Université Paris XIII, Villetaneuse
Laboratoire des Propriétés Mécaniques et Thermodynamiques des Matériaux (LPMTM, UPR9001)
Fédération Francilienne de Mécanique des Matériaux, Structures, Procédés (F2Mmsp, FR2609)

Mémoire présenté en vue de l'obtention d'une

HABILITATION A DIRIGER DES RECHERCHES

par

Olivier CASTELNAU
Chargé de Recherche au CNRS

Microstructures, hétérogénéités de déformation, et comportement effectif des polycristaux

Soutenance prévue le 05 juillet 2006 à Villetaneuse devant le Jury composé de

M. Thierry BRETHEAU	LIM, Paris	rapporteur
M. Pedro PONTE-CASTANEDA	LMS-X, Palaiseau	rapporteur
M. Olivier THOMAS	TECSEN, Marseille	rapporteur
M. Paul DUVAL	LGGE, Grenoble	examinateur
Mme. Brigitte BACROIX	LPMTM, Villetaneuse	examinateur
M. Claude PRIOUL	LMSSMat, Chatenay-Malabry	examinateur

LPMTM, Institut Galilée, Université Paris Nord, 99 av. J.B. Clément, 93430 Villetaneuse, France.
(oc@lpmtm.univ-paris13.fr)

Remerciements

Je tiens tout d'abord à remercier vivement Brigitte Bacroix, Thierry Bretheau, Pedro Ponte-Casteñeda, Paul Duval, Claude Prioul, et Olivier Thomas, de m'avoir fait l'honneur d'accepter de participer au jury de cette habilitation, malgré leur emploi du temps chargé, et pour les commentaires, remarques, et suggestions enrichissantes qui ont été émis lors des discussions.

Je tiens également à témoigner ma reconnaissance à Brigitte Bacroix. Brigitte m'avait proposé de travailler dans le domaine de l'analyse par diffraction lors de mon affectation au LPMTM. Cette proposition s'est avérée être le point de départ du travail présenté dans ce mémoire. La confiance que Brigitte m'a accordée et son soutien en toutes circonstances m'ont permis de profiter pleinement de ces années passées au LPMTM.

Ce travail s'est nourri de nombreuses discussions, généralement informelles, mais qui, de manière souvent imperceptible, permettent d'avancer dans la compréhension des phénomènes observés et de proposer de nouveaux projets. Dans ce contexte, la Fédération Francilienne de Mécanique (F2M) offre un cadre de travail particulièrement agréable. Je tiens à remercier notamment mes collègues les plus directs, Rénald Brenner pour les discussions quotidiennes, mais aussi Michel Bornert, Pierre Gilormini, André Zaoui pour les échanges réguliers et particulièrement instructifs. Ce travail s'est également enrichi d'une collaboration durable avec Ricardo Lebensohn, qui a su me faire largement bénéficier de son expérience dans le domaine de la modélisation micromécanique. Je tiens à remercier également Jean-Luc Béchade et Marie-Hélène Mathon de m'avoir fait partager leur expertise en diffraction et en sciences des matériaux, et pour les bons moments passés ensemble. Merci également aux collègues de Poitiers, Philippe Goudeau, Pierre-Olivier Renault, Eric Le Bourhis, Damien Faurie, pour m'avoir initié dans le domaine des films minces et pour les discussions ouvertes et motivantes qui ont eu lieu.

La partie expérimentale de ce travail n'aurait pu être réalisée sans le soutien des services communs du LPMTM. Je remercie en particulier Thierry Chauveau pour son aide dans le domaine de la diffraction X et dans la conduite d'expériences en rayonnement synchrotron, mais également Marie-Hélène Chavanne, Rémi Chiron, Jean-Pierre Leroux, Monique Morel, Vincent Richard, pour leur soutien et leur expertise concernant la préparation d'échantillons, les observations en Microscopie Electronique, et les essais in-situ.

Des questions administratives accompagnent inévitablement le travail de recherche. Je remercie vivement Nathalie Duros, Virginie Dunet, et Ludovic Pari pour leur collaboration, leur efficacité, et leur bonne humeur.

Merci enfin à tous ceux qui, de prêt ou de loin, m'ont rendu ces années agréables.

Résumé

Ce travail de recherche est une contribution à la compréhension du lien existant entre les mécanismes physiques mis en jeu lors de la déformation des polycristaux, la microstructure du matériau et son évolution, et le comportement effectif. L'approche suivie est essentiellement basée sur l'analyse des hétérogénéités de champs à différentes échelles, avec le souci constant de confronter les prédictions théoriques aux données expérimentales. Il s'agit d'un travail de recherche à caractère plutôt fondamental, mené en collaboration avec plusieurs chercheurs de laboratoires français ou étranger, ainsi qu'avec des partenaires industriels. L'approche suivie s'insère dans les thématiques du LPMTM ainsi que dans plusieurs actions de la Fédération Francilienne de Mécanique F2Mmsp.

L'application de méthodes d'homogénéisation en champ moyen, notamment le schéma auto-cohérent, a été privilégié pour estimer le comportement effectif des polycristaux. Le travail mené est centré sur l'influence de la microstructure du matériaux (textures cristallographiques et morphologiques) sur l'anisotropie effective et sur la distribution des champs dans les différentes orientations cristallographiques. Pour les comportements de type thermo-élastiques linéaires, il a été proposée une procédure de calcul de l'hétérogénéité intraphase des contraintes et des déformations pour les microstructures du type "assemblage de Hashin". Cela nous a permis de montrer l'importance de considérer cette hétérogénéité pour une prédiction améliorée des évolutions de microstructure. Une méthode de traitement amélioré de l'écrouissage de polycristaux visqueux linéaires a été proposée. S'agissant des comportements non-linéaires, ce travail a abouti à la mise en évidence de certaines propriétés remarquables de l'estimation variationnelle de Ponte-Castañeda, et la proposition d'une linéarisation "affine modifiée". Nous montrons que le choix d'une extension non-linéaire particulière du schéma auto-cohérent a une forte influence sur la distribution intra– et inter–phase des champs mécaniques. D'autre part, concernant les comportements élasto-visco-plastiques, une méthode dite "quasi-élastique" a été développée pour l'extension affine du schéma auto-cohérent. Elle permet la prise en compte des effets de mémoire longue tout en conservant un traitement numérique efficace. L'ensemble de ces développements a été appliqué à plusieurs matériaux (glaces polaires, alliages de zirconium, aciers, cuivre, ...) par l'intermédiaire de procédures d'identification des paramètres du comportement local sur la réponse effective des matériaux. L'influence des textures cristallographiques et morphologiques, du trajet de chargement, et du comportement local sur le comportement effectif et la distribution des champs dans le matériau est analysée. Lorsque cela a été possible, des confrontations avec des calculs en champ complet (résolution par FFT) ont été menées. On montre, globalement, qu'une validation de la modélisation doit passer par une confrontation des résultats à l'échelle de la phase mécanique ou à une échelle inférieure.

La volonté de confrontation à des résultats expérimentaux demande un investissement dans les techniques de mesures adaptées. La technique de diffraction des rayons X et des neutrons est particulièrement bien adaptée de part son aspect polyvalent et l'obtention directe d'une information statistique sur un champ mécanique (les déformations élastiques). Du point de vue expérimental, la démarche suivie vise à développer une procédure permettant une estimation fiable des incertitudes de mesure. Pour cela, nous avons mis en place au LPMTM un ensemble de diffractomètres présentant des résolutions instrumentales complémentaires afin de pouvoir caractériser les matériaux d'études dans les meilleures conditions. Parallèlement, un modèle dit "de suivi de rayons" a été développé pour modéliser les réponses instrumentales de ces instruments dans le but, à terme, d'optimiser les conditions de mesures et de corriger les mesures brutes des aberrations des diffractomètres. D'autre part, nous avons clarifié l'interprétation mécanique des mesures de diffraction, montrant en particulier que les conditions permettant de réaliser des "mesures de contraintes" sont rarement réunies dans la pratique. J'ai montré la pertinence d'appliquer

les méthodes d'homogénéisation pour l'interprétation des mesures en volume, telles que celles obtenues en diffusion de neutrons, autant au niveau des fluctuations inter– que intra–phases. Ces développements ont été appliqués à divers matériaux, massifs et nanostructurés. Dans le régime purement élastique, on montre un très bon accord avec les prédictions théoriques autant sur les hétérogénéités intraphases que interphases. Dans le régime plastique, on montre la pertinence des prédictions du schéma auto-cohérent affine concernant la distribution des contraintes résiduelles moyennes par phase dans les alliages de zirconium. Enfin, la distribution de l'énergie stockée par les dislocations est analysée par l'élargissement des raies de diffraction dans le but d'une meilleure compréhension des mécanismes de recristallisation. Parallèlement, nous avons développé un montage de microdiffraction en faisceau monochromatique sur le synchrotron européen (ESRF-Grenoble) permettant d'obtenir des informations intragranulaires sur l'hétérogénéité des champs. Ces analyses en microdiffraction se poursuivent actuellement sur le synchrotron ALS (Berkeley), en faisceau blanc, dans le but d'une confrontation plus fine avec les observations d'hétérogénéité de déformation pouvant être obtenues en Microscopie Electronique à Balayage. Globalement, le but fixé ici est d'aboutir à une utilisation des mesures de diffraction pour l'identification, par méthode inverse, du comportement local des polycristaux.

Table des matières

Introduction **9**

1 Apport des méthodes d'homogénéisation en champ moyen **13**

1.1 Contexte 13

1.2 Prédiction du comportement viscoplastique par l'extension tangente 15

1.2.1 Influence de la texture cristallographique sur le comportement du Zr702 16

1.2.2 Fluage stationnaire de glaces polaires 17

1.2.3 Potentialités pour la prédiction des microstructures de recristallisation 20

1.3 Hétérogénéités intraphases pour les comportements linéaires 21

1.3.1 Calcul en thermo-élasticité et application 22

1.3.2 Effet de la microstructure sur l'hétérogénéité des champs 24

1.3.3 Conséquence sur la prédiction de l'écrouissage 26

1.4 Extensions non-linéaires et conséquences 28

1.4.1 Effet de la linéarisation sur les hétérogénéités des champs 29

1.4.2 Sur l'extension "sécante modifiée" 30

1.4.3 Proposition d'une extension "affine modifiée" 32

1.5 Prise en compte des effets de "mémoire longue" 33

1.5.1 Formulation de l'approximation quasi-élastique 34

1.5.2 Application au fluage d'un alliage de zirconium 36

1.5.3 Application au fluage de la glace 37

1.6 Conclusion 38

2 Analyse de la distribution des déformations élastiques par diffraction **41**

2.1 Contexte 41

2.2 Mise en oeuvre expérimentale 44

2.2.1 Développement expérimental en laboratoire 44

2.2.2 Vers une maîtrise de la réponse instrumentale 46

2.3 Analyse mécanique des mesures de diffraction 48
2.3.1 Grandeurs mécaniques contenues dans les raies de diffraction 49
2.3.2 Interprétation micromécanique 51
2.4 Hétérogénéités de déformation dans le domaine élastique 53
2.4.1 Comportement élastique de films minces nanostructurés 54
2.4.2 Hétérogénéités de déformation dans un acier Dual-Phase 55
2.5 Contraintes résiduelles générées par la plasticité 56
2.5.1 Recristallisation des aciers IF-Ti 57
2.5.2 Ecrouissage et recristallisation du cuivre ETP 58
2.5.3 Fluage thermique d'un alliage de zirconium 60
2.6 Vers une cartographie de l'hétérogénéité spatiale des contraintes 62
2.6.1 Tentative de réalisation en faisceau monochromatique 63
2.6.2 Les potentialités de la microdiffraction en faisceau blanc 66
2.7 Conclusion 69

Conclusion générale **71**

Perspectives **75**

Bibliographie **79**

Curriculum Vitae **89**

Production scientifique **95**

Articles joints **105**

Introduction

La grande majorité des matériaux de structure d'usage industriel (composites, métaux, polymères, ..), mais également tous les matériaux de la Géophysique (minéraux, glaces, ..), pour ne citer que cela, sont hétérogènes du point de vue de la Mécanique. Ils sont composés de constituants élémentaires (matrice et renforts pour les composites, grains pour les polycristaux) possédant un comportement mécanique différent du comportement effectif, de sorte que tout chargement macroscopique homogène au contour induit une distribution de contrainte et de déformation hétérogène dans le matériau. Cette hétérogénéité provient de l'interaction complexe entre les constituants, qui réagissent différemment au chargement macroscopique. Le maintien de la cohésion du matériau ne peut être possible que par l'instauration d'un champ de contrainte interne, complexe, dont l'intensité augmente globalement avec l'hétérogénéité mécanique du matériau (contraste mécanique entre les constituants "durs" et les constituants "mous") et la non-linéarité du comportement. La compréhension de l'hétérogénéité des champs mécaniques est primordiale pour de nombreux problèmes. Par exemple, en plasticité cristalline, un système de glissement ne sera activé que si la cission résolue *locale*, i.e. au point matériel considéré, atteint la cission critique ; c'est ainsi le champ local, et non pas un quelconque champ moyen, qui gouverne l'activation locale d'un système de glissement. Il en découle naturellement que le comportement effectif d'un polycristal est intimement lié à l'hétérogénéité des champs en son sein. Les chargements thermomécaniques modifient d'autre part la microstructure des polycristaux. Les déformations plastiques entraînent une modification drastique de la structure de dislocations, une évolution rapide de la texture cristallographique, et des désorientations intragranulaires significatives. Les chargements thermiques favorisent la restauration et peuvent même entraîner une recristallisation complète, dans le but général d'atteindre un nouvel état de moindre énergie.

La compréhension du lien existant entre la microstructure d'un matériau, les mécanismes activés lors d'un chargement macroscopique, et son comportement effectif, est primordiale en vue d'optimiser les matériaux utilisés actuellement ou de créer de nouveaux matériaux alliant une ou plusieurs propriétés optimisées. Elle permet également d'imaginer quelles sont les microstructures susceptibles d'exister lorsqu'une observation directe du matériau est impossible, par exemple dans les profondeurs du manteau ter-

restre. Evidemment, de nombreuses équipes de recherche de part le monde s'intéressent à ce problème délicat, et les méthodes d'investigation varient selon qu'une solution plutôt "phénoménologique" ou plutôt "à base physique" est recherchée, selon l'échelle d'investigation, ou selon l'approche considérée centrée sur les développements théoriques ou la mise en évidence expérimentale.

Dans ce contexte, mon travail de recherche s'inscrit dans le cadre général des approches micromécaniques. Les matériaux étudiés sont essentiellement les polycristaux, mais parfois le recours à des matériaux plus simples ou modèles (composites biphasés, matériaux 2-D) est nécessaire. Ma recherche s'est articulée globalement autour de l'analyse de l'hétérogénéité des champs mécaniques à différentes échelles, pour les comportements thermo-élasto-visco-plastiques. Les applications visées sont bien sûr l'étude du comportement mécanique, mais également l'analyse des états mécaniques et thermodynamiques locaux après une histoire de chargement donnée, en vue de mieux comprendre les phénomènes associés tels que la recristallisation. Une telle analyse peut être menée de nombreuses manières. J'ai choisi, au cours de ces dix dernières années, d'appliquer et de développer simultanément deux techniques particulières, l'une théorique, l'autre expérimentale.

- Les méthodes d'homogénéisation en champs moyens permettent la prédiction du comportement mécanique de matériaux hétérogènes. Elles sont basées sur une description statistique de la microstructure, et sont de fait bien adaptées aux matériaux à microstructure aléatoire comme les polycristaux. Cette technique ne permet pas d'accéder aux détails de la localisation spatiale des hétérogénéités des champs mécaniques, comme par exemple au voisinage des joints de grains. Cependant, les constituants montrant un même comportement mécanique sont traités comme une seule "phase mécanique"[a], dans laquelle la distribution des champs sera décrite de manière statistique. Les avantages principaux de cette méthode sont (i) de n'utiliser que l'information disponible (mesurable) sur la microstructure pour borner ou estimer le comportement effectif, et (ii) d'offrir une résolution numérique très efficace permettant d'envisager l'utilisation des modèles de manière inverse afin d'identifier les paramètres du comportement local. En contre partie, certaines extensions proposées dans la littérature pour les comportements non-linéaires souffrent d'incohérences qu'il s'agit de comprendre et de corriger.
- Pour les matériaux cristallins, la diffraction des rayons X ou des neutrons permet une mesure de la distribution des déformations élastiques dans le matériau. Il s'agit d'une technique très polyvalente puisque les volumes d'analyse peuvent aller du μm^3 au cm^3, selon le montage et le rayonnement utilisés. Le fait que la mesure soit directionnelle, et qu'elle sélectionne naturellement un

[a]On défini par "phase mécanique" l'ensemble des constituants du matériaux présentant le même comportement mécanique. Pour les polycristaux élastiques, une phase mécanique sera donc constituée de l'ensemble des grains de même orientation cristallographique. La même définition sera appliquée pour les comportements viscoplastiques, malgré un comportement pouvant être hétérogène dans un même grain.

nombre restreint de phases mécaniques, est évidemment un atout pour l'étude de l'hétérogénéité des champs. La caractérisation de la distribution des déformations élastiques est extrêmement riche de renseignements. En effet, ces déformations peuvent être considérées comme la signature du comportement du matériau et de son histoire thermomécanique. Aussi minime soit-il, tout chargement macroscopique qui entraîne une réponse hétérogène du matériau génère des contraintes internes et donc un champ de déformation élastique hétérogène. La contre partie de cette richesse, que je développerai dans ce rapport, est que l'interprétation des mesures se complique considérablement avec l'histoire thermomécanique du matériau. Ainsi, le terme souvent associé de "mesure de contrainte" n'est généralement pas adapté.

Le travail que j'ai mené est une recherche fondamentale réalisée en collaboration étroite avec de nombreux chercheurs français et étrangers, souvent dans le cadre de projets de recherche soutenus par le CNRS, le Ministère de la Recherche, ou l'industrie. Au sein du LPMTM, mon travail s'insère dans une Opération de Recherche dont les thèmes principaux sont la Plasticité, la Recristallisation, et les Inhomogénéités de déformation (PRIM). Il s'insère également pleinement dans la Fédération Francilienne en Mécanique des Matériaux, Structures, et Procédés (F2Mmsp), sur plusieurs thématiques principales.

Dans la suite de ce rapport, je commencerai par présenter le travail réalisé à l'aide des techniques d'homogénéisation (chapitre 1). Je présenterai l'application de l'extension tangente à l'étude de l'effet de la texture cristallographique sur le comportement viscoplastique d'un alliage de zirconium et de la glace polaire. Ensuite, l'accent sera mis sur le calcul de l'hétérogénéité intraphase des champs et l'intérêt de considérer cette hétérogénéité pour estimer les évolutions de microstructures. Pour finir, je montrerai l'apport de nouvelles extensions pour les comportements non-linéaires, et indiquerai les développements proposés pour le traitement des comportements élasto-visco-plastiques. Dans le chapitre 2, je m'attacherai à décrire les développements expérimentaux réalisés dans le domaine de la diffraction. Une partie conséquente du travail a consisté à reconsidérer l'interprétation mécanique des mesures, en termes de distribution de champ. Je montrerai notamment l'intérêt des méthodes d'homogénéisation en champ moyen pour l'interprétation des mesures en volume. Ensuite, je donnerai quelques indications sur les développements instrumentaux réalisés au LPMTM, pour finir par ma contribution dans le développement de la microdiffraction en rayonnement synchrotron. Je finirai par une conclusion et les perspectives envisagées.

Chapitre 1

Apport des méthodes d'homogénéisation en champ moyen

1.1 Contexte

Pour estimer le comportement d'un agrégat polycristallin, deux types d'approches sont possibles. Les approches dites "en champ complet" ("full-field" en anglais) nécessitent une connaissance complète de la microstructure. L'arrangement des grains, leur morphologie, .. étant connus, les champs de contrainte et de déformation peuvent être calculés en tout point du matériau. Ces approches se basent généralement sur une résolution numérique par Eléments Finis (EF) [12, 93, 6, 94]. Plus récemment une méthode basée sur les Transformées de Fourier (FFT), plus puissante mais limitée à des conditions aux limites périodiques, a été proposée [77, 51]. Ces approches sont très puissantes pour l'étude de phénomènes locaux, la modélisation d'un petit ensemble de grains, ou lorsque le composite ne comporte qu'un nombre restreint de phases mécaniques [104, 32]. Cependant, l'étude du comportement effectif des polycristaux est plus délicate en raison du grand nombre de phases mécaniques à considérer et du caractère aléatoire de la microstructure qui, de plus, peut rarement être caractérisée en 3-D. L'application de ces méthodes à l'étude du comportement effectif passe donc par une étape préliminaire de construction d'une microstructure modèle qui doit se rapprocher, sous certains aspects au moins, de la microstructure réelle [41, 15]. Les analyses 3-D demandent évidemment une puissance de calcul conséquente étant donnée la taille du Volume Elémentaire Représentatif (VER) à considérer [43]. On notera cependant que de tels calculs sont réalisables depuis quelques années avec l'augmentation de la puissance des ordinateurs. Sur ce point, une résolution par FFT est à privilégier lorsque cela est possible.

Les méthodes dites "en champ moyen" (mean-field) offrent l'avantage indéniable de ne prendre en compte que l'information accessible (i.e. mesurable) sur la microstructure. Une connaissance partielle de la microstructure, généralement décrite de manière statistique, ne permet d'aboutir qu'à des bornes du potentiel effectif, alors qu'une estimation du comportement effectif peut être obtenue pour

des microstructures parfaitement déterminées [119, 71]. On ne s'attache ici plus à déterminer rigoureusement les champs en tout point du matériau, mais seulement à en évaluer quelques valeurs statistiques représentatives (moyenne, variance, champ effectif). Il en découle un traitement numérique largement allégé, ce qui est un avantage conséquent pour l'application à des matériaux réels, et en particulier pour l'identification des paramètres de la loi du comportement local sur une base expérimentale.

Pour les comportements linéaires, les bornes de Reuss [90] et Voigt [111] sont les bornes les plus resserrées que l'on puisse obtenir lorsque l'on connait simplement le comportement élastique des constituants et leur fraction volumique. Elles sont obtenues en supposant respectivement des champs de contrainte et de déformation uniformes dans le matériau. On notera qu'elles s'étendent aux comportements non-linéaires (modèle de Taylor et modèle statique) [8, 39]. La dérivation des bornes de Hashin and Shtrikman [33] est obtenue à l'aide d'une hypothèse supplémentaire d'isotropie de la microstructure. La borne supérieure a été étendue aux comportements non-linéaires à l'aide d'une approche variationnelle [84, 103, 88] qui peut être interprétée par une linéarisation "sécante modifiée" [102]. Les bornes d'ordre supérieur intègrent des informations supplémentaires sur la microstructure et sont d'un développement délicat. Une approche complémentaire [82] consiste à utiliser la nécessaire isotropie de certains tenseurs pour resserrer les encadrements. Globalement, l'écart entre les bornes inférieure et supérieure augmente avec le contraste mécanique entre les phases du matériau et avec la non-linéarité du comportement. Ainsi, les bornes de Reuss et Voigt fournissent un encadrement généralement suffisant en élasticité, alors qu'elles ne sont que de peu d'utilité en plasticité.

Pour une application concrète aux polycristaux, l'estimation auto-cohérent (AC) est généralement employée. Cela se justifie par le fait que la microstructure de ces matériaux est de type "granulaire", c'est-à-dire qu'aucune phase mécanique ne joue de rôle privilégiée par rapport à une autre, par opposition aux microstructures "particulaires" de type matrice-renforts des composites. L'estimation auto-cohérente donne la solution, dans le cadre des comportements linéaires, pour les microstructures dites "parfaitement désordonnées" [49], pour lesquelles toutes les fonctions de corrélation des fonctions caractéristiques sont isotropes, jusqu'à l'ordre infini. Evidemment la ressemblance avec la microstructure réelle des polycristaux, qui peut être très variée, n'est que qualitative.

L'extension du schéma auto-cohérent aux comportements non-linéaires repose sur une étape de linéarisation du comportement local. Généralement, les modules linéarisés sont pris homogènes par phase, et la microstructure du matériau linéarisé est choisie identique à celle du matériau non-linéaire original. On se ramène ainsi à un problème d'homogénéisation linéaire de type thermo-élastique, que l'on sait homogénéiser. Plusieurs méthodes de linéarisation ont été proposées dans la littérature pour la visco-plasticité [39, 75, 68] avec pour chacune d'elle des faiblesses qui se traduisent notamment par le franchis-

sement de bornes rigoureuses aux fortes non-linéarités [28]. Les développements basés sur les approches variationnelles [84, 85, 86] sont d'une mise en oeuvre plus délicate, mais offrent l'avantage indéniable, entre autre, de respecter les bornes par construction. Les travaux les plus récents [96, 53, 40] montrent tout l'intérêt de ces approches plus rigoureuses, puisqu'elles permettent de reproduire fidèlement certains résultats de calcul en champ complet.

Ma contribution dans ce domaine a consisté à appliquer les méthodes d'homogénéisation proposées dans la littérature au cas de matériaux réels, à proposer des améliorations aux méthodes existantes, et à exploiter les résultats au regard notamment des hétérogénéités de champs, intra– et inter–phase. Ce travail a été mené au travers de plusieurs collaborations dont certaines dans le cadre de programmes de recherches financés. Il a bénéficié de nombreuses discussions, plus ou moins formelles, dont les principales sont indiquées ci-dessous. Au LPMTM, une partie importante du travail a été menée avec Rénald Brenner.

Communications associées :[a] 6.25, 6.48, 6.53

1.2 Prédiction du comportement viscoplastique par l'extension tangente

L'extension tangente du schéma auto-cohérent pour les comportements viscoplastiques (approche "VPSC") a été proposée initialement par Molinari et al. [75], puis reprise par Lebensohn and Tomé [52] dans une formulation incluant les anisotropies locale et globale. Cette approche est limitée aux comportements locaux en loi puissance, avec une sensibilité à la contrainte unique dans le polycristal. Elle est basée sur une linéarisation tangente du comportement local, avec un module tangent qui ne dépend que des contraintes moyennes par phase. Le comportement effectif est également linéarisé de manière tangente. Le problème de type thermo-élastique ainsi obtenu est ensuite tranformé en un problème de type purement élastique, les modules tangents devenant des modules sécants par l'application des propriétés de la loi puissance. Il est maintenant reconnu que cette approche donne des estimations trop souples pour les fortes non-linéarités [28, 68].

L'approche VPSC a permis d'obtenir des avancées significatives, notamment par rapport aux modèles de Taylor ou Taylor relaché, en particulier pour les matériaux à forte anisotropie locale. La volonté des auteurs de diffusion libre (mais contrôlée) d'un code numérique opérationnel lui a valu un grand succès, qui persiste encore de nos jours. Il a été souvent écrit que cette approche consiste à remplacer l'interaction d'un grain dans un polycristal par une inclusion ellipsoïdale de même comportement dans un Milieu Homogène Equivalent (MHE), traitée selon les résultats d'Eshelby [22], entraînant ainsi des champs homogènes dans les grains. Cette vision n'est pas correcte, ex. [88], comme il sera détaillé plus

[a] La numérotation est relative à celle indiquée dans la partie "Production scientifique" de ce rapport.

loin (section 1.3).

J'avais commencé à utiliser le schéma VPSC dans ma thèse, pour l'étude de l'anisotropie viscoplastique des glaces polaires en liaison avec les textures cristallographiques. Ce travail s'est poursuivi lors de mon arrivée au LPMTM, et a naturellement débouché sur des applications aux polycristaux métalliques.

1.2.1 Influence de la texture cristallographique sur le comportement du Zr702

Cette étude s'est inscrite dans la suite de la thèse d'Henri Francillette [25], dirigée par Brigitte Bacroix (LPMTM) et Jean-Luc Béchade (CEA-Saclay), qui consistait en l'étude de l'influence de la texture cristallographique sur la réponse mécanique et l'activation des systèmes de glissement du zirconium 702. Lors de cette thèse, plusieurs essais en compression plane avaient été réalisés sur des matériaux présentant des textures initiales variées, pour des déformations plastiques allant jusqu'à 40%. L'application du schéma VPSC nous a permis de mieux comprendre l'anisotropie plastique des agrégats ainsi que le comportement local en termes d'activation des systèmes de glissement. En effet, le cristal de zirconium, de structure hexagonale compacte (HCP), se déforme à température ambiante essentiellement par glissement de dislocations sur les plans prismatiques $\{10\bar{1}0\} < 11\bar{2}0 >$ et par maclage de traction (systèmes "primaires"). Les systèmes de glissement sur les plans pyramidaux ou basaux, que l'on appelle "secondaires", ne s'activent que sous l'effet d'une cission résolue plus élevée [1]. L'activité des systèmes prismatiques, définie comme la contribution de ce système au glissement total dans le matériau, est donc dominante. Il en résulte une forte anisotropie viscoplastique à l'échelle du grain et une influence marquée de la texture cristallographique sur le comportement effectif [70]. D'autre part, la prise en compte de l'écrouissage intragranulaire, nécessaire aux études en grandes transformations, avait été peu abordée dans la littérature, ou alors par l'intermédiaire de lois simples sans validation expérimentale solide [83].

