

**VALIDATION PAR DIFFRACTION DES RAYONS X  
D'UN MODELE MULTI ECHELLE DE  
TRANSFORMATION DE PHASE DES ALLIAGES A  
MEMOIRE DE FORME**

M Fall, K Lavernhe-Taillard, Olivier Hubert

► **To cite this version:**

M Fall, K Lavernhe-Taillard, Olivier Hubert. VALIDATION PAR DIFFRACTION DES RAYONS X D'UN MODELE MULTI ECHELLE DE TRANSFORMATION DE PHASE DES ALLIAGES A MEMOIRE DE FORME. Mécanique des matériaux bio-sourcés, Jan 2014, Aussois, France. hal-01531801

**HAL Id: hal-01531801**

**<https://hal.archives-ouvertes.fr/hal-01531801>**

Submitted on 1 Jun 2017

**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.

# VALIDATION PAR DIFFRACTION DES RAYONS X D'UN MODELE MULTI ECHELLE DE TRANSFORMATION DE PHASE DES ALLIAGES A MEMOIRE DE FORME

M. D. Fall, K. Lavernhe-Taillard et O. Hubert

LMT-Cachan, ENS Cachan /CNRS UMR 8535/PRES UniverSud Paris

61 Avenue du Président Wilson, F-94235 Cachan Cedex, France

Contact: [hubert@lmt.ens-cachan.fr](mailto:hubert@lmt.ens-cachan.fr)

**Mots clés : Alliages à Mémoire de Forme (AMF), Diffraction des Rayons X (DRX), Superélasticité, (transformation) martensitique, (modélisation) multi échelle**

## 1. INTRODUCTION

Le comportement des alliages à mémoire de forme (AMF) est régi par les mécanismes de transformation martensitique à l'échelle de la microstructure, à l'origine de leurs propriétés remarquables (mémoire de forme, superélasticité). Elle peut être induite thermiquement ou mécaniquement avec un couplage fort. La mise au point d'outils de conception fiables nécessite une meilleure prédictibilité du comportement réel des alliages à mémoire de forme sous sollicitations thermomécaniques complexes. Le choix d'une modélisation multiaxiale et multi échelle est pertinente. Parallèlement au développement de ce modèle, une étude expérimentale est nécessaire afin d'une part d'identifier les propriétés intrinsèques du matériau étudié, et d'autre part de valider les estimations de la modélisation. A cette fin, des mesures de fractions volumiques de phase par diffraction des rayons X (DRX) in situ ont été entreprises lors de sollicitations thermiques (cycles de chauffage-refroidissement) et mécaniques (traction uniaxiale). La source utilisée est une source au cobalt ( $\lambda_{Co}=0.17853\text{nm}$ ). Les diffractogrammes donnent l'intensité diffractée par les plans cristallographiques en fonction de leur angle de diffraction. L'exploitation des résultats de diffractométrie nécessite un modèle analytique de diffraction prenant en compte la structure cristalline et les conditions particulières de diffraction. La combinaison de ce modèle de diffraction et du modèle multi échelle permet d'obtenir des diffractogrammes simulés. Ceux-ci seront comparés aux diffractogrammes expérimentaux à des fins de validation. Cette étude est menée sur des échantillons d'un alliage de Nickel Titane quasi équiatomique ( $\text{Ni}_{49.95\text{at\%}}\text{Ti}$ ).

## 2. CARACTERISATION DU MATERIAU

Des études préalables par EBSD (Electron BackScattered Diffraction) (figure 1.a) et par DSC (Differential Scanning Calorimetry) (figure 1.b) ont été menées sur le matériau. La transformation de phase de l'austénite à la martensite est exothermique et la transformation inverse endothermique. La mesure DSC permet d'estimer les sauts d'enthalpies et d'entropies associés. A haute température le NiTi est austénique et présente une maille cubique centrée uni variante ( $a_0=0.3015\text{nm}$ ). La phase à basse température martensitique est monoclinique ( $a=0.2889\text{nm}$ ;  $b=0.412\text{nm}$ ;  $c=0.4662\text{nm}$ ;  $\beta=96.8^\circ$ ) et de plus faible symétrie (12 variantes). L'analyse DSC montre l'existence d'une phase intermédiaire hexagonale appelée phase R ( $a_H=0.7345\text{nm}$ ;  $c_H=0.5272\text{nm}$ ) avec 4 variantes. Les mesures par EBSD montrent que le matériau est austénitique à température ambiante et qu'il présente une texture isotrope transverse héritée du procédé de fabrication (forgeage).

