éprouvettes au niveau de l'interface qui sépare les deux matériaux qui les constituent.

Ce choix de modélisation a permis de tenir compte du couplage diffusion – mécanique pour le couple binaire Ni – Cr monophasé  $\gamma$ . En effet, les résultats de simulation fournissent une bonne reproduction des résultats expérimentaux. La modélisation d'autres essais où l'effet du couplage diffusion – mécanique est observé permettrait de vérifier la robustesse de ce modèle et sur le rôle de différents valeurs éléments de modèle.

## 2.7 Conclusion

Dans ce chapitre, l'effet de la mécanique sur la diffusion est mis en évidence expérimentalement à l'aide des couples de diffusion binaires Ni – Cr monophasés  $\gamma$  et ternaires Ni – Cr – Al biphasés  $\gamma/\gamma'$ . Le modèle développé dans le premier chapitre a été utilisé pour simuler cet effet en simplifiant les équations de couplage et en éliminant les termes dont l'effet est négligeable.

Par contre, l'effet de la mécanique sur la transformation des phases entre  $\gamma$  et  $\gamma'$  et d'une façon intrinsèque l'effet de la mécanique sur la diffusion des espèces chimique sera le sujet du chapitre suivant en traitant le phénomène de la mise en radeaux des précipités  $\gamma'$  au sein du superalliages monocristallin à base de Nickel.

# Chapter III

## Mise en radeaux de microstructure $\gamma$ - $\gamma'$

---

### Contents

---

|       |  |    |
|-------|--|----|
| 3.1   | Introduction   | 67 |
| 3.2   | État de l'art  | 68 |
| 3.2.1 | Superalliages à base du Nickel   | 68 |
| a     | Optimisation du matériau   | 68 |
| b     | Procédés de fabrication  | 70 |
| 3.2.2 | Mise en radeaux  | 71 |
| a     | Définition   | 71 |
| b     | Types de radeaux   | 71 |
| c     | Étapes de la mise en radeaux   | 72 |
| d     | Forces motrices de la mise en radeaux  | 73 |
| e     | Cinétique de la mise en radeaux  | 74 |
| 3.2.3 | Sensibilités des paramètres thermo-mécaniques sur la mise en radeaux                               | 76 |
| a     | Évolution de la fraction volumique de la phase $\gamma'$   | 76 |
| b     | Influence de la mise en radeaux sur le comportement des superalliages à base de Nickel             | 77 |
| c     | Mise en radeaux obtenue pour des chargements complexes   | 79 |
| 3.2.4 | Modélisation de la mise en radeaux   | 83 |
| a     | Calcul analytique de la mise en radeaux  | 83 |
| b     | Modélisation de la mise en radeaux par la méthode des champs de phase dans le cas élastique        | 84 |
| c     | Modélisation de la mise en radeaux par la méthode des champs de phase dans le cas élasto-plastique | 84 |
| 3.3   | Comportement macroscopique de von Mises d'un superalliage monocristallin à base de Nickel          | 85 |
| 3.4   | Implémentation d'un modèle de champs de phases couplé à la mécanique pour les $\gamma/\gamma'$     | 87 |
| 3.4.1 | Couplage transformation de phase avec la viscoplasticité en utilisant l'approche de Gurtin         | 87 |
| a     | Principe de puissance virtuel et équations d'équilibres  | 88 |
| b     | Formulation thermodynamique  | 89 |
| 3.4.2 | La fonctionnelle d'énergie libre mésoscopique  | 90 |
| a     | Énergie chimique   | 90 |
| b     | Énergie mécanique  | 92 |
| 3.4.3 | Les équations d'évolution  | 94 |
| 3.4.4 | Implémentation éléments finis  | 95 |
| a     | Formulation faible   | 95 |
| b     | Discretisation   | 96 |

|       |  |            |
|-------|--|------------|
| 3.5   | Stratégie d'identification des paramètres . . . . .                          | <b>98</b>  |
| 3.6   | Lien entre sollicitation et la mise en radeaux : calcul analytique . . . . . | <b>100</b> |
| 3.7   | Les paramètres nécessaires pour la mise en radeau . . . . .                  | <b>100</b> |
| 3.7.1 | Effet de désaccord paramétrique (misfit) . . . . .                           | 100        |
| a     | Effet du signe de misfit . . . . .   | 100        |
| b     | Effet de la valeur du misfit . . . . .                                       | 101        |
| c     | Effet de l'anisotropie de misfit . . . . .                                   | 102        |
| 3.7.2 | Effet de chargement sans misfit . . . . .                                    | 104        |
| 3.7.3 | Effet d'inhomogénéité élastique . . . . .                                    | 106        |
| 3.8   | Mise en radeaux d'un précipité $\gamma'$ . . . . .                           | <b>107</b> |
| 3.8.1 | Mise en radeaux type N . . . . .   | 108        |
| 3.8.2 | Mise en radeaux type P . . . . .   | 109        |
| 3.8.3 | Mise en radeaux en 3D . . . . .  | 112        |
| 3.9   | Mise en radeaux d'une microstructure $\gamma$ - $\gamma'$ . . . . .          | <b>114</b> |
| 3.9.1 | Maillage et valeurs des paramètres . . . . .                                 | 114        |
| 3.9.2 | Effet de type de chargement . . . . .  | 115        |
| 3.9.3 | Effet de la viscoplasticité et comparaison avec l'expérience . . . . .       | 116        |
| 3.10  | Conclusion . . . . .   | <b>118</b> |

---

### 3.1 Introduction

La performance des aubes de turbine joue un rôle important dans la détermination de la stabilité et de la durée de vie des avions. Il est nécessaire de développer des matériaux performants pour les aubes de turbine. Les superalliages monocristallins à base de nickel sont actuellement utilisés dans les aubes de turbine en raison de leurs excellentes propriétés mécaniques à température élevée, notamment leur résistance mécanique élevée et leur résistance au fluage. Les excellentes propriétés mécaniques des superalliages sont attribuées à la microstructure biphasée, c'est-à-dire la phase de précipitation  $\gamma'$  et la phase matricielle  $\gamma$ , la phase  $\gamma'$  ordonnée de type  $L1_2$  étant incorporée de manière cohérente dans la phase  $\gamma$  de structure cubique à faces centrées. La phase  $\gamma'$  ordonnée avec une forte fraction volumique (environ 60 à 70 % dans la plupart des cas) sert de phase de renforcement dans les superalliages et entrave le mouvement des dislocations pendant la déformation par fluage. Sous un chargement mécanique à haute température, la morphologie des précipités  $\gamma'$  évolue d'une forme cubique à une forme en plaque, comme le montre la figure 3.1, ce qui est appelé coalescence directionnelle ou mise en radeaux.

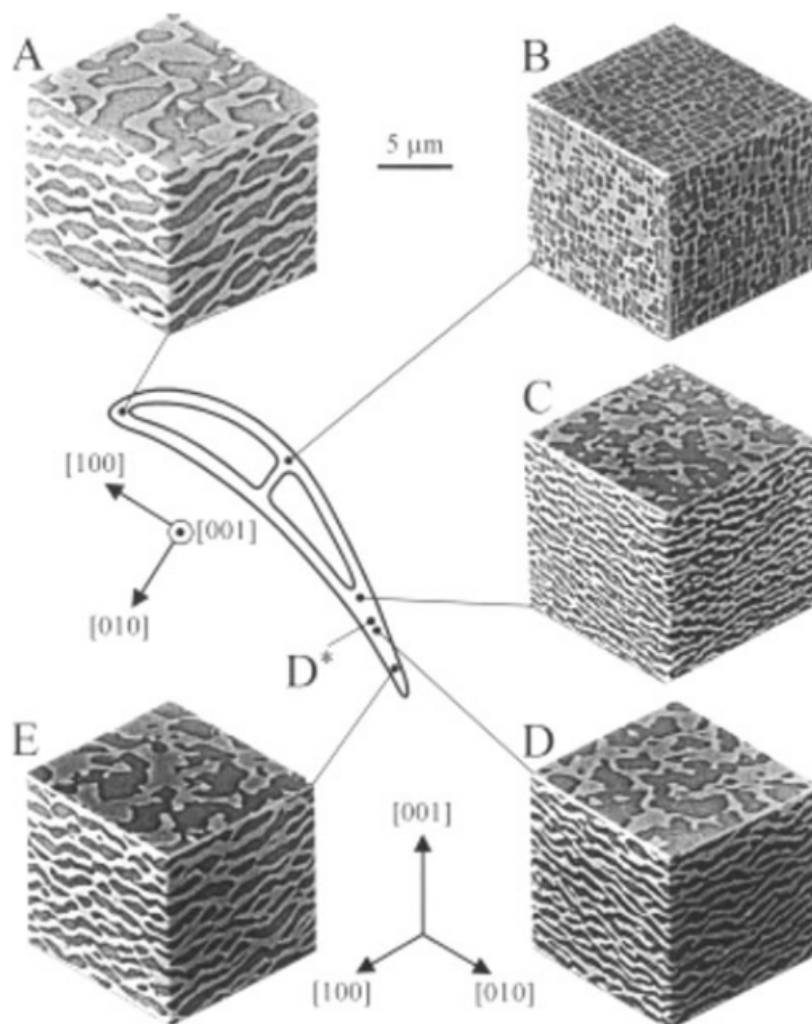


Figure 3.1: Montages tridimensionnels de l'étude MEB des microstructures locales  $\gamma/\gamma'$  à différents endroits de l'aube d'une turbine qui a été soumise à un "test de mission accéléré" dans des conditions de service pendant plusieurs centaines d'heures (d'après von Grossmann et al.) [Mughrabi, 2009]



## 3.2 État de l'art

### 3.2.1 Superalliages à base du Nickel

Les superalliages à base de Nickel sont des systèmes multi-éléments, métastables (cf. tableau 3.1). Ils sont composés de deux phases : la phase  $\gamma$  de structure cristallographique cubique à faces centrées (type FCC A1) et la phase  $\gamma'$  de structure ordonnée (FCC  $L1_2$ ) (cf. figures 3.2 et 3.3). Les propriétés mécaniques élevées de ces matériaux reposent sur la cohérence des phases  $\gamma$  (Ni) et  $\gamma'$  ( $Ni_3X$ ), où X représente Al, Ta ou Ti. Cette microstructure est obtenue après des traitements thermiques impliquant la mise en solution et le vieillissement, ces précipités s'alignent le long de directions cubiques  $\langle 100 \rangle$ .

|     | Co | Cr | Mo  | W | Ta  | Al  | Ti  | C    | Fe  | S       | Ni   |
|-----|----|----|-----|---|-----|-----|-----|------|-----|---------|------|
| Min | 6  | 7  | 1.8 | 5 | 7.5 | 5.1 | 1   |      |     |         | Bal. |
| Max | 7  | 8  | 2.2 | 6 | 8.5 | 5.5 | 1.4 | 0.01 | 0.2 | 0.2 ppm | Bal. |

Table 3.1: Composition d'un superalliage à base de Nickel de première génération AM1 bas soufre (wt%) [Rouzou et al., 2004]

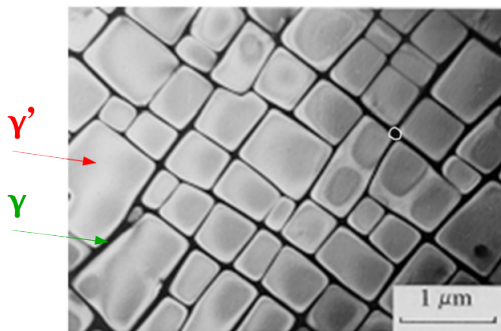


Figure 3.2: Microstructure de ( $\gamma/\gamma'$ ) du superalliage à base de Ni CMSX-2 traité thermiquement [Caron and Lavigne, 2011]

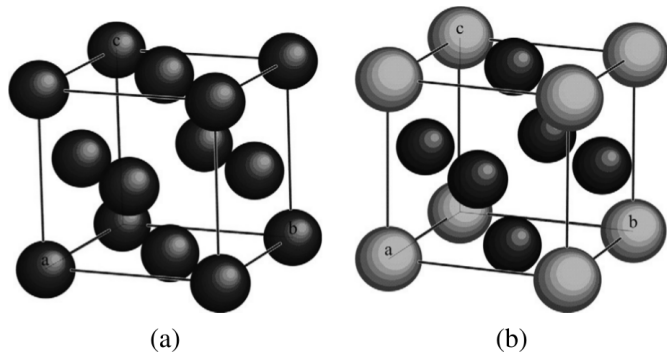


Figure 3.3: (a): structure cubique à faces centrées (FCC A1), et (b): structure ordonnée (FCC  $L1_2$ ) [Nazé et al., 2021]

#### a Optimisation du matériau

Afin de résister aux températures élevées, la résistance mécanique de la matrice  $\gamma$  (Ni) a été augmentée par l'introduction d'éléments en solution solide. À cause d'une répartition différente des éléments d'alliages entre les deux phases  $\gamma$  et  $\gamma'$ , leurs paramètres des mailles sont différents. Cette différence de paramètre de maille engendre une dilatation du réseau dont la magnitude est évaluée par un paramètre  $\delta$  nommé désaccord paramétrique ("misfit" en anglais). Malgré le désaccord paramétrique entre les deux phases, le réseau reste continu. On dit que l'interface entre les phases  $\gamma$  et  $\gamma'$  est cohérente. La résistance mécanique a été renforcée par la précipitation cohérente de la phase  $\gamma'$  ( $Ni_3X$ ), où X représente Al, Ta ou Ti, sous forme des précipités cuboïdaux dans la matrice  $\gamma$  afin de réduire les déséquilibres paramétriques. On observe qu'il existe un optimum de propriétés en fluage pour la taille du précipité (cf. figure 3.4) comme pour la fraction volumique de phase  $\gamma'$  (cf. figure 3.5).

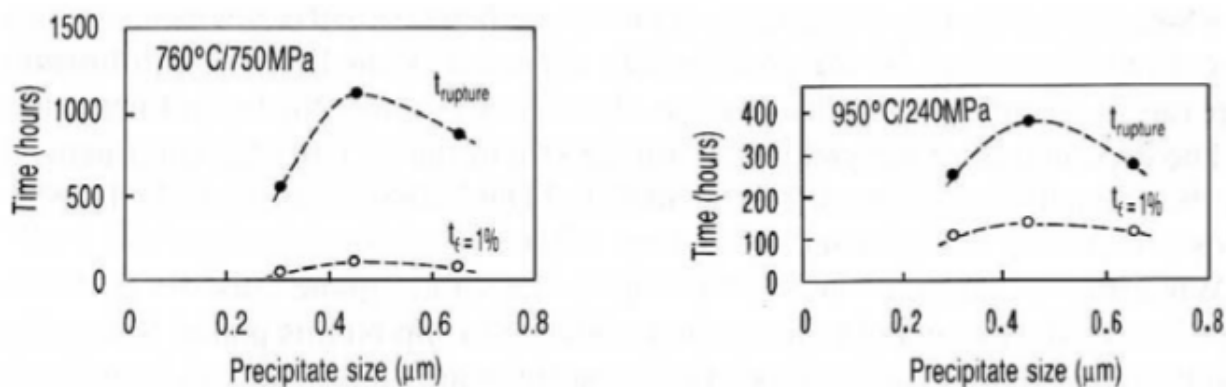


Figure 3.4: Temps de rupture en fluage en fonction de la taille initiale des précipités  $\gamma'$  [Khan et al., 1985]

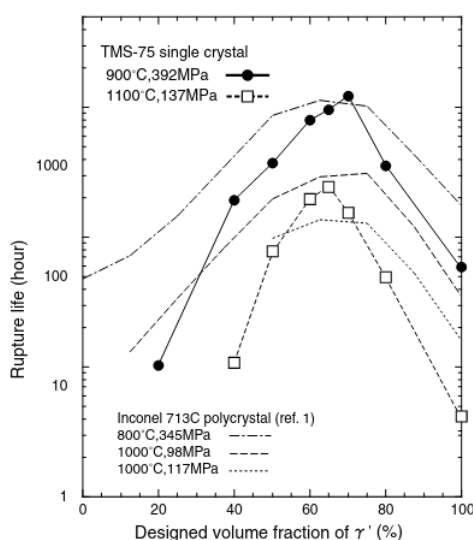


Figure 3.5: Temps de rupture en fluage en fonction de la fraction volumique initiale des précipités  $\gamma'$  [Murakumo et al., 2004]

La résistance mécanique requise pour les applications de turbines a été augmentée en améliorant à la fois la composition chimique et la fabrication des superalliages à base de nickel sur plusieurs générations. La première génération de superalliages à base de Ni a été développée par l'introduction d'éléments en solution solide et par la précipitation cohérente de la phase  $\gamma'(Ni_3X)$ , où X représente Al, Ta ou Ti, sous forme des précipités cuboïdaux dans la matrice  $\gamma$ . La deuxième génération de superalliages à base de Ni a été créée en ajoutant un maximum de 3% en poids de rhénium (Re), ce qui a amélioré la résistance au fluage à haute température [Yeh et al., 2008]. Cependant, la quantité totale d'éléments de renforcement, y compris le Cr, le Mo et le W, a dû être réduite pour empêcher la formation de phase topologiquement compactes (TCP). La troisième génération de superalliages a été développée en augmentant la teneur en Re à 6% en poids et en ajoutant de faibles quantités de ruthénium (Ru) dans certains cas, au détriment de la résistance à la corrosion à chaud et à l'oxydation. Parallèlement, la teneur en Cr a été réduite à environ 4% en poids, ce qui a encore diminué les propriétés de résistance à la corrosion à chaud. Les superalliages de quatrième et cinquième générations contiennent des concentrations plus élevées de rhénium (Re) et de ruthénium (Ru), comme illustré à la figure 3.6. Toutefois, le développement d'une sixième génération a été abandonné. En effet, la présence des phases TCP et SRZ, en interaction avec le revêtement, a provoqué une diffusion incontrôlée et des changements de phases entre le superalliage et le revêtement. Ces phénomènes ont endommagé le matériau, créant des zones susceptibles de provoquer des fissures.

|                                | Alliage | Ni   | Cr  | Co   | Mo   | W   | Al   | Ti  | Ta  | Re  | Ru | autre  | d<br>(g.cm <sup>-3</sup> ) |
|--------------------------------|---------|------|-----|------|------|-----|------|-----|-----|-----|----|--------|----------------------------|
| 1 <sup>ère</sup><br>génération | CMSX-2  | Bal. | 8   | 4,6  | 0,6  | 7,9 | 5,6  | 0,9 | 5,8 | -   | -  | -      | 8,56                       |
|                                | SRR99   | Bal. | 8,5 | 5    | -    | 9,5 | 5,5  | 2,2 | 2,8 | -   | -  | -      | 8,52                       |
|                                | AM1     | Bal. | 7,5 | 6,5  | 2    | 5,5 | 5,3  | 1,2 | 8   | -   | -  | -      | 8,6                        |
|                                | AM3     | Bal. | 8   | 5,5  | 2,25 | 5   | 6    | 2   | 3,5 | -   | -  | -      | 8,25                       |
| 2 <sup>ème</sup><br>génération | MC2     | Bal. | 8   | 5    | 2    | 8   | 5    | 1,5 | 6   | -   | -  | -      | 8,63                       |
|                                | CMSX-4  | Bal. | 6,5 | 9    | 0,6  | 6   | 5,6  | 1   | 6,5 | 3   | -  | -      | 8,7                        |
| 3 <sup>ème</sup><br>génération | René N5 | Bal. | 7   | 8    | 2    | 5   | 6,2  | -   | 7   | 3   | -  | Hf 0,2 | 8,65                       |
|                                | MCNG    | Bal. | 4   | -    | 1    | 5   | 6    | 0,5 | 5   | 4   | 4  | Hf 0,1 | 8,75                       |
|                                | CMSX-10 | Bal. | 2   | 3    | 0,4  | 5   | 5,7  | 0,2 | 8   | 6   | -  | Nb 0,1 | 9,05                       |
|                                | René N6 | Bal. | 4,2 | 12,5 | 1,4  | 5,4 | 5,75 | -   | 7,2 | 5,4 | -  | C 0,05 | 8,97                       |

Figure 3.6: Compositions des quelques superalliages de divers générations (% mass.) [Diologent, 2002]

## b Procédés de fabrication

La figure 3.7 illustre l'évolution microstructurale des structures polycristallines à grains équiaxes vers des structures monocristallines plus performantes. La structure conventionnelle à grains équiaxes (EQ) formée par coulée présente de multiples joints de grains, qui constituent des points privilégiés pour l'amorçage des fissures. De plus, au niveau des joints de grains se créent des phases fragiles lorsque des contraintes sont appliquées à haute température, même si l'utilisation du hafnium Hf réduit la diffusion aux joints de grains [Sims et al., 1987]. La méthode de solidification dirigée (DS) a été utilisée pour orienter les cristaux le long de la direction de l'axe de sollicitation principal (centrifuge pour les aubes) ce qui permet d'augmenter les performances mécaniques en fluage, limitées par les joints de grains : l'élimination des joints de grains normaux à la direction de la contrainte permet d'augmenter la résistance au fluage à haute température [Sims et al., 1987]. Enfin, la morphologie monocristalline (SX) a été créée en supprimant tous les joints de grains afin d'améliorer encore le comportement à haute température des matériaux [Sims et al., 1987].

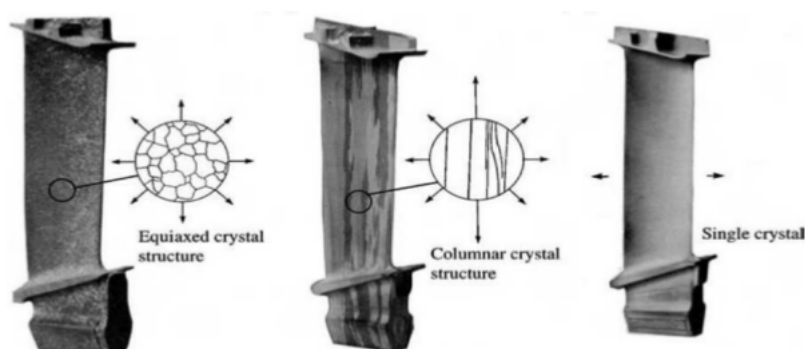


Figure 3.7: Évolution des microstructures des aubes des turbines : la microstructure équiaxe de la coulée conventionnelle et les microstructure solidifiées directionnelles à grains colonnaires et monocristallines [Reed, 2006]

À partir des années 60, le procédé de croissance dirigée permet la fabrication des superalliages monocristallins qui peuvent supporter des température plus élevées. Ce procédé consiste à fondre un alliage polycristallin à une température supérieure à la température de liquidus. Dans un four à gradient thermique, un seul grain est choisi selon [100] grâce à un sélecteur de grain. Le moule est ensuite déplacé avec une vitesse de tirage de  $10 \text{ cm.h}^{-1}$  et sous un gradient thermique de  $40 \text{ }^\circ\text{C.cm}^{-1}$  (cf. figure 3.8).

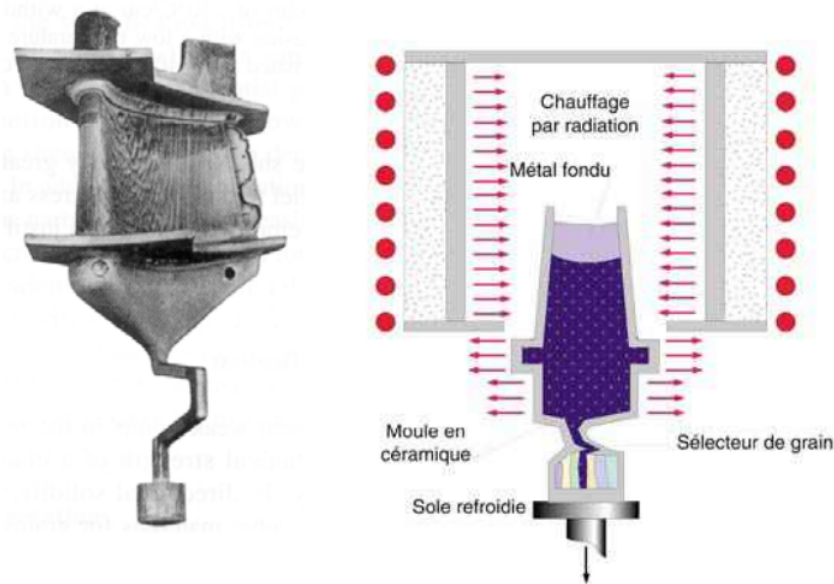


Figure 3.8: Principe de fabrication de superalliage monocristalin [Touratier, 2008]

### 3.2.2 Mise en radeaux

#### a Définition

La mise en radeaux ou le "rafting" en anglais est un processus complexe qui peut conduire au durcissement ou à l'adoucissement des superalliages à base de nickel pendant le fluage, ce qui nécessite une compréhension de l'évolution de la structure de rafting sous une charge mécanique à température élevée. Pour étudier le comportement de rafting, deux catégories de méthodes sont utilisées : des méthodes expérimentales et des simulations numériques. Les méthodes numériques sont devenues une approche majeure pour comprendre l'évolution de la microstructure associée au processus de rafting (par la méthode des éléments finis ou par la méthode de transformation de Fourier rapide(FFT)).

#### b Types de radeaux

Dans leurs recherches initiales sur la mise en radeaux de  $\gamma'$  dans les superalliages monocristallins à base de nickel avec une orientation [001], Tien et Copley [Tien and Copley, 1971] ont découvert que ce phénomène altère non seulement la morphologie de la phase  $\gamma'$ , mais affecte également la formation de réseaux de dislocations et la distribution d'atomes de soluté à l'interface  $\gamma/\gamma'$ .

Selon la morphologie de la phase  $\gamma'$ , Fredholm et Strudel [Fredholm and Strudel, 1984] ont catégorisé les radeaux en deux types, type N et type P, qui sont respectivement normaux et parallèles à la contrainte appliquée. Il est intéressant de noter que les radeaux de type N peuvent affaiblir les performances de fatigue des alliages, alors que les radeaux de type P peuvent en fait les améliorer [Mughrabi et al., 1997].

Les monocristaux qui sont chargés mécaniquement dans la direction  $\langle 001 \rangle$  peuvent former des structures de radeaux soit parallèles (type P) soit normales (type N) à la direction de la charge externe. L'orientation du rafting est influencée par divers facteurs, notamment le signe de la contrainte appliquée,  $\sigma^A$  (positif pour une charge de traction et négatif pour une charge de compression), le désaccord paramétrique (misfit)  $\delta$  de la maille  $\gamma/\gamma'$  et  $\Delta G$  représente le rapport de rigidité du précipité  $\gamma'$  par rapport à la matrice  $\gamma$ , où  $\Delta G > 1$  correspond à des précipités durs et  $\Delta G < 1$  correspond à des précipités mous [Schmidt and Gross, 1999] [Gururajan and Abinandanan, 2007].

Le désaccord de maille  $\delta$  est calculé par la formule suivante  $\delta = \frac{2(a_{\gamma'} - a_{\gamma})}{(a_{\gamma'} + a_{\gamma})}$ , où  $a_{\gamma'}$  et  $a_{\gamma}$  sont respectivement les paramètres de maille des phases  $\gamma'$  et  $\gamma$ . Les superalliages commerciaux à base de nickel ont un

misfit négatif à température ambiante, mais son amplitude diminue au fur et à mesure que la température augmente [Sugui et al., 2010] [Mughrabi, 2014].

Les structures de radeaux de type P se forment lorsque  $\sigma^A \delta(1 - \Delta G) < 0$ , tandis que les structures de radeaux de type N se forment lorsque  $\sigma^A \delta(1 - \Delta G) > 0$  (cf. figure 3.9).

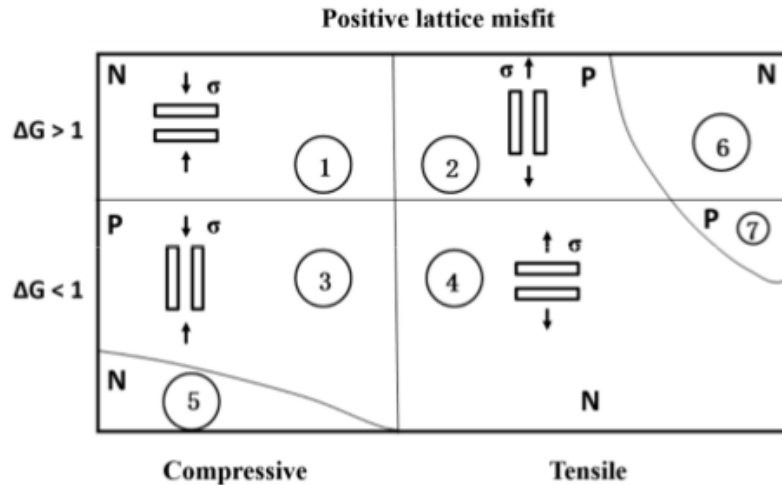


Figure 3.9: Types de mise en radeau sous chargement dans la direction  $\langle 001 \rangle$  et avec un misfit positif [Yu et al., 2020b]

### c Étapes de la mise en radeaux

Selon Paris et al. [Paris et al., 1997], le processus de formation de radeaux de  $\gamma'$  implique trois étapes. Dans la première étape, une augmentation uniforme de la formation de radeaux a été observée. Dans un superalliage bien traité, les canaux de la phase  $\gamma$  contiennent très peu de dislocations, tandis que les cubes de  $\gamma'$  n'en contiennent presque pas. Lorsqu'une contrainte est appliquée le long d'un axe cubique, les dislocations dans les couloirs de  $\gamma$  commencent à se déplacer et à se multiplier dans ces couloirs. Le mouvement des dislocations est dû aux contraintes causées par le misfit et les forces externes. Dans le cas d'une contrainte de traction appliquée à un alliage avec un misfit négatif, les dislocations ont tendance à se déplacer principalement dans les couloirs de la phase  $\gamma$  perpendiculaires à l'axe de contrainte. En raison de la symétrie quadruple de l'axe de contrainte et du système centro-symétrique, de nombreux systèmes de glissement de la matrice cubique centrée subissent des niveaux de contrainte similaires. L'interaction de ces systèmes conduit à la formation de réseaux de dislocations sur les interfaces  $\gamma/\gamma'$ , qui accommodent le misfit de manière complexe.

Dans la deuxième étape, la vitesse de formation de radeaux de  $\gamma'$  augmente en raison de la redistribution des éléments de formation de  $\gamma'$  (Al, Ti, Ta, etc.) par flux de diffusion.

La troisième étape implique un ralentissement de la vitesse de formation de radeaux des précipités  $\gamma'$  à mesure que la force motrice diminue. La formation de dislocations à l'interface  $\gamma/\gamma'$  conduit à un changement du gradient du potentiel chimique. Les dislocations à l'interface sont critiques pour la formation de radeaux de  $\gamma'$ . Les expériences révèlent que l'interface  $\gamma/\gamma'$  est difficile à maintenir sous un recuit prolongé, même lorsque la contrainte appliquée est aussi faible que 40 MPa. Le mouvement des dislocations peut bénéficier de la distribution de composition inhomogène et de l'état de chauffage.

En traçant la courbe de vitesse de la déformation plastique  $\dot{\epsilon}^p$  en fonction de la déformation plastique  $\tilde{\epsilon}^p$  au lieu de la courbe de  $\dot{\epsilon}^p$  en fonction de temps, il est possible de déterminer l'instant où la mise en radeaux commence pour les essais de fluage à une température inférieure à 950°C. De plus, pour les essais de fluage à une température supérieure à 950°C, il est possible de déterminer à partir de cette courbe l'instant où la mise en radeaux commence et le moment où la mise en radeaux se termine. En effet, pour les températures inférieures à 950°C un durcissement est observé au début de l'essai manifesté par une diminution de la

vitesse de déformation plastique jusqu'à atteindre un minimum. Quand ce minimum a été dépassé, la mise en radeaux va commencer et s'accompagner d'un adoucissement [Mughrabi and Tetzlaff, 2000]. Pour les températures supérieures à 950°C, les mêmes observations ont été trouvées, mais en plus un deuxième minimum a été observé qui indique la fin de la mise en radeaux.

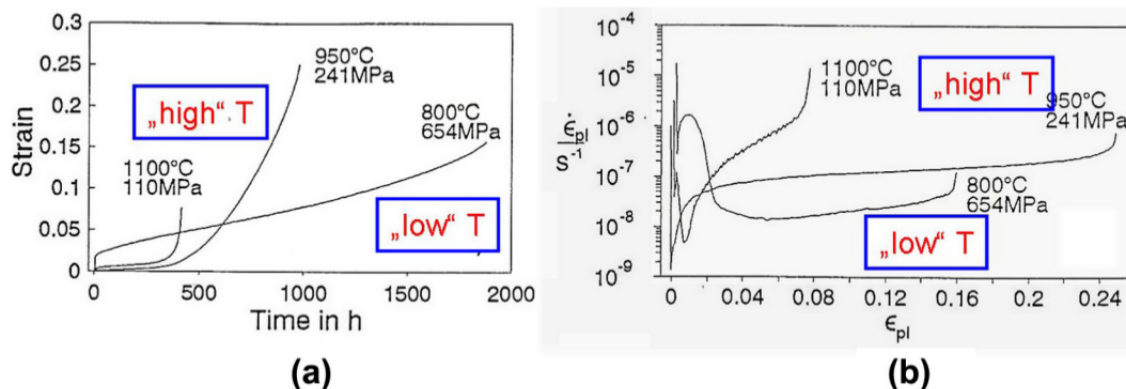


Figure 3.10: Comparaison de courbes de fluage de CMSX-4 à différentes températures et différentes contraintes: (a) courbe de déformation plastique  $\epsilon_{pl}$  en fonction de temps (b) courbe de vitesse de déformation plastique  $\dot{\epsilon}_{pl}$  en fonction de déformation plastique [Mughrabi, 2009]

#### d Forces motrices de la mise en radeaux

Carry et Strudel [Carry and Strudel, 1978] ont observé lors de l'analyse de fluage d'un alliage monocristallin que les dislocations pouvaient se déplacer le long du bord des précipités  $\gamma'$  c'est-à-dire à l'interface  $\gamma - \gamma'$ . De plus, la direction du rafting serait étroitement liée à la distribution des dislocations, ce qui signifie que l'ancienne interface  $\gamma/\gamma'$  lieu de la coalescence des précipités  $\gamma'$ , était l'interface où les dislocations formées étaient les plus denses. La déformation plastique est un facteur clé dans la mise en radeaux de  $\gamma'$ . La montée et le glissement des dislocations pendant le fluage peuvent favoriser le fluage de  $\gamma'$  et accélérer la formation de radeaux de  $\gamma'$  [Pollock and Argon, 1992].

Paris et al. [Paris et al., 1997] ont observé que la formation de réseaux de dislocations coïncidait avec le début du rafting de  $\gamma'$ . Ils ont conclu que le mécanisme du rafting de  $\gamma'$  est entraîné par la plasticité, et que les dislocations de glissement se forment de manière préférentielle dans les canaux horizontaux de  $\gamma$ .

Matan et al. [Matan et al., 1999] ont suggéré qu'un échantillon sans chargement peut continuer la mise en radeaux pour une déformation critique supérieure à 0,1%. Cela est dû au fait qu'une fois la déformation critique atteinte, la densité de dislocations a atteint une valeur critique dans le canal  $\gamma$ , ce qui rend les dislocations plus difficiles à déplacer. Après le retrait de la contrainte appliquée, les dislocations s'accumulent à l'interface  $\gamma/\gamma'$ . Le mouvement des dislocations dans les superalliages à haute température soulage les contraintes de misfit et favorise la coalescence directionnelle des précipités  $\gamma'$  par formation de radeaux. L'évolution de la microstructure et le processus de formation de radeaux sont déterminés par la déformation plastique dans les matrices  $\gamma$  (canaux).

La formation de structures de radeaux de type N sous charge de traction peut se produire même dans des microstructures  $\gamma/\gamma'$  homogènes ( $\gamma$  et  $\gamma'$  ont les mêmes propriétés mécaniques  $\Delta G = 1$  (cf. section b page 71)) en raison de la présence des dislocations dans les canaux horizontaux de la phase  $\gamma$  à l'état initial [Zhou et al., 2008].

Pollock et Argon [Pollock and Argon, 1994] ont remarqué que le rafting de  $\gamma'$  se produit en raison de la diffusion directionnelle des éléments d'alliage. L'effet des atomes de soluté, le taux de diffusion des atomes pendant le fluage et la force motrice du rafting de  $\gamma'$  dépendent de la contrainte de cohérence de l'interface  $\gamma/\gamma'$ .

Le rafting de  $\gamma'$  se produit en raison du gradient de contrainte induit par la diffusion directionnelle des éléments d'alliage. Les éléments formant la phase  $\gamma'$  (Al, Ti, Ta, etc.) et les éléments formant la phase  $\gamma$  (Cr,

Mo, etc.) diffusent dans des directions opposées, ce qui entraîne la croissance et la connexion de la phase  $\gamma'$  dans une direction spécifique, et finalement cause la mise en radeaux (cf. figure 3.11).

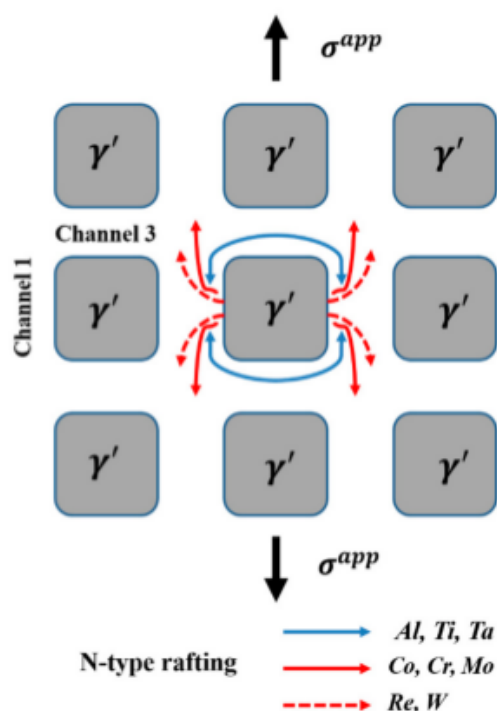


Figure 3.11: Schéma de diffusion des éléments chimiques sous traction dans la direction  $\langle 001 \rangle$  et avec un misfit positif [Yu et al., 2020b]

Ignat et al. [Ignat et al., 1993] ont constaté que la diffusion d'atomes entraînée par l'énergie de désaccord cristallin non relaxée peut affaiblir l'interaction entre les dislocations. La diffusion des atomes est activée sur différentes faces en fonction du type de rafting.

La distribution de contrainte interne dans les grains/cristaux de phase  $\gamma/\gamma'$  est affectée à la fois par la contrainte appliquée et la contrainte inhérente au misfit, car le potentiel chimique dépend de l'état de contrainte local [Kamaraj, 2003]. La différence de potentiels chimiques entre les phases  $\gamma'$  et  $\gamma$  sous charge de traction provoque le déplacement des atomes de la phase  $\gamma$  depuis les canaux de  $\gamma$  horizontaux vers les canaux  $\gamma$  verticaux, tandis que les atomes presque insolubles se déplacent loin des canaux  $\gamma$  verticaux, ce qui entraîne la formation de structures de radeaux perpendiculaires à la direction de chargement de traction.

On conclut qu'il y a un couplage fort entre la diffusion des éléments chimiques et la distribution des dislocations qui est liée à la distribution des contraintes.

### e Cinétique de la mise en radeaux

Le processus de mise en radeau est essentiellement un processus de diffusion limité par la contrainte, qui dépend de facteurs tels que la contrainte appliquée ( $\sigma^A$ ), l'écart de paramètre de maille de réseau  $\delta$  (misfit) et la différence de propriétés mécaniques ( $\Delta G$ ) entre les phases  $\gamma$  et  $\gamma'$  [Kamaraj, 2003]. Les cinétiques de la formation de radeaux de  $\gamma'$  ont un comportement non linéaire, car le facteur de contrôle principal est la diffusion en phase solide [Pearson et al., 1980; Paris et al., 1997]. Pour déterminer la cinétique de formation de radeaux, des caractéristiques microstructurales telles que la largeur des canaux  $\gamma$  [Fan et al., 2015; Fedelich et al., 2009], la forme de la phase  $\gamma$  [Caron et al., 2008] et la dimension de la phase  $\gamma'$  [Tinga et al., 2009] ont été utilisées. La microscopie électronique à balayage (MEB) et la microscopie électronique en transmission (MET) peuvent capturer des images de microstructures, et des algorithmes de traitement d'images tels que la méthode de nombre de connectivité [Caron et al., 2008], la méthode d'auto-corrélation

[Bergonnier et al., 2007; Caccuri et al., 2018], la méthode d'interception rotationnelle [Caccuri et al., 2018], l'analyse de Fourier [Epishin et al., 2000] et la méthode d'invariants de moment [Nguyen et al., 2016] permettent d'analyser les caractéristiques géométriques des microstructures.

Fedelich et al. [Fedelich et al., 2009] ont proposé une variable sans dimension  $\xi = \frac{w(t) - w_{cube}}{w_{raft} - w_{cube}}$  pour analyser la formation de radeaux, qui est calculée en fonction de la largeur du canal de  $\gamma$  à l'instant  $t$   $w(t)$  (cf. figure 3.12), des largeurs de canal de la structure cubique ( $w_{cube}$ ) et de la structure de radeau ( $w_{raft}$ ), et est corrélée à la fraction volumique de la phase  $\gamma'$  ( $f_v(\gamma')$ ) et à la périodicité de la microstructure ( $\lambda$ ).  $\xi$  varie entre 0 (morphologie cubique initiale) et 1 (morphologie de radeau complète).

En utilisant les lois de la théorie de Lifshitz-Slyozov-Wagner (LSW) et l'équation d'Arrhenius, Epishin et al [Epishin et al., 2008] ont établi le loi d'évolution de la largeur de couloir en fonction de chargement appliqué, dépendant de la température pour le superalliage CMSX-4. Le modèle proposé est défini par :

$$\dot{w} = A \exp\left(-\frac{Q - U(T)\sigma}{RT}\right) \quad (3.1)$$

où  $A$  est une constante,  $Q$  est l'énergie d'activation de la mise en radeau,  $\sigma$  est la contrainte appliquée et  $U(T) = U_T(T - T_0)^n$ ,  $n$  et  $U_T$  des constantes et  $T_0$  le température à partir de laquelle la mise en radeaux commence.

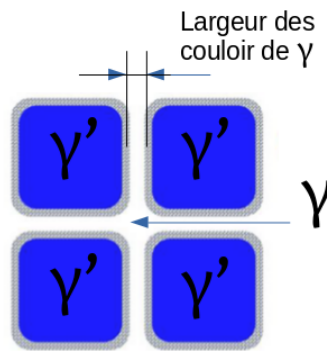


Figure 3.12: Schéma de largeur de couloir  $w$  de la phase  $\gamma$  : avant la mise en radeau  $w = w_{cube}$ , pendant la mise en radeau  $w = w(t)$  et à la fin de la mise en radeau  $w = w_{raft}$

L'évolution microstructurale est contrôlée par la compétition entre la mise en radeaux (coalescence orientée) et la coalescence tri-directionnelle ("coarsening") : au début de l'essai de fluage la mise en radeaux est dominante jusqu'à avoir une largeur de couloir égale à  $W = 3W_0$  avec  $W_0$  la largeur initiale de couloir. Par la suite, la coalescence tri-directionnelle est dominante par rapport à la mise en radeaux (cf. figure 3.13).

Epishin et al. [Epishin et al., 2008] ont étudié l'influence des paramètres de l'essai sur l'évolution de largeur de couloir  $\gamma$ . Ces auteurs ont trouvé que la cinétique de la mise en radeaux dépend fortement de la température en premier lieu suivi par la valeur de chargement appliqué (cf. figure 3.14).

Tinga et al. [Tinga et al., 2009] ont proposé sur la base des travaux de Epishin et al. [Epishin et al., 2008] une extension du modèle de la mise en radeaux à l'espace tri-dimensionnel sous contrainte multiaxiale, qui est définie par :

$$\dot{L}_i = \frac{-3}{2} L_i \left( \frac{\sigma'_{ii}}{\sigma_M + \sigma_\delta} \right) \frac{A^*}{L_0} \exp\left(-\frac{Q - \sigma_M U_T}{RT}\right) \quad (i = 1, 2, 3) \quad (3.2)$$

Il prend en compte les dimensions de la phase  $\gamma'$  le long de trois directions orthogonales ( $L_i$ ), les composantes diagonales du tenseur de contrainte déviatorique ( $\sigma'_{ii}$ ), la contrainte de von Mises ( $\sigma^M$ ), le volume d'activation thermique par cisaillement ( $U_T$ ), l'énergie d'activation ( $Q$ ), la constante de gaz parfaits ( $R$ ), la température absolue ( $T$ ), les constantes ( $A^*$  et  $\sigma_\delta$ ), et la dimension du précipité  $\gamma'$  initiale de forme cubique ( $L_0$ ).



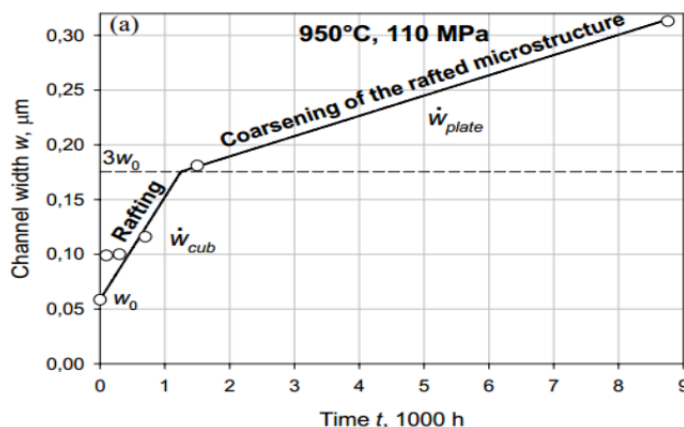


Figure 3.13: Évolution de la largeur de couloir de la phase  $\gamma$  pendant un essai de fluage de CMSX-4 à  $T = 950^{\circ}\text{C}$  sous un chargement  $\sigma = 110\text{MPa}$  [Epishin et al., 2008]

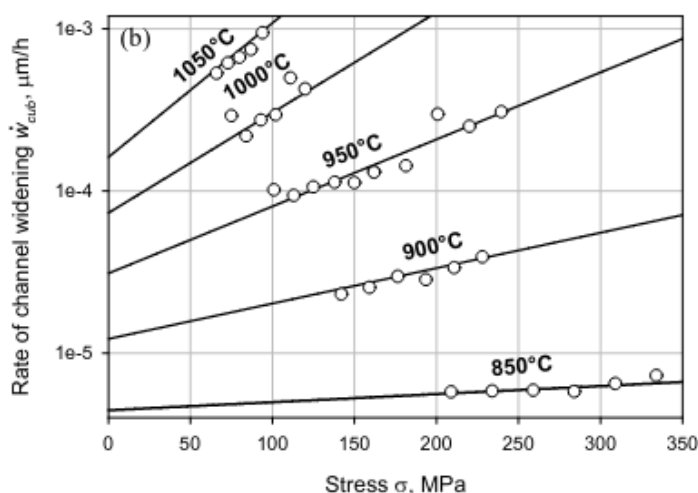


Figure 3.14: Évolution de la vitesse d'augmentation de la largeur de couloir de la phase  $\gamma$  pendant la partie de l'essai de fluage de CMSX-4 dans laquelle la mise en radeaux est dominante à différentes valeurs de température et sous différentes valeurs de chargement [Epishin et al., 2008]

Le processus de mise en radeau du type P s'achève plus rapidement que la mise en radeau de type N puisque les atomes d'Al circulent à partir de deux canaux verticaux vers un canal horizontal de la phase  $\gamma$  dans le cas de la mise en radeau de type P. Cela conduit à la formation de précipités  $\gamma'$  dont la morphologie est équivalente à une fibre [Zhou et al., 2009].

### 3.2.3 Sensibilités des paramètres thermo-mécaniques sur la mise en radeaux

#### a Évolution de la fraction volumique de la phase $\gamma'$

Le traitement thermique de superalliage à haute température d'environ  $T = 900 - 950^{\circ}\text{C}$  permet de maintenir une valeur stable de la fraction volumique de la phase  $\gamma'$  d'environ 70%. Cependant, pour les températures supérieures, la valeur de la fraction diminue rapidement. La fraction volumique de la phase  $\gamma'$  influe énormément sur les propriétés du superalliage en fluage. Pour avoir une fraction volumique de  $\gamma'$  stabilisée, il faut que le maintien isotherme en température soit assez long afin d'établir un équilibre thermodynamique. Cela est montré par plusieurs travaux comme ceux de [Roebuck et al., 2001; Serin et al., 2004; Cormier, 2006] (cf. figure 3.15)

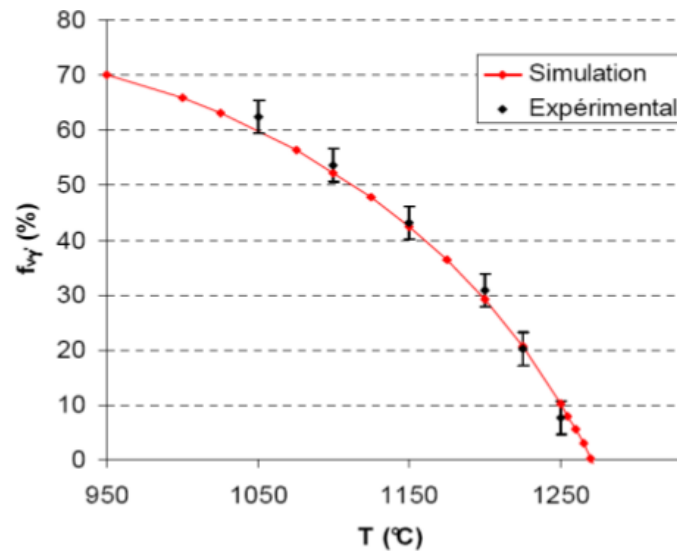


Figure 3.15: Dépendance de la fraction volumique à la température [Cormier, 2006]

Selon les recherches de J. Cormier [Cormier, 2006], après 45 minutes de maintien à des températures comprises entre 1100°C et 1200°C, la fraction surfacique d'équilibre n'est pas encore atteinte (cf. figure 3.16), avec une incertitude de 2 à 5%. Lorsqu'une charge mécanique est appliquée, la fraction surfacique de  $\gamma'$  est diminuée [Cormier, 2006; Serin et al., 2004]. Spécifiquement, à 1200°C, J. Cormier [Cormier, 2006] a démontré qu'une contrainte de 60 MPa entraîne une baisse de 10% de la valeur d'équilibre (cf. figure 3.16).

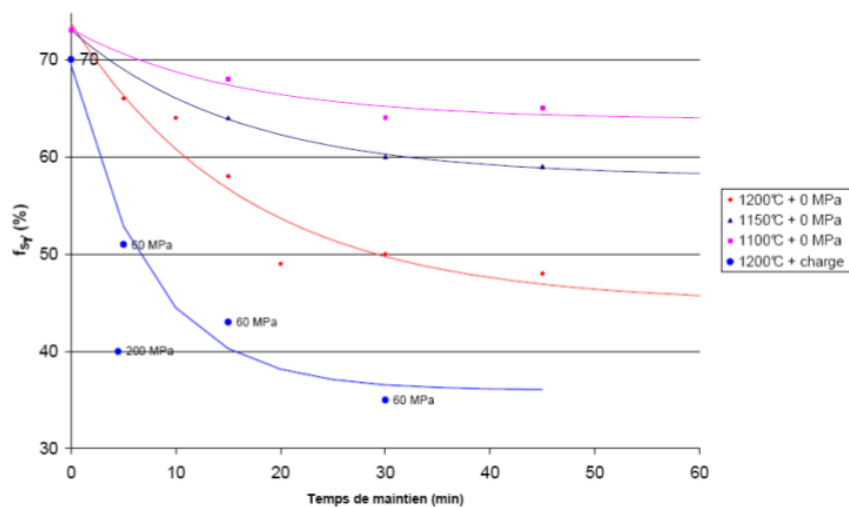


Figure 3.16: Dépendance de la fraction volumique de  $\gamma'$  au chargement et à la température en régime transitoire [Cormier, 2006]

### b Influence de la mise en radeaux sur le comportement des superalliages à base de Nickel

Les propriétés mécaniques de traction des superalliages monocristallins à base de Nickel, comme la limite d'élasticité et la contrainte de traction ultime, sont influencées par le phénomène de mise en radeaux. Ces effets ont été étudiés par Epishin et al. [Epishin et al., 2008]. En effet, la mise en radeaux provoque un changement dans la courbe de traction (cf. figure 3.17). Ces changements sont plus prononcés pour les hautes températures. Une diminution importante est observée dans la limite d'élasticité pendant l'essai de traction à température ambiante et une dégradation de la contrainte de traction ultime est observée au cours de l'essai de traction à température  $T = 950^\circ\text{C}$ .

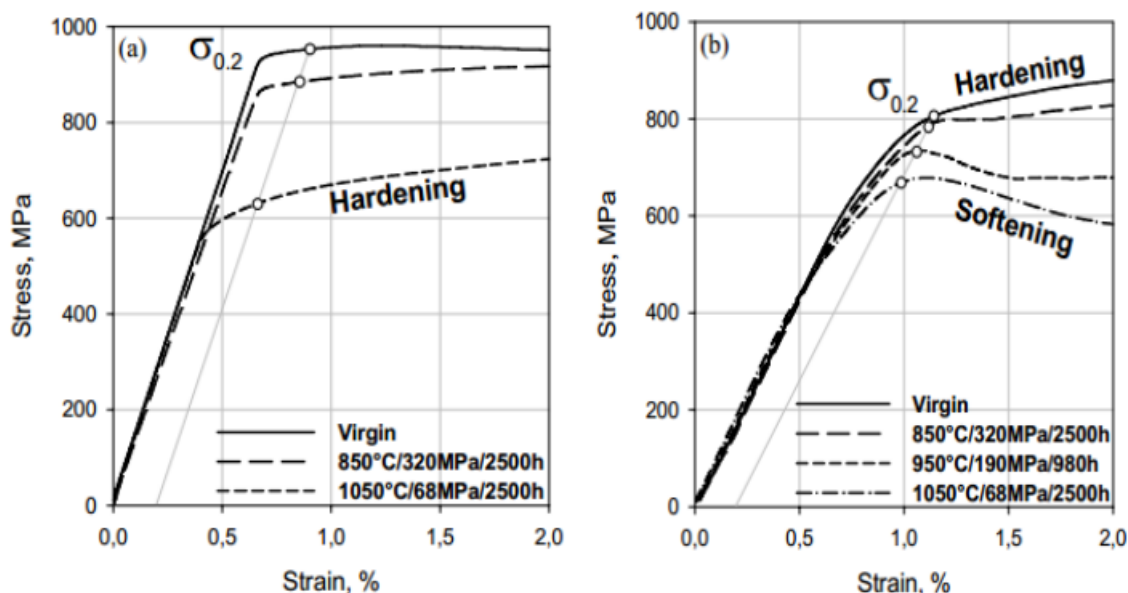


Figure 3.17: Courbes de traction pour des matériaux sains et pour matériaux qui ont subi différents niveaux de dégradation (différentes conditions pour les essais de fluage : température/contrainte/temps) à (a) température ambiante et (b) à température  $T = 950^\circ\text{C}$  [Epishin et al., 2008]

La direction de la formation des radeaux joue un rôle crucial dans la détermination du comportement mécanique des superalliages (cf. figures 3.18 et 3.19). En général, les structures de radeaux de type N réduisent la résistance à la fatigue, tandis que les structures de radeaux de type P possèdent une forte résistance à la fatigue et une faible résistance au fluage [Ott and Mughrabi, 1999; Mughrabi and Tetzlaff, 2000; Shui et al., 2007]. Les structures de radeaux de type N peuvent améliorer la résistance au fluage en entravant le mouvement des dislocations à haute température sous faible contrainte [Mughrabi and Tetzlaff, 2000], par rapport aux alliages avec des précipités  $\gamma'$  cubiques.

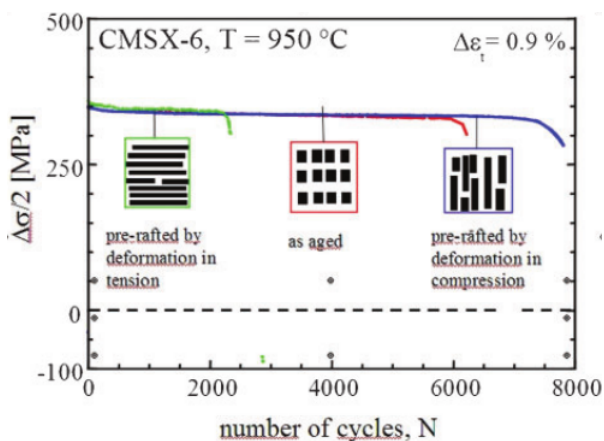


Figure 3.18: Comparaison des courbes de déformation cyclique de CMSX-6 avec différentes microstructures initiales (après un traitement thermique et après une mise en radeaux en traction et après une mise en radeaux en compression) [Mughrabi, 2009]

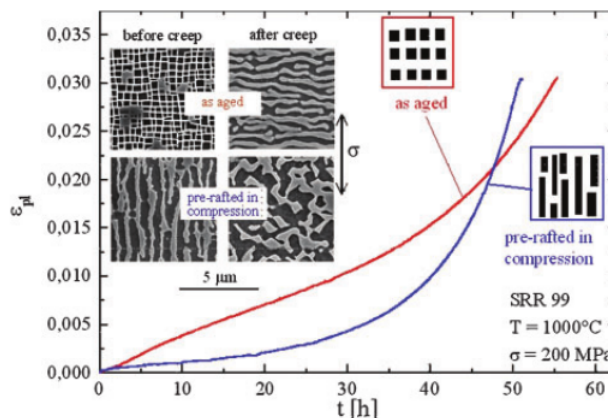


Figure 3.19: Comparaison des courbes de fluage d'un superalliage SRR 99 avec une microstructure initiale obtenue après un traitement thermique (as aged) et une mise en radeaux en compression (pre-raffed in compression) [Mughrabi, 2009]

Nathal et al. [Nathal et al., 1989] et Schneider et al. [Schneider et al., 1992] ont découvert que la formation de radeaux de  $\gamma'$ , qui modifie le schéma de connexion entre les phases  $\gamma$  et  $\gamma'$ , entraîne la transformation de la matrice  $\gamma$  entourant la phase  $\gamma'$  en une structure de phase  $\gamma'$  entourant la phase  $\gamma$ . On parle d'inversion topologique. Cela entraîne une perte de déformabilité et une susceptibilité accrue à la fissuration, conduisant à une diminution de l'intensité de fluage.

### c Mise en radeaux obtenue pour des chargements complexes

La formation de différents types de structures de radeaux dépend énormément des conditions de chargement, telles que la direction et le type de chargement (traction/compression, etc).

**Effet de type de chargement** Yang et al. [Yang et al., 2018] ont mené une étude sur l'évolution des microstructures des superalliages à base de nickel soumises à différentes directions de chargement de l'orientation  $\langle 001 \rangle$ . Les auteurs ont découvert une faible formation de radeaux sous une charge de cisaillement et une formation synchrone de radeaux de type N pour une charge de traction sous faible contrainte. Cependant, l'augmentation de la contrainte appliquée conduit à la formation de radeaux à 45 degrés sous une charge de cisaillement.

**Orientation des radeaux à 45 °** Ali et al. [Ali et al., 2020] ont développé un modèle pour expliquer la formation d'un radeau à 45 degrés dans la région avec une déformation locale par fluage supérieure à 10% sous une charge de traction dans la direction  $\langle 001 \rangle$ . En combinant la méthode des champs de phase avec un modèle de plasticité cristalline basé sur la physique, ils ont observé que la déformation par fluage dans certaines régions était significativement supérieure à la moyenne. Ces régions contenaient un grand nombre de dislocations géométriquement nécessaires (GND), qui ont provoqué un changement de direction des structures de radeaux d'origine et ont conduit à la formation du radeau à 45 degrés.

**Chargement dans la direction  $\langle 011 \rangle$**  Des exemples montrent qu'il est possible que les radeaux se forment avec un angle de 45° par rapport à la direction de chargement quand le chargement est fait dans la direction  $\langle 011 \rangle$  [Chatterjee et al., 2010]. Les radeaux se forment aussi avec un angle de 45° par rapport à la contrainte de cisaillement dans un essai de fluage à double cisaillement [Kamaraj, 2003].