Dans cette étude, nous avons utilisé la loi d'écrouissage anisotrope et saturante proposée par Bronkhorst et al. [12], dont les paramètres ont été identifiés sur la réponse macroscopique des échantillons. Nous avons pu montrer que l'effet de la texture cristallographique est correctement capturée par le modèle, et que l'activité des systèmes de glissement secondaires augmente avec la déformation (figure 1.1). On observe que l'écrouissage intracristallin n'affecte que très peu le développement des textures. A une échelle plus locale, une bonne correspondance a pu être obtenue entre l'activation des systèmes secondaires prédite par le modèle et les observations expérimentales basées sur l'analyse des traces de glissement en Microscopie Electronique à Balayage (MEB), avec notamment une forte probabilité d'activation du glissement basal pour l'échantillon T3. Nous reviendrons cependant dans la section 1.3 sur le calcul de cette "activité".

Collaborations : G. R. Canova (GPM2), R. A. Lebensohn (Univ. Rosario), H. Francillette, B. Bacroix,

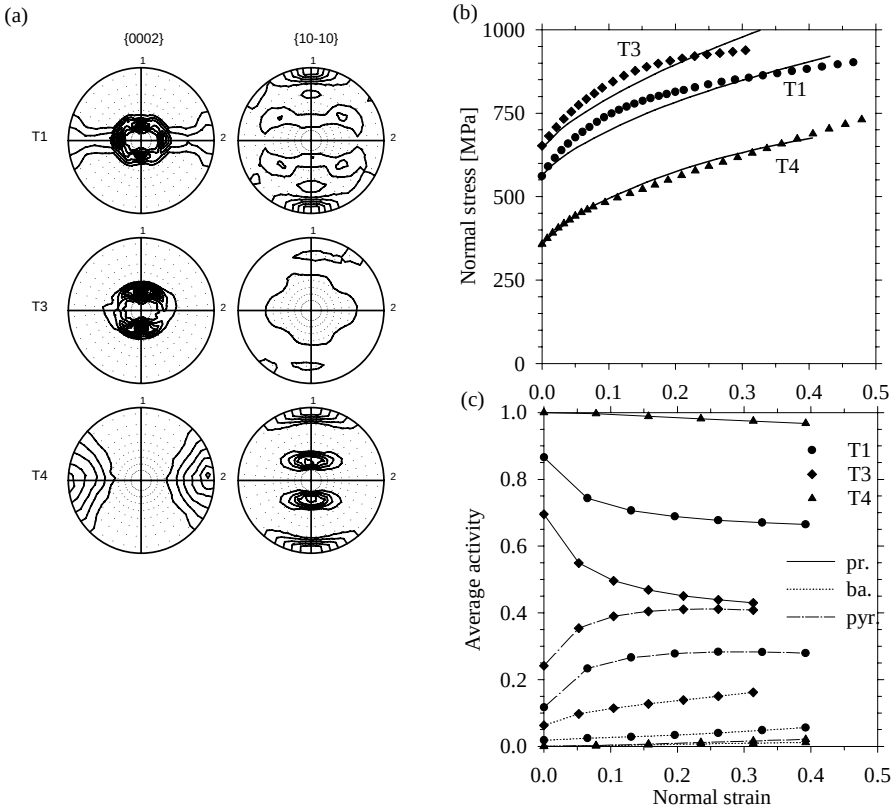


FIG. 1.1 – (a) Textures des trois échantillons T1, T3, et T4, de zirconium 702, et (b) réponses mécaniques associées, expérimentales (points) et calculées (traits). (c) Activité moyenne des systèmes prismatiques (pr.), basaux (ba.), et pyramidaux (pyr.), calculée avec le modèle VPSC.

M. Gaspérini (LPMTM), J.L. Béchade (CEA-Saclay)

Communications associées : 1.6, 1.10, 1.18, 6.12, 6.13, 6.17

1.2.2 Fluage stationnaire de glaces polaires

La meilleure connaissance de la rhéologie des glaces polaires est importante pour comprendre la dynamique des calottes polaires, et notamment leur réponse à un changement climatique. La glace a une structure cristalline hexagonale avec un glissement de dislocations presque exclusivement sur le plan de base et une absence complète de maclage de déformation , ce qui procure au cristal une très forte anisotropie viscoplastique [61, 13]. Le très faible taux d'impuretés solubles (de l'ordre de 0.1 ppm) et la présence de textures cristallographiques souvent très prononcées en font un matériau d'étude privilégié. Ce sujet de recherche avait été abordé pendant ma thèse, et j'ai ensuite continué la modélisation du comportement mécanique lors de mon recrutement au CNRS. L'objectif était d'appliquer à ce matériau une méthode d'homogénéisation plus rigoureuse que les modèles *ad hoc* (trop) souvent développés en Géophysique. Ce travail a été réalisé en collaboration notamment avec Paul Duval et se poursuit avec

Maurine Montagnat (LGGE, Grenoble).

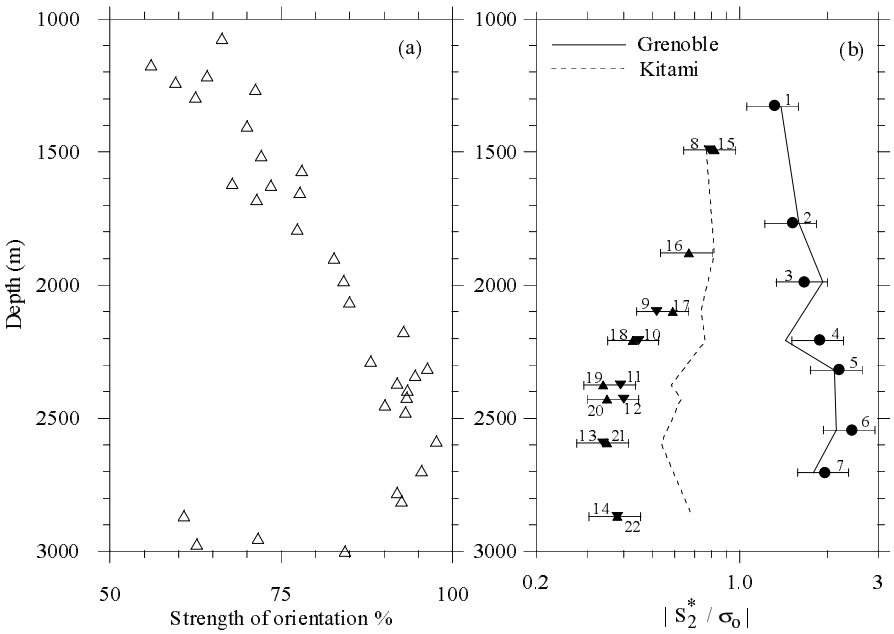
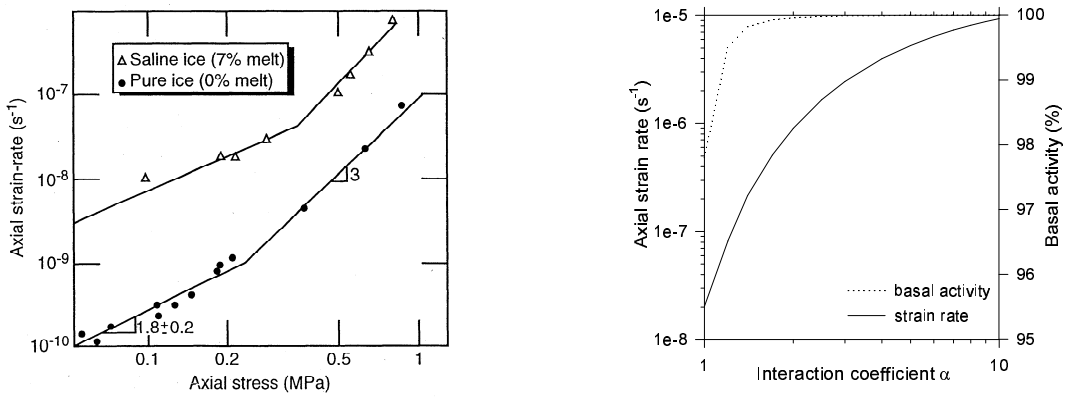


FIG. 1.2 – (a) Evolution de la texture cristallographique en fonction de la profondeur in-situ des échantillons de glace de la carotte de GRIP. La texture est caractérisée par un paramètre qui prend la valeur 0 lorsque celle-ci est isotrope, et 1 lorsque tous les axes **c** sont alignés. (b) Contraintes d'écoulement associées, mesurées (points) dans les directions dures (1-7) et douces (8-22), et simulées (traits).

Une étude de l'influence de la texture cristallographique sur l'anisotropie effective a été menée. Il s'agissait d'appréhender l'influence des contraintes internes, associées aux interactions intergranulaires, sur les vitesses de fluage stationnaire pour des échantillons texturés. En collaboration avec une équipe de glaciologues japonais (notamment Hitoshi Shoji, Kitami Institute of Technology), nous avons regroupé un ensemble d'essais mécaniques sur des glaces du Gröenland (carotte de GRIP), correspondant à différentes directions de chargement par rapport à la texture cristallographique, permettant ainsi d'estimer l'anisotropie macroscopique. L'application du schéma VPSC a été réalisée en considérant les textures réelles (i.e. mesurées) et les données disponibles pour le comportement du monocristal. Nous avons ainsi mis en évidence un accord très satisfaisant entre les résultats de simulation et les mesures expérimentales (figure 1.2). En particulier, le modèle montre une aptitude à rendre compte des effets de microstructure d'une façon bien plus fidèle que les modèles simples (Taylor, statique, ...) tant à l'échelle locale (activation des systèmes de glissement) que globale.

Parallèlement, une étude de la rhéologie de glaces partiellement fondues a été menée. L'effet de la phase liquide sur le comportement effectif est important car il influence significativement l'écoulement des glaciers tempérés par une forte diminution de la viscosité [21]. Des effets similaires sont attendus dans le manteau terrestre [44]. La réalisation expérimentale d'un tel matériau est possible en mélangeant



(a) (b)

FIG. 1.3 – (a) Vitesses de fluage minimum en compression uniaxiale à $-13°$C, pour de la glace pure et de la glace contenant 7% d'eau. (b) Réponse en traction uniaxiale (0.54 MPa, $-10°$C) du schéma VPSC en fonction du coefficient d'interaction α.

des grains de glace d'eau pure avec de l'eau salée à $0°$C. Ainsi, la fraction volumique de phase liquide est contrôlée par la salinité des joints de grains et la température de l'échantillon. Les mesures réalisées par S. de la Chapelle (figure 1.3a) montrent que 7% de phase liquide suffisent à augmenter la vitesse du fluage minimum de plus d'un ordre de grandeur. La prise en compte d'une phase liquide n'est pas possible dans le schéma VPSC puisque toutes les phases mécaniques doivent montrer la même sensibilité à la contrainte. On peut cependant introduire arbitrairement un coefficient α dans la loi d'interaction permettant d'ajuster la raideur des interactions intergranulaires [74] :

$$\dot{\boldsymbol{\varepsilon}}^r - \dot{\bar{\boldsymbol{\varepsilon}}} = -\alpha \mathbf{M}^* : (\boldsymbol{\sigma}^r - \bar{\boldsymbol{\sigma}}) \tag{1.1}$$

avec $\dot{\boldsymbol{\varepsilon}}^g$, $\dot{\bar{\boldsymbol{\varepsilon}}}$, $\boldsymbol{\sigma}^g$, et $\bar{\boldsymbol{\sigma}}$ respectivement les vitesses de déformation et les contraintes "du grain" (nous reviendrons sur cette définition) et effectives, et $\mathbf{M}^*$ le tenseur d'influence de Hill. Le schéma VPSC est obtenu pour $\alpha = 1$, et le modèle tend vers le modèle statique pour $\alpha \to \infty$. La figure 1.3b montre que dans le régime de fluage-dislocation, la diminution du niveau des contraintes internes liée à la présence d'eau liquide est suffisante pour expliquer la forte diminution de viscosité, l'introduction d'un coefficient $\alpha \approx 1.5$ étant suffisante pour reproduire les données expérimentales. Cette uniformisation des contraintes s'accompagne d'un renforcement de l'activité basale.

Collaborations : G.R. Canova (GPM2), R.A. Lebensohn (Univ. Roasrio), P. Duval, M. Montagnat, O. Gagliardini, A. Mangeney (LGGE), H. Shoji (Kitami Inst. Technol, Japon)

Communications associées : 1.8, 1.9, 1.11, 1.31, 6.11, 6.45

1.2.3 Potentialités pour la prédiction des microstructures de recristallisation

Ce travail a été réalisé en parallèle à la thèse de Alexis Miroux [72], dirigée par B. Bacroix. L'énergie qui est stockée dans le matériau sous forme de dislocations lors d'une déformation plastique constitue une force motrice importante pour les mécanismes de nucléation et de croissance associés à la recristallisation [19]. Cependant, s'il est admis qu'il est important de comprendre comment cette énergie se répartie selon l'orientation cristallographique des grains, peu de détails sont donnés dans la littérature sur les moyens de la mesurer ou de la calculer. L'interprétation des mesures basées sur la diffraction des rayons X [55] ou sur la Microscopie Electronique à Transmission (MET) [105] est associée à des hypothèses qui ne sont pas toujours faciles à vérifier expérimentalement. Par exemple, l'énergie stockée est souvent reliée à la désorientation entre cellules de dislocations adjacentes observées en MET [18], ce qui suppose que seules les dislocations contenues dans les parois de dislocations sont prises en compte (nous y reviendrons à la section 2.6.1). Concernant les tentatives de calcul, plusieurs auteurs relient cette énergie au "facteur de Taylor" des grains, ex. [42, 34]. On peut cependant s'attendre à une dépendance plus complexe intégrant en particulier l'histoire locale de déformation.

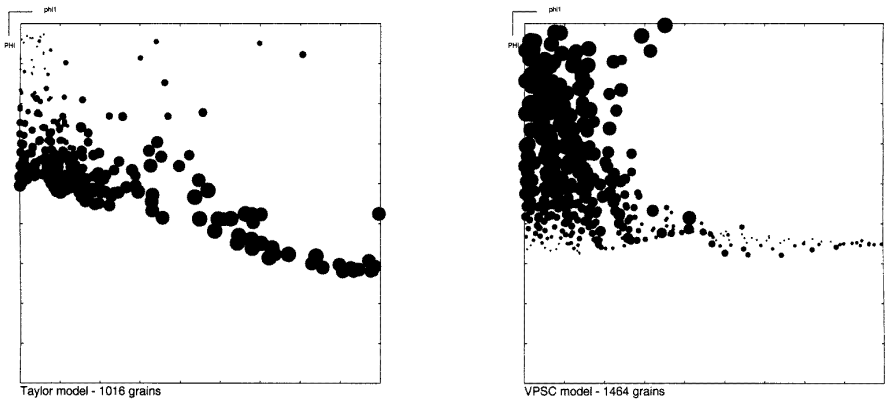


FIG. 1.4 – Distribution de l'énergie stockée dans une section φ_1-ϕ de l'espace d'Euler, pour $\varphi_2 = 45°$, obtenue pour le modèle de Taylor (gauche) et le schéma VPSC (droite). La taille des cercles est proportionnelle à l'énergie stockée calculée.

Dans l'acier IF-Ti étudié par A. Miroux, la texture obtenue après recristallisation est entièrement déterminée par l'orientation des premiers germes. Or ces germes apparaissent essentiellement dans des grains d'orientation $\{111\} < 112 >$, pour lesquels l'énergie stockée est supposée être supérieure à celle des autres orientations. Cependant, les mesures publiées, réalisées en MET ou en diffraction des rayons X, étaient contradictoires. Nous avons donc calculé la distribution de cette énergie stockée par plusieurs schémas d'homogénéisation, pour 90% de laminage à froid, en prenant une loi d'écrouissage simple mais qui rend compte d'un auto-écrouissage moins fort que l'écrouissage latent et d'une satura-

tion des cissions critiques en grandes déformations. L'énergie stockée calculée a été associée à différents critères (travail plastique local, cission critique, etc...) qui se sont révélés équivalents, au moins qualitativement. Le résultat le plus surprenant est que là encore, des résultats contradictoires sont obtenus selon le modèle choisi : le modèle de Taylor prévoit une énergie stockée plus grande dans les orientations du type $\{111\} < uvw >$ alors que le schéma VPSC prévoit une énergie stockée plus grande dans la fibre $\{hkl\} < 110 >$ (figure 1.4). Ce résultat met en évidence l'importance d'opter pour un schéma d'homogénéisation pertinent, ce qui a constitué un fils conducteur dans la suite de mon travail.

Collaborations : B. Bacroix, A. Miroux, J. Raphanel (LPMTM), L. Badea (Acad. Sci. Bucarest), J. Tarasiuk, K. Wierzbanowski (Univ. Cracovie)
Communications associées : 1.12, 1.13, 2.1, 2.2, 6.15, 6.16, 6.19, 6.21

1.3 Hétérogénéités intraphases pour les comportements linéaires

Le développement des méthodes d'homogénéisation, notamment le modèle auto-cohérent, a été longtemps pénalisé par l'illustration de l'inclusion d'Eshelby et la conclusion hâtive consistant à affirmer que les champs de contraintes et de déformation étaient uniformes dans les phases mécaniques. Il est maintenant reconnu que ce n'est pas le cas, voir par exemple Ponte Castañeda and Suquet [88], Buryachenko [14]. En effet, le formalisme d'Eshelby est utilisé pour calculer les champs *moyens* dans la phase mécanique, ce qui n'implique pas nécessairement que ces champs soient homogènes. Les méthodes en champ moyen ne fournissent cependant qu'une information partielle sur l'hétérogénéité des champs, à travers leurs moyennes et leurs variances intraphases (premier et second moments). Dans le cas des polycristaux, dont l'hétérogénéité constitutive est le grain, la fluctuation estimée à l'aide du modèle autocohérent inclut l'hétérogénéité au sein des grains ainsi que l'hétérogénéité entre les différents grains de même orientation cristalline mais possédant un voisinage différent. Au sein de cette approche, il n'est pas possible de distinguer ces deux contributions. Néanmoins, il convient de ne pas confondre cette hétérogénéité intraphase avec la simple hétérogénéité intragranulaire. Une information, même partielle, sur la distribution intraphase des champs mécaniques est évidemment d'un intérêt majeur pour l'étude de nombreux phénomènes. Par exemple :

- Seule la connaissance des seconds moments intraphases permet de vérifier le respect du lemme de Hill sur la conservation de l'énergie dans le matériau.
- L'écoulement d'un matériau plastique hétérogène est initié localement non pas en réponse à une contrainte moyenne par phase, mais à la contrainte locale. Une déformation plastique peut ainsi apparaître dans une phase en moyenne peu contrainte, mais atteignant localement la limite d'élasticité.

– De la même manière, les évolutions de microstructure (écrouissage, rotation du réseau cristallin, ...) sont guidées par le champ de déformation local. L'écrouissage est une réponse locale des dislocations à la déformation locale. Il peut donc être très important localement même dans les phases faiblement déformées en moyenne.
– Enfin, concernant les extensions non-linéaires des méthodes d'homogénéisation, nous verrons dans la section 1.4 que la prise en compte du second moment des champs est nécessaire dans l'étape de linéarisation afin de garantir le respect des bornes sur le comportement effectif.

Au cours de ces dernières années, une partie importante de mon activité a consisté au calcul des hétérogénéités intraphase dans les polycristaux et à analyser les conséquences concrètes de leur prise en compte. Je présente dans la suite les développements réalisés pour les matériaux de type thermo-élastique linéaire, qui s'appliquent identiquement aux matériaux visqueux linéaires. Concernant le traitement des comportements non-linéaires, le formalisme s'applique au Milieu Linéaire de Comparaison (MLC) déduit de la linéarisation du milieu non-linéaire ; l'étude des polycristaux viscoplastiques sera présentée à la section 1.4.

1.3.1 Calcul en thermo-élasticité et application

Le but initial du travail présenté ici était de proposer une méthode de calcul du second moment intraphase dans un contexte général d'anisotropie, et pour les matériaux présentant un nombre arbitraire de phases mécaniques. Nous avons considéré un volume élémentaire représentatif Ω d'un matériau hétérogène thermoélastique linéaire, soumis à un champ de contraintes $\bar{\boldsymbol{\sigma}}$ uniforme au contour, et subissant en tout point un champ de déformation thermique $\boldsymbol{\varepsilon}_0$. La définition de l'énergie élastique locale et le lemme de Hill [35] conduisent à l'expression de l'énergie élastique effective. Le matériau est supposé être constitué de N phases mécaniques (r) de volume respectif Ω_r. Le tenseur des souplesses locales et le tenseur des déformations thermiques peuvent s'écrire en fonction des fonctions caractéristiques de la microstructure. Le second moment des contraintes sur la phase (r), $< \boldsymbol{\sigma} \otimes \boldsymbol{\sigma} >_r$ ($< \, . \, >_r$ désigne la moyenne volumique dans Ω_r), s'obtient par dérivation de l'énergie effective par rapport au tenseur des souplesses de cette phase. L'expression ainsi obtenue pour $< \boldsymbol{\sigma} \otimes \boldsymbol{\sigma} >_r$ s'identifie au résultat présenté dans Buryachenko [14], et dans le cas des problèmes purement élastique ou sans chargement macroscopique au contour, elle se réduit aux expressions données par Ponte Castañeda and Suquet [88] et Kreher [45] respectivement. Nous avons montré que l'hétérogénéité intraphase du champ de contraintes, dans une phase (r), dépend en particulier des contraintes résiduelles dans toutes les autres phases du matériau, sous l'effet des interactions intergranulaires.

En suivant la même procédure de calcul, mais avec des conditions de déformation homogène au

contour, l'expression duale de l'énergie élastique permet d'obtenir le second moment intraphase des déformations $< \boldsymbol{\varepsilon} \otimes \boldsymbol{\varepsilon} >_r$. On montre enfin que les seconds moments de contraintes et de déformations peuvent être reliés par la loi du comportement local dans le cas où l'hypothèse de macrohomogénéité est vérifiée.

Pour l'application aux polycristaux, il nous est apparu indispensable de développer une méthode numérique efficace de calcul des seconds moments dans un contexte général d'anisotropie locale et globale, dans le cadre de la thermo-élasticité, et pour un matériau présentant un grand nombre de phases mécaniques. Nous avons montré que, pour les microstructures du type "assemblage de Hashin" [33, 118] dont la microstructure qui réalise le modèle auto-cohérent fait partie, le calcul des seconds moments se ramène à la résolution d'un système d'équations linéaires. Le calcul numérique est donc rapide, et réalisable sans difficulté particulière sur un polycristal de quelques milliers de phases.

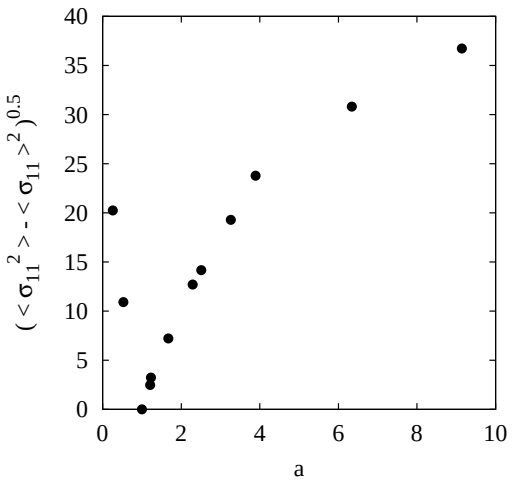


FIG. 1.5 – Estimation autocohérente de l'écart type de la composante σ_{11} au sein d'un polycristal isotrope constitué de grains de symétrie cubique et sollicité en traction uniaxiale ($\bar{\boldsymbol{\sigma}}_{11} = 100$MPa). Résultats du schéma auto-cohérent. a est le rapport d'anisotropie du comportement local, $a = 1$ correspondant à un comportement isotrope.

A titre d'illustration, nous avons calculé l'hétérogénéité des contraintes $< \boldsymbol{\sigma} \otimes \boldsymbol{\sigma} >$ ($< . >$ désigne la moyenne sur le VER) dans un polycristal élastique de symétrie cristalline cubique, de texture isotrope, et déformé en traction uniaxiale selon la direction 1. Le calcul a été réalisé sur plusieurs matériaux présentant différents coefficients d'anisotropie locale $a = 2C_{44}/(C_{11} - C_{12})$. Les résultats sont présentés sur la figure 1.5. On peut noter que l'écart type $\left(< \sigma_{11}^2 > - < \sigma_{11} >^2\right)^{0.5}$, qui est uniquement liée aux interactions entre les différentes phases mécaniques, est une fonction croissante du contraste mécanique entre celles-ci. Il croît donc avec l'anisotropie du comportement élastique des grains. Des confrontations avec des calculs en champs complets (Eléments Finis) sont en cours avec Maxime Sauzay (CEA-Saclay).

Collaborations : R. Brenner (LPMTM), P. Gilormini (LMT), L. Badea (Acad. Sci. Bucarest), M. Sauzay (CEA-Saclay)

Communications associées : 1.21, 1.30, 5.9

1.3.2 Effet de la microstructure sur l'hétérogénéité des champs

Les méthodes en champ complet offrent l'intérêt incontestable de fournir des solutions de références qui peuvent être comparées aux résultats des méthodes d'homogénéisation en champ moyen, moins précises pour les comportements non-linéaires. Mis à part le problème de la représentativité de la microstructure et de la taille du Volume Elémentaire Représentatif pour les matériaux 3D, il se pose le problème de l'influence de la microstructure sur le comportement effectif et sur la distribution intra- et inter-granulaire des champs.

Pour les polycristaux, le schéma auto-cohérent est souvent adopté ; il repose sur une microstructure définie par un "désordre parfait" [49], qui n'est représentative que qualitativement de celle des polycristaux. D'autre part, les résolutions par EF ou FFT optent généralement pour des microstructures simples, comme un empilement régulier de grains cubiques ou une mosaïque de Voronoi [93, 53] bien qu'en principe une microstructure réelle puisse être utilisée si on sait la caractériser expérimentalement. La prise en compte de microstructures différentes peut introduire un biais lorsque les différentes méthodes de calcul sont comparées entre elles. Il nous est donc apparu important de vérifier quelle est l'influence réelle de la microstructure sur la distribution des champs.

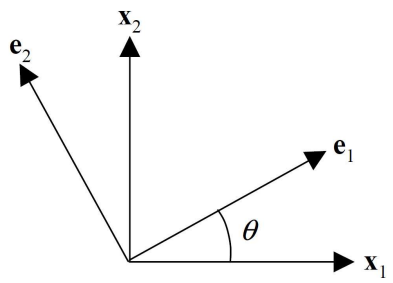
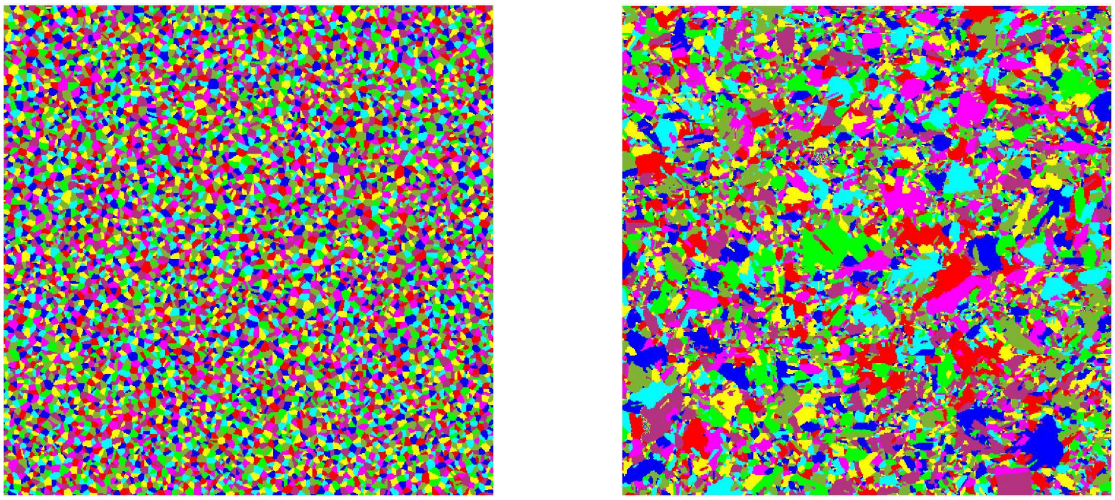


FIG. 1.6 – Chaque phase mécanique possède deux systèmes de glissement orthogonaux de normale $\mathbf{e_1}$ et $\mathbf{e_2}$ dont l'orientation est définie par l'angle θ par rapport à un repère macroscopique $(\mathbf{x_1},\ \mathbf{x_2})$. Les directions de glissement sont suivant $\mathbf{x_3}$.

Nous avons opté pour un cas d'étude simple, celui du cisaillement anti-plan d'un polycristal 2D visqueux linéaire (quasi) isotrope. Les grains colonnaires possèdent deux systèmes de glissement orthogonaux avec des directions de glissement dans l'axe des colonnes (figure 1.6). A chaque phase mécanique est associé un comportement mécanique de type visqueux linéaire, pris ici uniforme par phase :

$$\dot{\boldsymbol{\varepsilon}}(\mathbf{x}) = \left(\frac{1}{\tau_0^s}\mathbf{m}^s \otimes \mathbf{m}^s + \frac{1}{\tau_0^h}\mathbf{m}^h \otimes \mathbf{m}^h\right) : \boldsymbol{\sigma}(\mathbf{x}) \tag{1.2}$$

où s et h désignent les phases souples et dures respectivement. $\mathbf{m}$ est le tenseur de Schmid du système de glissement, et τ_0 la cission de référence. Deux types de microstructures ont été choisies, l'une toroïdale construite à partir des cellules de Voronoi, l'autre provenant d'une mesure EBSD sur un échantillon de cuivre recristallisé (figure 1.7). Ces microstructures, qui contiennent chacune 8500 grains, ont été "remplies" par 8 orientations cristallographiques (i.e. 8 phases mécaniques) d'égales fraction volumique de sorte que, si la morphologie est réellement isotrope, alors le comportement effectif devient aussi rigoureusement isotrope. L'avantage de ce choix particulier provient de l'existence d'une solution analytique pour le comportement effectif, indépendante de la microstructure [71], qui permet en particulier d'estimer la précision des calculs réalisés par FFT.



