



Ecole doctorale n° 432 : Sciences des Métiers de l'Ingénieur

# THÈSE

pour obtenir le grade de

## Docteur

de

# L'École Nationale Supérieure d'Arts et Métiers

Spécialité "Mécanique et Matériaux"

*présentée et soutenue publiquement  
par*

**Benoît MALARD**

Le 10 Décembre 2008

**Caractérisation multiéchelle par diffraction de neutrons et rayonnement  
synchrotron de la transformation martensitique sous contrainte  
dans un alliage à mémoire de forme CuAlBe**

*Directeur de thèse : Etienne PATOOR  
Codirectrice de thèse : Sophie BERVEILLER*

Jury :

**Mme Elisabeth GAUTIER**, Directeur de Recherches, LSG2M, ENSM Nancy..... Président  
**M. Denis FAVIER**, Professeur, L3S, Université Joseph Fourier, Grenoble..... Rapporteur  
**M. Alain LODINI**, Professeur, LACM, Université de Reims Champagne Ardennes.... Rapporteur  
**M. Karim INAL**, HDR, Maître de Recherches, CMP, ENSM de Saint-Etienne..... Examineur  
**M. Thilo PIRLING**, Docteur, Physicien à l'ILL, Grenoble..... Examineur  
**M. Etienne PATOOR**, Professeur, LPMM ENSAM, Metz ..... Directeur de thèse  
**Mme. Sophie BERVEILLER**, Maître de Conférences, LPMM ENSAM, Metz ..... Codirectrice de thèse

**Laboratoire de Physique et Mécanique des Matériaux**

*ENSAM, CER de Metz*

*L'ENSAM est un Grand Etablissement dépendant du Ministère de l'Education Nationale, composé de huit centres :  
AIX-EN-PROVENCE ANGERS BORDEAUX CHÂLONS-EN-CHAMPAGNE CLUNY LILLE METZ PARIS*

## Remerciements

Ce travail a été réalisé au sein de deux Instituts et un laboratoire. L'Institut Laue Langevin (ILL) et l'European Synchrotron Radiation Facility (ESRF) à Grenoble et le Laboratoire de Physique et Mécanique des matériaux (LPMM-UMR CNRS 7554) basé en partie à l'ENSAM de Metz.

Je tiens tout d'abord à remercier Sophie Berveiller et Karim Inal qui ont accepté de m'encadrer, à tour de rôle et en fonction de leur disponibilité, au long de mes travaux de thèse. Je souhaite associer à ces remerciements mon directeur de thèse le Professeur Etienne Patoor, qui, comme convenu au départ, m'a apporté une aide ponctuelle mais efficace. Je voudrais vous exprimer ma gratitude pour la confiance, le temps et l'aide précieuse que vous m'avez témoigné.

Ensuite, c'est à Alain Lodini et Denis Favier, que j'adresse mes sincères remerciements pour avoir accepté d'être les rapporteurs de mon travail et à Elisabeth Gautier et Thilo Pirling pour leur participation au jury.

Je tiens également à associer Christian Vettier, Ake Kvik, Thomas Buslaps et Régis Mulot qui m'ont permis de bénéficier d'une bourse et d'une aide administrative et scientifique commune à l'ILL et l'ESRF. Je remercie également A. Hewat, V. Honkimaki, L. Marguiles, R. Margiolaki, A. Fitch, E. Evans, A. Steuwer, M. Peel, S. Schmidt, H. Poulsen, T. Hansen, J. Torregrossa, D. Hughes, J-C Collet Fenetrier, G. Bruno, J. Carvajal-Rodriguez, F. Leon, B. Ouladdiaff, B. Mestrallet, J.S. Lecomte, S. Bolle, O. Robach, J.S Micha, X. Bicquard, B. Kaouache, R. Berramouhne, R. Pesci, A. Hautcoeur dont les conseils scientifiques et techniques prodigués lors de mes multiples expériences m'ont à chaque fois redonné de l'élan pour poursuivre mes travaux. Une mention spéciale « J'ai pris beaucoup de votre temps » à G. Geandier, J. Wright et P. Bastie.

Je souhaite aussi saluer tous les membres du LPMM l'ENSAM de Metz qui m'ont supporté à chacune de mes visites durant les cinq années de thèse. Je pense notamment aux Wonderwomen de l'équipe administrative qui m'ont épargné la plupart des galères dues aux diverses paperasseries ; alors merci à Dominique Vincent et Catherine Roux. Je pense ensuite aux Supermen André Eberhardt, Marc Wary et Denis Bouscaud, qui parviennent à fabriquer des éprouvettes de forme et de dimensions particulières par la seule imposition des mains sur la matière. Je n'oublie pas toutes les personnes de l'ILL et l'ESRF, que je ne cite pas pour n'oublier personne, mais je les remercie pour l'ambiance amicale, chaleureuse, festive et sportive qu'ils ont su créer.

A travers Nico, Darren, Anne, Peter et Jens c'est tous ceux avec qui j'ai partagé mon bureau et une partie de ma vie à FaME38 que je souhaite remercier pour leur bonne humeur et le soutien qu'ils m'ont apporté. Une attention spéciale à Françoise pour ses relectures et ses encouragements incessants.

C'est à mes parents que j'adresse toute mon affection et ma reconnaissance pour m'avoir supporté lors de mes visites en Lorraine. Et enfin c'est bien plus qu'un merci que j'adresse à celle qui partage ma vie, et qui a du réconforter un fantôme durant ces deux dernières années.

# SOMMAIRE GENERAL

<b>Introduction générale</b>	Page 1
<b>Chapitre I : La transformation martensitique</b>	Page 7
I/ Notions de base	
II/ Analyse de la transformation au moyen des méthodes de diffraction	
III/ Principales caractéristiques des alliages à mémoire de forme CuAlBe	
<b>Chapitre II : Techniques expérimentales mises en œuvre</b>	Page 35
I/ Principes de base de la diffraction	
II/ Les apports des grands instruments	
III/ Les techniques expérimentales monocristallines	
IV/ Les différentes éprouvettes utilisées	
<b>Chapitre III : Comportement du polycristal</b>	Page 79
I/ Evolution de la contrainte moyenne dans l'austénite	
II/ Evolution de la fraction volumique d'austénite	
III/ Evolution des largeurs à mi-hauteurs des pics de diffraction	
<b>Chapitre IV : Analyse à l'échelle mésoscopique</b>	Page 119
I/ Procédure expérimentale	
II/ Mise au point de la méthode d'analyse pour un alliage biphasé	
III/ Résultats	
IV/ Discussions	
<b>Chapitre V : Hétérogénéités microstructurales intragranulaires</b>	Page 145
I/ Etude de l'orientation locale de l'austénite	
II/ Etude de la courbure du réseau de l'austénite lors de cycles superélastiques	
<b>Conclusion générale</b>	Page 167
<b>Références bibliographiques</b>	Page 169
<b>Annexes</b>	Page 177

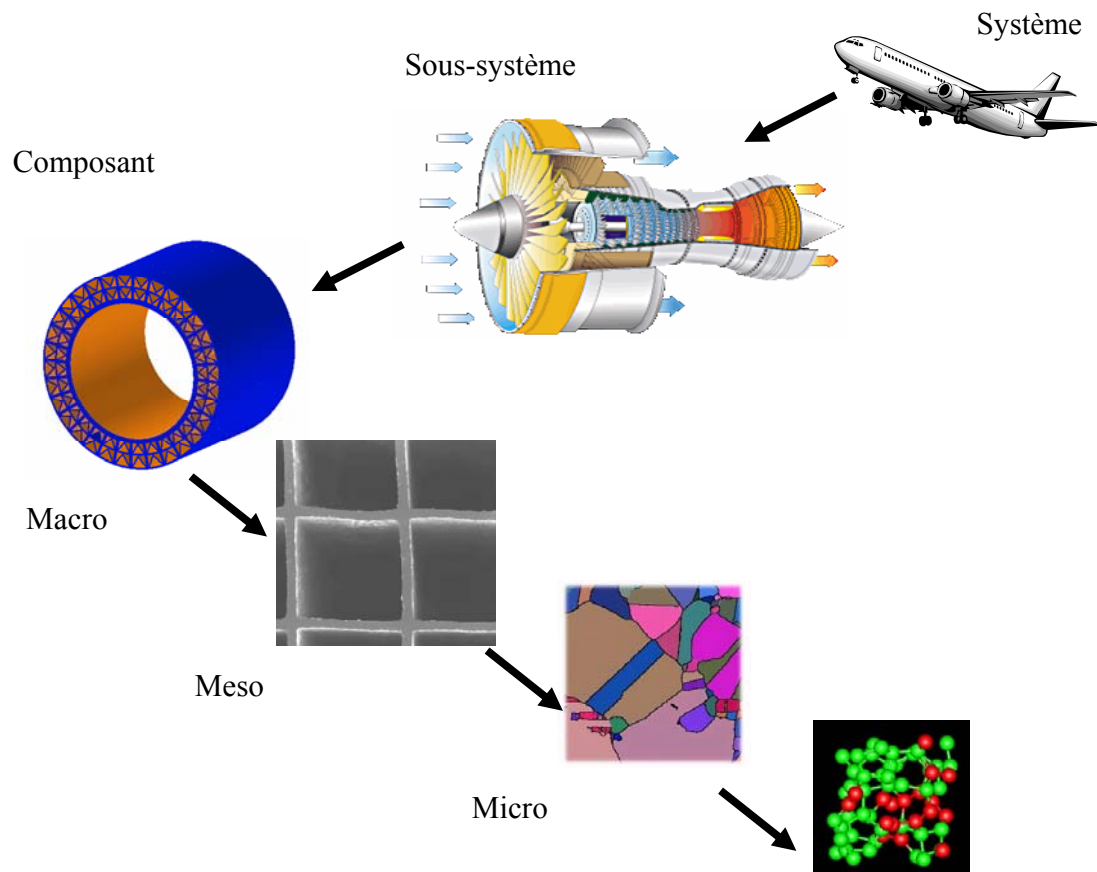
# **Caractérisation multiéchelle par diffraction de neutrons et rayonnement synchrotron de la transformation martensitique sous contrainte dans un alliage à mémoire de forme CuAlBe**

## **Introduction générale**

L'énergie, les transports, la santé, sont au cœur des préoccupations actuelles. Les besoins en innovation dans ces secteurs sont considérables pour répondre aux défis posés par la lutte contre le réchauffement climatique ou pour faire face au vieillissement de la population. L'utilisation optimale de matériaux traditionnels et le développement de matériaux nouveaux sont très souvent à la base de ces innovations : allègement des structures automobiles par l'emploi des aciers à haute, voire très haute limite d'élasticité, allègement des structures aéronautiques avec l'utilisation de matériaux composites, développement de matériaux pour le stockage et le transport de l'hydrogène, développement de matériaux biocompatibles pour la réalisation d'implant, en sont quelques exemples.