## 3. MODELISATIONS

### 3.1 Modèle Multi échelle (Maynadier et al, 2012)

Le modèle proposé se base sur une formulation thermodynamique des énergies des variantes à l'échelle de la microstructure. Une démarche de changement d'échelle est adoptée pour relier les grandeurs locales aux grandeurs macroscopiques.

#### 3.1.1 Expression des énergies locales

Chaque (variante  $\phi$  de) phase est caractérisée par une énergie libre (1) procédant d'une composante chimique (2) et d'une composante mécanique élastique (3).

$$W_\phi = W_\phi^T + W_\phi^\sigma \quad (1)$$

$$W_{\varphi}^T = H_{\varphi} - TS_{\varphi} \quad (2)$$

$$W_{\varphi}^{\sigma} = \frac{1}{2} \boldsymbol{\sigma}_{\varphi} : \mathbf{C}_{\varphi}^{-1} : \boldsymbol{\sigma}_{\varphi} \quad (3)$$

$H_{\varphi}$  et  $S_{\varphi}$  désignent l'entropie et l'enthalpie de la variante;  $T$  est la température absolue (K);  $\boldsymbol{\sigma}_{\varphi}$  et  $\mathbf{C}_{\varphi}$  désignent respectivement la contrainte et le tenseur d'élasticité locaux. La fraction volumique  $f_{\varphi}$  (4) est estimée à l'aide d'une formulation statistique de Boltzmann. Cette formulation conduit à ce que la variante la plus probable sur les  $n$  variantes possibles soit celle qui minimise l'énergie libre (Daniel et al, 2008). Le paramètre  $A$  définit la largeur des distributions et rend compte du caractère stochastique de la transformation.

$$f_{\varphi} = \frac{e^{-AW_{\varphi}}}{\sum_{\varphi=1}^n e^{-AW_{\varphi}}} \quad (4)$$

### 3.1.2 Procédure de changement d'échelles

L'échelle intermédiaire est celle du grain. La variante est considérée comme une inclusion dans le grain supposé infini, ce qui permet de traiter ce problème comme un problème d'inclusion d'Eschelby. Le tenseur d'Eschelby ( $\mathbf{S}^E$ ) relie la déformation effective de la variante ( $\boldsymbol{\varepsilon}_{\varphi}$ ) à sa déformation « libre » de transformation ( $\boldsymbol{\varepsilon}_{\varphi}^{tr}$ ) dans l'équation (5). La transformation peut être décrite comme une transformation géométrique. La déformation de transformation est alors définie comme le tenseur de Green-Lagrange associé à la transformation (Battacharya, 2003). Nous utilisons par la suite une hypothèse de petite déformation pour l'expression des énergies.

La formulation de Hill permet de prendre en compte une contrainte macroscopique appliquée au grain. Le grain étant une entité où l'élasticité est homogène, l'équation (6) donne l'expression de la contrainte locale par variante  $\boldsymbol{\sigma}_{\varphi}$ .

$$\boldsymbol{\varepsilon}_{\varphi} = \mathbf{S}^E : \boldsymbol{\varepsilon}_{\varphi}^{tr} \quad (5)$$

$$\boldsymbol{\sigma}_{\varphi} = \boldsymbol{\sigma}_g + \mathbf{C}_{\varphi} : (1 - \mathbf{S}^E) : (\boldsymbol{\varepsilon}_g^{tr} - \boldsymbol{\varepsilon}_{\varphi}^{tr}) \quad (6)$$

$\boldsymbol{\sigma}_g$  et  $\boldsymbol{\varepsilon}_g^{tr}$  définissent la contrainte et la déformation de transformation du grain. La détermination du tenseur d'Eschelby est rendue complexe car les variantes ne cessent d'évoluer lors de la transformation. L'hypothèse adoptée des déformations homogènes ( $\mathbf{S}^E = 0$ ) permet de contourner ce problème mais conduit à une surestimation des niveaux de contraintes. Un coefficient de correction « inélastique »  $\delta$  ( $0 < \delta < 1$ ) est donc adopté pour pondérer le tenseur de rigidité. La procédure de localisation modifiée est donnée par l'équation (7).