(a) (b)

FIG. 1.7 – (a) Microstructure artificielle construite à partir de cellules de Voronoi. (b) Microstructure obtenue par EBSD sur un échantillon de cuivre recristallisé. Ces deux microstructures de 8500 grains ont été "remplies" par 8 orientations cristallographiques, indiquées par les couleurs sur la figure.

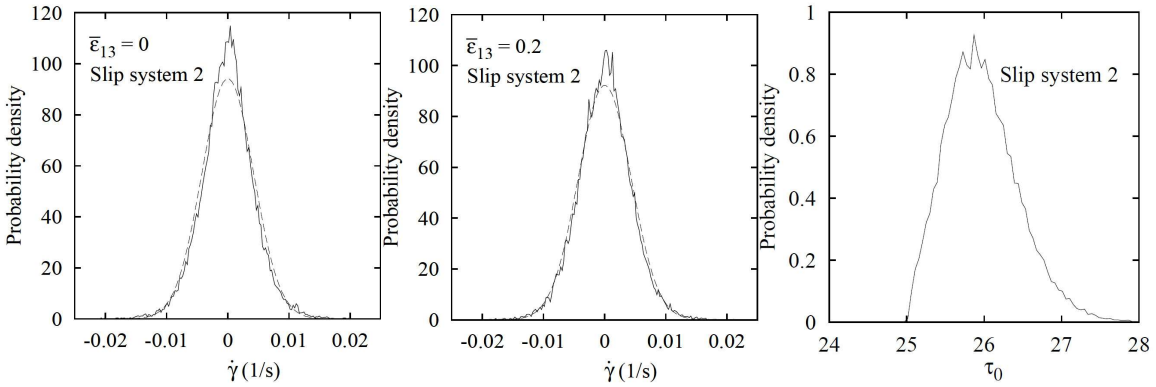
L'analyse des microstructures, directe ou par l'intermédiaire du calcul des fonctions de corrélations à deux points d'appuis, indique une taille de grain moyenne similaire dans les deux cas, mais de grandes différences dans les distributions de taille de grains, ainsi qu'une relative isotropie. Les résultats de cette étude montrent d'une part que la résolution par FFT permet l'obtention de résultats précis, tant sur le comportement effectif que sur les champs locaux, à condition de procéder à des moyennes d'ensemble sur au moins 50 constructions différentes de ces microstructures aléatoires (hypothèse d'ergodicité). D'autre part, la comparaison des résultats obtenus sur ces deux microstructures à ceux obtenus à l'aide du schéma auto-cohérent, qui résout une microstructure "parfaitement désordonnée", a montré que la microstructure a une influence faible sur la distribution des champs de contraintes, i.e. autant sur l'hétérogénéité inter– que intra–phase. Les écarts relatifs entre les deux microstructures et l'estimation auto-cohérente sont au

plus de l'ordre de 10^{-2} pour un contraste $\tau_0^h/\tau_0^s = 9$. Ces résultats justifient donc le choix du schéma auto-cohérent pour les polycristaux, au moins dans le cas 2D linéaire.

Collaborations : R. Brenner (LPMTM), R. A. Lebensohn (Los Alamos Nat. Lab.), P. Gilormini (LMT)
Communications associées : 1.32

1.3.3 Conséquence sur la prédiction de l'écrouissage

Lors de déformations plastiques, les polycristaux sont soumis à de grandes déformations qui engendrent des évolutions de microstructure considérables : évolution de texture cristallographique, écrouissage, ... Nous avons montré que, puisque les lois correspondantes sont généralement non-linéaires, l'évolution de la microstructure ne peut se déduire des quantités de glissement moyennes par phase, mais les hétérogénéités intraphases doivent aussi être pris en compte. Sur ce point, une fois de plus, l'illustration du schéma auto-cohérent par le problème de l'ellipsoïde d'Eshelby avec des champs "uniformes dans les grains" a conduit à des formulations approximatives, largement utilisées jusqu'ici dans la littérature. La négligence des hétérogénéités intraphase est probablement à l'origine des écarts obtenus par Commentz et al. [16] où, identifiant séparément les lois d'écrouissage de deux constituants (Fe et Cu), l'écrouissage du composite Fe-Cu semble être difficilement reproductible.



(a) (b) (c)

FIG. 1.8 – Distribution des vitesses de glissement obtenue par l'approche FFT (traits continus) pour une déformation macroscopique (a) $\bar{\varepsilon}_{13} = 0$ et (b) $\bar{\varepsilon}_{13} = 0.2$. Le trait pointillé indique l'approximation Gaussienne de la distribution. (c) Distribution des cissions de référence pour $\bar{\varepsilon}_{13} = 0.2$. Résultats obtenus pour le système de glissement dur "2" de la phase molle ($\theta = 0°$).

Considérant dans un premier temps le problème de l'écrouissage intragranulaire en raison de son apparente simplicité, nous avons voulu proposer une formulation plus rigoureuse et évaluer les erreurs engendrées par le traitement classique. Nous nous sommes attachés à montrer l'importance de considérer toute l'information disponible sur les champs de déformation pour améliorer le traitement. Nous nous

sommes placé dans un cas simple, et avons repris le cas des polycristaux 2D visqueux linéaires présenté dans la section précédente. Il est clair que les résultats obtenus sur ce matériau “modèle” ne seront pas directement utilisables pour matériaux réels (3D, non-linéaires, ...), mais il nous a paru important de commencer l’analyse par un problème apparemment simple. Selon [36], le taux d’évolution $\dot{\tau_0}$ de la cission de référence locale d’un système de glissement k est relié à la valeur absolue de la vitesse de glissement locale $|\dot{\gamma}_{k'}|$ sur le système k', évaluée au même point :

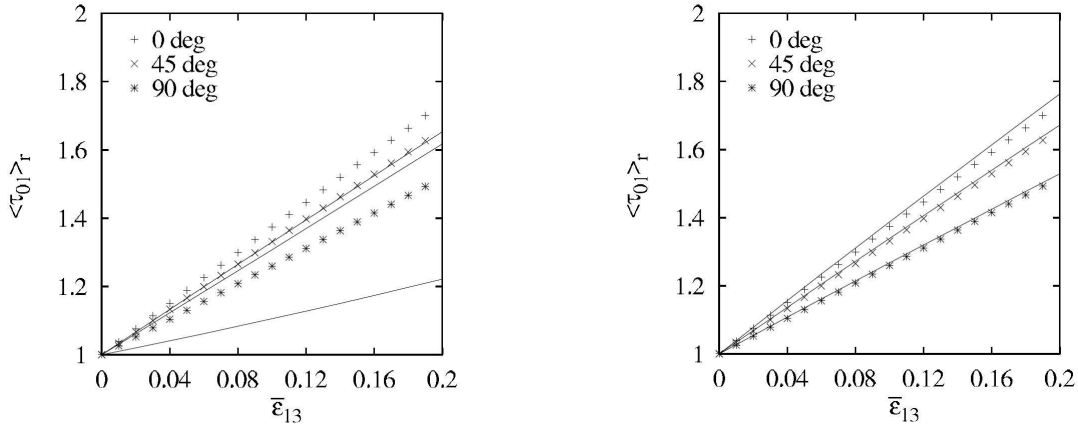
$$\dot{\tau_0}_k(\mathbf{x}) = \sum_{k'} h_{kk'}(\mathbf{x})|\dot{\gamma}_{k'}(\mathbf{x})| \tag{1.3}$$

avec h la matrice d’écrouissage qui dépend en général de la déformation cumulée, mais que nous avons considéré constante ici par souci de simplicité. Les techniques en champ moyen considèrent le comportement moyen d’une phase mécanique, et donc l’écrouissage moyen $< \dot{\tau_0}_k >_r$ doit être relié à la moyenne des valeurs absolue des vitesses de glissement $< |\dot{\gamma}_{k'}| >_r$. Classiquement, les hétérogénéités intraphase étant négligées, la moyenne des valeurs absolue est approximée par la valeur absolue de la moyenne, $< |\dot{\gamma}_{k'}| >_r \approx | < \dot{\gamma}_{k'} > |_r$. L’analyse de la distribution des vitesses de glissement dans le polycristal 2D, calculée par FFT (figure 1.8), permet de montrer que cette approximation est dans certains cas inapplicable. Le système de glissement indiqué sur la figure 1.8 montre en moyenne un glissement nul, alors que le glissement local est clairement significatif. La figure 1.8c illustre une difficulté supplémentaire : au cours de la déformation, la cission de référence devient hétérogène à l’intérieur même d’une phase mécanique. Le module visqueux n’étant plus uniforme par phase, les schémas d’homogénéisation thermoélastique ne s’appliquent plus rigoureusement et des approximations doivent être introduites.

Remarquant, dans le cas considéré, que la distribution des vitesses de glissement est proche d’une gaussienne, un traitement amélioré a pu être proposé (figure 1.9), notamment pour l’estimation de $< |\dot{\gamma}_{k'}| >_r$. On montre ainsi que le traitement classique sous-estime largement l’écrouissage des phases dures. Par contre, la prise en compte des hétérogénéités intra-phases dans le schéma auto-cohérent conduit à une reproduction fidèle de la solution de référence donnée par la FFT.

Collaborations : R. Brenner (LPMTM), R. A. Lebensohn (LANL)

Communications associées : 1.33, 5.9, 6.55



(a) (b)

FIG. 1.9 – Evolution de la moyenne par phase $< \tau_0 >_r$ des cissions de référence en fonction de la déformation macroscopique, pour le système mou "1" des phases $\theta = 0°$, $\theta = 45°$, et $\theta = 90°$. Les estimations par FFT (points) sont comparées aux résultats du schéma auto-cohérent (lignes) obtenus (a) par la procédure standard et (b) en tenant compte des l'hétérogénéités intraphases.

1.4 Extensions non-linéaires et conséquences

L'extension des méthodes d'homogénéisation aux comportements non-linéaires est essentiellement limitée par l'étape de linéarisation du comportement local

$$\boldsymbol{\varepsilon}(\mathbf{x}) = f(\boldsymbol{\sigma}(\mathbf{x})). \tag{1.4}$$

La linéarisation tangente en tout point conduirait à un module tangent hétérogène par phase, du fait de l'hétérogénéité des contraintes, alors qu'une loi de comportement linéarisé de la forme :

$$\boldsymbol{\varepsilon}(\mathbf{x}) = \mathbf{M}^{(r)} : \boldsymbol{\sigma}(\mathbf{x}) + \boldsymbol{\varepsilon}_0^r \tag{1.5}$$

avec un module tangent $\mathbf{M}^{(r)}$ et une déformation libre de contrainte $\boldsymbol{\varepsilon}_0^r$ homogènes par phase, est nécessaire pour appliquer les schéma de type thermoélastique. Les extensions "classiques" se basent sur l'approximation

$$< \boldsymbol{\varepsilon} >_r \approx f(< \boldsymbol{\sigma} >_r) \tag{1.6}$$

qui sous-estime $< \boldsymbol{\varepsilon} >_r$ du fait de la convexité de la fonction f. Dans ce cas, $\mathbf{M}^{(r)}$ et $\boldsymbol{\varepsilon}_0^r$ ne sont définis qu'à partir des champs moyens par phase $< \boldsymbol{\sigma} >_r$. L'extension sécante [39] consiste à prendre $\boldsymbol{\varepsilon}_0^r = 0$ dans l'équation (1.5), alors que l'extension affine [68] construit un module tangent par dérivation de f et aboutit à des estimations plus souples (plus réalistes). L'extension tangente de Molinari et al. [75] et Lebensohn and Tomé [52], qui ne s'applique qu'aux comportements en loi puissance, consiste à définir un module sécant à partir d'un linéarisation tangente, de sorte que l'on se ramène à un Milieu Linéaire

de Comparaison de type élastique. Il a été montré que les modèles sécant et affine, dont la restriction principale vient de (1.6), violent dans certains cas une borne supérieure [10]. Le modèle tangent coïncide avec la borne de Reuss aux fortes sensibilité à la contrainte, ce qui est également irréaliste [28].

Les extensions basées sur une approche variationnelle ne font plus appel à l'approximation (1.6). Les améliorations obtenues par l'estimation variationnelle [84] et les procédures du second ordre, ancienne [85] ou nouvelle [86, 87] versions, viennent de la prise en compte de l'hétérogénéité intraphase des champs mécaniques dans l'étape de linéarisation. L'estimation variationnelle (ou "sécante modifiée") revient à utiliser une linéarisation sécante (et donc un Milieu Linéaire de Comparaison de type élastique) mais avec un module sécant défini à partir du second moment des contraintes [102]. Les travaux récents [59, 60, 54, 40] montrent la pertinence de la nouvelle procédure du second ordre pour les polycristaux et les composites non-linéaires.

Ma contribution dans ce domaine a essentiellement consisté à montrer l'effet de la méthode de linéarisation sur l'hétérogénéité intraphase des champs, pour les approches "classiques". Nous avons d'autre part exploré quelques propriétés de l'extension sécante modifiée, et proposé une approche "affine modifiée" empirique.

1.4.1 Effet de la linéarisation sur les hétérogénéités des champs

Il est clair que jusqu'à présent, pour les applications concrètes des méthodes d'homogénéisation à des polycristaux réels viscoplastiques ou élasto-plastiques, le choix des différents groupes de recherche s'oriente en grande majorité vers des méthodes simples. L'extension tangente du schéma auto-cohérent est souvent mise en oeuvre, mais des formulations plus simples et souvent *ad hoc* [91, 106, 81, 113] sont également largement utilisées. Parfois même le modèle de Taylor est utilisé pour modéliser le comportement viscoplastique du zirconium, très anisotrope localement, ce qui bloque absolument toute l'hétérogénéité de déformation [26].

Il est important de choisir avec soin l'extension non-linéaire utilisée pour l'application visée, puisque ce choix conditionne la pertinence physique des paramètres locaux lorsque ceux-ci sont identifiés sur une base expérimentale. Nous reviendrons sur ce point dans la section 2.5. Si l'influence du choix de l'extension non-linéaire sur le comportement effectif est bien décrite dans la littérature, peu de travaux concernent les conséquences sur l'hétérogénéité intraphase des champs. Nous avons donc entrepris une confrontation, sur cet aspect, des extensions sécante et affine du schéma auto-cohérent. Nous avons considéré un polycristal de structure CFC, de texture isotrope, déformé en traction uniaxiale. Nous avons choisi une loi de comportement viscoplastique simple, de type loi puissance, à l'échelle du système de

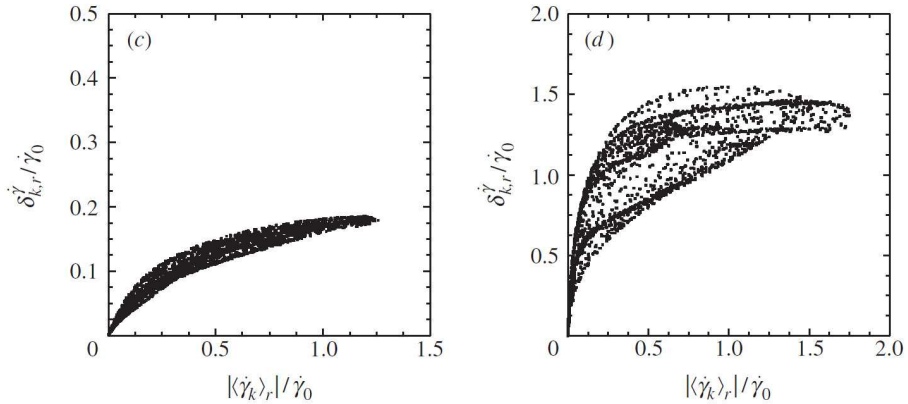


FIG. 1.10 – Ecart type $\delta^{\dot\gamma}_{k,r}$ de la vitesse de glissement $\dot\gamma_k$ du système k dans la phase mécanique r, en fonction de la vitesse de glissement moyenne $| < \dot\gamma_k >_r |$, tracé pour les 12 systèmes de glissement des 2016 phases mécaniques considérées. Les résultats de l'extension sécante (gauche) sont comparés à ceux de l'extension affine (droite) du schéma auto-cohérent. On notera que les échelles sont différentes.

glissement

$$\frac{\dot\gamma_k}{\dot\gamma_{0k}} = \left(\frac{\tau_k}{\tau_{0k}}\right)^n \tag{1.7}$$

où τ_k est la cission résolue sur le système k. Une sensibilité à la contrainte $n = 30$ a été choisie de sorte que le matériau puisse s'apparenter à du cuivre recristallisé déformé à froid.

On observe (figure 1.10) que la linéarisation sécante tend vers un état de glissement quasi-uniforme sur les systèmes de glissement, alors que l'extension affine prévoit une hétérogénéité nettement plus marquée et probablement plus réaliste. Parallèlement, nous avons montré qu'il n'existe pas de corrélation simple entre les champs moyens par phase et les hétérogénéités intraphases : l'écart type intraphase sur les contraintes n'est pas systématiquement plus grand dans les phases dures que dans phases molles, comme on pourrait s'y attendre.

Ces résultats laissent penser que l'écrouissage estimé en tenant compte de l'hétérogénéité des champs, selon la méthode décrite dans la section 1.3, devrait être significativement différent selon l'extension non-linéaire choisie. Ceci aurait évidemment des conséquences sur la prédiction des mécanismes associés tels que la recristallisation.

Collaborations : R. Brenner, B. Bacroix (LPMTM), L. Badea (Acad. Sci. Bucarest), P. Gilormini (LMT)
Communications associées : 1.29, 1.30, 5.6, 6.34, 6.38, 6.41, 6.42, 6.49, 6.51

1.4.2 Sur l'extension "sécante modifiée"

Initialement appliquée à des agrégats de phases isotropes [84], l'approche variationnelle a été utilisée pour simuler le comportement instantané (à texture fixe) de polycristaux viscoplastiques en loi puissance de diverses structures, cubique ou hexagonale [17, 78, 29]. Des résultats prometteurs ont été établis,

comme un comportement cohérent de l'approche aux très grandes sensibilités à la contrainte, ou des lois de croissance raisonnables lorsque le contraste de dureté entre les systèmes de glissement augmente. Il a ainsi été démontré une supériorité de l'approche variationnelle par rapport aux modèles antérieurs. Cependant, des développements supplémentaires, notamment numériques, étaient nécessaires pour viser des applications plus concrètes. En effet, la difficulté essentielle de l'approche concerne la prise en compte d'un grand nombre d'orientations cristallines, puisque la résolution numérique du problème revient à un problème de minimisation avec un nombre de variable à minimiser multiple du nombre de phases cristallines.

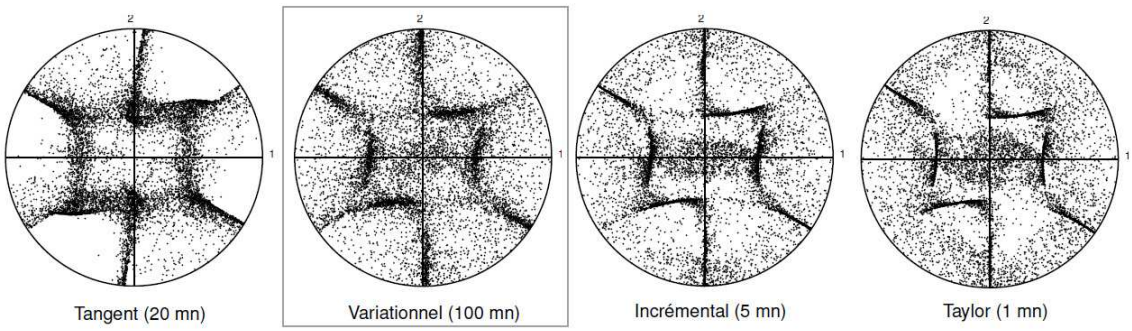


FIG. 1.11 – Figure de pôles $\{100\}$ après un cisaillement de 2. imposé à un polycristal CFC initialement isotrope. Temps de calcul en secondes obtenus sur un PC standard. Seule la composante 12 du gradient des vitesses est non nulle dans le type de cisaillement imposé.

Dans le cadre d'un projet du programme "Matériaux" (Coord. P. Gilormini), nous avons entrepris l'élaboration d'un code numérique plus performant basé notamment sur les développements numériques décrit dans la section 1.3.1, qui incluent le calculs de dérivées partielles nécessaires à l'algorithme de minimisation choisi. Parallèlement à la validation du code sur plusieurs cas d'école, l'application au calcul du développement de texture dans un polycristal CFC, fortement non-linéaire ($n = 20$), et représenté par 3000 phases mécaniques, illustre le fait que l'approche variationnelle prédit une évolution intermédiaire entre l'approche tangente et le schéma incrémental de Hill (figure 1.11). On remarque également le coût numérique important lié à l'étape de minimisation (ici 36000 variables de minimisation).

Parallèlement, l'analyse des premiers et seconds moments a mis en évidence une propriété particulière reliant les formulations sécante classique et sécante modifiée du schéma auto-cohérent. Elle montre que ces deux méthodes prédisent, pour des conditions aux limites en contraintes (resp. déformations) homogènes au contour, rigoureusement les mêmes premiers et seconds moments par phase des contraintes (resp. déformations), pour des composites localement isotropes en loi puissance. La quantité $\omega_r = (< \varepsilon : \varepsilon >_r \; / \; < \varepsilon >_r : < \varepsilon >_r)^{0.5}$, qui est une mesure globale de l'hétérogénéité intraphase, prend une valeur unique ω pour toutes les phases du matériau, ce qui permet de prouver la plus grande souplesse

de l'extension modifiée. Cette analyse permet également de montrer sans calculs que l'extension sécante classique viole, pour toute valeur de $n \neq 1$, toute fraction volumique, et tout contraste entre phases, la borne supérieure [57] définie pour certaines microstructures par l'estimation autocohérente variationnelle. Cette propriété est illustrée sur la figure 1.12 où l'on voit que l'hétérogénéité des déformations

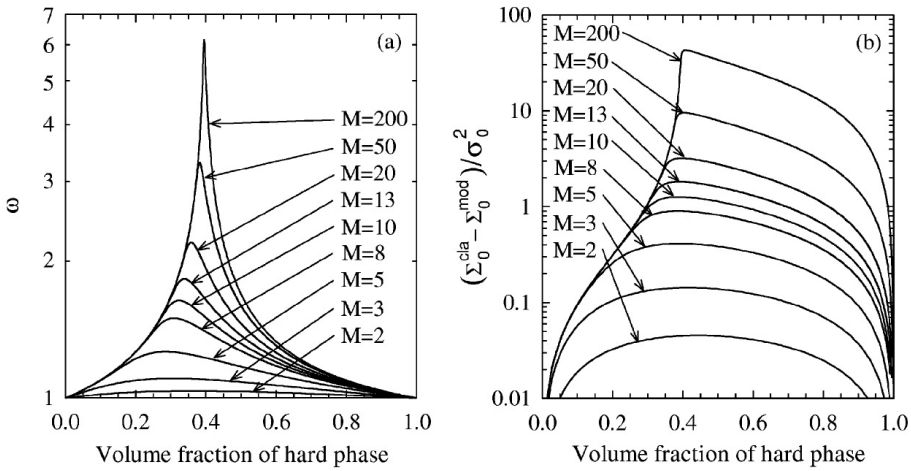


FIG. 1.12 – (a) Hétérogénéité de déformation intraphase ω et (b) différence de réponse macroscopique prédites par les formulations sécantes classique et modifiée du schéma auto-cohérent, pour un biphasé non-linéaire isotrope en loi puissance ($n = 10$), en fonction du contraste M entre les phases dures et les phases molles.

augmente sensiblement avec le contraste entre les phases, et présente pour les forts contrastes une valeur maximale pour une concentration en phase dure proche de 0.4, qui correspond au seuil de percolation mécanique lorsque n est infini.

Collaborations : P. Gilormini (LMT), R. Brenner (LPMTM), P. Duval (LGGE)

Communications associées : 1.20

1.4.3 Proposition d'une extension "affine modifiée"

La difficulté de l'étape de linéarisation vient entre autre du fait que les champs locaux dans une phase ne sont pas entièrement caractérisés, puisqu'on ne sait calculer que les deux premiers moments. De plus, ces champs calculés ne sont qu'une estimation car ils sont estimés pour le composite linéaire (thermo)élastique de comparaison et non pas dans le matériau non-linéaire original.

Dans l'optique d'une approche pragmatique, nous avons proposé une formulation affine modifiée, qui repose une linéarisation affine du comportement local mais avec un module linéarisé dépendant du second moment des champs. L'intérêt de la formulation, outre son extension possible aux comportements héréditaires, réside dans l'assouplissement du comportement effectif par rapport à la formulation

affine classique. Si cette dernière franchit des bornes supérieures dans certains cas, la formulation affine modifiée semble par contre les respecter. Ce résultat est illustré sur la figure 1.13, où la méthode est

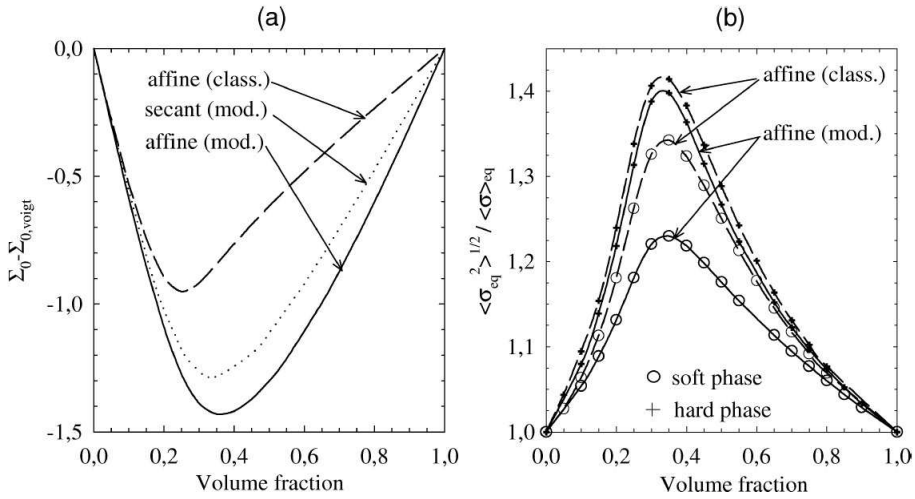


FIG. 1.13 – (a) Comportement effectif de composites biphasés prévu par les extensions affines classique et modifiée du schéma autocohérent en traction uniaxiale et (b) hétérogénéité intraphase associée, en fonction de la fraction volumique de phase dure. L’estimation sécante modifiée est donnée pour comparaison ($n = 5$, $M = \sigma_0^{(2)}/\sigma_0^{(1)} = 8$)

appliquée au même composite biphasé que celui décrit dans la section précédente. L’extension affine modifiée prédit un comportement effectif plus souple que la borne supérieure donnée par l’extension sécante modifiée. Elle prévoit d’autre part un champ de contrainte plus homogène que la formulation classique. On remarquera cependant que, contrairement aux approches sécantes, les formulations affines prévoient des champs locaux plus hétérogènes dans les phases dures que dans les phases molles.

Collaborations : R. Brenner (LPMTM), P. Gilormini (LMT)

Communications associées : 1.21, 1.27

1.5 Prise en compte des effets de “mémoire longue”

Par rapport aux comportements viscoplastiques, l’homogénéisation des polycristaux visco-élastiques non-linéaires comporte une difficulté supplémentaire : l’effet de “mémoire longue” doit être pris en compte. La loi de comportement locale peut s’exprimer de manière générale par une représentation fonctionnelle, mais plus spécifiquement pour l’élasto-visco-plasticité on peut écrire

$$\dot{\boldsymbol{\varepsilon}}(t,\,\mathbf{x}) = \mathbf{S}(\mathbf{x}) : \dot{\boldsymbol{\sigma}}(t,\,\mathbf{x}) + \dot{\boldsymbol{\varepsilon}}^{vp}(t,\,\mathbf{x}) \tag{1.8}$$

avec $\mathbf{S}$ le tenseur de souplesse élastique et $\dot{\boldsymbol{\varepsilon}}^{vp}$ la vitesse de déformation viscoplastique. Cette dernière ne dépendant, outre les variables d’état, que de la contrainte $\boldsymbol{\sigma}$, la loi de comportement (1.8) dépend

donc à la fois de $\boldsymbol{\sigma}$ et de $\dot{\boldsymbol{\sigma}}$. Il en résulte, par l'effet du couplage intergranulaire, que le comportement effectif est héréditaire, c'est-à-dire que la vitesse de déformation à l'instant t dépend de toute l'histoire de chargement passée. La loi de comportement (1.8) peut d'ailleurs se reécrire sous la forme d'un produit de convolution (au sens de Stieljes). Cette propriété entraîne, par exemple selon l'estimation auto-cohérente, qu'un mélange de phases maxwelliennes ne conduit pas un comportement effectif maxwellien [101]. Au spectre discret de chacune des phases s'ajoute un spectre de relaxation continu traduisant l'effet de mémoire longue [92].