Dans ce contexte le développement de matériaux « sur mesure » en suivant une approche couplée produit-procédé-matériau [M. Ashby *et al.*, 2001], approche parfois baptisée « material by design » [G. Olson, 2001] s'avère un guide précieux. Cette approche repose sur la compréhension des relations structure-propriétés au sein du matériau et sur celle de la genèse des microstructures au cours des différents traitements de mise en œuvre auquel est soumis le matériau pour le transformer en produit.

Cette approche distingue différentes échelles de représentation du composant (voir figure 1). La première échelle est celle du Volume Élémentaire Représentatif (VER). C'est l'échelle de la loi de comportement macroscopique du matériau ; cette loi permet d'aborder le dimensionnement du composant. A cette échelle, le matériau est en général hétérogène et il est nécessaire de considérer sa microstructure. Cette dernière peut être définie à plusieurs échelles caractéristiques, depuis celle du VER jusqu'à celle des atomes. Dans les matériaux cristallins, il est devenu classique de considérer l'échelle du grain dans le polycristal, l'échelle intragranulaire et l'échelle des défauts de structure du réseau cristallin. C'est cette distinction qui sera utilisée comme fil directeur pour ce travail.



**Figure 1 :** Décomposition d'un système en sous-systèmes et en composants et différentes échelles de représentation du composant dans une approche « Material by Design » [C.C. Seepersad, 2004]

La prise en compte de l'existence de différentes échelles pertinentes pour décrire le comportement des matériaux est un concept qui s'est assez rapidement imposé et a donné lieu à la branche très féconde de la modélisation dite multiéchelle. Le Laboratoire de Physique et Mécanique des Matériaux, au sein duquel s'est préparée cette thèse, a construit une grande partie de sa réputation sur le développement de tels modèles [M. Berveiller *et al.*, 1984], [A. Molinari *et al.*, 1994], [E. Patoor *et al.*, 1988], [L.S Tóth *et al.*, 1994], [S. Kok *et al.*, 2003].

Cependant, le développement d'une méthodologie de caractérisation permettant d'alimenter les modèles multiéchelles, de les valider et pourquoi pas de les invalider est lui beaucoup plus récent [R.F. Hamilton *et al.*, 2008], [C. Brinson *et al.*, 2004], [B. Kaouache, 2006]. Cette caractérisation multiéchelle nécessite de coupler différents moyens d'analyse, souvent sophistiqués, et fait très largement appel à la caractérisation *in-situ* du comportement du matériau. Par caractérisation *in-situ*, nous entendons une analyse et un suivi des évolutions microstructurales du matériau au cours du chargement thermomécanique, par opposition à la caractérisation *ex-situ* qui détermine ces évolutions à l'issue du chargement.

Ce travail de thèse a pour ambition de montrer comment les outils de caractérisation multiéchelle actuellement en cours de développement peuvent contribuer à l'étude de la transformation martensitique sous contrainte dans les alliages à mémoire de forme.

Les applications de ces alliages se multiplient dans des secteurs comme le biomédical, l'aéronautique et l'espace et dans celui des microsystèmes. Pour optimiser ces applications, le besoin de disposer de modèle de comportement performant n'a jamais été aussi important et de nombreuses équipes travaillent dans ce domaine [Workshop Prague 2008]. Les alliages à mémoire de forme constituent peut être l'un des exemples les plus remarquables de matériaux pour lesquels la relation structure-propriétés ne peut être ignorée. La transformation martensitique, qui constitue le mécanisme de base du comportement de ces alliages, peut être analysée à différentes échelles. A l'échelle du réseau cristallin (la plus fine), on observe une déformation à forte composante déviatorique, qui caractérise le passage de la phase haute température, généralement nommée austénite, à la phase basse température, la martensite. A une échelle supérieure, les incompatibilités de déformation entre les domaines martensitiques et l'austénite conduisent à la formation de fautes d'empilement ou de micro-macles pour constituer des variantes de martensite dites à plan invariant. La structuration intragranulaire adoptée par ces variantes et par l'austénite est à considérer pour la transformation, de même que la structure granulaire du matériau. Si ces différentes échelles sont plus ou moins prises en compte dans les travaux de modélisation, il est rare que la formation de ces différents niveaux de microstructure soit caractérisée en liaison avec le comportement du matériau.

Cette démarche a été initiée dans les travaux de thèse de B. Kaouache [B. Kaouache, 2006]. Ses résultats obtenus lors de sollicitation *in-situ* d'un polycristal alliage à mémoire de forme CuAlBe ont mis en évidence de fortes hétérogénéités de comportement d'un grain à un autre, ainsi qu'à l'intérieur même d'un grain : la contrainte ainsi déterminée dans l'austénite pouvait varier d'un facteur supérieur à deux. Ayant utilisé des rayons X de laboratoire, les mesures restaient limitées aux grains situés en surface de l'éprouvette, la taille de la zone analysée étant de l'ordre de quelques millimètres carrés. Pour caractériser plus finement les microstructures, il est donc nécessaire d'avoir recours aux grands instruments (neutrons, rayonnement synchrotron...) qui permettent une analyse plus en profondeur dans la matière et/ou à des échelles plus fines de la microstructure, lors de sollicitations *in-situ*. C'est là l'objectif de ce travail.

Cette étude expérimentale a pour ambition de développer une méthodologie d'analyse multiéchelle mettant en œuvre les techniques de diffraction aux grands instruments disponibles à

l'Institut Laue Langevin (ILL) et à l'European Synchrotron Radiation Facility (ESRF), neutrons, rayons X du rayonnement synchrotron et rayons X refocalisés à haute énergie. L'ensemble des analyses a été effectué *in-situ* pendant la réalisation d'essais mécaniques de traction uniaxiale. Ce choix d'une approche *in-situ*, par rapport à une analyse ex-situ plus classique, a conduit à mettre au point les méthodes d'analyse *in-situ* sur plusieurs instruments.

Le premier chapitre de ce mémoire rappelle les caractéristiques générales de la transformation martensitique. Il présente également les potentialités des méthodes de diffraction dans le domaine de la mécanique des matériaux, que ce soit en laboratoire ou aux grands instruments ; un accent particulier est mis sur le cas des alliages à mémoire de forme.

Le second chapitre, également à caractère bibliographique, est consacré à la description des essais mécaniques *in-situ* et des techniques expérimentales mis en œuvre. Les spécificités de chacune d'entre elles et leur complémentarité sont exposées, depuis l'échelle macroscopique jusqu'aux hétérogénéités intragranulaires. Enfin, nous présentons le matériau de l'étude. Le choix d'un AMF base cuivre, pouvant présenter des tailles de grains de 70 $\mu\text{m}$  à plus de 1mm selon le traitement thermique subi, entre parfaitement dans le cadre d'une étude expérimentale multiéchelle.

Dans le troisième chapitre, nous nous sommes intéressés à l'évolution du polycristal au cours d'un chargement superélastique. Nous avons suivi, de façon assez classique, les évolutions de contrainte et de fractions volumiques dans l'austénite à l'échelle macroscopique, en utilisant essentiellement la diffraction de neutrons. L'influence du cyclage sur ces données a également été mesurée. L'ensemble de ces résultats a montré des hétérogénéités en fonction des orientations cristallographiques, ce qui nous a conduits à une analyse grain à grain.

Les chapitres quatre et cinq présentent l'ensemble des résultats obtenus à l'échelle du grain. Dans un premier temps, le microscope 3DXRD de l'ESRF a été utilisé pour le suivi de l'orientation de différents grains et leur rotation au cours du chargement superélastique. Cela a nécessité la mise au point d'une méthodologie spécifique aux matériaux à microstructure évolutive. Enfin, les hétérogénéités intragranulaires d'orientation lors de la transformation ainsi que la mosaïcité ont été caractérisées par microdiffraction Laue et rayons X refocalisés.