$$\boldsymbol{\sigma}_{\varphi} = \boldsymbol{\sigma}_g + \delta \mathbf{C}_{\varphi} : (\boldsymbol{\varepsilon}_g^{tr} - \boldsymbol{\varepsilon}_{\varphi}^{tr}) \quad (7)$$

Compte tenu de l'hypothèse d'élasticité homogène par grain, la déformation de transformation du grain ( $\boldsymbol{\varepsilon}_g^{tr}$ ) correspond à une moyenne pondérée des déformations de transformation des variantes.

$$\boldsymbol{\varepsilon}_g^{tr} = \langle \boldsymbol{\varepsilon}_{\varphi}^{tr} \rangle = \sum_{\varphi=1}^n f_{\varphi} \boldsymbol{\varepsilon}_{\varphi}^{tr} \quad (8)$$

Une démarche classique d'homogénéisation et de localisation permet de relier l'échelle du grain à celle du polycristal (Daniel et al, 2008). Elle se base sur la distribution d'orientations de grains obtenue par EBSD.

La figure 2 reporte une simulation de refroidissement d'un VER de 420 grains. Le modèle de DSC est cohérent avec la mesure DSC expérimentale montrant l'apparition de la phase R intermédiaire. Les seuils de transformation sont respectés. Nous retrouvons en toute logique une distribution équiprobable des variantes de chaque phase en l'absence de contrainte extérieure.

## 3.2 Modèle de Diffraction

Le modèle reprend les conditions expérimentales. Le faisceau vient impacter le matériau avec une incidence de  $50^{\circ}$  par rapport à la normale. Le module de l'intensité diffractée dépend de la structure cristalline et est reprise du livre de Cullity (1994). Pour représenter la dispersion due à la variabilité de la microstructure (hétérogénéités locales, contraintes internes,...), nous modélisons les pics sous la forme de gaussiennes centrées sur la déviation angulaire. La texture est prise en compte avec un paramètre de correction selon la forme proposée par Cox et répertoriée dans la thèse de Sitepu (1991).