Différent modèles ont été proposés dans la littérature pour l'homogénéisation de ces matériaux [114, 107, 76, 80]. Ils se distinguent par la façon dont l'aspect héréditaire est pris en compte et par l'extension utilisée pour la linéarisation du comportement viscoplastique. La proposition "affine" de Masson and Zaoui [67], plus pertinente, est basée sur le principe de correspondance de Mandel [63]. La Transformée de Laplace-Carson (LC) permet en effet de convertir le problème d'homogénéisation visco-élastique linéaire en un problème symbolique de type thermo-élastique linéaire, que l'on sait traiter dans l'espace de LC.

Je me suis efforcé d'appliquer ce schéma affine à deux types de matériaux réels, la glace et les alliages de zirconium. Pour cela, il a été nécessaire d'introduire certaines approximations dans l'approche afin d'en améliorer les performances numériques. Ce travail s'est très largement appuyé sur les développements réalisés par Rénald Brenner dans le cadre de sa thèse, dirigée par Brigitte Bacroix (LPMTM), en collaboration avec Jean-Luc Béchade (CEA-Saclay), Sylvain Leclercq (EDF), Jean-Paul Mardon (Framatome), et que j'ai codirigée.

1.5.1 Formulation de l'approximation quasi-élastique

Dans l'approche affine, le problème élasto-visco-plastique non-linéaire est converti en un problème de type thermo-visco-élastique linéaire par linéarisation de la loi de comportement viscoplastique, puis en un problème symbolique thermo-élastique par l'intermédiaire des Transformées de Laplace-Carson. Pour les problèmes que nous considérons, cette étape peut être menée analytiquement. L'homogénéisation du problème linéaire dans l'espace de Laplace-Carson est effectuée avec les procédures standard (par ex. le schéma auto-cohérent). La difficulté principale de cette approche réside dans la nécessité de calculer numériquement les Transformées inverses afin d'obtenir des résultats interprétables.

Schapery [95] a proposé deux méthodes pour calculer la Transformée inverse. La méthode de Collocation repose sur un développement en série de Dirichlet et permet donc, selon l'ordre du développement choisi, de maîtriser la précision du calcul. Cette méthode a été mise en oeuvre par Masson [66], mais elle reste relativement lourde et donc peu adaptée –à l'époque au moins– pour l'application à des matériaux

réels avec l’étape incontournable d’identification de paramètres.

La seconde méthode proposée par Schapery [95], appelée “méthode directe”, consiste à définir une relation approchée entre la valeur de la Transformée à la fréquence p et la valeur de la fonction considérée à un temps t dépendant de p. Le calcul de la Transformée inverse devient alors immédiat, ce qui est confortable numériquement, mais la précision de l’inversion n’est plus contrôlée. Nous avons cependant pu montrer que cette méthode donnait, dans certains cas au moins, d’excellents résultats. Dans un premier temps, nous avons considéré un matériau simple (composite biphasé visco-élastique linéaire) afin d’adapter la méthode directe au cas du modèle affine. Les résultats de la méthode ont pu être confrontés à des solutions analytiques, et un excellent accord a été obtenu (figure 1.14). Pour les

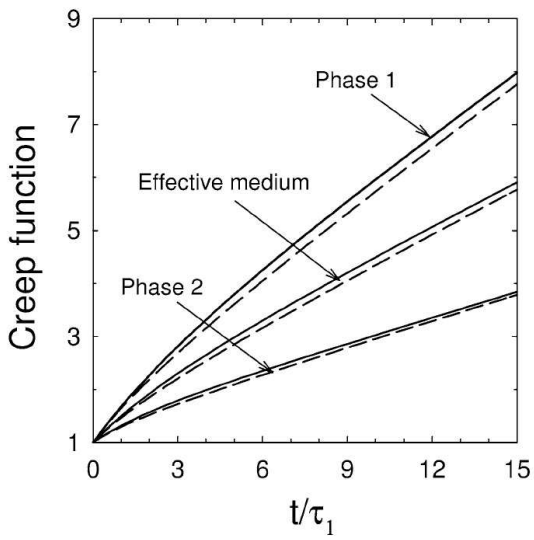


FIG. 1.14 – Fonctions de fluage locales et effective d’un composite biphasé isotrope visco-élastique linéaire, composé de deux phases maxwelliennes isotropes incompressibles, estimées par le schéma auto-cohérent. On observe le très bon accord entre la solution exacte (traits continus) et l’estimation obtenue avec l’approximation ”quasi-élastique”. Le rapport des temps de relaxation des deux phases est de 10.

matériaux élasto-viscoplastiques non-linéaires, cette méthode d’inversion donne lieu à une nouvelle formulation qui coincide avec le schéma affine classique pour les régimes stationnaires. Dans le régime transitoire, le Milieu Linéaire de Comparaison associé à la méthode n’est plus de type thermoviscoélastique mais thermoélastique. L’application à la réponse en fluage et en relaxation d’un polycrystal non-linéaire donne de très bons résultats, comparables à ceux obtenus avec la méthode de collocation, même aux contrastes mécaniques élevés entre les différents systèmes de glissement.

Collaborations : R. Masson, A. Zaoui (LMS-X), R. Brenner, B. Bacroix (LPMTM)

Communications associées : 1.17, 1.25, 6.28, 6.43

1.5.2 Application au fluage d'un alliage de zirconium

L'objectif de la thèse de Rénald Brenner était de comprendre les différences de comportement en fluage entre différents alliages de zirconium (zirconium-niobium), de même composition chimique, mais présentant des microstructures différentes. Parallèlement à un large programme expérimental (essais mécaniques, MET, microanalyses X,...), le modèle auto-cohérent en thermo-élasto-viscoplasticité, version quasi-élastique, a été utilisé. Les alliages de zirconium présentent l'avantage d'avoir un comportement viscoplastique local très anisotrope en raison du faible nombre de systèmes de glissement faciles indépendants, mettant ainsi facilement en défaut la modélisation. D'un autre coté, une modélisation micromécanique pertinente s'avère particulièrement intéressante pour ces matériaux car elle permet de préciser les mécanismes de glissement et d'écrouissage locaux, pour lesquels peu de mesures expérimentales directes existent.

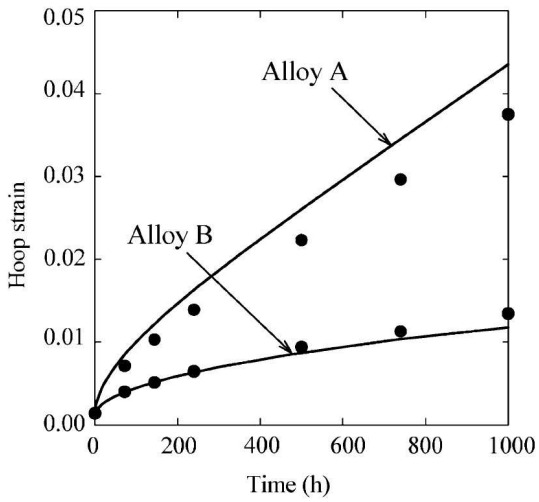


FIG. 1.15 – Evolution de la déformation circonférentielle de deux alliages de zirconium Zr-Nb 1%O présentant des états thermodynamiques distincts, au cours d'un essai de fluage en pression interne réalisé sur un tube, pour un même état de contrainte macroscopique ($\sigma_{\theta\theta} = 130$MPa) et à $400°$C. Les résultats expérimentaux (points) sont confrontés aux simulations numériques (traits).

La figure 1.15 montre un résultat typique de confrontation avec l'expérience. Les deux alliages utilisés présentent la même composition chimique, même texture cristallographique, même taille et forme de grain,... Ils ne diffèrent que par les cycles thermiques imposés lors du processus d'élaboration du matériau. Ainsi, l'alliage B n'est pas dans un état stable, mais il a été établi durant cette thèse une sursaturation de Niobium en solution solide dans la matrice de l'alliage, responsable d'une augmentation forte de la viscosité. Les paramètres du modèle sont identifiés sur la réponse macroscopique de plusieurs échantillons, à l'aide d'une procédure de minimisation où des contraintes d'optimisation ont été introduites afin d'obtenir non seulement un bon accord avec l'expérience, mais aussi une loi du com-

portement local “physiquement acceptable”. Cette notion est d’ailleurs assez floue pour le zirconium, puisque précisément peu de mesures directes (par exemple sur monocristal) permettent de connaître ce comportement. Cependant, le bon accord non seulement avec le comportement effectif mesuré (figure 1.15), mais aussi avec l’état de contrainte local déterminé par diffraction de neutrons (voir section 2.5) montre la validité de la méthode proposée.

Collaborations : R. Brenner, B. Bacroix (LPMTM), J. L. Béchade (CEA-Saclay)
Communications associées : 1.24, 4.3, 6.30

1.5.3 Application au fluage de la glace

L’homogénéisation des comportements élasto-viscoplastiques non-linéaires a été poursuivie dans le cadre d’un projet de “soutien aux jeunes chercheurs” du SPI, que j’ai coordonné, sur l’étude du fluage transitoire des glaces polaires, en collaboration avec P. Duval du LGGE (Grenoble). Comme le zirconium, la glace présente localement un comportement viscoplastique très anisotrope. Dans les conditions in-situ des calottes polaires, le matériau se déforme essentiellement en fluage par glissement de dislocations à une température proche du point de fusion. En laboratoire, les essais mécaniques montrent une très forte décroissance, de plusieurs ordres de grandeur, de la vitesse de fluage dans le régime transitoire [2]. La difficulté d’interprétation des essais mécaniques réside dans la quasi-inexistence de fluage stationnaire. S’il existe bien une vitesse de fluage minimum, qui d’ailleurs apparaît systématiquement autour de 1% de déformation quelle que soit la texture cristallographique [13], la recristallisation dynamique entre rapidement en jeu, ce qui a pour conséquence une augmentation significative de la vitesse de déformation [61].

L’application de la formulation affine quasi-élastique a permis entre autres de préciser le rôle de l’écrouissage intracristallin dans le fluage primaire (figure 1.16). On montre que l’amplitude de décroissance de la vitesse de déformation en fluage s’explique par l’anisotropie du comportement viscoplastique local. On observe en effet une importante redistribution des contraintes pendant le fluage transitoire, passant d’une distribution quasi-uniforme lors de la mise en charge, l’élasticité de la glace étant quasi-isotrope, à une distribution très hétérogène lors du fluage stationnaire, en raison de la forte anisotropie viscoplastique. Cependant, la cinétique de décroissance de la vitesse de déformation ne peut être reproduite que par l’introduction d’un mécanisme de durcissement des systèmes de glissement secondaire. Concernant le fluage permanent, le comportement local viscoplastique identifié lors de ce travail est en bon accord avec les données sur monocristaux.

Collaborations : M. Montagnat, P. Duval (LGGE), R. Brenner (LPMTM)

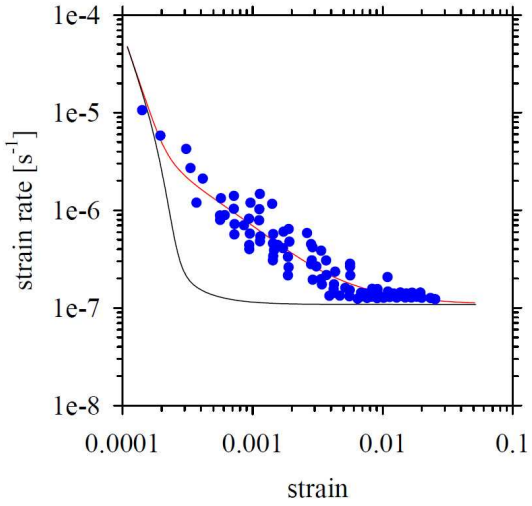


FIG. 1.16 – Réponse effective en fluage en compression uniaxiale (1MPa, $-10°$C) de la glace isotrope. Les données expérimentales (points) sont tirées de plusieurs séries d'essais mécaniques [2]. Les courbes noire et rouge correspondent respectivement à la réponse du modèle affine sans et avec prise en compte d'un durcissement des systèmes secondaires.

Communications associées : 6.39

1.6 Conclusion

Concernant l'apport des méthodes en champs moyens pour l'étude des polycristaux, je me suis attaché à montrer l'intérêt de considérer les hétérogénéités de champs, tant au niveau inter– que intra–phase. Pour des applications concrètes aux matériaux réels, l'accent a été mis sur l'utilisation de méthodes simples mais pertinentes, en gardant à l'esprit les limitations des modèles utilisés. Pour un matériau modèle 2-D linéaire, nous avons montré que le détail de la microstructure n'avait que peu d'influence sur les premiers et seconds moment des champs dans les phases mécaniques, ce qui justifie donc l'utilisation du schéma auto-cohérent pour les polycristaux. Pour une application aux polycristaux non-linéaires, l'extension affine offre un bon compromis entre la simplicité de sa mise en oeuvre et la qualité des résultats obtenus, autant pour les comportements viscoplastiques qu'élasto-viscoplastiques. Evidemment, à terme, l'estimation du second ordre, plus rigoureuse, devra être promu. Cependant, nous avons obtenu avec l'extension affine une bonne estimation de l'effet de la texture cristallographique, cohérente avec l'expérience. D'autre part, les lois de comportement local qui ont pu être identifiées à partir d'une utilisation inverse du modèle sur une base d'essais mécaniques macroscopiques sont globalement en bon accord avec les données disponibles pour plusieurs matériaux fortement anisotropes. Le choix d'une méthode particulière de linéarisation n'est cependant pas anodin, puisqu'il a des conséquences significatives sur la distribution des champs. Ainsi, une interprétation correcte de phénomènes associés à la

plasticité, comme la recristallisation dont l'activation dépend directement de la distribution d'énergie élastique dans le matériau, ne peut être obtenue que par un choix minutieux du modèle adopté. Nous avons d'autre part revisité les méthodes traditionnelles de prise en compte de l'écrouissage, et avons montré que la considération des hétérogénéités intraphase des quantités de glissement permet un traitement nettement amélioré. Une analyse similaire serait à prévoir pour le traitement des évolutions de texture cristallographique. Ces développements ont pu être effectués grâce à la possibilité de mener des confrontations avec des calculs en champs complets qui offrent des solutions de référence permettant de valider les approches en champs moyens.

Il apparaît cependant que les mesures du comportement effectif d'un matériau ne sont pas suffisantes pour attester de la pertinence d'une modélisation. Descendre à l'échelle inférieure, et mesurer les champs mécaniques au niveau du grain, voire même du sous-grain, est nécessaire. Ce point fait l'objet du chapitre suivant, où les potentialités des techniques de diffraction sont exposées.

Chapitre 2

Analyse de la distribution des déformations élastiques par diffraction

2.1 Contexte

Nous avons vu l'importance de considérer l'hétérogénéité des champs mécaniques pour comprendre et modéliser la déformation des polycristaux. La validation des modèles micromécaniques à l'échelle locale nécessite l'obtention de données expérimentales. Evidemment, la notion "d'échelle locale" est relative, et dépend du dispositif expérimental utilisé. Par exemple, une mesure de déformation consiste généralement à estimer le déplacement relatif entre deux points voisins du matériau, la distance entre les points définissant *la base de mesure* sur laquelle une information *moyenne* est obtenue.

Diverses techniques de mesure de champ de surface ont été développées au cours de ces dernières années. La microextensométrie, particulièrement intéressante pour nos applications, permet la mesure du champ de déformation total (élastique + plastique) sur une base de mesure micrométrique [20]. La résolution de la technique ne permet cependant pas d'accéder aux déformations élastiques.

J'ai choisi de développer et d'appliquer la technique basée sur la diffraction des rayons X et des neutrons. Plusieurs raisons justifient ce choix :

- Il s'agit d'une technique de mesure de champ, dans l'espace des orientations (espace d'Euler) ou dans l'espace physique, selon le dispositif expérimental utilisé.
- La technique n'est sensible qu'aux déformations élastiques. Nous verrons que dans certains cas, une estimation des contraintes est possible.
- La réalisation expérimentale est extrêmement souple, puisque le volume d'analyse (le volume diffractant, noté Ω) peut aller du μm^3 au mm^3.
- L'analyse peut être réalisée en surface de l'échantillon comme en volume.
- L'analyse étant directionnelle, la réponse mécanique peut être caractérisée en fonction de l'orientation cristallographique des grains.

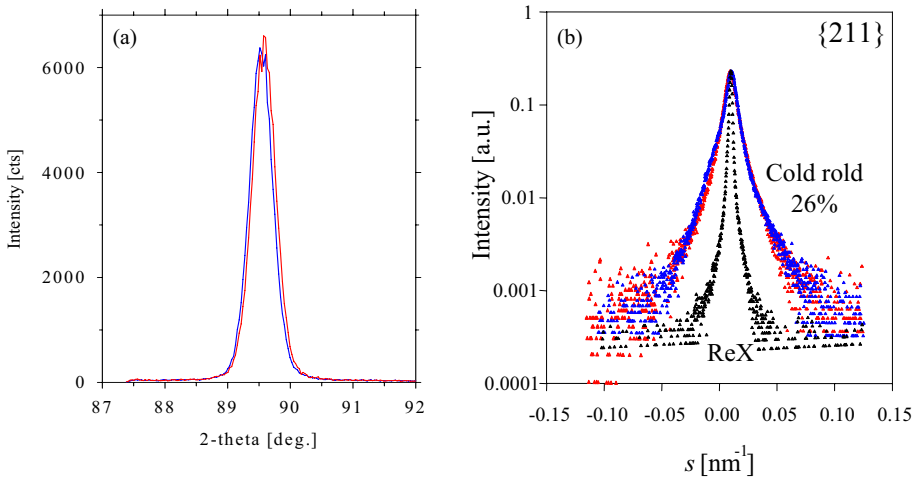


FIG. 2.1 – Effet de la déformation du matériau sur les raies de diffraction. (a) Déplacement de la raie $\{110\}$ mesurées à 0 MPa et 440 MPa dans un acier dual phase lors d'une déformation élastique in-situ au LLB. (b) Elargissement de raie mesurée dans un acier IF-Ti, laminé à froid de 26% à partir d'un état recristallisé (ReX). Ces deux effets sont généralement simultanés.

Il s'agit donc d'une technique qui, sur le principe, s'avère particulièrement intéressante pour les études mécaniques. Il existe cependant certaines difficultés :

- De nombreux montages expérimentaux sont réalisables, mais à chaque montage est associé une résolution instrumentale qu'il est important de maîtriser pour des mesures et des exploitations correctes.
- La présence de déformations élastiques pouvant avoir des origines très diverses dans les polycristaux (déformations thermiques, plastiques, transformation de phase, etc...), l'interprétation nécessite l'usage d'un modèle micromécanique et une parfaite connaissance et maitrise de l'histoire thermomécanique du matériau.

Ainsi, la diffraction n'est pas une technique "presse-bouton". Par exemple, l'interprétation mécanique des *déplacements* de raie (figure 2.1), méthode souvent qualifiée de "mesure de contrainte", a généralement pour but la détermination d'un état de contrainte macroscopique [79]. Nous verrons que l'interprétation des données n'est en fait simple que dans des cas bien spécifiques, comme par exemple une réponse purement élastique du matériau, dans lesquels les matériaux d'usage industriel ne rentrent généralement pas. L'exploitation des *élargissements* de raies consiste souvent à estimer une densité de dislocations, l'hypothèse sous-jacente consistant à dire que les distorsions de réseau sont essentiellement crées par les dislocations [48, 116, 27, 108, 58, 31, 9]. Dans ce cas, l'élargissement lié à la faible taille des sous-grains est utilisé comme un terme correctif, permettant un meilleur ajustement des données par le modèle utilisé. En pratique, l'exploitation des déplacements et des élargissements des raies est rarement menée conjointement, bien qu'il s'agisse d'une caractérisation mécanique à des échelles différentes. On notera

cependant que dans le domaine de l'élaboration et de la caractérisation de poudres et/ou de couches minces, dans lequel la diffraction est une technique centrale, des progrès considérables ont été réalisés ces dernières années en raison notamment du développements des moyens expérimentaux (sources synchrotron, détecteurs, optiques,...) et des moyens de calcul. Par exemple, l'anisotropie de taille de grains et la distribution de taille des grains nanométriques ont pu être obtenue [62, 50, 46, 65]. Dans ces analyses orientées plutôt vers la Physique/Chimie du solide, les distorsions du réseau cristallin sont traitées comme un terme correctif. Ce n'est que très récemment que ces développements ont pu être combinés avec les modèles d'élargissement associés à la présence de dislocations [110].

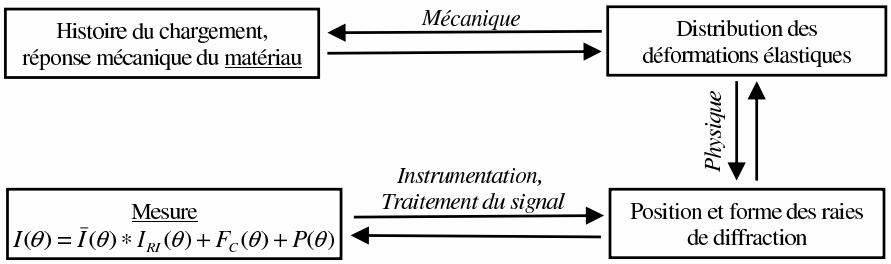


FIG. 2.2 – L'exploitation des mesures de diffraction nécessite (i) d'extraire des données brutes les informations pertinentes, (ii) de les traduire en terme de distribution des déformations élastiques, puis (iii) de les interpréter à l'aide d'un modèle micromécanique prenant en compte la microstructure du matériau et son histoire de chargement.

La technique demande donc un développement spécifique sur deux aspects, acquisition et interprétation des données, auxquels je me suis attaché depuis mon recrutement au CNRS. Le travail réalisé a consisté à clarifier l'expression des données mécaniques contenues dans les raies de diffraction, et à proposer une méthode d'interprétation basée sur les techniques d'homogénéisation (figure 2.2). Nous avons montré, dans ce contexte, l'intérêt spécifique de l'usage de neutrons. Parallèlement, je me suis investi dans la caractérisation de la réponse instrumentale des diffractomètres, ce qui a conduit au développement d'un code de calcul spécifique, et la définition du nouveau parc de diffractomètres du LPMTM. Enfin, profitant des progrès récents et significatifs concernant les optiques pour rayons X, permettant de transformer la diffraction classique en véritable "Microscopie en Rayons X", j'ai contribué au développement des techniques de microdiffraction en rayonnement synchrotron dans le but d'obtenir des distributions intragranulaires de contrainte. Des applications sur divers matériaux industriels sont présentées dans la suite du rapport.

Une partie importante de ces travaux a été réalisés dans le cadre de la thèse de Nils Letouzé (2001-2005) que j'ai co-encadrée en collaboration avec Jean-Luc Béchade (CEA Saclay) et Brigitte Bacroix (LPMTM), et qui n'a malheureusement pas pu être soutenue. Les réalisations expérimentales s'appuient largement sur le service de diffraction du LPMTM, en particulier Thierry Chauveau. Les avancées

présentées ici ont évidemment bénéficiées de nombreuses discussions, souvent informelles, dont les principales sont indiquées dans la suite.

2.2 Mise en oeuvre expérimentale

Du point de vue expérimental, la démarche que je m'efforce de suivre consiste en la mise en place d'une procédure fiable pour maîtriser les incertitudes liées à la mesure et à son traitement. Comme dans toutes mesures expérimentales, un certain nombre d'artefacts sont contenus dans les pics de diffraction. La mesure brute est la convolution de la réponse du matériau par la réponse instrumentale (ou impulsionnelle), augmentée d'un bruit de fond, et régit par une statistique de Poisson (comptage d'un nombre de photons) (figure 2.2). La détermination de la quantité recherchée, i.e. la réponse de l'échantillon, requiert deux étapes :

1. L'utilisation d'un diffractomètre adapté à la qualité recherchée des résultats, donc permettant un taux de comptage suffisant, un niveau de bruit de fond faible, et une résolution instrumentale adéquate.
2. La mise en place d'une procédure fiable de traitement des données afin d'extraire l'information recherchée de la mesure brute.

Concernant le second point, l'étape délicate est la déconvolution, la mesure étant bruitée. Les méthodes utilisées dans la littérature sont généralement très simples (fit des raies par des fonctions analytiques, ou déconvolution par division des Transformées de Fourier) et pas réellement satisfaisantes. Des résultats de bien meilleures qualités ont pu être obtenus par l'application de méthodes de régularisation [65]. C'est un point qui mériterait un développement spécifique et que je n'ai pas abordé concrètement. Nous avons plutôt mis l'accent sur le premier point (choix des conditions de mesure), que je détaille ci-dessous.

Je tiens à souligner qu'une incertitude fiable sur la mesure n'est que très rarement (voire jamais) indiquée dans la littérature. Les valeurs annoncées, par exemple lors de "mesures de contrainte", portent davantage sur l'aptitude du modèle micromécanique utilisé à rendre compte des résultats expérimentaux que sur les mesures elles-mêmes, ce qui n'est guère satisfaisant. Il s'agit cependant d'un problème délicat.

2.2.1 Développement expérimental en laboratoire

Une des difficultés expérimentales de la diffraction est liée au choix du diffractomètre permettant le meilleur compromis entre un temps d'acquisition acceptable et une résolution de la mesure adaptée à l'application visée. Cette difficulté provient essentiellement de la faible brillance des sources classiques de laboratoire (tubes scellés).

Un montage dit “achromatique” [117], offrant une bonne résolution pour nos applications, est opérationnel au LPMTM depuis une dizaine d’années (installation en collaboration avec T. Ungar, Univ. Budapest, Hongrie). Si de bons résultats ont pu être obtenus sur cette installation, en particulier sur monocristaux par G. Mohamed lors de sa thèse [73], elle s’avère parfaitement inadaptée à l’étude de matériaux polycristallins, en raison d’un temps d’acquisition prohibitif. Le corollaire de cette restriction est l’impossibilité de caractériser correctement la réponse instrumentale du diffractomètre à l’aide d’une poudre standard, de sorte qu’il est très difficile de quantifier la qualité des données et d’y apporter les corrections nécessaires. L’absence de goniomètre motorisé limite aussi fortement les potentialités de l’installation.

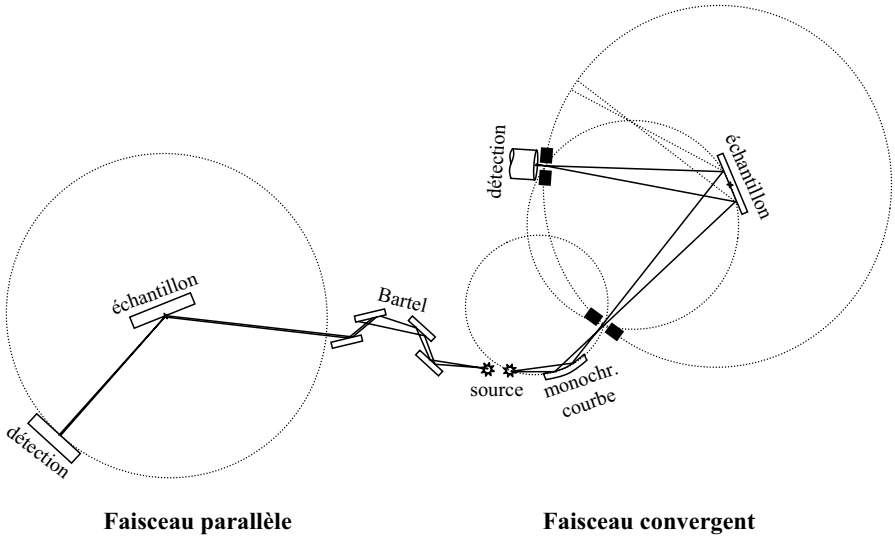


FIG. 2.3 – Shéma d’implantation des diffractomètres du LPMTM sur la nouvelle source à anode tournante. Sur la source de droite, un montage en faisceau convergent de type Bragg-Brentano permet un comptage rapide. A gauche, le montage en faisceau parallèle fournit une résolution optimale.

Une source à anode tournante, permettant un gain de flux d’un ordre de grandeur, a été achetée il y a trois ans. Nous avons décidé d’implanter sur cette source deux montages complémentaires, l’un en “Faisceau Convergent”, l’autre en “Faisceau Parallèle”, tous les deux destinés à l’analyse des déformations élastiques (figure 2.3). Le premier diffractomètre favorise l’aspect statistique de la mesure et le temps d’acquisition. Le second favorise la résolution. Le montage de ces installations a été long, mais il est actuellement en phase de test. Il a été très largement pris en charge par T. Chauveau (responsable du service de diffraction X au LPMTM), aidé des compétences de J. Fryet (Bureau d’Etude).

– Sur le diffractomètre à faisceau convergent, un monochromateur classique à lame de quartz courbée a été adopté, afin de favoriser le flux et la statistique de comptage. Deux détecteurs sont disponibles, ponctuel ou courbe à localisation, afin de pouvoir gérer la résolution instrumentale et le temps d’acquisition selon l’application.

– Sur le diffractomètre à faisceau parallèle, un monochromateur à quatre cristaux de Germanium (type Bartel) a été choisi afin d'augmenter la résolution, selon le montage proposé par Boulle et al. [11]. Cependant, le premier cristal a été taillé ici de manière à pouvoir travailler en réflexion symétrique ou en incidence rasante, cette dernière possibilité assurant en théorie un flux plus élevé en même temps qu'un gain en résolution (figure 2.4). Comme sur le montage précédent, deux systèmes de détection ont été prévus, mais cette fois en munissant le détecteur ponctuel d'un cristal analyseur pour une résolution maximale.