# **Chapitre I : Transformation martensitique**

<b>Introduction</b>	P.7
<b>I/ Notions de base</b>	P.8
I.1/ Définitions	P.8
I.2/ Thermodynamique de la transformation	P.10
I.3/ La transformation martensitique induite sous contrainte	P.11
I.4/ Principales caractéristiques du comportement superélastique	P.12
<b>II/ Analyse de la transformation au moyen des méthodes de diffraction</b>	P.15
II.1/ Diffraction de neutrons	P.15
II.1.1/ Identification des phases et détermination des fractions volumique	P.15
II.1.2/ Mesure des déformations et analyse des contraintes	P.16
II.2/ Diffraction de rayons X du rayonnement synchrotron	P.20
II.2.1/ A l'échelle de plusieurs grains – Evolution des déformations et des contraintes	P.20
II.2.2/ A l'échelle d'un grain – Evolution des orientations	P.21
II.2.3/ À l'intérieur du grain – Evolution des orientations et des contraintes	P.21
II.2.4/ Mesure topographique et en imagerie de la transformation martensitique – Evolution des orientations et des fautes d'empilement	P.23
II.3/ Diffraction de rayonnement X de laboratoire	P.23
II.4/ Diffraction de rayons X refocalisés à haute énergie – Evolution de la mosaïcité	P.25
II.5/ Conclusion	P.27
<b>III/ Principales caractéristiques des alliages à mémoire de forme CuAlBe</b>	
III.1/ Structure des phases de l'alliage CuAlBe	P.28
III.2/ Apport du béryllium sur la température de transformation	P.30
<b>Conclusion</b>	P.31

# Chapitre I : La transformation martensitique

## Introduction

Les alliages à mémoire de forme (AMF) présentent un comportement très différent des matériaux habituels. Leurs propriétés exceptionnelles, comme l'effet mémoire et la superélasticité, sont étroitement associées aux caractéristiques de la transformation martensitique dans ces alliages. Les évolutions microstructurales associées à cette transformation jouent un rôle considérable sur la nature des propriétés macroscopiques observées. La caractérisation fine de ces évolutions constitue un enjeu important dans la compréhension des interactions entre microstructure et propriétés. Dans ce contexte, la mise en oeuvre des techniques de diffraction permet d'obtenir des informations extrêmement précieuses en ce qui concerne la détection, le dosage des phases et la mesure des déformations.

Ce premier chapitre a pour objectif de présenter le matériau étudié et d'illustrer, à partir d'exemples issus de la bibliographie, les possibilités d'analyse offertes par l'emploi des techniques de diffraction. La présente étude se situant dans la continuité des travaux réalisés au cours de la thèse de B. Kaouache [B. Kaouache, 2006], les principaux résultats obtenus dans cette thèse par l'utilisation des rayons X de laboratoire sont brièvement résumés.

Les deux premières parties sont consacrées à la présentation de quelques notions de base concernant la transformation martensitique et le comportement superélastique des alliages à mémoire de forme. La troisième partie est dédiée aux techniques de diffraction utilisées pour caractériser la transformation martensitique. La mise en oeuvre de ces techniques, à différentes échelles, se trouve au cœur du présent mémoire. La présentation détaillée des techniques expérimentales faisant l'objet du chapitre 2, l'accent porte ici sur une présentation de quelques résultats récents obtenus par différentes équipes. Chacune de ces techniques permet d'obtenir des informations à une échelle donnée. La diffraction de neutrons est performante pour fournir des informations volumiques globales, comme la fraction volumique des différentes phases en présence ou l'analyse des contraintes moyennes par phase. L'utilisation des rayons X du rayonnement synchrotron permet des analyses à des échelles plus fines, grâce à la forte intensité des faisceaux utilisés et à la mise au point de techniques de refocalisation. Ainsi, le Microscope à Diffraction des Rayons X en 3 Dimensions (3DXRD) développé sur la ligne ID11 de l'ESRF permet des analyses à l'échelle du micron. D'autres techniques comme le micro-Laue et la méthode de Laue refocalisée, permettent des analyses encore plus fines.

Ce chapitre se termine par une partie consacrée aux principales caractéristiques des AMF de type CuAlBe car cet l'alliage est celui qui a été choisi comme support pour cette étude. La possibilité, avec une utilisation judicieuse des traitements thermiques, de faire varier la taille de grain de quelques dizaines de micromètre au millimètre s'est avérer un atout considérable pour réaliser, sur le même alliage, des études à l'échelle du polycristal, à l'échelle du grain dans le polycristal et des analyses intragranulaires.

## I/ Notions de base

Historiquement, le terme de transformation martensitique désigne la transformation de l'austénite des aciers en martensite lors d'une trempe. La transformation martensitique est une transition de phase à l'état solide qui fait partie des transformations sans diffusion (également appelées displacives). Par extension, les structures cristallines créées par des transformations de réseau sans diffusion atomique sont appelées martensites.

### I.1/ Définitions

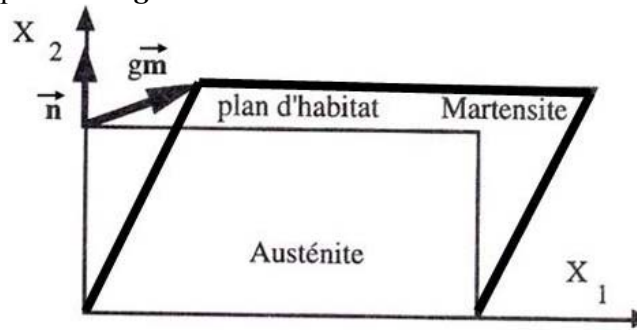
G. Guenin [G. Guenin, 1988] propose la définition suivante : « **La transformation martensitique est une transformation displacive du premier ordre présentant une déformation homogène du réseau cristallographique, constituée principalement par un cisaillement** ».

Le terme « displacive » signifie que la transformation met en jeu des déplacements atomiques petits (ordre de grandeur du dixième de la distance interatomique), et parfaitement corrélés pour un très grand nombre d'atomes. Les déplacements atomiques sont tels qu'ils engendrent une déformation homogène de la maille cristalline avec un changement de volume faible vis-à-vis des composantes de cisaillement.

La transformation est dite « du premier ordre » car il y a discontinuité des grandeurs physiques reliées aux dérivées premières du potentiel thermodynamique. Les deux phases (austénite et martensite) sont nettement différenciées et sont séparées par une interface que l'on nomme plan d'habitat (figure 1.1). A partir des mesures cristallographiques effectuées sur les deux phases et la donnée de la déformation à réseau invariant, la théorie phénoménologique de Wechsler, Lieberman and Read [M.S. Wechsler *et al.*, 1953] permet de déterminer les caractéristiques de la transformation qui sont:

- la normale  $\vec{n}$  au plan d'accrolement séparant l'austénite de la martensite,
- la direction de transformation  $\vec{m}$ ,

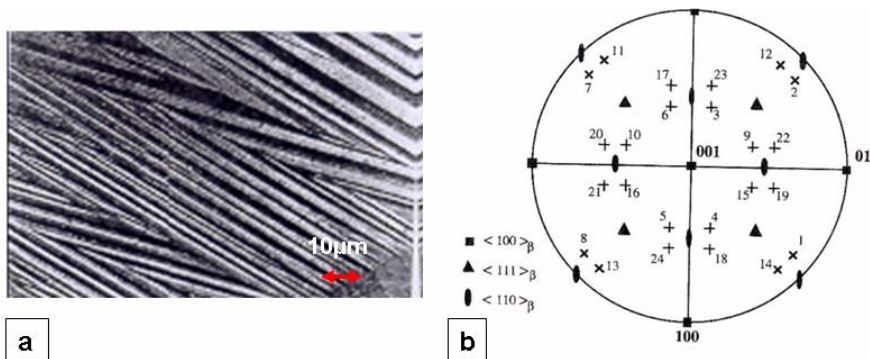
- l'amplitude de déplacement  $\vec{g}$  suivant la direction  $\vec{m}$ .



**Figure 1.1** : Formation d'une variante de martensite. Avec  $\vec{n}$  la normale au plan d'accolement séparant l'austénite de la martensite,  $\vec{m}$  la direction de transformation et  $\vec{g}$  l'amplitude de déplacement suivant la direction  $\vec{m}$

C'est le long du plan d'habitat que le cisaillement s'effectue pendant la transformation. C'est un plan invariant, c'est-à-dire qu'un vecteur de ce plan ne subit ni déformation, ni rotation à l'échelle macroscopique. L'austénite étant une phase de symétrie cubique, la transformation martensitique génère plusieurs variantes de martensite de plus faible symétrie. Ces différentes variantes sont caractérisées par des plans d'habitat et à des cisaillements d'orientations différentes, mais elles sont toutes équivalentes du point de vue cristallographique. Par exemple, pour l'alliage CuAlBe, il existe vingt-quatre variantes de martensite différentes (voir tableau 1.1 en annexe 1).

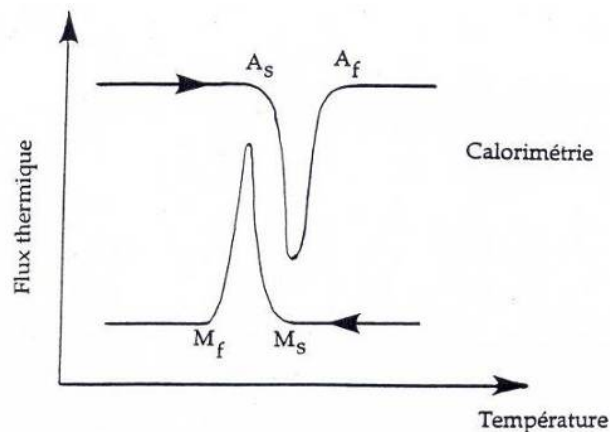
La transformation martensitique peut être induite soit par un abaissement de la température, soit par l'application d'une contrainte. Si l'on considère le cas d'un abaissement de température en l'absence de contrainte appliquée, toutes les variantes sont équiprobables, elles se forment de façon à compenser mutuellement les déformations des autres variantes. On parle alors d'auto-accommodation. La figure 1.2a montre une micrographie de variantes auto-accommodantes et la figure 1.2b indique les positions des plans d'habitat dans la martensite pour un monocristal de CuAlBe. Pour cet alliage, ils sont groupés autour des pôles  $\{110\}$  de l'austénite.