Dans leur analyse des superalliages à base de Ni orientés  $\langle 011 \rangle$ , Gaubert et al. [Gaubert et al., 2015] ont utilisé un modèle de viscoplasticité à champ moyen 3D. Il a été montré qu'un léger écart entre la direction de chargement et la direction  $\langle 011 \rangle$  a conduit les précipités cubiques  $\gamma'$  initiaux à coalescer d'abord le long de la direction  $\langle 100 \rangle$  puis à s'étendre le long des directions  $\langle 001 \rangle$  ou  $\langle 010 \rangle$ .

Sous une charge de traction dans la direction  $\langle 011 \rangle$ , un grossissement directionnel des phases  $\gamma'$  a été observé de manière parallèle au plan (010), tandis qu'un comportement de grossissement équiaxial a été observé dans le plan (100), ce qui a entraîné la formation d'un radeau à 45 ° [Fan et al., 2015] [Han et al., 2013].

**Fluage anisotherme** Il est important de comprendre le comportement des matériaux au cours de missions où les profils de température et de contrainte varient. Cependant, seul un nombre limité d'études s'est penché sur la question du fluage anisotherme [Zrnik et al., 1997; Sundar et al., 2001; Cormier, 2006; Raffaitin, 2007]. Ce sujet est crucial, en particulier pour les moteurs d'hélicoptères. La majorité des études sur le fluage s'est concentrée sur les régimes isothermes avec une force appliquée et une température constantes tout au long de l'expérience. Néanmoins, les essais dans des conditions anisothermes ([Raffaitin, 2007]) où la température varie de façon cyclique tout au long de l'essai indiquent un changement clair du comportement de fluage pour des températures spécifiques, y compris une augmentation de la vitesse de fluage et une réduction de la durée de vie. L'étude de A. Raffaitin sur le superalliage à base de Nickel MC2 [Raffaitin, 2007] a mis en évidence que le comportement dans le cas d'un fluage anisotherme (cyclage thermique entre  $T=25^\circ\text{C}$  et  $T=1150^\circ\text{C}$ ) est différent de celui en conditions de fluage isotherme.

Afin d'identifier l'effet de fluage anisotherme par rapport au fluage isotherme, la courbe de déformation de fluage anisotherme est construite en gardant uniquement la partie à haute température de la courbe de déformation (cf. figure 3.20). La courbe de déformation obtenue est composée d'ensemble des cycles (cf. zoom sur le courbe de figure 3.20.b). Chaque cycle est constitué de deux parties : dans la 1<sup>re</sup> partie, la vitesse de déformation diminue alors qu'elle est constante au 2<sup>me</sup> partie.

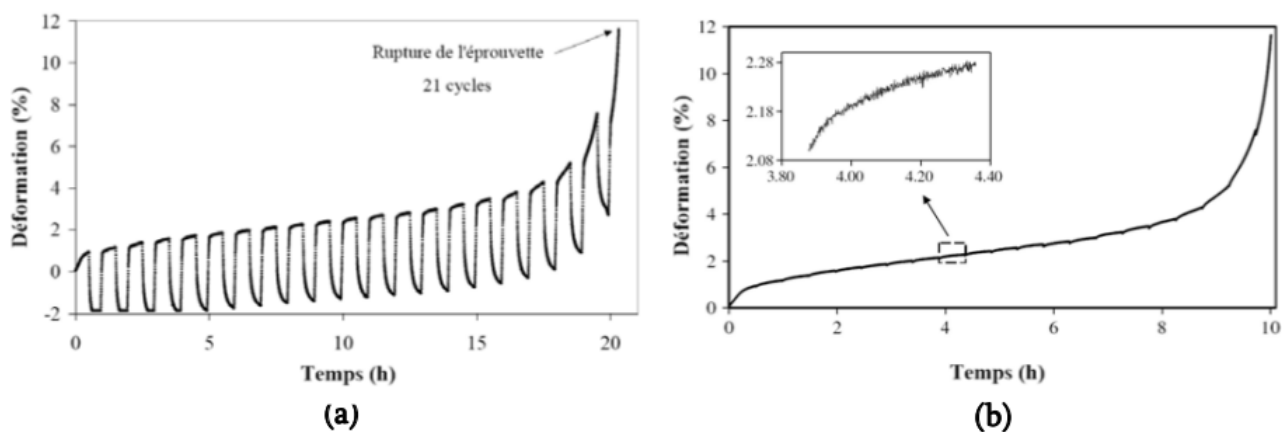


Figure 3.20: (a) Évolution de déformation au cours d'un fluage anisotherme ( $T_{min} = 25^{\circ}C$  et  $T_{max} = 1150^{\circ}C$ ) sous contrainte  $\sigma = 80MPa$  (b) courbe tracé à partir d'évolution de déformation en gardant uniquement la partie de maintien à haute température  $T_{max} = 1150^{\circ}C$  [Raffaitin, 2007]

Le fluage anisotherme et le fluage isotherme se distinguent par une durée de vie plus élevée pour le fluage isotherme et une vitesse de déformation plus élevée pour le fluage anisotherme (cf. figure 3.21).

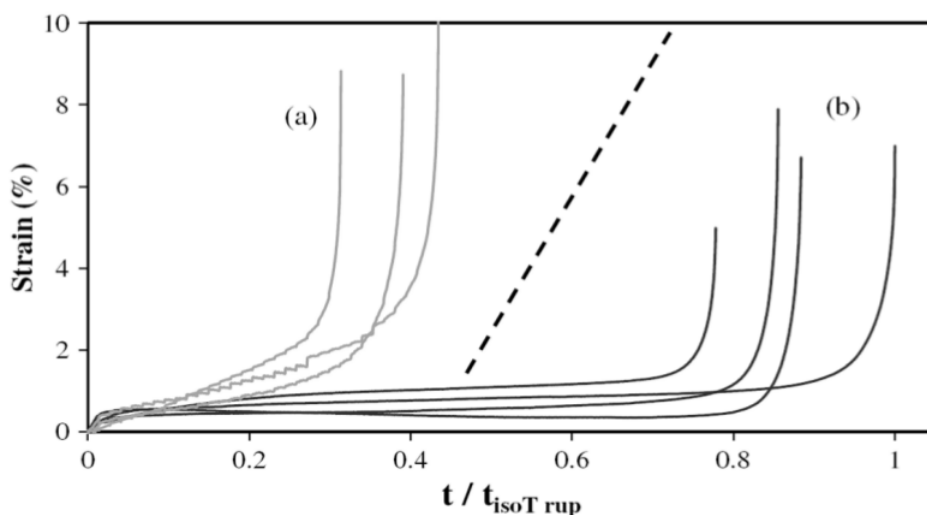


Figure 3.21: (a) Évolution de déformation au cours d'un fluage anisotherme ( $T_{min} = 25^{\circ}C$  et  $T_{max} = 1150^{\circ}C$ ) sous contrainte  $\sigma = 80MPa$  (b) évolution de déformation au cours d'un fluage isotherme ( $T = 1150^{\circ}C$ ) sous contrainte  $\sigma = 80MPa$  [Raffaitin, 2007]

A. Raffaitin a étudié l'impact des paramètres de fluage comme la durée du maintien à haute température. Trois différentes durées ont été testées, à savoir 15, 30 et 60 minutes. Les résultats sont présentés sur la figure 3.22.

Au fur et à mesure que la durée du palier augmente, la vitesse de fluage apparente diminue et la durée de vie s'allonge. Pour des durées de maintien plus longues, la fréquence des cycles est plus faible et la vitesse

de fluage est réduite, ce qui conduit à un comportement plus proche de celui du fluage isotherme avec une durée de vie plus longue. L'évolution de la microstructure au cours des essais de fluage anisotherme est similaire à celle du fluage isotherme jusqu'au stade secondaire. Cependant, au cours du stade tertiaire, la structure de radeaux est plus déstabilisée, et les précipités de radeaux ainsi que les couloirs de la matrice s'élargissent plus que dans le régime isotherme. Il y a également une perte notable de l'anisotropie du radeau, et les microstructures pour les deux essais sont similaires dans la zone proche de la rupture (cf. figure 3.23). Après un essai de fluage anisotherme à 1150°C/80 MPa, des petits précipités secondaires cubiques sont présents dans les couloirs de la matrice, ce qui est une caractéristique microstructurale intrigante qu'A. Raffaitin n'a pas pu expliquer (cf. figure 3.24).

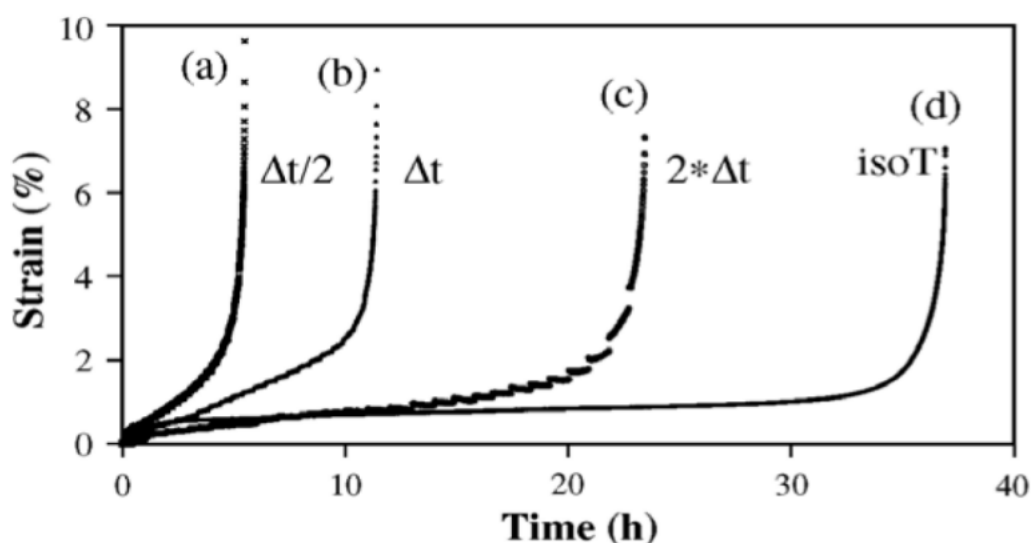


Figure 3.22: Impact de la durée du maintien à haute température au cours d'un fluage anisotherme ( $T_{min} = 25^{\circ}\text{C}$  et  $T_{max} = 1150^{\circ}\text{C}$ ) sous contrainte  $\sigma = 80\text{MPa}$  sur la durée de vie par rapport au cas de fluage isotherme (d) [Raffaitin, 2007]

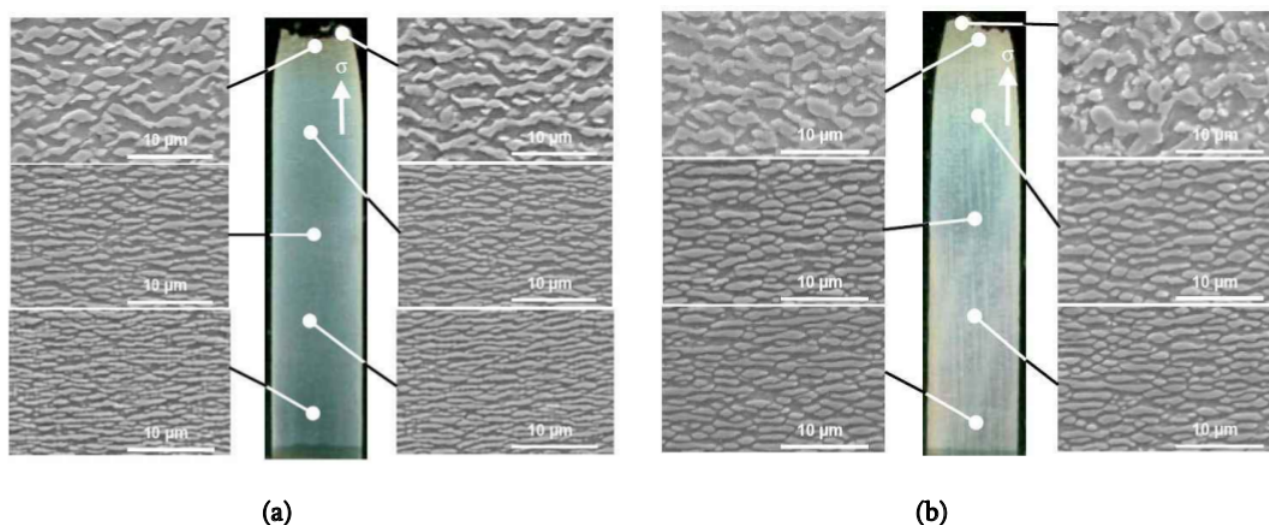


Figure 3.23: (a) Évolution de microstructure au cours d'un fluage anisotherme ( $T_{min} = 25^{\circ}\text{C}$  et  $T_{max} = 1150^{\circ}\text{C}$ ) sous contrainte  $\sigma = 80\text{MPa}$  (b) évolution de microstructure au cours d'un fluage isotherme ( $T = 1150^{\circ}\text{C}$ ) sous contrainte  $\sigma = 80\text{MPa}$  [Raffaitin, 2007]

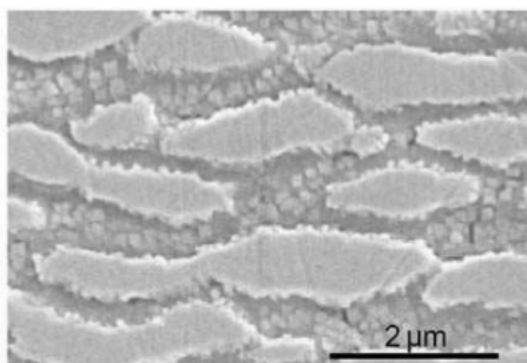


Figure 3.24: (a) *Présence des petits précipités secondaires cubiques dans les couloirs de la phase  $\gamma$  suite à l'essai de fluage anisotherme [Raffaitin, 2007]*

**Fatigue thermo-mécanique** Le démarrage et l'arrêt du moteur sont les moments où les aubes de turbines subissent des changements importants de contrainte et de température. En laboratoire, ces changements sont pris en compte par des essais de fatigue thermo-mécanique durant lesquels des cycles de température et de contrainte sont imposés. Selon la relation de phase utilisée pendant l'essai, on distingue 4 types d'essais de fatigue thermo-mécanique :

- en phase (IP) : quand la température augmente (resp. diminue), la contrainte ou la déformation appliquées augmente (resp. diminue) au même moment.
- hors phase (OP) : quand la température diminue (resp. augmente), la contrainte ou déformation appliquées augmente (resp. diminue) au même moment.
- en quadrature de phase (CCD) : le déphasage entre la température et contrainte ou la déformation appliqués est égale  $\frac{\pi}{2}$ . Le cycle CCD est considéré comme particulièrement adapté pour simuler les conditions au bord d'attaque des aubes des turbines
- en quadrature de phase inverse (CD) : le déphasage entre la température et le contrainte ou la déformation appliqués est égale  $\frac{3\pi}{2}$ . Les termes CD et CCD font référence au sens du cycle dans un courbe de la température T en fonction de la déformation totale  $\epsilon^{tot}$

Mughrabi et al., [Mughrabi, 2009] ont étudié la fatigue thermo-mécanique (TMF) de superalliage CMSX-6 avec des cycles de température variant entre 600 et 1100°C. Pour le cas TMF en phase (resp. hors phase), la mise en radeaux se produit à haute température quand la contrainte est positive (resp. négative) dans la direction perpendiculaire (resp. parallèle) à la direction de la contrainte (cf. figure 3.25 (a) et resp. (b)).

Dans les deux cas de TMF en CD et CCD, la mise en radeau a été observée. Les radeaux se forment perpendiculairement (resp. parallèlement) à la direction de contrainte appliquée dans le cas de TMF en CCD (resp. CD) (cf. figure 3.25 (c) et resp. (d)). Le sens des radeaux ne peut pas être expliqué par le signe de contrainte à haute température. En effet, la contrainte est positive (resp. négative) dans le cas de TMF en CD (resp. CCD). Ceci devra donner des radeaux perpendiculaires (resp. parallèles) au sens de contrainte appliquée si on raisonne uniquement en contrainte alors que le contraire a été observé. Le signe de déformation qui est négatif (resp. positif) dans le cas CD (resp. CCD) peut expliquer le type des radeaux observées (cf. figure 3.26).

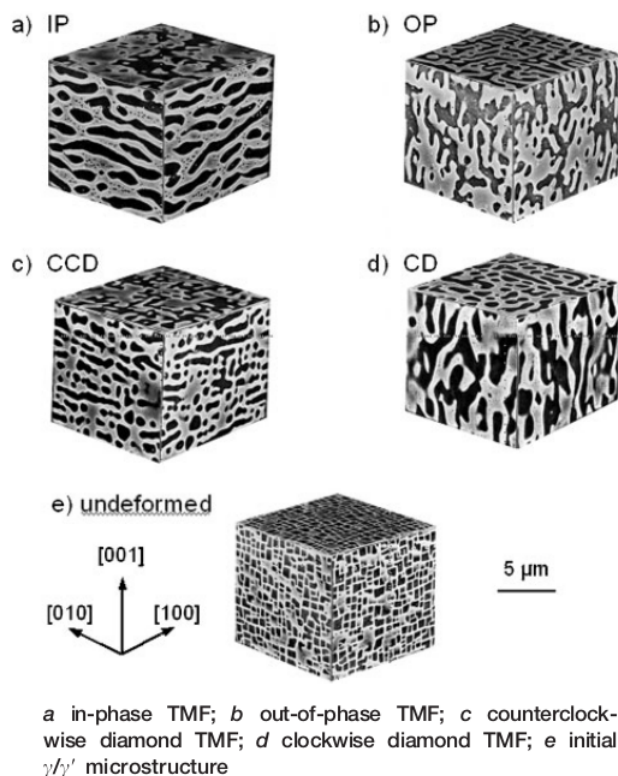


Figure 3.25: Montages tridimensionnels de l'étude au MEB des microstructures  $\gamma/\gamma'$  de monocristaux de superalliage CMSX-6 après un fatigue thermo-mécanique dans différentes conditions de chargement [Kraft and Mughrabi, 1996]

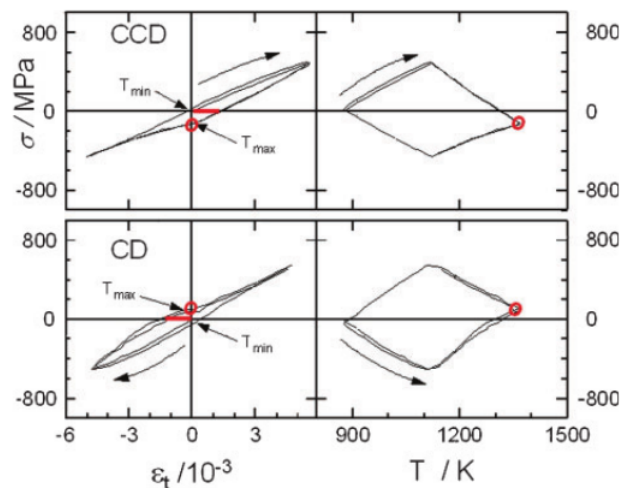


Figure 3.26: Courbes de la contrainte  $\sigma$  en fonction de  $\epsilon$  et de  $\sigma$  en fonction de la température  $T$  pour les monocristaux de CMSX-6 soumis à une charge TMF avec cycles CCD et CD [Kraft and Mughrabi, 1996]

### 3.2.4 Modélisation de la mise en radeaux

#### a Calcul analytique de la mise en radeaux

Pineau [Pineau, 1976] a utilisé la théorie d'Eshelby pour prévoir la mise en radeau de  $\gamma'$  sous contrainte uniaxiale, et a fourni une carte pour estimer les influences du désaccord de réseau cristallin, de la contrainte appliquée et de la différence de module d'élasticité entre  $\gamma$  et  $\gamma'$  sur la direction de mise en radeau. Il a souligné que la direction de mise en radeau de  $\gamma'$  dépend du rapport de la différence de constante élastique ( $C_{11} - C_{12}$ ) entre la matrice  $\gamma$  et les précipités  $\gamma'$ .

Socrate et Parks [Socrate and Parks, 1993] ont mené une analyse de l'énergie élastique et ont découvert que la force motrice de la mise en radeau de  $\gamma'$  est directement proportionnelle à la contrainte appliquée, au désaccord paramétrique entre  $\gamma/\gamma'$  (misfit) et à la différence de module d'élasticité entre  $\gamma/\gamma'$ . La mise en radeau de  $\gamma'$  peut réduire considérablement l'énergie dans le système.

Nabarro et al. [Nabarro et al., 1996] ont tenu compte de l'anisotropie des matériaux monocristallins et ont obtenu une solution analytique à l'aide de la méthode d'analyse tensorielle de l'énergie-impulsion d'Eshelby. Les résultats ont montré que la force motrice de la mise en radeau de  $\gamma'$  est proportionnelle au désaccord de réseau (misfit), à la contrainte appliquée et à la différence de module d'élasticité entre  $\gamma'$  et  $\gamma$ . Lorsque la déformation plastique dépasse une certaine valeur, la direction de contrainte détermine la direction de mise en radeau, tandis que la différence de module d'élasticité entre  $\gamma'$  et  $\gamma$  devient un facteur secondaire. Ceci était cohérent avec le résultat d'analyse bidimensionnelle de Socrate et Parks [Socrate and Parks, 1993]. Nabarro et al. [Nabarro et al., 1996] ont également souligné l'importance des dislocations dans le processus de fluage.

Fahrman et al. [Fahrman et al., 1999] ont étudié la corrélation entre la direction de mise en radeau



de  $\gamma'$  et la différence de module d'élasticité  $\gamma/\gamma'$ , et ont découvert que le signe de la différence de module détermine la direction de mise en radeau de  $\gamma'$  pour le modèle élastique.

Le travail de Fan et al. [Fan et al., 2022] présente un nouveau modèle phénoménologique afin de prédire le comportement des superalliages à base de nickel monocristallins à haute température, qui tient compte du phénomène de rafting. Le modèle utilise des images SEM pour extraire des paramètres microstructuraux tels que la largeur des précipités  $\gamma'$  et la largeur des couloirs de la phase  $\gamma$ , qui sont ensuite analysés à l'aide d'un algorithme de traitement d'images. Le modèle proposé est fonction de la densité de dislocations, de la fraction volumique  $\gamma'$ . Il est validé par rapport aux données expérimentales issues de la littérature.

### b Modélisation de la mise en radeaux par la méthode des champs de phase dans le cas élastique

La méthode des champs de phase appliquée à l'étude de la mise en radeaux de  $\gamma'$  peut être dérivée du cadre de la théorie élastique microscopique, qui a été résumée par Khachaturyan [Khachaturyan, 1983a]. La théorie explique la relation entre le champ élastique et la morphologie du  $\gamma'$  [McCormack et al., 1992]. La théorie élastique microscopique a été étendue à la situation élastique inhomogène [Khachaturyan et al., 1995]. La dérivation de la formule élastique inhomogène a fourni la base théorique pour la simulation du comportement de la mise en radeaux de  $\gamma'$  à l'aide de la méthode de champs des phases. Un algorithme spectral de Fourier semi-implicite [Chen and Shen, 1998; Zhu et al., 1999] a été proposé pour la résolution des équations d'évolutions des paramètres d'ordre et la concentration des éléments chimiques considérés, ce qui a clairement permis de gagner du temps et d'améliorer la précision de calcul dans la résolution des équations de champ de phase. Wang et al. [Wang et al., 1998; Wang and Khachaturyan, 1995], et Rubin et Khachaturyan [Rubin and Khachaturyan, 1999] ont considéré l'ordre atomique en l'introduisant comme un paramètre d'ordre supplémentaire dans le modèle de champ de phase. Sur la base de la théorie élastique inhomogène, Li et Chen [Li and Chen, 1998] ont analysé la mise en radeaux sous un chargement appliqué. Les résultats ont montré que la direction du champ de contrainte est un élément essentiel pour définir l'orientation des radeaux. Yang et al. [Yang et al., 2007] et Wang et al. [Yang et al., 2007] ont étudié l'influence de la contrainte appliquée sur l'orientation des radeaux au moyen de la méthode de champ de phase. En utilisant le modèle élastique pour étudier la morphologie de la mise en radeaux de type N et P, non seulement le résultat de simulation a été confirmé, mais aussi l'influence de la contrainte appliquée, du désaccord de réseau (misfit) et de la différence de module  $\gamma/\gamma'$  ont été considérées dans le modèle de champ de phase. Le modèle élastique de champ de phase considère la mise en radeaux comme un processus de diffusion induit par la contrainte. Cependant, selon les résultats expérimentaux de Véron et Bastie [Véron and Bastie, 1997], il est également important de prendre en compte l'influence de l'écoulement plastique dans le processus de la mise en radeaux. Il est donc nécessaire de coupler la méthode de champ de phase avec le modèle élasto-plastique pour étudier la mise en radeaux.

### c Modélisation de la mise en radeaux par la méthode des champs de phase dans le cas élasto-plastique

Lors de certaines expériences, la mise en radeaux de  $\gamma'$  s'est produite sans contrainte appliquée, mais en raison d'une plus grande déformation de l'échantillon, indiquant la relation étroite entre la mise en radeaux et la plasticité du matériau [Véron and Bastie, 1997; Veron et al., 1996]. Plusieurs modèles des champs de phase ont été utilisés cette relation.

En 1989, Léonard et Desai ont proposé d'utiliser la méthode de champ de phase pour simuler les dislocations. L'idée initiale était de coupler la méthode de dislocation avec la diffusion de soluté, ce qui a conduit au développement de la méthode de champ de phase DDM. La DDM a été utilisée pour la première fois par Zhou et al. [Zhou et al., 2007] pour simuler la mise en radeaux. Ce modèle a déterminé la configuration des dislocations et la redistribution des solutés à l'aide du potentiel de gradient chimique, contrôlé par trois facteurs : la microstructure de  $\gamma$  et  $\gamma'$ , les dislocations aux niveaux des couloirs de  $\gamma$  et la contrainte appliquée. Probst-Hein et ses collègues [Probst-Hein et al., 2001; Dlouhý et al., 2001] ont utilisé la DDM pour estimer la densité de dislocations dans les canaux de  $\gamma$  afin d'étudier l'effet de la densité de dislocations sur la fraction volumique du  $\gamma'$  et le désaccord de réseau (misfit). Les résultats ont montré que le désaccord de réseau

absorbe les boucles de dislocations et rend difficile la pénétration des boucles de dislocations dans l'autre type de couloir de  $\gamma$ . La préférence pour le couloir de dislocation causée par le désaccord de réseau et la contrainte appliquée a été expliquée par simulation de champ de phase [Shen, 2004]. L'avantage du modèle est qu'il prenait en compte la contribution des dislocations à la mise en radeaux et déterminait la configuration et la densité de dislocations dans les canaux de  $\gamma$ . Cependant, ce modèle ne prend pas en compte l'impact de l'ordonnement et de tous les systèmes de glissement sur la mise en radeaux des phases  $\gamma'$ , de sorte que la configuration calculée des dislocations est relativement simple. Ce modèle a été appelé la méthode de dislocation dispersée car il se concentrait principalement sur les contributions de chaque dislocation. Les résultats de simulation ont prouvé que la mise en radeaux des phases  $\gamma'$  est liée au type et à la distribution des dislocations. La configuration des dislocations dans les canaux  $\gamma$  est déterminée par le signe du désaccord de réseau et la direction de la charge.

Un modèle différent utilisant la contrainte plastique effective a été introduit par Zhou et al. [Zhou et al., 2008] pour étudier la mise en radeaux des phases  $\gamma'$ . Contrairement à la méthode des dislocations dispersées, ce modèle ne prend pas en compte l'effet des dislocations individuelles, ce qui le rend incapable de déterminer l'arrangement et la configuration des dislocations. Au lieu de cela, il intègre la contrainte plastique des canaux  $\gamma$  dans la fonction d'énergie libre, sans tenir compte de son impact sur l'énergie du corps et de l'interface. Cependant, l'avantage de ce modèle est sa simplicité et sa capacité à analyser l'influence de la contrainte plastique des canaux sur la mise en radeaux des phases  $\gamma'$ . Zhou et al. [Zhou et al., 2008] ont utilisé ce modèle pour étudier les contributions de la différence de tenseur d'élasticité de  $\gamma/\gamma'$  et de la plasticité dans les canaux horizontaux et verticaux de  $\gamma$ . Des résultats des comparaisons quantitatives des forces motrices de la mise en radeaux confirment le rôle dominant de la contribution de la plasticité des canaux de  $\gamma$  et montrent que la direction de la mise en radeaux est déterminé par la plasticité des canaux de  $\gamma$  plutôt que la différence de tenseur d'élasticité de  $\gamma/\gamma'$ . Cependant, l'homogénéité élastique entre  $\gamma$  et  $\gamma'$  a aussi une contribution importante à la force motrice de la mise en radeaux surtout pendant les premières heures. De plus, il a été constaté que la mise en radeaux de type P est plus rapide que le rafting de type N.

Le modèle phénoménologique couplant la viscoplasticité avec la méthode des champs de phase a été proposé pour la première fois par Ubachs et al. [Ubachs et al., 2005] pour étudier la viscoplasticité dans les alliages de soudure. D'autres chercheurs comme Uehara et al. [Uehara et al., 2007] et Guo et al. [Guo et al., 2008] ont également introduit la viscoplasticité pour étudier la précipitation de phase dans divers alliages. Sarosi et al. [Sarosi et al., 2007] et Gaubert et al. [Gaubert et al., 2010] ont utilisé ce modèle pour explorer le comportement de la mise en radeaux de  $\gamma'$  et ont obtenu des résultats similaires aux observations expérimentales. Le modèle fonctionne en ne modifiant pas l'énergie du corps et l'énergie de l'interface dans le modèle élastique de champ de phase. Au lieu de cela, l'énergie induite par la contrainte est composée de deux parties : l'énergie élastique et l'énergie viscoplastique. L'énergie viscoplastique n'est influencée que par le durcissement cinématique. Ce modèle a l'avantage de correspondre précisément aux résultats expérimentaux et de relier la contrainte macroscopique à la mise en radeaux de  $\gamma'$ . Cependant, il se limite à simuler uniquement les deux premières étapes du fluage. De plus, il ne peut pas expliquer le mécanisme de la mise en radeaux aussi bien que le modèle de dislocation du champ de phase.

### 3.3 Comportement macroscopique de von Mises d'un superalliage monocristallin à base de Nickel

La tenseur de déformation  $\underline{\underline{\varepsilon}}$  est composé d'une partie élastique  $\underline{\underline{\varepsilon}}^e$  et d'une partie viscoplastique  $\underline{\underline{\varepsilon}}^{vp}$ :

$$\underline{\underline{\varepsilon}} = \underline{\underline{\varepsilon}}^e + \underline{\underline{\varepsilon}}^{vp} \quad (3.3)$$

L'énergie libre s'écrit :

$$\psi(\underline{\underline{\varepsilon}}^e, p, \alpha) = \frac{1}{2} \underline{\underline{\varepsilon}}^e : \underline{\underline{C}} : \underline{\underline{\varepsilon}}^e + \frac{1}{3} C \alpha : \underline{\underline{\alpha}} + \frac{1}{2} H p^2 \quad (3.4)$$

où  $C$  et  $H$  sont des paramètres d'écrouissage.

Les variables d'écroissage sont définies par :

- Écroissage cinématique : variable interne  $\alpha$  et force thermodynamique associée  $X$ .
- Écroissage isotrope : variable interne  $p$  et force thermodynamique associée  $R$ .

$$\tilde{X} = \frac{\partial \psi}{\partial \alpha} \quad R = \frac{\partial \psi}{\partial p} \quad (3.5)$$

Le potentiel du dissipation est défini par :

$$\Omega_u(\tilde{\sigma}, \tilde{X}, R) = \int_V \tilde{\Omega} \left( J_2(\tilde{\sigma} - \tilde{X}) - (R_0 + R) + \left[ \frac{D}{2C} J_2^2(\tilde{X}) - \frac{2DC}{9} J_2^2(\alpha) \right] \right) dV \quad (3.6)$$

où :

$$\tilde{\Omega}(g) = \frac{K}{N+1} \left\langle \frac{g}{K} \right\rangle^{N+1} \text{ est la densité du potentiel de dissipation} \quad (3.7)$$

$$\langle a \rangle \text{ représente la partie positive de } a \quad (3.8)$$

$$J_2(\tilde{\sigma}) = \sqrt{\frac{3}{2}} (\tilde{\sigma}' : \tilde{\sigma}') \text{ est la contrainte équivalente effective} \quad (3.9)$$

$$\tilde{\sigma}' = \tilde{\sigma} - \frac{1}{3} \text{tr}(\tilde{\sigma}) : \mathbb{1} \text{ est la contrainte déviatorique de } \tilde{\sigma} \quad (3.10)$$

$R_0$  est la limite d'élasticité initiale,  $R$  est le paramètre d'écroissage isotrope et  $X$  est le paramètre d'écroissage cinématique.

Comme les différentes parties du potentiel du dissipation sont connues, le reste des lois d'états et des lois d'évolutions peut être défini explicitement :

Les lois d'état :

$$\tilde{\sigma} = \frac{\partial \psi}{\partial \tilde{\varepsilon}^e} = \tilde{C} : \tilde{\varepsilon}^e$$

$$\tilde{X} = \frac{\partial \psi}{\partial \alpha} = \frac{2}{3} C \alpha$$

$$R = \frac{\partial \psi}{\partial p} = \frac{2}{3} H p$$

Les lois d'évolution :

$$\dot{p} = -\frac{\partial \Omega}{\partial R} = \left\langle \frac{J_2(\tilde{\sigma} - \tilde{X}) - R_0 - R}{K} \right\rangle^N = \sqrt{\frac{2}{3}} \tilde{\varepsilon}^{vp} : \tilde{\varepsilon}^{vp}$$

$$\dot{\alpha} = -\frac{\partial \Omega}{\partial X} = \tilde{\varepsilon}^p - D \alpha \dot{p}$$

$$\tilde{\varepsilon}^{vp} = -\frac{\partial \Omega}{\partial \tilde{\sigma}} = \frac{3}{2} \dot{p} \frac{\tilde{\sigma}' - \tilde{X}'}{J_2(\tilde{\sigma}' - \tilde{X}')}$$

Les paramètres  $C$ ,  $D$ ,  $H$ ,  $N$ ,  $K$  et  $R_0$  sont interpolés avec la fonction d'interpolation mécanique  $h_{mech}$ . Les valeurs utilisées dans les simulations pour les deux phases ( $\gamma$  et  $\gamma'$ ) de superalliage monocristallin à base de Nickel AM1 sont données dans le tableau suivant [Cottura et al., 2012] :

| Phases    | $C_{11}$ (GPa) | $C_{12}$ (GPa) | $C_{44}$ (GPa) | C(GPa) | D    | N | $K(MPa.s^{1/N})$ | $R_0(MPa)$ | H(GPa) |
|-----------|----------------|----------------|----------------|--------|------|---|------------------|------------|--------|
| $\gamma$  | 197            | 144            | 90             | 150    | 1900 | 5 | 150              | 86         | 0.     |
| $\gamma'$ | 193            | 131            | 97             | 150    | 1900 | 5 | 150              | $10^5$     | 0.     |

### 3.4 Implémentation d'un modèle de champs de phases couplé à la mécanique pour les $\gamma/\gamma'$

Le superalliage à base de nickel est modélisé comme un alliage binaire effectif (Ni-Al). Deux types de champs sont utilisés : la concentration d'aluminium  $c_{Al}$  et les trois champs structuraux non-conservatifs  $\phi_m$  ( $m = \{1, 2, 3\}$ ) [Cottura et al., 2012; Gaubert et al., 2010]. A l'équilibre, le superalliage à base de nickel est composé de la phase désordonnée  $\gamma$  et de la phase ordonnée  $\gamma'$ . La phase  $\gamma'$  ( $L1_2$ ) a été modélisée par ses quatre variants translationnels. Une illustration en 3D du variant de référence et de sa translation de  $[0 \ 1/2 \ 1/2]$ , ainsi que leurs projections en 2D et les deux autres translations possibles est donnée par figure 3.27. Ces quatre variants sont décrits par les trois paramètres d'ordre  $\phi_1$ ,  $\phi_2$  et  $\phi_3$ . La symétrie de translation par les vecteurs  $[0 \ 1/2 \ 1/2]$ , traduisant l'existence de 4 variants dans la structure  $L1_2$ , se manifeste par une invariance de l'énergie libre par changement du signe de deux de trois paramètres d'ordre.

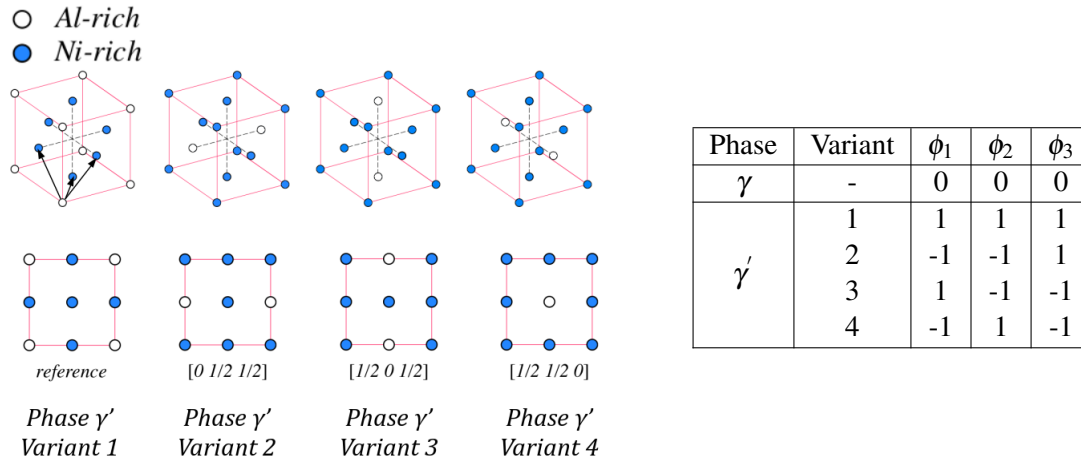


Figure 3.27: Représentation des différents variants de la phase  $\gamma'$  dans une maille CFC du réseau Ni Al [Wen et al., 2010]

#### 3.4.1 Couplage transformation de phase avec la viscoplasticité en utilisant l'approche de Gurtin

Dans plusieurs travaux, les équations d'évolutions des champs de phase et de diffusion ont été construites de manière phénoménologique en supposant une relation linéaire entre la force motrice du champ et sa variation temporelle. Cependant, Gurtin [Gurtin, 1996] donne un cadre thermodynamique pour déduire les lois de comportement et les équations d'évolutions permettant de coupler l'évolution microstructurale et la viscoplasticité.

Dans l'approche de Gurtin, l'état de matériau est décrite par les variables suivants :

- le champ de concentration  $c$
- les champs de paramètre d'ordre  $\phi_m$  et leurs gradients  $\nabla\phi_m$  ( $m = \{1, 2, 3\}$ )
- le champ de déformation élastique  $\underline{\underline{\varepsilon}}^e$
- les variables internes  $V_k$  liées à l'écroutissage du matériau ( $V_k = (\underline{\underline{\alpha}}, p)$  qui correspondent respectivement aux écroutissages cinématiques et isotropes).

### a Principe de puissance virtuel et équations d'équilibres

L'application de ce principe à un système isolé nécessite la détermination des puissances virtuelles des forces généralisées appliquées au système, dans lequel les contraintes généralisées ne sont pas introduites directement mais par la valeur de la puissance virtuelle qu'elles produisent pour un paramètre d'ordre virtuel  $\phi_m^*$  et un déplacement virtuel  $\underline{u}^*$  donnés.

La puissance virtuelle des forces généralisées internes est définie par une combinaison linéaire des contraintes généralisées  $(-\pi_m, \underline{\xi}_m, \underline{\sigma})$  et ses conjuguées  $(\phi_m^*, \nabla \phi_m^*, \nabla \underline{u}^*)$  :

$$P^{interne}(\phi_m^*, \underline{u}^*) = \int_V \left( \pi_m \phi_m^* - \underline{\xi}_m \cdot \nabla \phi_m^* - \underline{\sigma} : \nabla \underline{u}^* \right) dv \quad (3.11)$$

où  $\pi_m$  et  $\underline{\xi}_m$  sont respectivement les microcontraintes scalaire et vectorielle et  $\underline{\sigma}$  est le tenseur de Cauchy.

Par ailleurs, la puissance virtuelle des forces généralisées externe s'écrit :

$$P^{externe}(\phi_m^*, \underline{u}^*) = \int_V \left( \gamma_m \phi_m^* + \underline{\gamma}_m \cdot \nabla \phi_m^* + \underline{f} \cdot \underline{u}^* \right) dv \quad (3.12)$$

où  $\gamma_m$  et  $\underline{\gamma}_m$  sont respectivement les microforces scalaire et vectorielle externe ([Ammar et al., 2009a,b]) et  $\underline{f}$  est la densité de forces volumiques.

La puissance virtuelle des forces généralisées de contact s'écrit :

$$P^{contact}(\phi_m^*, \underline{u}^*) = \int_{\partial V} \left( \zeta_m \phi_m^* + \underline{t} \cdot \underline{u}^* \right) ds \quad (3.13)$$

où  $\zeta_m$  est la densité surfacique de microtraction et  $\underline{t}$  est la densité surfacique des forces purement mécaniques appliquées sur les bords  $\partial V$ .

La somme des puissances virtuelles des forces exercées, en absence des microforces d'inertie, est nulle sur tout sous-domaine  $D \subset V$ , pour tout choix de paramètre d'ordre virtuel  $\phi_m^*$  et pour tous déplacement virtuel  $\underline{u}^*$  :

$\forall D \subset V, \forall \phi_m^*$  et  $\forall \underline{u}^*$  :

$$P^{interne}(\phi_m^*, \underline{u}^*) + P^{externe}(\phi_m^*, \underline{u}^*) + P^{contact}(\phi_m^*, \underline{u}^*) = 0 \quad (3.14)$$

$$\begin{aligned} & \int_D \left[ \left( \pi_m + \nabla \cdot \underline{\xi}_m + \gamma_m - \nabla \cdot \underline{\gamma}_m \right) \phi_m^* + \left( \nabla \cdot \underline{\sigma} + \underline{f} \right) \cdot \underline{u}^* \right] dv \\ & + \int_{\partial D} \left[ \left( \zeta_m - \underline{\xi}_m \cdot \underline{n} + \underline{\gamma}_m \cdot \underline{n} \right) \phi_m^* + \left( \underline{t} - \underline{\sigma} \cdot \underline{n} \right) \cdot \underline{u}^* \right] ds = 0 \end{aligned} \quad (3.15)$$

A l'aide du principe des puissances virtuelles, on obtient les équations d'équilibre et les conditions aux limites pour les paramètres d'ordre  $\phi_m$  :

$$\nabla \cdot \left( \underline{\xi}_m - \underline{\gamma}_m \right) + \gamma_m + \pi_m = 0 \text{ dans le volume } V \text{ et } \zeta_m = \left( \underline{\xi}_m - \underline{\gamma}_m \right) \cdot \underline{n} \text{ sur les frontières } \partial V \quad (3.16)$$

Dans ce chapitre, on considère qu'il n'y a pas de microforce scalaire ou vectorielle externe ( $\underline{\gamma}_m = \underline{0}$  et  $\gamma_m = 0$ ).

$$\nabla \cdot \underline{\xi}_m + \pi_m = 0 \text{ dans le volume } V \text{ et } \zeta_m = \underline{\xi}_m \cdot \underline{n} \text{ sur les frontières } \partial V \quad (3.17)$$

L'équation d'équilibre mécanique statique et les conditions aux limites associées sont données par :

$$\nabla \cdot \underline{\sigma} + \underline{f} = 0 \text{ dans le volume } V \text{ et } \underline{t} = \underline{\sigma} \cdot \underline{n} \text{ sur les frontières } \partial V \quad (3.18)$$

## b Formulation thermodynamique

Le premier principe de la thermodynamique dans le cas isotherme s'écrit :

$$\int_V \dot{e} dv = P^{externe} + P^{contact} = -P^{interne} \quad (3.19)$$

où  $e$  est la densité d'énergie interne. En prenant en compte les résultats du principe des puissances virtuelles, la forme locale du premier principe s'écrit :

$$\dot{e} = -\pi_m \dot{\phi}_m + \underline{\xi}_m \cdot \nabla \dot{\phi}_m + \underline{\sigma} : \underline{\varepsilon} \quad (3.20)$$

où  $\underline{\varepsilon}$  est la déformation totale qui est décomposée en trois parties :

$$\underline{\varepsilon} = \underline{\varepsilon}^e + \underline{\varepsilon}^{vp} + \underline{\varepsilon}^* \quad (3.21)$$

une déformation élastique  $\underline{\varepsilon}^e$ , une déformation viscoplastique  $\underline{\varepsilon}^{vp}$  et une déformation libre due à la transformation du phase  $\underline{\varepsilon}^*$ .

$$\underline{\varepsilon}^* = \varepsilon^T (c - c_\gamma^{eq}) \mathbf{1} \quad (3.22)$$

où  $\varepsilon^T = \frac{\delta}{c_{\gamma'}^{eq} - c_\gamma^{eq}}$  est la valeur de déformation induite par le désaccord paramétrique  $\delta = \frac{a_{\gamma'} - a_\gamma}{\left(\frac{a_{\gamma'} + a_\gamma}{2}\right)}$ ,

$a_{\gamma'}$  et  $a_\gamma$  sont respectivement les paramètres des mailles des phases  $\gamma'$  et  $\gamma$ .

Le second principe de la thermodynamique stipule que la variation de l'entropie est toujours supérieure ou égale au taux de flux d'entropie induite par la diffusion :

$$T\dot{s} - \nabla \cdot (\underline{\mu} \underline{J}) \geq 0 \quad (3.23)$$

où  $s$  est la densité d'entropie,  $\underline{J}$  est le flux de diffusion et  $\underline{\mu}$  est le potentiel chimique.

En introduisant l'énergie libre  $\dot{f} = \dot{e} - T\dot{s}$  et en utilisant l'équation de conservation de la masse  $\dot{c} = -\nabla \cdot \underline{J}$ , l'inégalité de Clausius-Duhem s'écrit dans le cas isotherme :

$$-\dot{f} - \pi_m \dot{\phi}_m + \underline{\xi}_m \cdot \nabla \dot{\phi}_m + \underline{\mu} \dot{c} - \underline{J} \cdot \nabla \underline{\mu} + \underline{\sigma} : \underline{\varepsilon} \geq 0 \quad (3.24)$$

En considérant que l'énergie libre  $f$  dépend de la concentration, des paramètres d'ordre  $\phi_m$  et ses gradients  $\nabla \phi_m$ , la déformation élastique  $\underline{\varepsilon}^e$  et les variables internes  $V_k$  liées à l'écroutissage du matériau, la dérivation temporelle de l'énergie libre  $f$  s'écrit :

$$\dot{f}(c, \phi_m, \nabla \phi_m, \underline{\varepsilon}^e, V_k) = \frac{\partial f}{\partial c} \dot{c} + \frac{\partial f}{\partial \phi_m} \dot{\phi}_m + \frac{\partial f}{\partial \nabla \phi_m} \nabla \dot{\phi}_m + \frac{\partial f}{\partial \underline{\varepsilon}^e} \underline{\dot{\varepsilon}}^e + \frac{\partial f}{\partial \underline{\alpha}} \underline{\dot{\alpha}} + \frac{\partial f}{\partial p} \dot{p} \quad (3.25)$$

Par conséquent, l'inégalité du Clausius-Duhem devient :

$$-\left(\pi_m + \frac{\partial f}{\partial \phi_m}\right) \dot{\phi}_m + \left(\underline{\xi}_m - \frac{\partial f}{\partial \nabla \phi_m}\right) \nabla \dot{\phi}_m + \left(\underline{\mu} - \frac{\partial f}{\partial c}\right) \dot{c} + \left(\underline{\sigma} - \frac{\partial f}{\partial \underline{\varepsilon}^e}\right) : \underline{\dot{\varepsilon}}^e - \underline{J} \cdot \nabla \underline{\mu} + \underline{\sigma} : \underline{\varepsilon}^{vp} - \frac{\partial f}{\partial \underline{\alpha}} : \underline{\dot{\alpha}} - \frac{\partial f}{\partial p} \dot{p} \geq 0 \quad (3.26)$$

L'inégalité est linéaire en  $c$ ,  $\nabla \phi_m$  et  $\underline{\varepsilon}^e$ . Pour que le second principe soit valide pour tous les valeurs des variables  $(c, \phi_m, \nabla \phi_m, \underline{\varepsilon}^e, V_k)$ , les quantités entre les parenthèses doivent être nulles. Ces quantités correspondent aux lois d'états :

$$\underline{\xi}_m = \frac{\partial f}{\partial \nabla \phi_m} \quad (m = \{1, 2, 3\}) \quad , \quad \underline{\mu} = \frac{\partial f}{\partial c} \quad \text{et} \quad \underline{\sigma} = \frac{\partial f}{\partial \underline{\varepsilon}^e} \quad (3.27)$$

Les forces thermodynamiques pour les écrouissages du matériau (cinématique et isotrope) sont définies par :

$$\underline{X} = \frac{\partial f}{\partial \underline{\alpha}} \quad \text{et} \quad R = \frac{\partial f}{\partial p} \quad (3.28)$$

Les termes restants de l'inégalité du Clausius-Duhem définissent la dissipation résiduelle :

$$D = - \left( \underline{\pi}_m + \frac{\partial f}{\partial \dot{\phi}_m} \right) \dot{\phi}_m - \underline{J} \cdot \nabla \mu + \underline{\sigma} : \underline{\dot{\varepsilon}}^{vp} - \underline{X} : \underline{\dot{\alpha}} - R \dot{p} \geq 0 \quad (3.29)$$

La dissipation résiduelle est composée de trois parties :

[label=•]  $D_{\phi_m} = -\underline{\pi}_m^{dis} \dot{\phi}_m$  avec  $\underline{\pi}_m^{dis} = \underline{\pi}_m + \frac{\partial f}{\partial \dot{\phi}_m}$  est la dissipation de champs de phases due aux changements des configurations des atomes et aux évolutions des paramètres d'ordre.  $D_c = -\underline{J} \cdot \nabla \mu$  est la dissipation chimique due au diffusion des atomes et au transport de la matière.  $D_u = \underline{\sigma} : \underline{\dot{\varepsilon}}^{vp} - \underline{X} : \underline{\dot{\alpha}} - R \dot{p}$  est la dissipation mécanique classique due aux évolutions des variables internes.

Les lois d'évolution reliées à ces processus dissipatifs sont déterminés en supposant l'existence d'un potentiel dissipatif  $\Omega(\underline{\pi}_m^{dis}, \nabla \mu, \underline{\sigma}, A \underline{\alpha}, A p)$  convexe et positif. En l'exprimant en fonction de ses arguments, on trouve :

$$\dot{\phi}_m = - \frac{\partial \Omega}{\partial \underline{\pi}_m^{dis}} \quad (3.30)$$

$$\underline{J} = - \frac{\partial \Omega}{\partial \nabla \mu} \quad (3.31)$$

$$\underline{\dot{\varepsilon}}^{vp} = \frac{\partial \Omega}{\partial \underline{\sigma}} \quad , \quad \underline{\dot{\alpha}} = - \frac{\partial \Omega}{\partial \underline{X}} \quad , \quad \dot{p} = - \frac{\partial \Omega}{\partial R} \quad (3.32)$$

Le potentiel de dissipation est constitué de trois parties reliées à la dissipation résiduelle :

$$\Omega(\underline{\pi}_m^{dis}, \nabla \mu, \underline{\sigma}, A \underline{\alpha}, A p) = \Omega_{\phi_m}(\underline{\pi}_m^{dis}) + \Omega_c(\nabla \mu) + \Omega_u(c, \underline{\sigma}, A \underline{\alpha}, A p) \quad (3.33)$$

### 3.4.2 La fonctionnelle d'énergie libre mésoscopique

L'énergie libre totale a la forme d'une fonctionnelle d'énergie libre de type Ginzburg-Landau qui tient compte de l'énergie de l'interface par le carré du gradient de paramètres d'ordre. Elle est composée, en outre, d'une partie chimique  $f_{chem}$  et d'une partie mécanique  $f_{mech}$ .

$$F(c, \phi_m, \nabla \phi_m, \underline{\varepsilon}^e, \underline{\alpha}, p) = \int_V f(c, \phi_m, \nabla \phi_m, \underline{\varepsilon}^e, \underline{\alpha}, p) dv \quad (3.34)$$

$$= \int_V \left[ f_{chem}(c, \phi_m) + f_{mech}(c, \phi_m, \underline{\varepsilon}^e, \underline{\alpha}, p) + \frac{\beta}{2} \sum_{i=1}^3 |\nabla \phi_m|^2 \right] dv \quad (3.35)$$

où  $\beta$  est la raideur d'interface.

#### a Énergie chimique

Pour décrire notre système biphasé  $\gamma$ - $\gamma'$ , une forme de fonctionnelle d'énergie de type Ginzburg-Landau d'ordre 4 développée par G.Boussinot a été utilisée [Boussinot, 2007; Cottura et al., 2012]. L'équation de fonctionnelle  $F_{chem}(c, \phi_m)$  est donnée par :

$$\begin{aligned}
 F_{chem}(c, \phi_m) &= \int_V f_{chem}(c, \phi_m) dV \\
 &= \int_V \Delta f \left[ \frac{1}{2} (c - c_\gamma)^2 + \frac{B}{6} (c_2 - c) \sum_{i=1}^3 \phi_m^2 - \frac{C}{3} \phi_1 \phi_2 \phi_3 + \frac{D}{12} \sum_{i=1}^3 \phi_m^4 \right] dv \quad (3.36)
 \end{aligned}$$

avec

$$\begin{cases}
 B = 2(c_{\gamma'} - c_\gamma) \\
 C = 6(c_{\gamma'} - c_\gamma)(c_2 - c_\gamma) \\
 D = 2(c_{\gamma'} - c_\gamma)(c_{\gamma'} + 2c_2 - 3c_\gamma)
 \end{cases}$$

L'énergie libre  $f_\gamma$  (resp.  $f_{\gamma'}$ ) de la phase  $\gamma$  (resp.  $\gamma'$ ) en fonction de la concentration est alors donnée par la fonctionnelle (3.3) dans laquelle les paramètres d'ordre sont remplacés par leur valeur d'équilibre pour la phase  $\gamma(\phi_m = 0)$  (resp.  $\gamma'(\phi_m = 1)$ ) (cf. figure 3.28).

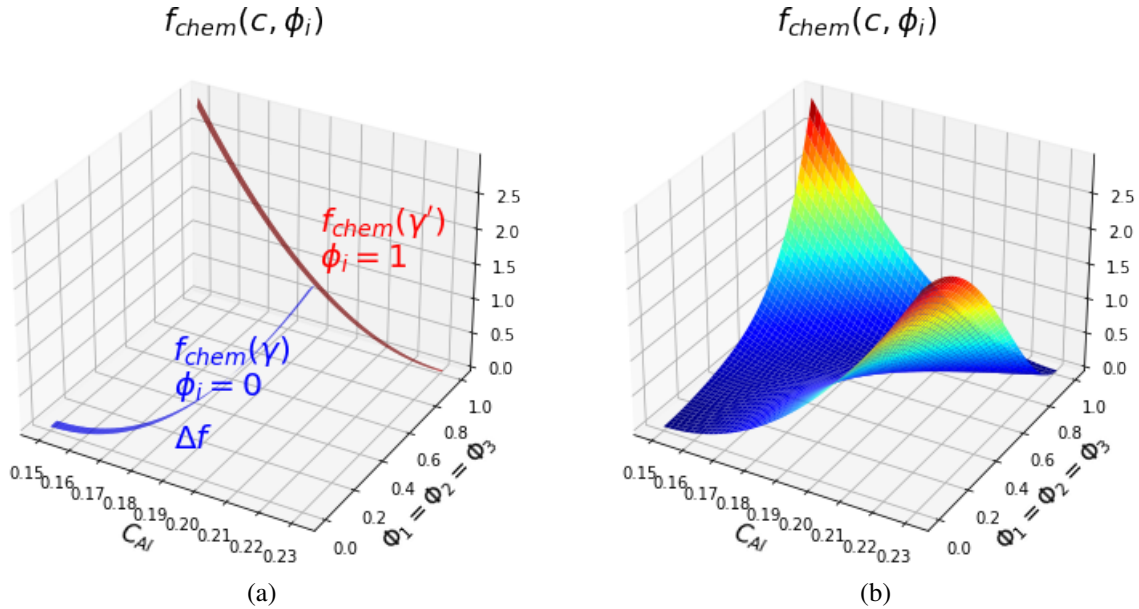


Figure 3.28: Énergies chimiques : (a) de chacune des phases  $\gamma(\phi_m = 0)$  et  $\gamma'(\phi_m = 1)$  et (b) pour l'ensemble des valeurs de  $\phi_m \in [0, 1]$

Afin de vérifier que cette forme d'énergie chimique permet de décrire les phases  $\gamma$  et  $\gamma'$  avec ses 4 variants, il faut que les valeurs de  $(\phi_1, \phi_2, \phi_3)$  pour la phase  $\gamma$  et pour chacun de variant de  $\gamma'$  donne lieu à un minimum de l'énergie chimique. Comme il existe 4 variables ( $C_{Al}, \phi_1, \phi_2, \phi_3$ ), elle n'a pas pu être tracé dans un espace 3D. Par conséquent, les valeurs de tableau 3.27 sont testées.

Quand  $\phi_3 = 0$  et  $\phi_1 = \phi_2$  (cf. figure 3.29.a), l'énergie chimique a un minimum global pour  $(\phi_1, \phi_2, \phi_3) = (0, 0, 0)$  qui correspond à la phase  $\gamma$  ( $C_{Al} = 0.15$ ) la phase la plus stable dans ce cas.

Quand  $\phi_3 = 1$  et  $\phi_1 = \phi_2$ , l'énergie a deux minima globaux pour  $(\phi_1, \phi_2, \phi_3) = (1, 1, 1)$  et  $(\phi_1, \phi_2, \phi_3) = (-1, -1, 1)$  qui correspondent respectivement aux deux variants 1 et 2 de la phase  $\gamma'$  (cf. figure 3.29.b). Pour  $\phi_3 = -1$  et  $\phi_1 = -\phi_2$ , l'énergie a deux minima globaux pour  $(\phi_1, \phi_2, \phi_3) = (1, -1, -1)$  et  $(\phi_1, \phi_2, \phi_3) = (-1, 1, -1)$  qui correspondent respectivement aux deux variants 3 et 4 de la phase  $\gamma'$  (cf. figure 3.29.c).

Les potentiels de dissipation pour le champs des phases  $\Omega_{\phi_m}$  et pour la dissipation chimique  $\Omega_c$  sont définis par :

$$\Omega_{\phi_m}(\pi_m^{dis}) = \frac{1}{2} L \pi_m^{dis^2} \quad \text{et} \quad \Omega_c(\nabla \mu) = \frac{1}{2} M \nabla \mu^2 \quad (3.37)$$

où  $L$  est le coefficient d'Onsager et  $M$  est la mobilité de l'interface.