Le LPMTM sera ainsi muni d'un parc de diffractomètres polyvalents et complémentaires, qui devraient être particulièrement bien adaptés à l'ensemble des mesures relevant de la Mécanique des Matériaux (texture cristallographiques, contraintes résiduelles, densité et arrangement des dislocations, spectre de taille des matériaux nanostructurés, analyse précise de l'orientation et de la mosaïcité de monocristaux, analyse de phase cristalline, analyse de couches minces, etc. ...). Outre les études à caractère fondamental qui y sont prévues, cet équipement permettra de répondre à la demande de certains industriels.

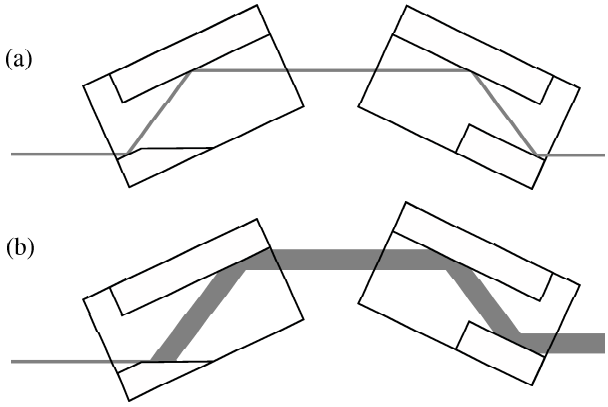


FIG. 2.4 – Schéma de principe d'un monochromateur de type (a) Bartel, avec 4 réflexions symétriques (ici Ge 220), et (b) proposé par Servidori [97] où la première réflexion est en incidence rasante.

Collaborations : T. Chauveau et J. Fryet (LPMTM).

2.2.2 Vers une maîtrise de la réponse instrumentale

La caractérisation expérimentale précise de la réponse instrumentale (i.e. réponse à un échantillon "parfait") d'un diffractomètre n'est pas simple. En effet les échantillons parfaits (vierge de défaut et de contrainte) n'existent pas. L'usage de standards, élaborés notamment par le NIST, permet des confrontations expérimentales entre les équipements comme cela a été fait récemment lors d'un "round robin" [4].

Cependant, un diffractomètre est un système composé d'éléments optiques relativement simples

(source, cristaux plan ou courbe, poudres, miroirs, fentes) dont l'interaction avec les rayons X est bien connue [3]. La réponse d'un diffractomètre peut donc être prédite à l'aide d'un modèle théorique. La méthode de calcul généralement adoptée est dite "de suivi de rayons". Elle consiste à émettre une petite onde plane (i.e. plane sur une petite distance) au niveau de la source, avec une énergie et une direction dépendant des caractéristiques de la source, puis à suivre le parcours de cette onde dans le diffractomètre (position, direction, intensité, polarisation). Le tirage aléatoire de quelques millions d'ondes planes est généralement suffisant pour une intégration correcte. Des codes numériques basés sur ce principe, en libre service (ex. SHADOW, distribué par Nanotech-Wisconsin) ou commerciaux (ex. SpotX, distribué par Caminotec), existent. Cependant, ces codes sont essentiellement orientés vers l'estimation des performances optiques des lignes de lumière installées sur les synchrotrons. Ils ne sont pas réellement dédiés au calcul de la réponse instrumentale d'un diffractomètre de laboratoire.

La simulation numérique est intéressante car elle permet à moindre cout de comprendre précisément le rôle de chaque élément optique : quel est l'élément responsable de la résolution, lequel absorbe le plus de flux, etc.. Elle permet d'autre part, en créant des "diffractomètres numériques", de tester très facilement d'autres installations que celles actuellement disponibles et d'en prévoir la réponse. Les montages existant peuvent ainsi être optimisés. D'autre part, la réponse instrumentale calculée peut être utilisée pour corriger les données expérimentales brutes sur les matériaux d'études. Cette dernière possibilité demande cependant une bonne précision dans le calcul numérique.

Dans le cadre de la thèse de N. Letouzé, nous avons développé un code numérique "maison". Les particularités de la méthode suivie proviennent de :

- la prise en compte de tous les effets dynamiques dans le calcul de diffraction par les cristaux, selon la méthode de traitement proposée par Huang and Dudley [37] et dont les conditions aux limites ont été étendues au cas des réflexions en géométrie de Bragg asymmétrique,
- l'utilisation d'une formulation vectorielle qui simplifie grandement la description de la géométrie du diffractomètre,
- l'utilisation d'une procédure d'intégration de Monte-Carlo basée sur un tirage pseudo-aléatoire (Sobol) qui accélère significativement la convergence du code,
- et enfin la mise en place d'un module de réglage du "diffractomètre numérique" permettant de reproduire numériquement la méthode d'alignement du diffractomètre utilisée par l'opérateur.

Ce code a été prévu pour pouvoir être appliqué à tout diffractomètre de laboratoire.

La première application de cet outil nous a permis de définir l'angle d'incidence optimal, en fonction des caractéristiques souhaitées, pour le monochromateur asymétrique proposé par Servidori [97] (figure 2.4b) et prévu pour le diffractomètre à faisceau parallèle du LPMTM. Les calculs ont été réalisés en

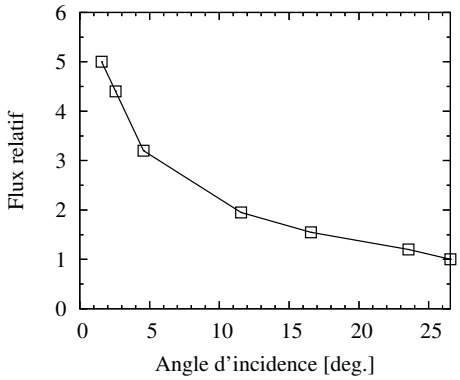


FIG. 2.5 – Effet de l'angle d'incidence du faisceau entrant sur le flux sortant du monochromateur présenté figure 2.4b. Un angle de $0°$ correspond à une incidence rasante, et $26.56°$ à une réflexion symétrique (Bartel) pour la longueur d'onde λ_{K_α} de la source Cobalt.

tenant compte de la divergence et du spectre d'émission de la source Cobalt. Nous avons finalement choisi un angle d'incidence de $2.5°$ pour le premier cristal. Le modèle prédit pour cette géométrie un gain de flux d'un facteur 4.4 par rapport à un monochromateur de type Bartel (figure 2.5) en même temps qu'une diminution de 25% de la divergence du faisceau et de 30% de la largeur spectrale [a]. En contre partie, la section du faisceau augmente sévèrement. Ce monochromateur est actuellement en cours de test au laboratoire.

Collaborations : N. Letouzé (LPMTM), J.L. Béchade (CEA-Saclay)

2.3 Analyse mécanique des mesures de diffraction

L'utilisation de la diffraction en Mécanique des Matériaux est souvent associée à l'estimation de contraintes. L'analyse classique, basée sur la "méthode des $\sin^2\psi$" et ses variantes [79], est très largement répandue. Elle consiste à trouver la contrainte macroscopique compatible avec les déplacements de raie observés, en supposant une réponse purement élastique du matériau. L'application de cette technique à des matériaux industriels a généralement pour but la détermination d'un état de contrainte macroscopique dans le matériau, la pièce, ou la structure mécanique. Cependant, les contraintes présentes dans le matériau sont le résultat de son histoire thermomécanique. Elles intègrent l'ensemble des processus physiques, chimiques, et mécaniques auxquels il a été soumis, depuis son élaboration. Ainsi, les déformations thermiques et plastiques, la présence d'éléments d'addition et de défauts cristallins, les transformations de phase, la croissance de grains, la recristallisation, le maclage, etc. sont autant de mécanisme générant des contraintes résiduelles. Leur distribution est complexe, et largement hétérogène depuis l'échelle ato-

[a] Estimation basée sur le second moment des distributions.

mique jusqu'à l'échelle de la structure mécanique.

Il est clair que les déformations élastiques dans le matériau ne sont pas uniquement liées à la présence d'une contrainte macroscopique, contrairement à l'hypothèse utilisée dans la méthode des $\sin^2\psi$. On trouve souvent dans la littérature une classification des contraintes en 3 ordres, le premier ordre correspondant à "l'échelle du polycristal", le second à "l'échelle de la phase", le troisième à "l'échelle intragranulaire", avec des analyses se focalisant sur un ordre particulier sans tenir compte des autres. La notion de "contrainte pseudo-macroscopique" est également fréquemment utilisée [30]. Cette classification me semble artificielle, dans la mesure où la réponse locale du matériau dépend de la contrainte totale, pas d'une fraction spécifique (d'un ordre) de celle-ci. Pour les applications qui nous intéressent, il faut au contraire essayer de caractériser toute l'hétérogénéité du champ de contrainte, à diverses échelles. Il m'a donc paru important de définir précisément les grandeurs contenues dans les raies de diffraction, *en terme d'hétérogénéité de champ mécanique*, et de revisiter la manière de les interpréter notamment en utilisant l'apport des méthodes d'homogénéisation.

Collaborations : Nils Letouzé, B. Bacroix, R. Brenner (LPMTM), J.L. Béchade (CEA-Saclay), T. Ungar (Univ. Budapest), R. Barabash (Oak Ridge, USA)
Communications associées : 1.26, 1.28, 5.3, 5.5, 6.22, 6.36, 6.37, 6.47, 6.52, 6.58, 6.60

2.3.1 Grandeurs mécaniques contenues dans les raies de diffraction

Nous nous plaçons volontairement dans le cas le plus simple, celui d'un échantillon polycristallin massif, macrohomogène, de section constante, et soumis à des conditions aux limites homogènes au contour. L'hypothèse de macrohomogénéité signifie que les dimensions du polycristal sont très supérieures à la taille des grains, et que sa microstructure est stationnaire. Nous n'abordons pas le problème délicat des gradients de surface, ni celui de l'élargissement de raie associé à des grains de faible dimensions (nanométriques), ce dernier étant traité dans la littérature [50]. Nous supposons que la mesure de diffraction est réalisée avec un faisceau de rayons X ou de neutrons parallèle et monochromatique, de longueur d'onde λ, dont la section et la longueur d'atténuation sont très supérieures à la taille des grains du polycristal, de sorte que chaque raie de diffraction est la contribution d'un nombre important de grains, et est représentative du comportement effectif du matériau. Le choix résolu d'un cas très simple en apparence permet de mettre clairement en évidence certaines difficultés d'interprétation.

Dans ce contexte, et dans le cadre de la théorie cinématique, la transformée de Fourier $A(n)$ d'une raie de diffraction (scan $\theta - 2\theta$), positionnée dans l'espace réciproque du cristal, est donnée par [47]

$$A(n) = \langle \exp(2\pi i K n \bar{\varepsilon}_{\mathbf{K},n}) \rangle_\Omega \,, \tag{2.1}$$

où $K = 2\sin\theta/\lambda$ est le module du vecteur de diffraction $\mathbf{K}$, et n est une longueur physique dans le cristal, mesurée dans la direction de $\mathbf{K}$. Le "volume diffractant" Ω est constitué par l'ensemble des (sous)-grains dont l'orientation cristallographique vérifie la relation de Bragg, c'est-à-dire pour lesquels la normale à un plan (hkl) est parallèle au vecteur de diffraction. L'expression (2.1) indique que les pics de diffraction fournissent une information *moyenne* sur un ensemble d'orientation Ω, qui n'est qu'une faible partie bien spécifique du matériau total. Enfin, le terme $\bar{\varepsilon}_{\mathbf{K},n}(\mathbf{x}) = \Delta\mathbf{u}.\mathbf{K}/nK$ est une déformation axiale *moyenne* mesurée au point $\mathbf{x}$ sur une longueur n dans la direction de $\mathbf{K}$, $\Delta\mathbf{u}$ étant le déplacement relatif de deux atomes distant de n. Il apparaît donc que la mesure de diffraction est directionnelle, dans une direction donnée par le vecteur de diffraction $\mathbf{K}$. D'autre part, $\bar{\varepsilon}_{\mathbf{K},n}$ ne désigne pas un champ de déformation tel qu'il est défini classiquement en mécanique, mais seulement une déformation moyenne sur une certaine base de mesure de longueur n. On pourra, en omettant le caractère discret de la matière, définir le vrai champ de déformation ε_{KK} par

$$\varepsilon_{KK}(\mathbf{x}) = \frac{1}{K^2}\mathbf{K}.\boldsymbol{\varepsilon}(\mathbf{x}).\mathbf{K} = \lim_{n\to 0}\bar{\varepsilon}_{\mathbf{K},n}(\mathbf{x}) \tag{2.2}$$

avec $\boldsymbol{\varepsilon}$ le tenseur de déformation élastique. En pratique, $\mathbf{K}$ et $\bar{\varepsilon}_{\mathbf{K},n}$ sont respectivement de l'ordre de quelques nm^{-1} et 10^{-3}, de sorte que l'expression (2.2) peut être raisonnablement approximée par un développement limité à l'ordre 2 pour les petites valeurs de n. Cette approximation, à la base du traitement proposé par Warren et Averbach [112], permet l'évaluation de $\langle\bar{\varepsilon}_{\mathbf{K},n}\rangle_\Omega$ pour des valeurs de n de l'ordre du nanomètre. Si maintenant on peut faire l'hypothèse que la présence de dislocations est la principale source de déformations élastiques dans le matériau, alors la connaissance de $\bar{\varepsilon}_{\mathbf{K},n}$ pour plusieurs valeurs de n permet l'estimation de la densité et l'arrangement de ces dislocations [115, 31, 110].

Pour une exploitation mécanique des données, il est intéressant de faire apparaître le champ ε_{KK}. On montre ainsi que

$$\langle\varepsilon_{KK}\rangle_\Omega = -\frac{\mu^{(1)}}{K}, \qquad \langle\varepsilon^2_{KK}\rangle_\Omega = -\frac{\mu^{(2)}}{K^2}. \tag{2.3}$$

Le moment d'ordre 1 de la raie, $\mu^{(1)}$, qui définit la position de son centre de gravité, est associé à la déformation moyenne $\langle\varepsilon_{KK}\rangle_\Omega$. Dans la littérature, d'autre critères de position de raies (position du maximum, milieu de corde, etc) sont très fréquemment utilisés, car leur détermination expérimentale semble plus robuste. On remarque cependant que ces mesures de position ne sont associées à aucune grandeur mécanique, elles sont donc à utiliser avec prudence.

Le moment d'ordre 2 de la raie, $\mu^{(2)}$, qui est une mesure de largeur de raie, est associé à la moyenne quadratique de ε_{KK} sur le volume diffractant Ω. C'est donc la mesure de largeur de raie à privilégier pour les études mécaniques. Les autres mesures très souvent utilisées dans la littérature, telles que la largeur à mi-hauteur (FWHM), ne sont pas rattachées à des quantités mécaniques simples.

Les moments de raie d'ordre supérieur sont associés à des moments d'ordre supérieur de la déformation élastique. Cependant, leur estimation expérimentale devient difficile, en raison notamment de l'effet du fond continu.

Le volume diffractant Ω contient un ensemble d'orientation cristallographique, c'est-à-dire un ensemble de phases mécaniques telles qu'elles ont été définies dans le chapitre 1. Les expressions (2.3) montrent tout l'intérêt des méthodes d'homogénéisation en champ moyen pour l'interprétation des données de diffraction : pour les polycristaux, le schéma auto-cohérent fournit exactement les grandeurs nécessaires (premier et second moments des champs). La confrontation directe avec les données requiert simplement une étape d'intégration sur le volume diffractant, et nous avons pour cela proposé un formalisme s'appuyant sur le développement des champs calculés sur une base d'harmoniques sphériques généralisées. Dans ce contexte, les mesures en volume, telle qu'elles peuvent être réalisées en diffusion de neutrons notamment au LLB[a] (Saclay), sont particulièrement intéressantes.

2.3.2 Interprétation micromécanique

Je ne traite pas ici de l'interprétation des élargissements de raies. Je ne présente que les développements réalisés concernant l'interprétation des déplacements de raies, souvent qualifié (j'y reviendrai) de "mesure de contraintes".

La difficulté principale dans l'interprétation des mesures de diffraction est liée aux trois caractéristiques suivantes :

(i) On ne mesure qu'une projection dans une direction $\mathbf{K}$ de la distribution du tenseur de déformation élastique.

(ii) Cette distribution porte sur un certain volume Ω qui n'est généralement qu'une toute petite fraction de l'échantillon total (seul les grains en position de Bragg participent à l'expérience).

(iii) La nature de ce volume diffractant est intimement liée à la norme et la direction du vecteur de diffraction $\mathbf{K}$.

Il s'agit donc de relier entre elles des grandeurs mécaniques partielles (projections de tenseurs) moyennées sur des volumes variés (Ω). Le problème n'est pas trivial et l'utilisation d'approches micromécaniques s'impose.

Pour les matériaux élasto-plastiques, la présence de déformations élastiques locales peut avoir deux origines. La première est associée à la réponse purement élastique du matériau. La seconde, plus complexe, est associée à l'énergie élastique stockée par le matériau (présence de défauts cristallins, de déformations plastiques hétérogènes, etc). Elle est liée aux incompatibilités de déformation, qui doivent s'accommoder d'une manière ou d'une autre afin que la cohérence du matériau soit maintenue, générant

[a]Laboratoire Léon Brillouin (CEA-CNRS, Saclay) associé à la source de neutrons Orphée.

ainsi un champ de contraintes résiduelles. La mesure de diffraction ne permet de caractériser que la superposition de ces deux effets. La déformation élastique associée au déplacement des raies de diffraction s'écrit donc

$$\langle \varepsilon_{KK} \rangle_\Omega = \frac{\mathbf{K} \otimes \mathbf{K}}{K^2} : \langle \mathbf{S} : \mathbf{B} \rangle_\Omega : \bar{\boldsymbol{\sigma}} + \frac{\mathbf{K} \otimes \mathbf{K}}{K^2} : \langle \mathbf{S} : \boldsymbol{\sigma}_{\text{res}} \rangle_\Omega \tag{2.4}$$

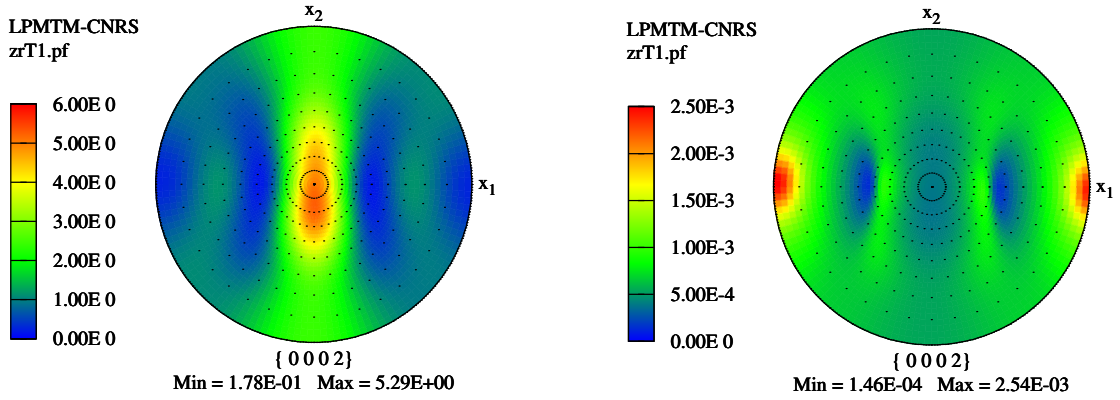
avec $\mathbf{B}$ le tenseur de localisation élastique des contraintes et $\mathbf{S}$ le tenseur de souplesse local. Le premier terme, en $\bar{\boldsymbol{\sigma}}$, du membre de droite de (2.4) est lié à la localisation élastique du chargement macroscopique, alors que le second terme, en $\boldsymbol{\sigma}_{\text{res}}$, dépend de la distribution des contraintes résiduelles dans le matériau. Dans le cas général, ils n'ont pas d'expression simple. Nous proposons ainsi, par le terme $\langle \mathbf{S} : \mathbf{B} \rangle_\Omega$, une expression des "Constantes Elastiques Radiocristallographiques" (CER) dans un cadre général d'anisotropie élastique. Cette formulation permet également de considérer la microstructure du matériau dans le calcul des CER, par l'intermédiaire de $\mathbf{B}$.

La loi des $\sin^2 \psi$ se retrouve si l'élasticité locale est isotrope (i.e. $\mathbf{B} = \mathbf{I}$) <u>et</u> si le champ de contraintes résiduelles est nul (i.e. $\boldsymbol{\sigma}_{\text{res}}(\mathbf{x}) = \mathbf{0} \ \forall \mathbf{x}$). Les variantes plus élaborées de cette même loi consistent à prendre en compte l'anisotropie élastique. Cette technique est à la base des "mesures de contrainte" par diffraction. Elle est même présentée comme la méthode principale dans la norme française d'analyse des contraintes (PR NF EN 15305). La méthode plus rigoureuse, que j'essaye de promouvoir, consiste à estimer l'importance relative du terme en $\boldsymbol{\sigma}_{\text{res}}$ afin de vérifier s'il est effectivement négligeable. Evidemment, cette démarche complique l'analyse des données. Je présente dans le suite de ce rapport des mesures sur du zirconium déformé en fluage montrant que les fluctuations de contrainte, à l'échelle du grain, mais aussi à l'échelle du volume diffractant, sont du même ordre du grandeur que la limite élastique du matériau. Mon impression est que ce terme est en pratique rarement négligeable.

L'expression (2.4) montre tout l'intérêt des mesures de diffraction : sur un polycristal non-contraint macroscopiquement ($\bar{\boldsymbol{\sigma}} = \mathbf{0}$), le déplacement des pics de diffraction permet l'analyse de la distribution du champ de contrainte résiduelle. La mesure permet donc d'appréhender les interactions intergranulaires ayant été générées dans le matériau lors de son chargement passé, ainsi que l'hétérogénéité des déformations qui en ont résulté. Couplé à un modèle micromécanique, cette technique permet d'analyser les mécanismes de déformation ayant été activés.

Enfin, mis à part quelques cas bien spécifiques où il peut être montré que le terme en $\boldsymbol{\sigma}_{\text{res}}$ est effectivement négligeable dans (2.4), nous montrons par cette analyse que le passage de la mesure des déformations élastiques à une estimation de contrainte macroscopique n'est pas trivial. Cela provient de la complexité des mécanismes pouvant générer des contraintes résiduelles, et de leur méconnaissance. Le terme largement utilisé de " Mesure de contraintes " est donc mal approprié.

A titre d'illustration, la figure 2.6 présente la distribution des déformations élastiques résultant d'un



(a) (b)

FIG. 2.6 – (a) Figure de pole des plans $\{0002\}$, et (b) distribution des déformations élastiques $\langle \varepsilon_{KK} \rangle_\Omega$ pour un polycrystal thermo-élastique de zirconium soumis à un chargement thermique, pour $\Delta T = -400°$C. Réponse calculée avec le schéma auto-cohérent.

chargement purement thermique, pour un polycristal de zirconium. Le zirconium présente des propriétés élastiques quasiment isotropes mais une forte anisotropie des coefficients de dilatation thermique, le coefficient selon l'axe $< \mathbf{c} >$ du cristal étant environ deux fois supérieur à celui selon les axes $< \mathbf{a} >$. La figure 2.6(a) montre la texture considérée dans le calcul, qui présente une forte concentration d'axes $< \mathbf{c} >$ autour de la direction $\mathbf{x}_3$. Les résultats (figure 2.6(b)) sont illustrés par une figure de pole des déformations élastiques, qui représente la distribution de $\langle \varepsilon_{KK} \rangle_\Omega$ en fonction de l'orientation de $\mathbf{K}$. Partant d'un état entièrement relaxé, et en l'absence de chargement macroscopique ($\bar{\boldsymbol{\sigma}} = \mathbf{0}$), un simple refroidissement du polycristal engendre de fortes contraintes résiduelles puisque des grains d'orientations cristallographiques différentes devraient se contracter différemment. Les plans de base de la maille cristalline, qui sont orthogonaux à l'axe $< \mathbf{c} >$, se retrouvent globalement "en traction" (déformations $\langle \varepsilon_{KK} \rangle_\Omega$ positives), alors que les plans prismatiques, parallèles à l'axe $< \mathbf{c} >$, sont "en compression". Dans ce cas, la texture cristallographique a une forte influence sur la distribution des contraintes résiduelles. Pour le cas étudié, l'application de la loi des $\sin^2 \psi$ n'aurait évidemment aucun sens, elle conduirait à une estimation de contrainte macroscopique de l'ordre de 50 MPa.

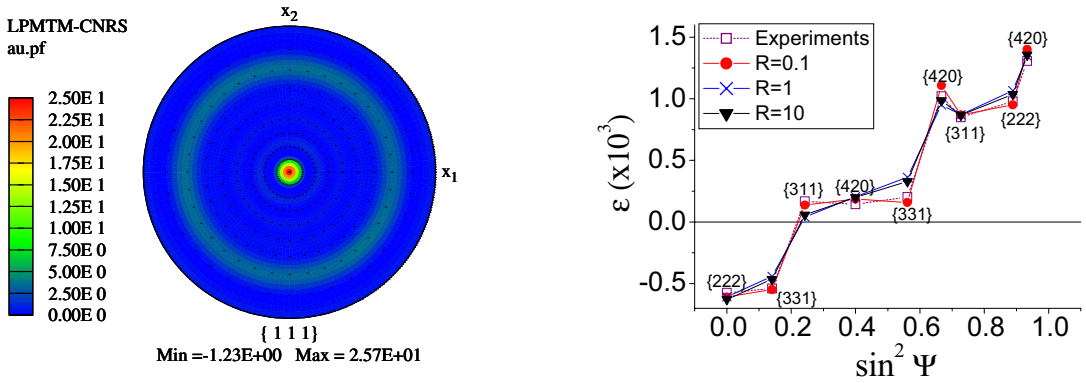
2.4 Hétérogénéités de déformation dans le domaine élastique

La seule manière de s'affranchir de l'influence des contraintes résiduelles dans (2.4) est de réaliser des expériences en chargement in-situ, c'est-à-dire en installant une machine d'essai mécanique dans le diffractomètre. La mesure du déplacement de la raie par rapport à sa position initiale (i.e. pour $\bar{\boldsymbol{\sigma}} = \mathbf{0}$) permet l'étude de la réponse élastique du matériau. D'une manière similaire, on montre que la mesure de

l'élargissement de la raie par rapport à sa forme initiale n'est lié qu'aux hétérogénéités des déformations élastiques, dans le cas bien évidemment où la réponse du matériau reste purement élastique. C'est ce que j'exploite dans les deux applications ci-dessous. On notera que dans les deux cas (film mince d'Or et échantillon d'acier massif), les mesures ont été réalisées en volume puisque la pénétration du rayonnement utilisé (respectivement rayons X en synchrotron et neutrons) est supérieure à la dimension de l'échantillon.

2.4.1 Comportement élastique de films minces nanostructurés

L'équipe de Philippe Goudeau du LMP (Poitiers) développe depuis plusieurs années des mesures de déformations in situ dans le but d'étudier le comportement mécanique des films minces supportés. Il s'agit de films mono- ou multi-couches, d'épaisseur nanométrique, déposés sur un substrat fin. Les applications de ces travaux concernent essentiellement les problèmes de la microélectronique (contraintes dans les composants, décollement, fissuration, etc).



(a) (b)

FIG. 2.7 – (a) Figure de pole $\{111\}$ du film d'Or étudié. (b) Evolution de $\langle \varepsilon_{KK} \rangle_\Omega$ en fonction de la direction du vecteur de diffraction repérée par l'angle ψ, pour différents plans diffractants $\{hkl\}$. La réponse expérimentale est parfaitement reproduite par le schéma auto-cohérent pour $R = 0.1$, où R désigne la forme de l'ellipsoïde d'Eshelby (< 1 : oblate ; $= 1$: sphérique ; > 1 : prolate).

Dans sa thèse [24], D. Faurie s'est attaché à décrire l'influence de la taille des grains et de la texture cristallographique des films sur la réponse mécanique, dans le cas de films relativement épais. Le cas étudié est celui d'un film d'or d'épaisseur $700\,$nm déposé sur une feuille de kapton de $127\,\mu$m. Les grains ont une structure colonnaire, avec un diamètre de colonne d'environ $50-100\,$nm. Le film présente une texture de fibre $\{111\}$ très prononcée (figure 2.7(a)). Du point de vue de la mécanique, il s'agit d'un problème intéressant car la limite d'élasticité de ces films étant particulièrement élevée, la mise en charge macroscopique peut engendrer des déformations élastiques élevées. Les conditions aux limites

auxquelles le film est soumis sont particulières, en raison de la présence d'une surface libre sur sa face supérieure, et du contact avec le substrat en kapton (faible module d'Young) en face inférieure. Elles ne peuvent pas être introduites dans le schéma auto-cohérent. Nous avons montré qu'une manière détournée de considérer leur influence est de considérer un ellipsoïde d'Eshelby de forme oblate (pancakes) dans la simulation, la distribution des contraintes dans le matériau s'approchant ainsi de celle existant sur une surface libre. Le modèle permet une excellente reproduction des données expérimentales (figure 2.7(b)). On montre que la non-linéarité de la réponse en fonction de $\sin^2\psi$ est liée non seulement à l'anisotropie du comportement élastique local et à la forte texture cristallographique, mais aussi à l'influence des surfaces supérieures et inférieures du film. Un projet ANR commun sur ce thème, incluant également D. Thiaudère de SOLEIL, a été accepté en 2005.