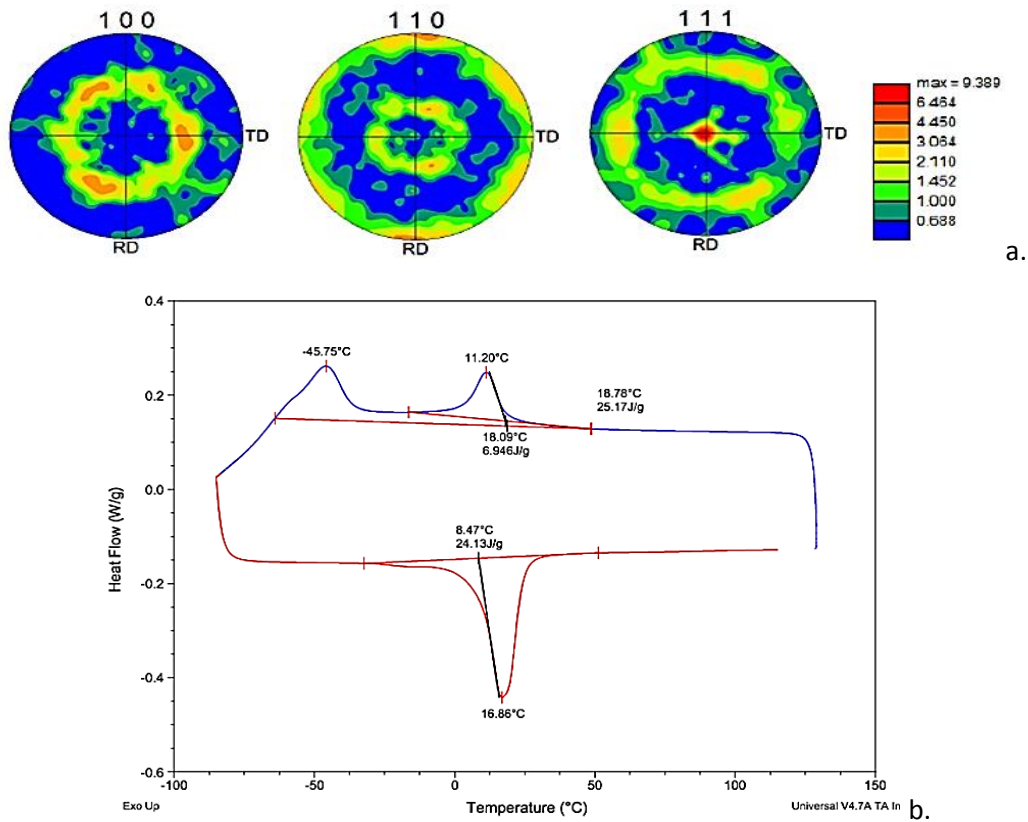


Figure 1. a. figures de pôles obtenues par EBSD b. DSC du matériau (mesure réalisée par V. Delobelle au SIMAP de Grenoble)

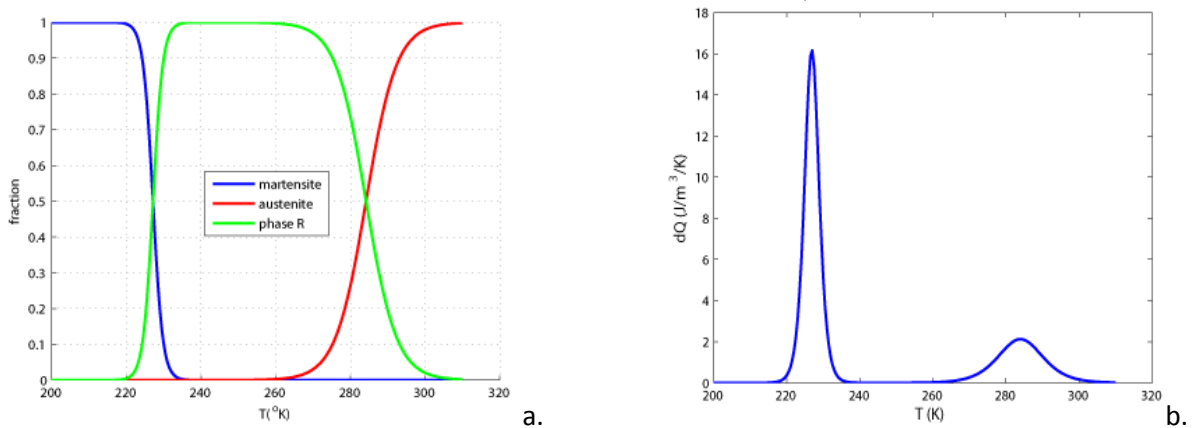


Figure 2. a. Evolution des fractions volumiques d'austénite, de phase R, et de martensite lors du refroidissement d'un VER de 420 grains b. DSC simulée associée à la transformation

## 4. RESULTATS DE DIFFRACTOMETRIE DES RAYONS X IN-SITU

### 4.1 Bilan des Mesures

Des mesures DRX sont réalisées lors d'un cycle de chauffage-refroidissement à contrainte nulle. Nous pouvons voir lors du refroidissement (figure 3.a) la nucléation de la phase R puis de la martensite à partir de la dégénérescence du plan principal d'austénite  $\{A110\}$ . L'évolution du diffractogramme lors du chauffage (non présentée ici) montre une hystérésis de transformation se traduisant par un retard à la transformation.

Les mesures DRX pendant une traction uniaxiale (résultats non reportés ici) à température ambiante montrent un passage apparemment direct de l'austénite à la martensite. En effet, la phase R présente une déformation de transformation beaucoup plus faible que celle de la martensite, ce qui se traduit par un couplage plus faible. Nous observons également une sélection privilégiée des variantes dont l'axe de déformation principal est proche de la direction de sollicitation en traction.