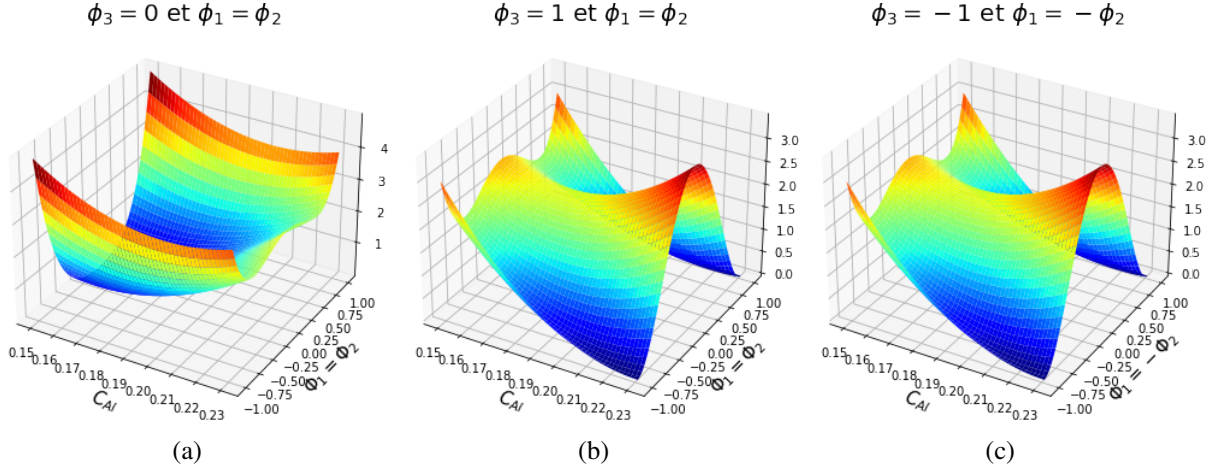


Figure 3.29: Énergie chimique : (a)  $\phi_3 = 0$  et  $\phi_1 = \phi_2$ , (b)  $\phi_3 = 1$  et  $\phi_1 = \phi_2$  et (c)  $\phi_3 = -1$  et  $\phi_1 = -\phi_2$

Comme les potentiels de dissipation sont définis, les lois d'états et les lois d'évolutions de champs des phases et de contribution chimique peuvent être définies :

$$\underline{\xi}_m = \frac{\partial f}{\partial \nabla \phi_m} = \beta \nabla \phi_m \quad (3.38)$$

$$\mu = \frac{\partial f_{chem}}{\partial c} + \frac{\partial f_{mech}}{\partial c} \quad (3.39)$$

$$\dot{\phi}_m = -L \pi_m^{dis} = -L \left( \pi_m + \frac{\partial f}{\partial \phi_m} \right) \quad (3.40)$$

$$\underline{J} = -M \nabla \mu \quad (3.41)$$

En remplaçant les équations de lois d'états et les lois d'évolutions dans les équations d'équilibre pour les paramètres d'ordre et la conservation de la masse, on obtient :

$$\nabla \cdot \underline{\xi}_m + \pi_m = \beta \Delta \phi_m - \frac{1}{L} \dot{\phi}_m - \frac{\partial f}{\partial \phi_m} = 0 \quad (3.42)$$

$$\dot{c} = -\nabla \cdot \underline{J} = -\nabla \cdot (-M \nabla \mu) = M \Delta \left( \frac{\partial f_{chem}}{\partial c} + \frac{\partial f_{mech}}{\partial c} \right) \quad (3.43)$$

## b Énergie mécanique

L'énergie libre mécanique  $F_{mech}$  est composée d'une partie élastique et d'une partie viscoplastique :

$$F_{mech}(c, \phi_m, \underline{\xi}^e, \underline{\alpha}, p) = F_{el}(c, \underline{\xi}^e) + F_{vp}(\phi_m, \underline{\alpha}, p) \quad (3.44)$$

La partie élastique  $F_{el}$  est donnée par la relation (3.5) :

$$F_{el}(c, \underline{\xi}^e) = \frac{1}{2} \int_V \underline{\xi}^e : \underline{\mathbb{C}}(c) : \underline{\xi}^e dV \quad (3.45)$$

Le tenseur d'élasticité  $\underline{\mathbb{C}}$  est interpolé par la fonction  $h(c)$  :

$$\underline{\mathbb{C}} = h(c) \underline{\mathbb{C}}^{\gamma'} + (1 - h(c)) \underline{\mathbb{C}}^{\gamma} \quad (3.46)$$

où  $h$  la fonction d'interpolation a l'expression suivante :

$$h(c) = \frac{c - c_\gamma}{c_{\gamma'} - c_\gamma}$$

Les tenseurs d'élasticité des matériaux cubiques utilisés pour les deux phases  $\gamma$  et  $\gamma'$  ont la forme donnée ci-dessous. Les valeurs des constantes élastiques de superalliage monocristallin à base de Nickel AM1 sont données dans le tableau qui suit [Cottura et al., 2012] :

$$C_{ijkl} = \begin{bmatrix} C_{11} & C_{12} & C_{12} & 0 & 0 & 0 \\ & C_{11} & C_{12} & 0 & 0 & 0 \\ & & C_{11} & 0 & 0 & 0 \\ & & & C_{44} & 0 & 0 \\ & Sym & & & C_{44} & 0 \\ & & & & & C_{44} \end{bmatrix}$$

| Phases    | $C_{11}$ (GPa) | $C_{12}$ (GPa) | $C_{44}$ (GPa) |
|-----------|----------------|----------------|----------------|
| $\gamma$  | 197            | 144            | 90             |
| $\gamma'$ | 193            | 131            | 97             |

La partie viscoplastique  $F_{vp}$  est interpolée au niveau de l'interface entre les phases  $\gamma$  et  $\gamma'$  par la fonction d'interpolation  $h_{mech}$ . Elle est décrite par les équations suivantes :

$$F_{vp}(\phi_m, \underline{\alpha}, p) = h_{mech}(\phi_m) F_{vp}(\underline{\alpha}, p)^{(\gamma')} + (1 - h_{mech}(\phi_m)) F_{vp}(\underline{\alpha}, p)^{(\gamma)}$$

$$\text{avec } F_{vp}(\underline{\alpha}, p)^{(k)} = \int_V \left[ \frac{1}{3} C^{(k)} \underline{\alpha} : \underline{\alpha} + \frac{1}{2} H^{(k)} p^2 \right] dV \quad k = (\gamma, \gamma')$$

$$h_{mech}(\phi_m) = \frac{1}{2} + \frac{1}{2} \tanh \left[ \theta \left( \frac{1}{3} \sum_{i=1}^3 \phi_m^2 - \frac{1}{2} \right) \right] \quad \text{où } \theta = 100$$

La partie mécanique du potentiel du dissipation est définie par :

$$\Omega_u(\underline{\sigma}, \underline{X}, R) = \int_V \tilde{\Omega} \left( J_2(\underline{\sigma} - \underline{X}) - (R_0 + R) + \left[ \frac{D}{2C} J_2^2(\underline{X}) - \frac{2DC}{9} J_2^2(\underline{\alpha}) \right] \right) dV \quad (3.47)$$

où :

$$\tilde{\Omega}(g) = \frac{K}{N+1} \left\langle \frac{g}{K} \right\rangle^{N+1} \quad \text{est la densité du potentiel de dissipation} \quad (3.48)$$

$$\langle a \rangle \text{ représente la partie positive de } a \quad (3.49)$$

$$J_2(\underline{\sigma}) = \sqrt{\frac{3}{2}} (\underline{\sigma}' : \underline{\sigma}') \quad \text{est la contrainte équivalente effective} \quad (3.50)$$

$$\underline{\sigma}' = \underline{\sigma} - \frac{1}{3} tr(\underline{\sigma}) : \underline{1} \quad \text{est la contrainte déviatorique de } \underline{\sigma} \quad (3.51)$$

$R_0$  est la limite d'élasticité initiale,  $R$  est le paramètre d'écrouissage isotrope et  $\underline{X}$  est le paramètre d'écrouissage cinématique.

Comme les différentes parties du potentiel du dissipation sont connues, le reste des lois d'états et des lois d'évolutions peut être défini explicitement :

Les lois d'état :

$$\begin{aligned}\tilde{\sigma} &= \frac{\partial f_e}{\partial \tilde{\varepsilon}^e} = \tilde{C}(c) : \tilde{\varepsilon}^e \\ X &= \frac{\partial f_{vp}}{\partial \tilde{\alpha}} = h_{mech}(\phi_m) \frac{2}{3} C^{(\gamma)} \tilde{\alpha} + (1 - h_{mech}(\phi_m)) \frac{2}{3} C^{(\gamma')} \tilde{\alpha} \\ R &= \frac{\partial f_{vp}}{\partial p} = h_{mech}(\phi_m) \frac{2}{3} H^{(\gamma)} p + (1 - h_{mech}(\phi_m)) \frac{2}{3} H^{(\gamma')} p\end{aligned}$$

Les lois d'évolution :

$$\begin{aligned}\dot{p} &= -\frac{\partial \Omega}{\partial R} = \left\langle \frac{J_2(\tilde{\sigma} - X) - R_0 - R}{K} \right\rangle^N = \sqrt{\frac{2}{3}} \tilde{\varepsilon}^p : \tilde{\varepsilon}^p \\ \dot{\tilde{\alpha}} &= -\frac{\partial \Omega}{\partial X} = \tilde{\varepsilon}^p - D \tilde{\alpha} \dot{p} \\ \dot{\tilde{\varepsilon}}^p &= -\frac{\partial \Omega}{\partial \tilde{\sigma}} = \frac{3}{2} \dot{p} \frac{\tilde{\sigma}' - X'}{J_2(\tilde{\sigma}' - X')}\end{aligned}$$

Les paramètres  $C$ ,  $D$ ,  $H$ ,  $N$ ,  $K$  et  $R_0$  sont interpolés avec la fonction d'interpolation mécanique  $h_{mech}$ . Les valeurs utilisées dans les simulations pour les deux phases ( $\gamma$  et  $\gamma'$ ) de superalliage monocristallin à base de Nickel AM1 sont données dans le tableau suivant [Cottura et al., 2012] :

| Phases    | $C_{11}$ (GPa) | $C_{12}$ (GPa) | $C_{44}$ (GPa) | $C$ (GPa) | D    | N | $K$ (MPa.s <sup>1/N</sup> ) | $R_0$ (MPa)     | H(GPa) |
|-----------|----------------|----------------|----------------|-----------|------|---|-----------------------------|-----------------|--------|
| $\gamma$  | 197            | 144            | 90             | 150       | 1900 | 5 | 150                         | 86              | 0.     |
| $\gamma'$ | 193            | 131            | 97             | 150       | 1900 | 5 | 150                         | 10 <sup>5</sup> | 0.     |

### 3.4.3 Les équations d'évolution

L'évolution du champs conservatif de concentration est décrite par l'équation de diffusion :

$$\dot{c} = L \Delta \left( \frac{\partial f_{chem}}{\partial c}(c, \phi_m) + \frac{\partial f_{mech}}{\partial c}(c, \phi_m, \tilde{\varepsilon}^e, \tilde{\alpha}, p) \right) \quad (3.52)$$

où  $D$  est le coefficient de diffusion et  $L$  est le coefficient d'Onsager, qui sont supposés constants pour une température donnée sont donnés par les relations suivantes :

$$\text{où } L = D \left( \frac{\partial^2 f_{chem}}{\partial c^2} \right)^{-1} \quad \text{avec } D = D_0 \exp \left[ \frac{-\Delta U}{k_\beta T} \right] \quad (3.53)$$

avec  $D_0 = 1.45 \times 10^{-4} m^2 s^{-1}$ ,  $\Delta U = 2.8 eV$  et  $k_\beta = 8.617 \times 10^{-5} eV.K^{-1}$ .

Pour une température donnée, ces grandeurs sont constantes. L'évolution du champs non-conservatif des paramètres d'ordre est modélisée par l'équation de Allen-Cahn avec  $M$  est un coefficient cinétique constant relié à la relaxation structurelle :

$$\dot{\phi}_m = -M \left( \frac{\partial f_{chem}}{\partial c}(c, \phi_m) + \frac{\partial f_{mech}}{\partial c}(c, \phi_m, \tilde{\varepsilon}^e, \tilde{\alpha}, p) - \beta \Delta \phi_m \right) \quad (m = \{1, 2, 3\}) \quad (3.54)$$

Lors de transformations de phases diffusives, comme c'est le cas dans les superalliages à base de Ni, l'énergie élastique s'équilibre beaucoup plus rapidement que le temps de diffusion caractéristique. Lors de l'étude de l'évolution microstructurale, il est donc possible de supposer que l'équilibre mécanique est

toujours respecté. Dans le cas d'une évolution microstructurale sous chargement appliqué, nous avons :

$$\nabla \cdot (\underline{\sigma}) + \underline{f} = \nabla \cdot \left( \frac{\partial f_{mech}}{\partial \underline{\varepsilon}^e} (c, \phi_m, \underline{\xi}^e, \underline{\alpha}, p) \right) + \underline{f} = 0 \text{ dans le volume } V \quad (3.55)$$

$$\underline{t} = \underline{\sigma} \cdot \underline{n} \text{ à la surface } \partial V \quad (3.56)$$

### 3.4.4 Implémentation éléments finis

#### a Formulation faible

La formulation faible pour l'équation différentielle de champs de phase est donnée par l'expression suivante :

$$\Gamma(\phi_m^*) = \int_V (\pi_m \phi_m^* - \underline{\xi}_m \cdot \nabla \phi_m^*) dv + \int_{\partial V} \zeta_m \phi_m^* ds = 0 \quad (m = \{1, 2, 3\}) \quad (3.57)$$

où  $\phi_m^*$  est un champs arbitraire de paramètre d'ordre virtuel .

En multipliant l'équation de diffusion par un champ arbitraire de concentration virtuelle  $c^*$  sur un élément arbitraire, on obtient la représentation intégrale suivante :

$$\int_V (\dot{c} + \nabla \underline{J}) c^* dv = 0 \text{ dans le volume } V \quad (3.58)$$

où  $\underline{J} = -M \nabla \mu$  est le flux chimique d'Al et  $\mu = \frac{\partial F}{\partial c}$  est le potentiel chimique d'Al.

En intégrant par parties et en utilisant la théorème de divergence, on obtient :

$$\begin{aligned} \int_V c^* \nabla \underline{J} dv &= \int_V (\nabla [c^* \underline{J}] - \nabla c^* \cdot \underline{J}) dv \\ &= \int_V c^* \underline{J} n ds - \int_V \nabla c^* \cdot \underline{J} dv \end{aligned} \quad (3.59)$$

En tenant compte de conditions aux limites, la formulation faible de l'équation de diffusion est donnée par :

$$\Gamma(c^*) = \int_V (\dot{c} c^* - \underline{J} \cdot \nabla c^*) dv + \int_{\partial V} j c^* ds = 0 \quad (3.60)$$

La formulation faible pour le déplacement est donnée par l'équation suivante :

$$\Gamma(\underline{u}^*) = \int_V (-\underline{\sigma} : \nabla \underline{u}^* + \underline{f} \cdot \underline{u}^*) dv + \int_{\partial V} \underline{t} \cdot \underline{u}^* ds = 0 \quad (3.61)$$

où  $\underline{u}^*$  est un champ arbitraire de déplacement virtuel

Le problème couplé consiste à trouver les champs  $c(\underline{x}, t)$ ,  $\phi_m(\underline{x}, t)$  et  $\underline{u}(\underline{x}, t)$  tel que :

$$\left. \begin{aligned} &t = 0 \\ &\phi_m(\underline{x}, 0) = \phi_{m0}(\underline{x}) \\ &c(\underline{x}, 0) = c_0(\underline{x}) \\ \\ &\text{chaque instant } t > 0 \\ &\Gamma(\phi_m^*) = \int_V (\pi_m \phi_m^* - \underline{\xi}_m \cdot \nabla \phi_m^*) dv + \int_{\partial V} \zeta_m \phi_m^* ds = 0 \\ &\Gamma(c^*) = \int_V (\dot{c} c^* - \underline{J} \cdot \nabla c^*) dv + \int_{\partial V} j c^* ds = 0 \\ &\Gamma(\underline{u}^*) = \int_V (-\underline{\sigma} : \nabla \underline{u}^* + \underline{f} \cdot \underline{u}^*) dv + \int_{\partial V} \underline{t} \cdot \underline{u}^* ds = 0 \end{aligned} \right\} \quad (3.62)$$

## b Discrétisation

Afin d'obtenir une solution par éléments finis, le domaine spatial est subdivisé en  $N$  éléments. Les champs  $(\phi_1, \phi_2, \phi_3, \underline{u}, c)$  sont approximés à l'intérieur de chaque élément et à chaque instant  $t$ , en termes de valeurs nodales au moyen de fonctions d'interpolation à l'intérieur de chaque élément :

$$\begin{aligned} c(\underline{x}, t) &= \sum_{i=1}^n N_i^e(\underline{x}) c_i(t), & c^*(\underline{x}, t) &= \sum_{i=1}^n N_i^e(\underline{x}) c_i^*(t) \\ \phi_m(\underline{x}, t) &= \sum_{i=1}^n N_i^e(\underline{x}) \phi_{mi}(t), & \phi_m^*(\underline{x}, t) &= \sum_{i=1}^n N_i^e(\underline{x}) \phi_{mi}^*(t), \quad m = \{1, 2, 3\} \\ \underline{u}(\underline{x}, t) &= \sum_{i=1}^n N_{ij}^e(\underline{x}) \underline{u}_j(t), & \underline{u}^*(\underline{x}, t) &= \sum_{i=1}^n N_{ij}^e(\underline{x}) \underline{u}_j^*(t) \end{aligned}$$

Une notation de Voigt (indiquée par la barre inférieure) est utilisée pour introduire les équations discrétisées où  $n$  est le nombre de noeuds dans l'élément  $e$  contenant  $\underline{x}$ .  $N_i$  et  $N_{ij}$  sont respectivement les fonctions de forme du vecteur et de la matrice, qui s'expriment comme suit :

$$\{N(\underline{x})\} = \{N_1(\underline{x}), N_2(\underline{x}), \dots, N_n(\underline{x})\}$$

et

$$\begin{aligned} [N(\underline{x})] &= \begin{bmatrix} N_1^e & 0 & N_2^e & 0 & \dots & N_n^e & 0 \\ 0 & N_1^e & 0 & N_2^e & \dots & 0 & N_n^e \end{bmatrix} \\ \nabla c(\underline{x}, t) &= \sum_{i=1}^n B_{ij}^e(\underline{x}) c_j(t), & \nabla c^*(\underline{x}, t) &= \sum_{i=1}^n B_{ij}^e(\underline{x}) c_j^*(t) \\ \nabla \phi(\underline{x}, t) &= \sum_{i=1}^n B_{ij}^e(\underline{x}) \phi_j(t), & \nabla \phi^*(\underline{x}, t) &= \sum_{i=1}^n B_{ij}^e(\underline{x}) \phi_j^*(t) \\ \nabla \underline{u}(\underline{x}, t) &= \sum_{i=1}^n \underline{B}_{ij}^e(\underline{x}) \underline{u}_j(t), & \nabla \underline{u}^*(\underline{x}, t) &= \sum_{i=1}^n \underline{B}_{ij}^e(\underline{x}) \underline{u}_j^*(t) \end{aligned}$$

Dans le cas 2d, les matrices  $[B^e(\underline{x})]$  et  $[\underline{B}^e(\underline{x})]$  sont définies par les dérivées premières des fonctions de forme comme suit :

$$[B^e(\underline{x})] = [\underline{\text{grad}}(N^e(\underline{x}))] = \begin{bmatrix} \frac{\partial N_1^e}{\partial x} & \frac{\partial N_2^e}{\partial x} & \dots & \frac{\partial N_n^e}{\partial x} \\ \frac{\partial N_1^e}{\partial y} & \frac{\partial N_2^e}{\partial y} & \dots & \frac{\partial N_n^e}{\partial y} \end{bmatrix} \quad (3.63)$$

et

$$[\underline{B}^e(\underline{x})] = \begin{bmatrix} \frac{\partial N_1^e}{\partial x} & 0 & \frac{\partial N_2^e}{\partial x} & 0 & \dots & \frac{\partial N_n^e}{\partial x} & 0 \\ 0 & \frac{\partial N_1^e}{\partial y} & 0 & \frac{\partial N_2^e}{\partial y} & \dots & 0 & \frac{\partial N_n^e}{\partial y} \\ \frac{\partial N_1^e}{\partial y} & \frac{\partial N_1^e}{\partial x} & \frac{\partial N_2^e}{\partial y} & \frac{\partial N_2^e}{\partial x} & \dots & \frac{\partial N_n^e}{\partial y} & \frac{\partial N_n^e}{\partial x} \end{bmatrix} \quad (3.64)$$

En ce qui concerne la discrétisation temporelle, les équations différentielles sont intégrées à chaque point de Gauss dans une procédure incrémentale utilisant un schéma implicite d'Euler ( $\theta$ -method). En utilisant les notations  $c(t)$  et  $\phi(t)$  pour les valeurs connues du pas de temps actuel  $t$ ,  $\phi(t + \Delta t)$  et  $c(t + \Delta t)$  au temps  $t + \Delta t$  sont estimés en résolvant les équations suivantes :

$$\dot{c}(t + \Delta t) = \frac{c(t + \Delta t) - c(t)}{\Delta t}, \quad c(0) = c_0 \quad (3.65)$$

$$\dot{\phi}_m(t + \Delta t) = \frac{\phi_m(t + \Delta t) - \phi_m(t)}{\Delta t}, \quad \phi_m(0) = \phi_{m0} \quad \text{avec} \quad m = \{1, 2, 3\} \quad (3.66)$$

$\Delta t$  indique l'incrément de temps, et  $c_0$ ,  $\phi_{m0}$  sont les conditions initiales pour la concentration et le paramètre d'ordre. les conditions initiales pour la concentration et le paramètre d'ordre.

Après avoir substitué l'approximation nodale et la discrétisation temporelle dans Eq. (3.62), nous déduisons le résidu de l'élément, qui peut être écrit sous la forme suivante :

$$\{\mathcal{R}^e(u, c, \phi_m)\} = \begin{Bmatrix} \mathcal{R}_u^e \\ \mathcal{R}_c^e \\ \mathcal{R}_{\phi_m}^e \end{Bmatrix}, \quad m = \{1, 2, 3\} \quad (3.67)$$

où  $\mathcal{R}_u^e$ ,  $\mathcal{R}_c^e(c, \phi_m)$  et  $\mathcal{R}_{\phi_m}^e(\phi_m)$  sont respectivement l'élément résiduels des éléments pour la formulation variationnelle de la mécanique classique, de la diffusion et le champ de phase, définis comme suit :

$$(\mathcal{R}_u^e)_i = \int_{V^e} \left( -[B^e]_{ij} \sigma_j + [N^e]_{ij} f_j \right) dv + [N^e]_{ij} t_j ds \quad (3.68)$$

$$(\mathcal{R}_c^e)_i = \int_{V^e} \left( N_i^e N_j^e \dot{c}_j - [B^e]_{ij} J_j \right) dv + \int_{\partial V^e} N_i^e j ds \quad (3.69)$$

$$(\mathcal{R}_{\phi_m}^e)_i = \int_{V^e} \left( N_i^e \pi_m(\phi_m) - [B^e]_{ij} \xi_{mj} \right) dv + \int_{\partial V^e} N_i^e \zeta_m ds, \quad m = \{1, 2, 3\} \quad (3.70)$$

Le vecteur résiduel global peut être obtenu en assemblant les résidus de tous les éléments à l'aide de la matrice d'assemblage  $[A^e]$ :

$$\{\mathcal{R}(u, c, \phi_m)\} = \sum_{e=1}^N [A^e] \cdot \{\mathcal{R}^e(u, c, \phi_m)\} = \{0\} \quad (3.71)$$

Une méthode standard de Newton-Raphson est utilisée pour résoudre le système d'équations non linéaires de manière itérative, où trois vecteurs résiduels pour les degrés de liberté  $(\phi_m, c, \underline{u})$  et la matrice de rigidité généralisée sont calculés, en suivant les règles habituelles de la mécanique [Besson et al., 2001]. Un algorithme de Newton implicite est utilisé pour la méthode de résolution de l'intégration globale, basée sur le calcul de la matrice tangente cohérente locale [Simo and Hughes, 1998].

Étant donné un ensemble connu de degrés de liberté nodaux au temps  $t$ , et en supposant que le résidu disparaît au pas de temps suivant  $t + \Delta t$ , un ensemble d'équations non linéaires résulte pour les degrés de liberté nodaux à  $t + \Delta t$ . Elle est résolue par la méthode de Newton-Raphson de manière itérative. Cela nécessite le calcul de la matrice de rigidité généralisée de l'élément, qui est obtenue par dérivation du vecteur résiduel par rapport aux degrés de liberté  $(\phi_m, c, \underline{u})$  avec  $m = \{1, 2, 3\}$  :

$$[K_t^e] = \left[ \frac{\partial \mathcal{R}^e}{\partial \delta^e} \right] = \begin{bmatrix} [K_{\phi_1 \phi_1}^e] & [K_{\phi_1 \phi_2}^e] & [K_{\phi_1 \phi_3}^e] & [K_{\phi_1 u}^e] & [K_{\phi_1 c}^e] \\ [K_{\phi_2 \phi_1}^e] & [K_{\phi_2 \phi_2}^e] & [K_{\phi_2 \phi_3}^e] & [K_{\phi_2 u}^e] & [K_{\phi_2 c}^e] \\ [K_{\phi_3 \phi_1}^e] & [K_{\phi_3 \phi_2}^e] & [K_{\phi_3 \phi_3}^e] & [K_{\phi_3 u}^e] & [K_{\phi_3 c}^e] \\ [K_{u \phi_1}^e] & [K_{u \phi_2}^e] & [K_{u \phi_3}^e] & [K_{uu}^e] & [K_{uc}^e] \\ [K_{c \phi_1}^e] & [K_{c \phi_2}^e] & [K_{c \phi_3}^e] & [K_{cu}^e] & [K_{cc}^e] \end{bmatrix} \quad \text{avec} \quad \{\delta^e\} = \begin{Bmatrix} \{\phi_1^e\} \\ \{\phi_2^e\} \\ \{\phi_3^e\} \\ \{u^e\} \\ \{c^e\} \end{Bmatrix} \quad (3.72)$$

La matrice de rigidité généralisée de l'élément est divisée en 25 sous-matrices. Voir l'annexe B pour la définition des différentes composantes des sous-matrices.

### 3.5 Stratégie d'identification des paramètres

Une étape importante pour pouvoir lancer les calculs consiste à déterminer les valeurs des paramètres du modèle afin que les grandeurs physiques associées respectent l'ordre de grandeur issus de la bibliographie. Les différents paramètres du modèle à identifier ainsi que les grandeurs physiques correspondantes sont donnés dans le tableau 3.2. Les paramètres  $\Delta f$ ,  $\beta$ ,  $\gamma$ ,  $\delta$  et  $M$  sont inconnus et  $D$  le coefficient de diffusion est supposé connu et constant.

| Paramètres du modèle                                    | Grandeurs physiques              |
|---|----------------------------------|
| $\Delta f$ : courbure de l'énergie de la phase $\gamma$ | $\sigma$ : énergie d'interface   |
| $\beta$ : raideur d'interface                           | $\delta$ : épaisseur d'interface |
| $L = \frac{D}{\Delta f}$ : coefficient d'Onsager        | $D$ : coefficient de diffusion   |
| $M$ : mobilité du champ de phase                        |                                  |

Table 3.2: Paramètres du modèle et grandeurs physiques associées.

La stratégie d'identification des paramètres du modèle consiste, tout d'abord, à fixer l'épaisseur d'interface  $\delta$  et ainsi que l'énergie d'interface  $\sigma = \sigma_{exp}$  où  $4 < \sigma_{exp} < 80 \text{ mJ/m}^2$ . Par la suite, il faut déterminer les paramètres  $\Delta f$  et  $\beta$  qui permettent d'avoir ces valeurs pour l'épaisseur d'interface  $\delta$  et l'énergie d'interface  $\sigma$ . Par la suite, il faut déterminer  $M$  numériquement de sorte que la transformation de phase soit contrôlée par la diffusion, c'est-à-dire, il faut déterminer la valeur de  $M$  à partir de laquelle la mobilité du champs de phase n'a pas d'effet sur la cinétique du transformation.

Une étude asymptotique de modèle de Cahn-Hillard avec un seul paramètre d'ordre  $\phi$  a montré que  $\sigma \simeq \sqrt{\beta\Delta f}$  et  $\delta \simeq \sqrt{\frac{\beta}{\Delta f}}$ . Des calculs de transformations de phases d'une phase  $\gamma'$  sousaturée en Al avec un front plan entouré par une matrice  $\gamma$  sursaturée en Al sont réalisés avec différentes valeurs des paramètres  $\Delta f$  et  $\beta$  afin de vérifier l'existence de ces relations pour ce modèle avec 3 paramètres d'ordre (cf. figure 3.30.a). Les valeurs des grandeurs physiques  $\sigma$  et  $\delta$  sont calculées pour chaque couple des valeurs ( $\Delta f$  et  $\beta$ ) à l'aide des expression dans les figures 3.30.b et 3.30.c.

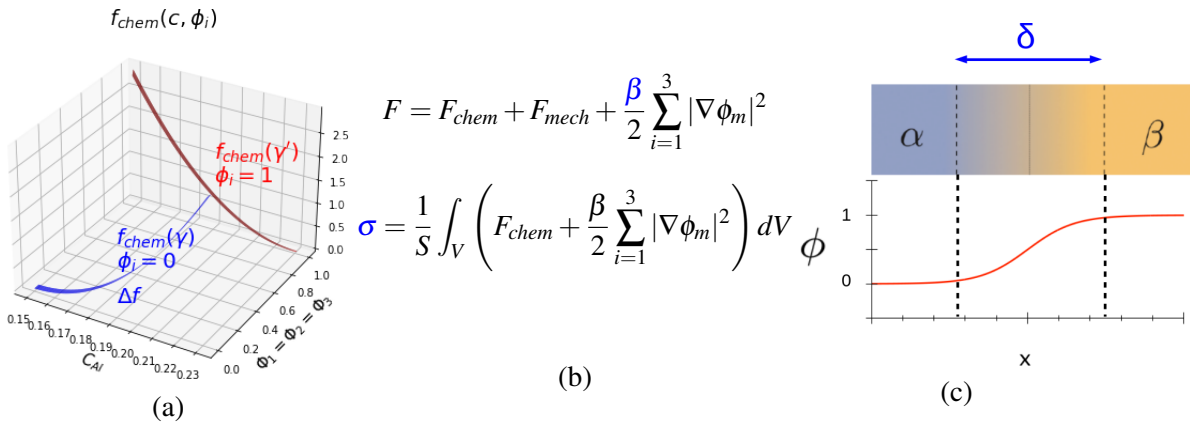


Figure 3.30: Définitions des paramètres du modèle : (a)  $\Delta f$  est la courbure de l'énergie chimique de la phase  $\gamma$  (b)  $\beta$  est la raideur d'interface et  $\sigma$  est l'énergie d'interface (c)  $\delta$  est l'épaisseur d'interface

Dans les figures 3.31.b et 3.31.c, les points de calculs ont servi pour identifier les constantes des relations suivantes :

$$\sigma \simeq \alpha_1 \sqrt{\beta\Delta f} \quad \delta \simeq \alpha_2 \sqrt{\frac{\beta}{\Delta f}} \quad \text{où} \quad \alpha_1 = 2.828 \times 10^{-2}[-] \quad \text{et} \quad \alpha_2 = 159.134[-] \quad (3.73)$$

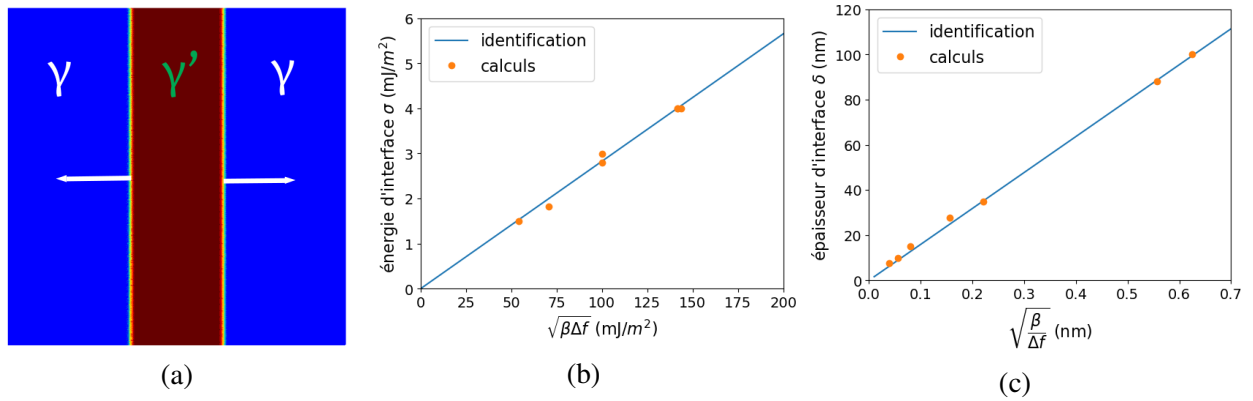


Figure 3.31: (a) Conditions initiales utilisé dans le calcul pour vérifier les relations  $\sigma \simeq \sqrt{\beta\Delta f}$  et  $\delta \simeq \sqrt{\frac{\beta}{\Delta f}}$  (b) les résultats pour l'énergie d'interface (c) pour l'épaisseur d'interface

Une fois que les relations entre les paramètres du modèle et les grandeurs physiques sont identifiées, les valeurs de  $\Delta f$  et  $\beta$  sont calculées en fixant l'énergie d'interface  $\sigma = 4\text{mJ/m}^2$  et l'épaisseur d'interface  $\delta = 25\text{nm}$  souhaitées. Le tableau 3.3 résume les différentes valeurs retenues des paramètres.

| $\Delta f$<br>(mJ/mm <sup>3</sup> ) | $\beta$<br>(mJ/mm)      | $\delta$<br>(nm) | $\sigma$<br>(mJ/m <sup>2</sup> ) |
|-------------------------------------|-------------------------|------------------|----------------------------------|
| 906.                                | $2.208 \times 10^{-11}$ | 27.5             | 4.                               |

Table 3.3: Valeurs des paramètres identifiées

Une étude de sensibilité de mobilité de champs de phase a été réalisée afin de déterminer la valeur de la mobilité  $M$ . Le calcul utilisé pour faire cette étude est un calcul chimique en prenant en compte le désaccord paramétrique entre les deux phases  $\gamma$  et  $\gamma'$  (cf. figure 3.32.a et 3.32.b). Cinq valeurs de mobilité ont été testées  $M = 0.01, 0.1, 1, 10, 100\text{mm}^3 \cdot (\text{mJ} \cdot \text{s})^{-1}$ . À partir de la valeur de  $M = 10\text{mm}^3 \cdot (\text{mJ} \cdot \text{s})^{-1}$ , la mobilité n'a plus d'influence sur la cinétique de transformation de phase (cf. figure 3.32.c). Il en résulte que la cinétique de la transformation est bien contrôlée par la diffusion.

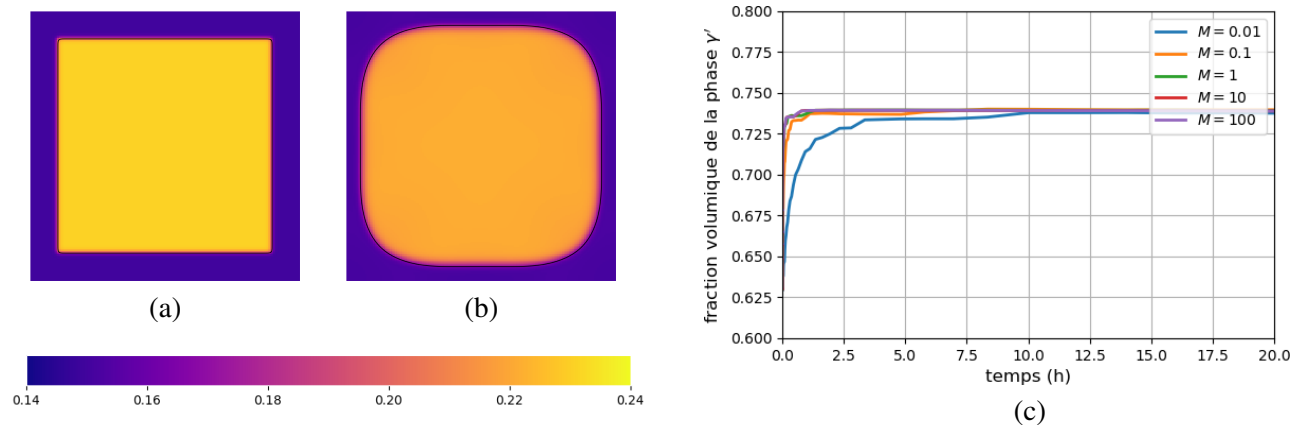


Figure 3.32: Calcul chimique utilisé dans l'étude de sensibilité de la mobilité de champs de phase en prenant en compte le désaccord paramétrique ( $\delta = -0.1\%$ ) (a) conditions initiales  $t = 0\text{h}$  (b) après  $t = 100\text{h}$  (c) évolution du fraction volumique de la phase  $\gamma'$  pour 5 valeurs de  $M = 0.01, 0.1, 1, 10$  et  $100\text{mm}^3 \cdot (\text{mJ} \cdot \text{s})^{-1}$



### 3.6 Lien entre sollicitation et la mise en radeaux : calcul analytique

Khachaturyan [Khachaturyan, 1983b] a étudié l'effet du tenseur de déformation sans chargement issu du désaccord paramétrique (misfit)  $\tilde{\varepsilon}^*$  sur la morphologie d'un précipité cubique dans une matrice cubique. Parmi les cas étudiés qui nous intéressent, on retient le cas où l'anisotropie élastique caractérisée par  $\xi = (C_{11} - C_{12} - 2C_{44}) / (C_{44})$  est négative. C'est le cas pour la plupart des superalliages à base de Ni.

Pour un problème homogène, il existe des directions molles normales aux interfaces matrice-précipités minimisant l'énergie élastique en formant des plaquettes infinies. Ces directions douces sont induites par l'anisotropie élastique. Dans le cas où le tenseur de déformation de transformation  $\tilde{\varepsilon}^*$  est isotrope, les trois directions cubiques sont équivalentes et la plaque minimisant l'énergie élastique doit avoir des normales le long des trois directions cubiques. La forme de précipité reste alors cubique. Dans le cas où le tenseur de déformation de transformation  $\tilde{\varepsilon}^*$  est quadratique (exp.  $\varepsilon_{xx}^* \neq \varepsilon_{yy}^*$  et  $\varepsilon_{yy}^* = \varepsilon_{zz}^*$ ), la direction des plaques dépend du rapport  $Q = \varepsilon_{yy}^* / \varepsilon_{xx}^*$ . Le vecteur  $\underline{n}_0$  perpendiculaire à l'interface  $\gamma/\gamma'$  s'écrit  $\underline{n}_0 = (\cos(\theta_0), \sin(\theta_0), 0)$  où

$$\cos^2(\theta_0) = \begin{cases} 0 & \text{si } -\infty \leq Q \leq -\frac{C_{11} + C_{12}}{C_{12}} \text{ et } 1 \leq Q \leq \infty \\ 1 + \frac{C_{11} + 2C_{12}}{C_{11} + C_{12}} \frac{Q}{1 - Q} & \text{si } -\frac{C_{11} + C_{12}}{C_{12}} \leq Q \leq 0 \\ 1 & \text{si } 0 \leq Q \leq 1 \end{cases}$$

Le vecteur  $\underline{n}_0 = (\cos(\theta_0), 0, \sin(\theta_0))$  est également normal à l'interface  $\gamma/\gamma'$  à cause de l'invariance de permutation des axes y et z. Si  $Q = 1$ ,  $\cos(\theta_0) = 0$  ou 1. On retrouve le cas où les trois directions cubiques sont équivalentes et la forme de précipité reste cubique.

Boussinot a utilisé une approximation de "type champs moyen". Elle consiste à remplacer le problème inhomogène par un problème élastique homogène où la fonction de Green est celle associée aux constantes élastiques moyennes de deux phases ( $\gamma/\gamma'$ ) et le tenseur de déformation propre initial est remplacé par un tenseur effectif  $\tilde{\varepsilon}_{eff}^*$  qui dépend des inhomogénéités élastiques de la concentration moyenne et de la déformation moyenne défini par :

$$\varepsilon_{ij}^* = \varepsilon_{ij}^0 - \bar{S}_{ijkl} C'_{klmn} [\bar{\varepsilon}_{mn} - \varepsilon_{mn}^0 (c_{\gamma'} + c_{\gamma} - 2\bar{c})] \quad (3.74)$$

où  $\varepsilon_{ij}^0$  la déformation sans contrainte,  $\bar{S}_{ijkl}$  le tenseur homogénéisé des souplesses,  $\bar{\varepsilon}_{mn} = \bar{S}_{ijkl} \sigma_{kl}^{app}$  la déformation extérieure appliquée.  $C'_{klmn} = \frac{(C_{klmn}^{\gamma'} - C_{klmn}^{\gamma})}{(c_{\gamma'} - c_{\gamma})}$  avec  $C_{klmn}^{\gamma'}$  tenseur d'élasticité de la phase  $\gamma'$  et  $C_{klmn}^{\gamma}$  tenseur d'élasticité de la phase  $\gamma$ .  $c_{\gamma}$ ,  $c_{\gamma'}$  et  $\bar{c}$  sont respectivement la concentration d'équilibre de la phase  $\gamma$ , la concentration d'équilibre de la phase  $\gamma'$  et la concentration moyenne sur l'ensemble du maillage.

### 3.7 Les paramètres nécessaires pour la mise en radeau

Dans les différentes parties de cette section, la condition de déformation plane généralisée est utilisée pour étudier les effets des paramètres nécessaires pour la mise en radeau. La microstructure initiale cubique est composée d'un précipité  $\gamma'$  et de variant 1  $(\phi_1, \phi_2, \phi_3) = (1, 1, 1)$  et une matrice  $\gamma$ . Le désaccord paramétrique (misfit) est égal à  $\delta = -0.1\%$ . Le maillage utilisé fait  $0.4\mu m \times 0.4\mu m$  divisé en  $160 \times 160$  éléments périodiques linéaires quadrilatéral avec 4 points de Gauss (c2d4). Des conditions périodiques sont appliquées. Le temps de simulation est de  $t = 51h$ .

#### 3.7.1 Effet de désaccord paramétrique (misfit)

##### a Effet du signe de misfit

Deux calculs sont réalisés respectivement avec un misfit positive  $\delta = +0.1\%$  et un misfit négatif  $\delta = -0.1\%$  sans appliquer un chargement extérieur afin d'étudier l'effet du signe de misfit sur l'évolution de morphologie des précipités. Le signe de misfit n'a pas d'effet sur la forme du précipité quand il n'a pas

subit un chargement mécanique extérieure (cf. figures 3.33). Par la suite, il n'y a pas d'effet sur la fraction volumique de la phase  $\gamma'$ . Par contre, le signe de misfit modifie les signes des champs locaux de déformation et de contrainte dans les couloirs de  $\gamma$ .

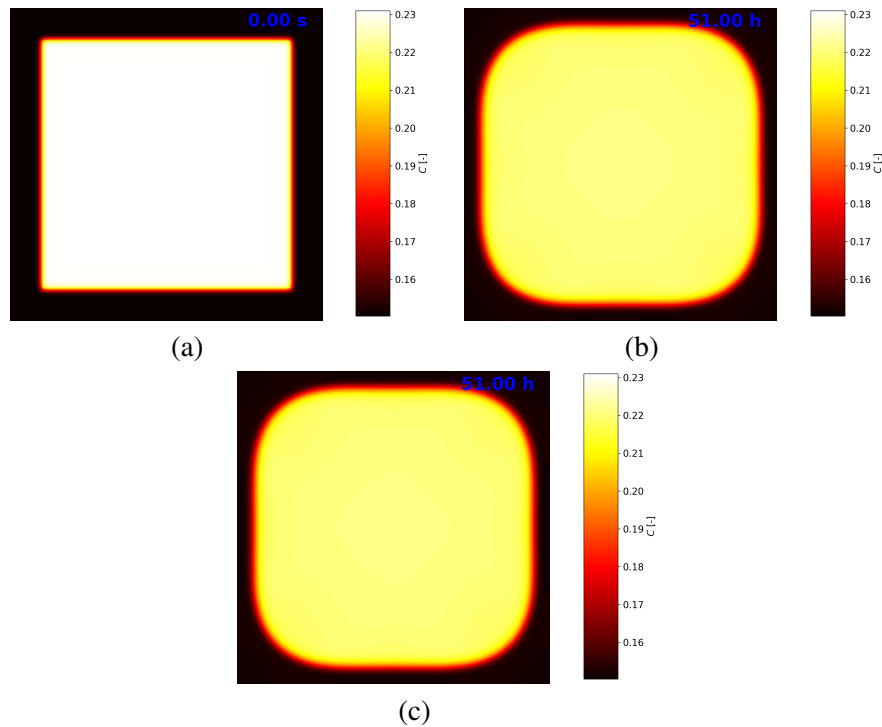


Figure 3.33: Évolution morphologie du précipité (a) Condition initiale (b) pour un misfit positif  $\delta = +0.1\%$  (c) pour un misfit négatif  $\delta = -0.1\%$

### b Effet de la valeur du misfit

La valeur absolue du misfit influe sur la valeur de concentration d'équilibre  $c_q$  des phases  $\gamma$  et  $\gamma'$  : plus la valeur de misfit augmente, plus la valeur de  $c_q^{\gamma'}$  diminue et  $c_q^{\gamma}$  augmente. De plus, l'énergie élastique est plus importante quand la valeur absolue de misfit augmente. De même, la fraction volumique de  $\gamma'$  augmente avec l'augmentation de la valeur absolue de misfit (cf. figures 3.34 et 3.35).

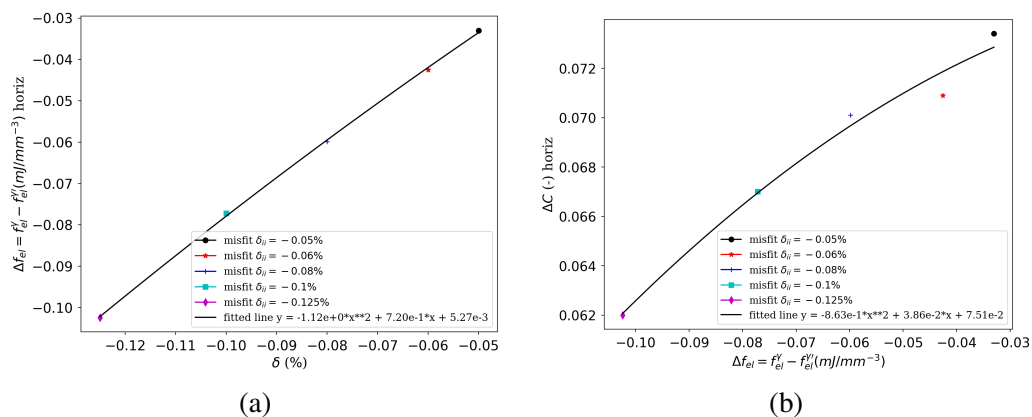


Figure 3.34: (a) Évolution de la différence des énergies élastiques des deux phases  $\gamma$  et  $\gamma'$  en fonction du valeur de misfit , (b) évolution de concentration d'équilibre  $\Delta C = C_q^{\gamma'} - C_q^{\gamma}$  en fonction de différence d'énergie élastique  $\Delta f^{el}$ .

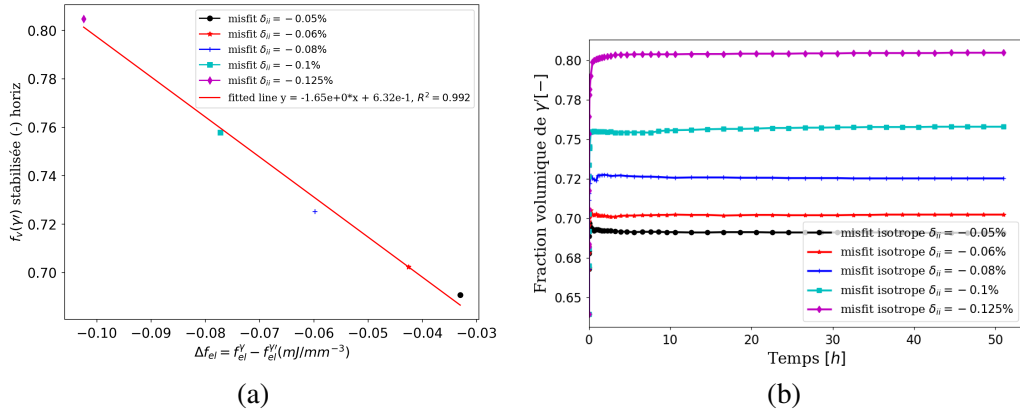


Figure 3.35: (a) évolution de fraction volumique de  $\gamma'$  en fonction de  $\Delta f^{el}$  et (b) évolution de la fraction de  $\gamma'$  en fonction du temps.

### c Effet de l'anisotropie de misfit

Dans les figures 3.36 et 3.37, la moitié de l'abscisse est tracée selon l'axe horizontal ( $y < 0$ ) et la 2<sup>ème</sup> moitié selon l'axe vertical ( $x < 0$ ). La matrice de misfit est donnée par :

$$\tilde{\delta} = \begin{bmatrix} \delta_{11} & 0 & 0 \\ 0 & \delta_{22} & 0 \\ 0 & 0 & \delta_{33} \end{bmatrix}$$

Dans le cas isotrope ( $\delta_{ii} = -0.1\%$ ), le profil de concentration d'Al pour les deux axes horizontal et vertical n'atteint pas la limite de la boîte de la simulation, cela indique que le précipité reste cubique. L'énergie élastique dans la phase  $\gamma$  est égale dans les couloirs horizontaux et verticaux pendant toute la simulation (cf. figures 3.36 et 3.37).

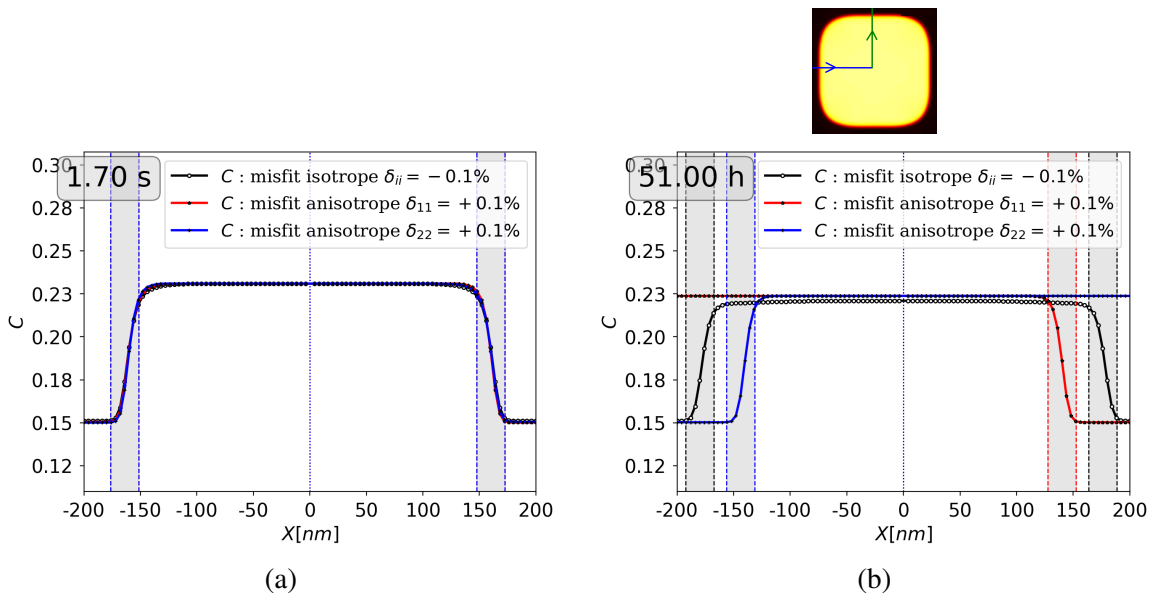


Figure 3.36: Effet de l'anisotropie sur le profil de la concentration : (a) à  $t = 1.7s$ , (b) à  $t = 51h$

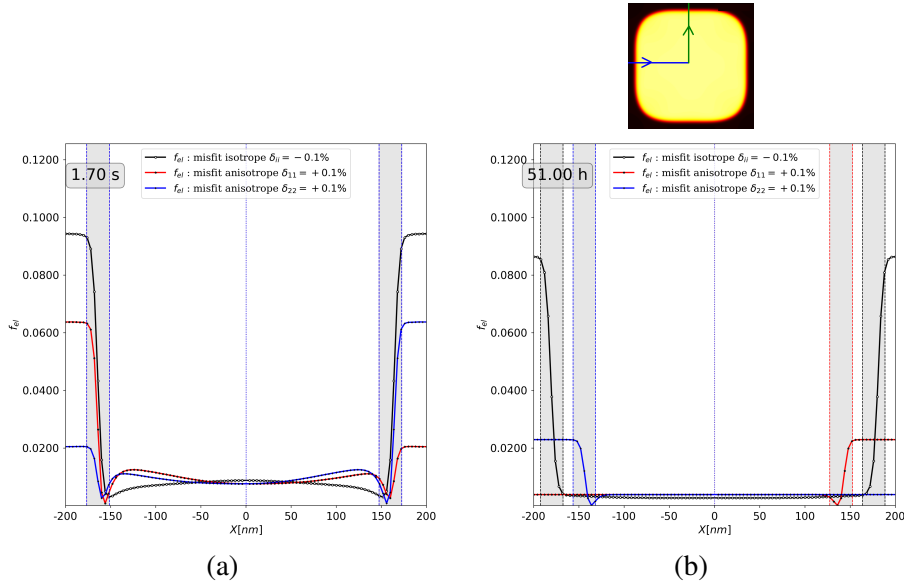


Figure 3.37: Effet de l'anisotropie sur le profil de l'énergie élastique : (a) à  $t = 1.7s$ , (b) à  $t = 51h$ .

Dans le cas anisotrope ( $\delta_{ii} = +0.1\%$  où  $i = \{1 \text{ ou } 2\}$  et  $\delta_{jj \neq i} = -0.1\%$  où  $j = \{1, 2, 3\}$ ), le profil de concentration atteint la limite de la boîte de la simulation selon une seule direction, qui a l'énergie élastique la plus importante au début de la simulation (cf. figures 3.36 et 3.37). Par conséquent, la forme de précipité change d'un cube vers une plaque qui s'oriente dans la direction où les couloirs de  $\gamma$  ont l'énergie élastique la plus importante au début de la simulation : dans le cas où  $[\delta_{11} = +0.1\%, \delta_{22} = \delta_{33} = -0.1\%]$ , le précipité s'oriente selon la direction horizontale et dans le cas où  $[\delta_{22} = +0.1\%, \delta_{11} = \delta_{33} = -0.1\%]$ , le précipité s'oriente selon la direction verticale.

La fraction volumique de la phase  $\gamma$  diminue dans le cas anisotrope par rapport au cas isotrope. Cependant, le changement de la direction de la mise en radeaux n'a pas d'effet sur l'évolution de la fraction volumique de la phase  $\gamma$  (cf. figure 3.38).

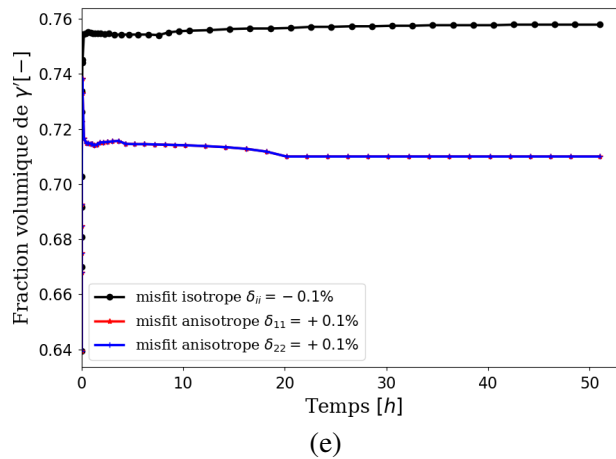


Figure 3.38: Évolution de la fraction de la phase  $\gamma$ .

En utilisant le calcul analytique dans la section 3.6, page 100, trois diagrammes peuvent être tracés en fonction de l'anisotropie du misfit ( $\delta_{11} \neq \delta_{22} = \delta_{33}$ ) : diagramme des valeurs de  $Q$ , diagramme de l'angle  $\theta_0$  et diagramme de type de mise en radeaux (cf. figure 3.39). Chaque point de ces diagrammes représente un calcul avec un pas  $\Delta\delta_{11} = \Delta\delta_{22} = 0.025$ .

Ces simulations et ces calculs analytiques montrent que l'anisotropie du misfit seul peut donner lieu à la mise en radeaux sans chargement mécanique.

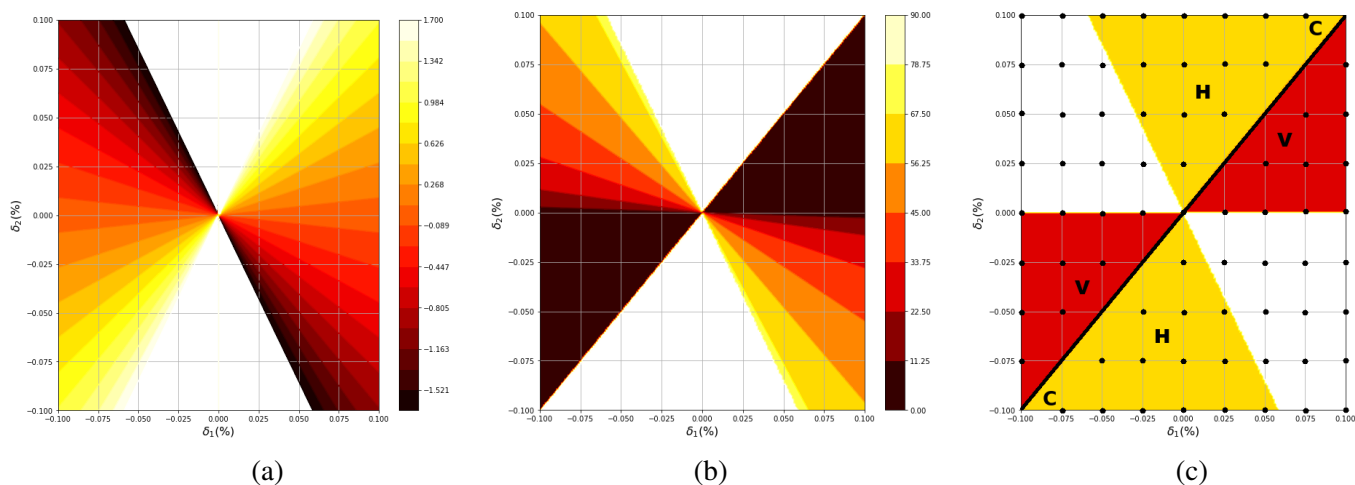


Figure 3.39: Évolution de la direction de mise en radeaux en fonction de l'anisotropie : (a) diagramme des valeurs de  $Q = \delta_2 / \delta_1$ , (b) diagramme de l'angle  $\theta_0$  et (c) diagramme de type de mise en radeaux (H : horizontal, V : vertical ou C : cubique (diagonal  $\delta_2 = \delta_1$ )).

### 3.7.2 Effet de chargement sans misfit

La valeur de chargement influe sur la valeur des concentrations d'équilibre  $c_q$  des phases  $\gamma$  et  $\gamma'$  : plus la valeur de chargement augmente, plus la valeur de  $c_q^{\gamma'}$  augmente et  $c_q^\gamma$  diminue. La différence de l'énergie élastique de deux phases  $\gamma$  et  $\gamma'$  est plus importante quand la valeur de la contrainte appliquée augmente (cf. figures 3.40 et 3.41).

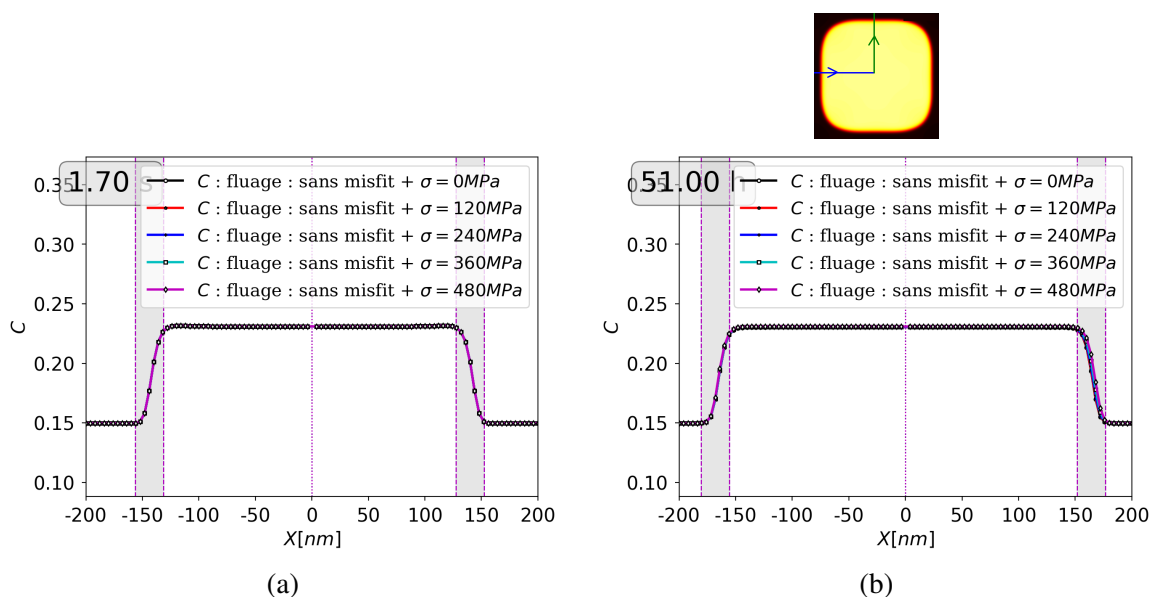


Figure 3.40: Effet du chargement appliqué sur le profil de la concentration : (a) à  $t = 1.7s$ , (b) à  $t = 51h$ .