Collaborations : D. Faurie, P.O. Renault, E. Le Bourhis, P. Goudeau (LMP, Poitiers)
Communications associées : 6.57, 6.59, 6.61

2.4.2 Hétérogénéités de déformation dans un acier Dual-Phase

Dans ce même contexte, nous avons réalisé, en collaboration avec J. Crépin et D. Caldemaison (LMS-X, Palaiseau), des mesures de diffraction de neutrons sur un acier dual-phase déformé in-situ dans le domaine élastique. La machine de traction du LMS, prévue initialement pour travailler dans un MEB, à été adaptée au diffractomètre G5.2 du LLB [a]. L'anisotropie du comportement élastique du fer engendre une hétérogénéité de déformation qui se traduit, outre un déplacement de raies (figure 2.1a), par un très léger élargissement des raies de diffraction. La résolution du diffractomètre G5.2 n'est pas réellement adaptée à une mesure précise de ce phénomène, mais une correction adaptée des données permet d'en capturer l'essentiel. L'intérêt principal de l'usage de neutrons est ici la nature volumique des mesures réalisées, puisque environ $1\,\mathrm{cm}^3$ de matériau a été analysé. Dans ces conditions, la confrontation avec les résultats des méthodes d'homogénéisation est rigoureuse. A ma connaissance, des mesures d'élargissements de raies dans le domaine élastiques n'ont été réalisées que par Sprauel and Castex [100], mais les hétérogénéités intraphases de déformation n'ont pas été prise en compte lors de l'interprétation micromécanique. Concernant les déformations moyennes $\langle\varepsilon_{KK}\rangle_\Omega$, la figure 2.8 montre que l'écart entre les bornes de Reuss et Voigt est généralement faible, le schéma auto-cohérent donnant le meilleur résultat. Il faut descendre à l'échelle inférieure, celle de l'hétérogénéité de déformation $(\langle\varepsilon^2_{KK}\rangle_\Omega - \langle\varepsilon_{KK}\rangle^2_\Omega)^{0.5}$ dans le volume diffractant, pour montrer que la borne de Voigt est en désaccord complet avec l'expérience puisqu'elle s'appuie sur l'hypothèse de déformations homogènes. Malgré l'incertitude importante sur

[a] Depuis, le LLB s'est équipé d'une machine de traction in-situ mieux adaptée, dont la réalisation a été confiée au LPMTM (R. Chiron, J. Fryet)

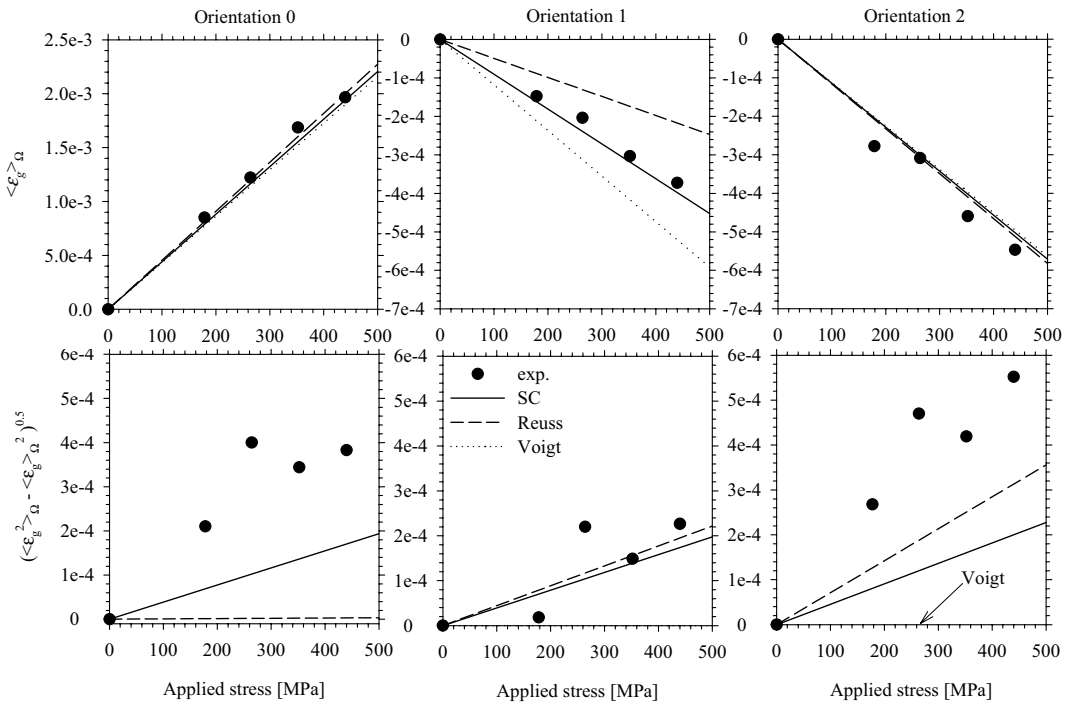


FIG. 2.8 – Déformations élastiques moyennes $\langle \varepsilon_{KK} \rangle_\Omega$ et écarts types $(\langle \varepsilon_{KK}^2 \rangle_\Omega - \langle \varepsilon_{KK} \rangle_\Omega^2)^{0.5}$ pour différentes orientations du vecteur de diffraction, en fonction de la contrainte effective appliquée in-situ. Comparaison de mesures sur les plans $\{110\}$ réalisées au LLB avec les résultats du schéma auto-cohérent (SC), ainsi que les bornes de Reuss et Voigt.

ces données, ce travail montre que le schéma auto-cohérent reproduit raisonnablement les hétérogénéités dans le volume diffractant et entre volumes diffractants.

Collaborations : N. Letouzé, R. Brenner (LPMTM), J. Crépin, D. Caldemaison (LMS-X), M. Cerretti (LLB-CEA)

Communications associées : 5.8, 5.9

2.5 Contraintes résiduelles générées par la plasticité

L'incompatibilité des déformations (visco)plastiques est source de contraintes résiduelles dans le polycristal. On s'attend d'ailleurs à ce que l'intensité de ces contraintes augmente avec la non-linéarité du comportement (visco)plastique et avec l'anisotropie plastique locale. L'analyse des déplacements de raies de diffraction est donc un moyen de caractériser les mécanismes ayant été activés pendant la déformation plastique. D'autre part, nous avons vu que la plasticité cristalline entraîne un élargissement des raies de diffraction (figure 2.1b) qui est mesurable avec un diffractomètre à "haute résolution" de laboratoire. Cet élargissement provient essentiellement de l'écrouissage du matériau et l'augmentation significative de la densité de dislocations pendant la déformation. Le champ de déformation associé à chaque dislocation

étant directement lié à son caractère (vis, coin, ...) et son orientation (plan de glissement, vecteur de Burgers), l'élargissement des raies dépend de l'orientation du plan diffractant (hkl) par rapport à la structure de dislocations [109]. Ce n'est que récemment qu'une procédure basée sur une méthode inverse a été proposée [69] pour retrouver les systèmes de glissement activés à partir de plusieurs mesures de diffraction.

Ces caractéristiques ont été mises à profit pour tenter, par une meilleure caractérisation de l'état déformé des matériaux, une analyse plus fiable de l'activation des mécanismes de recristallisation d'un acier IF-Ti et du cuivre ETP. Elles ont également été appliquées à l'étude des mécanismes de déformation du zirconium.

2.5.1 Recristallisation des aciers IF-Ti

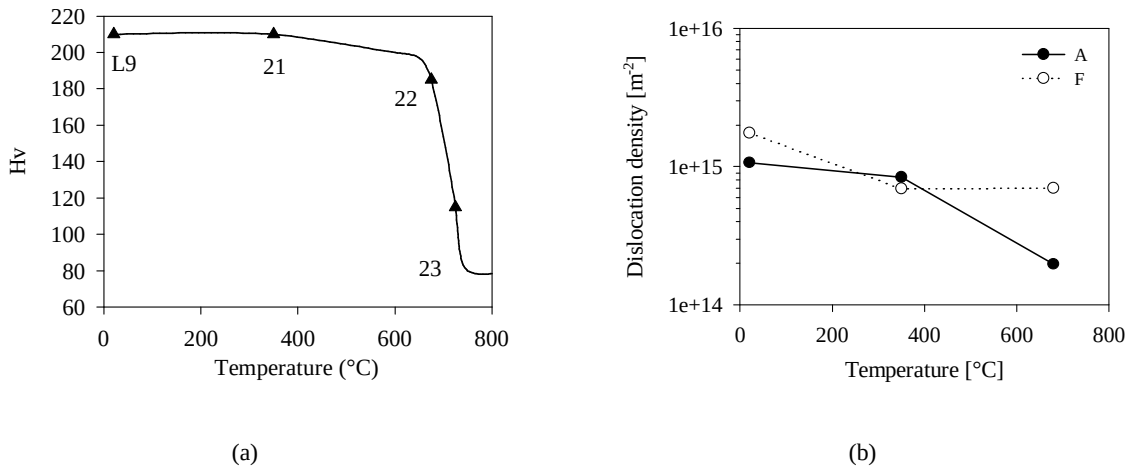


FIG. 2.9 – Evolution de (a) la dureté du l'acier IF-Ti et (b) la densité de dislocations des échantillons L9, 21, et 22, en fonction de la température du recuit, pour les orientations $\{100\} < 110 >$ (notée A) et $\{111\} < 112 >$ (notée F). L'état initial (L9) correspond à un laminage à froid de 90% de réduction.

Un paramètre important pour l'activation des mécanismes de recristallisation est le gradient d'énergie stockée dans le matériau, notamment en fonction de l'orientation cristallographique [38]. Pour les polycristaux fortement texturés, nous avons développé une technique qui permet de mesurer l'énergie stockée dans des composantes de texture $\{hkl\} < uvw >$ individuelles. La technique consiste à choisir le plan diffractant et l'orientation de l'échantillon de façon à ce que le volume diffractant ne contienne que l'orientation $\{hkl\} < uvw >$ souhaitée. Quelques résultats obtenus par cette méthode sur un acier IF-Ti laminé à froid de 90%, puis ayant subi différents traitements de restauration, sont présentés sur la figure 2.9, pour les orientations $\{100\} < 110 >$ appartenant à la fibre α et $\{111\} < 112 >$ appartenant à la fibre γ. L'analyse simultanée de plusieurs raies de diffraction caractérisant chaque orientation permet de montrer qu'à l'état déformé, l'écrouissage de l'orientation $\{111\} < 112 >$ est supérieur à celui de

$\{100\} < 110 >$, en accord avec les résultats de Rajmohan et al. [89]. On observe également une restauration plus importante pour l'orientation $\{111\} < 112 >$ qui, d'après Every and Hatherly [23] serait dû à la taille des cellules de dislocations et à leur morphologie. L'analyse du caractère des dislocations à partir des données de diffraction suggère, en accord avec Lee and Waber [56], une restauration plus rapide en raison d'une proportion supérieure en dislocations coins.

Je tiens à noter que, même si les résultats obtenus paraissent fiables, une étude approfondie de leur incertitude me parait nécessaire afin d'en tirer des conclusions plus robustes. Ce type d'approche se poursuit actuellement dans le cadre de la thèse de Aurelie Wauthier (resp. B. Bacroix) sur la recristallisation des aciers ULC, et de celle de Kangying Zhu (resp. B. Bacroix) sur la recristallisation des alliages de zirconium.

Collaborations : A. Miroux, B. Bacroix, T. Chauveau (LPMTM), H. Réglé (IRSID), T. Ungar (Univ. Budapest)
Communications associées : 1.15, 2.1, 2.2, 5.2, 6.18

2.5.2 Ecrouissage et recristallisation du cuivre ETP

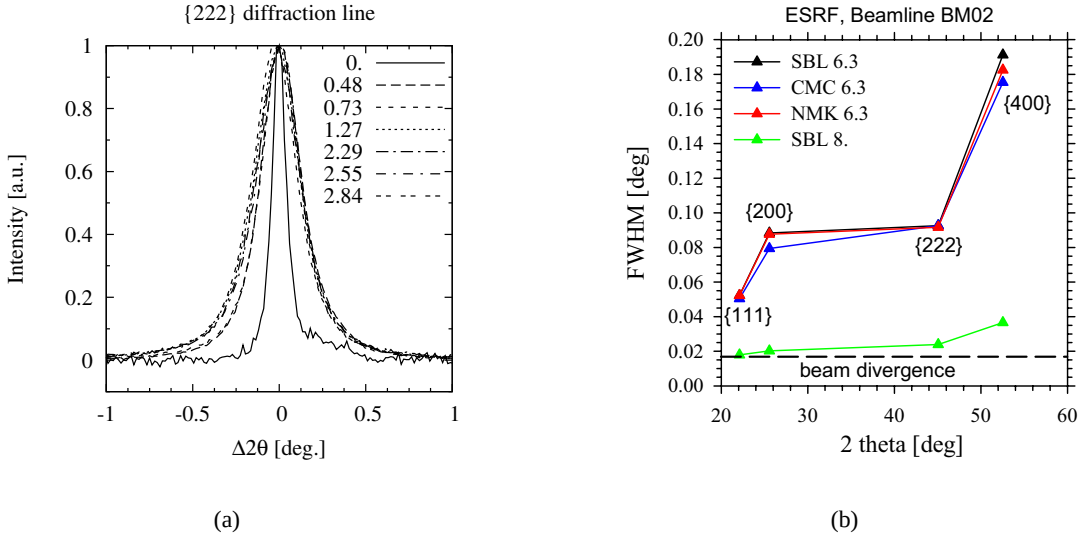
Une application de cette technique sur un matériau industriel a été réalisée dans le cadre du projet RNMP OPEFIC piloté par M.H. Mathon (LLB, CEA-Saclay). Le but de ce projet était la compréhension de l'influence de la teneur en impuretés (quelques dizaines de ppm) du cuivre ETP tréfilé sur sa cinétique de recristallisation. Ma contribution a portée sur deux aspects.

J'ai d'une part analysé le comportement mécanique des différentes nuances fournies par les industriels. Après une adaptation des machines d'essais à la faible taille des échantillons disponibles, des essais de traction et de cisaillement ont été réalisés sur des fils tréfilés à chaud (état recristallisé). Contrairement aux estimations préliminaires, basées sur l'analyse des densités de dislocations en diffusion des neutrons, aucune influence de la teneur en impureté n'a pu être mise en évidence.

D'autre part, des mesures de diffusion de neutrons ont été menées en traction in-situ sur le diffractomètre G5.2 du LLB (figure 2.10(a)), ce qui nous a permis d'appréhender l'influence de la déformation plastique sur l'écrouissage du matériau. Ces mesures ont été complétées par des analyses en diffraction des rayons X réalisées sur plusieurs diffractomètres présentant des résolutions différentes, en laboratoire et à l'ESRF[a] (2.10(b)). On retrouve systématiquement un écrouissage plus important dans la fibre $\{111\}$ que dans la fibre $\{200\}$.

L'étude a été poursuivie par l'application de différentes extensions du schéma auto-cohérent au matériau, et en testant plusieurs formes de loi d'écrouissage local. Pour chaque modèle, l'identification

[a]European Synchrotron Radiation Facilities, Grenoble



(a) (b)

FIG. 2.10 – (a) Profil des raies $\{222\}$ en fonction de la déformation du matériau, obtenue par tréfilage. Mesures effectuées sur le spectromètre G5.2 du LLB. (b) Largeur à mi-hauteur (FWHM) des raies $\theta - 2\theta$ de diffraction $\{111\}$, $\{222\}$, $\{200\}$, et $\{200\}$, mesurées sur des échantillons de cuivre recristallisés ($\phi 8$ mm) ou tréfilés à froid ($\phi 6.3$ mm, soit une déformation de 0.4). Les nuances SBL, CMC, et NMK correspondent à des teneurs en impuretés différentes. Mesures effectuées sur la ligne BM2 de l'ESRF. Les largeurs de raies mesurées sur l'état recristallisé sont dues essentiellement à divergence du faisceau incident.

des paramètres du comportement local a été réalisée par une procédure de minimisation sous contraintes[a]. Il a été intéressant de remarquer que, si le comportement effectif en traction et en cisaillement peut être reproduit convenablement par la plupart des modèles testés (figure 2.11a et b), aucun modèle ne reproduit l'écrouissage plus fort dans la fibre $\{111\}$ observé expérimentalement. A ce titre, il est probable que les développements présentés à la section 1.3.3 améliorent les prédictions, mais cela n'a pas encore été vérifié (difficultés liées à la non-linéarité du comportement considéré ici). Selon une analyse complémentaire en MET [7], ce résultat pourrait provenir d'une restauration dynamique plus efficace dans les orientations $\{200\}$, qui n'est pas pris en compte dans la loi d'écrouissage considérée ici.

Ces résultats mettent en évidence, une fois de plus, la nécessiter de recourir à des mesures locales pour valider les modèles de transition d'échelle.

Collaborations : M.H. Mathon, P. Gerber (LLB), T. Baudin, M. Benyoucef, R. Penelle (LCPES), L. Schneider (SLC), T. Chauveau, R. Chiron (LPMTM), J. Tarasiuk (Univ. Cracovie)

Communications associées : 6.33, 6.35, 6.46

[a]L'introduction de contraintes d'optimisation dans l'étape d'identification d'un modèle mécanique est souvent nécessaire pour limiter la recherche du minimum à un intervalle donné, ou pour garantir des paramètres physiquement acceptables (par exemple la densité de dislocations doit rester positive). J'ai développé à cet effet un code numérique polyvalent.

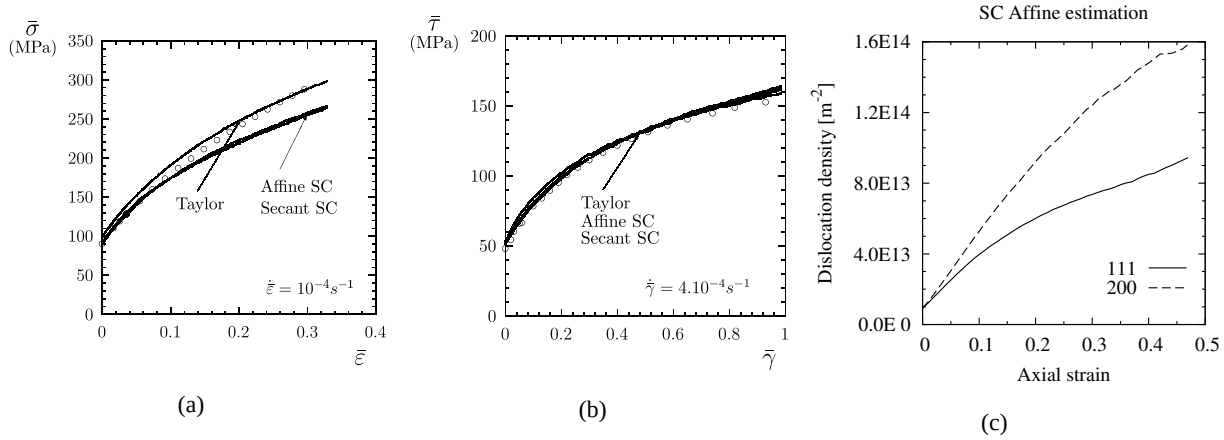


FIG. 2.11 – Comportement effectif des échantillons SBL recristallisés ($\phi 8$ mm) mesuré (points) et calculé (traits) avec les extensions affine et sécante du schéma auto-cohérent, (a) en traction uniaxiale et (b) en cisaillement. La prédiction de modèle de Taylor est donnée pour comparaison. (c) Evolution de la densité de dislocation prédite par l'extension affine en traction uniaxiale, pour les fibres $\{111\}$ et $\{200\}$.

2.5.3 Fluage thermique d'un alliage de zirconium

Le comportement mécanique du zirconium polycristallin de haute pureté (van Arkel) a été étudié dans le travail de thèse de Nils Letouzé (2001-2005), qui entrait dans le cadre du CPR CEA-CNRS-EDF sur les matériaux du nucléaire (CPR SMIRN). Le but de cette thèse était de montrer l'apport de l'utilisation simultanée des techniques de diffraction et d'homogénéisation pour la caractérisation du comportement plastique local des alliages de zirconium, en particulier concernant la cission de référence des systèmes de glissement durs (glissement pyramidal et basal) et les cinétiques d'écrouissage à l'échelle du grain. Certains résultats de cette thèse, plus axés sur la méthode que sur le matériau, ont été déjà présentés dans les sections précédentes.

Différents échantillons de zirconium van Arkel et de Zyrcaloy-4 ont été déformés en fluage en traction sous vide à $400°$C, à différents niveaux de déformations macroscopiques. Le matériau, caractérisé ensuite à froid, a donc été soumis à des déformations plastiques de fluage, puis à des déformations thermiques lors du refroidissement. Un grand nombre de mesures de diffraction ont été réalisées, en diffusion des neutrons (LLB) ou en rayonnement synchrotron (ESRF, Grenoble, et SRS, Manchester - GB). Ces mesures ayant été réalisées après décharge complète du matériau, elles permettent de déterminer la distribution des déformations élastiques associées aux contraintes résiduelles, suite au trajet de chargement thermo-mécanique. Le schéma auto-cohérent affine en thermo-élasto-visco-plasticité, présenté à la section (1.5.1), a été utilisé pour modéliser le trajet de chargement complet, depuis l'état supposé vierge de contrainte à haute température, jusqu'à l'état déformé plastiquement ramené à température ambiante.

La figure 2.12a indique la texture cristallographique de l'échantillon de Zyrcaloy-4, montrant des

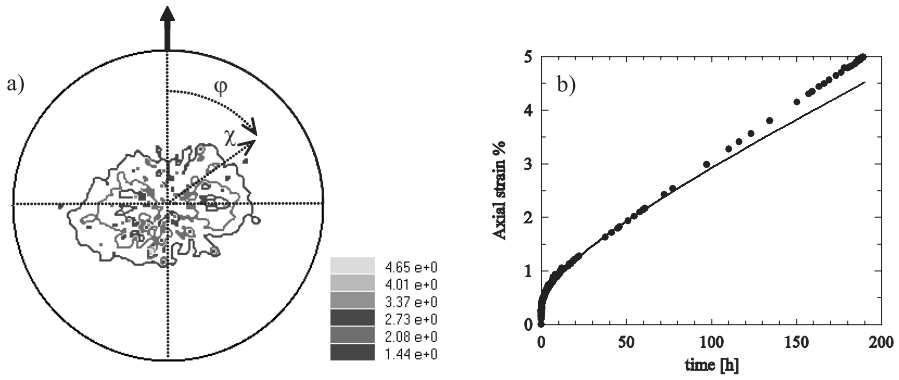


FIG. 2.12 – (a) Figure de pole $\{0002\}$ mesurée par diffusion de neutrons sur l'échantillon de Zyrcaloy-4. La flèche indique la direction de traction. Les angles φ et χ définissent l'orientation de l'axe $< \mathbf{c} >$ de la famille de grains considérée. (b) Comportement expérimental mesuré (points) et simulé (trait) lors du fluage à $400°$C.

axes $< \mathbf{c} >$ majoritairement orientés orthogonalement à l'axe de traction, favorisant ainsi le glissement prismatique (facile). Le comportement effectif du matériau est bien reproduit par le modèle (figure 2.12b), qui a été identifié sur une base expérimentale indépendante.

La figure 2.13 montre l'évolution de la déformation élastique moyenne $\langle \varepsilon_{KK} \rangle_\Omega$ en fonction de l'orientation de l'axe $< \mathbf{c} >$ des grains, mesurée par diffraction sur les plans de base $\{0002\}$. L'accord avec les résultats de modélisation est net, autant pour la forme de la distribution des déformations élastiques que pour l'amplitude des fluctuations. On peut montrer sur cet exemple que le niveau de déformation est directement corrélé à la "dureté" de la famille de grains, avec des valeurs faibles pour les grains déformés selon les systèmes de glissement primaire, et des niveaux plus élevés lorsque l'on tend à activer les systèmes secondaires plus résistants. Ces fluctuations de déformation sont très élevées, à cause de la structure cristalline hexagonale qui procure une forte anisotropie plastique. Elles correspondent à des fluctuations de contrainte de l'ordre de 100 MPa.

Ce résultat a été la première validation expérimentale du schéma auto-cohérent affine à une échelle locale.

Collaborations : J.L. Béchade (CEA-Saclay), M.H. Mathon (LLB), B. Bacroix, R. Brenner (LPMTM)

Communications associées : 1.22, 1.23, 5.7, 6.31, 6.32, 6.40, 6.50, 6.56

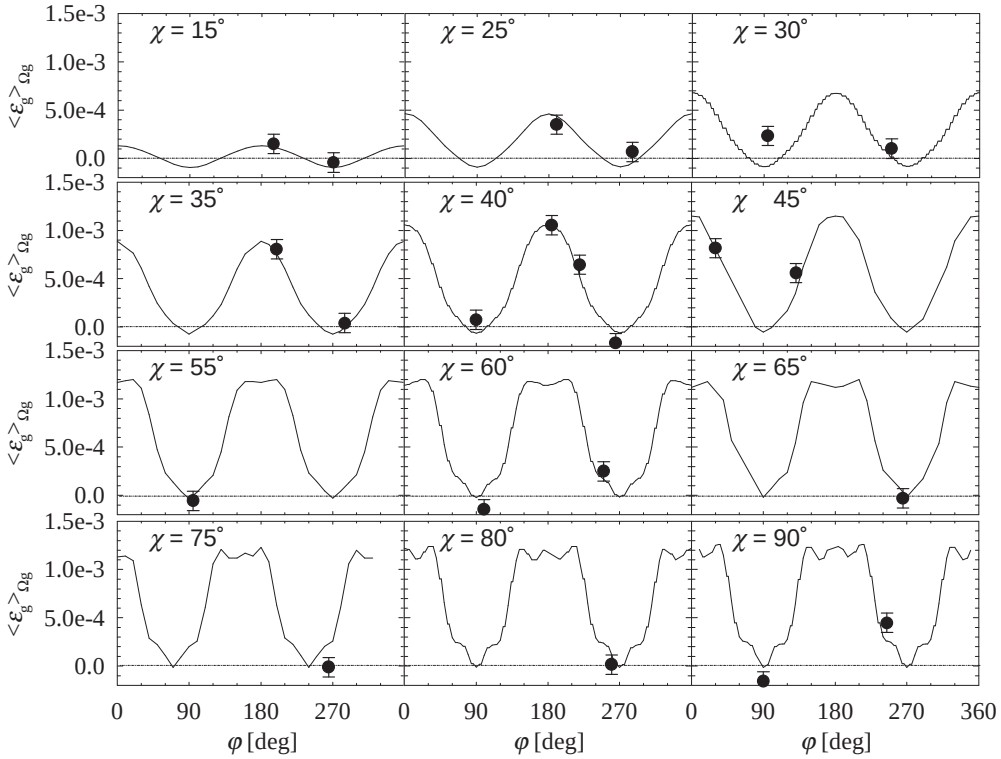


FIG. 2.13 – Fluctuation des déformations élastiques $\langle \varepsilon_{KK} \rangle_\Omega$ mesurées sur le plan $\{0002\}$ en diffusion de neutrons (points), en fonction des angles φ et χ. Le trait continu indique la prédiction du modèle auto-cohérent en thermo-élasto-visco-plasticité. Mesures effectuées sur le diffractomètre 6T1 du LLB, après 5% de déformation macroscopique.

2.6 Vers une cartographie de l'hétérogénéité spatiale des contraintes

Les mesures de diffraction réalisées en laboratoire (rayons X) ou sur les réacteurs à neutrons sont limités par la faible brillance[a] des sources utilisées. Un temps d'acquisition raisonnable nécessite l'emploi d'un faisceau de section suffisante, de l'ordre du mm^2 pour les rayons X, en même temps qu'une divergence et une largeur spectrale modérées.

Il en est tout autrement pour les sources synchrotron de 3ème génération, comme l'ESRF. Ces sources présentent en effet une brillance supérieure de plus de dix ordres de grandeur à celles de laboratoires. Il devient donc possible de travailler avec un faisceau de très petite section, possédant en même temps d'excellentes qualités géométriques et spectrales. Parallèlement au développement significatif de la source, des progrès spectaculaires ont été réalisés au cours des dernières années dans la réalisation d'optique pour rayons X, permettant d'obtenir récemment un faisceau focalisé d'environ 100 nm. La tendance générale vers l'utilisation de faisceaux de section de plus en plus réduite, micrométrique ou sub-micrométrique,

[a]La brillance d'une source est définie par le flux de photons (ou de neutrons) par unité d'angle solide, par unité de surface de la source, et pour une largeur spectrale donnée.

tend à transformer les lignes de lumière synchrotron en microscopes à rayons X.

Pour les applications qui nous concernent, l'emploi d'un faisceau micrométrique associé à un dispositif expérimental permettant la réalisation de cartographies a évidemment des débouchés tout à fait conséquents : hétérogénéité intragranulaire de contrainte liée à la plasticité, aux transformations de phase, au maclage, à l'endommagement, localisation autour des renforts dans les matériaux composites, etc...

D'autre part, le rayonnement synchrotron fournit des rayons X dans une large gamme spectrale. Les X très durs, avec une pénétration du faisceau dans le métal du l'ordre du millimètre, permettent des mesures en volume. C'est l'option qui a été choisie par exemple sur la ligne ID11 (Material Science) de l'ESRF [64]. Cependant, pour les études mécaniques, il me semble qu'il y a un intérêt particulier à pouvoir coupler les mesures en synchrotron avec d'autres techniques expérimentales, et notamment celles disponibles en laboratoire. Ces dernières sont pour la grande majorité des mesures de surface (observation MEB, EBSD, AFM, DRX, nanoindentation, etc...).