**Figure 1.2** : a/ Variantes auto-accommodantes de martensite induites par refroidissement, sans contrainte appliquée, b/ Position des normales au plan d'habitat pour les 24 variantes dans un monocristal CuAlBe en phase austénitique  $\beta$  [E. Patoor et al., 1994].

## 1.2/ Thermodynamique de la transformation

Dans les alliages à mémoire de forme, on observe que dans un état libre de contrainte, la transformation se produit à partir d'une température  $M_s$  (Martensite start) et se poursuit au refroidissement jusqu'à la température  $M_f$  (Martensite finish) pour laquelle le matériau est totalement martensitique. Au chauffage, la transformation présente une hystérésis, les températures  $A_s$  (Austenite start) et  $A_f$  (Austenite finish), qui caractérisent le début et la fin de la transformation inverse, différent des températures  $M_f$  et  $M_s$ . Ces températures sont en général déterminées par calorimétrie ou par résistivité (cf. figure 1.3).



**Figure 1.3 :** Détermination des températures de transformation par analyse calorimétrique différentielle (DSC) sur un alliage CuAlBe [M.P. Baron, 1998]

Dans les transformations thermoélastiques, la transformation martensitique se produit en restant, à chaque instant, à l'équilibre. Les incompatibilités de déformation y sont accommodées élastiquement, cela permet le retour à la forme initiale à l'issue de la transformation inverse.

L'application d'une contrainte appliquée sur un volume d'austénite produit une énergie mécanique et joue un rôle très important sur la transformation martensitique du fait du caractère displacif de celle-ci. En notant  $S$  l'entropie et  $\varepsilon$  la déformation macroscopique, la variation d'énergie libre de Gibbs s'écrit :

$$dG = - S dT - \varepsilon d\sigma \quad (1.1)$$

La condition d'équilibre thermodynamique entre les deux phases ( $G_A = G_M$ ) conduit à l'égalité suivante :

$$- [\Delta S]^{A \rightarrow M} \Delta T - [\Delta \varepsilon]^{A \rightarrow M} \Delta \sigma = 0 \quad (1.2)$$

où  $[\Delta \varepsilon]^{A \rightarrow M}$  représente le saut de déformation totale entre les deux phases, ce saut correspond en général à la déformation de transformation  $\varepsilon^{tr}$ . La relation (1.2) conduit à l'obtention de la

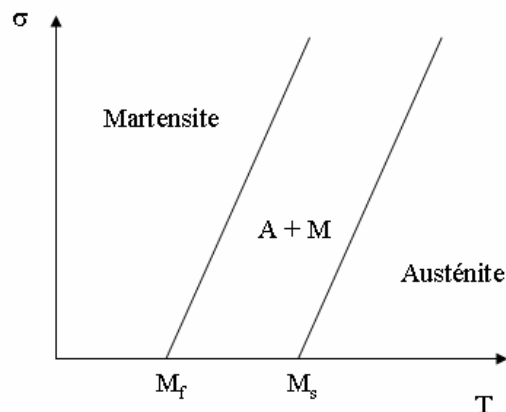
relation de Clausius-Clapeyron qui relie la contrainte appliquée et la température. Cette relation est supposée linéaire [M.W. Burkart *et al.*, 1953] :

$$\frac{d\sigma}{dT} = \frac{-\Delta H}{T_0 \cdot \varepsilon^{\text{tr}}} \quad (1.3)$$

Le passage de la relation (1.2) à (1.3) s'effectue en considérant la relation suivante :

$$\Delta S = \frac{\Delta H}{T_0}. \quad (1.4)$$

Avec  $\Delta H$ , l'enthalpie de la transformation et  $T_0$  la température d'équilibre thermodynamique. La relation (1.3) permet de déterminer un diagramme d'état pour la transformation (cf. figure 1.4).



**Figure 1.4 :** Diagramme d'état contrainte-température pour la transformation martensitique dans les alliages à mémoire de forme.

Le diagramme ci-dessus montre qu'il est possible de former de la martensite à des températures supérieures à  $M_s$  par application d'une contrainte. Ce phénomène a été prédit par Scheil [E. Scheil *et al.*, 1932] et discuté de façon quantitative par Patel et Cohen [J.R. Patel *et al.*, 1953]. La déformation de transformation  $\varepsilon^{\text{tr}}$  se compose d'une composante de cisaillement, responsable du changement de forme et d'une composante isotrope, responsable du changement de volume, il est donc important de considérer l'orientation de la contrainte appliquée par rapport au volume d'austénite.

### I.3/ La transformation martensitique induite sous contrainte

Quand un cristal d'austénite cubique se transforme en martensite au cours d'un refroidissement en l'absence de contrainte appliquée, les vingt-quatre variantes possibles se forment de façon auto-accommodante. L'application d'un champ de contrainte va conduire à sélectionner une variante préférentielle qui sera la seule à se former [K. Otsuka *et al.*, 1976]. Pour être

sélectionnée, il faut que la contrainte résolue  $\tau^n$  sur le plan d'habitat de cette variante préférentielle ( $n$ ) et dans sa direction de transformation atteigne la première la cission critique  $\tau_c$  déterminée par la relation de Clausius-Clapeyron (équation 1.3). La cission critique  $\tau_c$  étant supposée identique pour toutes les variantes, c'est l'orientation cristallographique de la variante par rapport à l'orientation du chargement mécanique qui est le moteur de cette sélection. La relation entre la contrainte résolue  $\tau^n$  et la contrainte appliquée est donnée par :

$$\tau^n = R_{ij}^n \sigma_{ij} \quad (1.5)$$

avec  $\sigma_{ij}$ , le tenseur des contraintes appliquées sur le cristal d'austénite et  $R_{ij}^n$ , le tenseur d'orientation de la variante  $n$  donné par la relation :

$$R_{ij}^n = \frac{1}{2} (n_i m_j + m_i n_j) \quad (1.6)$$

avec  $n_i$  et  $m_i$  les composants des vecteurs  $\vec{n}$  et  $\vec{m}$  définis à la figure 1.1.

La variante possédant la contrainte résolue maximale apparaît en premier. Sa direction de transformation  $\vec{m}$  est la direction préférentielle pour la transformation martensitique.

La transformation sous contrainte s'accompagne d'une importante déformation de l'échantillon. On appelle cette déformation la déformation de transformation, notée  $\epsilon_{ij}^{tr}$ . Dans un cristal monovariant, cette déformation est donnée par la relation suivante :

$$\epsilon_{ij}^{tr} = g \cdot R_{ij}^n f^n \quad (1.7)$$

avec  $f^n$  la fraction volumique de la variante considérée et  $g$  l'amplitude de déplacement suivant  $\vec{m}$ . La déformation de transformation (1.7) est dépendante de l'orientation cristallographique de l'éprouvette par rapport à la direction de traction. Cette dépendance d'orientation pour la déformation de transformation de l'alliage CuAlNi a été étudiée par différents auteurs [K. Otsuka *et al.*, 1976], [K. Otsuka *et al.*, 1977] et [V. Novak *et al.*, 1999]. Ce comportement particulier est appelé superélasticité. Ce travail de thèse portant sur la caractérisation à différentes échelles de la transformation martensitique sous contrainte dans l'AMF CuAlBe, se limite à la description de ce comportement thermomécanique.

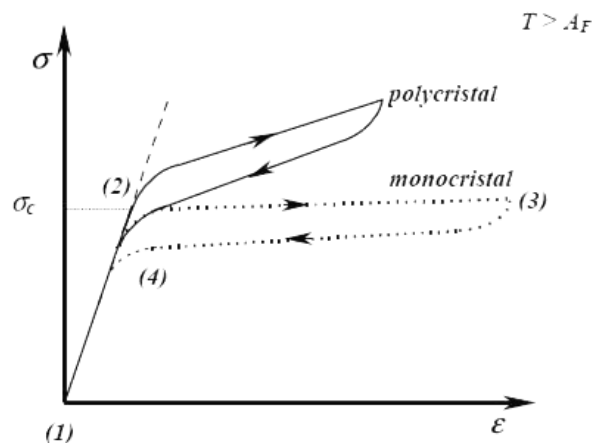
#### **I.4/ Principales caractéristiques du comportement superélastique**

L'appellation mémoire de forme ne recouvre qu'une partie des différents aspects du comportement qui dépend, avant tout, de la nature, du nombre et de la séquence des cycles de chargements thermomécaniques. Selon le trajet du chargement, on observe des réponses  $\epsilon(\sigma)$  et

$\varepsilon(T)$  tout-à-fait différentes, traduisant différents comportements que l'on peut regrouper en cinq classes [E. Patoor *et al.*, 1994] :

- 1- l'effet superélastique.
- 2- l'effet mémoire simple sens.
- 3- l'effet mémoire double sens,
- 4- l'effet caoutchoutique,
- 5- l'effet amortissant.