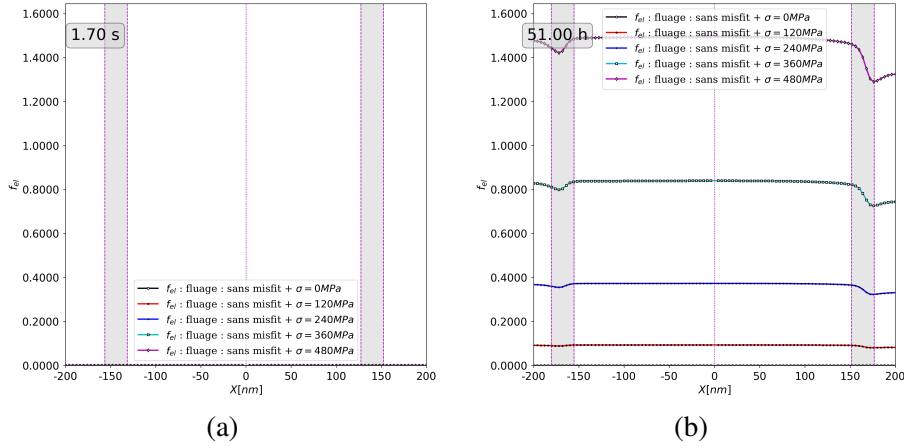


Figure 3.41: Effet du chargement appliqué sur le profil de l'énergie élastique : (a) à  $t = 1.7$ s, (b) à  $t = 51$ h.

La fraction volumique de  $\gamma'$  diminue avec l'augmentation de la valeur de la contrainte appliquée. En effet, la conservation des matières s'écrit :  $f_v C_{\gamma'} + (1 - f_v) C_{\gamma} = cte$ .

En faisant la différentielle de la conservation des matières :

$$\begin{aligned} C_{\gamma'} df_v + f_v dC_{\gamma'} + (1 - f_v) dC_{\gamma} - C_{\gamma} df_v &= 0 \\ df_v (C_{\gamma'} - C_{\gamma}) + f_v dC_{\gamma'} + (1 - f_v) dC_{\gamma} &= 0 \end{aligned}$$

$$df_v = \frac{f_v}{C_{\gamma'} - C_{\gamma}} dC_{\gamma'} + \frac{1 - f_v}{C_{\gamma'} - C_{\gamma}} dC_{\gamma} \quad (3.75)$$

La hausse de la valeur de la contrainte appliquée provoque une augmentation de la différence de l'énergie élastique entre les deux phases  $\Delta f_{el} = f_{el}^{\gamma'} - f_{el}^{\gamma}$  (cf figure 3.42.a). En outre, Ce dernier ( $\Delta f_{el}$ ) est proportionnel à la différence des concentrations à l'équilibre des phases  $\gamma'$  et  $\gamma$  (cf. figure 3.42.b) et inversement proportionnel à fraction de la phase  $\gamma'$   $f_v(\gamma')$  (cf. figure 3.43).

Par conséquent, l'augmentation de  $\Delta C$  provoque la diminution de la fraction  $f_v(\gamma')$ . Cette relation est décrite dans l'équation 3.75. Cela explique la variation de la fraction de  $\gamma'$  selon les différentes valeurs de contrainte qui est proportionnel à la variation de  $\Delta C$  (cf. figures 3.42.a et 3.43).

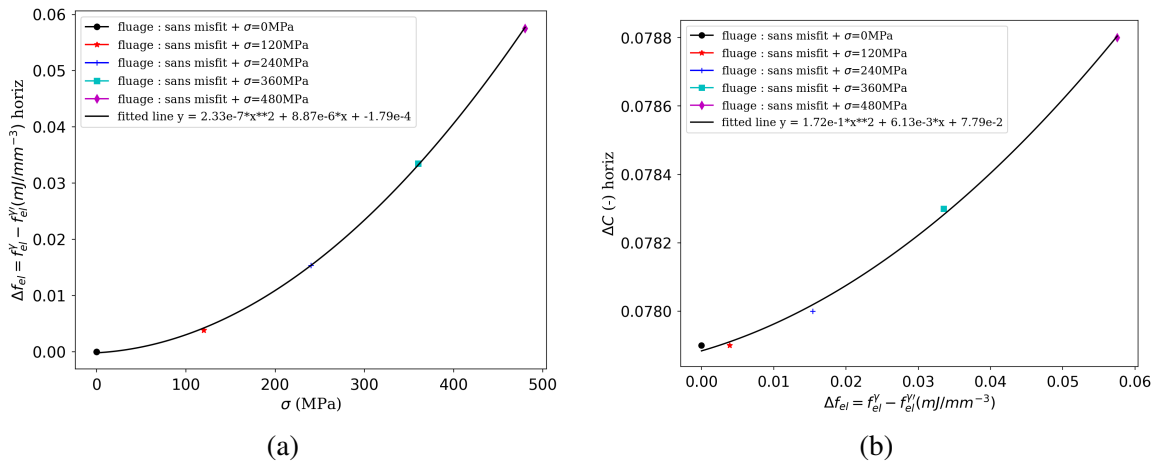


Figure 3.42: (a) Évolution de différence d'énergie élastique entre les deux phases  $\gamma$  et  $\gamma'$  en fonction du valeur du chargement appliqué, (b) évolution de concentration d'équilibre  $\Delta C = C_{\gamma'}^{\gamma'} - C_{\gamma}^{\gamma}$  en fonction du différence d'énergie élastique.

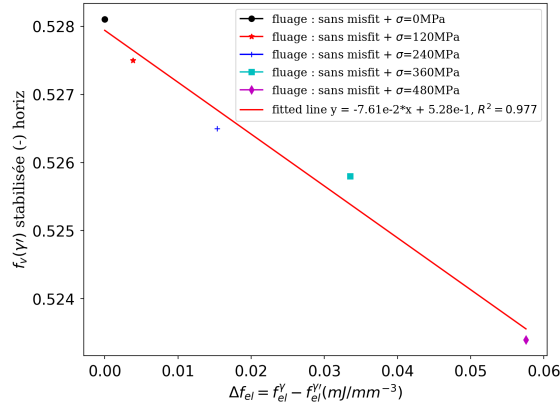


Figure 3.43: évolution de fraction volumique de  $\gamma'$  en fonction de la différence d'énergie élastique.

### 3.7.3 Effet d'inhomogénéité élastique

Afin d'étudier l'effet d'inhomogénéité élastique sur la mise en radeaux, deux calculs ont été réalisés : un calcul dont le tenseur d'élasticité est homogène entre le précipité  $\gamma'$  et la matrice  $\gamma$  et un deuxième calcul dont le tenseur d'élasticité est hétérogène. Dans les deux calculs, les mêmes conditions initiales et aux limites ont été appliquées. En élasticité homogène, le résultat du calcul numérique montre que le précipité  $\gamma'$  reste cubique (cf figure 3.44).

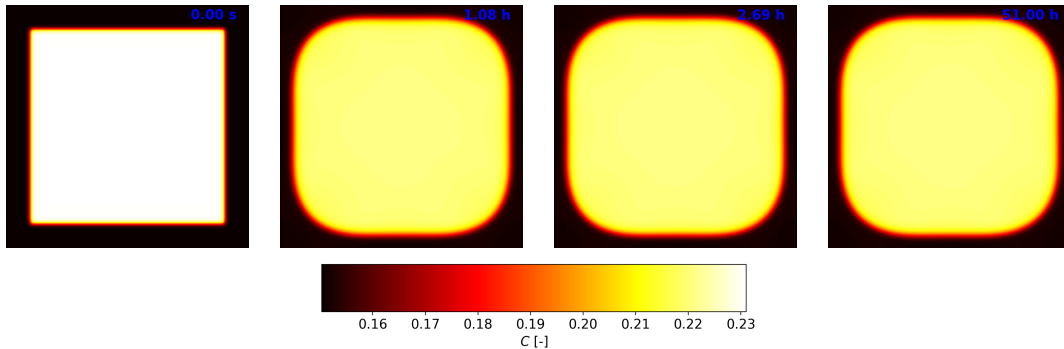


Figure 3.44: Évolution de champ de concentration d'aluminium au cours d'un essai de fluage en traction en considérant un comportement élastique homogène pour les deux phases  $\gamma$  et  $\gamma'$

Le calcul analytique de déformation de misfit effectif  $\underline{\underline{\varepsilon}}_{eff}^*$  (cf. section 3.6, page 100) donne la matrice suivante :

$$\underline{\underline{\varepsilon}}_{eff}^* = \begin{bmatrix} -0.0123 & 0 & 0 \\ 0 & -0.0123 & 0 \\ 0 & 0 & -0.0123 \end{bmatrix}$$

$$Q = \frac{\varepsilon_{ii}^*}{\varepsilon_{jj}^* \text{ } i \neq j} = 1 \Rightarrow \cos^2(\theta_0) = \{1 \text{ et } 0\} \Rightarrow \theta_0 = \{0^\circ \text{ et } 90^\circ\}$$

Afin de déterminer la forme de la précipité sous l'effet du misfit effectif  $\underline{\underline{\varepsilon}}_{eff}^*$ , on va se baser sur l'étude de Khachaturyan [Khachaturyan, 1983b] (cf. section 3.6 page 100). Selon cette étude, la forme de précipité qui dépend du rapport  $Q = \frac{\varepsilon_{22}^*}{\varepsilon_{11}^*}$  est obtenu en déterminant les vecteurs  $\underline{n}_{01} = (\cos(\theta_0), 0, \sin(\theta_0))$  et  $\underline{n}_{02} = (\cos(\theta_0), \sin(\theta_0), 0)$  perpendiculaire à l'interface  $\gamma/\gamma'$ .

L'angle  $\theta_0$  est déterminé avec l'équation 3.6. Dans cette cas,  $\theta_0 = \{0^\circ \text{ et } 90^\circ\}$  :

- Pour  $\theta_0 = 0$ ,  $\underline{n}_{01} = (1, 0, 0)$  et  $\underline{n}_{02} = (1, 0, 0)$ .

- Pour  $\theta_0 = 90^\circ$ ,  $\underline{n}_{01} = (0, 0, 1)$  et  $\underline{n}_{02} = (0, 1, 0)$ .

Donc, les trois plans  $\underline{n}_1 = (1, 0, 0)$ ,  $\underline{n}_2 = (0, 1, 0)$  et  $\underline{n}_3 = (0, 0, 1)$  sont perpendiculaires à l'interface  $\gamma/\gamma'$ . Par conséquent, les morphologies d'équilibre du précipité doivent donc être des précipités en une forme cubiques, ce que a été trouvé avec les calculs numériques et analytiques.

Cependant, en élasticité hétérogène le calcul numérique montre que le précipité  $\gamma'$  change de morphologie d'un cube vers une plaquette verticale (resp. horizontale) dans le cas d'un essai de fluage en traction (resp. en compression) dans le cas d'un misfit négatif (cf. figure 3.45).

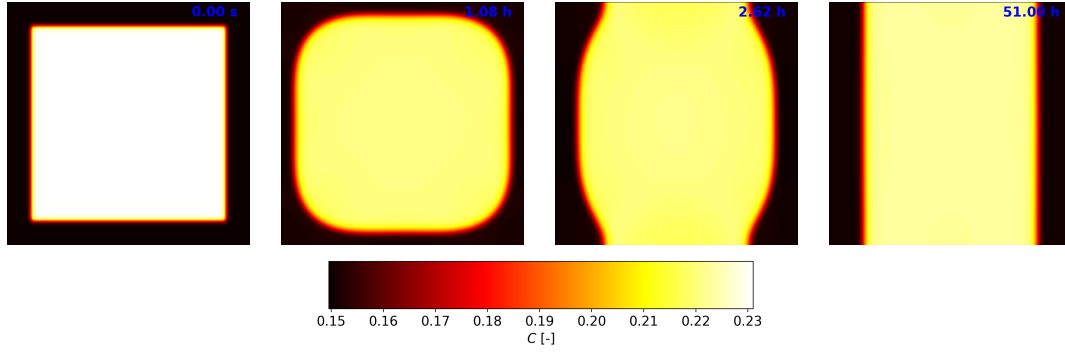


Figure 3.45: Évolution de champ de concentration d'aluminium au cours d'un essai de fluage en traction en considérant un comportement élastique hétérogène pour les deux phases  $\gamma$  et  $\gamma'$

Le calcul analytique de  $\underline{\varepsilon}_{eff}^*$  nous donne :

$$\underline{\varepsilon}_{eff}^* = \begin{bmatrix} -0.0176 & 0 & 0 \\ 0 & -0.0099 & 0 \\ 0 & 0 & -0.0099 \end{bmatrix}$$

$$Q = \frac{\varepsilon_{22}}{\varepsilon_{11}} = 0.56 \Rightarrow \cos^2(\theta_0) = 1 \Rightarrow \theta_0 = 0^\circ$$

Dans cette cas,  $\theta_0 = \{0^\circ\}$ . Les vecteurs  $\underline{n}_{01} = (\cos(\theta_0), 0, \sin(\theta_0)) = (1, 0, 0)$  et  $\underline{n}_{02} = (\cos(\theta_0), \sin(\theta_0), 0) = (1, 0, 0)$ .

Comme les vecteurs  $\underline{n}_{01} = \underline{n}_{02} = (1, 0, 0)$ , les morphologies d'équilibre doivent donc être des plaquettes qui ont comme vecteur normal  $\underline{n}_{01} = (1, 0, 0)$ . On doit observer des précipités en une forme des plaquettes perpendiculaire à l'axe  $(1, 0, 0)$ , c'est-à-dire, des plaquettes verticales. Cette résultat a été trouvé avec les calculs numériques et analytiques.

### 3.8 Mise en radeaux d'un précipité $\gamma'$

Dans cette section, l'effet d'un chargement de fluage en traction et compression sur l'évolution de la morphologie d'un précipité cubique sera étudié. La microstructure initiale cubique est obtenue après  $t = 1h$  de maintien à  $T = 950^\circ C$ . Elle est composée d'un précipité  $\gamma'$  de variant 1  $(\phi_1, \phi_2, \phi_3) = (1, 1, 1)$  et une matrice  $\gamma$ . Un comportement élastique a été considéré pour chacune de phases  $\gamma$  ( $C_{11}^\gamma = 197\text{GPa}$ ,  $C_{12}^\gamma = 144\text{GPa}$  et  $C_{44}^\gamma = 90\text{GPa}$ ) et  $\gamma'$  ( $C_{11}^{\gamma'} = 193\text{GPa}$ ,  $C_{12}^{\gamma'} = 131\text{GPa}$  et  $C_{44}^{\gamma'} = 97\text{GPa}$ ) avec des valeurs des constantes de tenseur d'élasticité différentes et un désaccord paramétrique (misfit) isotrope est donné par  $\delta = -0.1\%$ . Le maillage fait  $0.4\mu m \times 0.4\mu m$  divisé en  $160 \times 160$  éléments périodiques quadrangle avec condition de déformation plane généralisée. Des conditions périodiques sont appliquées aux bords de la boîte de simulation.



### 3.8.1 Mise en radeaux type N

Un chargement de fluage en traction  $\sigma = 240\text{MPa}$  suivant l'axe horizontal est appliqué à  $t = 1h$  et atteint la valeur souhaitée en 1 min et maintenu jusqu'à  $t = 51h$ . Le radeau s'oriente perpendiculairement au chargement appliqué : c'est le cas de la mise en radeau type N (normal). Dans le cas élastique, l'interface entre les phases  $\gamma$  et  $\gamma'$  est plane (cf. figure 3.46). Cependant, dans le cas élasto-viscoplastique la paroi est courbée (cf. figure 3.47). Dans les deux cas, la déformation est localisée dans la phase  $\gamma$ .

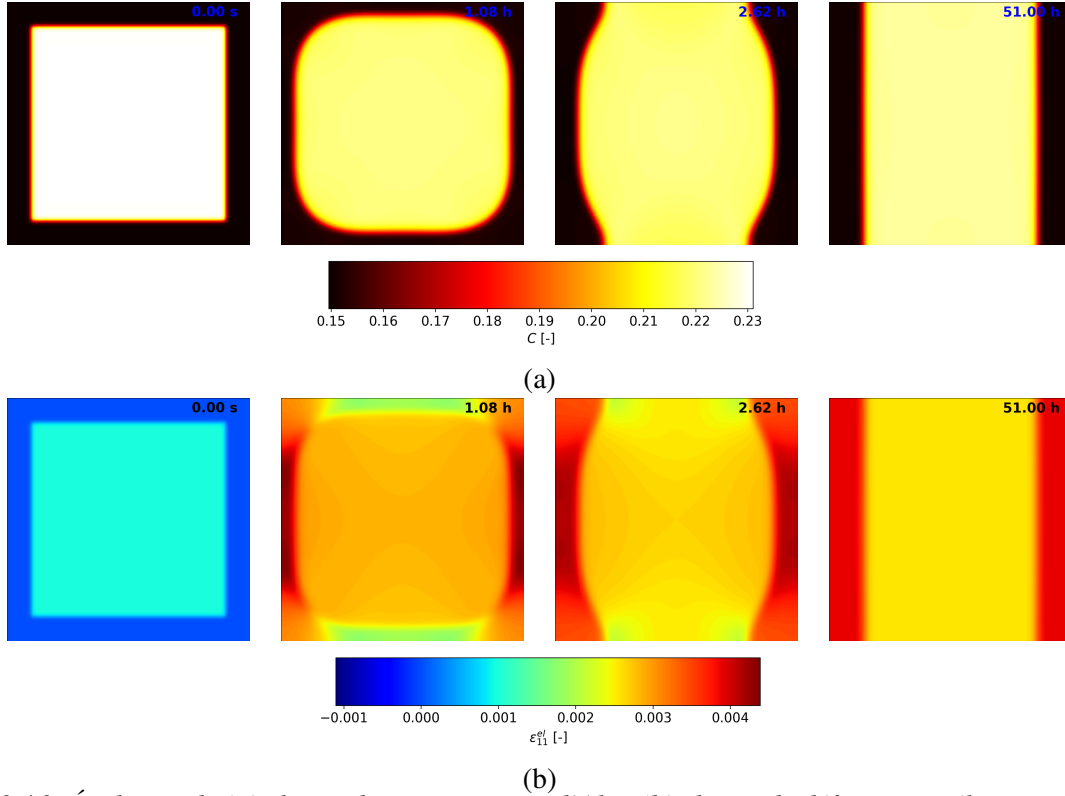


Figure 3.46: Évolution de (a) champ de concentration d'Al et (b) champ de déformation élastique au cours d'un essai de fluage en traction en considérant un comportement élastique pour les deux phases  $\gamma$  et  $\gamma'$ .

Le calcul analytique de développé au paragraphe 3.6 page 100 nous donne :

$$\tilde{\epsilon}_{eff}^* = \begin{bmatrix} -0.0176 & 0 & 0 \\ 0 & -0.0099 & 0 \\ 0 & 0 & -0.0099 \end{bmatrix}$$

$$Q = \frac{\epsilon_{22}}{\epsilon_{11}} = 0.56 \Rightarrow \cos^2(\theta_0) = 1 \Rightarrow \theta_0 = 0^\circ$$

Les vecteurs  $\underline{n}_{01}$  et  $\underline{n}_{02}$  perpendiculaires à l'interface  $\gamma/\gamma'$  sont  $\underline{n}_{01} = (\cos(\theta_0), 0, \sin(\theta_0)) = (1, 0, 0)$  et  $\underline{n}_{02} = (\cos(\theta_0), \sin(\theta_0), 0) = (1, 0, 0)$ . Comme les vecteurs  $\underline{n}_{01} = \underline{n}_{02}$ , les morphologies d'équilibre doivent donc être des plaquettes qui ont comme vecteur normaux  $\underline{n}_{01} = \underline{n}_{02} = (1, 0, 0)$ . Le calcul analytique et la simulation numérique sont cohérents : ils prédisent le même type de mise en radeau (type N).

La cinétique de mise en radeau est plus rapide pour le cas élasto-viscoplastique (EVP) que celle pour le cas élastique. En effet, le précipité  $\gamma'$  atteint la limite de la boîte de la simulation dans le cas EVP (cf. figure 3.47 à  $t = 1.08h$ ) avant le cas élastique (cf. figure 3.46 à  $t = 2.62h$ ). C'est visible aussi sur la courbe de l'évolution de la fraction volumique de  $\gamma'$  : elle décroît plus rapidement dans le cas EVP que dans le cas élastique (cf. figure 3.48.(c)). Pour la même valeur de contrainte appliquée, la déformation moyenne sur la boîte de simulation est plus importante pour le cas EVP que pour le cas élastique. Cela implique une

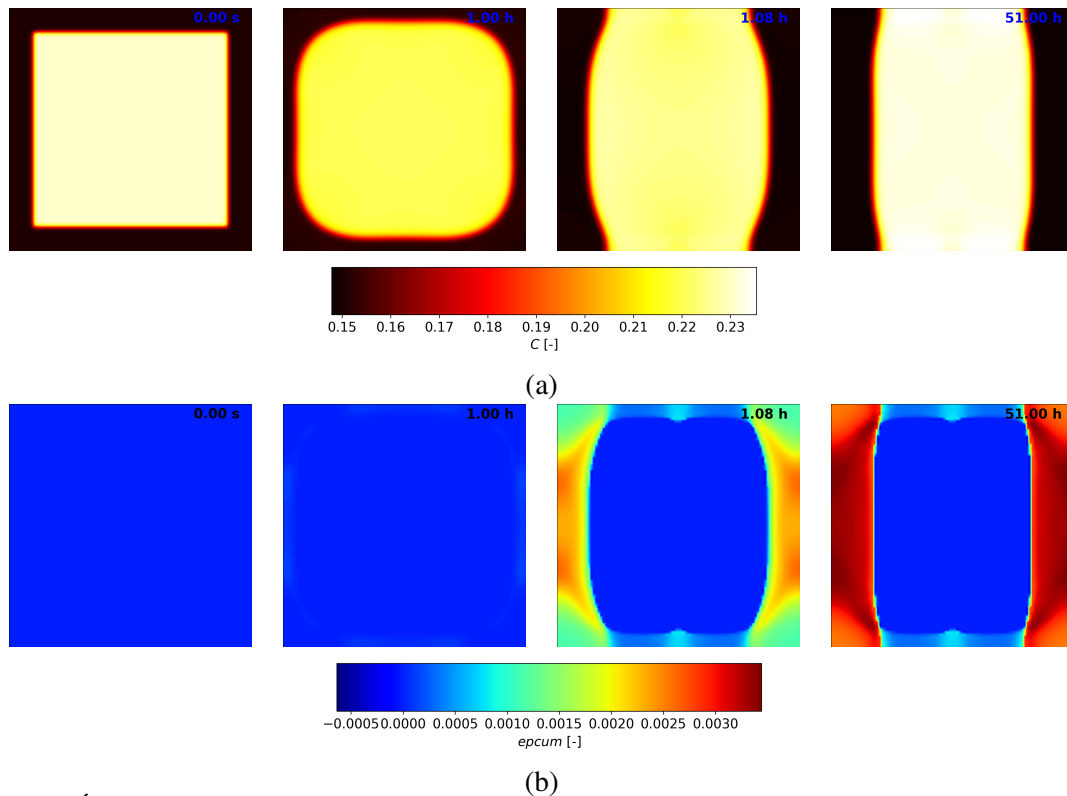


Figure 3.47: Évolution de (a) champ de concentration d'aluminium et (b) champ de déformation plastique cumulée au cours d'un essai de fluage en traction en considérant un comportement élastique pour la phase  $\gamma$  et un comportement élasto-viscoplastique pour la phase  $\gamma'$

fraction volumique moins importante pour le cas EVP que pour le cas élastique. Cette différence dans la fraction volumique de  $\gamma'$  est due à la différence d'évolution dans la concentration d'équilibre des phases qui est différente entre le cas élastique et le cas EVP (cf. section 3.7.2 page 105).

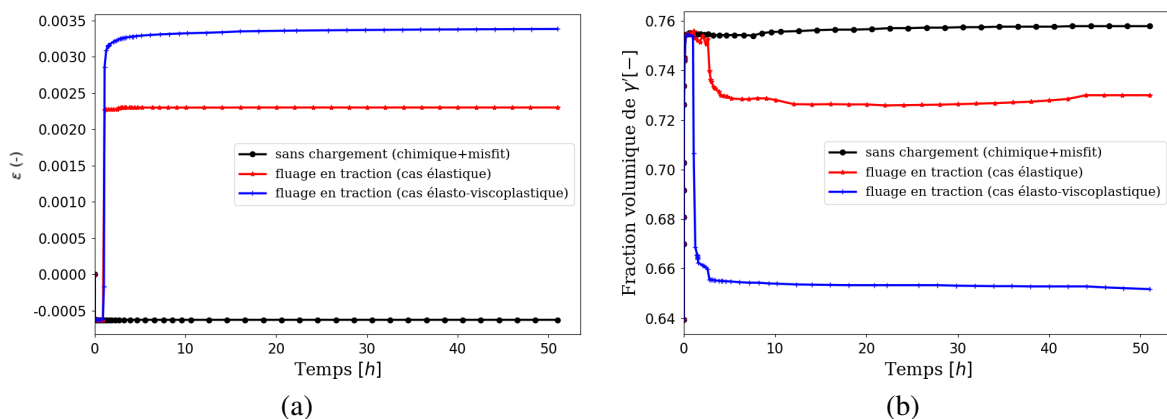


Figure 3.48: Comparaison de l'évolution de (a) la déformation moyenne  $\epsilon_{11}$  et (b) la fraction volumique de la phase  $\gamma'$  au cours d'un essai de fluage en traction pour le cas chimique sans chargement, le cas élastique et le cas élasto-viscoplastique

### 3.8.2 Mise en radeaux type P

En appliquant un chargement de fluage en compression  $\sigma = -240\text{MPa}$  suivant l'axe horizontal, le radeau s'oriente parallèlement au chargement appliqué, c'est le cas de la mise en radeau type P (parallèle).

Deux calculs sont réalisés : un calcul avec un comportement élastique des phases  $\gamma$  et  $\gamma'$  (cf. figure 3.49) et un calcul avec un comportement viscoplastique (cf. figure 3.50)

Le calcul analytique nous donne :

$$\underline{\varepsilon}_{eff}^* = \begin{bmatrix} -0.0076 & 0 & 0 \\ 0 & -0.0153 & 0 \\ 0 & 0 & -0.0153 \end{bmatrix}$$

$$Q = \frac{\varepsilon_{22}}{\varepsilon_{11}} = 2.0115 \Rightarrow \cos^2(\theta_0) = 1 \Rightarrow \theta_0 = 90^\circ$$

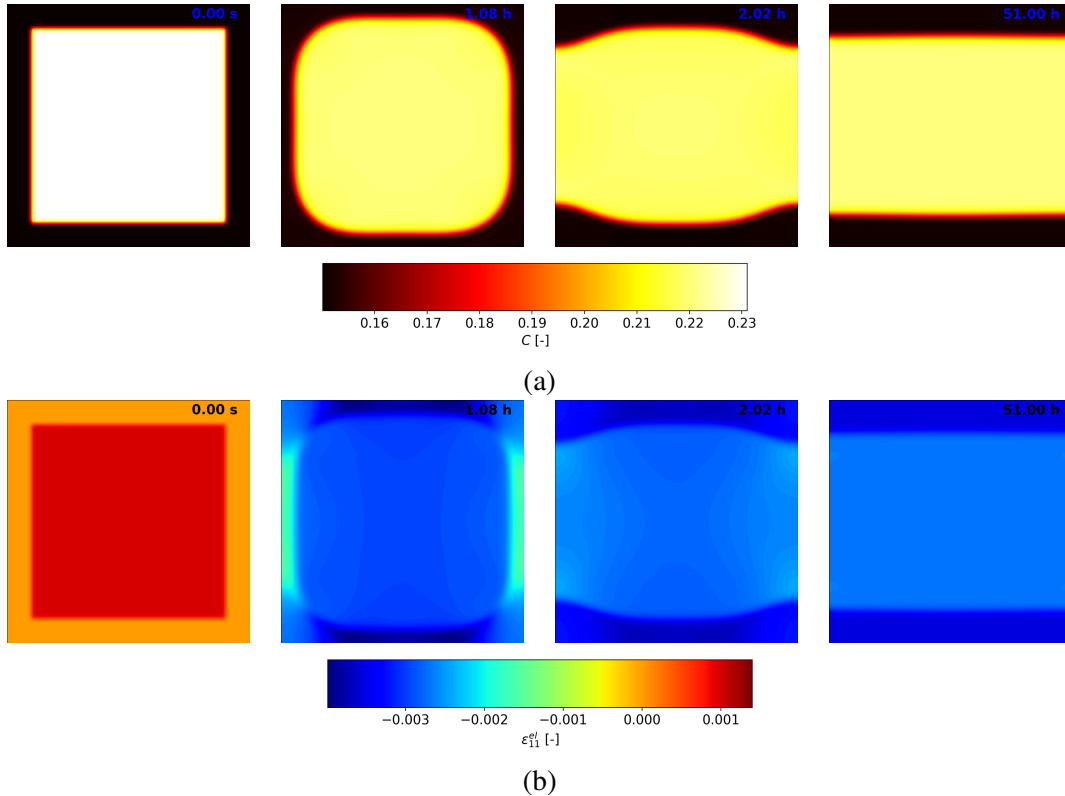


Figure 3.49: Évolution de (a) champ de concentration d'aluminium et (b) champ de déformation élastique au cours d'un essai de fluage en compression en considérant un comportement élastique pour les deux phases  $\gamma$  et  $\gamma'$

Les vecteurs  $\underline{n}_{01}$  et  $\underline{n}_{02}$  perpendiculaires à l'interface  $\gamma/\gamma'$  sont  $\underline{n}_{01} = (\cos(\theta_0), 0, \sin(\theta_0)) = (0, 0, 1)$  et  $\underline{n}_{02} = (\cos(\theta_0), \sin(\theta_0), 0) = (0, 1, 0)$  définit les normales au direction de plaquette de précipité  $\gamma'$ . Comme les vecteurs  $\underline{n}_{01}$  et  $\underline{n}_{02}$  sont différents, les morphologies d'équilibre doivent donc être des plaquettes qui ont vecteurs normale à la fois  $\underline{n}_{01}$  et  $\underline{n}_{02}$ . On devrait observer des précipités qui ont une forme en aiguille parallèle à l'axe  $(1, 0, 0)$ , mais à base carrée. Le calcul analytique prédit le même type de mise en radeau (type P) que la simulation numérique.

La cinétique de mise en radeau est plus rapide pour le type P que le type N. En effet, les éléments d'alliages dans le cas 3D diffusent dans les deux canaux perpendiculaires à l'axe de traction pour former une aiguille à base carrée dans le cas de la mise en radeau de type P et dans un seul canal parallèle à l'axe de chargement dans le cas de la mise en radeau de type N pour former une plaquette normale à la direction du chargement.

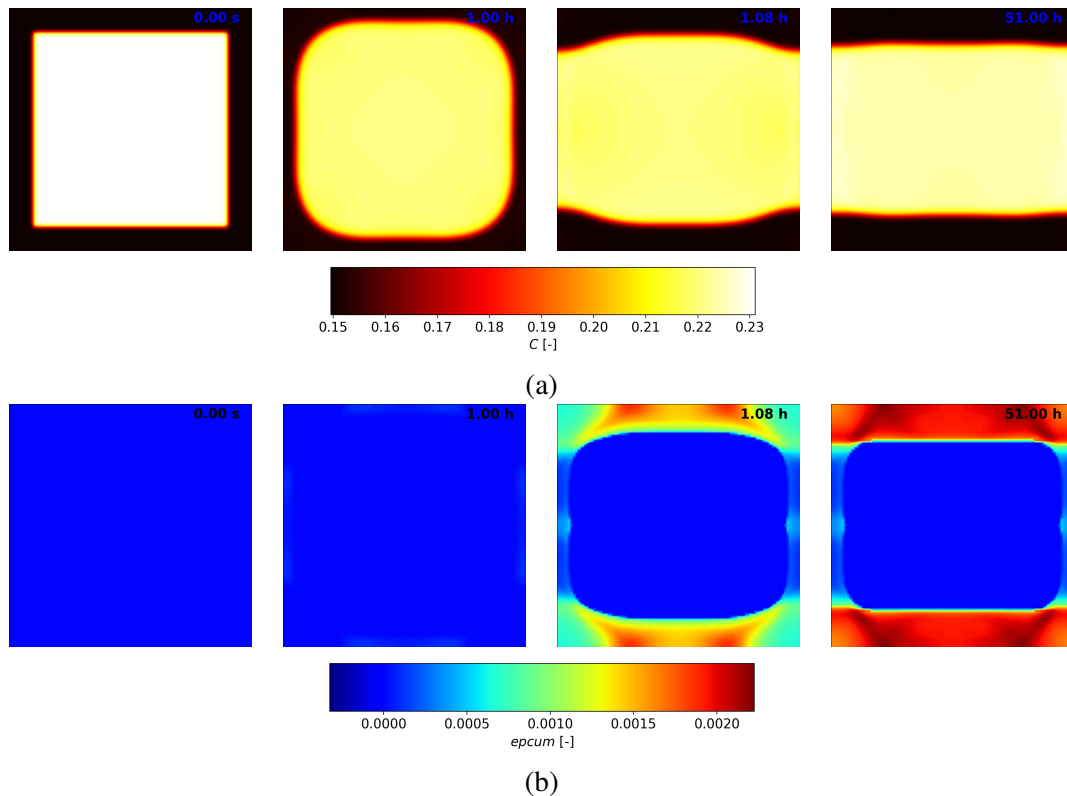


Figure 3.50: Évolution de (a) champ de concentration d'aluminium et (b) champ de déformation plastique cumulée au cours d'un essai de fluage en compression en considérant un comportement élastique pour  $\gamma$  et un comportement élasto-viscoplastique pour  $\gamma'$

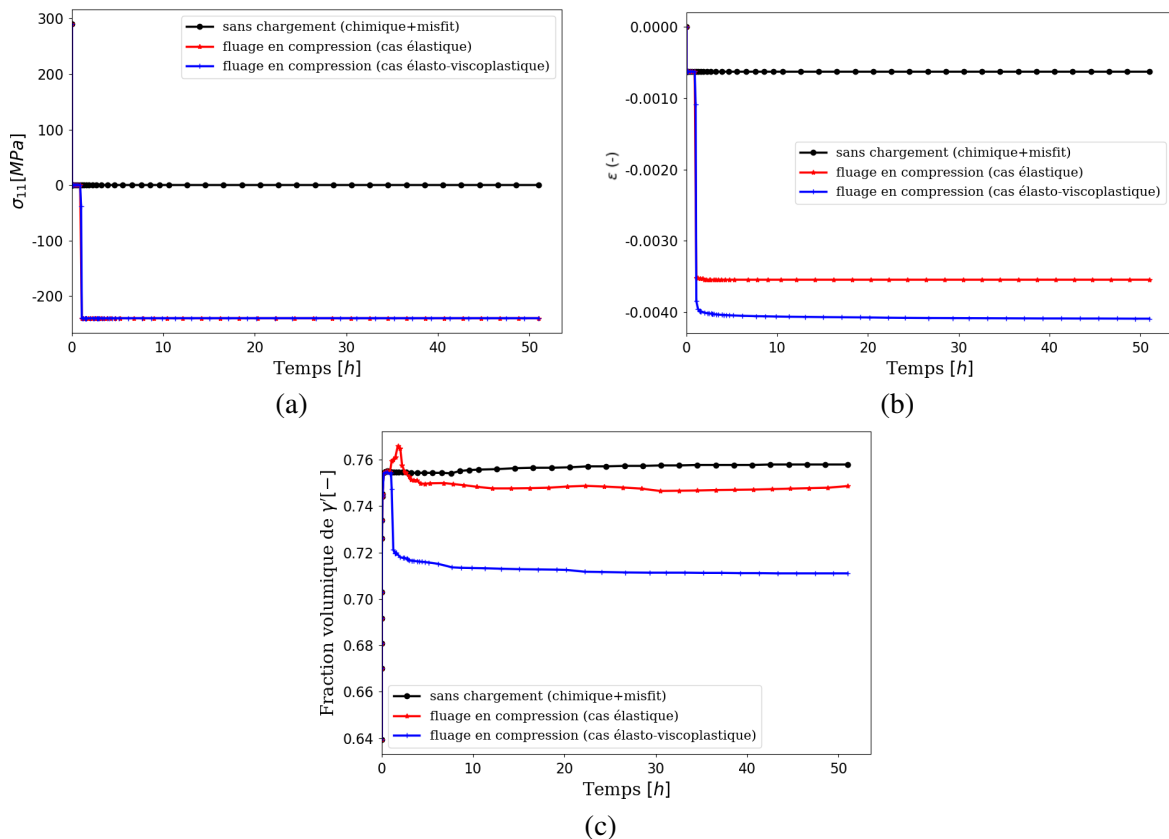


Figure 3.51: Comparaison de l'évolution de (a) la contrainte moyenne appliquée  $\sigma$ , (b) la déformation moyenne  $\epsilon_{11}$  et (c) la fraction volumique de la phase  $\gamma'$  au cours d'un essai de fluage en traction pour le cas chimique sans chargement, le cas élastique et le cas élasto-viscoplastique

Pour la même contrainte appliquée, la déformation moyenne est plus importante dans le cas EVP que dans le cas élastique (cf. figure 3.51). Cela implique une fraction volumique moins importante pour le cas EVP que pour le cas élastique. Cette différence dans la fraction volumique de  $\gamma'$  est due à la différence d'évolution dans la concentration d'équilibre des phases qui est différente entre les deux cas (cf. section 3.7.2 page 105).

### 3.8.3 Mise en radeaux en 3D

Dans cette section, deux calculs élastiques sont réalisés : pour un seul précipité et pour 8 précipités de même variant. Deux types de chargement sont appliqués : fluage en traction  $\sigma = 240MPa$  et fluage en compression  $\sigma = -240MPa$  suivant l'axe  $X$  (cf. figure 3.52.a). Le maillage fait  $0.4\mu m \times 0.4\mu m \times 0.4\mu m$  divisé en  $40 \times 40 \times 40$  éléments hexaèdres linéaires c3d8. Des conditions périodiques sont appliquées aux différentes faces opposés. Deux calculs sont réalisés : pour un seul précipité et pour les 8 précipités de même variant. Les nombres de degrés de liberté est égale à  $N_{dof} = 482453$ . Le nombre de cœur utilisé est égale à 24.

Initialement, le précipité a une forme cubique. Suite au chargement de fluage en compression selon l'axe  $x$ , le précipité prend la forme d'une aiguille parallèle à l'axe  $x$ . Tandis que, quand le chargement de fluage en traction est appliqué, le précipité prend la forme d'une plaquette normale à l'axe  $x$  (cf. figure 3.52). Le temps de calcul *CPU time* = 99.16h.

Pour les 8 précipités de même variant, uniquement un huitième de chaque précipité est pris en compte grâce à la symétrie et aux conditions périodiques appliquées. Dans la mise en radeau de type P, le flux d'Al vient de deux directions et traverse les deux canaux selon les axes  $Y$  et  $Z$ . Cependant, dans le cas de mise en radeaux de type N, le flux d'Al vient uniquement d'une seule direction selon  $X$  et traverse uniquement le canal selon l'axe  $X$  (cf. figure 3.53). Ceci explique pourquoi la mise en radeaux de type P est plus rapide que celle de type N [Zhou et al., 2007]. Le temps de calcul *CPU time* = 75.52h pour ce cas.

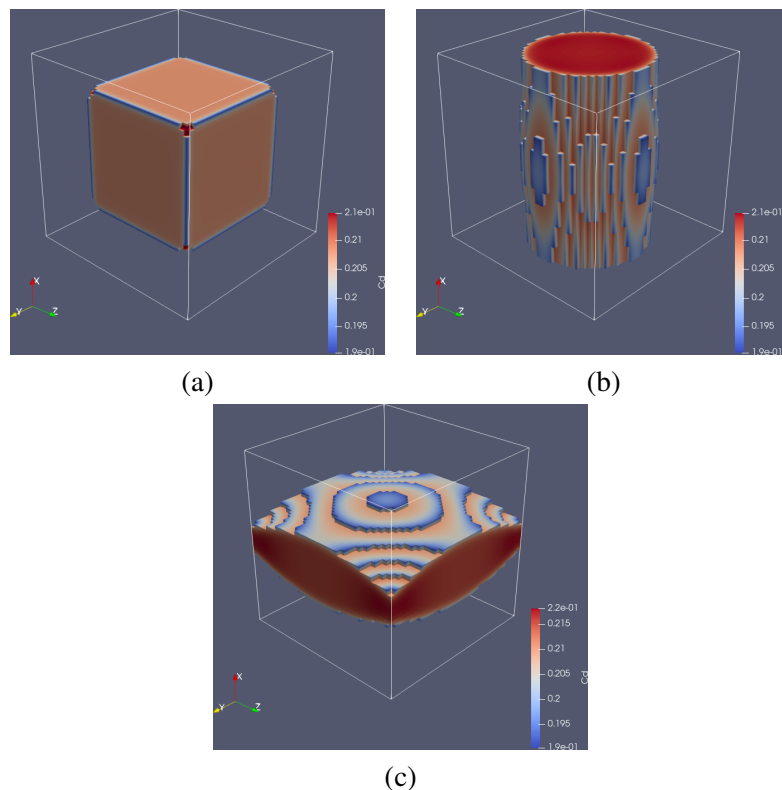


Figure 3.52: Simulation 3D de l'évolution de morphologie d'un précipité  $\gamma'$  : (a) état initial (b) mise en radeaux de type P (fluage en compression  $\sigma = -240MPa$ ) (c) mise en radeaux de type N (fluage en traction  $\sigma = 240MPa$ )

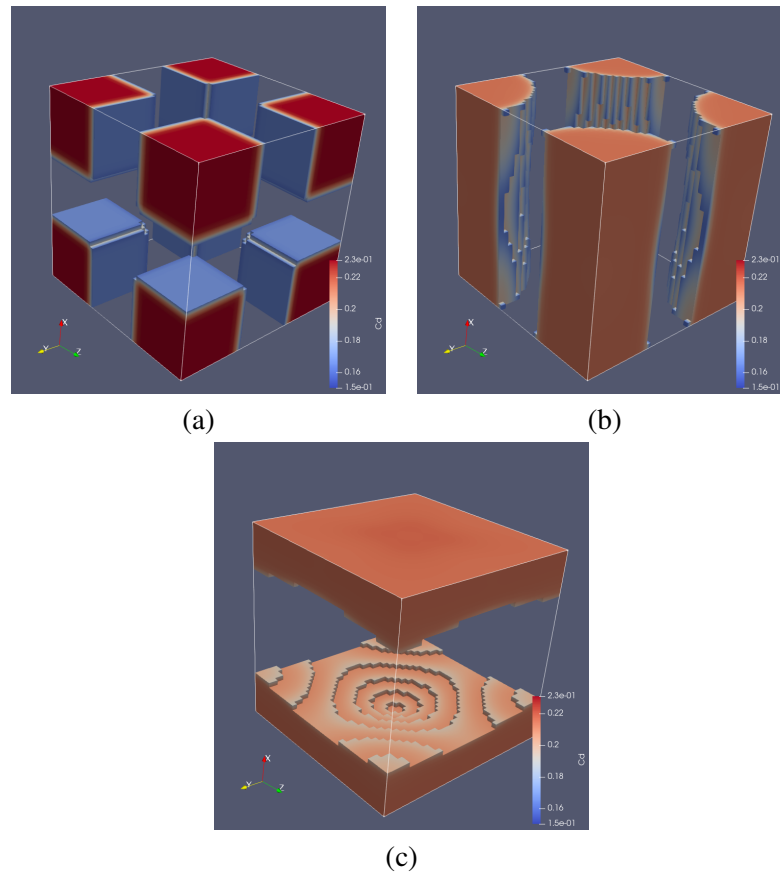


Figure 3.53: Simulation 3D de l'évolution de morphologie de 8 précipités  $\gamma'$  : (a) état initial (b) mise en radeaux de type P (fluage en compression  $\sigma = -240\text{MPa}$ ) (c) mise en radeaux de type N (fluage en traction  $\sigma = 240\text{MPa}$ )

L'explication analytique présentée dans paragraphe 3.8.2 page 110 est en accord avec les résultats de simulation de mise en radeaux en 3D : les morphologies d'équilibre des précipités  $\gamma'$  dans le cas d'un chargement fluage en compression sont sous forme des aiguilles parallèles à  $X$  et dans le cas d'un chargement de fluage en traction, les précipités sont des plaquettes de normale  $X$  (cf. figure 3.53).

Les résultats des simulations et des calculs analytiques fait dans paragraphe 3.8.2 page 110 sont en accord avec les observations expérimentales [Fan et al., 2022] (cf. figure 3.54).

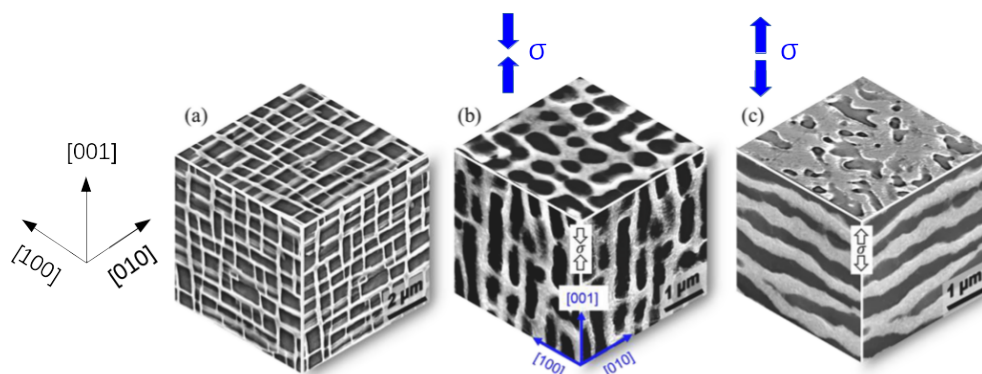


Figure 3.54: Morphologie 3D de superalliage à base de Nickel : (a) état initial (b) mise en radeaux de type P (c) mise en radeaux de type N [Fan et al., 2022]

En effet, les précipités  $\gamma'$  ont la forme d'aiguilles dans le cas d'un chargement fluage en compression. Les précipités sont parallèles au direction de chargement appliqué, c'est le cas de la mise en radeaux de type

P (cf. figure 3.54.b). En outre, les précipités  $\gamma'$  ont la forme de plaques dans le cas d'un chargement fluage en traction. Les précipités sont normales au direction de chargement appliqué, c'est le cas de la mise en radeaux de type N (cf. figure 3.54.c).

### 3.9 Mise en radeaux d'une microstructure $\gamma$ - $\gamma'$

#### 3.9.1 Maillage et valeurs des paramètres

La microstructure initiale utilisée dans les simulations est issue de l'article de [Cottura et al., 2012]. Elle est décrite par les 4 champs de degrés de liberté ( $c$ ,  $\phi_1$ ,  $\phi_2$ ,  $\phi_3$ ). Selon les valeurs de ( $\phi_1$ ,  $\phi_2$ ,  $\phi_3$ ) (cf. figures 3.55.c-e), on retrouve les quatre variants de la phase  $\gamma'$  représenté par différentes couleurs (cf. figure 3.55.b).

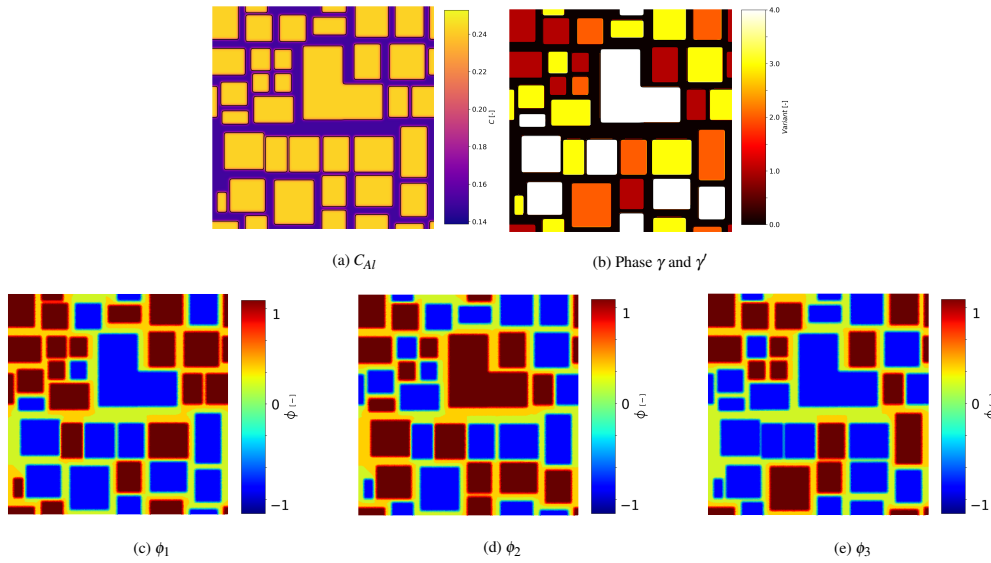


Figure 3.55: Les différents champs de microstructure initial imposés à  $t = 0h$  : (a) concentration d'Al, (b) type de phase :  $\gamma$  (variant = 0) et  $\gamma'$  (variant =  $\{1, 2, 3, 4\}$ ), (c) paramètre d'ordre  $\phi_1$ , (d) paramètre d'ordre  $\phi_2$  et (e) paramètre d'ordre  $\phi_3$

Le maillage utilisé fait  $2.3 \mu\text{m} \times 2.3 \mu\text{m}$  divisé en  $320 \times 320$  éléments quadrangle avec condition de déformation plane généralisée. Des conditions aux limites périodiques ont été utilisées pour les déplacements  $\underline{u}$ , la concentration et les paramètres d'ordre  $\{\phi_1, \phi_2, \phi_3\}$ . Les paramètres utilisés dans les simulations sont données dans les tableaux qui suivent, tableaux 3.4 et 3.5.

| $D$<br>( $\text{mm}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ ) | T<br>(K) | $c_{ref}$<br>[-] | $\varepsilon^*$<br>(%) | $\Delta f$<br>( $\text{mJ}/\text{mm}^3$ ) | $\beta$<br>( $\text{mJ}/\text{mm}$ ) | $\delta$<br>(nm) | $\gamma$<br>( $\text{mJ}/\text{m}^2$ ) |
|--|----------|------------------|------------------------|---|--------------------------------------|------------------|--|
| $4.207 \times 10^{-10}$                      | 1223.15  | 0.15             | -0.1                   | 906.                                      | $2.208 \times 10^{-11}$              | 27.5             | 4.                                     |

Table 3.4: Paramètres liées à la diffusion et la transformation des phases

| Phases    | $C_{11}$<br>(GPa) | $C_{12}$<br>(GPa) | $C_{44}$<br>(GPa) | C<br>(GPa) | D<br>[-] | N<br>[-] | $K$<br>( $\text{MPa} \cdot \text{s}^{1/N}$ ) | $R_0$<br>(MPa) |
|-----------|-------------------|-------------------|-------------------|------------|----------|----------|--|----------------|
| $\gamma$  | 197               | 144               | 90                | 150        | 1900     | 5        | 150  | 86             |
| $\gamma'$ | 193               | 131               | 97                | 150        | 1900     | 5        | 150  | $10^5$         |

Table 3.5: Paramètres liées au comportement mécanique de deux phases  $\gamma$  et  $\gamma'$  [Cottura et al., 2012]

À travers ce modèle, on essaye de reproduire l'évolution de morphologie des précipités de la phase  $\gamma'$  pour différents cas de chargement mécanique simple en considérant le couplage diffusion, champs de phase et mécanique pour le cas élastique et viscoplastique.

### 3.9.2 Effet de type de chargement

Dans cette section, un comportement élastique est utilisé pour les deux phases  $\gamma$  et  $\gamma'$ . Le premier cas de chargement consiste à appliquer un essai de fluage en traction suivant la direction horizontale en considérant un misfit négatif et à la température  $T = 950^\circ\text{C}$ . Les précipités sont alignés suivant la direction perpendiculaire au chargement appliqué, c'est le cas de la mise en radeaux de type N (cf. figures 3.56.b et 3.56.f). On constate que expérimentalement on a le même type de radeaux [Zhao et al., 2019] (cf. figure 3.57.a).

Pour l'essai de fluage en compression, le chargement est appliqué dans la direction horizontale à une température  $T = 950^\circ\text{C}$ . Les deux champs de concentration en Al et du variant de  $\gamma'$  sont tracés pour le temps  $t = 100\text{h}$ . Nous observons une coalescence orientée des précipités de  $\gamma'$  dans la même direction que la direction de chargement appliqué (cf. figure 3.56.c et 3.56.g). Comme en plus le misfit entre les deux phases est négatif, ce cas correspond à une mise en radeaux de type P. Nous constatons une évolution similaire dans l'expérience de fluage en compression [Zhao et al., 2019] (cf. figure 3.57.b).

Dans le 3<sup>ème</sup> cas de chargement mécanique, une contrainte de cisaillement constante est appliquée à la microstructure  $\sigma_{12} = 240\text{ MPa}$ . Dans ce cas, nous observons une coalescence orientée des précipités  $\gamma'$  à  $45^\circ$  (cf. figures 3.56.d et figure 3.56.h). Le même résultat est observé dans la littérature [Touratier et al., 2009] [Shi et al., 2014] (cf. figure 3.57.c).

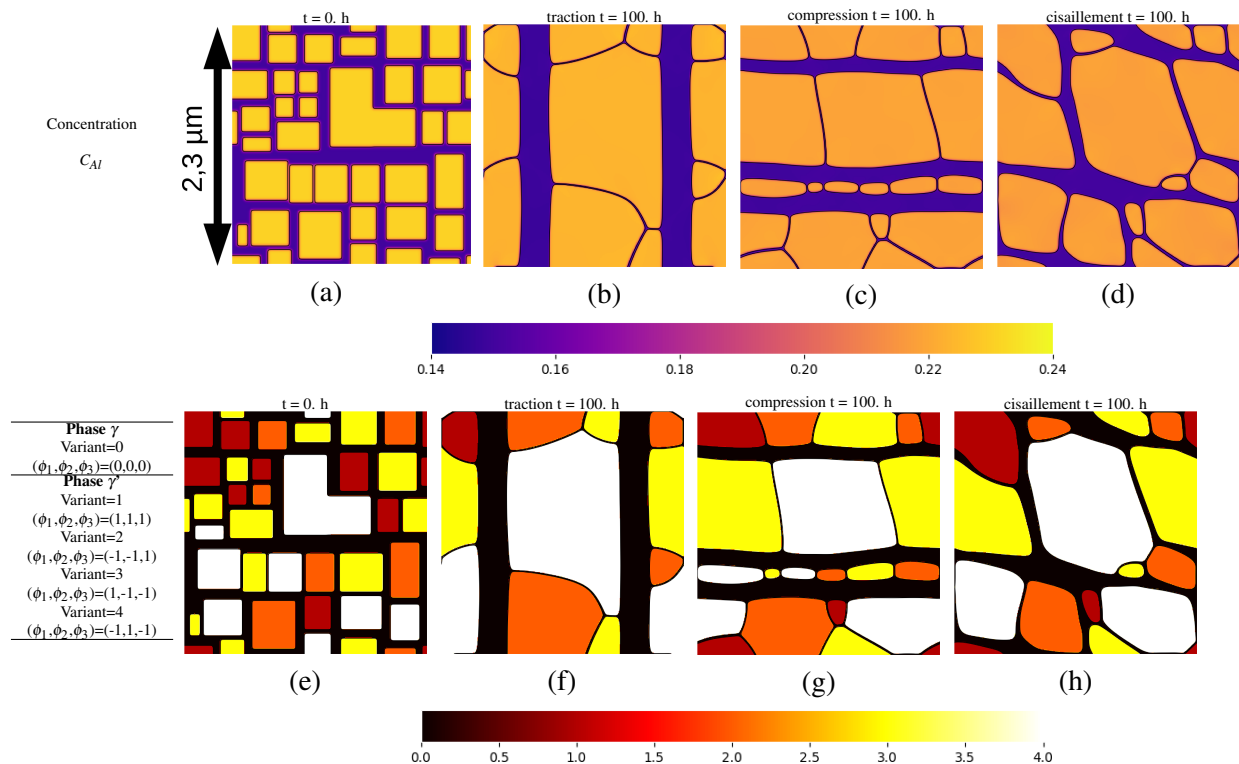


Figure 3.56: Simulation des morphologies des phases pour trois types de chargement (fluage en traction, fluage en compression et fluage en cisaillement) : (a)-(d) champs de concentration d'Al  $C_{Al}$  et (e)-(h) type des phases :  $\gamma$  (variant = 0) et  $\gamma'$  (variant = {1, 2, 3, 4}).



$L = 2,3 \mu\text{m}$

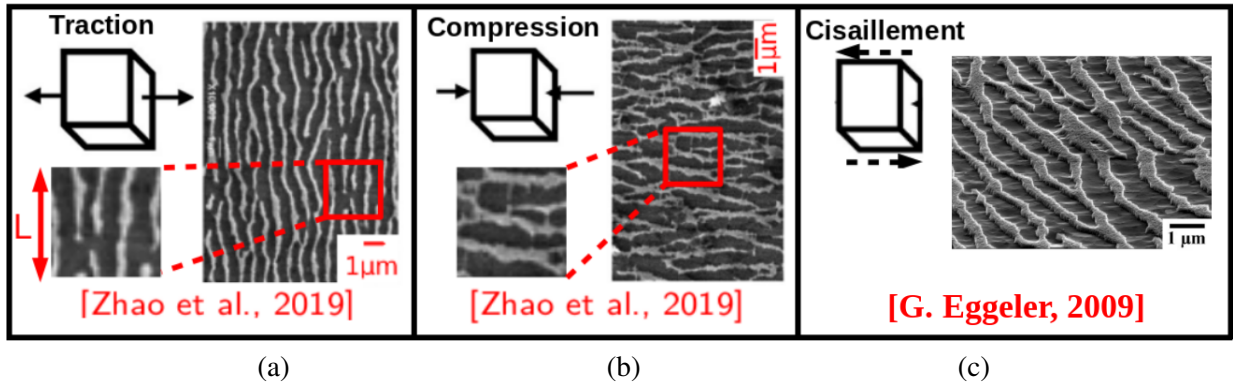


Figure 3.57: Observations microscopiques pour trois types de chargement : (a) fluage en traction, (b) fluage en compression et (c) fluage en cisaillement.

### 3.9.3 Effet de la viscoplasticité et comparaison avec l'expérience

Les différentes simulations avec les types de chargement présentés dans la section précédente (fluage en traction, en compression et en cisaillement  $\sigma_{app} = 240\text{MPa}$ ) sont reproduites en prenant en compte un comportement viscoplastique. La morphologie des précipités  $\gamma'$  est un peu différente des simulations faites en élasticité. En effet, pour le comportement élastique les interfaces des précipités ne sont pas planes, mais ils présentent des ondulations (cf. figure 3.57). En tenant compte de la viscoplasticité, la morphologie des précipités présente des ondulations (cf. figure 3.58).