Une partie de mon travail de ces dix dernières années à donc consisté à développer et à appliquer les mesures de microdiffraction de surface en rayonnement synchrotron, et à les coupler avec les techniques MEB (EBSD et microextensométrie). Ma contribution dans ce domaine s'est déroulée en deux étapes. Dans un premier temps, un montage en faisceau monochromatique a été développé sur la ligne ID22 de l'ESRF. Quelques résultats sont présentés dans la section suivante. Depuis deux ans, je me suis investi plus spécifiquement dans la réalisation d'expériences en faisceau polychromatique (dit "blanc") à partir de la méthode mise au point à l'ALS (Advanced Light Source, Berkeley). Ce deuxième montage permet en effet une résolution spatiale nettement supérieure.

2.6.1 Tentative de réalisation en faisceau monochromatique

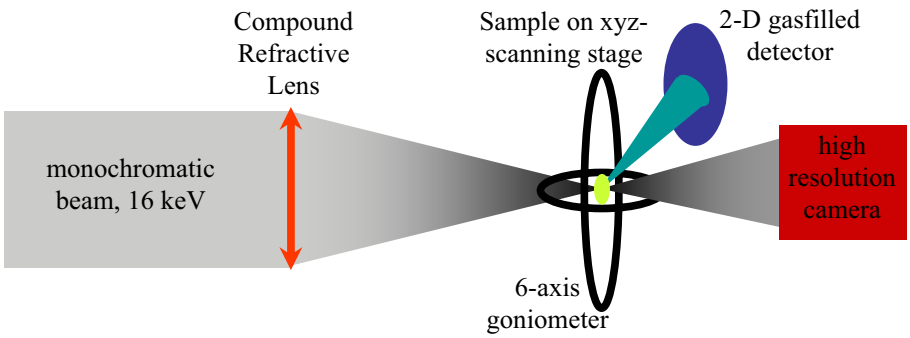


FIG. 2.14 – Schéma du montage de microdiffraction mise au point sur la ligne ID22 de l'ESRF.

Les faisceaux monochromatiques disponibles en rayonnement synchrotron sont d'excellente qualité géométrique et spectrale. Leur utilisation permet donc de scanner l'espace réciproque avec une résolution fine. Cependant, un grain ou un sous-grain particulier ne diffractera sur un plan (hkl) donné que si

ce plan est en orientation de Bragg. La réalisation d'une expérience de microdiffraction en faisceau monochromatique requiert donc le développement d'une procédure permettant

1. de focaliser le faisceau jusqu'à une taille micrométrique,
2. d'aligner le point de focalisation avec le centre de rotation du goniomètre,
3. de positionner le grain à mesurer au centre du goniomètre,
4. et enfin de faire tourner l'échantillon autour du grain à mesurer pour mettre le plan (hkl) voulu en position de Bragg.

Cela pose évidemment quelques problèmes techniques étant donnée la résolution spatiale recherchée, micrométrique. La méthode mise en place se base sur
(i) une analyse préliminaire de l'échantillon en EBSD, afin de déterminer à l'avance quelle doit être l'orientation de l'échantillon permettant de faire diffracter le plan voulu dans le grain voulu, et
(ii) la création d'un système de coordonnées sur l'échantillon visible à la fois en MEB et par les rayons X, permettant de positionner le faisceau X sur un grain particulier d'une taille de l'ordre de la dizaine de microns.
Un tel dispositif n'a pu être mis au point que par une collaboration étroite avec des chercheurs et ingénieurs de compétences complémentaires, cf. ci-dessous. Le montage réalisé est schématisé sur la figure 2.14. Le faisceau est focalisé par une lentille composée réfractive [98], puis est aligné à l'aide d'une caméra X à haute résolution placée dans le faisceau direct. Le repérage du grain sur l'échantillon est réalisé au moyen d'une microgrille en Or, déposée sur l'échantillon, matérialisant un système de coordonnées, et d'un petit marqueur ($\phi \approx 100\,\mu$m) collé sur la surface de l'échantillon et visible en rayons X grâce à la cohérence du faisceau synchrotron. Les raies de diffraction sont enregistrées à l'aide d'un détecteur 2-D à gaz. Pour le pilotage du montage, un logiciel spécifique permettant le déplacement et l'orientation de l'échantillon dans le faisceau X directement à partir d'une cartographie EBSD, a été développé. La réalisation de plusieurs campagnes de mesures a permis de montrer la fiabilité de la procédure. Cependant, la limitation principale de la technique provient de la qualité mécanique des goniomètres, les différents axes de rotation n'étant pas parfaitement concourants. La résolution spatiale est donc directement liée au diamètre de la sphère de confusion, qui est ici de $20-30$ microns. La technique ne permet donc d'obtenir des cartographies de contrainte intragranulaire que dans les matériaux à gros grains, supérieurs à $100\,\mu$m.

Ce montage permet cependant de mesurer, simultanément avec le profil des raies de diffraction, une désorientation globale entre les cellules de dislocations ainsi que la déformation élastique locale moyenne. La première application a été réalisée dans un acier IF-Ti laminé à froid et présentant une taille de grains de 40 microns environ. La figure 2.15 est un exemple de résultat, et montre que, dans

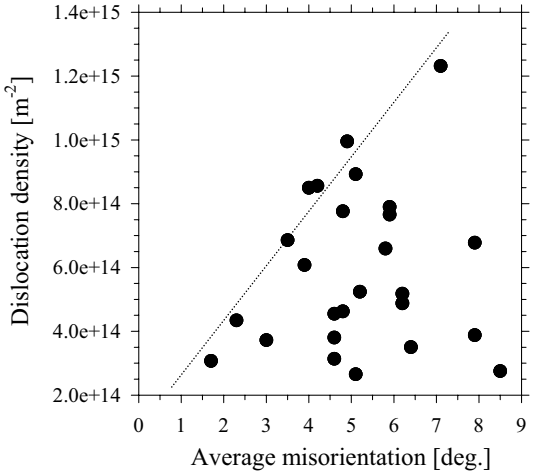


FIG. 2.15 – Densité de dislocations mesurées par microdiffraction en fonction de la désorientation intragranulaire mesurée par EBSD, pour un acier IF-Ti laminé à froid (26% de réduction). Chaque point de la figure correspond à un grain différent.

le matériau étudié, densités de dislocations et désorientations intragranulaires ne sont pas des quantités corrélées de manière simple. S'il apparaît clairement que les fortes densités de dislocations induisent toujours une forte mosaïcité ou courbure du réseau cristallin, l'inverse n'est pas systématique. Concernant les mécanismes de recristallisation de ce matériau, qui sont essentiellement pilotés par les gradients d'énergie élastique stockée, on s'attend donc à ce que la probabilité de nucléation et la vitesse de croissance de nouveaux grains soient maximales dans les grains pour lesquels les deux quantités sont fortes.

Une deuxième application a été réalisée sur un alliage de zirconium déformé en traction de 15% (collaboration J.L. Béchade, CEA-Saclay). La figure 2.16 montre la distribution d'intensité telle qu'elle est mesurée sur le détecteur 2-D. Une section horizontale de cette figure permet l'analyse de la distribution des déformations élastiques dans le volume diffractant Ω. Une section verticale permet d'analyser la distribution d'orientations dans Ω, l'angle de tilt indiquant l'orientation du sous-grain diffractant. On observe un net décalage $\Delta 2\theta$ des raies par rapport à la position 2θ moyenne, selon l'orientation du sous-grains considéré. Ce résultat reflète la présence d'une hétérogénéité de contrainte dans le grain. Etant donné la qualité du montage, il est facile de vérifier que ce phénomène n'est pas un artefact expérimental. La fluctuation de contrainte associée au décalage en 2θ est de l'ordre de 100 MPa, soit du même ordre de grandeur que la limite élastique du matériau. Elle est le résultat de l'anisotropie plastique du matériau. On notera également que de telles fluctuations n'ont pas pu être mises en évidence dans l'acier IF-Ti, probablement en raison d'une anisotropie plastique plus modérée. Le travail en cours sur ces données consiste à évaluer la possibilité de retrouver la distribution relative des dislocations sur les différents systèmes de glissement à partir de la forme de plusieurs raies de diffraction d'un même grain.

Suite cette l'expérience, j'avais été sollicité pour participer au développement d'un diffractomètre

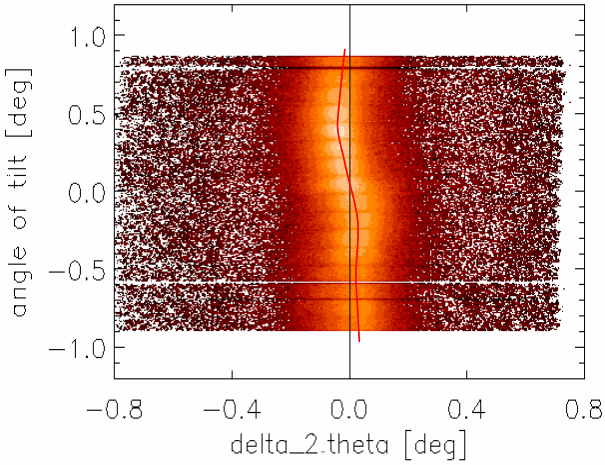


FIG. 2.16 – Distribution d'intensité mesurée sur le détecteur 2D pour un grain d'un échantillon massif de Zircaloy-2 déformé à froid de 15% en traction uniaxiale. La fluctuation de la position de raie $\Delta 2\theta$, matérialisée par la ligne rouge, en fonction de l'angle de tilt des sous-grains reflète la présence d'une hétérogénéité intragranulaire de contrainte. Données corrigées de l'ouverture du cône de diffraction.

dédié à la microdiffraction et prévu pour être placé en orbite sur la Station Spatiale Internationale (projet piloté par l'ESTEC). Le cahier des charges, tenant compte des sévères contraintes technologiques, a finalement montré que le diffractomètre initialement prévu était inadapté à des mesures en Mécanique des Matériaux.

Collaborations : M. Drakopoulos, I. Snigireva, A. Snigirev, A. Souvorov (ESRF), T. Ungar (Univ. Budapest), C. Schroer, B. Lengeler (RWTH, Aachen), T. Chauveau (LPMTM)

Communications associées : 1.14, 1.16, 1.19, 4.1, 4.2, 5.4, 6.20, 6.23, 6.24, 6.26, 6.27, 6.29

2.6.2 Les potentialités de la microdiffraction en faisceau blanc

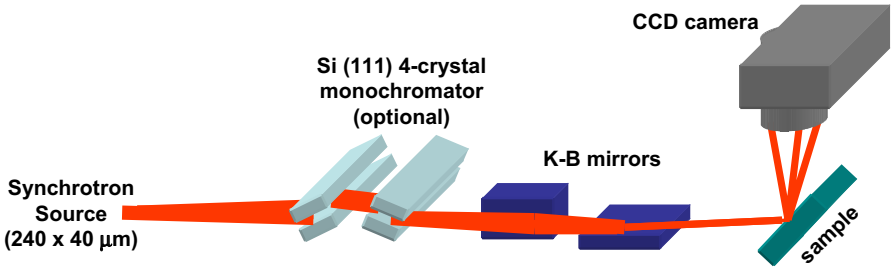


FIG. 2.17 – Schéma de la ligne de microdiffraction 7.3.3 de l'ALS.

La solution pour conserver une résolution spatiale (sub)micrométrique, permettant ainsi de réaliser de réelles cartographies de contrainte à la même échelle, consiste à s'affranchir des rotations d'échantillon. Cela est possible si le faisceau incident est polychromatique (blanc) puisque, dans ce cas, un plan (hkl)

d'orientation quelconque sélectionne la longueur d'onde du faisceau correspondant à la condition de Bragg. C'est la solution qui a été retenue sur la ligne 7.3.3 du synchrotron américain ALS (Berkeley). Le montage, décrit figure 2.17, comprend entre autre des miroirs de Kirkpatrick-Baez (KB) permettant d'obtenir un faisceau focalisé de section submicrométrique, et une camera CCD pour l'acquisition des clichés de Laue. Un monochromateur de type Bartel, qui peut être écarté du faisceau, permet de mesurer la distribution d'énergie dans les taches de Laue.

La mesure en faisceau blanc est particulièrement intéressante puisqu'elle permet, en analysant précisément la position des taches de Laue, d'estimer les distorsions de la maille cristalline, et donc les contraintes locales [a]. Le déplacement de l'échantillon dans le faisceau, au moyen d'une platine de translation, permet alors d'obtenir une cartographie des contraintes [99].

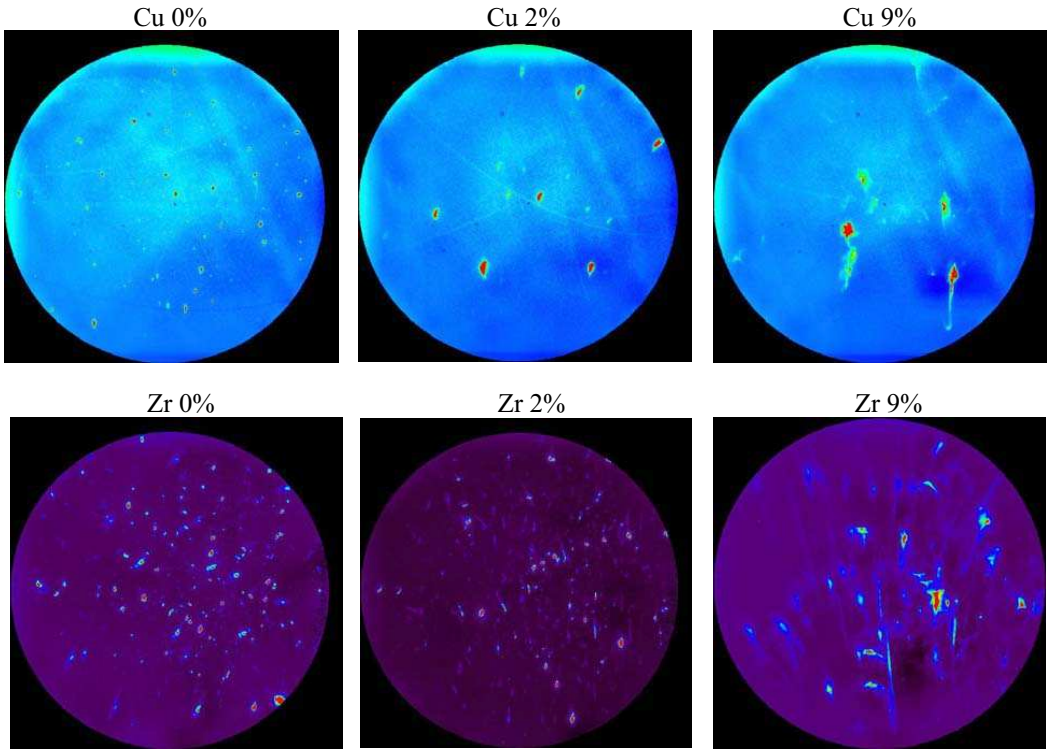


FIG. 2.18 – Diagrammes de Laue typiques observés sur des polycristaux de Cu et de Zr, à 0% (état recristallisé), 2%, et 9% de déformation en traction uniaxiale. On distingue également les lignes de Kossel sur les clichés du Cu.

Notre première expérience, réalisée cette année, était orientée vers un couplage de la technique avec les mesures de microextensométrie réalisées au LMS-X (M. Bornert), dans le but d'obtenir, sur une même

[a] Plus précisément, une dilatation isotrope de la maille ne modifiant pas la position des taches de Laue, la partie sphérique du tenseur des déformations élastiques n'est pas accessible en faisceau blanc. On montre, en conséquence, que le déviateur des contraintes ne peut être estimé que pour les matériaux dont le comportement élastique est localement isotrope ou ceux de symétrie cristalline cubique. La partie sphérique de la déformation peut par contre être obtenue par la mesure de l'énergie d'une tache de Laue.

zone, le champ de déformation total et le champ de contrainte, avec une résolution spatiale similaire. Nous avons d'autre part choisi de comparer les réponses deux matériaux, le cuivre (anisotropie plastique modérée) et un alliage de zirconium (forte anisotropie plastique). Des premiers résultats sont présentés sur la figure 2.18. A l'état non-déformé, les taches de Laue ont des formes de Dirac, indiquant une faible désorientation intragranulaire dans les grains recristallisés, aussi bien pour le Cu que pour le Zr. Avec la déformation, une forte distorsion des clichés est observée. Des désorientations souvent supérieures à $10°$ sont mesurées dans le volume diffractant micrométrique. Le comportement plastique différent du Cu et du Zr est également clairement mis en évidence. En moyenne, les clichés de Laue obtenus pour le Zr présentent une forme bien plus distordue que ceux du Cu, à un niveau de déformation effective équivalent. Ce résultat recoupe donc les observations réalisées en microdiffraction à l'ESRF.

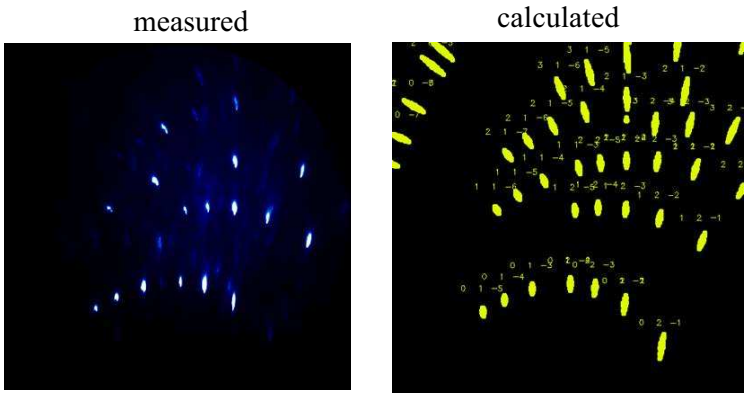


FIG. 2.19 – Diagramme de Laue mesuré sur l'échantillon de Zr déformé (gauche) et simulé en supposant la présence de dislocation $< \mathbf{a} >$.

Enfin, on peut remarquer que la distorsion des clichés de Laue n'est pas aléatoire. En effet, les désorientations locales dans le volume diffractant sont le reflet de la présence de dislocations géométriquement nécessaires. Comme chaque type de dislocation produit une courbure du réseau bien particulière, la forme du cliché de Laue peut être utilisée pour identifier le type de dislocations présentes dans le matériau [5]. La figure 2.19 montre le cliché de Laue mesuré sur un alliage de Zr déformé de 15% en traction, et la modélisation de ce cliché en supposant que seules les dislocations $< \mathbf{a} >$ sont présentes dans le grain. On peut remarquer que l'accord est excellent, et cohérent avec la connaissance des mécanismes de déformation de ce matériau (glissement facile des dislocations $< \mathbf{a} >$ sur les plans prismatiques).

Parallèlement à ce travail expérimental, je suis impliqué dans un projet (piloté par O. Thomas-TECSEN Marseille, et P. Goudeau-LMP Poitiers) de création d'une nouvelle ligne de lumière, dédiée à la microdiffraction en faisceau blanc et monochromatique, sur le synchrotron français SOLEIL.

Collaborations : P. Goudeau (LMP Poitiers), J.L. Béchade (CEA-Saclay), G. Geandier, N. Tamura (ALS,

Berkeley), M. Bornert (LMS-X)

Communications associées : 1.34, 2.3, 6.44

2.7 Conclusion

Concernant les mesures de diffraction, l'objectif des recherches menées a été triple. D'une part, je me suis efforcé de clarifier l'interprétation mécanique des données, en considérant notamment l'hétérogénéité des champs de contrainte et de déformation dans les matériaux. On montre ainsi que la "position" des raies est liée au premier moment des déformations élastiques, et la "largeur" de raie au second moment. Lorsque les mesures sont réalisées en volume, comme c'est par exemple le cas en diffusion de neutrons, les méthodes d'homogénéisation en champ moyen deviennent alors d'un intérêt particulier pour l'interprétation des données. Cette analyse suggère une certaine prudence dans l'interprétation des déplacements de raies, généralement orientée vers la détermination d'une contrainte macroscopique, puisque la présence de contrainte résiduelle à l'échelle des grains doit être prise en compte, au moins dans les cas étudiés. La loi des $\sin^2\psi$ ne peut être appliquée que dans des cas très spécifiques. Nous avons d'autre part mis en évidence l'intérêt de mesures en chargement in-situ, qui permettent l'étude de la réponse purement élastique du matériau. La méthode a été appliquée à la plasticité d'alliages de zirconium. Elle a également permis d'approfondir notre connaissance des mécanismes de recristallisation du cuivre et des aciers.

Du point de vue expérimental, mon objectif principal est d'obtenir une incertitude réaliste sur les résultats issus de la mesure. Pour cela, il est indispensable de comprendre l'influence de la géométrie du diffractomètre utilisé sur la réponse instrumentale, et de définir des procédures adéquates de correction des mesures brutes. Il est clair que cette partie du travail n'est pas terminée. Nous avons mis en place deux nouveaux diffractomètres au LPMTM, permettant d'obtenir un parc polyvalent adapté à nos problématiques. D'autre part, nous avons développé un code numérique de calcul de la réponse instrumentale, qui a pour l'instant été essentiellement appliqué à la définition du monochromateur du diffractomètre à faisceau parallèle.

Enfin, le développement en synchrotron des optiques pour rayons X laisse envisager la possibilité de réaliser des cartographies de contrainte, en surface des échantillons, avec une résolution micrométrique. Le développement simultané en laboratoire des moyens expérimentaux d'investigation à l'échelle (sub)micrométrique (AFM, EBSD, ...) permet d'autre part de prévoir des analyses couplées. Dans ce domaine, j'ai contribué au développement de la microdiffraction en proposant, en collaboration avec plusieurs collègues, un montage original en faisceau monochromatique sur la ligne ID22 de l'ESRF. Même s'il est avéré que la résolution spatiale du montage n'était pas suffisante pour les applications

recherchées, les mesures réalisées ont permis de mettre en évidence les très fortes hétérogénéités intra-granulaires de contrainte présentes dans un acier IF-Ti et un alliage de zirconium après une déformation plastique. Plus récemment, mes efforts portent sur la réalisation de cartographies en faisceau blanc, avec toujours la volonté d'enrichir les analyses en diffraction par des mesures complémentaires en laboratoire, sur les mêmes grains.

Conclusion générale

Le travail de recherche mené depuis mon recrutement au CNRS, en 1996, consiste globalement à appréhender l'influence de la microstructure des matériaux polycristallins sur leur comportement effectif, et l'évolution de la microstructure lors de la déformation en chargements thermo-mécaniques. Dans ce but, les méthodes d'homogénéisation en champ moyen et la technique de diffraction des rayons X et des neutrons sont les deux outils d'investigation privilégiés. Que ce soit concernant les prédictions théoriques ou les analyses expérimentales, la démarche suivie est basée sur l'analyse de l'hétérogénéité des champs de contrainte et de déformation, à différentes échelles. Ce travail s'inscrit naturellement dans plusieurs thématiques centrales du LPMTM, à savoir le lien entre la microstructure des matériaux et leurs propriétés d'usage, et les techniques de changement d'échelles. Il s'inscrit également dans plusieurs projets de la Fédération Francilienne de Mécanique (F2Mmsp) concernant notamment l'étude des évolutions de microstructures, les approches multi-échelles, et les méthodes d'identification sur mesures de champ.

S'agissant de la diffraction, il a été nécessaire de redéfinir les grandeurs contenues dans les mesures en terme de champ mécanique. Nous avons montré qu'un traitement adéquat des données permettait d'obtenir une estimation des premiers moments de la déformation élastique, sur un ensemble d'orientation cristallographique. L'utilisation des schémas d'homogénéisation est donc rigoureuse et efficace pour l'interprétation de mesures en volume, telle que celles réalisées en diffusion de neutrons. Nous avons montré les difficultés d'analyser les déplacements des raies de diffraction en terme de contrainte macroscopique dès lors que l'intensité des contraintes résiduelles n'est plus négligeable devant la contrainte effective appliquée à l'échantillon. Les alliages de zirconium déformés plastiquement rentrent dans ce cas. La distribution des contraintes résiduelles est le résultat de la réponse du matériau à l'ensemble des sollicitations auxquelles il a été soumis, depuis un état antérieur vierge de contrainte en tout point. L'analyse des raies de diffraction doit donc pouvoir permettre, à terme, d'identifier les mécanismes de déformations ayant été activés dans le matériau. Cette démarche inverse nécessite cependant une parfaite maîtrise des incertitudes expérimentales. Le travail entrepris dans ce domaine a consisté à définir les géométries des deux nouveaux diffractomètres du LPMTM, et à mettre en place une procédure de calcul permettant l'analyse théorique de la réponse instrumentale de ces installations.

Pour les comportements thermo-élastiques linéaires, une procédure de calcul du second moment intra-phase des contraintes et des déformations à été mise en place pour le schéma auto-cohérent. Les prédictions théoriques ont été confrontées, pour un acier Dual-Phase, à des mesures de diffraction en traction in-situ dans le domaine élastique. Ici, l'hétérogénéité de déformation provient de l'anisotropie élastique du fer. Un bon accord a été obtenu concernant les champs moyens par phase mécanique et l'hétérogénéité intra-phase. L'application de la borne de Voigt à ce problème illustre la nécessité de réaliser les confrontations expérience-théorie à l'échelle de la phase mécanique pour valider ou invalider la modélisation. Une application plus récente à des films minces nanostructurés a permis de montrer que la prise en compte d'une microstructure adaptée dans le schéma auto-cohérent permet de s'approcher des conditions mécaniques réelles dans le film, qui sont fortement influencés par la proximité des surfaces libres.

L'effet du traitement de l'étape de linéarisation dans l'extension du schéma auto-cohérent aux comportement non-linéaires, comme la viscoplasticité, a été analysé du point de vue des hétérogénéités intra– et inter–phase. La forte dépendance des hétérogénéités avec la méthode de linéarisation choisie a été montrée. Pour ces comportements, le choix d'une extension particulière doit donc être mené avec prudence. On montre en particulier que différentes méthodes d'homogénéisation peuvent donner des estimations inverses concernant la distribution de l'énergie stockée dans des aciers laminés, ce qui complique l'interprétation des mécanismes de recristallisation.

En grande déformation, nous avons montré que l'approche tangente, malgré certaines incohérences dans sa formulation, permet de reproduire fidèlement l'effet de la texture cristallographique du Zr702 sur son anisotropie effective. Sur le cuivre ETP, plusieurs extensions permettent de rendre compte fidèlement de l'écrouissage macroscopique du matériau et de l'anisotropie résultant de déformations en traction et en cisaillement. Mais une analyse à l'échelle de la phase mécanique, à partir de la prédiction des densités de dislocations, ne permet pas de reproduire les mesures de diffraction. Cet écart pourrait être attribué à la restauration dynamique. Cependant, nous avons montré en parallèle que la prise en compte de l'écrouissage intragranulaire dans les méthodes en champ moyen requiert certaines précautions, et nous avons proposé, pour les comportements visqueux linéaires, une formulation améliorée tenant compte des hétérogénéités intraphases du cisaillement sur les plans de glissement de dislocations.

Pour l'étude des déformations en fluage, l'hérédité du comportement mécanique doit être pris en compte. Cette difficulté peut être traitée en appliquant le principe de correspondance. Dans ce cadre, nous avons proposé une procédure simplifiée d'inversion des transformée de Laplace-Carson. L'approche auto-cohérente ainsi obtenue, dite "quasi-élastique", et basée sur l'extension affine du schéma auto-cohérent, a permis d'obtenir une reproduction fidèle de l'anisotropie effective de plusieurs alliages de

zirconium déformé en fluage à chaud. A l'échelle inférieure, l'estimation de la distribution interphase des contraintes résiduelles est en parfait accord avec les mesures de diffusion de neutrons. La même approche appliqué à la glace polaire a permis de montrer que la redistribution des contraintes dans les grains d'orientations cristallographiques différentes est suffisante pour expliquer la diminution de plus de deux ordres de grandeurs de la vitesse de déformation au cours du fluage transitoire. En fluage permanent, l'effet de la texture cristallographique sur l'anisotropie viscoplastique est également parfaitement capturé par le modèle.

Enfin, mes travaux les plus récents s'orientent vers une description des hétérogénéités à l'échelle des grains. Des calculs en champs complets ont été réalisés afin d'appréhender l'influence de la morphologie de la microstructure sur la distribution inter– et intra–phase des champs dans les polycristaux. Dans le même contexte, le développement récent des optiques pour rayons X permet une caractérisation intra-granulaire des contraintes. J'ai contribué au développement d'une ligne de microdiffraction à l'ESRF, et travaille actuellement sur la réalisation de cartographies de contrainte avec une résolution spatiale micrométrique par une technique de microdiffraction en faisceau blanc.

La diffraction "classique" peut être apparentée à une méthode de mesure de champ dans l'espace des orientations. La microdiffraction, quant à elle, permet des cartographies dans l'espace physique. Ce travail contribue à faire de la diffraction une méthode efficace pour l'identification du comportement local des polycristaux, au même titre que les méthodes optiques de mesures de champ, très en vogue depuis quelques années.

Perspectives

Le travail que j'envisage de réaliser dans les années à venir se situe dans la continuation de mes recherches actuelles et passées.