Comme cela a été indiqué au paragraphe précédent, la transformation martensitique thermoélastique peut être induite par une variation de température ou par application d'une contrainte externe. Dans le premier cas, la phase martensitique devient stable avec la diminution de température ( $T < M_f$ ). Dans le second cas, la transformation a lieu dans un domaine de température où le matériau est austénitique ( $T > A_f$ ). La figure 1.5 schématise le comportement superélastique pour les éprouvettes monocristallines et polycristallines.



**Figure 1.5 :** Comportement superélastique des éprouvettes monocristallines (en pointillés) et polycristallines (trait plein) à une température supérieure à  $A_f$ .

L'application d'une contrainte produit initialement une déformation élastique de la phase austénitique (stade 1-2). Le début de la transformation martensitique se manifeste par l'apparition du point d'écoulement sur la courbe de traction. La contrainte à ce point est nommée contrainte critique  $\sigma_c$  ou contrainte de début de transformation. L'augmentation de la contrainte produit la croissance des variantes bien orientées par rapport à cette contrainte. La transformation s'accompagne d'une importante déformation de l'échantillon (stade 2-3).

Le relâchement de la contrainte conduit à la transformation inverse. La martensite se retransforme en austénite avec une hystérésis en contrainte, les contraintes de début et de fin de transformation inverse diffèrent des contraintes de début et de fin de transformation directe (stade 3-4). L'échantillon reprend sa forme initiale lorsque toute la martensite s'est retransformée en



austénite (stade 1). Le comportement superélastique observé diffère fortement entre les éprouvettes monocristallines et les échantillons polycristallins.

Pour un monocristal, une très faible contrainte suffit à privilégier la variante la mieux orientée. Ceci conduit à une déformation de transformation importante (jusqu'à 10% par exemple sur les alliages CuAlBe [D. Entemeyer, 1996]).

Dans un polycristal, même si l'on peut également définir des variantes bien orientées pour chacun des grains du polycristal, celles-ci ne réussissent pas à transformer complètement l'échantillon. Gênée par la structure granulaire du polycristal, la transformation engendre un champ de contrainte interne intergranulaire, champ de contrainte qui influe à son tour sur la sélection des variantes en induisant des variantes moins bien orientées au sens de la contrainte macroscopique [T.W. Duerig *et al.*, 1990], [B. Kaouache, 2006]. La coexistence à l'intérieur d'un même grain de variantes sélectionnées par des champs de contraintes d'orientation différente est également une source d'incompatibilité de déformation et donc de contraintes internes. La forte anisotropie élastique des alliages CuAlBe (constante d'anisotropie  $A = 13$ ) est également à l'origine de champs de contraintes internes très importantes [J.P. Moniroli, 2001].

Ces interactions intergranulaires et intragranulaires rendent la transition entre le domaine élastique et le domaine de transformation moins marquée que dans le cas du monocristal et conduisent à une déformation de transformation plus faible pour le polycristal (de 3 à 5%). Contrairement au monocristal où la transformation a lieu pour une contrainte quasiment constante, le domaine de transformation d'un polycristal présente une pente plus prononcée. Cette pente est la conséquence des interactions intergranulaires et des différentes variantes qui apparaissent pendant la transformation [J. Van Humbeeck, 1999].

Dans les polycristaux, le développement de champs de contrainte intergranulaire et intragranulaire conduit au piégeage de quantité plus ou moins forte de martensite résiduelle et peut également induire un écoulement plastique dans le matériau. Ces deux mécanismes conduisent à l'apparition d'une déformation résiduelle plus ou moins marquée après décharge complète de l'échantillon [L. Contardo *et al.*, 1990]. La part respective prise par ces deux mécanismes, martensite résiduelle et plasticité, dans l'origine de la déformation résiduelle reste un sujet de discussion.

Après s'être intéressé aux mécanismes physiques à différentes échelles (macroscopique, intergranulaires et intragranulaires) qui sont à l'origine du comportement superélastique des AMF, nous abordons les mesures à multiéchelle obtenues jusqu'à présent sur les AMF. Nous nous sommes limités aux techniques par diffraction de neutrons, de rayons X, et de rayonnement

des rayons X synchrotron car celles-ci nous ont semblées particulièrement performantes pour des mesures *in-situ* à différentes échelles en volume et en surface.

## **II/ Analyse de la transformation au moyen des méthodes de diffraction**

Depuis la découverte par L.W. Bragg [L.W. Bragg, 1912] de la relation fondamentale entre l'angle de diffraction  $\theta$  et la distance interréticulaire des plans cristallographiques (la loi de Bragg), les techniques de diffraction n'ont cessé de prendre de plus en plus de place dans la science des matériaux et dans la mécanique. Dans les matériaux cristallins, l'utilisation du décalage des pics de diffraction comme jauge intrinsèque de déformation remonte au début des années 1920. Les premiers travaux ont été réalisés par Lester *et al.* sur des aciers [H. Lester *et al.*, 1925]. Quelques papiers de synthèse résument les travaux de pionniers réalisés sur polycristaux jusqu'aux années soixante [G.B. Greenough *et al.*, 1952] ; [H.R. Isenburger, 1953]. Les méthodes de diffraction sont devenues incontournables en science des matériaux et elles sont largement utilisées pour caractériser la transformation martensitique.

L'objectif de cette partie consiste à présenter les principaux résultats obtenus lors de la transformation martensitique pour illustrer les potentialités offertes par les techniques de diffraction de neutrons, de rayons X du rayonnement synchrotron et de rayons X de laboratoire. La présentation détaillée de ces techniques faisant l'objet du chapitre 2.

### **II.1/ Diffraction de neutrons**

La diffraction de neutrons est principalement utilisée pour identifier la structure cristallographique des phases formées au cours d'une transformation et déterminer les fractions volumiques des différentes phases en présence. Les diffractogrammes obtenus permettent également d'analyser les déformations moyennes en volume. Dans les deux prochaines parties, nous avons indiqué des résultats récents apportés par cette technique.

#### **II.1.1/ Identification de phases et détermination des fractions volumiques**

Les études par diffraction de neutrons ont permis l'identification cristallographique de différentes phases d'AMF. Pour des alliages comme le CuAlNi [J.I. Pérez-Landazábal *et al.*, 2003], la diffraction de neutrons présente un avantage certain sur la diffraction de rayons X. En effet, le cuivre et le nickel ne sont pas distinguables par diffraction de rayons X car les facteurs de diffusion, notés  $b$ , de ces deux éléments sont très proches, par contre aux neutrons leurs longueurs de diffusion sont différentes :  $b(\text{Cu}) = 0,7718 \cdot 10^{-12}$  cm et  $b(\text{Ni}) = 1,0300 \cdot 10^{-12}$  cm

[A.J.C. Wilson *et al.*, 1999]. Ces études d'identification de phases sont réalisées sur des poudres pour éviter les effets de texture. La méthode de Rietveld [H.M. Rietveld, 1969] est utilisée pour minimiser la différence entre les valeurs expérimentales et théoriques. Ainsi une autre étude sur cet alliage CuAlNi [V. Recarte *et al.*, 2004] a permis de mesurer l'ordre atomique et le processus de précipitation de la phase métastable  $\beta$  durant le chauffage.

Certains travaux d'identification cristalline des phases combinent la diffraction de neutrons et de rayons X pour leurs propriétés complémentaires vis-à-vis de l'hydrogène et de la deutériation (remplacer l'hydrogène par un deutérium). Ainsi les structures cristallines d'hydruure d'austénite et de martensite de l'alliage  $Ti_{0,64}Zr_{0,36}Ni$  ont été déterminées par les deux méthodes [F. Cuevas *et al.*, 2005].

D'autres auteurs ont également utilisé la diffraction de neutrons pour des analyses sur des alliages superélastique de NiTi en torsion [H. Sitepu *et al.*, 2003] ou en compression [R. Vaidyanathan *et al.*, 1999]. Leurs mesures ont soit porté sur l'identification des phases et l'évolution de leurs fractions volumiques, soit sur l'évolution de leurs textures.

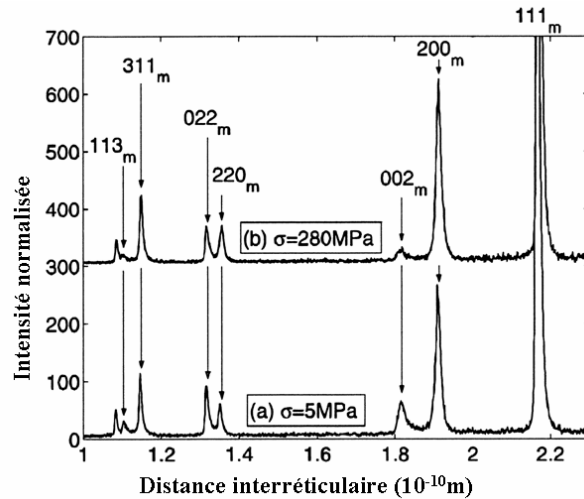
### **II.1.2/ Mesure des déformations et analyse des contraintes**

Des études plus spécifiques sur les déformations et les contraintes ont été réalisées par E.C. Oliver *et al.* [E.C. Oliver *et al.*, 2003], [E.C. Oliver *et al.*, 2004]. Leurs expériences par diffraction de neutrons en temps de vol, ont aidé à comprendre l'évolution de variantes dans un polycristal de Fe-30,5%(wt%)Pd. Cette technique par temps de vol permet de mesurer simultanément dans les directions axiale et radiale de l'éprouvette. Ainsi, on peut obtenir deux renseignements simultanés (à 90° l'un par rapport à l'autre) pour suivre la création de pics de diffraction de variantes de martensite par rapport à un pic initial de la phase mère (l'austénite).