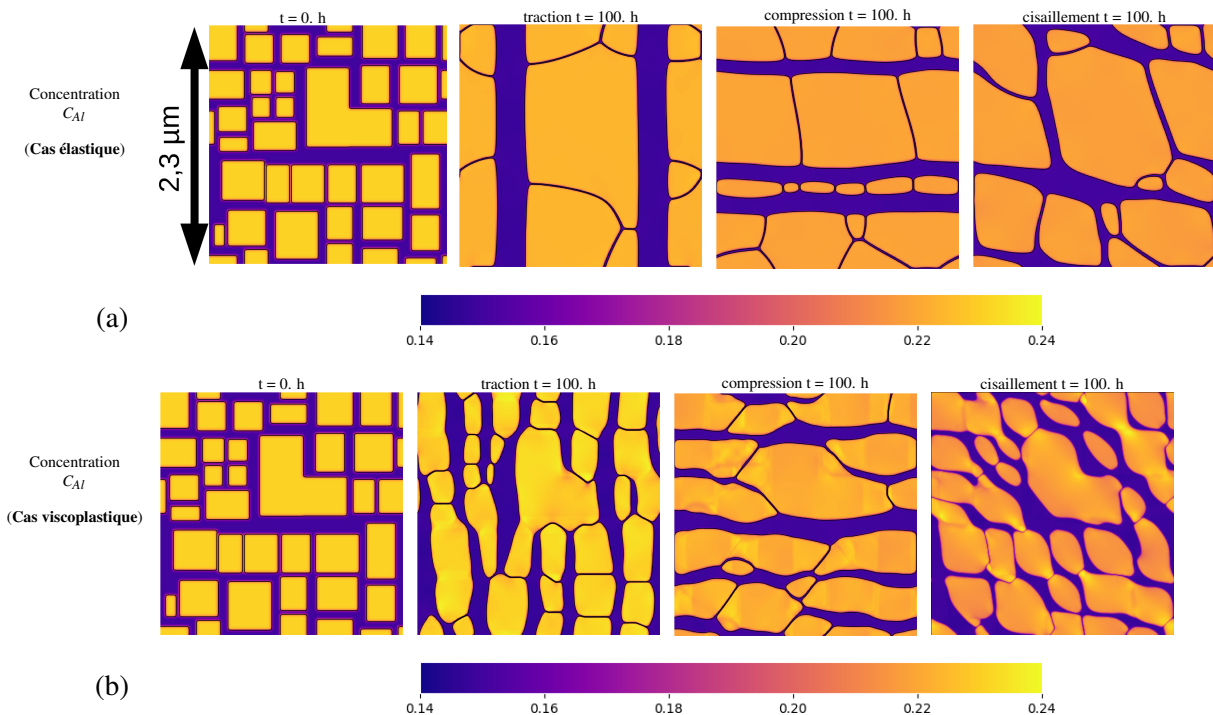


Figure 3.58: Évolution des morphologies des phases : (a) cas élastique et (b) EVP.

La fraction volumique expérimentale est égale à  $f_v^{exp}(\gamma') = 0.70$  pour un superalliage de CMSX-4 à la fin d'un essai de fluage en traction ( $T = 980^\circ\text{C}$  ;  $\sigma = 200\text{MPa}$ ) [Epishin et al., 2000]. Une comparaison avec les calculs élastique et viscoplastique d'un fluage en traction à  $T = 950^\circ\text{C}$  et avec  $\sigma = 240\text{MPa}$  montre que le calcul élastique surestime la valeur de la fraction volumique tandis qu'en tenant compte de la viscoplasticité la fraction volumique de  $\gamma'$  est bien estimée ( $f_v^{sim}(\gamma') = 0.70$ ).

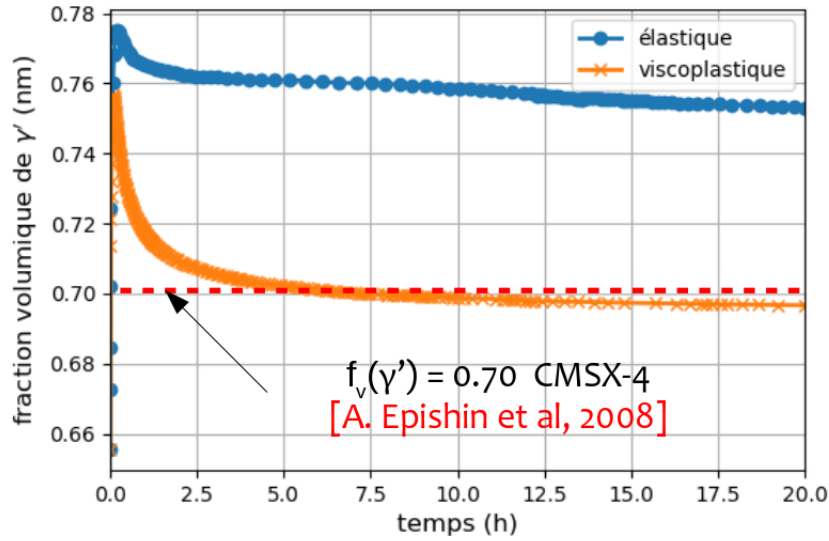


Figure 3.59: Comparaison de l'évolution de la fraction volumique de  $\gamma'$  pour les cas : élastique, viscoplastique et expérience (mesure à la fin de l'essai)

La viscoplasticité diminue la fraction volumique de  $\gamma'$  stabilisée par rapport au cas uniquement avec l'élasticité (cf. figure 3.59). Cela est causé par la variation des concentration d'équilibre  $C_{eq}^{\gamma}$  et  $C_{eq}^{\gamma'}$  qui influent la variation de la fraction des précipités  $\gamma'$  selon l'équation 3.75 page 105 :

$$df_v = \frac{f_v}{C_{\gamma'} - C_{\gamma}} dC_{\gamma'} + \frac{1 - f_v}{C_{\gamma'} - C_{\gamma}} dC_{\gamma} \quad (3.76)$$

Afin de déterminer la cinétique de la mise en radeaux d'une manière quantitative, le suivi de plusieurs caractéristiques microstructurales a été utilisé dans la littérature comme la taille des précipités [Tinga et al., 2009], la largeur des couloirs de la phase  $\gamma$  (cf. figure [Fedelich et al., 2009] 3.60.a), etc.

Dans la figure 3.60.b, une évolution de largeur de couloir en fonction du temps a été tracée pour un calcul élastique et viscoplastique. La cinétique de mise en radeaux est plus rapide quand la viscoplasticité est prise en compte par rapport au cas élastique.

La cinétique présente deux régimes : un régime de mise en radeaux, au cours duquel on observe la formation des radeaux par allongement des précipités  $\gamma'$  et un deuxième régime au cours duquel les radeaux ont été formés. Le chargement n'a plus d'effet sur l'allongement des radeaux et une coalescence des radeaux a été observée. Dans les deux régimes, l'évolution de largeur de couloir de la phase  $\gamma$  est linéaire en fonction du temps. Le régime de formation de radeaux est plus court dans le cas où la viscoplasticité est prise en compte par rapport au cas élastique.

Une comparaison de la pente obtenue en simulation dans le régime de la mise en radeaux ( $10^{-3} \mu m/h$ ) avec la pente expérimentale pour le superalliage CMSX-4 ( $3.10^{-4} \mu m/h$ ) montre une différence au niveau de la cinétique de la mise en radeaux (cf. figure 3.60). Cette différence peut être expliquée par la différence du coefficient de diffusion d'Al dans le Ni utilisé dans la simulation par rapport au coefficient de diffusion réel d'Al dans le Ni qui est influencé par la diffusion des différents éléments du superalliage CMSX-4. Parmi les solutions envisageables, il est possible de prendre en compte la cinétique expérimentale de la mise en radeaux à travers un coefficient de diffusion apparent d'Al dans le Ni.

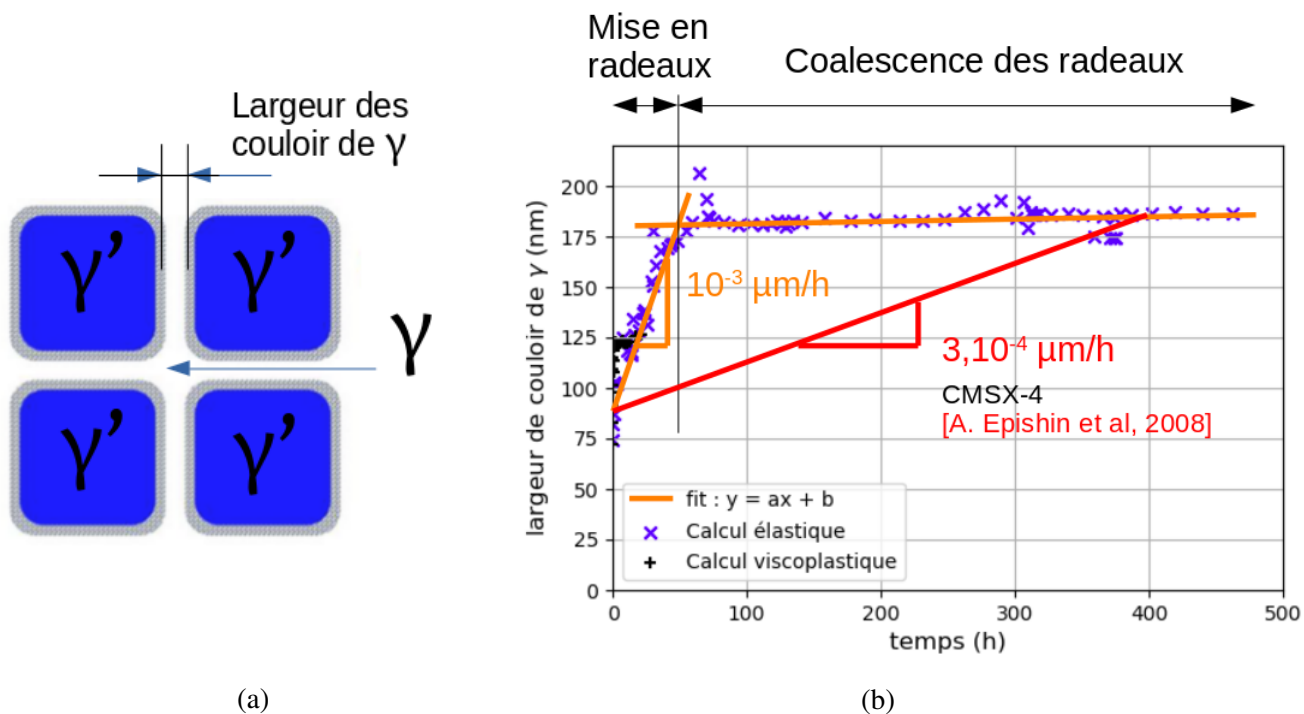


Figure 3.60: Cinétique de la mise en radeaux : (a) schéma représentatif de largeur de couloir de la phase  $\gamma$  (b) évolution de largeur de couloir en fonction du temps

### 3.10 Conclusion

Le couplage diffusion/transformation de phase/mécanique a été implémenté à l'aide de la méthode des éléments finis. Les radeaux de type P et N ont été simulés à l'aide de la méthode des champs de phase pour des cas de chargement simple (fluage en traction, en compression et en cisaillement) en déformation plane généralisé et en 3D. Au travers de l'analyse de sensibilité des paramètres du modèle, on a pu vérifier les forces motrices de la mise en radeaux.

Ces résultats permettent en premier lieu de valider la modélisation de la mise en radeaux. La prochaine section se concentrera sur des cas chargements complexes de fatigue isotherme, fluage anisotherme et des chargements avec un bord libre.

# Chapter **IV**

## Évolution de microstructure $\gamma - \gamma'$ sous chargements complexes, cas d'une surface libre

---

### Contents

---

|       |   |     |
|-------|---|-----|
| 4.1   | Introduction . . . . .  | 120 |
| 4.2   | État de l'art des chargements complexes . . . . .                                     | 120 |
| 4.2.1 | Essai de fluage anisotherme . . . . .   | 120 |
| 4.2.2 | Effet de la surface libre en condition d'oxydation . . . . .                          | 120 |
| 4.3   | Étude expérimentale : effet de surface libre sous fatigue anisotherme . . . . .       | 124 |
| 4.3.1 | Fatigue thermo-mécanique de superalliages revêtus (Ni,Pt)Al . . . . .                 | 124 |
| 4.3.2 | Analyses complémentaires des essais de Pierre Sallot . . . . .                        | 126 |
|       | a Préparation des échantillons . . . . .  | 126 |
|       | b Effet de chargements complexes . . . . .  | 127 |
|       | c Influence des zones revêtues et oxydées . . . . .                                   | 129 |
| 4.4   | Modélisation des chargements complexes . . . . .                                      | 131 |
| 4.4.1 | Essai de fatigue isotherme . . . . .  | 131 |
| 4.4.2 | Essai de fatigue-fluage isotherme . . . . .   | 134 |
| 4.4.3 | Essai de fluage anisotherme . . . . .   | 135 |
| 4.5   | Modélisation des effets de surface . . . . .  | 139 |
| 4.5.1 | Effet d'oxydation sur la microstructure . . . . .                                     | 139 |
| 4.5.2 | Effet d'oxydation et des chargements sur la microstructure . . . . .                  | 140 |
| 4.5.3 | Prévision de la taille de la zone de déplétion . . . . .                              | 142 |
|       | a Influence du flux sortant d'Al . . . . .  | 142 |
|       | b Influence de la contrainte imposée . . . . .  | 143 |
|       | c Évolution de la concentration et de la déformation viscoplastique cumulée . . . . . | 145 |
| 4.6   | Conclusions et perspectives . . . . .   | 147 |

---

## 4.1 Introduction

La déformation par fluage limite la durée de vie des superalliages monocristallins à base de nickel utilisés dans les turbines à gaz et les aubes de turbine des moteurs d'avion. Par ailleurs, la réduction de l'épaisseur des parois des aubes de turbine permet non seulement de diminuer le poids des composants, mais aussi d'améliorer l'efficacité du refroidissement des aubes. Néanmoins, pour les aubes à épaisseur de paroi réduite, l'effet de l'oxydation sur la résistance au fluage est peu étudié. Dans ce chapitre, nous sommes intéressés par l'effet de l'oxydation et des chargements complexes comme l'essai de fatigue avec et sans maintien ainsi que le fluage anisotherme sur l'évolution de la microstructure et la résistance au fluage.

## 4.2 État de l'art des chargements complexes

### 4.2.1 Essai de fluage anisotherme

L'étude de A. Raffaitin sur le superalliage à base de Nickel MC2 [Raffaitin, 2007] a mis en évidence que le comportement dans le cas d'un fluage anisotherme (cyclage thermique entre  $25^{\circ}\text{C}$  et  $1150^{\circ}\text{C}$ ) est différent de celui en conditions de fluage isotherme. Afin d'illustrer l'effet du fluage anisotherme par rapport au fluage isotherme, la courbe de déformation de fluage anisotherme est construite en gardant uniquement la partie à haute température de la courbe de déformation (cf. figure 4.1). Les essais dans des conditions anisothermes ([Raffaitin, 2007]) où la température varie de façon cyclique tout au long de l'essai indiquent un changement clair du comportement de fluage pour des températures spécifiques, y compris une augmentation de la vitesse de fluage et une réduction de la durée de vie (cf. figure 4.2).

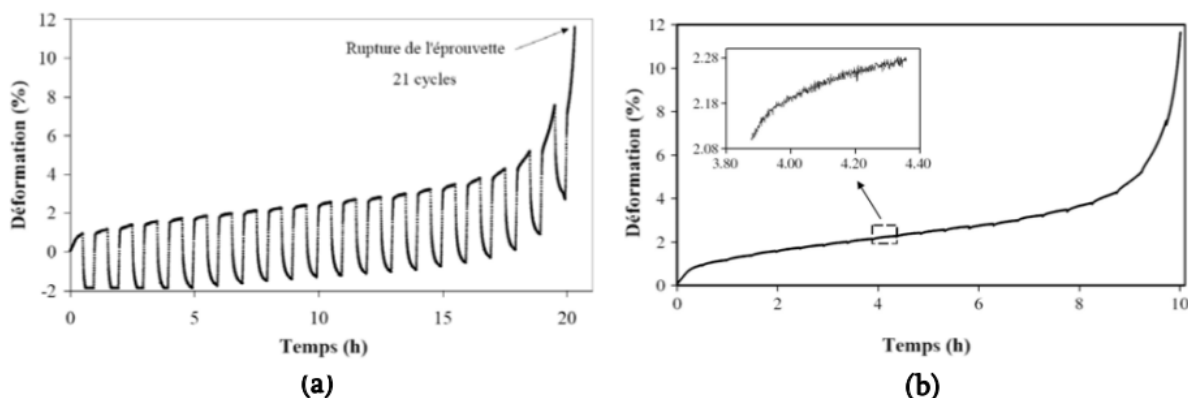


Figure 4.1: (a) Évolution de la déformation au cours d'un fluage anisotherme ( $T_{min} = 25^{\circ}\text{C}$  et  $T_{max} = 1150^{\circ}\text{C}$ ) sous contrainte  $\sigma = 80\text{MPa}$  (b) courbe tracée à partir de la déformation correspondant uniquement à la partie de maintien à haute température [Raffaitin et al., 2007]

### 4.2.2 Effet de la surface libre en condition d'oxydation

Les résultats de [Bensch et al., 2013] soulignent que l'oxydation a un impact significatif sur la fraction des précipités  $\gamma'$  dans les zones le plus proches de la surface. Avec des températures d'oxydation élevées et une épaisseur d'échantillon réduite, cet impact devient plus prononcé. De plus, l'oxydation sélective (notamment Cr ou Al) pour former une couche d'oxyde (respectivement  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  ou  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) exerce une influence considérable sur la composition locale de l'alliage et la dispersion des éléments d'alliage. Finalement, l'impact de l'oxydation sur les propriétés en fluage est d'autant plus important lorsque l'épaisseur de l'échantillon diminue.

La figure 4.3 présente les microstructures d'échantillons ayant subi une oxydation isotherme (100 heures à  $980^{\circ}\text{C}$  sous air). Ces échantillons avaient des épaisseurs initiales ( $2d_{init}$ ) de 1.0 mm (a-c), 0.3 mm (e-g)

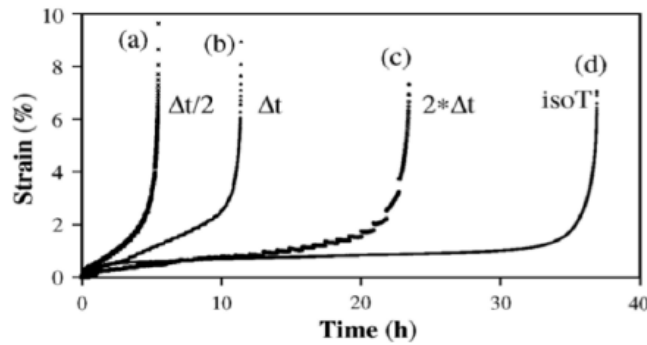


Figure 4.2: Impact du temps de maintien à haute température au cours d'un fluage anisotherme ( $T_{max} = 25^{\circ}\text{C}$  et  $T_{min} = 1150^{\circ}\text{C}$ ) sous contrainte  $\sigma = 80\text{MPa}$  sur la durée de vie [Raffaitin et al., 2007]

et 0.1 mm (h-j). Loin du bord ( $d = 0 \mu\text{m}$ ) d'un échantillon épais (1.0 mm), on observe une organisation régulière et une morphologie cuboïdale des précipités  $\gamma'$  similaires à un état de réception de ce type d'alliage, figure 4.3(c). Cette morphologie subit une transformation au fur et à mesure que l'on s'éloigne de l'axe de symétrie : elle devient une structure cubique grossière ( $d = 240 \mu\text{m}$  ; figure 4.3.b) et finit par passer à une morphologie  $\gamma'$  sphérique grossière à côté de la couche dépourvue des précipités  $\gamma'$  ( $d = 480 \mu\text{m}$  ; figure 4.3.a). Un schéma similaire est observé pour les échantillons de 0.3 mm (figure 4.3.e-g) et de 0.1 mm (figure 4.3.h-j). Cependant, l'impact de l'oxydation sur la structure  $\gamma'$  s'intensifie avec la diminution de l'épaisseur de l'échantillon, ce qui se traduit par des précipités  $\gamma'$  très perturbés dans l'échantillon de 0.1 mm à  $d = 0 \mu\text{m}$  (figure 4.3.j). En fonction de la distance  $d$ , il est notable que, outre la couche dépourvue des précipités  $\gamma'$ , une couche sensiblement plus épaisse avec une fraction  $\gamma'$  réduite est formée. Par exemple, à  $1100^{\circ}\text{C}$  et avec une épaisseur de 1.0 mm, la couche sans  $\gamma'$  ne s'étend que jusqu'à  $d = 28 \mu\text{m}$ , alors que la couche réduite en  $\gamma'$  s'étend jusqu'à  $d = 320 \mu\text{m}$ .

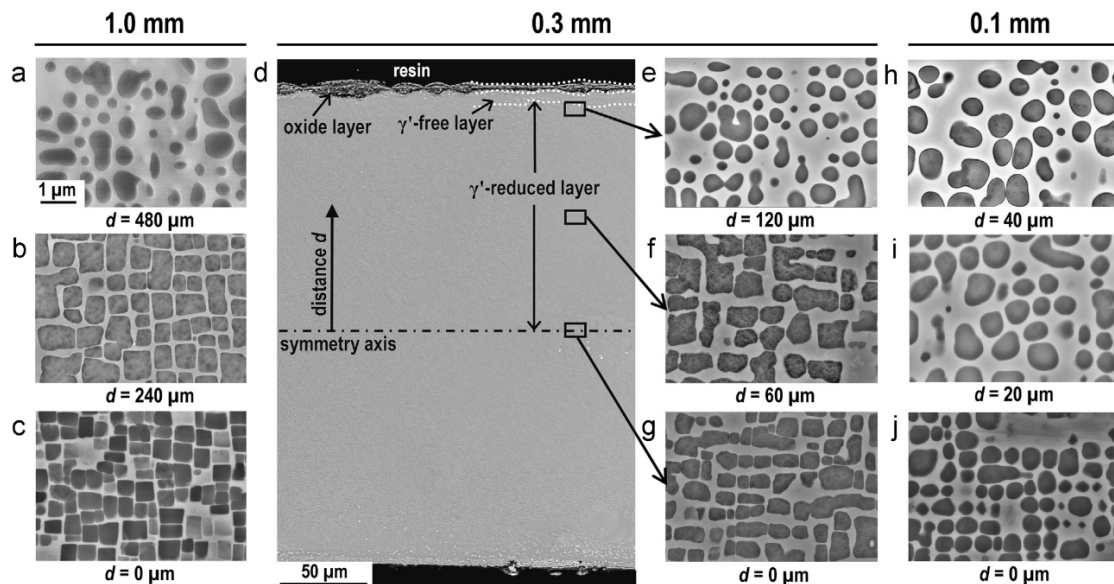


Figure 4.3: Observations MEB d'une microstructure  $\gamma/\gamma'$  oxydée pendant  $t = 100\text{h}$  à  $T = 980^{\circ}\text{C}$  des échantillons M247LC SX. Les microstructures de différents échantillons d'épaisseur ( $e = 1.0\text{mm}$  (a-c),  $0.3\text{mm}$  (e-g) et  $1.0\text{mm}$  (h-j)) sont observées [Bensch et al., 2013].

La réduction de la fraction volumique  $f_{\gamma'}$  de  $\gamma'$  comme le montre la figure 4.4, est influencée par deux facteurs distincts : la baisse continue de  $f_{\gamma'}$  avec l'augmentation de la température due à l'équilibre ther-

modynamique et la diminution de  $f_{\gamma'}$  résultant de la consommation d'éléments d'alliage, en particulier l'aluminium  $Al$ , en raison de la formation de diverses couches d'oxyde. Ces résultats sont cohérents avec ceux rapportés pour le René N5 [Storesund and Tu, 1995].

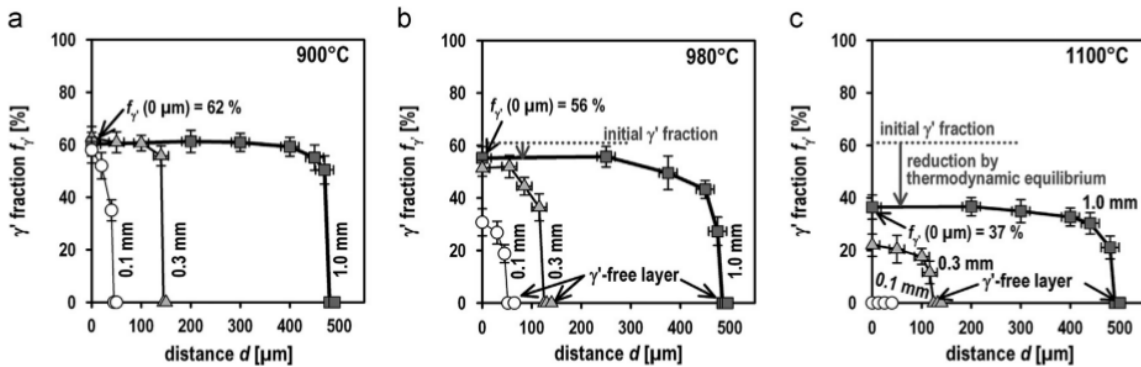


Figure 4.4: La fraction volumique de  $\gamma'$  mesurée  $f_{\gamma'}$  en fonction de distance par rapport à l'axe de symétrie de l'échantillon pour différentes épaisseurs ( $e = 0.1\text{ mm}$ ,  $0.3\text{ mm}$  et  $1.0\text{ mm}$ ) et différentes températures ( $T = 900^\circ\text{C}$ ,  $980^\circ\text{C}$  et  $1100^\circ\text{C}$ ) pendant un essai d'oxydation isotherme pendant  $t = 100\text{ h}$  [Bensch et al., 2013].

Pour un échantillon de  $0.3\text{ mm}$ , soumis à  $100$  heures d'oxydation à  $1100^\circ\text{C}$ , les profils de distribution des éléments soulignent des altérations substantielles de la composition initiale de l'alliage (cf. figure 4.5). Les résultats révèlent une réduction importante de la teneur en aluminium  $Al$ , principalement en raison du réservoir limité couvrant l'ensemble de la section transversale. Au centre de l'échantillon ( $d = 0\mu\text{m}$ ), la teneur diminue jusqu'à  $0.8$  de la concentration initiale et tombe encore à moins de  $0.6$  purement  $\gamma'$ . On observe également que les concentrations d'autres éléments, notamment  $Ta$ ,  $Ti$  et  $Mo$ , sont fortement modifiées par la diffusion à proximité de la surface. La corrélation avec la fraction de la phase  $\gamma'$  est toujours évidente.

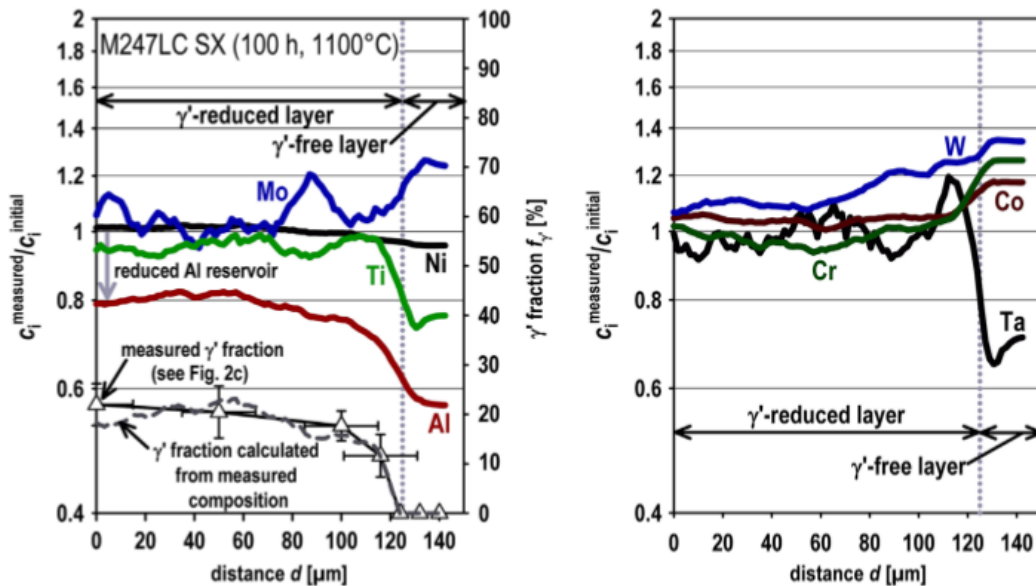


Figure 4.5: Profils EDS de concentrations des éléments d'alliages mesurées entre l'axe de symétrie de l'échantillon d'épaisseur  $0.3\text{ mm}$  oxydé pendant  $100\text{ h}$  à  $1100^\circ\text{C}$  et la surface externe de substrat proche de l'oxyde [Bensch et al., 2013].

Doner et Heckler [Doner and Heckler, 1985] ont mené une analyse sur le superalliage CMSX-3 à base

de nickel non revêtu à 982°C, avec des niveaux de contrainte inférieurs à 275 MPa. Leurs observations ont révélé une réduction de 30 % de la durée de vie à rupture par fluage lorsque l'épaisseur de la paroi passe de 3.18 à 0.76 mm, tandis que le temps nécessaire pour atteindre une déformation de 1 % n'est pas affecté par l'épaisseur de la paroi à un niveau de contrainte constant. Seetharaman et al [Seetharaman and Cetel, 2004] sont arrivés à des résultats similaires en examinant le superalliage monocristallin PWA 1484 avec des variations d'épaisseur de paroi allant de 1.76 à 0.38 mm à 982°C, associées à des contraintes inférieures à 275 MPa. Ils ont déterminé que l'oxydation et la déformation plastique sous contrainte contribuent principalement à la rupture précoce des échantillons minces. Hüttner et al [Hüttner et al., 2008] ont étudié le comportement en fluage d'échantillons monocristallins de René N5 à paroi mince orientés dans la direction [001] à 980°C, sous une charge constante et des contraintes initiales de 230, 270 et 300 MPa. Leur étude sur des échantillons non revêtus a démontré que la diminution de l'épaisseur de la paroi de 1.0 à 0.3 mm entraîne une diminution des déformations de rupture par fluage, des durées de vie plus courtes et des vitesses minimales de déformation par fluage plus élevées.

Yu et al [Yu et al., 2020a] ont étudié l'effet de variation d'épaisseur de substrat sur la courbe de fluage en gardant la géométrie de l'éprouvette et avec le même temps d'exposition à l'oxydation (cf. figure 4.6). Il est intéressant de noter qu'à forte contrainte, évidemment les temps de rupture en fluage sont assez faibles, mais il n'apparaît pas de logique entre les différentes épaisseurs : le comportement en fluage de l'éprouvette la plus mince est intermédiaire à celui des éprouvettes de moyenne et forte épaisseur.

Par contre, lorsqu'on diminue la contrainte, on voit clairement que la durée de vie a diminué d'un facteur 2 entre l'éprouvette de la plus faible par rapport à celle de la plus forte épaisseur. Ce n'est plus un effet statistique, il y a un effet d'épaisseur. Les auteurs remarquent également qu'une zone de dissolution des précipités  $\gamma'$  apparaît à proximité de la surface oxydée. L'effet d'épaisseur peut alors être expliqué par la différence de la taille de la zone de localisation plastique qui va être d'autant plus grande qu'il y aura moins de précipités  $\gamma'$  car les précipités  $\gamma'$  sont des obstacles aux mouvements des dislocations, la déformation se localise dans la matrice et s'il y a un endroit où il n'y a plus de précipités  $\gamma'$ , elle va se localiser plus facilement dans la matrice. La proportion de matrice est d'autant plus grande sur l'éprouvette mince que sur l'éprouvette épaisse. On s'attendrait donc à avoir plus de localisation, plus de déformation et une rupture plus précoce. Ce n'est pas le cas à forte contrainte puisque les temps à rupture sont courts, de fait le processus de diffusion n'a pas eu le temps de s'installer, il n'y a pas eu de dissolution significative des précipités. À faible contrainte, c'est l'inverse, les temps à rupture permettent une diffusion importante d'Al pour former l'oxyde ce qui conduit à dissoudre les précipités  $\gamma'$ . On revoit cet effet de diffusion à travers une durée de vie diminuée parce que sur une éprouvette de faible épaisseur la proportion de la phase  $\gamma$  devient plus importante par rapport à l'éprouvette de forte épaisseur, la durée de vie plus faible s'explique par une perte relative de durcissement par précipitation.

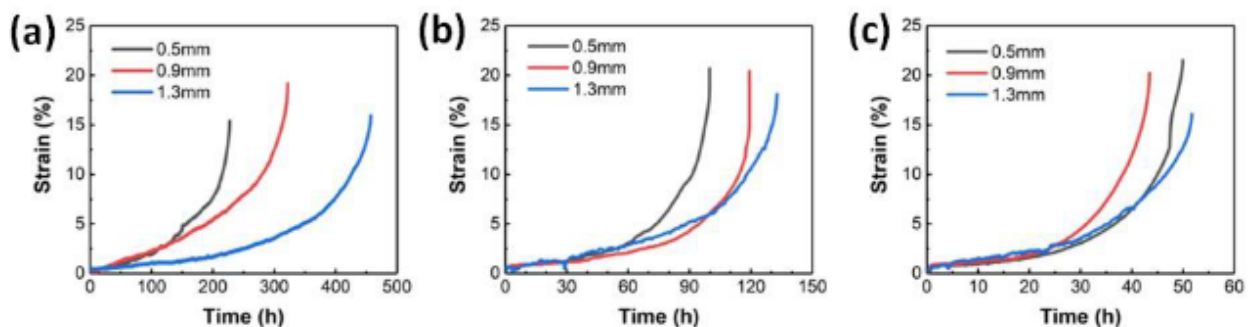


Figure 4.6: Courbes de fluage pour les superalliages monocristallins à paroi mince sous trois contraintes appliquées différentes : (a)  $\sigma = 220$  MPa (b)  $\sigma = 275$  MPa (c)  $\sigma = 330$  MPa [Yu et al., 2020a].



### 4.3 Étude expérimentale : effet de surface libre sous fatigue anisotherme

La fatigue thermo-mécanique des superalliages est relativement peu étudiée dans la littérature par rapport à la fatigue isotherme ou au fluage. Plutôt qu'une bibliographie exhaustive, on propose de reprendre quelques éléments des travaux de Pierre Sallot [Sallot, 2012], qui a analysé en condition de cyclage thermique et de fatigue thermo-mécaniques les évolutions microstructurales dans un revêtement de diffusion (Ni,Pt)Al protégeant un superalliage base Ni monocristallin de 1<sup>re</sup> génération (AM1). On pourra se référer notamment à l'ouvrage NiScAl [Nazé et al., 2021] pour une bibliographie plus étendue.

#### 4.3.1 Fatigue thermo-mécanique de superalliages revêtus (Ni,Pt)Al

Le superalliage utilisé est de l'AM1 bas soufre dont la composition nominale est définie dans le tableau 4.1. Les éprouvettes utilisées sont des éprouvettes tubulaires, revêtues (Ni,Pt)Al en surface extérieure par le procédé APVS, et simplement usinées en interne (cf. figure 4.7).

|     | Co | Cr | Mo  | W | Ta  | Al  | Ti  | C    | Fe  | S       | Ni   |
|-----|----|----|-----|---|-----|-----|-----|------|-----|---------|------|
| Min | 6  | 7  | 1.8 | 5 | 7.5 | 5.1 | 1   |      |     |         | Bal. |
| Max | 7  | 8  | 2.2 | 6 | 8.5 | 5.5 | 1.4 | 0.01 | 0.2 | 0.2 ppm | Bal. |

Table 4.1: Composition de superalliage monocristallin AM1 bas soufre [Rouzou et al., 2004]

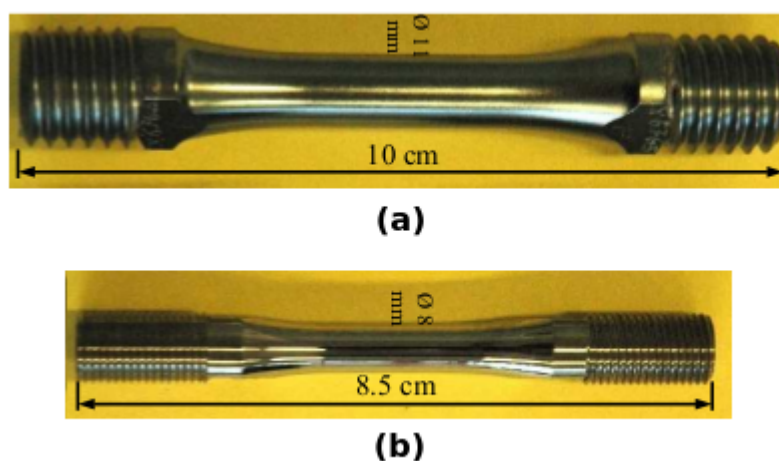


Figure 4.7: Éprouvettes utilisées pour les essais de fatigue thermo-mécanique : (a) éprouvette tubulaire TMF (b) éprouvette tubulaire TMF courte [Sallot, 2012]

Pierre Sallot a essentiellement étudié des cycles thermiques "courts" de 100 à 1100°C, avec 5 minutes de temps de maintien à 1100°C et une vitesse de chauffage et refroidissement fixée à 5°C/s, Figure 4.8.

En outre, il a superposé des chargements de fatigue pilotés en contraintes en phase (IP-TMF) où la contrainte est maximale et constante pendant le temps de maintien à haute température, et des chargements de fatigue pilotés en contrainte hors phase (OP-TMF) où la contrainte est minimale et constante pendant le temps de maintien à haute température. On référence ces essais comme suit : (100/1100°C, 5 min,  $\sigma_{HT}$ ) où  $\sigma_{HT}$  est la contrainte appliquée à haute température (exprimée en MPa), tableau 4.2.

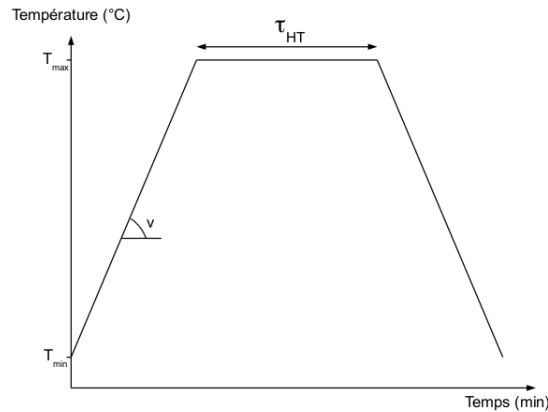


Figure 4.8: Schéma représentatif du cycle thermique [Sallot, 2012]

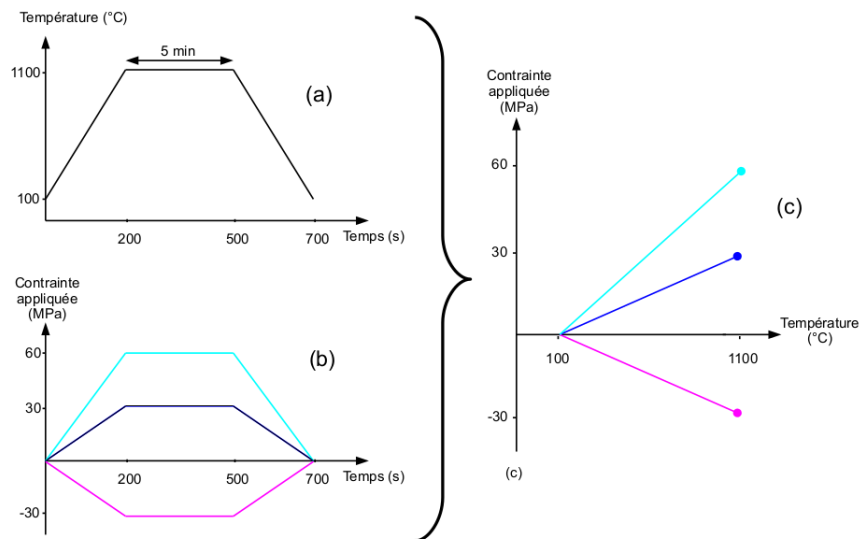


Figure 4.9: Évolutions de (a) température/temps, (b) contrainte/temps et (c) contrainte/température des cycles en-phase et hors-phase [Sallot, 2012]

| Essai                        | Contrainte minimale (MPa) | Contrainte maximale (MPa) | $N_{cycles}$ | Temps passé à haute température $t_{HT}(h)$ |
|------------------------------|---------------------------|---------------------------|--------------|---|
| (100/1100°C, 5 min, 30 MPa)  | 0                         | 30                        | 1000-2000    | 83-167                                      |
| (100/1100°C, 5 min, 60 MPa)  | 0                         | 60                        | 750          | 62  |
| (100/1100°C, 5 min, -30 MPa) | 0                         | -30                       | 1000         | 83  |

Table 4.2: Essais thermo-mécaniques [Sallot, 2012]

Les essais ont été réalisés sur une machines INSTRON à vis de capacité 100 kN. Le chauffage étant réalisé à l'aide de fours à lampes et asservi par un thermocouple ligaturé sur l'éprouvette. L'effet majeur mis en évidence dans ces travaux est qu'en superposant à un cycle thermique de référence un chargement de fatigue (pilote en contrainte), on accélère les transformations de phase dans la couche de revêtement et les processus de diffusion par rapport au même cycle thermique sans chargement, figure 4.10. La diffusion a été dans ce cas quantifiée uniquement par l'analyse en microscopie optique de l'épaisseur de la zone

d'interdiffusion (IDZ représenté par les traits noirs à gauche de chaque image). Toutefois, Pierre Sallot n'a analysé ni la mise en radeaux dans le substrat, ni en surface interne des éprouvettes tubulaires. C'est ce que nous proposons à étudier dans la partie suivante.

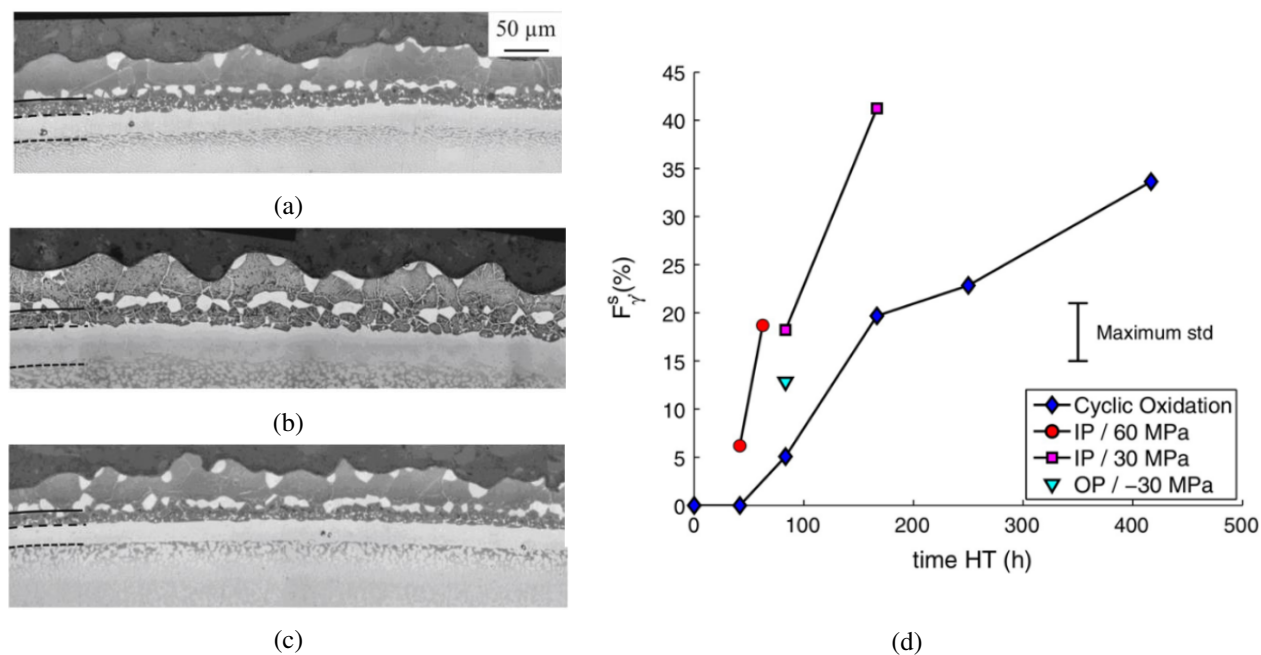


Figure 4.10: Microstructure de revêtement après fatigue thermo-mécanique (TMF) : cycle thermique avec une température maximale de 1373 K (1100°C) et un temps de maintien de 5 min pour (a) essai hors phase (OP) avec  $\sigma = -30$  MPa et 1000 cycles, (b) en phase (IP) test avec  $\sigma = 30$  MPa et 1000 cycles, (c) test en phase (IP) avec  $\sigma = 60$  MPa et 750 cycles ( $\sigma$  est la valeur de contrainte appliquée à haute température), et (d) évolution de la fraction volumique de la phase  $\gamma'$  dans les conditions décrites précédemment.

### 4.3.2 Analyses complémentaires des essais de Pierre Sallot

#### a Préparation des échantillons

Un anneau a été découpé dans la zone utile des éprouvettes d'axe suivant  $\langle 001 \rangle$ . Cet anneau est à nouveau découpé en deux parties : la première partie est utilisée afin de réaliser les observations MEB dans le plan DL et la deuxième partie dans le plan DT où DT est le plan de normale  $\langle 001 \rangle$  et DL un plan contenant la direction  $\langle 001 \rangle$  (cf. figure 4.11).

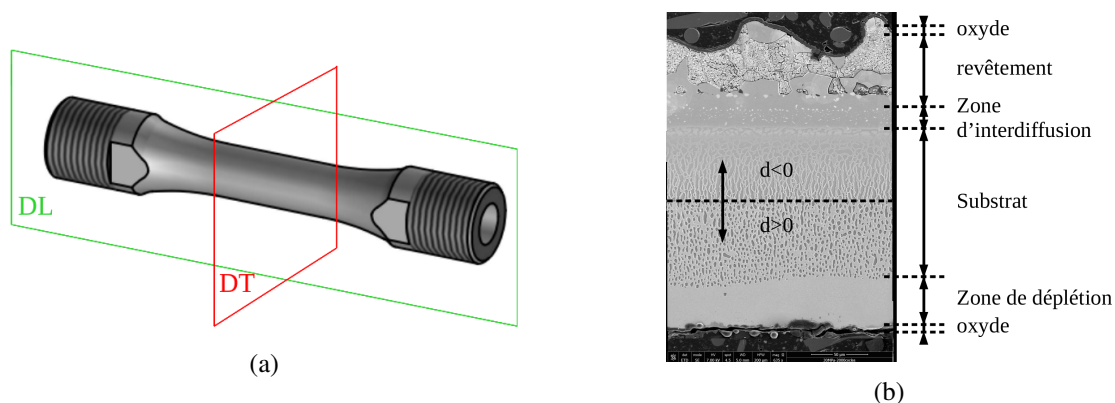


Figure 4.11: L'éprouvette tubulaire TMF : (a) la découpe selon les plans DL et DT et (b) les couches présentes dans les plans DL et DT

Ces deux échantillons sont par la suite enrobés à chaud avec une résine. Pendant l'enrobage à chaud, la température monte jusqu'à  $T = 180^{\circ}\text{C}$  et est maintenue pendant 5 min, puis l'échantillon est refroidi pendant 3 min. Par la suite, les échantillons sont polis dans un premier temps avec des disques à papier abrasif SiC de grade 600, 800 et 1200 lubrifié à l'eau. La deuxième étape consiste à réaliser une finition par polissage sur des disques à feutre chargées des pâtes diamantées de tailles 7, 3 et  $1\ \mu\text{m}$  lubrifiées à l'alumine. Un dernier polissage avec OPS est exigé puisque la taille de précipité  $\gamma'$  est inférieure à  $1\ \mu\text{m}$  afin de réaliser des observations MEB.

## b Effet de chargements complexes

**Fatigue thermo-mécanique avec maintien en traction** En regardant les observations MEB dans les deux plans longitudinal DL et transverse DT, on remarque que les précipités se mettent sous forme de plaquettes perpendiculaires à la direction de chargement mécanique comme dans le cas de fluage en traction. C'est le cas de la mise en radeaux de type N (normale) (cf. figures 4.12, 4.13 et 4.14). Les précipités changent de forme d'un cube en forme d'une plaque de normale la direction de chargement mécanique. Le rapport de forme permet de caractériser quantitativement l'évolution de forme des précipités. Il est défini comme suit :

$$r = \frac{\text{taille de précipité } \perp \text{ à la direction de chargement}}{\text{taille de précipité } // \text{ à la direction de chargement}}$$

Le rapport de forme des précipités augmente au cours de l'essai de  $r = 1$  à  $r > 1$  jusqu'à un maximum. En augmentant le nombre de cycles de  $N = 1000$  cycles à  $N = 2000$  cycles avec la même valeur de contrainte  $\sigma = 30\text{MPa}$ , les précipités augmentent en taille. De plus, le rapport de forme diminue. Cela peut être expliqué par une augmentation du temps de maintien à haute température qui favorise la coalescence des précipités (cf. tableau 4.2). En augmentant le chargement mécanique à  $\sigma = 60\text{MPa}$  et avec un nombre de cycles inférieur,  $N = 750$ , le ratio des tailles des précipités est proche de celui avec un chargement  $\sigma = 30\text{MPa}$  et un nombre de cycles  $N = 1000$ . Selon la littérature, la mise en radeaux est suivie par une coalescence des précipités  $\gamma'$  à partir d'un certain temps passé à haute température. Il existe une compétition entre la mise en radeaux et la coalescence des précipités.

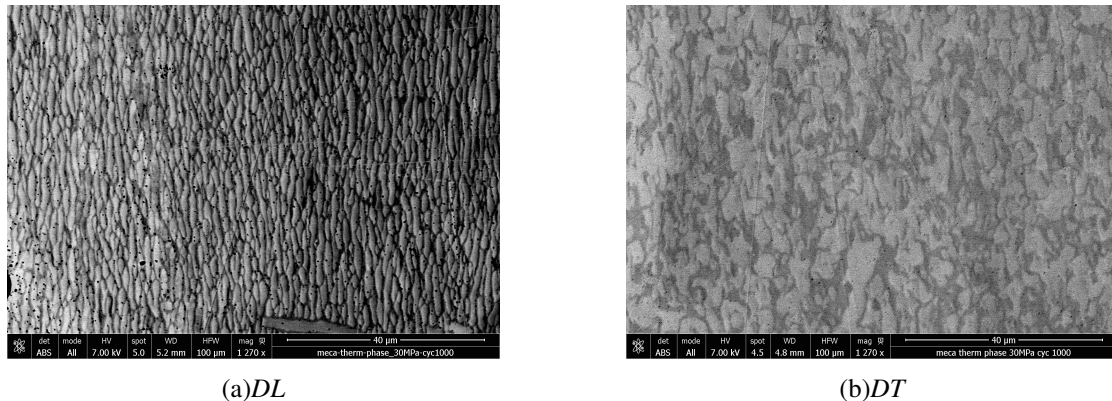


Figure 4.12: Essai de fatigue thermo-mécanique en-phase (IP) avec un maintien en traction : contrainte moyenne  $\sigma_{moy} = 30\text{MPa}$  et  $N = 1000$

**Fatigue thermo-mécanique avec maintien en compression** En inversant le signe de la contrainte appliquée ( $\sigma = -30\text{MPa}$ ), la mise en radeaux des précipités  $\gamma'$  dans le plan longitudinal DL se fait dans la direction parallèle à la direction du chargement mécanique comme dans le cas où un fluage en compression est appliqué, c'est la mise en radeaux de type P (parallèle). Dans le plan transverse DT, les précipités ont une forme circulaire. Par conséquent, les précipités prennent la forme d'une aiguille parallèle à la direction de chargement mécanique. Le rapport de forme des précipités diminue au cours de l'essai de  $r = 1$  à  $r < 1$  (cf. figures 4.16 et 4.16).

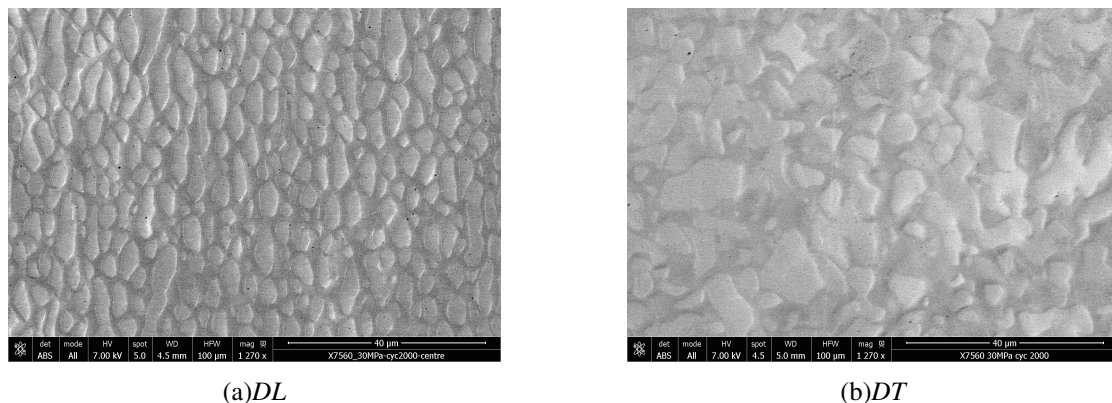


Figure 4.13: Essai de fatigue thermo-mécanique en-phase (IP) avec un maintien en traction : contrainte moyenne  $\sigma_{moy} = 30MPa$  et  $N = 2000$

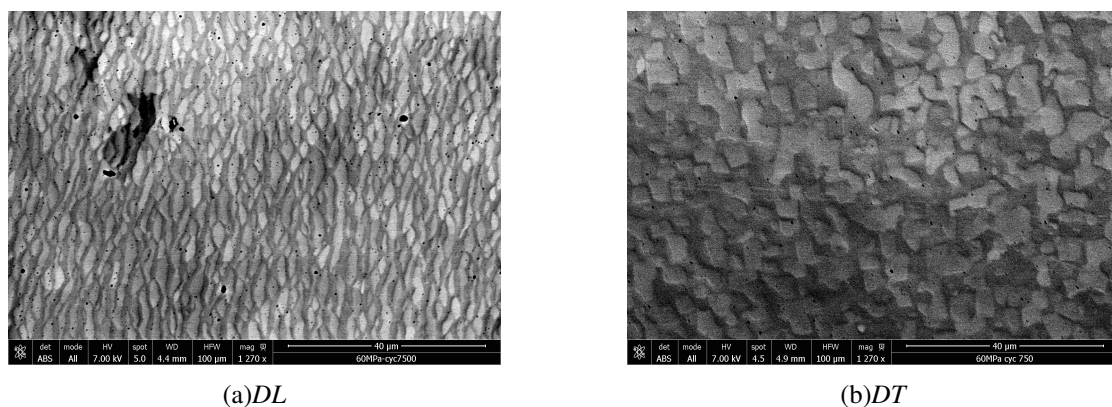


Figure 4.14: Essai de fatigue thermo-mécanique en-phase (IP) avec un maintien en traction : contrainte moyenne  $\sigma_{moy} = 60MPa$  et  $N = 750$

L'inversion de l'orientation des précipités est due aux inversions de champs des contraintes dans les deux directions parallèle et normale à la direction de chargement qui inverse les flux des éléments d'alliage. Les éléments d'alliage qui forment la phase  $\gamma'$  migrent des zones sous traction vers les zones sous compression.

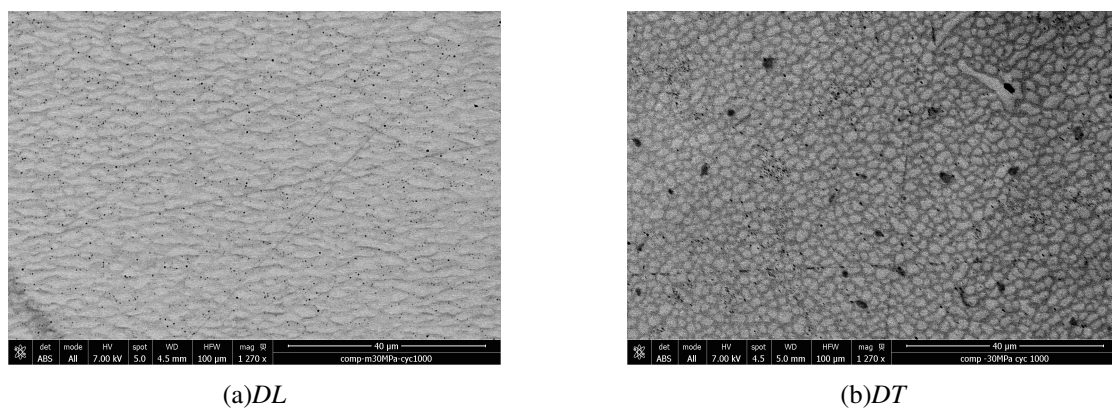


Figure 4.15: Essai de fatigue thermo-mécanique hors phase (OP) avec un maintien en compression : contrainte moyenne  $\sigma_{moy} = -30MPa$  et  $N = 1000$

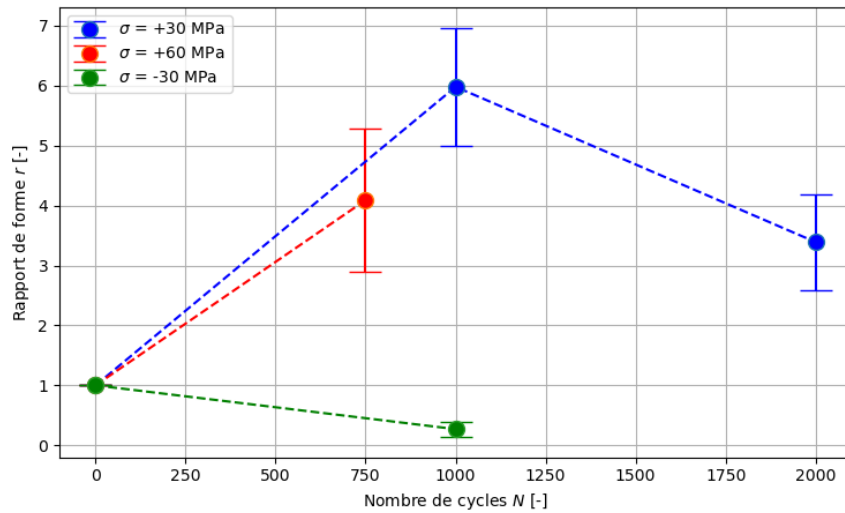


Figure 4.16: Évolution du rapport de forme en fonction du nombre du cycles, du signe et de l'amplitude de la contrainte appliquée

### c Influence des zones revêtues et oxydées

**Zone proche du revêtement** Dans la zone proche du revêtement, on observe une inversion du sens d'orientation des radeaux prononcée dans le cas de fatigue thermo-mécanique en-phase avec un maintien en traction  $\sigma_{moy} = 30\text{MPa}$  avec un nombre de cycles  $N = 1000$  cycles (cf. figure 4.17-b). Cet effet est moins prononcé lorsqu'on augmente le nombre de cycles à  $N = 2000$  cycles (cf. figure 4.18-b). Entre le substrat et le revêtement, il y a une interdiffusion des éléments d'alliages : par exemple Al diffuse du revêtement vers le substrat et Ni diffuse inversement du substrat vers le revêtement.

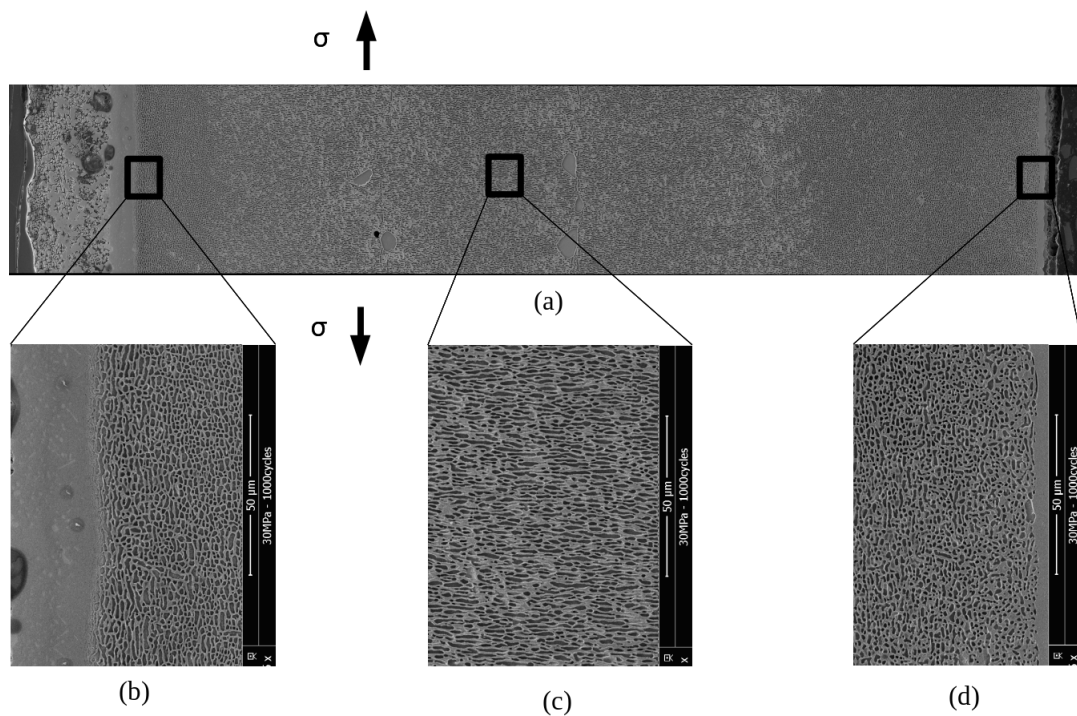


Figure 4.17: Observation MEB d'un essai de fatigue thermo-mécanique en-phase (IP) avec un maintien en traction : contrainte moyenne  $\sigma_{moy} = 30\text{MPa}$  avec un nombre de cycle  $N = 1000$  et  $T = 100/1100^\circ\text{C}$  : (a) sur toute l'épaisseur de l'éprouvette tubulaire, (b) zone proche du revêtement, (c) zone au milieu de l'éprouvette et (d) zone proche de la couche d'oxyde.