## 4.2 Validation en Température

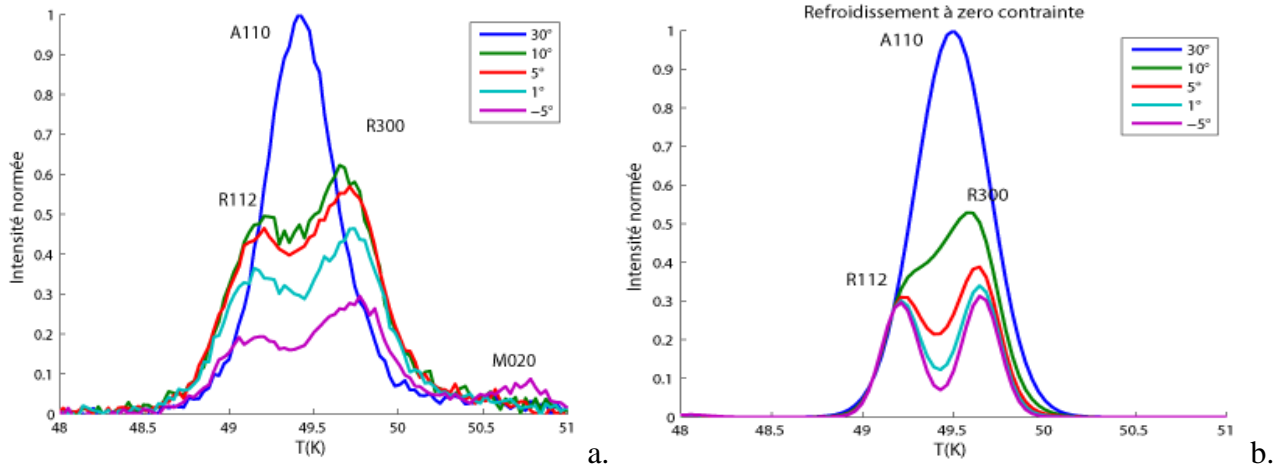


Figure 3. Diffractogramme du NiTi au cours d'un refroidissement ( $A \rightarrow M$ )  
a. Expérience b. Simulation

Le modèle a été validé qualitativement. En utilisant les paramètres répertoriés dans le tableau 1: il permet de rendre compte des phénomènes associés à la transition de phase (apparition de la phase R et uniformité de la transformation en température, sélection de variantes sous chargement mécanique); il permet de retrouver des profils de diffraction cohérents avec les mesures expérimentales. Le modèle est actuellement en cours de validation quantitative.

Tableau 1. Paramètres de simulation

Enthalpies de transformation $H_A - H_R = 34.7 \cdot 10^6 \text{ J.m}^{-3}$ $H_A - H_M = 120.6 \cdot 10^6 \text{ J.m}^{-3}$	Entropies de transformation $S_A - S_R = 0.12 \cdot 10^6 \text{ J.m}^{-3} \cdot \text{K}^{-1}$ $S_A - S_M = 0.50 \cdot 10^6 \text{ J.m}^{-3} \cdot \text{K}^{-1}$	Autres paramètres $\delta = 1$ $A = 2 \cdot 10^{-6} \text{ m}^3 \cdot \text{J}^{-1}$	Pas de température -0.5K
---	---	--	-----------------------------

## 5. CONCLUSION

Ce travail de thèse jette les bases d'une approche expérimentale et de modélisation des phénomènes de transition de phase sous sollicitations thermomécaniques complexes (température, contraintes multiaxiales). Le modèle adopté est extensible à d'autres catégories d'AMF comme les AMF magnétiques. L'utilisation de la DRX in situ ouvre déjà des perspectives intéressantes; notamment la possibilité d'explorer des chargements multiaxiaux complexes.

## REFERENCES

- Battacharya K., "Microstructure of Martensite: why it forms and how it gives rise to the shape memory effect?", *Oxford series on materials modelling*, (2003)
- Cullity B.D., "Elements of X-Ray Diffraction", *Addison-Wesley publishing company*, (1978) (second edition)
- A. Maynadier, D. Depriester, K. Lavernhe-Taillard, O. Hubert, "Thermo-mechanical description of phase transformation in Ni-Ti Shape Memory Alloy", *Procedia Engineering*, (2011) 10: 2208–2213
- L. Daniel, O. Hubert, N. Buiron, R. Billardon, *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, (2008) 56 : 1018–1042
- Sitepu, "Characterisation of preferred orientation in crystalline materials by X-ray powder diffraction", Thèse (1991)