Dans un premier temps, il s'agira d'appliquer les développements récents en homogénéisation non-linéaire aux matériaux de la Géophysique, et notamment à l'olivine qui est le matériau constitutif du manteau terrestre [a]. L'olivine est en effet un matériau d'étude intéressant étant donné sa faible symétrie cristalline qui lui procure une très forte anisotropie plastique. Cette caractéristique met facilement en défaut les modèles de changement d'échelle. Le projet consiste à intégrer dans le modèle l'ensemble des mécanismes physiques et mécaniques connus à ce jour afin de vérifier si l'état actuel des connaissances du matériau est suffisant pour une prédiction fiable des microstructures susceptible d'exister en profondeur. Le modèle en champ moyen sera dans un premier temps validé sur des calculs en champ complet (FFT), puis couplé à un modèle de convection du manteau terrestre. La confrontation avec les données de terrain sera basée sur des mesures sismiques. Un point d'intérêt majeur sera l'étude de l'influence de la teneur en phase liquide sur les propriétés effectives élastiques et viscoplastiques. Outre ce projet particulier, le séjour long dans un laboratoire de Géophysique me permettra d'identifier de nouveaux domaines d'application des techniques développées. Un thème porteur à l'avenir pourrait bien être la propagation des ondes sismiques.

Dans les trois ans à venir, l'étude du comportement élastique et plastique des couches minces nanostructurées sera menée dans le cadre d'un projet ANR accepté[b]. Il s'agira d'une part de mettre au point une machine d'essai mécanique dédiée à des mesures in-situ sur la ligne DIFABS de SOLEIL, d'autre part de modéliser le comportement de ces multicouches. La méthode de simulation retenue sera probablement basée sur les Eléments Finis. La confrontation aux données expérimentales devrait permettre d'estimer l'intensité des contraintes résiduelles liées à la croissance de ces films.

Parallèlement, j'aimerai finaliser certains développements engagés en homogénéisation. Il s'agira d'étendre à la viscoplasticité la méthode proposée pour le traitement de l'écrouissage (section 1.3.3)

[a] Ce projet est envisagé en 2006-2007 dans le cadre d'une Mise A Disposition aux Etats-Unis (UCSD), la condition de réalisation effective étant l'obtention des financements demandés.

[b] En collaboration avec l'équipe de E. Le Bourhis (LMP, Poitiers), D. Thiaudière (SOLEIL), et R. Chiron (LPMTM).

afin de la rendre applicable au cas d'un matériel réel. Cela demande une étude assez exhaustive de la distribution des champs dans les polycristaux viscoplastiques, qui pourrait être menée par une approche en champ complet (FFT). De la même manière, la prise en compte des hétérogénéités intraphases de champ devrait aussi être prise en compte dans le calcul des évolutions de textures cristallographiques, qui n'est pour l'instant réaliste que pour des déformations plastiques modérées (quelques dizaines de pourcent). Mais il s'agit là d'un problème plus délicat. D'une manière plus générale, l'application de la méthode du second ordre [86] à des matériaux réels devra être réalisées. Cette approche donne en effet des résultats plus pertinents que l'extension affine utilisée jusqu'à ce jour.

Un effort important devra être réalisé dans le domaine du traitement des mesures de diffraction. La démarche poursuivie consiste à obtenir une mesure fiable de l'incertitude des résultats de mesure. Dans ce but, la maîtrise de la réponse instrumentale des diffractomètres est incontournable. Le premier travail consistera donc à appliquer le modèle de suivi de rayons développé dans la thèse de Nils Letouzé aux différents diffractomètres disponibles, et à confronter les prédictions avec des mesures expérimentales sur des poudres ou des monocristaux standard. Dans un deuxième temps, il s'agira de proposer une méthode de traitement des données plus satisfaisantes que celles utilisées à ce jour. A titre d'exemple, la correction du bruit de fond des pics de diffraction se fait actuellement par simple soustraction d'un certain niveau d'intensité sur toute la largeur de la raie. La mesure étant bruitée (statistique de Poisson), le pic "corrigé" présente par endroit des valeurs d'intensité négatives, ce qui est physiquement irréaliste. J'essaierai de proposer une méthode de traitement permettant de minimiser les hypothèses faites a priori, et tenant compte du bruit de mesure.

Concernant l'interprétation des mesures de diffraction de laboratoire, un point délicat est l'effet de la relaxation des contraintes au voisinage de la surface libre. En effet, les rayons X de laboratoire ne pénètrant que de quelques microns dans la matière, ils ne fournissent en général ni une vraie mesure de surface, ni une réelle mesure en volume. Or de forts gradients sont attendus au voisinage de la surface libre. Il sera particulièrement intéressant de mener une étude approfondie de cette difficulté, par exemple à l'aide d'un modèle en champ complet couplé à des mesures expérimentales.

Enfin, un thème dans lequel j'aimerai m'investir est celui de la microdiffraction. Les expériences récentes que nous avons réalisées à l'ALS (Berkeley), cf. section 2.6.2, montrent les fortes potentialités de la méthode, mais aussi les difficultés. Une procédure spécifique devra être développée pour permettre une confrontation précise avec les analyses en MEB, et notamment la microextensométrie. La mesure conjointe du champ des déformations totales et du champ de contrainte ouvre en effet des perspectives très larges pour l'étude du comportement des matériaux hétérogènes. Outre les aspects instrumentaux, un point délicat dans la technique de microdiffraction en faisceau blanc est le traitement d'image nécessaire

à une exploitation quantitative des mesures, qu'il faudra probablement améliorer. La réalisation de mesures en chargement in-situ devrait permettre des développements significatifs par exemple pour l'étude de la plasticité cristalline, du maclage, des transformations de phase, etc... Je suis par ailleurs impliqué dans le projet de création d'une ligne de microdiffraction sur le synchrotron SOLEIL qui, j'espère, pourra bientôt être concrétisé.

Bibliographie

[1] A. Akhtar. Prismatic slip in zirconium single crystals at elevated temperatures. *Met. Trans. A*, 6A :1217–1222, 1975.

[2] M. F. Ashby and P. Duval. The creep of polycrystalline ice. *Cold Reg. Sci. Technol.*, 11 :285–300, 1985.

[3] A. Authier. *Dynamical theory of X-ray diffraction*, volume 11. IUCr Monographs on crystallography, oxford science publications edition, 2001.

[4] D. Balzar, N. Audebrand, M. Daymond, A. Fitch, A. Hewat, J.I. Langford, A. Le Bail, D. Louër, O. Masson, C.N. McCowan, N.C. Popa, P.W. Stephens, and B. Toby. Size-strain line-broadening analysis of the ceria round-robin sample. *J. Appl. Cryst.*, 37 :911–924, 2004.

[5] R. Barabash, G. E. Ice, B. C. Larson, G. M. Pharr, K. S. Chung, and W. Yang. White microbeam diffraction from distorted crystals. *Appl. Phys. Lett.*, 79(6) :749–751, 2001.

[6] F. Barbe, L. Decker, D. Jeulin, and G. Cailletaud. Intergranular and intragranular behavior of polycrystalline aggregates. part 1 : F.e. model. *Int. J. Plast.*, 17 :513–536, 2001.

[7] M. Benyoucef, S. Jakani, T. Baudin, M. H. Mathon, and R. Penelle. Study of deformation microstructure and static recovery in copper after cold drawing. *Mater. Sci. Forum*, 467-470 :27–32, 2004.

[8] J. F. Bishop and R. Hill. A theory of the plastic distortion of a polycrystalline aggregate under combined stress. *Phil. Mag.*, 42 :414–427, 1951.

[9] A. Borbély and I. Groma. Variance method for the evaluation of particle size and dislocation density from x-ray bragg peaks. *Appl. Phys. Lett.*, 79 :1772–1774, 2001.

[10] M. Bornert and P. Ponte Castañeda. Second-order estimates of the self-consistent type for visco-plastic polycrystals. *Proc. R. Soc. Lond.*, A454 :3035–3045, 1998.

[11] A. Boulle, O. Masson, R. Guinebretière, A. Lecomte, and A. Dauger. A high-resolution x-ray diffractometer for the study of imperfect materials. *J. Appl. Cryst.*, 35 :606–614, 2002.

[12] C. A. Bronkhorst, S. R. Kalidindi, and L. Anand. Polycrystalline plasticity and the evolution of crystallographic texture in fcc metals. *Proc. R. Soc. Lond.*, A341 :443–477, 1992.

[13] W. F. Budd and T. H. Jacka. A review of ice rheology for ice sheet modelling. *Cold Reg. Sci. Technol.*, 16 :107–144, 1989.

[14] V. A. Buryachenko. Multiparticle effective field and related methods in micromechanics of composite materials. *Appl. Mech. Rev.*, 54 :1–47, 2001.

[15] V. A. Buryachenko, N. J. Pagano, R. Y. Kim, and J. E. Spowart. Quantitative description and numerical simulation of random microstructures of composites and their effective elastic moduli. *Int. J. Solids Struct.*, 40 :47–72, 2003.

[16] B. Commentz, Ch. Hartig, and H. Mecking. Micromechanical interaction in two-phase iron-copper polycrystals. *Comput. Mat. Sci.*, 16 :237–247, 1999.

[17] G. de Botton and P. Ponte Castañeda. Variational estimates for the creep behaviour of polycrystals. *Proc. R. Soc. Lond.*, A448 :121–142, 1995.

[18] I. L. Dillamore, C. J. E. Smith, and T. W. Watson. *Met. Sci. J.*, 1 :49, 1967.

[19] R. D. Doherty, D. A. Hughes, F. J. Humphreys, J. J. Jonas, D. Juul Jensen, M. E. Kassner, W. E. King, T. R. McNelley, H. J. McQueen, and A. D. Rollett. Current issues in recrystallization : a review. *msea*, 238 :21974, 1997.

[20] P. Doumalin. *Microextensométrie locale par corrélation d'images numériques*. PhD thesis, Ecole Polytechnique, 2000.

[21] P. Duval. The role of the water content on thne creep rate of polycrystalline ice. In *Isotopes and impurities in Snow and ice*, 1977.

[22] J. D. Eshelby. The determination of the elastic field of an ellipsoidal inclusion, and related problems. *Proc. R. Soc. Lond.*, A241 :376–396, 1957.

[23] R. L. Every and M. Hatherly. *Texture*, 1 :183–194, 1974.

[24] D. Faurie. *Etude du comportement élastique de films métalliques. Expérimentations par traction in-situ dans un diffractomètre et modélisation*. PhD thesis, Université de Poitiers, Poitiers, France, 2005.

[25] H. Francillette. *Etude expérimentale et numérique des évolutions de textures du zirconium 702 α au cours du laminage et de la compression plane à la température ambiante*. PhD thesis, Université Paris-Nord, France, 1997.

[26] J. J. Fundenberger, M. J. Philippe, F. Wagner, and C. Esling. Modelling and prediction of mechanical properties for materials with hexagonal symmetry zinc, titanium and zirconium alloys. *Acta Mat.*, 45(10) :4041–4055, 1997.

[27] I. Gaal. Effect of dislocation distribution on the x-ray scattering from deformed metals. In N. H. Anderson, M. Eldrup, N. Hansen, D. J. Jensen, T. Leffers, H. Lifhold, O. B. Pedersen, and B. N. Singh, editors, *Proceedings of the 5th RisøInternational Symposium on Metallurgy and Material Science*, pages 249–254, Denmark, 1984.

[28] P. Gilormini. Insuffisance de l'extension classique du modèle autocohérent au comportement non linéaire. *C. R. Acad. Sci. Paris*, 320(IIb) :115–122, 1995.

[29] P. Gilormini, M. V. Nebozyhn, and P. Ponte Castañeda. Accurate estimates for the creep behavior of hexagonal polycrystals. *Acta Mat.*, 49 :329–337, 2001.

[30] D. Gloaguen, M. François, and R. Guillen. Mesoscopic residual stresses of plastic origin in zirconium : interpretation of x-ray diffraction results. *J. Appl. Cryst.*, 37 :934–940, 2004.

[31] I. Groma. X-ray line broadening due to an inhomogeneous dislocation distribution. *Phys. Rev. B*, 57(13) :7535–7542, 1998.

[32] H. Haddadi, S. Héraud, C. Téodosiu, and A. Zaoui. A "numerical mesoscope" for the investigation of local fields in rate-dependent elastoplastic materials at finite strain. In C. Miehe, editor, *IUTAM Symposium on Computational Mechanics of solid Materials at Large Strain*, pages 311–320, Canada, 2001. Kluwer Academic Publishers.

[33] Z. Hashin and S. Shtrikman. A variational approach to the theory of the elastic behaviour of polycrystals. *J. Mech. Phys. Solids*, 10 :343–352, 1962.

[34] A. Hildenbrand. *Recristallisation dynamique dans les matériaux cubiques centrés : simulation et application à sa mise en évidence dans les bandes de cisaillement adiabatique*. PhD thesis, Université de Metz (France), 1988.

[35] R. Hill. Elastic properties of reinforced solids : some theoretical principles. *J. Mech. Phys. Solids*, 11 :367–372, 1963.

[36] R. Hill. Generalized constitutive relations for incremental deformation of metal crystals by multislip. *J. Mech. Phys. Solids*, 14 :95–102, 1966.

[37] X. Huang and M. Dudley. A universal computation method for two-beam dynamical diffraction. *Acta Cryst. A*, 59 :163–167, 2003.

[38] F. J. Humphreys and M. Hatherly. *Recrystallization and Related Annealing Phenomena*. Elsevier, Oxford, 2004.

[39] J. W. Hutchinson. Bounds and self-consistent estimates for creep of polycrystalline materials. *Proc. R. Soc. Lond.*, A348 :101–127, 1976.

[40] M. I. Idiart, H. Moulinec, P. Ponte Castañeda, and P. Suquet. Macroscopic behavior anf field fluctuations in viscoplastic composites : Second-order estimates versus full-field simulations. *J. Mech. Phys. Solids*, 54 :1029–1063, 2006.

[41] D. Jeulin. Caractérisation morphologique et modèles de structures aléatoires. In M. Bornert, T. Bretheau, and P. Gilormini, editors, *Homogénéisation en mécanique des matériaux 1*, pages 95–132, Paris, France, 2001. Hermès Science Publications.

[42] J. J. Jonas and L. S. Tòth. Modelling oriented nucleation and selective growth during dynamic recrystallization. *Scripta Met. Mater.*, 27 :1575–80, 1992.

[43] T. Kanit, S. Forest, I. Galliet, V. Mounoury, and D. Jeulin. Determination of the size of the representative volume element for random composites : statistical and numerical approach. *Int. J. Solids Struct.*, 40 :3647–3679, 2003.

[44] S. Karato. Does partial melting reduce the creep strength of the upper mantle ? *Nature*, 319 : 309–310, 1986.

[45] W. Kreher. Residual stresses and stored elastic energy of composites and polycrystals. *J. Mech. Phys. Solids*, 38 :115–128, 1990.

[46] C. E. Krill and R. Birringer. Estimating grain-size distributions in nanocrystalline materials from x-ray diffraction profile analysis. *Phil. Mag. A.*, 77(3) :621–640, 1998.

[47] M. A. Krivoglaz. *Théorie de la diffusion des rayons X et des neutrons thermiques par les criatux réels*. Paris, masson et cie edition, 1969.

[48] M. A. Krivoglaz and K. P. Ryaboshapka. Theory of x-ray scattering by crystals containing screw and edge dislocations randomly distributed throughout the crystal. *Fiz. metal. metalloved.*, 15 : 18–31, 1963.

[49] E. Kröner. Self-consistent scheme and graded disorder in polycrystal elasticity. *J. Phys. F : Metal Phys.*, 8 :2261–2267, 1978.

[50] J. I. Langford and D. Louër. Powder diffraction. *Rep. Prog. Phys.*, 59 :131–234, 1996.

[51] R. A. Lebensohn. N-site modeling of a 3d viscoplastic polycrystal using fast fourier transform. *Acta Mat.*, 49 :2723–2737, 2001.

[52] R. A. Lebensohn and C. N. Tomé. A self-consistent anisotropic approach for the simulation of plastic deformation and texture development of polycrystals : application to zirconium alloys. *Acta Metall. Mater.*, 41(9) :2611–2624, 1993.

[53] R. A. Lebensohn, Y. Liu, and P. Ponte Casta neda. Macroscopic properties and field fluctuations in model power-law polycrystals : full-field solutions versus self-consistent estimates. *Proc. R. Soc. Lond.*, A460 :1381–1405, 2004.

[54] R. A. Lebensohn, Y. Liu, and P. Ponte Casta neda. On the accuracy of the self-consistent approximation for polycrystals : comparison with full-field numerical simulations. *Acta Mat.*, 52 : 5347–5361, 2004.

[55] J. L. Lebrun, G. Maeder, and P. Parniere. Analysis of the influence of the heating rate on the recrystallization of low carbon steels textures of materials. In *ICOTOM6*, page 78796, 1981.

[56] J. L. Lee and J. T. Waber. In *Proceedings of the 6th RisøInternational Symposium on Metallurgy and Material Science*, pages 421–426, Denmark, 1986.

[57] Y. Leroy and P. Ponte Castañeda. Bounds on the self-consistent approximation for nonlinear media and implications for the second order method. *C. R. Acad. Sci. Paris*, 329(IIb) :571–577, 2001.

[58] L. E. Levine and R. Thomson. X-ray scattering by dislocations in crystals. general theory and application to screw dislocations. *Acta Cryst.*, A53 :590–602, 1997.

[59] Y. Liu and P. Ponte Castañeda. Second-order theory for the effective behavior and field fluctuations in viscoplastic polycrystals. *J. Mech. Phys. Solids*, 52 :467–495, 2004.

[60] Y. Liu and P. Ponte Castañeda. Homogenization estimates for the average behavior and field fluctuations in cubic and hexagonal viscoplastic polycrystals. *J. Mech. Phys. Solids*, 52 :1175–1211, 2004.

[61] L. Lliboutry and P. Duval. Various isotropic and anisotropic ices found in glaciers and polar ice caps and their corresponding rheologies. *Ann. Geophys.*, 3(2) :207–224, 1985.

[62] D. Louër and J. P. Auffrédic. A precise determination of the shape, size and distribution of size of crystallites in zinc oxyde by x-ray line-broadening analysis. *J. Appl. Cryst.*, 16 :183–191, 1983.

[63] J. Mandel. *Mécanique des milieux continus*. Gauthier-Villars, Paris, France, 1966.

[64] L. Margulies, T. Lorentzen, H. F. Poulsen, and T. Leffers. Strain tensor development in a single grain in the bulk of a polycrystal under loading. *Acta Mat.*, 50 :1771–1779, 2002.

[65] O. Masson. *Etude des défauts de structure par diffraction des rayons X sur poudres. Utilisation d'un montage en réflexion asymétrique équipé d'un détecteur courbe à localisation*. PhD thesis, Université de Limoges, France, 1998.

[66] R. Masson. *Estimations non linéaires du comportement global de matériaux hétérogènes en formulation affine - Application aux alliages de zirconium*. PhD thesis, Ecole Polytechnique, France, 1998.

[67] R. Masson and A. Zaoui. Self-consistent estimates for the rate-dependent elastoplastic behaviour of polycrystalline materials. *J. Mech. Phys. Solids*, 47 :1543–1568, 1999.

[68] R. Masson, M. Bornert, P. Suquet, and A. Zaoui. An affine formulation for the prediction of the effective properties of nonlinear composites and polycrystals. *J. Mech. Phys. Solids*, 48 :1203–1226, 2000.

[69] K. Máthis, K. Nyilas, A. Axt, I. Dragomir-Cernatescu, T. Ungár, and P. Lukáč. The evolution of non-basal dislocations as a function of deformation temperature in pure magnesium determined by x-ray diffraction. *Acta Mat.*, 52 :2889–2894, 2004.

[70] P. J. Maudlin, C. N. Tomé, G. C. Kaschner, and G. T. Gray. Introduction of polycrystal constitutive laws in a finite element code with applications to zirconium forming. In *Proc. 6th Int. Conf. on Numerical Methods in Industrial Forming Processes*, University of Twente, Enschede, The Netherlands, 1998.

[71] G. W. Milton. *The theory of composites*. Cambridge University Press, 2001.

[72] A. Miroux. *Etude expérimentale et modélisation des mécanismes de formation des textures de recristallisation dans les aciers sans interstitiels stabilisés au titane*. PhD thesis, Université Paris 13, Villetaneuse, France, 1999.

[73] G. Mohamed. *Caractérisation de l'énergie stockée par diffraction des rayons X dans les multicristaux de cuivre. Effet sur la recristallisation statique*. PhD thesis, Université Paris 13, Villetaneuse, France, 1999.

[74] A. Molinari and L. S. Tóth. Tuning a self-consistent viscoplastic model by finite element results-I. modeling. *Acta Metall. Mater.*, 42(7) :2453–2458, 1994.

[75] A. Molinari, G. R. Canova, and S. Ahzi. A self-consistent approach of the large deformation polycrystal viscoplasticity. *Acta Metall.*, 35(12) :2983–2994, 1987.

[76] A. Molinari, S. Ahzi, and R. Kouddane. On the self-consistent modeling of elastic-plastic behavior of polycrystals. *Mech. Materials*, 26 :43–62, 1997.

[77] H. Moulinec and P. Suquet. A numerical method for computing the overall response of nonlinear composites with complex microstructure. *Comput. Methods Appl. Mech. Engrg.*, 157 :69–94, 1998.

[78] M. V. Nebozyhn, P. Gilormini, and P. Ponte Castañeda. Variational self-consistent estimates for cubic viscoplastic polycrystals : the effects of grain anisotropy and shape. *J. Mech. Phys. Solids*, 49 :313–340, 2001.

[79] I.C. Noyan and J.B. Cohen. *Residual stress : measurement by diffraction and interpretation*. Springer-Verlag, 1987.

[80] A. Paquin, H. Sabar, and M. Berveiller. Integral formulation and self-consistent modelling of elastoviscoplastic behavior of heterogeneous materials. *Arch. Appl. Mech.*, 69(1) :14–35, 1999.

[81] D. M. Parks and S. Ahzi. Polycrystalline plastic deformation and texture evolution for crystalslacking five independent slip systems. *J. Mech. Phys. Solids*, 38 :701–724, 1990.

[82] D. C. Pham. New estimates for macroscopic elastic moduli of random polycrystalline aggregates. *Phil. Mag.*, 86(2) :205 – 226, 2006.

[83] A. A. Pochettino and P. Sanchez. Strain hardening effects on texture formation in zirconium alloys. In J. A. Szpunar, editor, *Proc. 12th Int. Conf. Textures of Materials*, Canada, 1999. NRC Research Press.

[84] P. Ponte Castañeda. The effective mechanical properties of nonlinear isotropic composites. *J. Mech. Phys. Solids*, 39 :45–71, 1991.

[85] P. Ponte Castañeda. Exact second-order estimates for the effective mechanical properties of nonlinear composite materials. *J. Mech. Phys. Solids*, 44 :827–862, 1996.

[86] P. Ponte Castañeda. Second-order homogenization estimates for nonlinear composites incorporating field fluctuations. i – theory. *J. Mech. Phys. Solids*, 50 :737–757, 2002.

[87] P. Ponte Castañeda. Second-order homogenization estimates for nonlinear composites incorporating field fluctuations. ii – applications. *J. Mech. Phys. Solids*, 50 :759–782, 2002.

[88] P. Ponte Castañeda and P. Suquet. Nonlinear composites. *Adv. Appl. Mech.*, 34 :171–302, 1998.

[89] N. Rajmohan, Y. Hayakawa, J. A. Szpunar, and J. H. Root. Neutron diffraction method for stored energy measurement in interstitiel free steel. *Acta Mat.*, 45(6) :2485–2494, 1997.

[90] A. Reuss. Calculation of the flow limits of mixed crystals on the basis of the plasticity of monocrystals. *Z. angew. Math. Mech.*, 9 :49–58, 1929.

[91] N. M. Ribe and Y. Yu. A theory for plastic deformation and textural evolution of olivine polycrystals. *J. Geophys. Res.*, B5 :8325–8335, 1991.

[92] Y. Rougier. *Etude du comportement sous irradiation : modélisation micromécanique de l'élastoviscoplasticité*. PhD thesis, Ecole Polytechnique, France, 1994.

[93] G. B. Sarma and P. R. Dawson. Effects of interactions among crystals on the inhomogeneous deformation of polycrystals. *Acta Mat.*, 44(5) :1937–1953, 1996.

[94] Sauzay. Influence of crystalline elasticity anisotropy on schmid factor distribution at the free surface of polycrystals. *C. R. Acad. Sci. Paris*, 2006. in press.

[95] R. A. Schapery. Approximate methods of transform inversion for viscoelastic stress analysis. In *Proc. U.S. Nat. Congr. Appl. Mech. ASME 4th*, volume 2, pages 1075–1085, 1962.

[96] J. Segurado, J. Llorca, and C. Gonzalez. On the accuracy of mean-field approaches to simulate the plastic deformation of composites. *Scripta Mat.*, 46 :525–529, 2002.

[97] M. Servidori. X-ray monochromator combining high resolution with high intensity. *J. Appl. Cryst.*, 35 :41–48, 2001.

[98] A. Snigirev, V. Kohn, I. Snigireva, A. Souvorov, and B. Lengeler. Focusing high-energy x-rays by compound refractive lenses. *Applied optics*, 37(4) :653–662, 1998.

[99] R. Spolenak, W. L. Brown, N. Tamura, A. A. MacDowell, R. S. Celestre, H. A. Padmore, B. Valek, J.C. Bravman, T. Marieb, H. Fujimoto, B.W. Batterman, and J. R. Patel. Local plasticity of al thin films as revealed by x-ray microdiffraction. *Phys. Rev. Lett.*, 90(9) :096102–1–096102–4, 2003.

[100] J. M. Sprauel and L. Castex. *Analyse des contraintes résiduelles par diffraction des rayons X et des neutrons*, chapter Etude des contraintes d'ordre 2 et 3. Influence sur la forme des pics de diffraction, pages 45–64. Commissariat à l'Energie Atomique, a. lodini and m. perrin edition, 1996.

[101] P. Suquet. Elements of homogenization for inelastic solid mechanics. In E. Sanchez-Palencia and A. Zaoui, editors, *Homogenization Techniques for Composite Media*, Berlin, 1985.

[102] P. Suquet. Overall properties of nonlinear composites : a modified secant moduli theory and its link with ponte castañeda nonlinear variational procedure. *C. R. Acad. Sci. Paris*, 320(IIb) :563–571, 1995.

[103] P. M. Suquet. Overall potentials and extremal surfaces of power law or ideally plastic composites. *J. Mech. Phys. Solids*, 41 :981–1002, 1993.

[104] C. Teodosiu, J. L. Raphanel, and L. Tabourot. Finite element simulation of the large elastoplastic deformation of multicrystals. In C. Teodosiu, J. L. Raphanel, and F. Sidoroff, editors, *Large plastic deformations*, pages 153–168, Rotterdam, 1993.

[105] M. C. Theyssier. *Compression plane 'a chaud de cristaux daluminium et daluminium-magnesium*. PhD thesis, Ecole de Mines Saint Etienne (France), 1996.

[106] T. Thorsteinsson. Fabric development with nearest-neighbor interaction and dynamic recrystallization. *Journal of Geophysical Research (Solid Earth)*, 107 :3–1, January 2002. doi : 10.1029/2001JB000244.

[107] P. A. Turner, C. N. Tomé, and C.H. Woo. Self-consistent modelling of nonlinear visco-elastic polycrystals : an approximate scheme. *Phil. Mag. A.*, 70(4) :689–711, 1994.

[108] T. Ungár and A. Borbély. The effect of dislocation contrast on x-ray line broadening : a new approach to line profile analysis. *Appl. Phys. Lett.*, 69(21) :3173–3175, 1996.

[109] T. Ungár and G. Tichy. The effect of dislocation contrast on x-ray line profiles in textured polycrystals. *Phys. Stat. Sol.*, 171 :425–434, 1999.

[110] T. Ungár, J. Gubicza, G. Ribárik, and A. Borbély. Crystallite size-distribution and dislocation structure determined by diffraction profile analysis : principles and practical application to cubic and hexagonal crystals. *J. Appl. Cryst.*, 34 :298–310, 2001.

[111] W. Voigt. Über die beziehung zwischen den beiden elasticitätsconstanten isotroper körper. *Ann. Phys.*, 38 :573–587, 1889.

[112] B. E. Warren. *X-ray diffraction*. Addison-wesley, reading edition, 1969.

[113] U. Welzel, S. Fréour, , and E. J. Mittemeijer. Direction-dependent elastic grain-interaction models a comparative study. *Phil. Mag.*, 85(21) :2391–2414, 2005.

[114] G. J. Weng. A self-consistent relation for the time-dependent creep of polycrystals. *Int. J. Plast.*, 9 :181–198, 1993.

[115] M. Wilkens. The determination of density and distribution of dislocations in deformed single crystals from broadened x-ray diffraction profiles. *Phys. Stat. Sol.*, 2 :359–370, 1970.

[116] M. Wilkens. *Fundamental aspects of dislocation theory*, volume II of *Special Publication No.317*, chapter Theoretical aspects of kinematical X-ray diffraction profiles from crystals containing dislocation distributions, pages 1195–1221. US National Bureau Standards, Washington DC, j. a. simmons and r. de wit and r. bullough edition, 1970.

[117] M. Wilkens and H. Eckert. *Z. Naturforschung*, 19 :459–470, 1964.

[118] J. R. Willis. Variational and related methods for the overall properties of composites. *Adv. Appl. Mech.*, 21 :2–78, 1981.

[119] A. Zaoui. Plasticité : approches en champ moyen. In M. Bornert, T. Bretheau, and P. Gilormini, editors, *Homogénéisation en mécanique des matériaux 2*, pages 17–44, Paris, France, 2001. Hermès Science Publications.