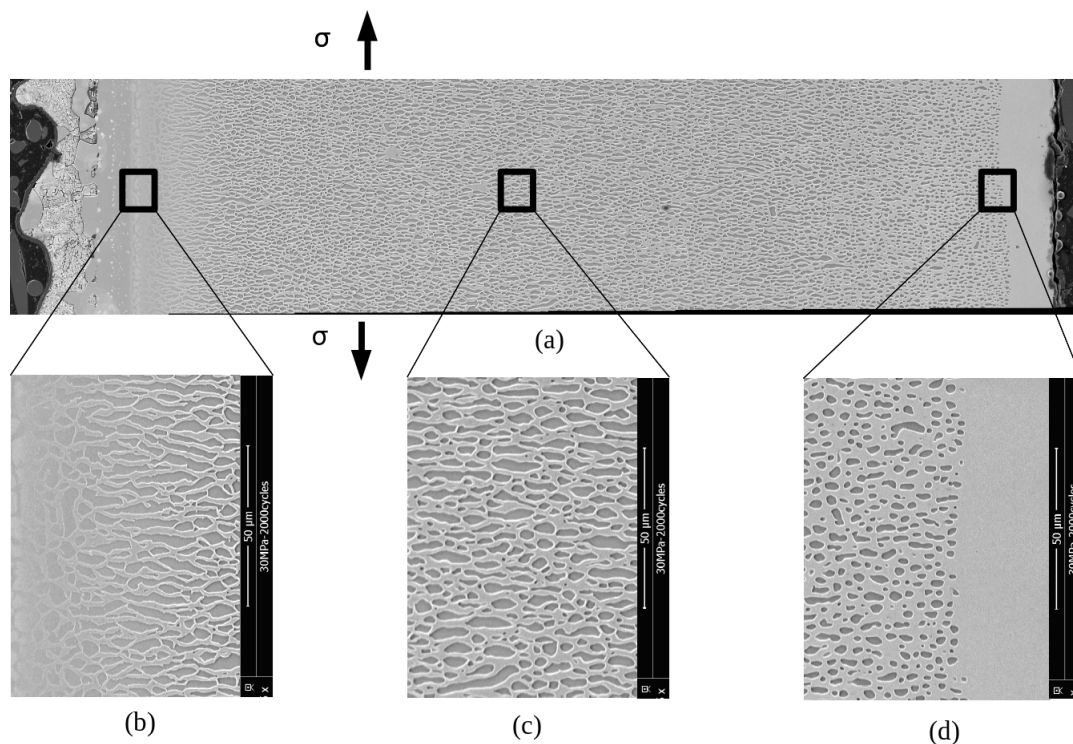


Figure 4.18: Observation MEB d'un essai de fatigue thermo-mécanique en-phase (IP) avec un maintien en traction : contrainte moyenne  $\sigma_{moy} = 30\text{MPa}$  avec un nombre de cycle  $N = 2000$  et  $T = 100/1100^\circ\text{C}$  : (a) sur toute l'épaisseur de l'éprouvette tubulaire, (b) zone proche du revêtement, (c) zone au milieu de l'éprouvette et (d) zone proche de la couche d'oxyde.

L'inversion du sens d'orientation des radeaux peut être expliquée par le flux d'Al venant du revêtement qui va causer le grossissement des précipités  $\gamma'$  proches du revêtement et cela donne lieu à la coalescence des précipités suivant l'axe horizontal. Avant le processus de dépôt de la couche du revêtement, une étape de sablage a été réalisée sur l'éprouvette. Cette étape engendre des contraintes résiduelles de compression dans la zone proche du revêtement. Cela peut expliquer l'inversion du sens des radeaux.

La mise en radeaux locale peut se former à cause de la différence de dilatation thermique et du contraste élastique entre le substrat et le revêtement. Cela peut mettre la zone proche du revêtement en compression à basse température au cours des cycles thermo-mécaniques. Ces phénomènes sont compliqués par le fait que ces revêtements sont très ductiles aux températures testées.

**Zone proche de l'oxyde** Les précipités prennent une forme sphérique proche de l'oxyde jusqu'à la dissolution totale quand uniquement une oxydation isotherme est appliquée sans chargement mécanique (cf. figure 4.3). Dans la zone proche de l'oxyde, les précipités  $\gamma'$  gardent la forme des radeaux observée dans la zone loin de la couche d'oxyde, mais avec une taille des radeaux plus faible suite à des chargements de fluage en traction ou de fatigue thermo-mécanique avec maintien en traction ou compression (cf. figure 4.17-d, 4.18-d et 4.19). La fraction volumique des précipités  $\gamma'$  n'est pas constante tout au long de l'éprouvette : elle est plus grande dans la zone proche du revêtement et plus petite dans la zone proche de l'oxyde par rapport au milieu de l'éprouvette.

Proche de la surface libre, une couche d'oxyde d'alumine  $\text{Al}_2\text{O}_3$  est créée qui génère un flux d'Al sortant. Cela va appauvrir la zone du substrat proche de l'oxyde en Al ce qui va engendrer une dissolution des précipités  $\gamma'$  et conduire à une zone composée uniquement de la phase  $\gamma$ . La taille de la zone où les précipités  $\gamma'$  sont dissouts est plus importante quand on augmente le nombre de cycles de  $N = 1000$  cycles à  $N = 2000$  cycles, c'est-à-dire, en augmentant le temps passé à haute température.

De plus, la taille de cette zone appauvrie en Al augmente avec les cyclages thermo-mécaniques puisque dans le cycle thermique il y a des phases de chauffage et de refroidissement qui vont causer l'écaillage d'une

partie de la couche d'oxyde du fait des différences de dilatation thermique entre les couches de substrat et d'oxyde en plus du chargement mécanique dû au cyclage mécanique synchronisé avec le cyclage thermique. En effet, quand une partie d'oxyde est écaillée, la cinétique d'oxydation est accélérée.

L'éprouvette a une forme tubulaire, la surface extérieure est revêtue, la surface intérieure est brute d'usinage. Cela cause l'oxydation du superalliage nu par la surface intérieure de l'éprouvette tubulaire. Dans ce cas, le flux d'Al est sortant du substrat vers la couche externe pour former l'oxyde. Par conséquent, l'inversion de l'orientation des radeaux observée dans la figure 4.17-b ne peut pas être causée par le flux d'Al. On peut émettre l'hypothèse que des contraintes résiduelles causées par les conditions d'usinage à l'intérieur du tube influencent l'orientation des radeaux. En outre pour  $\sigma = 30$  MPa et  $N = 2000$  cycles, les radeaux sont de type P ce qui est cohérent avec l'ensemble des essais. Les contraintes résiduelles liées à l'usinage ont pu se relaxer cycliquement.

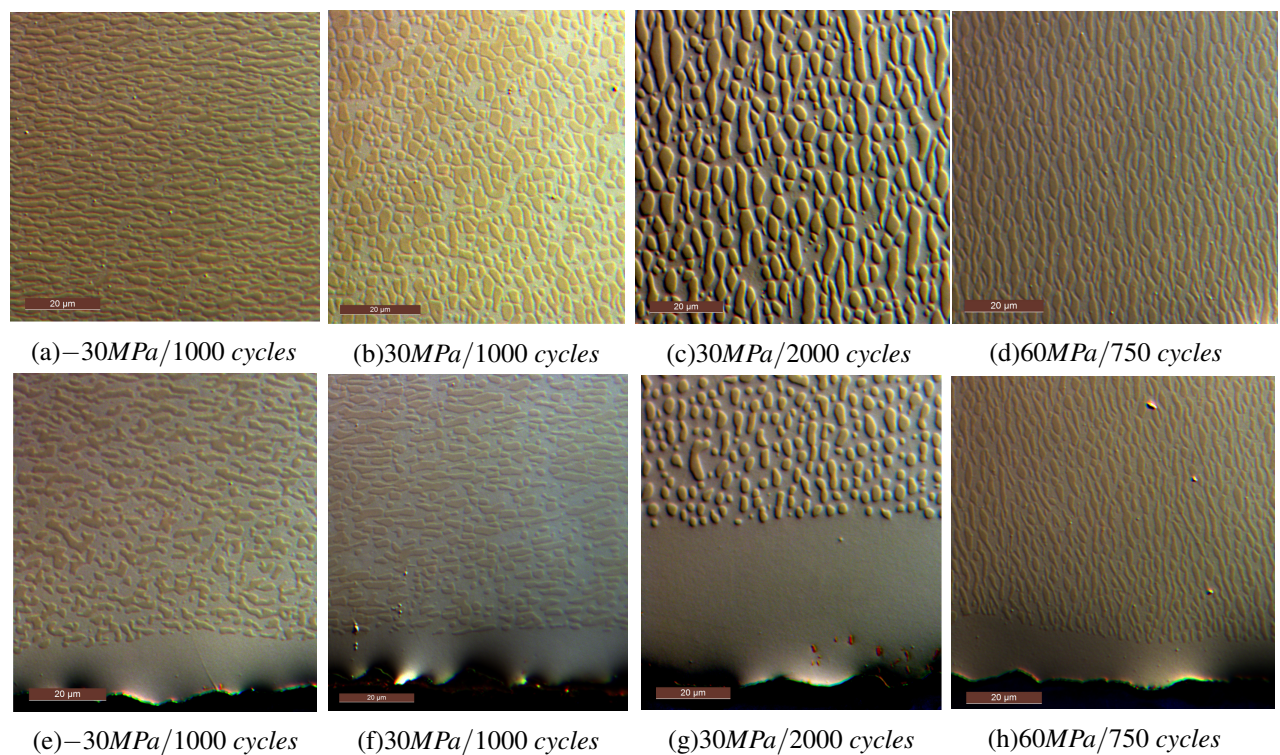


Figure 4.19: Observation optique du substrat AM1 bas soufre suite à un essai de fatigue thermo-mécanique. Au milieu de l'éprouvette : (a) hors-phase, (b-d) en-phase. Dans la zone proche de la couche d'oxyde : (e) hors-phase, (f-h) en-phase.

## 4.4 Modélisation des chargements complexes

Dans cette partie, des simulations numériques sont réalisées pour étudier l'effet de quelques chargements complexes sur l'évolution de microstructure  $\gamma - \gamma'$  comme l'essai de fatigue isotherme, fatigue-fluage isotherme avec différentes valeurs de contrainte moyenne et l'essai de fluage anisotherme.

### 4.4.1 Essai de fatigue isotherme

Afin de tester la capacité du modèle développé dans le chapitre précédent à simuler des cas de chargements complexes, la microstructure de la figure 4.20-a est soumise à des chargements cycliques de fatigue isotherme avec une contrainte moyenne positive, négative ou nulle. Des conditions périodiques ont été appliquées aux bords. Les résultats de ces simulations sont en accord avec les observations expérimentales présentées au début de cette section. En effet, pour l'essai de fatigue avec contrainte moyenne nulle il n'y a pas de mise en radeaux (cf. figures 4.20-b et 4.20-f). Cependant, des mises en radeaux de type N et de type



P sont obtenues numériquement respectivement dans le cas d'un essai de fatigue avec contrainte moyenne positive et négative (cf. figures 4.20-c, 4.20-g et figures 4.20-d, 4.20-h respectivement).

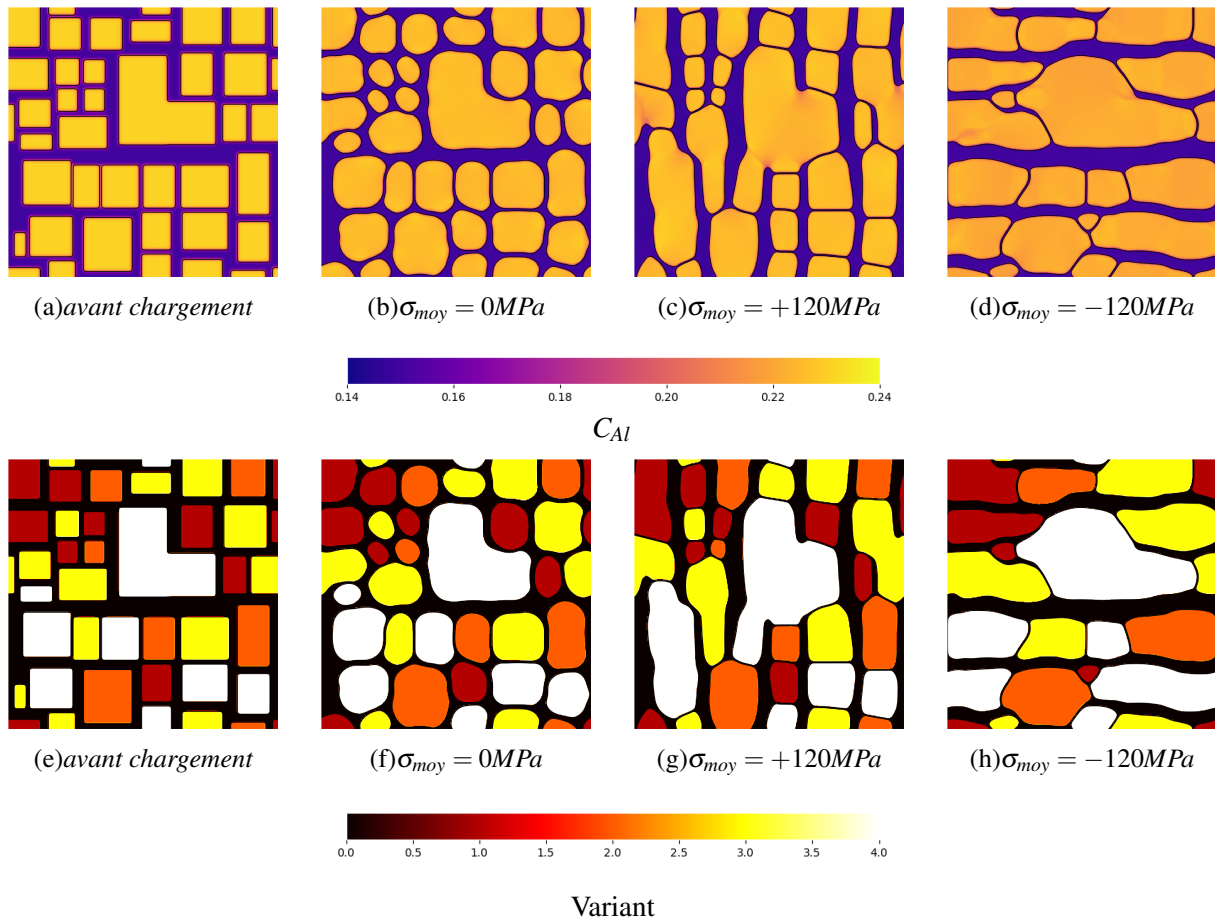


Figure 4.20: Simulation d'un essai de fatigue isotherme à  $T = 950^{\circ}\text{C}$  avec une contrainte moyenne  $\sigma_{moy}$  en tenant compte de la viscoplasticité : champ de concentration de Cr (a,e) à  $t = 0\text{h}$ , (b,c,d,f,g,h) à  $t = 10\text{h}$  et champ de variants des phases  $\gamma'$  (variant =  $\{1,2,3,4\}$ ) et la phase  $\gamma$  (variant =  $\{0\}$ )

Dans la figure 4.21, les cycles de chargement en contrainte pour trois valeurs de contrainte moyenne  $\sigma_{moy} = \{0, +120, -120\}$  MPa sont tracés. Ces chargements cycliques ont un effet sur l'évolution de la fraction volumique. Des oscillations de faibles amplitudes et de fréquences élevées sont observées tout au long de l'évolution de la fraction de  $\gamma'$ . L'amplitude et la forme des oscillations varient en fonction du type de chargement, présentent un régime transitoire au début de l'essai et tendent à se stabiliser vers la fin de l'essai. La déformation viscoplastique varie en fonction du type de chargement : dans le cas d'une contrainte moyenne positive ou négative, un effet rochet est observé, la valeur absolue de la déformation continue à augmenter. Cependant, dans le cas d'une contrainte moyenne nulle la déformation est saturée en oscillant entre une valeur maximale et une valeur minimale.

L'évolution de la fraction volumique de la phase  $\gamma'$  des essais de fatigue isotherme avec une contrainte moyenne positive, négative et nulle est comparée avec celle de fluage en traction et compression (cf. figure 4.22). Il n'y a pas de différence entre les courbes de fraction volumique des essais de fluage en compression et fatigue isotherme avec une contrainte moyenne négative. Ce résultat est observé aussi dans les courbes de déformation viscoplastique  $\epsilon_{11}^{vp}$  car la déformation viscoplastique est localisée dans les couloirs de la phase  $\gamma$  et que la phase  $\gamma'$  est élastique. Une différence de 4% est observée entre la fraction volumique de  $\gamma'$  pour l'essai de fatigue isotherme avec une contrainte moyenne positive et l'essai de fluage en traction. À cause de la différence de chargement entre les deux cas, une différence de microstructure est obtenue au niveau de la taille et du grossissement des précipités. A l'aide de cette comparaison, on peut dire que la fraction

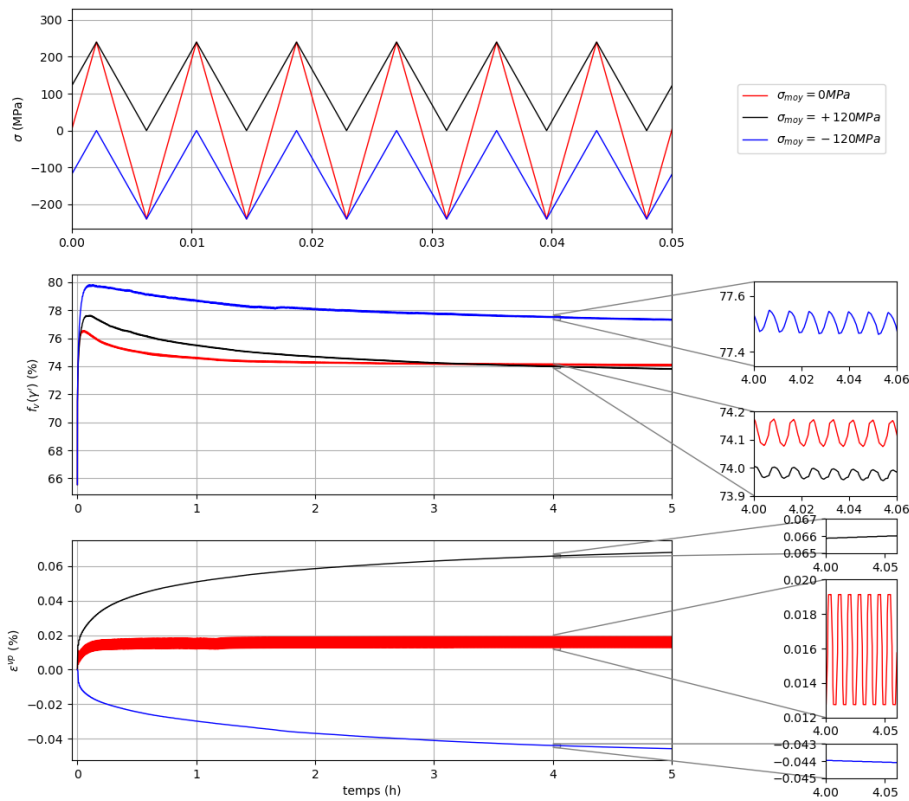


Figure 4.21: Évolution des paramètres moyennes  $\{\sigma_{11}, f_v^{\gamma}, \epsilon^{vp}\}$  dans le cas d'une simulation d'un essai de fatigue isotherme à  $T = 950^\circ\text{C}$  :  $\Delta\sigma = 480 \text{ MPa}$  et  $\sigma_{moy} = \{-120, 0, +120\} \text{ MPa}$  en considérant le cas viscoplasticité sur le volume élémentaire représentatif (RVE).

volumique de la phase  $\gamma'$  est pilotée par la contrainte moyenne  $\sigma_{moy}$ .

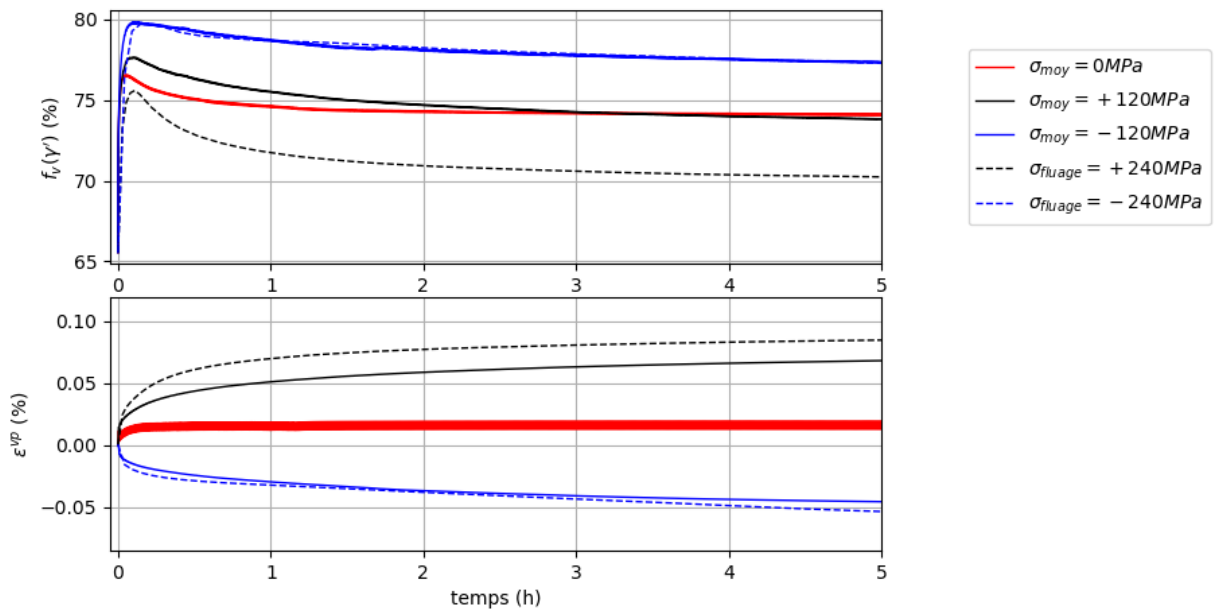


Figure 4.22: Comparaison entre les évolutions des paramètres moyennes de la fraction et la déformation viscoplastique dans le cas d'une simulation d'un essai de fatigue isotherme  $\sigma_{moy} = \{0 \text{ MPa}, \pm 120 \text{ MPa}\}$  et le cas d'une simulation d'un essai de fluage  $\sigma_{fluage} = \pm 240 \text{ MPa}$  à  $T = 950^\circ\text{C}$

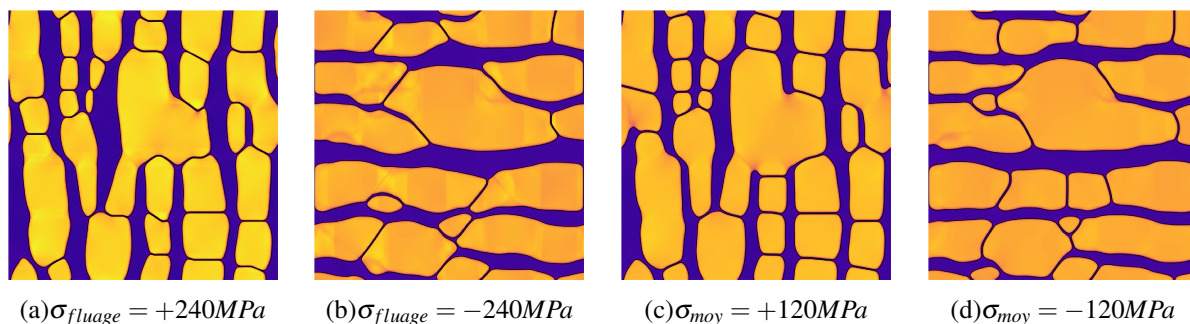


Figure 4.23: Comparaison entre les microstructures après un essai de fluage (a)  $\sigma_{fluage} = +240MPa$ , (b)  $\sigma_{fluage} = -240MPa$ , (c)  $\sigma_{moy} = +120MPa$  et (d)  $\sigma_{moy} = -120MPa$

#### 4.4.2 Essai de fatigue-fluage isotherme

La microstructure de la figure 4.24.a est soumise à des chargements cycliques de fatigue-fluage, c'est-à-dire un essai de fatigue avec un temps de maintien, avec une contrainte moyenne positive, négative ou nulle (cf. figure 4.25). Des conditions périodiques sont appliquées aux bords.

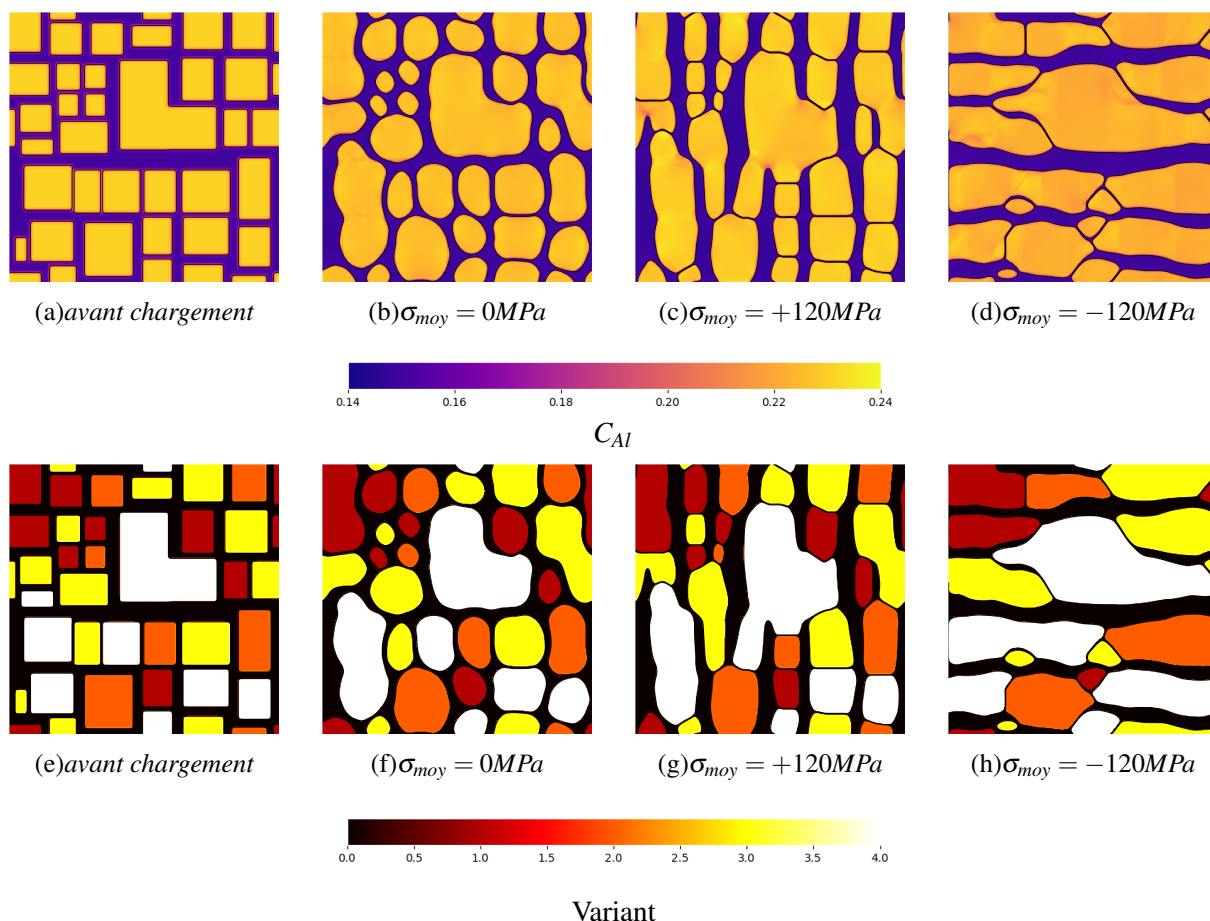


Figure 4.24: Simulation d'un essai de fatigue-fluage isotherme à  $T = 950^\circ C$  avec une contrainte moyenne  $\sigma_{moy}$  en tenant compte de la viscoplasticité : champ de concentration de Cr (a,e) à  $t = 0h$ , (b,c,d,f,g,h) à  $t = 10h$  et champ de variants des phases  $\gamma'$  (variant =  $\{1, 2, 3, 4\}$ ) et la phase  $\gamma$  (variant =  $\{0\}$ )

Dans la figure 4.25, les cycles de chargement en contrainte avec un temps de maintien de 5 min pour trois valeurs de contrainte moyenne,  $\sigma_{moy} = \{0, +120, -120\}$  MPa sont tracés. Ces chargements cycliques ont un effet sur l'évolution de la fraction volumique. Des oscillations de faible amplitude et de fréquence élevée

sont observées tout au long de l'évolution de la fraction de  $\gamma'$ . L'amplitude et la forme de oscillations varient en fonction du type de chargement. Les courbes de la fraction de  $\gamma'$  ont un régime transitoire au début de l'essai et il tend à se stabiliser vers la fin de l'essai. La déformation viscoplastique varie en fonction de type de chargement : dans le cas avec une contrainte moyenne positive ou négative, l'effet de rochet est observé. La valeur absolue de la déformation continue à augmenter. Cependant, dans le cas avec une contrainte moyenne nulle la déformation est saturée en oscillant entre une valeur maximale et une valeur minimale.

Les résultats de ces simulations sont en accord avec les observations expérimentales des essais faits par P. Sallot [Sallot, 2012] pour les observations faites en volume présentées au début de ce chapitre. En effet, pour l'essai de fatigue-fluage avec contrainte moyenne nulle il n'y a pas de mise en radeaux. Cependant, une mise en radeaux de type N et de type P sont observées numériquement respectivement dans le cas d'un essai de fatigue-fluage avec contrainte moyenne positive et négative.

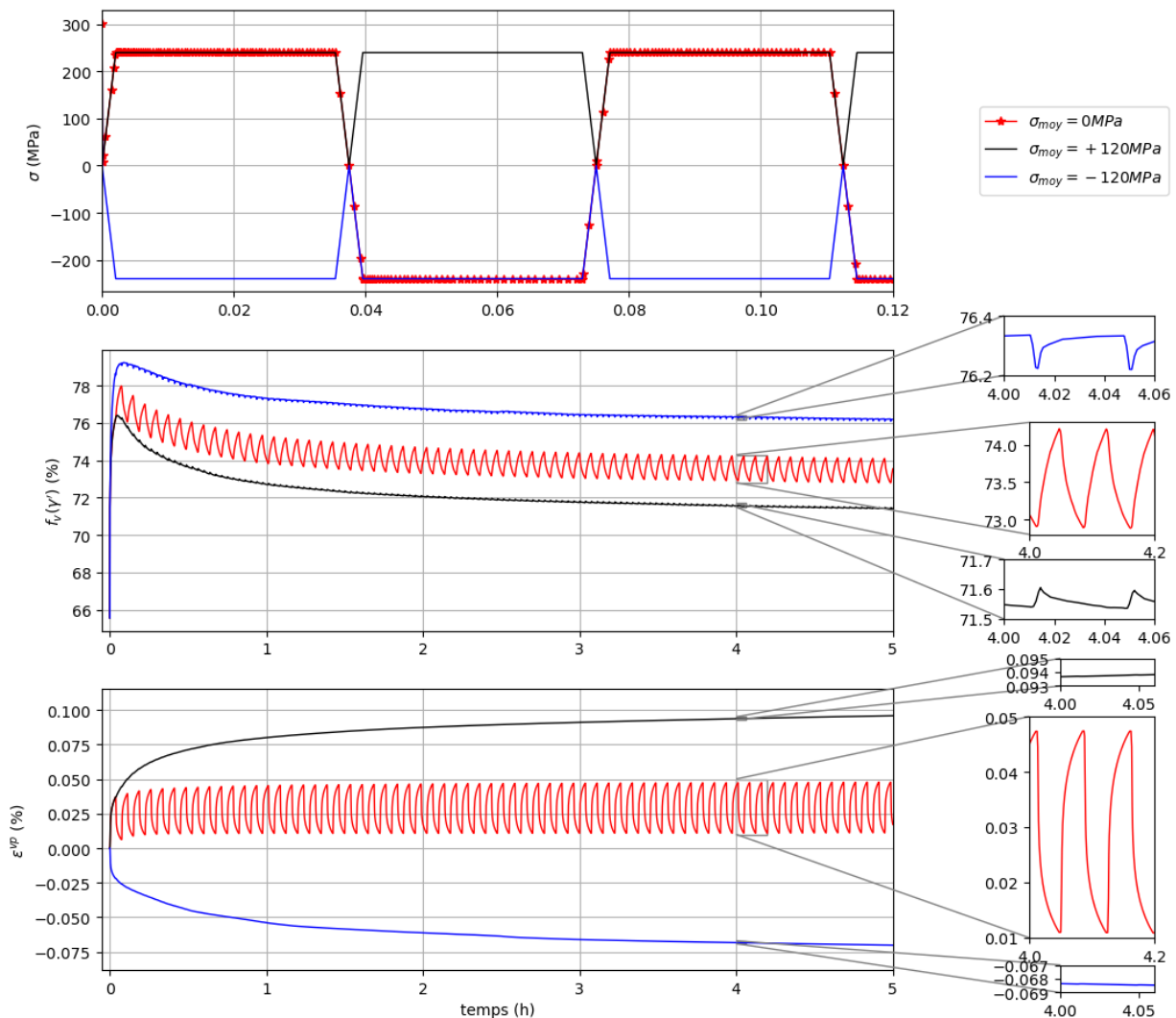


Figure 4.25: Évolution des paramètres moyennes  $\{\sigma_{11}, f_v^{\gamma'}, \varepsilon^{vp}\}$  dans le cas d'une simulation d'un essai de fatigue-fluage isotherme à  $T = 950^\circ\text{C}$  :  $\Delta\sigma = 480 \text{ MPa}$  et  $\sigma_{moy} = \{-120, 0, +120\} \text{ MPa}$  en considérant le cas viscoplasticité sur le volume élémentaire représentatif (RVE).

#### 4.4.3 Essai de fluage anisotherme

Pour simuler un essai de fluage anisotherme, il faut décrire l'évolution des constantes du tenseur d'élasticité cubique ( $C_{11}$ ,  $C_{12}$  et  $C_{44}$ ) en fonction de la température (cf. figure 4.26.a). Cette évolution a été déterminée par [Epishin et al., 2021] pour l'alliage CMSX-4. De même, les coefficients d'érouissage

cinématique (C, D), la limite d'élasticité  $R_0$  et les coefficients de la loi de Norton (K,n) sont dépendants de la température. De plus, l'évolution des concentrations d'équilibre des phases  $\gamma$  et  $\gamma'$  en fonction de la température est décrite par [Wang et al., 2007] (cf. figure 4.26.b) et par les équations suivantes avec la température T exprimée en K :

$$C_\gamma = 10^{-4}T + 0.0277 \quad (4.1)$$

$$C_{\gamma'} = -2.5 \times 10^{-5}T + 0.2613 \quad (4.2)$$

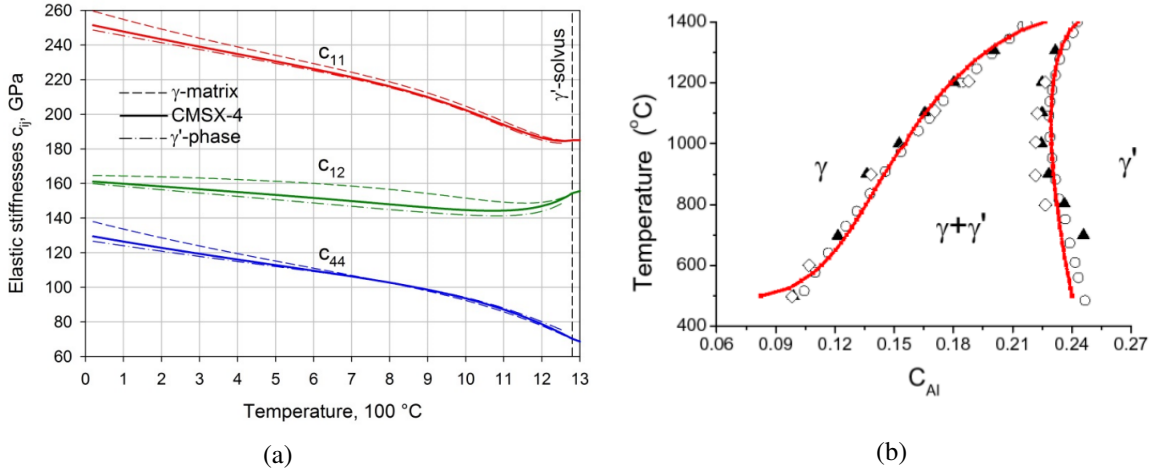


Figure 4.26: Évolution des paramètres en fonction de la température : (a) modules d'élasticité cubique ( $C_{11}$ ,  $C_{12}$  et  $C_{44}$ ) pour CMSX-4 [Epishin et al., 2021] (b) concentration d'équilibre des phases  $\gamma$  et  $\gamma'$

Les valeurs de la courbure de l'énergie de la phase  $\gamma$ ,  $\Delta f$  sont déterminées en identifiant les courbures de l'énergie de Gibbs de la phase  $\gamma$  pour chaque valeur de température en appliquant une règle de proportionnalité et en prenant la température  $T=950^\circ\text{C}$  comme référence (cf. figure 4.27).

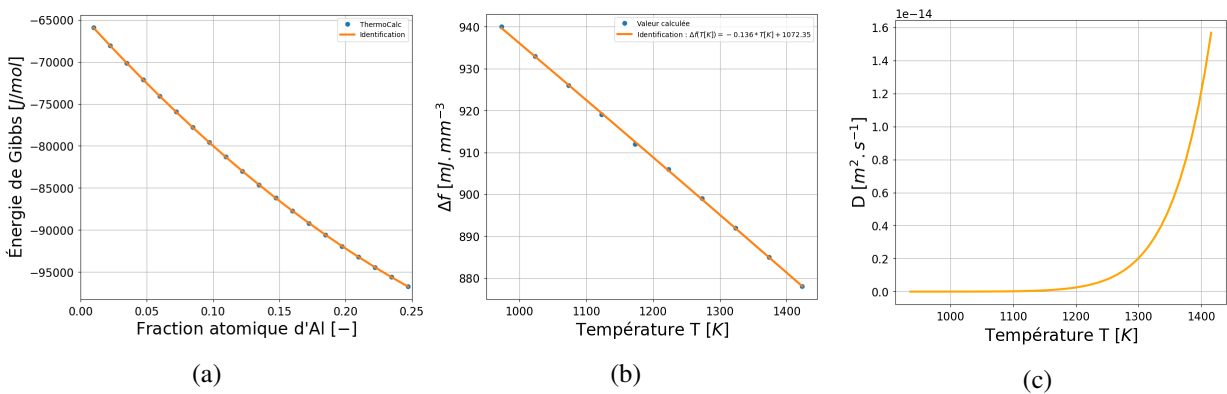


Figure 4.27: Évolution des paramètres en fonction de la température : (a) énergie libre de la phase  $\gamma$  obtenue à partir de la base de données ThermoCalc, (b) courbure de l'énergie  $\Delta f$  de la phase  $\gamma$  et (c) coefficient de diffusion D

Le coefficient de diffusion  $D$  est exprimé en fonction de la température par la relation suivante :

$$D = D_0 \exp \left[ \frac{-\Delta U}{k_B T} \right] \quad (4.3)$$

avec  $D_0 = 1.45 \times 10^{-4} m^2 s^{-1}$ ,  $\Delta U = 2.8 eV$ ,  $k_\beta = 8.617 \times 10^{-5} eV.K^{-1}$  et la température  $T$  est en K.

Afin de s'assurer la convergence des calculs en tenant compte de ces valeurs de paramètres d'entrée dépendant de la température, trois simulations d'un essai de fluage à  $T=700^\circ C$ ,  $T=950^\circ C$  et  $T=1100^\circ C$  sont réalisées avec une contrainte de fluage  $\sigma_{fluage} = +240$  MPa pendant  $t = 100h$  (cf. figure 4.28).

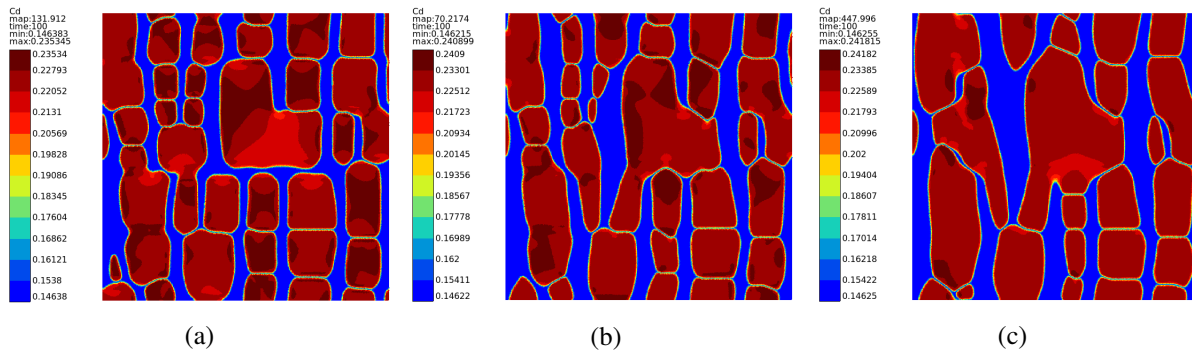


Figure 4.28: Simulation de fluage avec une contrainte  $\sigma_{fluage} = +240$  MPa à  $t = 100h$  pour trois valeurs de température : (a)  $T=700^\circ C$ , (b)  $T=950^\circ C$  et (c)  $T=1100^\circ C$

Un essai de fluage anisotherme est simulé avec un cyclage thermique entre les températures  $T_{min} = 25^\circ C$  et  $T_{max} = 1150^\circ C$  sous une contrainte de fluage  $\sigma_{fluage} = +240$  MPa avec un temps de maintien  $\Delta t = \{15min, 30min, 60min\}$  (cf. figure 4.29). Une faible diminution de la fraction des précipités  $\gamma$  est observée quand le temps de maintien à haute température est diminué de  $\Delta t = 60$  min à  $\Delta t = 15$  min quand on garde uniquement les parties à haute température (cf. figure 4.30). Ces essais sont comparés à un essai de fluage isotherme à  $T = 1150^\circ C$ . Comme dans les essais de fluage anisotherme, figure 4.2, on observe numériquement l'augmentation de la vitesse de fluage par rapport à l'essai de fluage isotherme lorsque le temps de maintien est réduit (cf. figure 4.31).

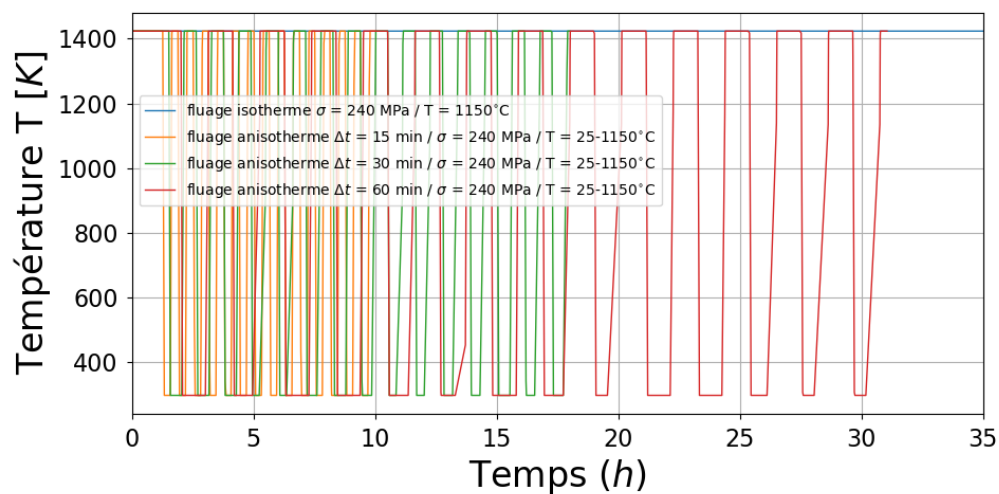


Figure 4.29: Les cycles thermiques pendant l'essai de fluage anisotherme entre les températures  $T_{min} = 25^\circ C$  et  $T_{max} = 1150^\circ C$

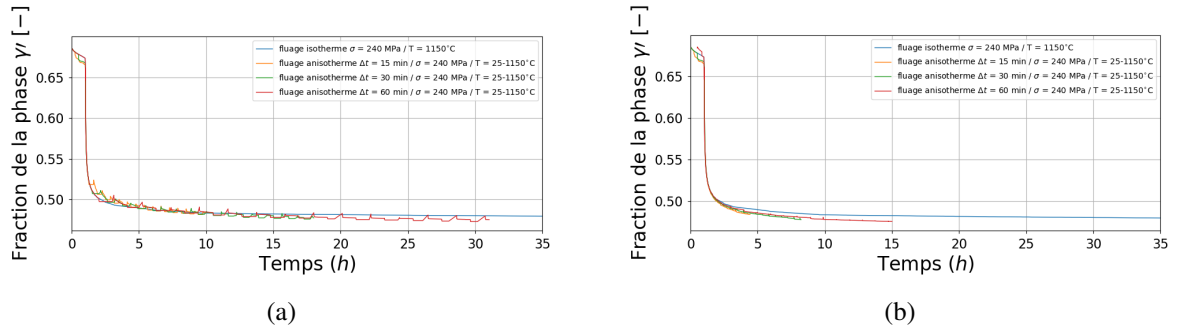


Figure 4.30: Évolution de la fraction volumique de  $\gamma'$  au cours de l'essai de fluage anisotherme : (a) essai complet et (b) parties à haute température  $T = 1150^{\circ}\text{C}$

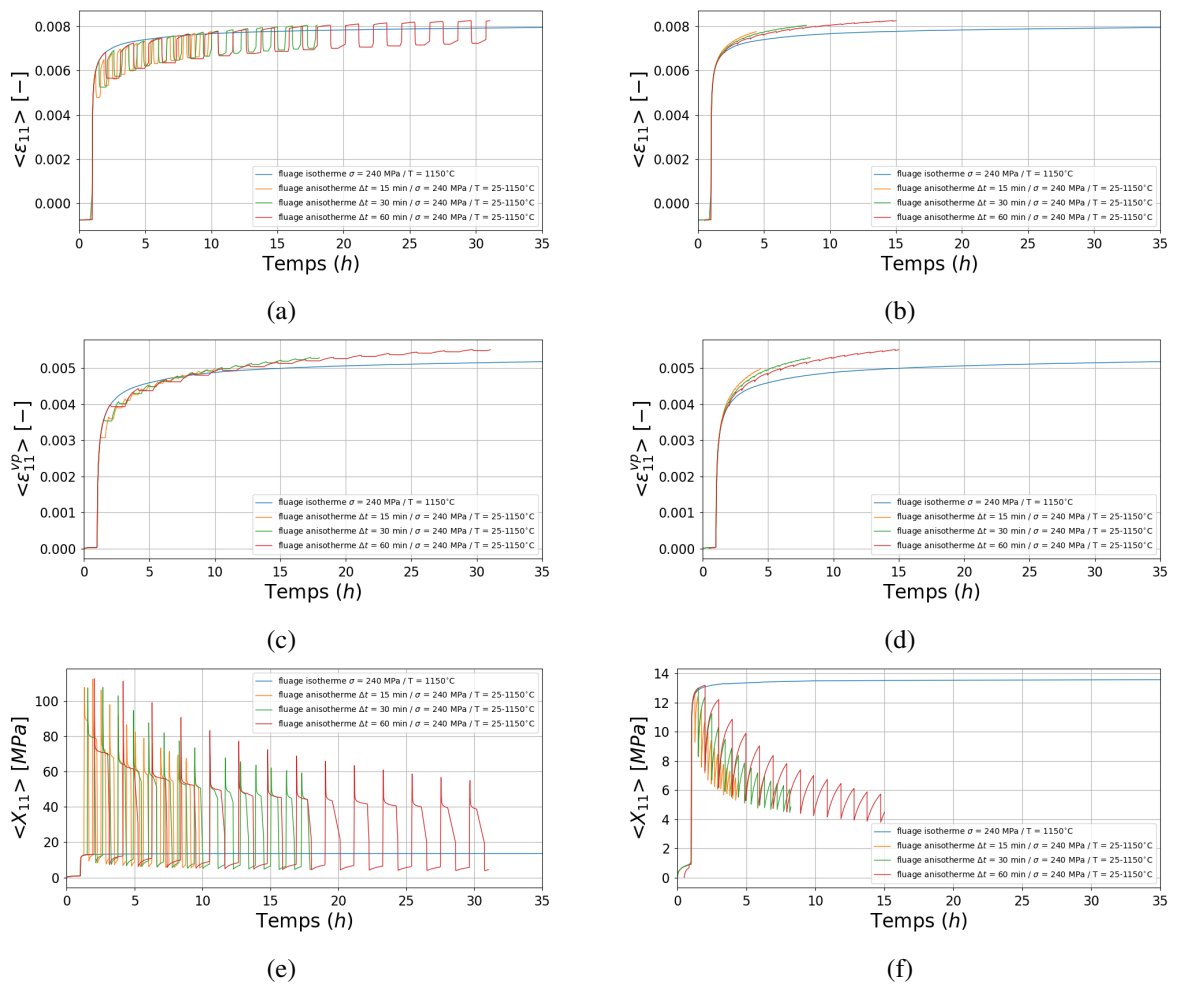


Figure 4.31: Évolution des paramètres au cours de l'essai de fluage anisotherme : déformation macroscopique totale  $\langle \epsilon_{11} \rangle$  : (a) essai complet et (b) parties à haute température  $T = 1150^{\circ}\text{C}$ , déformation macroscopique viscoplastique  $\langle \epsilon_{11}^{vp} \rangle$  : (a) essai complet et (b) parties à haute température  $T = 1150^{\circ}\text{C}$  et  $\langle X_{11} \rangle$  : (a) essai complet et (b) parties à haute température  $T = 1150^{\circ}\text{C}$

## 4.5 Modélisation des effets de surface

### 4.5.1 Effet d'oxydation sur la microstructure

Dans cette partie, l'effet de croissance d'oxyde sur la microstructure  $\gamma/\gamma'$  est étudié en imposant un flux d'aluminium Al sortant vers la surface libre où l'oxyde est formé (cf. figure 4.32). Des conditions périodiques sont considérées sur les côtés afin de simuler la continuité de microstructure  $\gamma/\gamma'$ . Un maillage qui fait  $2\mu\text{m} \times 3.5\mu\text{m}$  discrétisé en  $297 \times 487$  nœuds contient  $4 \times 7$  précipités  $\gamma'$  de taille  $420\text{ nm}$  et des canaux de  $\gamma$  de largeur  $80\text{ nm}$  (cf. figure 4.33).

Un traitement thermique d'une heure est appliqué sur la microstructure à température  $T = 950^\circ\text{C}$  dans le but d'atteindre l'équilibre chimique avant d'appliquer un flux d'Al sortant égale à  $J_{\text{Al}} = 5.10^{-6}\text{ mm}^{-2}.\text{h}^{-1}$  pour tenir compte de l'effet de l'oxydation. Un choix d'un flux d'Al constant est fait pour simplifier le problème.

La dissolution des précipités  $\gamma'$  suite à la diffusion d'Al vers la surface libre pour former l'oxyde donne lieu à une modification de la morphologie des précipités d'une forme cubique vers une forme sphérique (cf. figure 4.34). Ce changement de morphologie des précipités présenté dans la figure 4.34 a été observé expérimentalement dans les travaux de [Bensch et al., 2013] (cf. figure 4.3).

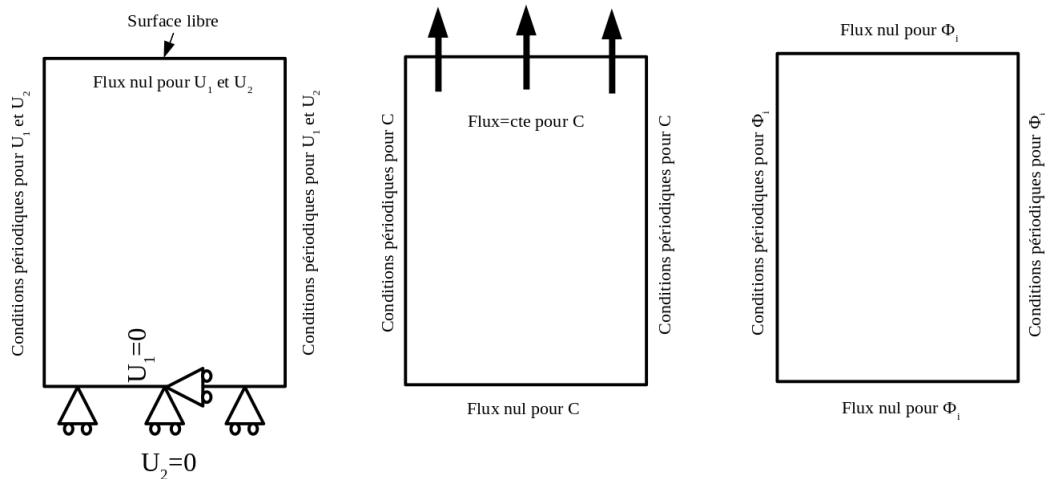


Figure 4.32: Conditions aux limites pour les 6 degrés de liberté  $\{U_1, U_2, C, \phi_1, \phi_2, \phi_3\}$

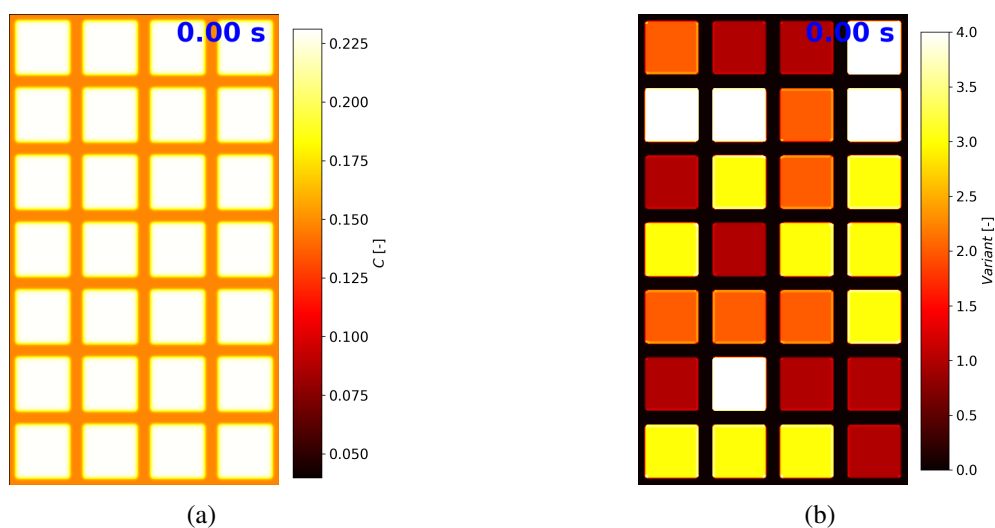


Figure 4.33: Conditions initiales pour : (a) la concentration et (b) les variants de la phase  $\gamma'$



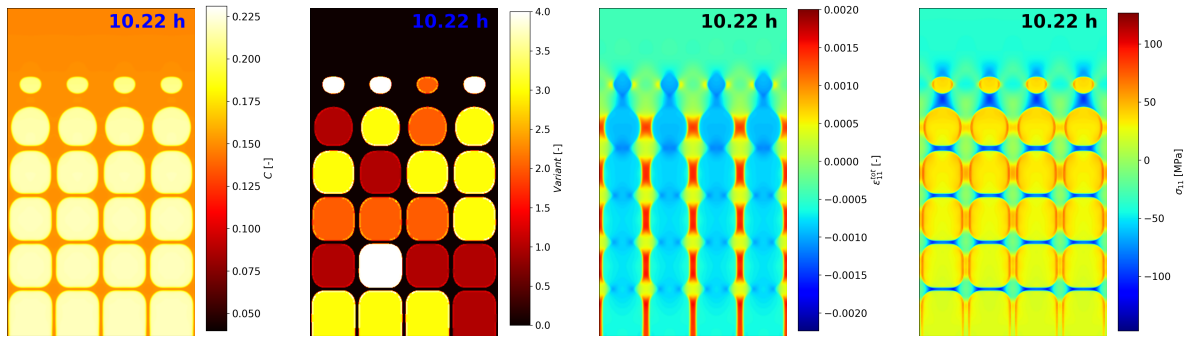


Figure 4.34: Simulation d'effet d'oxydation sur la microstructure  $\gamma/\gamma'$  : champs de concentration d'Al, champs de variants de  $\gamma$ , champs de déformation  $\epsilon_{11}^{ot}$  et champs de la contrainte  $\sigma_{11}$

### 4.5.2 Effet d'oxydation et des chargements sur la microstructure

Dans cette partie, l'effet de chargement mécanique de fluage sur la microstructure  $\gamma/\gamma'$  est étudié. En plus des mêmes conditions aux limites et initiales utilisées dans le paragraphe précédent, un chargement de fluage est imposé avec  $\sigma_{11} = 240\text{MPa}$  (cf. figure 4.35).

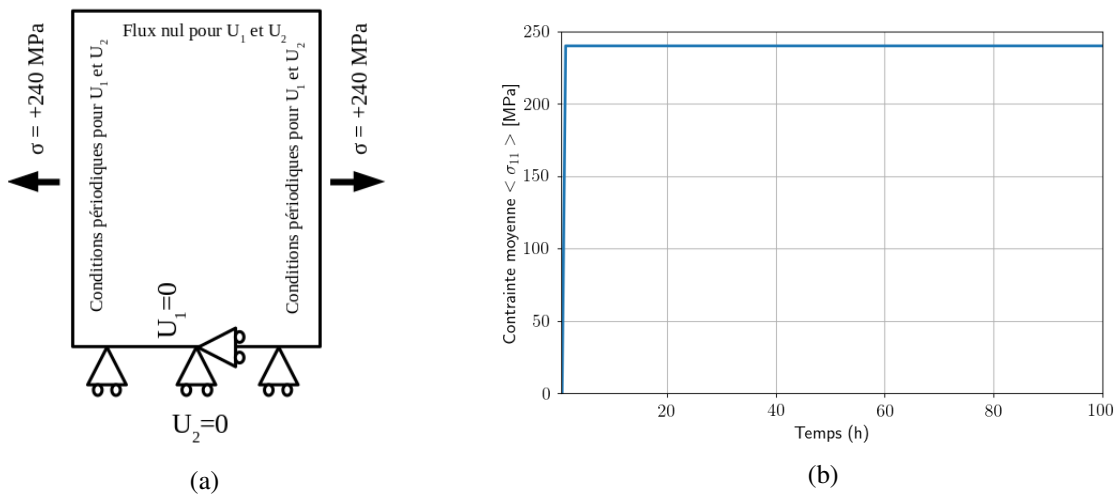


Figure 4.35: Conditions aux limites pour les déplacements  $\{U_1, U_2\}$  et le chargement mécanique appliqué.

Comme dans le cas d'étude d'effet d'oxydation, une dissolution des précipités est observée proche de la surface libre où l'oxyde se forme. De plus, une mise en radeaux des précipités est obtenue loin de la surface libre (cf. figure 4.36). Par contre, le changement de morphologie des précipités est différent lorsque le chargement mécanique est ajouté en condition de flux sortant dans la zone proche de la surface libre. En effet, le chargement de fluage en traction (resp. en compression) provoque la mise en radeau des précipités dans la direction perpendiculaire (resp. parallèle) à la direction de chargement (cf. figure 4.36 et resp. figure 4.37) et le flux sortant engendre une dissolution inhomogène des précipités : la partie d'un précipité du côté "oxyde" se dissout avant le reste du précipité. Ce résultat de simulation donne des morphologies de précipités proches de ceux obtenus expérimentalement dans l'article de [Yu et al., 2020a] (cf. figure 4.38).