Avec les mesures sur une éprouvette initialement austénitique, ils ont pu conclure que les variantes de martensite s'activant les premières sont celles qui produisent le maximum de déformation le long de la direction de traction. Ce maximum d'élongation pour cet alliage est réalisé dans les grains d'austénite orientés selon  $\langle 100 \rangle$  parallèlement à la direction de traction.

De même comme le montre la figure 1.6, la diffraction de neutrons a aussi permis de suivre l'évolution d'une variante par rapport à une autre pendant leur réorientation.

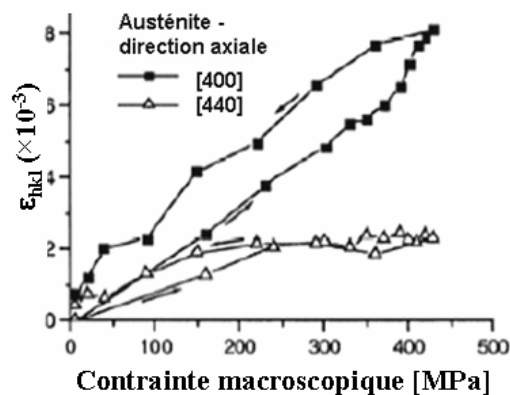
Les mesures sur une éprouvette martensitique ont montré que l'application de contrainte fait préférentiellement évoluer, dans la direction de traction, la variante avec la plus importante élongation. Par exemple, de 5 MPa à 280 MPa, la variante représentée par le pic  $002_m$  disparaît au profit de la variante représentée par le pic  $200_m$ .



**Figure 1.6 :** Diffractogramme de diffraction dans la direction axiale à la température de  $-1^{\circ}\text{C}$  et une contrainte appliquée de a/ 5 MPa, b/ 280 MPa (b a été décalé vers le haut pour plus de clarté) [E.C. Oliver *et al.*, 2004]

De la même manière E.C. Oliver *et al.* ont interprété l'augmentation des pics  $220_m$  et  $113_m$ . Ils ont aussi comparé les constantes élastiques obtenues par affinement Rietveld et par mesure avec l'extensomètre. A  $-1^{\circ}\text{C}$ , la méthode macroscopique mesure la constante élastique à 50 GPa tandis qu'avec la diffraction de neutrons les auteurs obtiennent 140 GPa. Ces constantes élastiques sont comparables au-dessus de  $M_s$  mais dès la limite de la température de transformation passée, une énorme différence s'observe. Donc la technique de diffraction de neutrons est une méthode efficace pour séparer, en fonction de l'orientation des grains par rapport à la direction de traction, la déformation élastique et la déformation de transformation.

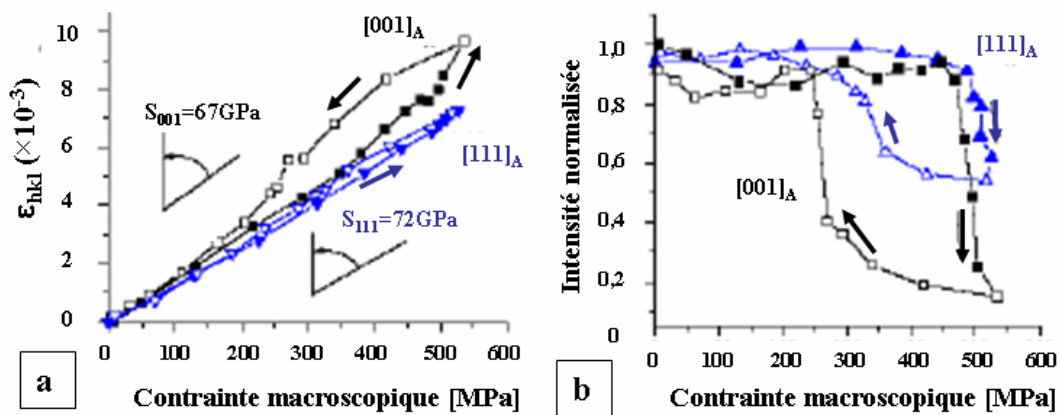
L'équipe de P. Sittner a également réalisé des mesures de déformations *in-situ* sur des AMF. La figure 1.7 [P. Sittner *et al.*, 2002] présente un exemple de résultat de mesures de déformation moyenne en volume dans la direction axiale sur un AMF polycristallin CuAlZnMn.



**Figure 1.7 :** Mesure *in-situ* de déformation de l'austénite par diffraction des neutrons dans un polycristal CuAlZnMn [P. Sittner *et al.*, 2002]

Ce résultat a été obtenu par diffraction des neutrons lors d'un essai de traction. L'effet de l'anisotropie cristalline du matériau est mis en évidence par ces travaux. Les grains qui ont une orientation favorable par rapport à la direction de traction (proches de [400]) se déforiment plus facilement que les grains proches de [440].

Le même phénomène est observé pour les AMF NiTi (cf. figure 1.8) mais il est beaucoup moins important [P. Sittner *et al.* 2004]. Cela est expliqué par le fait que l'anisotropie élastique des AMF NiTi est inférieure à celle des AMF CuAlZnMn.

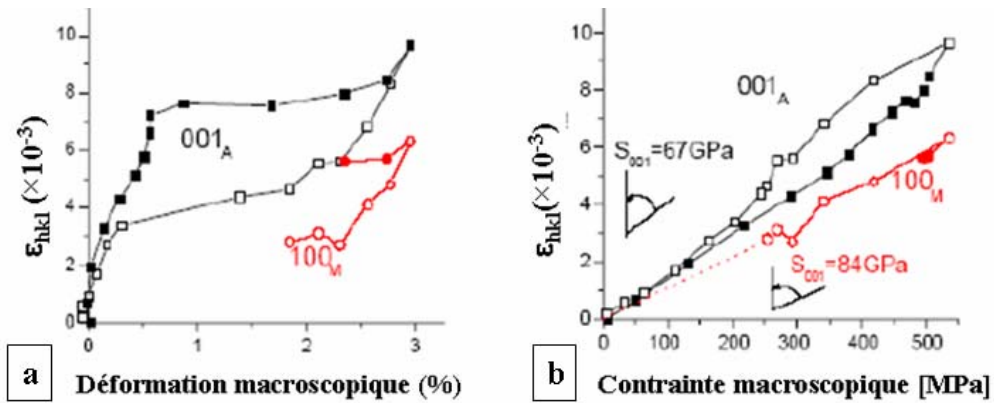


**Figure 1.8 :** a/ Mesure de déformation in-situ dans l'austénite dans le polycristal NiTi, b/ Evolution de l'intensité des pics de diffraction de l'austénite et de la martensite [P. Sittner *et al.*, 2004]

La figure 1.8b compare les résultats des intensités de réflexion des pics {111} et {001}, des grains orientés [111] et [001]. Les évolutions des intensités intégrées normalisées des pics représentent l'évolution de la fraction volumique d'austénite au cours du chargement.

Ces résultats montrent que les grains orientés [111] se transforment après ceux orientés [001] et que leur taux de transformation est inférieur. Dans le domaine de transformation (biphasé), l'évolution des déformations des grains orientés [111] est différente de celle des grains orientés [100] avec une hystérésis (cf. figure 1.8a). Cela reflète l'anisotropie de transformation du polycristal NiTi.

En figure 1.9 [P. Sittner *et al.*, 2004] est reporté un exemple de mesure de déformation dans les phases austénitique et martensitique lors de la transformation martensitique de l'alliage NiTi. Pour la même déformation et/ou contrainte macroscopique imposée, la déformation de l'austénite est supérieure à celle de la martensite dans la direction de traction. Ces mesures de déformation ont été effectuées sur les plans {100} de l'austénite et de la martensite.



**Figure 1.9 :** Mesure de déformation *in-situ* dans l'austénite et la martensite d'un polycristal de NiTi a/ en fonction de la déformation macroscopique, b/ en fonction de la contrainte macroscopique [P. Sittner *et al.*, 2004]

A partir de l'évolution des déformations mesurées par diffraction, P. Sittner *et al.* ont calculé la «constante élastique de diffraction» ( $S_{hkl}$ ) de chaque phase dans la direction de traction. Cette dernière est donnée par la pente de la courbe déformation – contrainte appliquée dans le domaine linéaire de l'austénite et/ou de la martensite soit pour l'austénite  $S_{001} = 67 \text{ GPa}$  et pour la martensite  $S_{001} = 84 \text{ GPa}$ . Compte tenu de l'évolution de la déformation dans les deux phases et de leurs constantes élastiques de diffraction, les auteurs estiment que les contraintes sont approximativement égales dans les deux phases. Dans le cas de cette analyse de contraintes dans un matériau à grains fins, il est important de prendre en considération les constantes élastiques radiocristallographiques de la phase analysée. Effectivement, il est insuffisant de tenir uniquement compte des constantes élastiques de diffraction dans la seule direction de traction. Nous avons tenu compte de cette remarque dans la détermination des contraintes du chapitre 3.

Jusqu'à présent nous n'avons décrit que des analyses par diffraction de neutrons réalisées sur des polycristaux. P. Molnar *et al.* [P. Molnar *et al.*, 2008] ont, quant à eux, effectué un travail original durant des expériences *in-situ* sur un échantillon monocristallin de CuAlNi. Ainsi ils ont utilisé la diffraction de neutrons pour suivre la formation de variantes de martensite et leur réorientation au cours d'un cycle en compression.