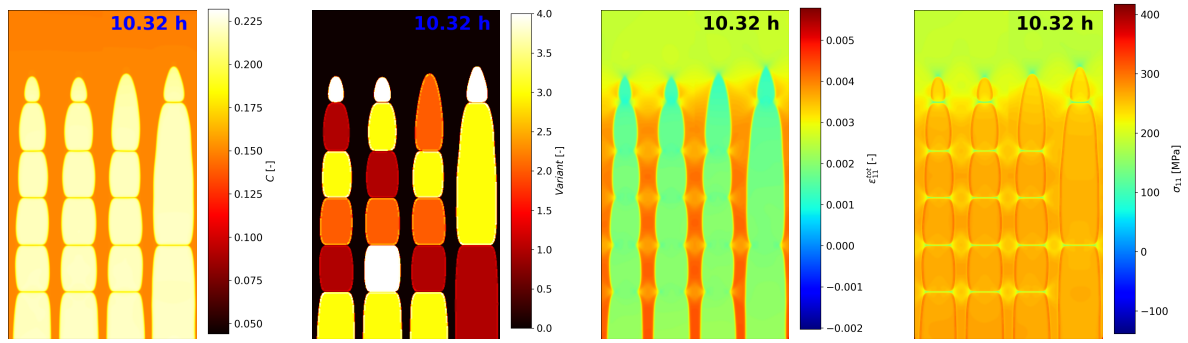


Figure 4.36: Simulation d'effet d'oxydation et des chargements de fluage en traction sur la microstructure  $\gamma/\gamma'$  : champs de concentration d'Al, champs de variants de  $\gamma'$ , champs de déformation  $\epsilon_{11}^{tot}$  et champs de la contrainte  $\sigma_{11}$

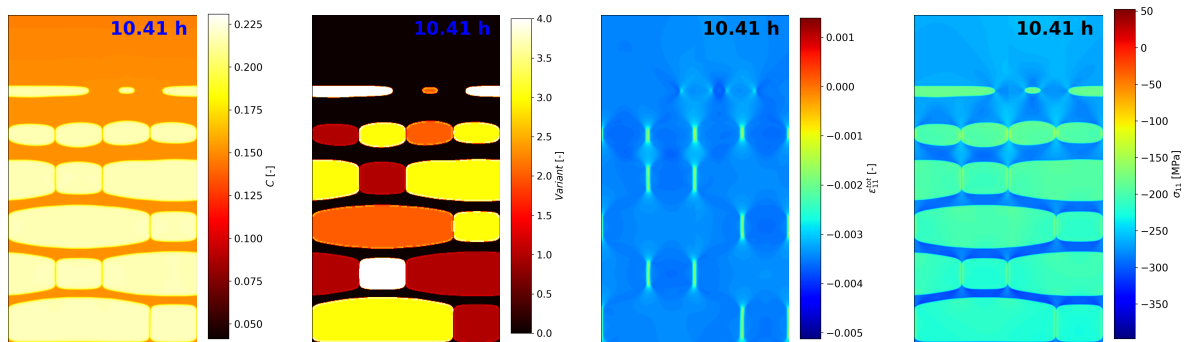


Figure 4.37: Simulation d'effet d'oxydation et des chargements de fluage en compression sur la microstructure  $\gamma/\gamma'$  : champs de concentration d'Al, champs de variants de  $\gamma'$ , champs de déformation  $\epsilon_{11}^{tot}$  et champs de la contrainte  $\sigma_{11}$

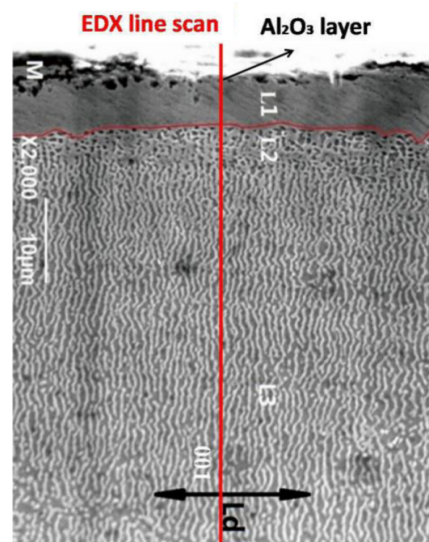


Figure 4.38: Observation MEB de la microstructure  $\gamma/\gamma'$  proche de la surface oxydée après un temps de  $t = 227.5h$  et un fluage en traction à  $\sigma_{11} = 220MPa$  à température  $T = 980^\circ C$ .  $L_3$  : région de  $\gamma/\gamma'$ ,  $L_2$  : couche de phase  $\gamma'$  réduite et  $L_1$  : couche sans  $\gamma'$  [Yu et al., 2020a]

### 4.5.3 Prédiction de la taille de la zone de déplétion

Les fluages primaires et secondaire sont décrits facilement en associant loi de Norton et écrouissage pour la loi de comportement de la matrice  $\gamma$ . Ce n'est pas le cas pour le fluage tertiaire. Cependant, ce dernier est observé dans le cas où un flux d'Al sortant dû à l'oxydation est considéré qui conduit à la dissolution progressive des précipités  $\gamma'$  (cf. figure 4.39). Un effet de flux d'Al sur la déformation viscoplastique cumulée  $p$  est observé en comparant les courbes pour différents flux  $J_{Al} = \frac{J_0}{2}$ ,  $J_{Al} = J_0$  et  $J_{Al} = J_0 \times 2$  et avec la même contrainte  $\sigma = 240$  MPa. On constate que la valeur du flux d'Al sortant pour la même valeur de la contrainte  $\sigma = +240$  MPa (cf. courbes bleu, orange et vert) influence la déformation viscoplastique cumulée  $p$ . En effet, lorsqu'un flux d'Al sortant est appliqué, la fraction volumique de la phase  $\gamma'$  diminue en fonction du temps, cela affaiblit la résistance au fluage et peut engendrer l'amorçage d'une fissure en surface. Le saut initial dans la courbe de  $p$  entre la courbe avec une contrainte  $\sigma = 120$  MPa et  $\sigma = 240$  MPa avec un flux  $J_{Al} = J_0$  est dû à l'augmentation de la contrainte appliquée. Le volume considéré dans cette simulation est petit en raison de coût du calcul. Pour obtenir des résultats quantitativement proches de l'observation expérimentale, il faudrait augmenter la taille du volume simulé.

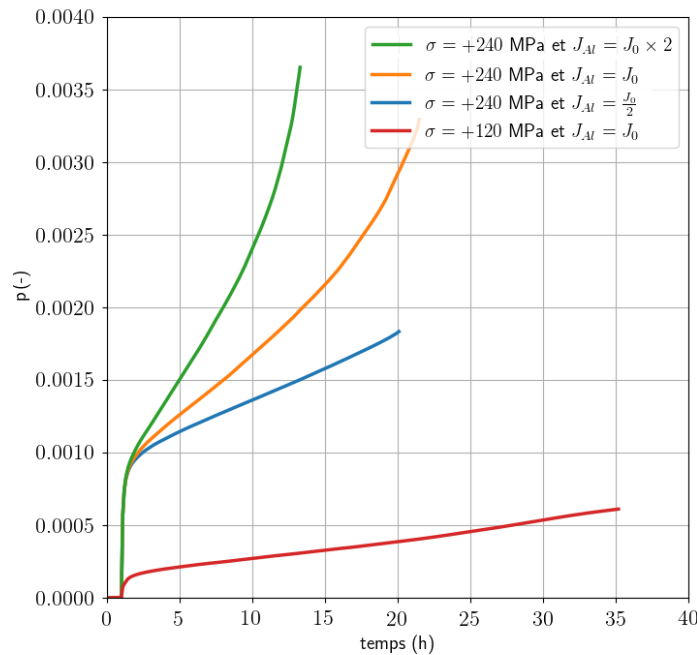


Figure 4.39: Effet de la contrainte imposée et du flux sortant d'Al sur la déformation viscoplastique cumulée  $p$  avec  $J_0 = 5.10^{-6} mm^{-2} .h^{-1}$ .

#### a Influence du flux sortant d'Al

Afin d'étudier l'influence de flux sortant d'Al, qui représente l'effet de l'oxydation de la surface sur l'évolution de la microstructure ( $\gamma/\gamma'$ ), trois simulations de fluage en traction sont réalisées avec une contrainte  $\sigma_{fluage} = +240$  MPa pour trois valeurs de flux d'Al  $J_{Al} = \frac{J_0}{2}$ ,  $J_{Al} = J_0$  et  $J_{Al} = J_0 \times 2$  avec  $J_0 = 5.10^{-6} mm^{-2} .h^{-1}$ . L'intensité de flux a une influence sur le temps initial de dissolution des précipités et sur l'épaisseur de la zone de déplétion (cf. figure 4.40). De même, plus l'intensité est importante, plus la cinétique de dissolution est rapide. L'arrangement spatial des différents variants de précipités  $\gamma'$  a un effet sur l'avancement de zone de déplétion. Quand deux précipités de même variant coalescent, ils se dissolvent moins rapidement que deux précipités de variants différents : c'est le cas de la première et quatrième rangée des précipités en partant de gauche (cf. figures 4.41.a et 4.41.b).

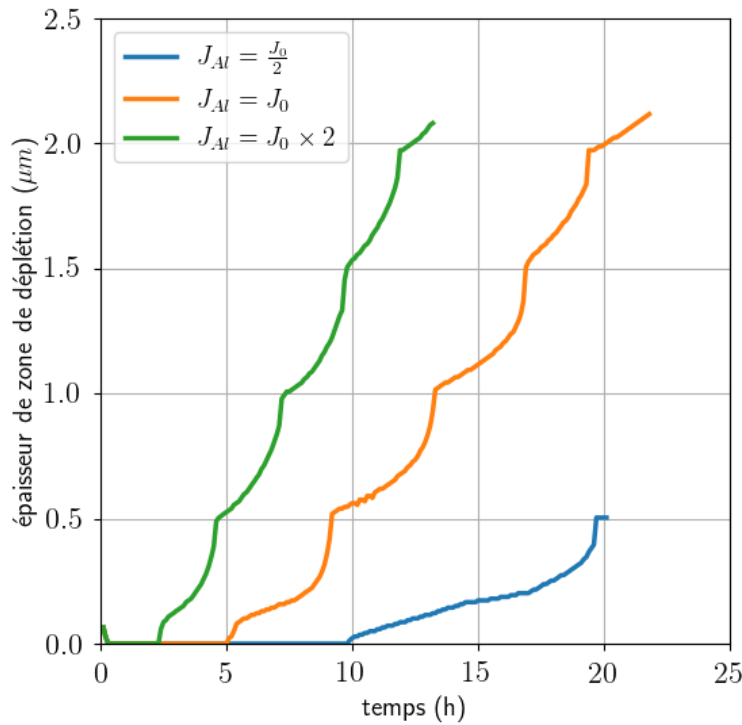


Figure 4.40: Effet de flux d'Al sortant sur la cinétique de dissolution des précipités  $\gamma'$  pour une contrainte imposée  $\sigma = +240\text{MPa}$  avec  $J_0 = 5.10^{-6}\text{mm}^{-2}.\text{h}^{-1}$ .

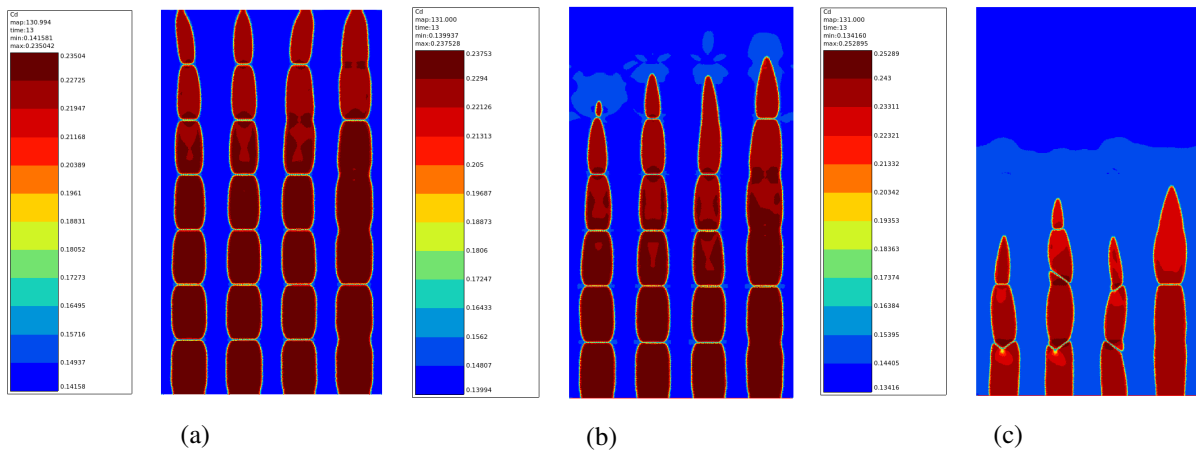


Figure 4.41: Effet de flux d'Al sortant sur la cinétique de dissolution des précipités  $\gamma'$  pour le même temps  $t = 13\text{h}$ . Champs de concentration d'Al pour une contrainte imposée  $\sigma = +240\text{MPa}$  et un flux sortant d'Al (a) :  $J_{Al} = \frac{J_0}{2}$ , (b) :  $J_{Al} = J_0$  et (c) :  $J_{Al} = J_0 \times 2$  avec  $J_0 = 5.10^{-6}\text{mm}^{-2}.\text{h}^{-1}$ .

## b Influence de la contrainte imposée

Afin d'étudier l'influence de la contrainte de fluage imposée en présence d'un flux sortant d'Al, trois simulations de fluage en traction avec une contrainte  $\sigma_{fluage} = \{0, +120, +240\}$  MPa avec un flux d'Al  $J_{Al} = J_0$  sont réalisées. En présence de flux sortant, la contrainte de fluage a une influence sur la forme de précipités. En effet, dans le cas sans chargement mécanique les précipités s'arrondissent sous l'effet du flux. En augmentant la contrainte de fluage, les précipités prennent une forme de radeaux et s'amincissent face à

la surface libre à cause du flux d'Al sortant (cf. figure 4.42).

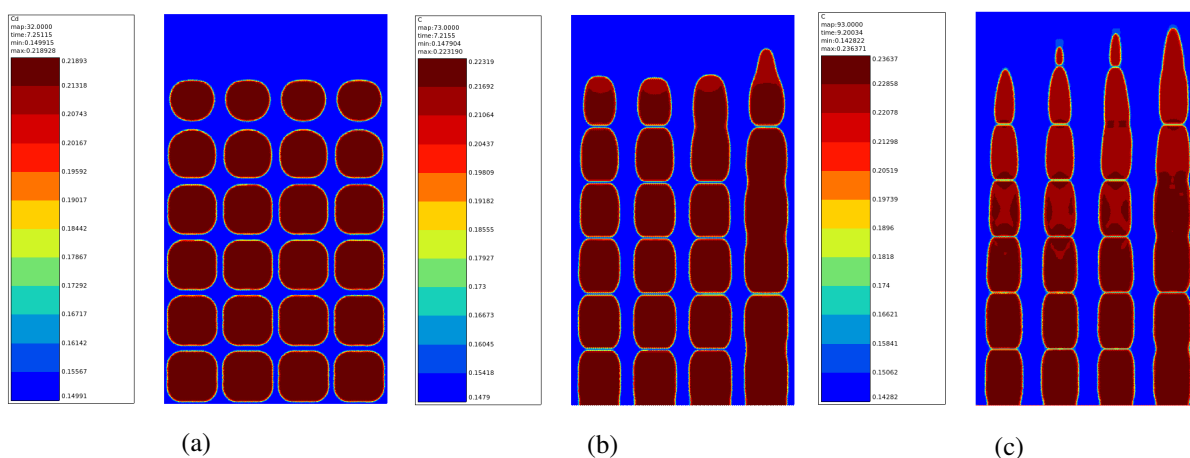


Figure 4.42: Effet de la contrainte imposée sur la cinétique de dissolution des précipités  $\gamma'$  pour une distance de zone de déplétion égale à  $0.5\mu\text{m}$  dans la première rangée des précipités. Champs de concentration d'Al pour un flux sortant d'Al  $J_{Al} = J_0 = 5.10^{-6}\text{mm}^{-2}.\text{h}^{-1}$  et une contrainte imposée  $\sigma$  (a) :  $\sigma = 0\text{MPa}$ , (b) :  $\sigma = +120\text{MPa}$  et (c) :  $\sigma = +240\text{MPa}$ .

Le signe de la contrainte influence la cinétique de dissolution des précipités. Dans le cas du fluage en compression  $\sigma_{fluage} = -240\text{MPa}$ , la dissolution est accélérée par rapport aux cas de fluage en traction  $\sigma_{fluage} = +240\text{MPa}$ . Cet effet reste moins important que l'effet de l'intensité du flux d'Al sortant (cf. figures 4.43 et 4.40).

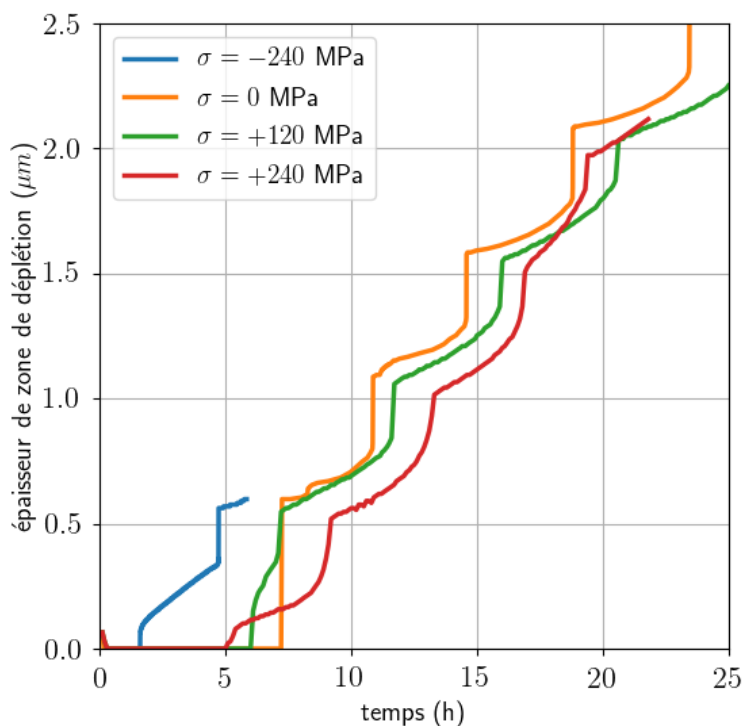


Figure 4.43: Effet de la contrainte imposée sur la cinétique de dissolution des précipités  $\gamma'$  pour un flux sortant d'Al  $J_{Al} = J_0 = 5.10^{-6}\text{mm}^{-2}.\text{h}^{-1}$

### c Évolution de la concentration et de la déformation viscoplastique cumulée

Dans ce paragraphe, l'influence locale du flux et de la contrainte sera étudié dans le cas de la simulation d'un essai de fluage avec une contrainte  $\sigma_{fluage} = +240$  MPa et un flux sortant  $J_{Al} = J_0 \times 2$  où  $J_0 = 5.10^{-6} mm^{-2}.h^{-1}$ . La plasticité pilote le flux d'Al local dans la direction horizontale en plus de l'effet du flux imposé du côté surface libre. Cette plasticité crée un court-circuit de diffusion. Un gradient de concentration est observé dans la zone de déplétion et à l'intérieur des précipités (cf. figure 4.44). Une corrélation est observée entre la concentration et la déformation viscoplastique cumulée  $p$  : les minima locaux de concentration correspondent aux maxima locaux de la déformation viscoplastique cumulée  $p$  (cf. figure 4.45).

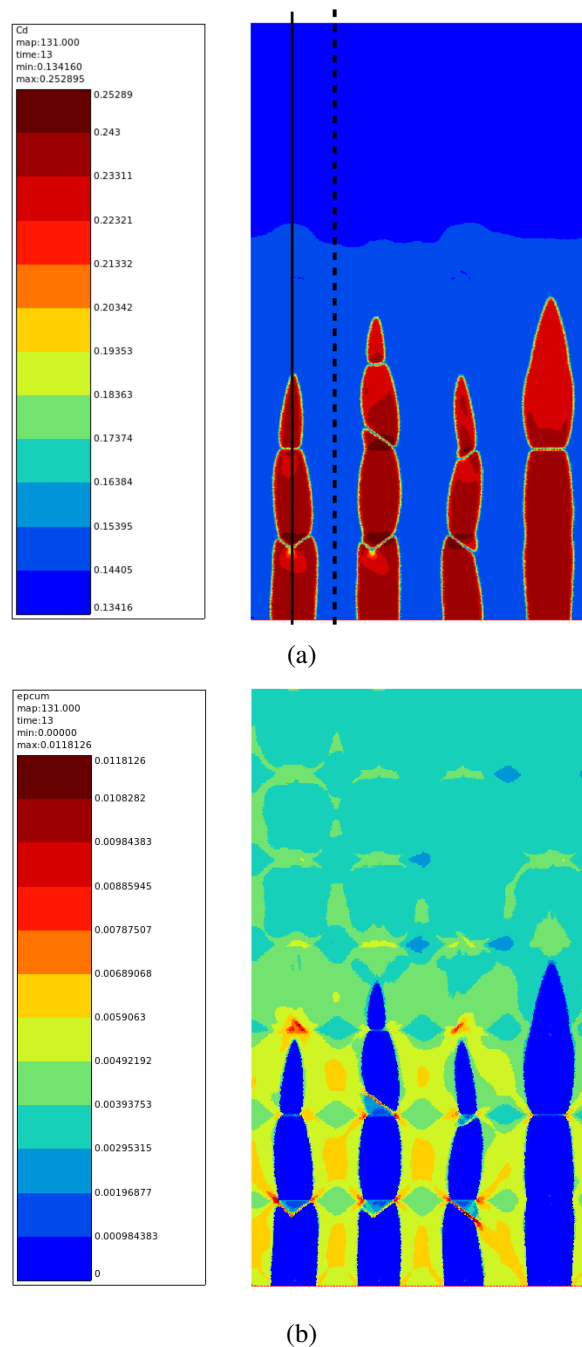


Figure 4.44: (a) Champs de concentration d'Al et (b) Champs de déformation cumulée pour une contrainte imposée  $\sigma = +240$ MPa et un flux sortant d'Al (b) :  $J_{Al} = J_0 \times 2$  avec  $J_0 = 5.10^{-6} mm^{-2}.h^{-1}$ .

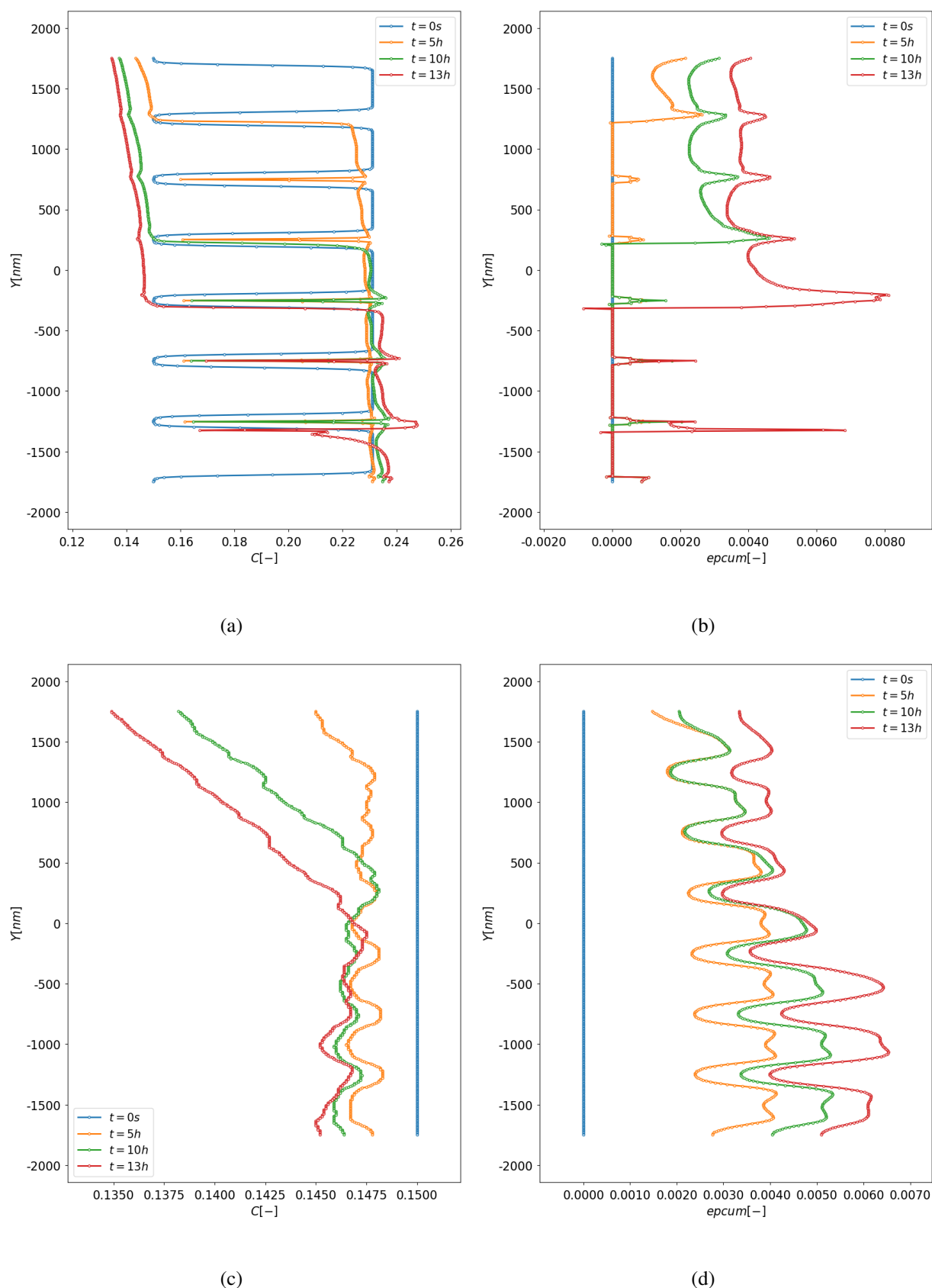


Figure 4.45: (a) Profils de concentration d'Al et de la déformation viscoplastique cumulée (b) suivant la première rangée de précipités de côté gauche (cf. ligne continue sur la figure 4.44-a). (c) profils de concentration d'Al et (d) la déformation viscoplastique suivant le couloir de  $\gamma$  entre la première et la deuxième rangée de précipités du côté gauche (cf. ligne interrompue sur la figure 4.44-a). Un flux d'Al  $J_{Al} = J_0 \times 2$  avec  $J_0 = 5.10^{-6} \text{mm}^{-2} \cdot \text{h}^{-1}$  et une contrainte de fluage  $\sigma_{fluage} = 240 \text{MPa}$  sont imposés.

## 4.6 Conclusions et perspectives

Dans ce chapitre, quelques éléments de l'influence de chargements thermomécaniques complexes ont été étudiées pour des effets en volume et en surface pour des superalliages monocristallins à base de Ni  $\gamma - \gamma'$ . En condition de fluage, le niveau de contrainte modifie le processus de diffusion [Bensch et al. \[2013\]](#); [Yu et al. \[2020a\]](#). En particulier, à faible contrainte l'effet de paroi mince est accentué dans la mesure où la zone de dissolution des précipités  $\gamma'$  est plus étendue pour des temps plus longs avant rupture. De plus, de nouvelles observations à partir d'essais de cyclage thermique de fatigue thermo-mécanique réalisés par Pierre Sallot dans sa thèse [Sallot \[2012\]](#), permettent de clarifier certains mécanismes de couplage en observant la mise en radeaux et la dissolution des précipités  $\gamma'$  pour ces conditions. Dans la zone proche du revêtement, pour un flux "entrant" d'Al, on observe à la fois une perturbation de l'orientation des radeaux, qui sont de plus en plus allongés au fur et à mesure qu'on s'éloigne de la zone d'interdiffusion (cf. figure 4.46-a). Ces radeaux sont significativement plus allongés dans la zone proche de revêtement que dans la zone à cœur de l'échantillon où on peut supposer que les flux de diffusion ne sont plus pilotés par le revêtement (cf. figure 4.46-b).

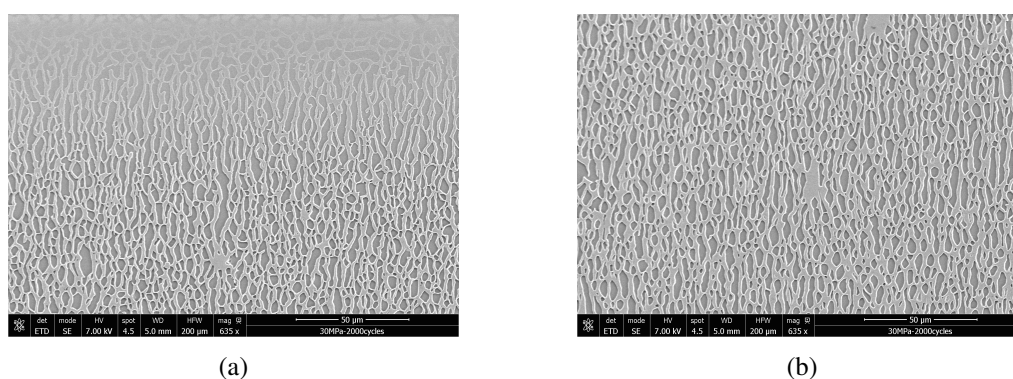


Figure 4.46: Observation MEB d'un essai de fatigue thermo-mécanique en-phase (IP) avec un maintien en traction : contrainte moyenne  $\sigma_{moy} = 30MPa$  avec un nombre de cycle  $N = 2000$  et  $T = 100/1100^{\circ}C$  : (a) zone proche du revêtement et (b) zone au milieu de l'éprouvette

Enfin, on a montré que dans la zone non revêtue, où se développe une couche d'oxyde de croissance, la déplétion en  $\gamma'$  est également fonction des conditions de sollicitation mécanique. L'orientation des radeaux semble en outre pilotée par l'état de contraintes résiduelles induites par l'usinage. On peut déduire de ces observations plusieurs éléments, pour un superalliage base Ni monocristallin à misfit négatif (cf. figure 4.47.b) :

- La mise en radeaux est classiquement fonction de l'orientation du signe des contraintes appliquées à haute température, c'est-à-dire que même en régime anisotherme, les contraintes de traction à haute température favorisent des radeaux de type N, et des contraintes de compression à haute température favorisent des radeaux de type P;
- Un flux "entrant" d'Al, qui correspond notamment au cas des revêtements de diffusion riches en Al, conduit à une mise en radeau de type P à proximité du revêtement. On ne peut toutefois exclure l'influence encore une fois de contraintes résiduelles liées à la préparation de surface préalable au dépôt;
- Un flux "sortant" d'Al, qui correspond notamment au cas d'une surface nue exposée à l'oxydation, conduit à une dissolution des précipités  $\gamma'$  voire à une réorientation des radeaux de type P vers des radeaux de type N sous contrainte de compression.



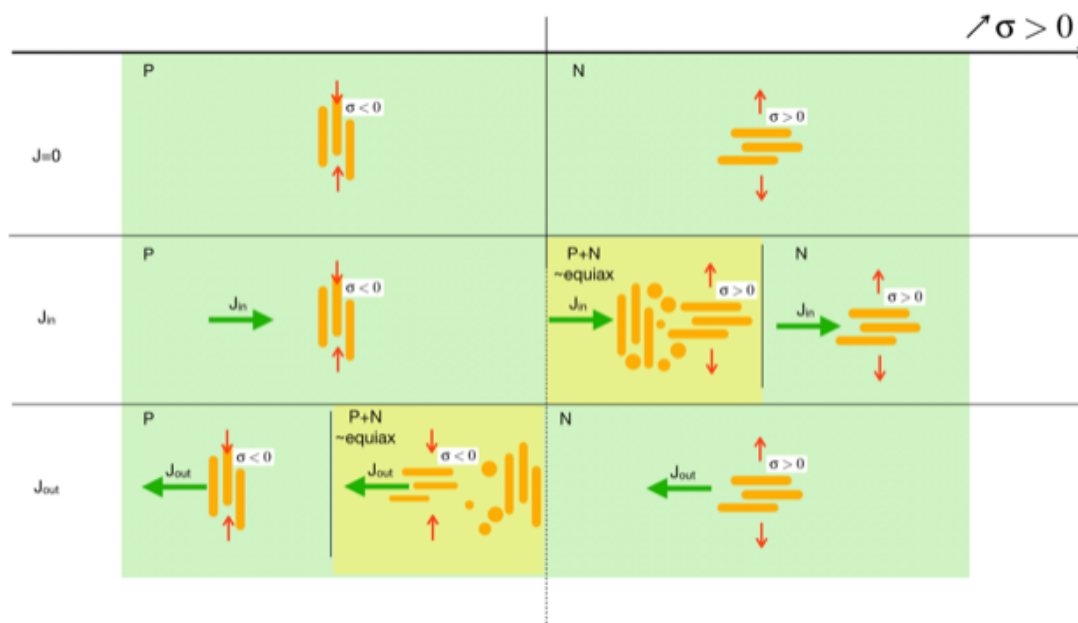


Figure 4.47: Diagramme d'orientation des radeaux en fonction du couplage flux-contraainte

L'analyse numérique qu'on a proposée à partir d'un modèle champs de phase couplant diffusion et mécanique et implémentée par éléments finis permet de poursuivre cette discussion.

L'analyse en conditions périodiques de l'évolution de microstructure pour des chargements complexes, qui simule l'effet de « volume » permet de déduire quelques points importants. En fatigue fluage isotherme, le modèle proposé rend compte des effets de contrainte moyenne et de temps de maintien de façon cohérente avec l'état de l'art expérimental. En fluage anisotherme, on retrouve également une cohérence certaine avec les rares résultats de la littérature. En effet, un temps de maintien court à haute température accélère notablement la vitesse de fluage. Ces résultats sont encourageants dans la mesure où même si l'identification des paramètres du modèle pourrait être améliorée, le modèle rend compte des interactions attendues en fatigue thermo-mécanique. Une comparaison plus poussée avec des résultats de la littérature ou des essais mettant en œuvre ces couplages permettrait d'affiner le choix des paramètres du modèle couplé.

Pour le cas d'effet de flux entrant/sortant, on a dû procéder à quelques simplifications. En effet, les analyses expérimentales correspondent à des cas anisothermes qui n'ont pas été pris en compte durant les simulations. Or, le cyclage thermique même en absence de fluage rajoute de la plasticité à basse température notamment dans le revêtement. Par souci de simplification, on a simulé uniquement le fluage pour différents niveaux de flux d'aluminium Al. La simulation permet de mettre en évidence les effets observés expérimentalement grâce à la modélisation du flux d'Al. On peut en conclure, que même si l'aspect anisotherme ne peut être négligé, la directionnalité des radeaux est principalement pilotée par le couplage mécanique – diffusion pour un état mécanique à haute température, et ce malgré d'éventuelles relaxation de contrainte.

## Conclusion générale

---

La diffusion des espèces chimiques dans un matériau peut être influencée par le chargement mécanique qu'il a subi. Les études de référence ont regardé l'effet de la pression hydrostatique de l'ordre de plusieurs GPa et ont établi un couplage avec la contrainte. Cependant, peu d'études se sont intéressées à l'effet des chargements moins importants proches des composants en services. Des essais de fluage à haute température précédés ou non d'un écrouissage à basse température ainsi qu'un essai d'écrouissage à basse température seul suivi d'un essai de diffusion à haute température ont été testés et comparés avec un essai de diffusion seul considéré comme un essai de référence. Pour apporter des éléments de réponse à ces cas de faible contrainte, nous avons utilisé des couples de diffusion simplifiés monophasé Ni – Cr et biphasé Ni – Cr – Al. Un faible effet sur la cinétique de diffusion est constaté sur l'essai de fluage à haute température. Cet effet est plus prononcé quand en plus de l'essai de fluage à haute température, un écrouissage à basse température est appliqué. Ceci peut être expliqué par la création de nouvelles dislocations, grâce à l'écrouissage à basse température, qui contribuent visiblement à la diffusion à haute température malgré une probable restauration.

La plupart des modèles traitants le couplage diffusion – mécanique se limitent à l'élasticité dans la littérature. Une extension de la théorie de la diffusion couplée à la mécanique en prenant en compte l'élasto-viscoplasticité est proposée. Ce modèle est implémenté en utilisant la méthode des éléments finis et deux types d'implémentation numérique sont considérés : à savoir une formulation en utilisant un couplage direct au point de Gauss ou une formulation à l'aide d'un élément mixte. Ces deux implémentations sont validées avec des exemples dont on connaît les solutions analytiques. Ce choix de modélisation a permis de prendre en compte ce couplage et de reproduire les résultats expérimentaux tout en simplifiant les équations de couplage et en éliminant les termes dont l'effet est négligeable.

Dans un matériau comme le superalliage monocristallin à base de Nickel biphasé  $\gamma$ - $\gamma'$ , la diffusion des espèces chimiques est influencée en plus du chargement mécanique par la transformation des phases. Un modèle issu de la littérature a été implémenté à l'aide de la méthode des éléments finis pour étudier le couplage diffusion – mécanique (viscoplasticité) en tenant compte de la transformation de phase et en utilisant la méthode des champs de phase. Grâce à des analyses de sensibilité, les paramètres du modèle influant sur la mise en radeaux comme le signe et la valeur de la contrainte et l'inhomogénéité élastique ont été étudiées. Les mises en radeaux de type P et N sont simulées à l'aide de ce modèle pour des cas de chargements simples (fluage en traction, en compression et en cisaillement) en déformations planes généralisées et en 3D. L'effet de la viscoplasticité sur la morphologie des précipités et la cinétique de la mise en radeaux sont étudiés. Ces simulations permettent de valider ce modèle qui prend en compte le couplage diffusion – mécanique – transformation des phases.

Des observations originales de la mise en radeaux ont été effectuées sur des éprouvettes constituées d'un substrat en superalliage base Ni monocristallin et revêtues par (Ni,Pt)Al. Ces éprouvettes avaient été testées par Pierre Sallot avec des chargements thermo-mécaniques complexes. Dans la zone proche du revêtement, nous avons observé une perturbation de l'orientation des radeaux et des radeaux de plus en plus allongés au fur et à mesure que l'on s'éloigne de la zone d'interdiffusion. On observe la déplétion des précipités  $\gamma'$  dans la zone de substrat proche de la zone non revêtue où se forme une couche d'oxyde. Une analyse numérique est réalisée à l'aide du modèle développé dans le chapitre 3 couplant la diffusion, la mécanique et la transformation des phases.

Des analyses en conditions périodiques, pour simuler l'effet de «volume», avec des chargements complexes comme la fatigue fluage isotherme et le fluage anisotherme ont permis de rendre compte des effets de contrainte moyenne et de temps de maintien. L'effet de l'oxydation sur l'évolution des microstructures est modélisé en considérant un flux d'Al sortant du substrat vers le côté non revêtu où la couche d'oxyde se

forme.

La comparaison de la morphologie des précipités  $\gamma'$  simulés en tenant compte de l'effet de l'oxydation montre une cohérence avec les résultats de la littérature et les observations réalisées. Les précipités commencent à se dissoudre près du côté où le flux est appliqué en gardant une forme circulaire comme dans les résultats de la littérature. Cependant, les précipités prennent la forme de radeaux et se dissolvent d'une façon progressive à partir de la partie proche du côté où le flux est appliqué quand un chargement de fluage est appliqué en plus du flux sortant d'Al.

## Originalité de ma contribution

### Scientifique

Ce travail a permis de réaliser des essais de diffusion sur des couples des diffusion bimatériaux simplifiés afin de mettre en évidence le couplage diffusion – mécanique et son effet sur la cinétique de diffusion. De plus, des observations d'évolution de microstructures de superalliage monocristallin à base de Ni ont été réalisées suite à des chargements complexes de fatigue fluage anisotherme avec des contraintes moyennes positives et négatives. Ces observations ont permis de mettre en évidence le couplage diffusion – mécanique – transformation de phases et d'étudier les effets de chargements complexes et de temps de maintien. Les observations d'évolutions de microstructure du côté non revêtu montrent la présence d'une zone de déplétion où une dissolution des précipités  $\gamma'$  a eu lieu. Cela est causé par l'oxydation du côté non revêtu. Des simulations des évolutions de microstructures sous chargements complexes de fatigue fluage isotherme et fluage anisotherme ont été réalisées. Les comparaisons avec les résultats de littérature et les observations montrent une cohérence des morphologies des précipités  $\gamma'$ . L'effet de l'oxydation qui est étudié numériquement, est pris en compte dans les simulations en appliquant un flux de diffusion d'Al du substrat vers le côté non revêtu pour former la couche d'oxyde. Une cohérence est trouvée entre les observations et les résultats des simulations.

### Numérique

Pour la partie numérique, des nouveaux codes ont été développés au cours de la thèse. En effet, l'interfaçage avec la base de données thermodynamiques de "ThermoCalc" est validé en comparant des simulations de diffusion multi-composants aux résultats obtenu avec le module de diffusion multi-composants unidimensionnel de ThermoCalc "Dictra". De plus, deux formulations originales du couplage diffusion – mécanique et diffusion – mécanique – transformation de phases ont été développées à l'aide de la méthode des champs des phases. Grâce à ces formulations, deux nouveaux modèles traitants ces couplages forts sont implémentés avec la méthode des éléments finis dans le code «Z-set». En effet, toutes les équations de couplage sont résolues à chaque pas de temps. Les codes développés sont rendus disponibles dans Z-set avec la base de tests correspondante.

## Perspectives à court terme

Au niveau expérimental, les éprouvettes analysées ont subi un essai de fatigue-fluage anisotherme avec des contraintes moyennes positives et négatives. Ces essais sont trop complexes, d'autres essais plus simples sont à faire pour déterminer l'effet de chaque partie de l'essai comme les essais suivants : fatigue isotherme, cyclage anisotherme, fluage anisotherme et fatigue anisotherme.

Parmi les perspectives numériques à court terme, on peut prévoir l'utilisation de la plasticité cristalline qui permet de mieux modéliser le comportement des superalliage monocristallin à base de Ni et de réaliser des chargements mécaniques dans différentes orientations cristallographiques. De plus, pour modéliser des microstructures plus fidèles aux observations expérimentales, il faut modéliser les différents éléments chimiques présents expérimentalement dans le superalliage en utilisant une base des données thermody-

namiques. Cela est possible en utilisant la méthode des champs des phases multiples «multi-phase field method (MPFM)».

De même, il faut utiliser des méthodes numériques comme des méthodes de réduction de modèle pour réduire le temps de calcul afin de réaliser des simulations en 3D d'évolutions de microstructure, ainsi que des méthodes permettant de modéliser une microstructure plus grande et plus représentative du superalliage comme le maillage adaptatif. Au même temps, il faut aussi modéliser une échelle plus faible par d'autres méthodes numériques pour bien identifier certains paramètres comme l'énergie d'interface.

Des études de la croissance de l'oxyde sur le zirconium montrent que l'écaillage d'oxyde est dû au couplage diffusion – mécanique. Le modèle développé peut être utilisé pour étudier ce couplage dans le but de prolonger la durée de vie des grains de combustibles dans les réacteurs nucléaires.

## Perspectives à long terme

Les codes développés peuvent être considérés comme une première pierre dans le développement des modèles numériques utilisables dans diverses applications telles que :

- **Procédés thermomécaniques**

Simulation d'évolution des microstructures suite à des procédés thermomécaniques où les couplages jouent un rôle important dans l'obtention des propriétés recherchées.

- **Aubes de turbine**

Prendre en compte l'évolution des microstructures dans la simulation des chargements thermomécaniques de service subis par l'aube de turbine

- **Batteries : Li-ion**

L'industrie automobile s'oriente de plus en plus vers une motorisation électrique et cela nécessite une amélioration des performances des batteries dans lesquelles des couplages chimiques – mécaniques – transformations de phases ont lieu. Les méthodes proposées dans cette thèse sont particulièrement adaptées à ce type d'application. Il est nécessaire de prendre en compte les grandes déformations car les changements de phases sont accompagnés de fortes déformations de transformation. En comprenant et en modélisant ces couplages, une meilleure conception de ces batteries pourra être réalisée.



# Chapter **V**

## Annexes

---



## Appendix **A**

### Calcul de matrice tangente pour l'élément mixte

---

La matrice tangente s'écrit sous la forme :

$$[K] = \begin{bmatrix} [K_{uu}] & [K_{ug}] & [K_{uh}] & [K_{uc}] \\ [K_{gu}] & [K_{gg}] & [K_{gh}] & [K_{gc}] \\ [K_{hu}] & [K_{hg}] & [K_{hh}] & [K_{hc}] \\ [K_{cu}] & [K_{cg}] & [K_{ch}] & [K_{cc}] \end{bmatrix}$$

où les composantes de cette matrice sont données par les expressions ci-dessous :

$$K_{uu} = \frac{\partial R_u}{\partial u^e} = \int_{\Omega} B_{dev}^T D B_{dev} d\Omega \quad (1.1)$$

$$K_{uh} = \frac{\partial R_u}{\partial p^e} = \int_{\Omega} B_{dil}^T N^p d\Omega \quad (1.2)$$

$$K_{ug} = \frac{\partial R_u}{\partial g^e} = \int_{\Omega} tr(B_{dil}^T D) N^g d\Omega \quad (1.3)$$

$$K_{uc} = 0 \quad (1.4)$$

$$K_{gu} = K_{ug} \quad (1.5)$$

$$K_{gh} = \frac{\partial R_g}{\partial h^e} = - \int_{\Omega} (N^g)^T N^h d\Omega \quad (1.6)$$

$$K_{gg} = \frac{\partial R_g}{\partial g^e} = \frac{1}{9} \int_{\Omega} (N^g)^T tr(D) N^g d\Omega \quad (1.7)$$

$$K_{gc} = 0 \quad (1.8)$$

$$K_{hu} = K_{uh} \quad (1.9)$$

$$K_{hh} = 0 \quad (1.10)$$

$$K_{hg} = K_{gh} \quad (1.11)$$

$$K_{hc} = 0 \quad (1.12)$$



$$K_{cu} = 0 \quad (1.13)$$

$$K_{ch} = \frac{\partial R_c}{\partial h^e} = \int_{\Omega} -G_c^T \left( \frac{3\eta D}{A} \underset{\sim}{1} \right) G_h d\Omega \quad (1.14)$$

$$K_{cg} = 0 \quad (1.15)$$

$$K_{cc} = \frac{\partial R_c}{\partial c^e} = \int_{\Omega} \left( \frac{1}{\Delta t} (N^c)^T N^c - G_c^T (M_1) N^c + G_c^T (M_2 \underset{\sim}{1}) G_c \right) d\Omega \quad (1.16)$$

$$\text{où } M_1 = -\frac{D}{A} \left( \underset{\sim}{\varepsilon}^e : \frac{\partial^2 \underset{\sim}{C}(c)}{\partial c^2} \right) : \nabla \underset{\sim}{\varepsilon}^e - \frac{D}{A} \left( \frac{\partial^2 b(c)}{\partial c^2} Q(c) + 2 \frac{\partial b(c)}{\partial c} \frac{\partial Q(c)}{\partial c} + b(c) \frac{\partial^2 Q(c)}{\partial c^2} \right) p \nabla p$$

$$M_2 = D + \frac{D}{A} \left( \frac{1}{2} \underset{\sim}{\varepsilon}^e : \frac{\partial^2 \underset{\sim}{C}(c)}{\partial c^2} : \underset{\sim}{\varepsilon}^e + \frac{1}{2} \left( \frac{\partial^2 b(c)}{\partial c^2} Q(c) + 2 \frac{\partial b(c)}{\partial c} \frac{\partial Q(c)}{\partial c} + b(c) \frac{\partial^2 Q(c)}{\partial c^2} \right) p^2 \right)$$

## Appendix **B**

### Calcul de la matrice tangente

---

La matrice de rigidité généralisée de l'élément est divisée en 25 sous-matrices.

$$[K_t^e] = \left[ \frac{\partial \mathcal{R}^e}{\partial \delta^e} \right] = \begin{bmatrix} [K_{\phi_1 \phi_1}^e] & [K_{\phi_1 \phi_2}^e] & [K_{\phi_1 \phi_3}^e] & [K_{\phi_1 u}^e] & [K_{\phi_1 c}^e] \\ [K_{\phi_2 \phi_1}^e] & [K_{\phi_2 \phi_2}^e] & [K_{\phi_2 \phi_3}^e] & [K_{\phi_2 u}^e] & [K_{\phi_2 c}^e] \\ [K_{\phi_3 \phi_1}^e] & [K_{\phi_3 \phi_2}^e] & [K_{\phi_3 \phi_3}^e] & [K_{\phi_3 u}^e] & [K_{\phi_3 c}^e] \\ [K_{u \phi_1}^e] & [K_{u \phi_2}^e] & [K_{u \phi_3}^e] & [K_{uu}^e] & [K_{uc}^e] \\ [K_{c \phi_1}^e] & [K_{c \phi_2}^e] & [K_{c \phi_3}^e] & [K_{cu}^e] & [K_{cc}^e] \end{bmatrix} \quad (2.1)$$

$$\text{with } \{\delta^e\} = \begin{Bmatrix} \{\phi_1^e\} \\ \{\phi_2^e\} \\ \{\phi_3^e\} \\ \{u^e\} \\ \{c^e\} \end{Bmatrix}$$

La définition des différentes composantes des sous-matrices est donnée ci-dessous :

$$\text{si } m = n \quad [K_{\phi_m \phi_m}] = \left[ \frac{\partial \left\{ \mathcal{R}_{\phi_m}^e \right\}}{\partial \left\{ \phi_m^e \right\}} \right] = \int_V \left( \{N\} \otimes \{N\} \frac{\partial \pi_m}{\partial \phi_m} - [B] \left[ \frac{\partial \xi_m}{\partial \phi_n} \right] [B] \right) dv \quad m = \{1, 2, 3\} \quad (2.2)$$

$$\text{si } m \neq n \quad [K_{\phi_m \phi_n}] = \left[ \frac{\partial \left\{ \mathcal{R}_{\phi_m}^e \right\}}{\partial \left\{ \phi_n^e \right\}} \right] = \int_V \left( \{N\} \otimes \{N\} \frac{\partial \pi_m}{\partial \phi_n} \right) dv \quad (m, n) = \{1, 2, 3\} \quad (2.3)$$

$$[K_{\phi_m u}] = \left[ \frac{\partial \left\{ \mathcal{R}_{\phi_m}^e \right\}}{\partial \left\{ u^e \right\}} \right] = \int_V \left( \{N\} [B] \left\{ \frac{\partial \pi_m}{\partial \{\varepsilon\}} \right\} \right) dv \quad (2.4)$$

$$[K_{\phi_m c}] = \left[ \frac{\partial \left\{ \mathcal{R}_{\phi_m}^e \right\}}{\partial \left\{ c^e \right\}} \right] = \int_V \left( \{N\} \otimes \{N\} \frac{\partial \pi_m}{\partial c} \right) dv \quad (2.5)$$

avec

$$\left\{ \begin{array}{l} \pi_m = -\left(\frac{1}{L}\right) \dot{\phi}_m - \frac{\partial f}{\partial \phi_m}, \quad \dot{\phi}_m = \frac{1}{\Delta t} (\{\phi_{mf}^e\} - \{\phi_{mi}^e\}) \\ \frac{\partial \pi_m}{\partial \phi_m} = -\left(\frac{1}{L}\right) \frac{1}{\Delta t} - \frac{\partial^2 f}{\partial \phi_m^2} \\ \frac{\partial \pi_m}{\partial \phi_j} = -\frac{\partial^2 f}{\partial \phi_j \partial \phi_m} \\ \frac{\partial \pi_m}{\partial \tilde{\varepsilon}} = -\frac{\partial^2 f}{\partial \tilde{\varepsilon} \partial \phi_m} \\ \frac{\partial \pi_m}{\partial c} = -\frac{\partial^2 f}{\partial c \partial \phi_m} \end{array} \right.$$

$$\left\{ \begin{array}{l} \xi_m = \beta \nabla \phi_m \\ \left[ \frac{\partial \xi_m}{\partial \phi_n} \right] = \beta \mathbf{1} \end{array} \right.$$

$$[K_{u\phi_m}] = \left[ \frac{\partial \{\mathcal{R}_u^e\}}{\partial \{\phi_m^e\}} \right] = \int_V -[B] \left( \{N\} \otimes \left\{ \frac{\partial \tilde{\sigma}}{\partial \phi_m} \right\} \right) dv \quad (2.6)$$

$$[K_{uu}] = \left[ \frac{\partial \{\mathcal{R}_u^e\}}{\partial \{u^e\}} \right] = \int_V -[B] \left[ \frac{\partial \tilde{\sigma}}{\partial \tilde{\varepsilon}} \right] [B] dv \quad (2.7)$$

$$[K_{uc}] = \left[ \frac{\partial \{\mathcal{R}_u^e\}}{\partial \{c^e\}} \right] = \int_V -[B] \left( \{N\} \otimes \left\{ \frac{\partial \tilde{\sigma}}{\partial c} \right\} \right) dv \quad (2.8)$$

avec

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial \tilde{\sigma}}{\partial \phi_m} = \frac{\partial^2 f}{\partial \phi_m \tilde{\varepsilon}} \\ \frac{\partial \tilde{\sigma}}{\partial \tilde{\varepsilon}} = \frac{\partial^2 f}{\partial \tilde{\varepsilon}^2} \\ \frac{\partial \tilde{\sigma}}{\partial c} = \frac{\partial^2 f}{\partial c \tilde{\varepsilon}} \end{array} \right.$$

$$[K_{c\phi_m}] = \left[ \frac{\partial \{\mathcal{R}_u^e\}}{\partial \{\phi_m^e\}} \right] = \int_V -[B] \left( \{N\} \otimes \left\{ \frac{\partial J}{\partial \phi_m} \right\} \right) dv \quad (2.9)$$

$$[K_{cu}] = \left[ \frac{\partial \{\mathcal{R}_u^e\}_m}{\partial \{u^e\}} \right] = \int_V -[B] \left[ \frac{\partial J}{\partial \tilde{\varepsilon}} \right] [B] dv \quad (2.10)$$

$$[K_{cc}] = \left[ \frac{\partial \{\mathcal{R}_u^e\}}{\partial \{c^e\}} \right] = \int_V \left( N \otimes N \frac{\partial \tilde{\sigma}}{\partial c} - [B] \left( \{N\} \otimes \left\{ \frac{\partial J}{\partial c} \right\} \right) - [B] \left[ \frac{\partial J}{\partial \nabla c} \right] [B] \right) dv \quad (2.11)$$

avec

---


$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial \dot{c}}{\partial c} = \frac{1}{\Delta t} \\ J = -M \nabla \mu \\ \frac{\partial J}{\partial \phi_m} = -M \frac{\partial \nabla \mu}{\partial \phi_m} \\ \frac{\partial J}{\partial \varepsilon} = -M \frac{\partial \nabla \mu}{\partial \varepsilon} \end{array} \right. \quad \left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial J}{\partial c} = -M \frac{\partial \nabla \mu}{\partial c} \\ \frac{\partial J}{\partial \nabla c} = -M \frac{\partial \nabla \mu}{\partial \nabla c} \end{array} \right.$$



# Appendix **C**

## Dérivation de l'énergie libre

---

L'énergie libre s'écrit sous cette forme :

$$F(c, \phi_m, \phi_m, \underline{\varepsilon}^e, \underline{\alpha}, p) = \int_V f(c, \phi_m, \phi_m, \underline{\varepsilon}^e, \underline{\alpha}, p) dv \quad (3.1)$$

$$= \int_V \left[ f_{chem}(c, \phi_m) + f_{mech}(c, \phi_m, \underline{\varepsilon}^e, \underline{\alpha}, p) + \frac{\beta}{2} \sum_{i=1}^3 |\phi_m|^2 \right] dv \quad (3.2)$$

avec la partie chimique  $F_{chem}$  est donnée par :

$$\begin{aligned} F_{chem}(c, \phi_m) &= \int_V f_{chem}(c, \phi_m) dV \\ &= \int_V \Delta f \left[ \frac{1}{2} (c - c_\gamma)^2 + \frac{B}{6} (c_2 - c) \sum_{i=1}^3 \phi_m^2 - \frac{C}{3} \phi_1 \phi_2 \phi_3 + \frac{D}{12} \sum_{i=1}^3 \phi_m^4 \right] dv \end{aligned} \quad (3.3)$$

et la partie mécanique  $F_{mech}$  est donnée par la relation suivante :

$$F_{mech}(c, \phi_m, \underline{\varepsilon}^e, \underline{\alpha}, p) = F_{el}(c, \underline{\varepsilon}^e) + F_{vp}(\phi_m, \underline{\alpha}, p) \quad (3.4)$$

avec

$$F_{el}(c, \underline{\varepsilon}^e) = \frac{1}{2} \int_V \underline{\varepsilon}^e : \underline{C}(c) : \underline{\varepsilon}^e dV \quad (3.5)$$

et

$$F_{vp}(\underline{\alpha}, p)^{(k)} = \int_V \left[ \frac{1}{3} \underline{C}^{(k)} \underline{\alpha} : \underline{\alpha} + \frac{1}{2} H^{(k)} p^2 \right] dV \quad k = (\gamma, \gamma') \quad (3.6)$$

### 3.1 Par rapport à la concentration $c$ :

$$\frac{\partial f}{\partial c} = \frac{\partial f_{chem}}{\partial c} + \frac{\partial f_{el}}{\partial c} \quad (3.7)$$

$$\frac{\partial f_{chem}}{\partial c} = \Delta f \left( (c - c_\gamma) - \frac{B}{6} \sum_{i=1}^3 \phi_m^2 \right) \quad (3.8)$$

$$\frac{\partial f_{el}}{\partial c} = \left( -\frac{\partial \underline{\varepsilon}^*}{\partial c} : \underline{\lambda} : (\underline{\varepsilon} - \underline{\varepsilon}^p - \underline{\varepsilon}^*) \right) + \frac{1}{2} \left( (\underline{\varepsilon} - \underline{\varepsilon}^p - \underline{\varepsilon}^*) : \frac{\partial \underline{\lambda}}{\partial c} : (\underline{\varepsilon} - \underline{\varepsilon}^p - \underline{\varepsilon}^*) \right) \quad (3.9)$$

avec

$$\begin{cases} \frac{\partial \tilde{\varepsilon}^*}{\partial c} = \varepsilon^T \tilde{1} \\ \frac{\partial \tilde{\lambda}}{\partial c} = \frac{1}{c_\gamma - c_\gamma} (\tilde{\lambda}^{(\gamma)} - \tilde{\lambda}^{(\gamma)}) \end{cases}$$

$$\frac{\partial^2 f}{\partial c^2} = \frac{\partial^2 f_{chem}}{\partial c^2} + \frac{\partial^2 f_{el}}{\partial c^2} \quad (3.10)$$

$$\frac{\partial^2 f_{chem}}{\partial c^2} = \Delta f \quad (3.11)$$

$$\frac{\partial^2 f_{el}}{\partial c^2} = \left( \frac{\partial \tilde{\varepsilon}^*}{\partial c} : \tilde{\lambda} : \frac{\partial \tilde{\varepsilon}^*}{\partial c} \right) + 2 \left( -\frac{\partial \tilde{\varepsilon}^*}{\partial c} : \frac{\partial \tilde{\lambda}}{\partial c} : (\tilde{\varepsilon} - \tilde{\varepsilon}^p - \tilde{\varepsilon}^*) \right) \quad (3.12)$$

avec

$$\begin{cases} \frac{\partial^2 \tilde{\varepsilon}^*}{\partial c^2} = \tilde{0} \\ \frac{\partial^2 \tilde{\lambda}}{\partial c^2} = \tilde{0} \end{cases}$$

$$\frac{\partial^3 f}{\partial c^3} = 3 \left( \frac{\partial \tilde{\varepsilon}^*}{\partial c} : \frac{\partial \tilde{\lambda}}{\partial c} : \frac{\partial \tilde{\varepsilon}^*}{\partial c} \right) \quad (3.13)$$