Dans la partie suivante, nous avons sélectionné les recherches récentes par diffraction de rayons X du rayonnement synchrotron qui permet des analyses à des échelles plus fines sur les AMF.

## II.2/ Diffraction de rayons X du rayonnement synchrotron

La microstructure des matériaux cristallisés est en trois dimensions. Dans de nombreux cas, les résultats en volume ont permis de montrer que des mesures en deux dimensions sont insuffisantes

et même parfois incorrectes [C.A. Volkert *et al.*, 2004]. La technique d'analyse en trois dimensions la plus utilisée est la méthode par focalisation de faisceau d'ions, mais celle-ci est malheureusement destructive.

La source de rayonnement synchrotron de troisième génération offre une opportunité pour caractériser, sans détruire, la microstructure en trois dimensions. Cette source génère :

- des rayonnements X de haute énergie dans une gamme de 8 à 150 keV qui peuvent pénétrer la matière de plusieurs centimètres dans l'aluminium, et plusieurs millimètres dans l'acier [J.R. Schneider *et al.*, 1994].
- des faisceaux si intenses que même un signal d'un volume d'un micron cube ou moins peut être distingué du bruit de fond [H.F. Poulsen, 2004].

Ces caractéristiques des sources de rayonnement synchrotron et des équipements de détection permettent des mesures extrêmement rapides (de l'ordre d'un millième de seconde), [H.F. Poulsen *et al.*, 2001]. Ceci permet des études *in-situ* dynamiques, en traction ou en compression, de grains et sous-grains. La multitude des appareillages disponibles à l'European Synchrotron Radiation Facility (ESRF) a permis à différentes équipes de caractériser la transformation martensitique à l'échelle de polycristaux puis d'un grain et enfin à l'intérieur du grain. Leurs résultats sont présentés dans la suite.

### **II.2.1/ A l'échelle de plusieurs grains – Evolution des déformations et des contraintes**

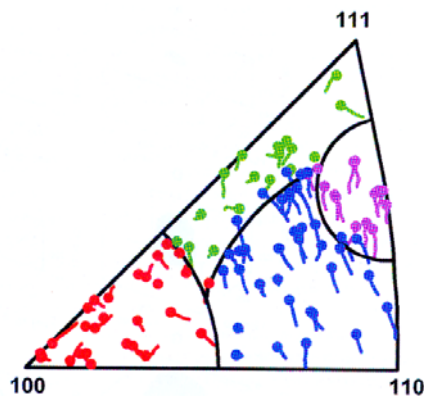
Les évolutions des déformations et des contraintes dans les phases austénitique et martensitique d'un alliage de NiTi ont été analysées par J. Khalil-Allafi *et al.*, pendant des expériences de diffraction de neutrons et de rayonnement synchrotron *in-situ* [J. Khalil-Allafi *et al.*, 2004]. Leurs résultats suggèrent que la transformation martensitique n'est pas complète même à la fin du plateau superélastique.

Dans une éprouvette de NiTi à petits grains sous contrainte appliquée et grâce à la ligne de lumière G3 à HASYLAB, l'équipe de W.W. Schmahl [W. W. Schmahl *et al.*, 2004] a mesuré l'hétérogénéité des déformations au niveau de grains de l'ordre du micromètre. Les déformations sont mesurées en moyenne sur quelques grains. Un état de déformation distinct apparaît à l'interface entre la bande de cisaillement et l'austénite l'entourant. Ces mesures de déformation donnent, sur un petit nombre de grains, les hétérogénéités de déformation à l'intérieur d'une éprouvette.

## II.2.2/ A l'échelle d'un grain – Evolution des orientations

À l'échelle d'un grain (mésoscopique), S. Schmidt *et al.* [S. Schmidt *et al.*, 2004] ont suivi à l'intérieur du volume d'une éprouvette, la croissance d'un grain durant sa recristallisation. Pour cette expérience, ils ont utilisé l'installation du microscope à diffraction de rayons X en trois dimensions (3DXRD) à l'ESRF sur la ligne de lumière ID11.

Cette installation est dédiée à l'investigation structurale en trois dimensions. Elle offre la possibilité de cartographier des structures à l'échelle du micron par diffraction du rayonnement synchrotron [H.F. Poulsen *et al.*, 1997], [H.F. Poulsen *et al.*, 2002], [H.F. Poulsen *et al.*, 2004], [L. Marguiles *et al.*, 2004]. Ce même type d'installation est en service à l'Advanced Photon Source (APS - Etats-Unis), [G.E. Ice *et al.*, 2000], [B.C. Larson *et al.*, 2002]. À l'ESRF avec l'installation 3DXRD, L. Marguiles *et al.* [L. Marguiles *et al.*, 2001] ont mesuré la rotation de quatre grains dans un échantillon d'aluminium durant une déformation macroscopique de 0% à 11%. Puis, G. Winther *et al.* [G. Winther *et al.*, 2004] ont mesuré la rotation de quatre-vingt quinze grains durant une déformation de 0% à 6% (cf. figure 1.10)



**Figure 1.10 :** Rotation de 95 grains représentée dans une figure de pôles inverses le long de l'axe de traction dans une barre d'aluminium lors d'une déformation de 0% à 6%. [G. Winther *et al.*, 2004].

Les auteurs ont pu mesurer l'évolution d'orientation de quatre-vingt quinze grains d'aluminium lors de la déformation plastique. Les quatre domaines de couleurs différentes regroupent des comportements similaires. Les orientations finales sont représentées par des cercles remplis.

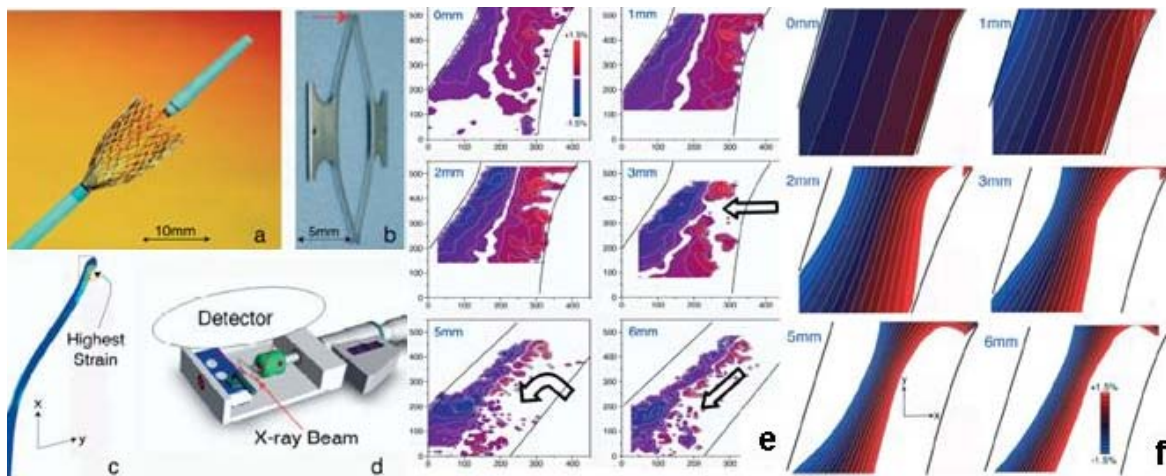
## II.2.3/ À l'intérieur du grain – Evolution des orientations et des contraintes

La diffraction de rayonnement synchrotron avec un microfaisceau polychromatique (moins de 1 micromètre carré) permet des mesures à l'intérieur-même du grain. Cette technique est utilisée pour établir des cartographies d'orientation et de contraintes de cisaillement résolues de grain supérieur à 1  $\mu\text{m}$ . La résolution spatiale est légèrement plus petite que la taille à mi-hauteur du rayon utilisé.



Dans l'exemple suivant, la mesure en microdiffraction sur un stent en NiTi (cf. figure 1.11a) s'effectue dans sa partie supérieure (cf. figure 1.11b). A. Mehta *et al.* [A. Mehta *et al.*, 2007] mesurent la partie déviatorique de la déformation au cours d'une traction. Dans la cartographie expérimentale (cf. figure 1.11e), le nombre en haut à gauche représente la déformation macroscopique appliquée. La flèche représente la direction de transformation en martensite. On observe trois zones :

- la première en bleu correspond à l'austénite en compression,
- la seconde en rouge à l'austénite en tension,
- la troisième en blanc représente la zone à déformation nulle au centre de l'échantillon.



**Figure 1.11:** a/ Stent en Niti, b/ Partie du stent analysée, c/ Repère de l'échantillon, d/ Système de traction avec le rayon X incident, e/ Cartographie de la déformation déviatorique dans la direction Y. avec en bleu l'austénite B2 en compression et en rouge en tension, f/ Cartographie de  $\epsilon_{yy}$  obtenue par élément fini. [A. Mehta *et al.*, 2007].

La cartographie théorique (cf. figure 1.11f) a été obtenue par un modèle d'éléments finis (ABAQUS) [N. Rebelo *et al.*, 2001], [N. Rebelo *et al.*, 2004], tenant déjà compte des orientations cristallographiques et des tailles de grains. Entre le calcul et l'expérience, les valeurs absolues de déformation sont identiques (1,5%) mais plusieurs différences sont à noter. En effet la martensite ne se transforme pas uniformément de l'extérieur vers l'intérieur du stent comme l'indique le modèle des éléments finis.

L'expérience montre que des grains austénitiques résistent à la transformation, même entourés par de la martensite, et que des grains en compression sont entourés par des grains en tension.