### 3.2 Par rapport au paramètre d'ordre $\phi_m$ :

$$\frac{\partial f}{\partial \phi_m} = \frac{\partial f_{chem}}{\partial \phi_m} + \frac{\partial f_{vp}}{\partial \phi_m} = \Delta f \left[ \frac{B}{3}(c_2 - c)\phi_m - \frac{C}{3} \prod_{\substack{k=1 \\ k \neq i}}^3 \phi_k + \frac{D}{3} \phi_m^3 \right] + \frac{\partial h(\phi_1, \phi_2, \phi_3)}{\partial \phi_m} [f_{vp}^\gamma - f_{vp}^\gamma] \quad (3.14)$$

$$\frac{\partial^2 f}{\partial \phi_m^2} = \frac{\partial^2 f_{chem}}{\partial \phi_m^2} + \frac{\partial^2 f_{vp}}{\partial \phi_m^2} = \Delta f \left[ \frac{B}{3}(c_2 - c) + D\phi_m^2 \right] + \frac{\partial h^2(\phi_1, \phi_2, \phi_3)}{\partial \phi_m^2} [f_{vp}^\gamma - f_{vp}^\gamma] \quad (3.15)$$

$$\frac{\partial^2 f}{\partial \phi_j \partial \phi_m} = \frac{\partial^2 f_{chem}}{\partial \phi_j \partial \phi_m} + \frac{\partial^2 f_{vp}}{\partial \phi_j \partial \phi_m} = \Delta f \left[ -\frac{C}{3} \phi_{k \neq i, j} \right] + \frac{\partial h^2(\phi_1, \phi_2, \phi_3)}{\partial \phi_j \partial \phi_m} [f_{vp}^\gamma - f_{vp}^\gamma] \quad (3.16)$$

$$\frac{\partial^2 f}{\partial c \partial \phi_m} = -\Delta f \frac{B}{3} \phi_m \quad (3.17)$$

$$\frac{\partial^2 f}{\partial \tilde{\varepsilon} \partial \phi_m} = 0 \quad (3.18)$$

$$h_{mech}(\phi_m) = \frac{1}{2} + \frac{1}{2} \tanh \left[ \theta \left( \frac{1}{3} \sum_{i=1}^3 \phi_m^2 - \frac{1}{2} \right) \right] \quad \text{où } \theta = 100$$

$$\frac{\partial h(\phi_1, \phi_2, \phi_3)}{\partial \phi_m} = \frac{\theta \phi_m}{3\phi_0^2} \left( 1 - \tanh^2 \left( \theta \left( \frac{1}{3\phi_0^2} \sum_{i=1}^3 \phi_m^2 - \frac{1}{2} \right) \right) \right) \quad (3.19)$$

$$\frac{\partial^2 h(\phi_1, \phi_2, \phi_3)}{\partial \phi_m^2} = \frac{\theta \phi_m}{3\phi_0^2} \left[ 1 - \tanh^2 \left( \theta \left( \frac{1}{3\phi_0^2} \sum_{i=1}^3 \phi_m^2 - \frac{1}{2} \right) \right) \right] \left[ 1 - 4\phi_m^2 \frac{\theta}{3\phi_0^2} \tanh \left( \theta \left( \frac{1}{3\phi_0^2} \sum_{i=1}^3 \phi_m^2 - \frac{1}{2} \right) \right) \right] \quad (3.20)$$

$$\frac{\partial^2 h(\phi_1, \phi_2, \phi_3)}{\partial \phi_m \partial \phi_j} = - \left( \frac{2\theta}{3\phi_0^2} \right)^2 \phi_j \phi_m \left( 1 - \tanh^2 \left( \theta \left( \frac{1}{3\phi_0^2} \sum_{i=1}^3 \phi_m^2 - \frac{1}{2} \right) \right) \right) \tanh \left( \theta \left( \frac{1}{3\phi_0^2} \sum_{i=1}^3 \phi_m^2 - \frac{1}{2} \right) \right) \quad (3.21)$$

$$\frac{\partial^2 f}{\partial \phi_m \partial c} = \frac{\partial^2 f_{chem}}{\partial \phi_m \partial c} + \frac{\partial^2 f_{el}}{\partial \phi_m \partial c} = -\Delta f \frac{B}{3} \phi_m \quad (3.22)$$

### 3.3 Par rapport à la déformation $\underline{\varepsilon}$ :

$$\frac{\partial f}{\partial \underline{\varepsilon}} = \underline{C} : (\underline{\varepsilon} - \underline{\varepsilon}^p - \underline{\varepsilon}^*) \quad (3.23)$$

$$\frac{\partial^2 f}{\partial \underline{\varepsilon}^2} = \underline{C} \quad (3.24)$$

$$\frac{\partial^2 f}{\partial \phi_m \partial \underline{\varepsilon}} = \underline{0} \quad (3.25)$$

$$\frac{\partial^2 f}{\partial c \partial \underline{\varepsilon}} = \left( -\frac{\partial \underline{\varepsilon}^*}{\partial c} : \underline{C} \right) + \left( (\underline{\varepsilon} - \underline{\varepsilon}^p - \underline{\varepsilon}^*) : \frac{\partial \underline{C}}{\partial c} \right) \quad (3.26)$$

$$\frac{\partial^2 f}{\partial \underline{\varepsilon} \partial c} = \frac{\partial^2 f_{chem}}{\partial \underline{\varepsilon} \partial c} + \frac{\partial^2 f_{el}}{\partial \underline{\varepsilon} \partial c} = \left( -\frac{\partial \underline{\varepsilon}^*}{\partial c} : \underline{C} \right) + \left( (\underline{\varepsilon} - \underline{\varepsilon}^{vp} - \underline{\varepsilon}^*) : \frac{\partial \underline{C}}{\partial c} \right) \quad (3.27)$$

$$\frac{\partial^2 f}{\partial \underline{\varepsilon}^{vp} \partial c} = \frac{\partial^2 f_{chem}}{\partial \underline{\varepsilon}^{vp} \partial c} + \frac{\partial^2 f_{el}}{\partial \underline{\varepsilon}^{vp} \partial c} = \left( \frac{\partial \underline{\varepsilon}^*}{\partial c} : \underline{C} \right) - \left( (\underline{\varepsilon} - \underline{\varepsilon}^{vp} - \underline{\varepsilon}^*) : \frac{\partial \underline{C}}{\partial c} \right) \quad (3.28)$$



### 3.4 Gradient du potentiel chimique :

$$\begin{aligned} \mu &= \frac{\partial f}{\partial c} = \frac{\partial f_{chem}}{\partial c} + \frac{\partial f_{el}}{\partial c} = \Delta f \left( (c - c_\gamma) - \frac{B}{6} \sum_{i=1}^3 \phi_m^2 \right) \\ &+ \left( -\frac{\partial \tilde{\varepsilon}^*}{\partial c} : \tilde{C} : (\tilde{\varepsilon} - \tilde{\varepsilon}^{vp} - \tilde{\varepsilon}^*) \right) + \frac{1}{2} \left( (\tilde{\varepsilon} - \tilde{\varepsilon}^{vp} - \tilde{\varepsilon}^*) : \frac{\partial \tilde{C}}{\partial c} : (\tilde{\varepsilon} - \tilde{\varepsilon}^{vp} - \tilde{\varepsilon}^*) \right) \end{aligned} \quad (3.29)$$

$$\mu = \frac{\partial^2 f}{\partial c^2} c + \sum_{i=1}^3 \frac{\partial^2 f}{\partial \phi_m \partial c} \phi_m + \frac{\partial f}{\partial \tilde{\varepsilon} \partial c} \tilde{\varepsilon} + \frac{\partial f}{\partial \tilde{\varepsilon}^{vp} \partial c} \tilde{\varepsilon}^{vp} \quad (3.30)$$

$$\mu = \left[ \frac{\partial^2 f_{chem}}{\partial c^2} + \frac{\partial^2 f_{el}}{\partial c^2} \right] c + \sum_{i=1}^3 \frac{\partial^2 f_{chem}}{\partial \phi_m \partial c} \phi_m + \left[ \frac{\partial^2 f_{el}}{\partial \tilde{\varepsilon} \partial c} \right] \tilde{\varepsilon} + \left[ \frac{\partial^2 f_{el}}{\partial \tilde{\varepsilon}^{vp} \partial c} \right] \tilde{\varepsilon}^{vp} \quad (3.31)$$

avec

$$\left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial \mu}{\partial \phi_m} = -\Delta f \frac{B}{3} \phi_m \\ \frac{\partial \mu}{\partial \phi_m} = \frac{\partial^2 f_{chem}}{\partial \phi_m \partial c} \\ \frac{\partial \mu}{\partial c} = \left( \frac{\partial^3 f_{chem}}{\partial c^3} + \frac{\partial^3 f_{el}}{\partial c^3} \right) c \\ \frac{\partial \mu}{\partial c} = \left( \frac{\partial^2 f_{chem}}{\partial c^2} + \frac{\partial^2 f_{el}}{\partial c^2} \right) \end{array} \right. \quad \left\{ \begin{array}{l} \frac{\partial \mu}{\partial \tilde{\varepsilon}} = \left( \frac{\partial^3 f_{el}}{\partial \tilde{\varepsilon}^2 \partial c} \right) \tilde{\varepsilon} \\ \frac{\partial \mu}{\partial \tilde{\varepsilon}} = \left( \frac{\partial^2 f_{el}}{\partial \tilde{\varepsilon} \partial c} \right) \\ \frac{\partial \mu}{\partial \tilde{\varepsilon}^{vp}} = \left( \frac{\partial^3 f_{el}}{\partial \tilde{\varepsilon}^{vp2} \partial c} \right) \tilde{\varepsilon}^{vp} \\ \frac{\partial \mu}{\partial \tilde{\varepsilon}^{vp}} = \left( \frac{\partial^2 f_{el}}{\partial \tilde{\varepsilon}^{vp} \partial c} \right) \end{array} \right.$$

## Appendix **D**

### Calcul de la matrice jacobienne **J** et du vecteur résiduel **R** pour le modèle de champ de phase viscoplastique

---

Les degrés de liberté, les variables internes, primales et duales sont donnés par :

$$dofs = \begin{pmatrix} U1 \\ U2 \\ C \\ \phi_1 \\ \phi_2 \\ \phi_3 \end{pmatrix} \quad V_{interne} = \begin{pmatrix} \tilde{\varepsilon}^e \\ \tilde{\alpha} \\ \tilde{p} \end{pmatrix} \quad V_{input} = \begin{pmatrix} \tilde{\varepsilon} \\ \tilde{C} \\ C \\ \phi_1 \\ \phi_2 \\ \phi_3 \\ \phi_1 \\ \phi_2 \\ \phi_3 \end{pmatrix} \quad V_{output} = \begin{pmatrix} \tilde{\sigma} \\ \tilde{J} \\ \pi_C \\ \xi_1 \\ \xi_2 \\ \xi_3 \\ \pi_{\phi_1} \\ \pi_{\phi_2} \\ \pi_{\phi_3} \end{pmatrix}$$

Le comportement viscoplastique est décrit à l'aide de ces équations :

$$\sigma^{eq} = \sqrt{\frac{3}{2}(\tilde{\sigma} - \tilde{X}) : (\tilde{\sigma} - \tilde{X})} \quad (4.1)$$

$$R = R_0 + Hp \quad (4.2)$$

$$f = \sigma^{eq} - R \quad (4.3)$$

$$\tilde{n} = \frac{3}{2} \frac{(\tilde{\sigma} - \tilde{X})}{J} \quad (4.4)$$

$$\dot{p} = \left(\frac{f}{k}\right)^n \quad (4.5)$$

$$\tilde{\dot{\varepsilon}}^p = \tilde{n}\dot{p} \quad (4.6)$$

$$\tilde{\dot{\alpha}} = \dot{p} \left( \tilde{n} - \frac{2}{3} D \frac{\tilde{X}}{\tilde{C}} \right) \quad (4.7)$$

La matrice tangente locale est définie par l'expression [Besson et al. \[2001\]](#) :

$$\begin{bmatrix} \frac{\partial V_{output}}{\partial V_{interne}} \end{bmatrix} \quad (4.8)$$

La matrice jacobienne est écrit sous la forme [Besson et al. \[2001\]](#) :

$$[J] = \begin{bmatrix} \frac{\partial V_{output}}{\partial V_{input}} \end{bmatrix} + \begin{bmatrix} \frac{\partial V_{output}}{\partial V_{interne}} \end{bmatrix} \left( -f_{grad} \frac{\partial R}{\partial V_{input}} \right) \quad (4.9)$$

avec

$$\frac{\partial V_{output}}{\partial V_{input}} = \begin{pmatrix} \frac{\partial \sigma}{\partial \varepsilon} & \frac{\partial \sigma}{\partial C} & \frac{\partial \sigma}{\partial C} & \frac{\partial \sigma}{\partial \phi_1} & \frac{\partial \sigma}{\partial \phi_2} & \frac{\partial \sigma}{\partial \phi_3} & \frac{\partial \sigma}{\partial \phi_1} & \frac{\partial \sigma}{\partial \phi_2} & \frac{\partial \sigma}{\partial \phi_3} \\ \frac{\partial J}{\partial \varepsilon} & \frac{\partial J}{\partial C} & \frac{\partial J}{\partial C} & \frac{\partial J}{\partial \phi_1} & \frac{\partial J}{\partial \phi_2} & \frac{\partial J}{\partial \phi_3} & \frac{\partial J}{\partial \phi_1} & \frac{\partial J}{\partial \phi_2} & \frac{\partial J}{\partial \phi_3} \\ \frac{\partial \pi_C}{\partial \varepsilon} & \frac{\partial \pi_C}{\partial C} & \frac{\partial \pi_C}{\partial C} & \frac{\partial \pi_C}{\partial \phi_1} & \frac{\partial \pi_C}{\partial \phi_2} & \frac{\partial \pi_C}{\partial \phi_3} & \frac{\partial \pi_C}{\partial \phi_1} & \frac{\partial \pi_C}{\partial \phi_2} & \frac{\partial \pi_C}{\partial \phi_3} \\ \frac{\partial \xi_{\phi_1}}{\partial \varepsilon} & \frac{\partial \xi_{\phi_1}}{\partial C} & \frac{\partial \xi_{\phi_1}}{\partial C} & \frac{\partial \xi_{\phi_1}}{\partial \phi_1} & \frac{\partial \xi_{\phi_1}}{\partial \phi_2} & \frac{\partial \xi_{\phi_1}}{\partial \phi_3} & \frac{\partial \xi_{\phi_1}}{\partial \phi_1} & \frac{\partial \xi_{\phi_1}}{\partial \phi_2} & \frac{\partial \xi_{\phi_1}}{\partial \phi_3} \\ \frac{\partial \xi_{\phi_2}}{\partial \varepsilon} & \frac{\partial \xi_{\phi_2}}{\partial C} & \frac{\partial \xi_{\phi_2}}{\partial C} & \frac{\partial \xi_{\phi_2}}{\partial \phi_1} & \frac{\partial \xi_{\phi_2}}{\partial \phi_2} & \frac{\partial \xi_{\phi_2}}{\partial \phi_3} & \frac{\partial \xi_{\phi_2}}{\partial \phi_1} & \frac{\partial \xi_{\phi_2}}{\partial \phi_2} & \frac{\partial \xi_{\phi_2}}{\partial \phi_3} \\ \frac{\partial \xi_{\phi_3}}{\partial \varepsilon} & \frac{\partial \xi_{\phi_3}}{\partial C} & \frac{\partial \xi_{\phi_3}}{\partial C} & \frac{\partial \xi_{\phi_3}}{\partial \phi_1} & \frac{\partial \xi_{\phi_3}}{\partial \phi_2} & \frac{\partial \xi_{\phi_3}}{\partial \phi_3} & \frac{\partial \xi_{\phi_3}}{\partial \phi_1} & \frac{\partial \xi_{\phi_3}}{\partial \phi_2} & \frac{\partial \xi_{\phi_3}}{\partial \phi_3} \\ \frac{\partial \pi_{\phi_1}}{\partial \varepsilon} & \frac{\partial \pi_{\phi_1}}{\partial C} & \frac{\partial \pi_{\phi_1}}{\partial C} & \frac{\partial \pi_{\phi_1}}{\partial \phi_1} & \frac{\partial \pi_{\phi_1}}{\partial \phi_2} & \frac{\partial \pi_{\phi_1}}{\partial \phi_3} & \frac{\partial \pi_{\phi_1}}{\partial \phi_1} & \frac{\partial \pi_{\phi_1}}{\partial \phi_2} & \frac{\partial \pi_{\phi_1}}{\partial \phi_3} \\ \frac{\partial \pi_{\phi_2}}{\partial \varepsilon} & \frac{\partial \pi_{\phi_2}}{\partial C} & \frac{\partial \pi_{\phi_2}}{\partial C} & \frac{\partial \pi_{\phi_2}}{\partial \phi_1} & \frac{\partial \pi_{\phi_2}}{\partial \phi_2} & \frac{\partial \pi_{\phi_2}}{\partial \phi_3} & \frac{\partial \pi_{\phi_2}}{\partial \phi_1} & \frac{\partial \pi_{\phi_2}}{\partial \phi_2} & \frac{\partial \pi_{\phi_2}}{\partial \phi_3} \\ \frac{\partial \pi_{\phi_3}}{\partial \varepsilon} & \frac{\partial \pi_{\phi_3}}{\partial C} & \frac{\partial \pi_{\phi_3}}{\partial C} & \frac{\partial \pi_{\phi_3}}{\partial \phi_1} & \frac{\partial \pi_{\phi_3}}{\partial \phi_2} & \frac{\partial \pi_{\phi_3}}{\partial \phi_3} & \frac{\partial \pi_{\phi_3}}{\partial \phi_1} & \frac{\partial \pi_{\phi_3}}{\partial \phi_2} & \frac{\partial \pi_{\phi_3}}{\partial \phi_3} \end{pmatrix}$$

$$\frac{\partial V_{output}}{\partial V_{interne}} = \begin{pmatrix} \frac{\partial \sigma}{\partial \varepsilon^p} & \frac{\partial \sigma}{\partial \alpha} & \frac{\partial \sigma}{\partial p} \\ \frac{\partial J}{\partial \varepsilon^p} & \frac{\partial J}{\partial \alpha} & \frac{\partial J}{\partial p} \\ \frac{\partial \pi_C}{\partial \varepsilon^p} & \frac{\partial \pi_C}{\partial \alpha} & \frac{\partial \pi_C}{\partial p} \\ \frac{\partial \xi_{\phi_1}}{\partial \varepsilon^p} & \frac{\partial \xi_{\phi_1}}{\partial \alpha} & \frac{\partial \xi_{\phi_1}}{\partial p} \\ \frac{\partial \xi_{\phi_2}}{\partial \varepsilon^p} & \frac{\partial \xi_{\phi_2}}{\partial \alpha} & \frac{\partial \xi_{\phi_2}}{\partial p} \\ \frac{\partial \xi_{\phi_3}}{\partial \varepsilon^p} & \frac{\partial \xi_{\phi_3}}{\partial \alpha} & \frac{\partial \xi_{\phi_3}}{\partial p} \\ \frac{\partial \pi_{\phi_1}}{\partial \varepsilon^p} & \frac{\partial \pi_{\phi_1}}{\partial \alpha} & \frac{\partial \pi_{\phi_1}}{\partial p} \\ \frac{\partial \pi_{\phi_2}}{\partial \varepsilon^p} & \frac{\partial \pi_{\phi_2}}{\partial \alpha} & \frac{\partial \pi_{\phi_2}}{\partial p} \\ \frac{\partial \pi_{\phi_3}}{\partial \varepsilon^p} & \frac{\partial \pi_{\phi_3}}{\partial \alpha} & \frac{\partial \pi_{\phi_3}}{\partial p} \end{pmatrix}$$

Calcul du vecteur résiduel R :

$$\underline{R}_{\varepsilon^p} = \Delta \varepsilon^p - n \Delta p = 0 \quad (4.10)$$

$$R_p = \Delta p - \left( \frac{f}{k} \right)^n \Delta t = 0 \quad (4.11)$$

$$\underline{R}_{\alpha} = \Delta \alpha - \Delta p \left( n - D \frac{X}{CC} \right) = 0 \text{ avec } CC = \frac{3}{2} C \quad (4.12)$$

Calcul des termes du  $\frac{\partial R}{\partial \Delta V_{interne}}$  :

$$\frac{\partial \underline{R}_{\varepsilon^p}}{\partial \Delta \varepsilon^p} = \underline{1} - \Delta p \frac{\partial n}{\partial \sigma} \frac{\partial \sigma}{\partial \varepsilon^p} \frac{\partial \varepsilon^p}{\partial \Delta \varepsilon^p} = \underline{1} + \theta \Delta p \underline{N} : \underline{C} \quad (4.13)$$

$$\text{avec } \underline{N} = \frac{\partial n}{\partial \sigma} \quad (4.14)$$

$$\frac{\partial \underline{R}_{\varepsilon^p}}{\partial \Delta p} = -\underline{n} \quad (4.15)$$

$$\frac{\partial \underline{R}_{\varepsilon^p}}{\partial \Delta \alpha} = -\Delta p \frac{\partial n}{\partial X} \frac{\partial X}{\partial \sigma} \frac{\partial \sigma}{\partial \Delta \alpha} = \Delta p \underline{N} \frac{2}{3} C_k \theta \quad (\text{cas implicite } \theta = 1) \quad (4.16)$$

$$\frac{\partial R_p}{\partial \Delta \tilde{\varepsilon}^p} = -\frac{n}{k} \left(\frac{f}{k}\right)^{n-1} \frac{\partial f}{\partial \tilde{\sigma}} \frac{\partial \tilde{\sigma}}{\partial \tilde{\varepsilon}^p} \frac{\partial \tilde{\varepsilon}^p}{\partial \Delta \tilde{\varepsilon}^p} = \frac{n}{k} \left(\frac{f}{k}\right)^{n-1} \tilde{n} \tilde{C} \theta \Delta t \quad (4.17)$$

$$\frac{\partial R_p}{\partial \Delta p} = 1 - \frac{n}{k} \left(\frac{f}{k}\right)^{n-1} \frac{\partial f}{\partial p} \theta \Delta t = 1 + \frac{n}{k} \left(\frac{f}{k}\right)^{n-1} H \theta \Delta t \quad (4.18)$$

$$\frac{\partial R_p}{\partial \Delta \alpha} = \frac{n}{k} \left(\frac{f}{k}\right)^{n-1} \frac{\partial f}{\partial \tilde{\sigma}} \frac{\partial X}{\partial \tilde{\alpha}} \theta \Delta t = \frac{n}{k} \left(\frac{f}{k}\right)^{n-1} \frac{\partial f}{\partial \tilde{\sigma}} \frac{2}{3} C \theta \Delta t \quad (4.19)$$

$$\frac{\partial R_\alpha}{\partial \Delta \tilde{\varepsilon}^p} = \Delta p \frac{\partial n}{\partial \tilde{\sigma}} \tilde{C} \theta \quad (4.20)$$

$$\frac{\partial R_\alpha}{\partial \Delta p} = -\left(n - \frac{3DX}{2C}\right) \quad (4.21)$$

$$\frac{\partial R_\alpha}{\partial \Delta \alpha} = \tilde{1} + \Delta p \left(\frac{\partial n}{\partial \tilde{\sigma}} \frac{2}{3} C - D\right) \theta \quad (4.22)$$

Calcul des termes du  $\frac{\partial R}{\partial V_{input}}$  :

$$\frac{\partial R^{\tilde{\varepsilon}^p}}{\partial c} = -\Delta p \frac{\partial n}{\partial \tilde{\sigma}} \frac{\partial \tilde{\sigma}}{\partial c} = -\Delta p N \frac{\partial \tilde{\sigma}}{\partial c} \quad (4.23)$$

$$\frac{\partial R^p}{\partial c} = -\frac{n}{k} \left(\frac{f}{k}\right)^{n-1} \Delta t \frac{\partial f}{\partial \tilde{\sigma}} \frac{\partial \tilde{\sigma}}{\partial c} = -\frac{n}{k} \left(\frac{f}{k}\right)^{n-1} \Delta t \tilde{n} \frac{\partial \tilde{\sigma}}{\partial c} \quad (4.24)$$

$$\frac{\partial R^p}{\partial \phi_m} = -\frac{n}{k} \left(\frac{f}{k}\right)^{n-1} \Delta t \frac{\partial f}{\partial R} \frac{\partial R}{\partial \phi} = \frac{n}{k} \left(\frac{f}{k}\right)^{n-1} \Delta t \frac{\partial R}{\partial \phi} \quad (4.25)$$

$$\frac{\partial R^\alpha}{\partial c} = -\Delta p \frac{\partial n}{\partial \tilde{\sigma}} \frac{\partial \tilde{\sigma}}{\partial c} = -\Delta p N \frac{\partial \tilde{\sigma}}{\partial c} \quad (4.26)$$

Calcul des termes du  $\frac{\partial V_{output}}{\partial V_{interne}}$  :

$$\frac{\partial \tilde{\sigma}}{\partial \tilde{\varepsilon}^p} = -\tilde{C} \quad (4.27)$$

$$\frac{\partial J}{\partial \tilde{\varepsilon}^p} = M \left(2 \frac{\partial \tilde{\varepsilon}^{el}}{\partial c} : \tilde{C}_{eff}\right) c + M \frac{\partial \tilde{C}_{eff}}{\partial c} \varepsilon \quad (4.28)$$

Calcul des termes du  $\frac{\partial V_{output}}{\partial V_{input}}$  :

$$\frac{\partial \sigma}{\partial c} = \frac{\partial \varepsilon^{el}}{\partial c} : \underset{\sim}{C}_{eff} + \varepsilon^{el} : \frac{\partial \underset{\sim}{C}_{eff}}{\partial c} \quad (4.29)$$

$$\frac{\partial \sigma}{\partial \varepsilon} = \underset{\sim}{C}_{eff} \quad (4.30)$$

$$\frac{\partial J}{\partial c} = -M \left( \Delta f + \frac{\partial \varepsilon^{el}}{\partial c} : \underset{\sim}{C}_{eff} : \frac{\partial \varepsilon^{el}}{\partial c} + 2 \left( \varepsilon^{el} : \frac{\partial \underset{\sim}{C}_{eff}}{\partial c} : \frac{\partial \varepsilon^{el}}{\partial c} \right) \right) \quad (4.31)$$

$$\frac{\partial J}{\partial c} = -3M \left( \frac{\partial \varepsilon^{el}}{\partial c} : \frac{\partial \underset{\sim}{C}_{eff}}{\partial c} : \frac{\partial \varepsilon^{el}}{\partial c} \right) c \quad (4.32)$$

$$\frac{\partial J}{\partial \phi_m} = -M \Delta f \frac{B}{e} \phi_m \quad (4.33)$$

$$\frac{\partial J}{\partial \phi_m} = M \Delta f \frac{B}{3} \phi_m \quad (4.34)$$

$$\frac{\partial \pi_c}{\partial c} = \frac{1}{\Delta t} \quad (4.35)$$

$$\frac{\partial \xi_{\phi_m}}{\partial \phi_m} = \beta \underset{\sim}{1} \quad (4.36)$$

$$\frac{\partial \pi_{\phi_m}}{\partial c} = M \Delta f \frac{B}{e} \phi_m \quad (4.37)$$

$$\frac{\partial \pi_{\phi_m}}{\partial \phi_m} = -\frac{1}{L \Delta t} - \frac{\partial^2 f}{\partial \phi_m^2} \quad (4.38)$$

$$\frac{\partial \pi_{\phi_m}}{\partial \phi_j} = -\frac{\partial^2 f}{\partial \phi_m \partial \phi_j} \quad (4.39)$$

## Bibliography

---

- Ali, M. A., Amin, W., Shchyglo, O., and Steinbach, I. (2020). 45-degree rafting in ni-based superalloys: A combined phase-field and strain gradient crystal plasticity study. *International Journal of Plasticity*, 128:102659.
- Ammar, K., Appolaire, B., Cailletaud, G., Feyel, F., and Forest, S. (2009a). Finite element formulation of a phase field model based on the concept of generalized stresses. *Computational materials science*, 45(3):800–805.
- Ammar, K., Appolaire, B., Cailletaud, G., and Forest, S. (2009b). Combining phase field approach and homogenization methods for modelling phase transformation in elastoplastic media. *European Journal of Computational Mechanics/Revue Européenne de Mécanique Numérique*, 18(5-6):485–523.
- Ammar, K., Appolaire, B., and Forest, S. (2021). Splitting of dissolving precipitates during plastic shear: A phase field study. *Comptes Rendus. Physique*, 22(S3):353–370.
- An, T., Guan, H., Sun, X., and Hu, Z. (2000). Effect of the  $\theta$ - $\alpha$ -al<sub>2</sub>o<sub>3</sub> transformation in scales on the oxidation behavior of a nickel-base superalloy with an aluminide diffusion coating. *Oxidation of Metals*, 54:301–316.
- Bensch, M., Konrad, C., Fleischmann, E., Rae, C. M., and Glatzel, U. (2013). Influence of oxidation on near-surface  $\gamma'$  fraction and resulting creep behaviour of single crystal ni-base superalloy m247lc sx. *Materials Science and Engineering: A*, 577:179–188.
- Bergonnier, S., Hild, F., and Roux, S. (2007). Local anisotropy analysis for non-smooth images. *Pattern recognition*, 40(2):544–556.
- Besson, J., Cailletaud, G., Chaboche, J.-L., and Forest, S. (2001). *Mécanique non linéaire des matériaux*. Hermès Science Publ.
- Boussinot, G. (2007). *Étude du vieillissement des superalliages à base nickel par la méthode de champs de phase*. PhD thesis, Laboratoire d'Etude des Microstructures, Université Paris 6.
- Buffington, F. and Cohen, M. (1952). Self-diffusion in alpha iron under uniaxial compressive stress. *JOM*, 4:859–860.
- Caccuri, V., Desmorat, R., and Cormier, J. (2018). Tensorial nature of  $\gamma$ -rafting evolution in nickel-based single crystal superalloys. *Acta Materialia*, 158:138–154.
- Caron, P. and Lavigne, O. (2011). Recent studies at onera on superalloys for single crystal turbine blades. *Aerospace Lab*, (3):p-1.
- Caron, P., Ramusat, C., and Diologent, F. (2008). Influence of the  $\gamma$  fraction on the  $\gamma/\gamma'$  topological inversion during high temperature creep of single crystal superalloys. *Superalloys 2008*, pages 159–167.
- Carry, C. and Strudel, J. (1978). Apparent and effective creep parameters in single crystals of a nickel base superalloy—ii. secondary creep. *Acta metallurgica*, 26(5):859–870.

- Chatterjee, D., Hazari, N., Das, N., and Mitra, R. (2010). Microstructure and creep behavior of dms4-type nickel based superalloy single crystals with orientations near  $\langle 0\ 0\ 1 \rangle$  and  $\langle 0\ 1\ 1 \rangle$ . *Materials Science and Engineering: A*, 528(2):604–613.
- Chen, L. Q. and Shen, J. (1998). Applications of semi-implicit fourier-spectral method to phase field equations. *Computer Physics Communications*, 108(2-3):147–158.
- Cormier, J. (2006). *Comportement en fluage anisotherme à haute et très haute température du superalliage monocristallin MC2*. PhD thesis, Poitiers.
- Cottura, M., Appolaire, B., Finel, A., and Le Bouar, Y. (2016). Coupling the phase field method for diffusive transformations with dislocation density-based crystal plasticity: Application to ni-based superalloys. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 94:473–489.
- Cottura, M., Le Bouar, Y., Finel, A., Appolaire, B., Ammar, K., and Forest, S. (2012). A phase field model incorporating strain gradient viscoplasticity: application to rafting in ni-base superalloys. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 60(7):1243–1256.
- Darvishi Kamachali, R., Borukhovich, E., Shchyglo, O., and Steinbach, I. (2013). Solutal gradients in strained equilibrium. *Philosophical magazine letters*, 93(12):680–687.
- Diologent, F. (2002). *Comportement en fluage et en traction de superalliages monocristallins à base de nickel*. PhD thesis, Paris 11.
- Dlouhý, A., Probst-Hein, M., and Eggeler, G. (2001). Static dislocation interactions in thin channels between cuboidal particles. *Materials Science and Engineering: A*, 309:278–282.
- Doner, M. and Heckler, J. (1985). Effects of section thickness and orientation on creep rupture properties of two advanced single crystal alloys. sae technical paper 851785. *Society of Automotive Engineers*.
- Du, Y. and Schuster, J. (2001). Assessment of diffusional mobilities of cr, ni, and si in fcc cr–ni–si alloys. *International Journal of Materials Research*, 92(1):28–31.
- Epishin, A., Fedelich, B., Finn, M., Künecke, G., Rehmer, B., Nolze, G., Leistner, C., Petrushin, N., and Svetlov, I. (2021). Investigation of elastic properties of the single-crystal nickel-base superalloy cmsx-4 in the temperature interval between room temperature and 1300 c. *Crystals*, 11(2):152.
- Epishin, A., Link, T., Nazmy, M., Staubli, M., Klingelhoffer, H., and Nolze, G. (2008). Microstructural degradation of cmsx-4: kinetics and effect on mechanical properties. *Superalloys*, 2008:725–731.
- Epishin, A., Link, T., Portella, P. D., and Brückner, U. (2000). Evolution of the  $\gamma/\gamma'$  microstructure during high-temperature creep of a nickel-base superalloy. *Acta materialia*, 48(16):4169–4177.
- Fahrman, M., Hermann, W., Fahrman, E., Boegli, A., Pollock, T., and Sockel, H. (1999). Determination of matrix and precipitate elastic constants in  $(\gamma-\gamma')$  ni-base model alloys, and their relevance to rafting. *Materials Science and Engineering: A*, 260(1-2):212–221.
- Fan, Y., Tan, L., Yang, X., Shi, D., Li, R., Huang, J., and Wang, C. (2022). A microstructural rafting state-based constitutive model for single crystal ni-based superalloys at elevated temperature. *International Journal of Mechanical Sciences*, 228:107484.
- Fan, Y.-N., Shi, H.-J., and Qiu, W.-H. (2015). Constitutive modeling of creep behavior in single crystal superalloys: Effects of rafting at high temperatures. *Materials Science and Engineering: A*, 644:225–233.
- Fedelich, B., Künecke, G., Epishin, A., Link, T., and Portella, P. (2009). Constitutive modelling of creep degradation due to rafting in single-crystalline ni-base superalloys. *Materials Science and Engineering: A*, 510:273–277.

- Fredholm, A. and Strudel, J. (1984). On the creep resistance of some nickel base single crystals. *Superalloys 1984*, pages 211–220.
- Gaubert, A. (2009). *Modélisation des effets de l'évolution microstructurale sur le comportement mécanique du superalliage monocristallin AM1*. PhD thesis, École Nationale Supérieure des Mines de Paris.
- Gaubert, A., Jouiad, M., Cormier, J., Le Bouar, Y., and Ghighi, J. (2015). Three-dimensional imaging and phase-field simulations of the microstructure evolution during creep tests of <011>-oriented ni-based superalloys. *Acta Materialia*, 84:237–255.
- Gaubert, A., Le Bouar, Y., and Finel, A. (2010). Coupling phase field and viscoplasticity to study rafting in ni-based superalloys. *Philosophical Magazine*, 90(1-4):375–404.
- Girifalco, L. A. and Grimes, H. H. (1959). *The theory of diffusion in strained systems*, volume 4408. US Government Printing Office.
- Gorsky, W. (1935). Theorie der elastischen nachwirkung in ungeordneten mischkristallen (elastische nachwirkung zweiter art). *Physikalische Zeitschrift der Sowjetunion*, 8:457–471.
- Groot and Mazur, P. (1962). Groot and p. mazur, non-equilibrium thermodynamics.
- Guo, X., Shi, S.-Q., Zhang, Q., and Ma, X. (2008). An elastoplastic phase-field model for the evolution of hydride precipitation in zirconium. part ii: specimen with flaws. *Journal of Nuclear Materials*, 378(1):120–125.
- Gurtin, M. E. (1996). Generalized ginzburg-landau and cahn-hilliard equations based on a microforce balance. *Physica D: Nonlinear Phenomena*, 92(3-4):178–192.
- Gururajan, M. and Abinandanan, T. (2007). Phase field study of precipitate rafting under a uniaxial stress. *Acta Materialia*, 55(15):5015–5026.
- Han, G., Yu, J., Hu, Z., and Sun, X. (2013). Creep property and microstructure evolution of a nickel-base single crystal superalloy in [011] orientation. *Materials characterization*, 86:177–184.
- Hart, E. (1957). On the role of dislocations in bulk diffusion. *Acta metallurgica*, 5(10):597.
- Hooyman, G. (1956). Thermodynamics of diffusion in multicomponent systems. *Physica*, 22(6-12):751–759.
- Hooyman, G. and De Groot, S. (1954). Phenomenological equations and onsager relations: The case of dependent fluxes or forces. *Physica*, 21(1-5):73–76.
- Hüttner, R., Völkl, R., Gabel, J., and Glatzel, U. (2008). Creep behavior of thick and thin walled structures of a single crystal nickel-base superalloy at high temperatures—experimental method and results. *Superalloys. Warrendale: TMS*, page 719.
- Ignat, M., Buffiere, J.-Y., and Chaix, J. (1993). Microstructures induced by a stress gradient in a nickel-based superalloy. *Acta metallurgica et materialia*, 41(3):855–862.
- Jang, J.-W., Kwon, J., and Lee, B.-J. (2010). Effect of stress on self-diffusion in bcc fe: An atomistic simulation study. *Scripta Materialia*, 63(1):39–42.
- Kamachali, R. D. and Schwarze, C. (2017). Inverse ripening and rearrangement of precipitates under chemo-mechanical coupling. *Computational Materials Science*, 130:292–296.
- Kamaraj, M. (2003). Rafting in single crystal nickel-base superalloys—an overview. *Sadhana*, 28:115–128.



- Khachaturyan, A., Semenovskaya, S., and Tsakalakos, T. (1995). Elastic strain energy of inhomogeneous solids. *Physical Review B*, 52(22):15909.
- Khachaturyan, A. G. (1983a). Theory of structural transformation in solids.
- Khachaturyan, A. G. (1983b). Theory of structural transformations in solids.
- Khan, T., Caron, P., Fournier, D., and Harris, K. (1985). Superalliages monocristallins pour aubes de turbines-caractérisation et optimisation de l'alliage cmsx-2. *Matériaux & Techniques*, 73(10-11):567–578.
- Kirkwood, J. G., Baldwin, R. L., Dunlop, P. J., Gosting, L. J., and Kegeles, G. (1960). Flow equations and frames of reference for isothermal diffusion in liquids. *The Journal of Chemical Physics*, 33(5):1505–1513.
- Ko, S.-C., Zhang, T.-Y., and Lee, S. (2007). Influence of chemical stresses in the permeation, one-side and two-side charging processes. *Journal of applied physics*, 101(11).
- Kouadri Boudjelthia, E. A. (2012). *Piégeage des impuretés métalliques présentes dans le silicium destiné au photovoltaïque par plasma immersion ion implantation (PIII)*. PhD thesis.
- Kraft, S. A. and Mughrabi, H. (1996). Thermo-mechanical fatigue of the monocrystalline nickel-base superalloy cmsx-6. *ASTM special technical publication*, 1263:27–40.
- Larché, F. and Cahn, J. W. (1973). A linear theory of thermochemical equilibrium of solids under stress. *Acta metallurgica*, 21(8):1051–1063.
- Larché, F. and Cahn, J. W. (1985). Overview no. 41 the interactions of composition and stress in crystalline solids. *Acta metallurgica*, 33(3):331–357.
- Larché, F. and Voorhees, P. W. (1996). Diffusion and stresses: basic thermodynamics. In *Defect and diffusion forum*, volume 129, pages 31–36. Trans Tech Publ.
- Lemaitre, J. and Chaboche, J.-L. (1994). *Mechanics of solid materials*. Cambridge university press.
- Li, D. and Chen, L. (1997). Computer simulation of morphological evolution and rafting of  $\{\gamma\}'$  particles in ni-based superalloys under applied stresses. *Scripta Materialia*, 37(9).
- Li, D. and Chen, L. (1998). Shape evolution and splitting of coherent particles under applied stresses. *Acta materialia*, 47(1):247–257.
- Manning, J. R. and Bruner, L. (1968). Diffusion kinetics for atoms in crystals. *American Journal of Physics*, 36(10):922–923.
- Matan, N., Cox, D., Rae, C., and Reed, R. (1999). On the kinetics of rafting in cmsx-4 superalloy single crystals. *Acta Materialia*, 47(7):2031–2045.
- McCormack, M., Khachaturyan, A., and Morris Jr, J. (1992). A two-dimensional analysis of the evolution of coherent precipitates in elastic media. *Acta metallurgica et materialia*, 40(2):325–336.
- Mehrer, H. (2011). Diffusion in solids under pressure. In *Defect and Diffusion Forum*, volume 309, pages 91–112. Trans Tech Publ.
- Miller, C. C. (1924). The stokes-einstein law for diffusion in solution. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A, Containing Papers of a Mathematical and Physical Character*, 106(740):724–749.
- Mortlock, A. (1960). The effect of segregation on the solute diffusion enhancement due to the presence of dislocations. *Acta metallurgica*, 8(2):132–134.

- Mughrabi, H. (2009). Microstructural aspects of high temperature deformation of monocrystalline nickel base superalloys: some open problems. *Materials Science and Technology*, 25(2):191–204.
- Mughrabi, H. (2014). The importance of sign and magnitude of  $\gamma/\gamma$  lattice misfit in superalloys—with special reference to the new  $\gamma$ -hardened cobalt-base superalloys. *Acta materialia*, 81:21–29.
- Mughrabi, H., Ott, M., and Tetzlaff, U. (1997). New microstructural concepts to optimize the high-temperature strength of  $\gamma$ -hardened monocrystalline nickel-based superalloys. *Materials Science and Engineering: A*, 234:434–437.
- Mughrabi, H. and Tetzlaff, U. (2000). Microstructure and high-temperature strength of monocrystalline nickel-base superalloys. *Advanced Engineering Materials*, 2(6):319–326.
- Murakumo, T., Kobayashi, T., Koizumi, Y., and Harada, H. (2004). Creep behaviour of ni-base single-crystal superalloys with various  $\gamma$  volume fraction. *Acta Materialia*, 52(12):3737–3744.
- Mushongera, L. T. (2016). *Strain-induced  $\gamma'$ -coarsening during aging of Ni-base superalloys under uniaxial load: modeling and analysis*. Universitaet Bayreuth (Germany).
- Nabarro, F., Cress, C. M., and Kotschy, P. (1996). The thermodynamic driving force for rafting in superalloys. *Acta materialia*, 44(8):3189–3198.
- Nakamura, R., Fujita, K., Iijima, Y., and Okada, M. (2003). Diffusion mechanisms in b2 nial phase studied by experiments on kirkendall effect and interdiffusion under high pressures. *Acta materialia*, 51(13):3861–3870.
- Nathal, M., MacKay, R., and Miner, R. (1989). Influence of precipitate morphology on intermediate temperature creep properties of a nickel-base superalloy single crystal. *Metallurgical Transactions A*, 20:133–141.
- Nazé, L., Maurel, V., Eggeler, G., Cormier, J., and Cailletaud, G. (2021). *Nickel base single crystals across length scales*. Elsevier.
- Nguimatsia, J. N. (2016). *Processus diffusionnels à l'origine de l'évolution de la composition d'un alliage au cours de l'oxydation sélective en pointe de fissures intergranulaires. Application à la CSC de l'Alliage 600 en milieu primaire des REP*. PhD thesis, Université Paris sciences et lettres.
- Nguyen, L., Shi, R., Wang, Y., and De Graef, M. (2016). Quantification of rafting of  $\gamma$  precipitates in ni-based superalloys. *Acta Materialia*, 103:322–333.
- Onsager, L. (1931). Reciprocal relations in irreversible processes. i. *Physical review*, 37(4):405.
- Oriani, R. (1969). Thermomigration in solid metals. *Journal of Physics and Chemistry of Solids*, 30(2):339–351.
- Ott, M. and Mughrabi, H. (1999). Dependence of the high-temperature low-cycle fatigue behaviour of the monocrystalline nickel-base superalloys cmsx-4 and cmsx-6 on the  $\gamma/\gamma$ -morphology. *Materials Science and Engineering: A*, 272(1):24–30.
- Paris, O., Fa, M., Fa, E., Pollock, T., Fratzl, P., et al. (1997). Early stages of precipitate rafting in a single crystal nialmo model alloy investigated by small-angle x-ray scattering and tem. *Acta materialia*, 45(3):1085–1097.
- Pavlina, V. and Podstrigach, Y. S. (1971). Residual stresses due to diffusion in an elastic homogeneous plate. *Soviet materials science: a transl. of fiziko-khimicheskaya mekhanika materialov/academy of sciences of the ukrainian ssr*, 4(4):279–283.

- Pearson, D., Lemkey, F., and Kear, B. (1980). Stress coarsening of  $\gamma'$  and its influence on creep properties of a single crystal superalloy.
- Philibert, J. (1985). Diffusion et transport de matière dans les solide. *Les éditions de physique*, 127.
- Pineau, A. (1976). Influence of uniaxial stress on the morphology of coherent precipitates during coarsening—elastic energy considerations. *Acta metallurgica*, 24(6):559–564.
- Plapp, M. (2011). Unified derivation of phase-field models for alloy solidification from a grand-potential functional. *Physical Review E*, 84(3):031601.
- Podstrigach, Y. S. and Pavlina, V. (1966). Differential equations of thermodynamic processes in n-component solid solutions. *Soviet materials science: a transl. of fiziko-khimicheskaya mekhanika materialov/academy of sciences of the ukrainian ssr*, 1(4):259–264.
- Podstrigach, Y. S. and Shevchuk, P. (1969). Diffusion phenomena and stress relaxation in the vicinity of a spherical void. *Soviet materials science: a transl. of fiziko-khimicheskaya mekhanika materialov/academy of sciences of the ukrainian ssr*, 4(2):140–145.
- Pollock, T. and Argon, A. (1992). Creep resistance of cmsx-3 nickel base superalloy single crystals. *Acta Metallurgica et Materialia*, 40(1):1–30.
- Pollock, T. and Argon, A. (1994). Directional coarsening in nickel-base single crystals with high volume fractions of coherent precipitates. *Acta metallurgica et materialia*, 42(6):1859–1874.
- Probst-Hein, M., Dlouhy, A., and Eggeler, G. (2001). Dislocation interactions in  $\gamma$ -channels between  $\gamma'$  particles of superalloy single crystals. *Materials Science and Engineering: A*, 319:379–382.
- Raffaitin, A. (2007). *Influence du cyclage thermique sur les comportements en oxydation-corrosion et en fluage de systèmes MCrAlY-superalliage à base de nickel*. PhD thesis.
- Raffaitin, A., Monceau, D., Crabos, F., and Andrieu, E. (2007). The effect of thermal cycling on the high-temperature creep behaviour of a single crystal nickel-based superalloy. *Scripta Materialia*, 56(4):277–280.
- Rauh, H. and Simon, D. (1978). On the diffusion process of point defects in the stress field of edge dislocations. *physica status solidi (a)*, 46(2):499–510.
- Reed, R. (2006). The superalloys: Fundamentals and applications cambridge cambridge university press 10.1017. *CBO9780511541285*.
- Roebuck, B., Cox, D., and Reed, R. (2001). The temperature dependence of  $\gamma$  volume fraction in a ni-based single crystal superalloy from resistivity measurements. *Scripta materialia*, 44(6):917–921.
- Rouzou, I., Molins, R., Rémy, L., and Jomard, F. (2004). Study of the sulfur segregation for a tbc system. In *Materials Science Forum*, volume 461, pages 101–108. Trans Tech Publ.
- Rubin, G. and Khachatryan, A. (1999). Three-dimensional model of precipitation of ordered intermetallics. *Acta materialia*, 47(7):1995–2002.
- Sallot, P. (2012). *Modélisation de la durée de vie d'un revêtement aluminiformeur en conditions de sollicitations thermo-mécaniques*. PhD thesis, Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris.
- Salsi, C., Monceau, D., Desgranges, C., and Gheno, T. (2022). Effect of compressive creep and hydrostatic pressure on diffusion in nicro and nicro systems. *Metallurgical and Materials Transactions A*, 53(12):4247–4257.

- Salvadori, A., McMeeking, R., Grazioli, D., and Magri, M. (2018). A coupled model of transport-reaction-mechanics with trapping. part i–small strain analysis. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 114:1–30.
- Sarosi, P., Wang, B., Simmons, J., Wang, Y., and Mills, M. (2007). Formation of multimodal size distributions of  $\gamma$  in a nickel-base superalloy during interrupted continuous cooling. *Scripta Materialia*, 57(8):767–770.
- Schmidt, I. and Gross, D. (1999). Directional coarsening in ni–base superalloys: Analytical results for an elasticity–based model. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, 455(1988):3085–3106.
- Schneider, W., Mughrabi, H., and Hammer, J. (1992). Creep deformation and rupture behavior of the monocrystalline superalloy cmsx-4—a comparison with the alloy srr 99. In *Superalloys 1992*.
- Schuhmann Jr, R. (1955). Application of gibbs-duhem equations to ternary systems. *Acta Metallurgica*, 3(3):219–226.
- Schuster, J. C. and Du, Y. (2000). Experimental investigation and thermodynamic modeling of the cr-ni-si system. *Metallurgical and Materials Transactions A*, 31:1795–1803.
- Schwarze, C., Gupta, A., Hickel, T., and Kamachali, R. D. (2017). Phase-field study of ripening and rearrangement of precipitates under chemomechanical coupling. *Physical Review B*, 95(17):174101.
- Seetharaman, V. and Cetel, A. (2004). Thickness debit in creep properties of pwa 1484. *Superalloys 2004*, pages 207–214.
- Serin, K., Göbenli, G., and Eggeler, G. (2004). On the influence of stress state, stress level and temperature on  $\gamma$ -channel widening in the single crystal superalloy cmsx-4. *Materials Science and Engineering: A*, 387:133–137.
- Shen, C. (2004). *The fundamentals and applications of phase field method in quantitative microstructural modeling*. The Ohio State University.
- Shewmon, P. (1989). Diffusion in solids, 2nd. Ed., TMS, Warrendale, PA, 107.
- Shi, H., Hou, J., Guo, J., Zhou, L., Maldini, M., Angella, G., Donnini, R., and Ripamonti, D. (2014). Microstructure evolution and its influence on deformation mechanisms during tensile creep of dd417g alloy. *Materials Research Innovations*, 18(sup4):S4–319.
- Shui, L., Jin, T., Tian, S., and Hu, Z. (2007). Influence of precipitate morphology on tensile creep of a single crystal nickel-base superalloy. *Materials Science and Engineering: A*, 454:461–466.
- Simo, J. and Hughes, T. (1998). *Computational inelasticity*. Springer Verlag, New York.
- Sims, C. T., Stoloff, N. S., and Hagel, W. C. (1987). *superalloys II*, volume 8. Wiley New York.
- Socrate, S. and Parks, D. (1993). Numerical determination of the elastic driving force for directional coarsening in ni-superalloys. *Acta Metallurgica et Materialia*, 41(7):2185–2209.
- Storesund, J. and Tu, S. T. (1995). Geometrical effect on creep in cross weld specimens. *International journal of pressure vessels and piping*, 62(2):179–193.
- Sugui, T., Minggang, W., Huichen, Y., Xingfu, Y., Tang, L., and Benjiang, Q. (2010). Influence of element re on lattice misfits and stress rupture properties of single crystal nickel-based superalloys. *Materials Science and Engineering: A*, 527(16-17):4458–4465.

- Sundar, R., Kitazono, K., Sato, E., and Kuribayashi, K. (2001). Thermal cycling creep behavior of ni-al alloy. *Intermetallics*, 9(4):279–286.
- Swift, H. (1952). J mech phys. *Solid*, 1:P1.
- Tien, J. and Copley, S. (1971). The effect of uniaxial stress on the periodic morphology of coherent gamma prime precipitates in nickel-base superalloy crystals. *Metallurgical transactions*, 2:215–219.
- Tinga, T., Brekelmans, W., and Geers, M. (2009). Directional coarsening in nickel-base superalloys and its effect on the mechanical properties. *Computational materials science*, 47(2):471–481.
- Touratier, F. (2008). *Étude des mécanismes de déformation et d'endommagement du superalliage à base de nickel MC2 en fluage aux très hautes températures*. PhD thesis.
- Touratier, F., Andrieu, E., Poquillon, D., and Viguier, B. (2009). Rafting microstructure during creep of the mc2 nickel-based superalloy at very high temperature. *Materials Science and Engineering: A*, 510:244–249.
- Ubachs, R., Schreurs, P., and Geers, M. (2005). Phase field dependent viscoplastic behaviour of solder alloys. *International journal of solids and structures*, 42(9-10):2533–2558.
- Uehara, T., Tsujino, T., and Ohno, N. (2007). Elasto-plastic simulation of stress evolution during grain growth using a phase field model. *Journal of Crystal Growth*, 300(2):530–537.
- Véron, M. and Bastie, P. (1997). Strain induced directional coarsening in nickel based superalloys: investigation on kinetics using the small angle neutron scattering (sans) technique. *Acta materialia*, 45(8):3277–3282.
- Veron, M., Brechet, Y., and Louchet, F. (1996). Strain induced directional coarsening in ni based superalloys. *Scripta Materialia*, 34(12).
- Villani, A., Busso, E. P., Ammar, K., Forest, S., and Geers, M. (2014). A fully coupled diffusional-mechanical formulation: numerical implementation, analytical validation, and effects of plasticity on equilibrium. *Archive of Applied Mechanics*, 84(9):1647–1664.
- Wang, J., Osawa, M., Yokokawa, T., Harada, H., and Enomoto, M. (2007). Modeling the microstructural evolution of ni-base superalloys by phase field method combined with calphad and cvm. *Computational materials science*, 39(4):871–879.
- Wang, Y., Banerjee, D., Su, C.-C., and Khachaturyan, A. (1998). Field kinetic model and computer simulation of precipitation of 112 ordered intermetallics from fcc solid solution. *Acta materialia*, 46(9):2983–3001.
- Wang, Y. and Khachaturyan, A. (1995). Microstructural evolution during the precipitation of ordered intermetallics in multiparticle coherent systems. *Philosophical Magazine A*, 72(5):1161–1171.
- Wen, Y., Lill, J., Chen, S., and Simmons, J. (2010). A ternary phase-field model incorporating commercial calphad software and its application to precipitation in superalloys. *Acta materialia*, 58(3):875–885.
- Xuan, F.-Z., Shao, S.-S., Wang, Z., and Tu, S.-T. (2008). Coupling effects of chemical stresses and external mechanical stresses on diffusion. *Journal of Physics D: Applied Physics*, 42(1):015401.
- Yang, F. (2005). Interaction between diffusion and chemical stresses. *Materials Science and Engineering: A*, 409(1-2):153–159.
- Yang, M., Zhang, J., Wei, H., Zhao, Y., Gui, W., Su, H., Jin, T., and Liu, L. (2018). Study of  $\gamma$  rafting under different stress states—a phase-field simulation considering viscoplasticity. *Journal of Alloys and Compounds*, 769:453–462.

- Yang, P., Li, S., Zheng, Z., Zhou, M., and Wang, D. (2007). Precipitation and coarsening of coherent and ordered second phase during stress aging by using phase-field simulations. *Xiyou Jinshu Cailiao yu Gongcheng(Rare Metal Materials and Engineering)*, 36(8):1341–1345.
- Yeh, A.-C., Sato, A., Kobayashi, T., and Harada, H. (2008). On the creep and phase stability of advanced ni-base single crystal superalloys. *Materials Science and Engineering: A*, 490(1):445–451.
- Yu, Z., Wang, X., Liang, H., Li, Z., Li, L., and Yue, Z. (2020a). Thickness debit effect in ni-based single crystal superalloys at different stress levels. *International Journal of Mechanical Sciences*, 170:105357.
- Yu, Z., Wang, X., Yang, F., Yue, Z., and Li, J. C. (2020b). Review of  $\gamma$  rafting behavior in nickel-based superalloys: crystal plasticity and phase-field simulation. *Crystals*, 10(12):1095.
- Zhang, T.-Y., Ko, S.-C., and Lee, S. (2002). Effects of absorption and desorption on the chemical stress field. *Journal of applied physics*, 91(4):2002–2008.
- Zhao, Y., Gao, H., Wen, Z., Zhang, X., Yang, Y., and Yue, Z. (2019). Combined elastic-plastic energy driving criteria of rafting behavior for nickel-based single crystal superalloys. *Materials Science and Engineering: A*, 758:154–162.
- Zhou, N., Shen, C., Mills, M., and Wang, Y. (2007). Phase field modeling of channel dislocation activity and  $\gamma$  rafting in single crystal ni–al. *Acta Materialia*, 55(16):5369–5381.
- Zhou, N., Shen, C., Mills, M., and Wang, Y. (2008). Contributions from elastic inhomogeneity and from plasticity to  $\gamma$  rafting in single-crystal ni–al. *Acta Materialia*, 56(20):6156–6173.
- Zhou, N., Shen, C., Sarosi, P., Mills, M., Pollock, T., and Wang, Y. (2009).  $\gamma$  rafting in single crystal blade alloys: a simulation study. *Materials Science and Technology*, 25(2):205–212.
- Zhu, J., Chen, L.-Q., Shen, J., and Tikare, V. (1999). Coarsening kinetics from a variable-mobility cahn-hilliard equation: Application of a semi-implicit fourier spectral method. *Physical Review E*, 60(4):3564.
- Zrnik, J., Wang, J., Yu, Y., Peijing, L., and Hornak, P. (1997). Influence of cycling frequency on cyclic creep characteristics of nickel base single-crystal superalloy. *Materials Science and Engineering: A*, 234-236:884–888.

## RÉSUMÉ

---

L'objectif de ce travail est de modéliser le couplage fort entre le chargement mécanique et la microstructure dans des conditions de chargements complexes. On développe d'un point de vue théorique les bases thermodynamiques de tels couplages. D'un point de vue expérimental, on teste des couples de diffusion simples, de sorte à mettre en avant ces couplages, notamment pour clarifier le rôle de la plasticité sur la diffusion. Comme exemple d'application industrielle, on s'intéresse au cas des superalliages monocristallins à base de Nickel. Il a été observé qu'à haute température et sous chargement mécanique, les précipités  $\gamma'$  coalescent de manière anisotrope pour former une structure lamellaire de radeaux dans des plans cubiques de type  $\{100\}$ , ce phénomène est appelé la mise en radeaux. Ces évolutions de microstructure pendant la mise en radeaux n'est pas seulement due au processus de diffusion, mais aussi aux chargements thermomécaniques appliqués. La méthode du champ de phase sera utilisée pour modéliser l'évolution de la microstructure, en tenant compte du fort couplage entre les chargements mécaniques, la transformation de phase et la diffusion des espèces chimiques. Un système binaire  $Ni-Al$  avec deux phases  $\gamma(Ni)$  et  $\gamma'(Ni_3Al)$  a été considéré pour l'étude de ce cas. Différents types de chargements ont été simulés tels que le fluage, la fatigue et la fatigue-fluage afin d'étudier leurs effets sur la morphologie des phases, sur leur fraction volumique et sur la cinétique de transformation. L'oxydation de parois minces de superalliages monocristallins à base de Nickel en présence de chargements mécaniques a engendré l'apparition d'une zone de déplétion où une dissolution des précipités  $\gamma'$  a eu lieu. Ces effets sont simulés avec le modèle numérique développé. De plus, des observations expérimentales sont réalisées sur des matériaux industriels et des matériaux modèles afin de mettre en évidence les mécanismes de ce couplage.

## MOTS CLÉS

---

transformation de phase; champs de phase; morphologie des phases; couplage mécanique/diffusion; chargements complexes

## ABSTRACT

---

The objective of this work is to model the strong coupling between mechanical loading and microstructure under complex loading conditions. As a first step, we develop a comprehensive theoretical analysis of coupling for the general case. Experimental tests have been carried out on the basis of simplified diffusion couples so as to illustrate the role of plasticity. Then, an example of industrial application where these couplings impact the behavior is the case of Nickel-based single crystals bearing high temperature loading. It has been observed that at high temperature and under mechanical loading, the precipitates  $\gamma'$  coalesce anisotropically to form a lamellar structure of rafts in cubic planes of type  $\{100\}$ , this phenomenon is called rafting. These microstructure evolutions are not only due to the diffusion process, but also to the thermomechanical loads applied. The phase field method will be used to model the evolution of the microstructure, taking into account the strong coupling between mechanical loadings, phase transformation and diffusion of chemical species.  $Ni - Al$  binary system with two phases  $\gamma(Ni)$  and  $\gamma'(Ni_3Al)$  was considered for the study of this case. Different types of loading were simulated such as creep, fatigue and fatigue-creep in order to study their effects on phase morphology, volume fraction and transformation kinetics. Oxidation on thin walls of nickel-based monocrystalline superalloys in the presence of mechanical loadings led to the appearance of a depletion zone where a dissolution of the  $\gamma'$  precipitates occurred. These effects are simulated with the numerical model developed. In addition, experimental observations are made with industrial materials and model materials to highlight the mechanisms of this coupling.

## KEYWORDS

---

phase transformation; phase field; phase morphology; mechanic/diffusion coupling; complex loads