Ces différences sont associées :

- aux processus d'accommodation de la déformation pendant la transformation,

- aux champs locaux de déformation non uniformes dus à l'influence de la déformation induite par le réseau, les joints de grains, les dislocations, l'orientation des grains ou des contraintes internes.

La réorientation du front de propagation a des conséquences importantes sur la fissuration dans les stents en NiTi. Ce sont donc des mesures en microfaisceaux qui ont permis ces observations non prédites par les modèles d'éléments finis.

#### **II.2.4/ Mesure topographique et en imagerie de la transformation martensitique – Evolution des orientations et des fautes d'empilement**

La transformation thermoélastique de l'AMF CuZnAl a été étudiée par topographie en rayonnement X synchrotron. La nature polychromatique de ce faisceau a été exploitée pour déterminer expérimentalement les relations d'orientation entre les phases austénitique et martensitique [C. Jourdan *et al.*, 1995(a)], [C. Jourdan *et al.*, 1995(b)] ainsi que le mouvement des fautes d'empilement durant la transformation inverse [C. Jourdan *et al.*, 1999]. Les ondulations des taches de diffraction de la martensite sont pour eux la conséquence de rotations des plans des variantes de martensite lors du refroidissement de l'alliage de CuZnAl. Ils ont mesuré une valeur de 2° et 3° et ils considèrent que cette rotation de la martensite permet l'accroissement d'un groupe auto-accommodant par rapport à un autre groupe.

Une étude de diffraction de rayonnement synchrotron par imagerie en contraste de phase, pendant la déformation pseudoélastique d'un AMF de type NiTiCu a été présentée par S. Besseghini *et al.* [S. Besseghini *et al.*, 2004]. Ils ont observé la présence de martensite « fantôme » sur la surface de l'éprouvette, du fait des cycles précédents, avant même d'atteindre la contrainte de transformation. Dans la prochaine partie, nous revenons sur une étude en surface par diffraction de rayons X, qui permet un parallèle direct entre les états de contraintes et l'évolution microstructurale (apparition et développement des variantes) par microscopie optique.

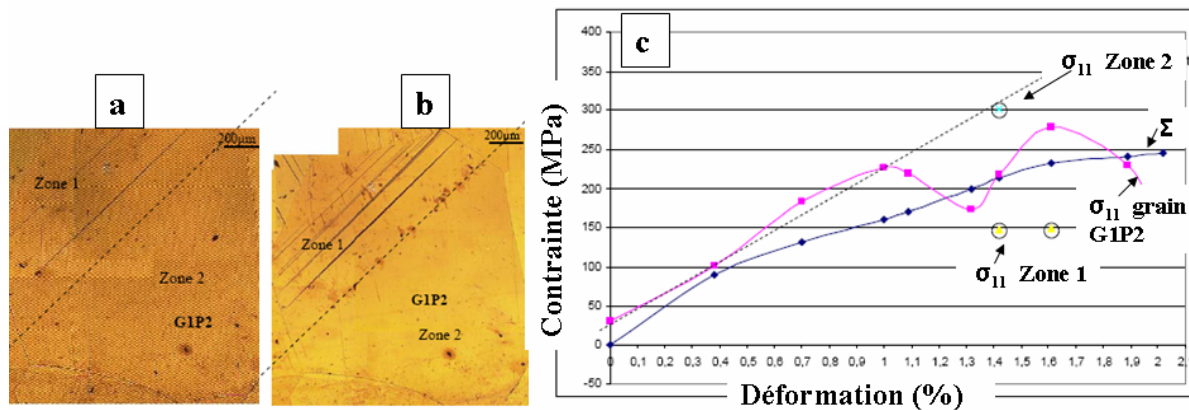
#### **II.3/ Diffraction de rayonnement X de laboratoire**

En diffraction de rayons X de laboratoire, nous pouvons recueillir, en surface (sur quelques micromètres), l'influence de l'orientation des grains sur la transformation martensitique des AMF et par conséquent sur le comportement macroscopique du matériau.

B. Kaouache [B. Kaouache, 2006] a mis en commun l'observation de la microstructure (par microscopie optique) et l'analyse de la contrainte interne de l'austénite en surface au cours d'un chargement superélastique. Les résultats obtenus permettent d'associer l'état de contrainte dans

l'austénite (pour un grain d'orientation cristallographique connu) avec d'une part le niveau de chargement macroscopique imposé à l'éprouvette et d'autre part la morphologie de la transformation martensitique dans ce grain (nature des variantes formées, fraction volumique, répartition dans le grain). Ses trois principaux résultats sont les suivants :

1. Dans un grain donné, la valeur maximale du facteur de Schmid joue un rôle primordial dans l'activation de la transformation. Les grains où la transformation se développe en premier sont les grains où le facteur de Schmid peut prendre des valeurs fortes. Cependant, cette information ne lui a pas permis de déterminer l'ordre de transformation des grains dans le polycristal.
2. Plusieurs modélisations [Q.P. Sun *et al.*, 1994], [M. Tokuda *et al.*, 1999] prennent comme hypothèse l'existence d'une corrélation forte entre le facteur de Schmid et l'ordre de transformation des grains. Cependant l'étude expérimentale de B. Kaouache a montré que cette hypothèse n'est pas systématiquement vérifiée. Ainsi un grain possédant un facteur de Schmid plus faible qu'un autre grain peut se transformer avant celui-ci. Ce résultat est en accord avec la modélisation micromécanique cristallographique développée au LPMM [E. Patoor *et al.*, 1996].
3. Le comportement d'un grain dans un polycristal est très différent de celui d'un monocristal de même orientation cristallographique. Pour B. Kaouache, deux mécanismes expliquent la différence de comportement entre le monocristal et le polycristal.
  - Le premier mécanisme est l'hétérogénéité des contraintes liée à l'anisotropie élastique du matériau. Cette hétérogénéité peut mener à une configuration où un grain moins bien orienté par rapport à la direction de traction se transforme avant celui mieux orienté. La différence de contrainte due à l'hétérogénéité amène le grain le moins bien orienté à atteindre le premier la cission critique.
  - Le deuxième mécanisme provient du fait que la transformation martensitique est un phénomène localisé [M. Tokuda *et al.*, 1999], [T.E. Buchheit *et al.*, 1995]. Ainsi une concentration de contrainte, causée par les interactions intergranulaires, peut produire un état de contrainte local supérieur à la contrainte moyenne dans le grain, et contribuer à la transformation de ce grain avant d'autres mieux orientés. La figure 1.12 montre un des résultats prouvant cette localisation des contraintes dans un grain.



**Figure 1.12** : Zone d'analyse intragranulaire dans le grain G1P2, a/  $\varepsilon = 1,4\%$ , b/  $\varepsilon = 1,6\%$ , c/ analyse de contraintes intragranulaires dans un grain ayant une zone 1 biphasée austénitique et martensitique et une zone 2 austénitique [B. Kaouache, 2006]

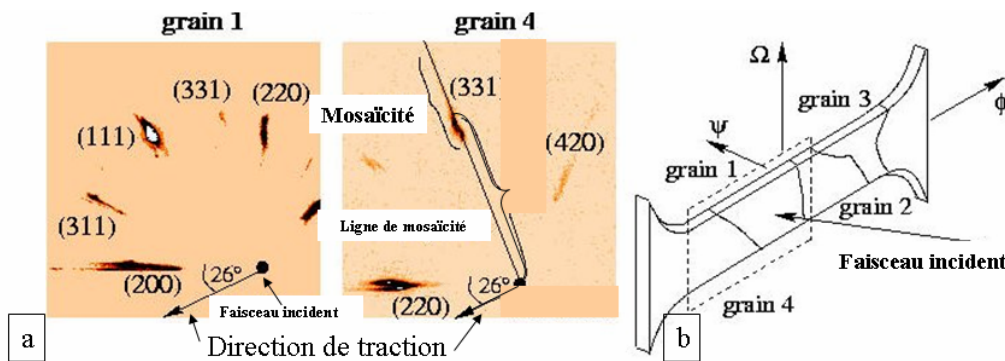
B. Kaouache montre ainsi sur la figure 1.12c que la partie biphasée austénitique et martensitique (zone1 des images 1.12a et b) voit sa contrainte dans la direction de traction se relâcher à 150 MPa, tandis que la zone 2 (uniquement en austénite) voit sa contrainte axiale augmenter jusqu'à 300 MPa pour 1,4% de déformation appliquée. La formation de la première variante de martensite dans un grain s'accompagne donc d'une relaxation significative de la contrainte déterminée dans l'austénite. La possibilité d'obtenir des grains de très grande taille dans l'alliage CuAlBe a permis à B. Kaouache, de mettre en évidence l'existence d'une forte hétérogénéité intragranulaire de la contrainte dans l'austénite.

#### II.4/ Diffraction de rayons X refocalisés à haute énergie – Evolution de la mosaïcité

La diffraction de rayons X refocalisés à haute énergie va nous permettre de mesurer l'évolution *in-situ* de la mosaïcité d'un monocristal de CuAlBe au cours de cycles superélastiques. Nous n'avons trouvé aucune bibliographie de cette technique appliquée aux AMF ; en revanche nous expliquerons ici le travail de F. Eberl [F. Eberl, 2000]. Il a mesuré avec cette technique l'évolution de la mosaïcité d'un grain sur un alliage 600 à base nickel au cours d'une traction uniaxiale.

Dans les simulations numériques, le grain est supposé être parfaitement orienté à l'état initial. Le calcul de la mosaïcité du réseau d'un grain est généralement introduit lors de la déformation plastique. En réalité, un grain est constitué de nombreux sous-grains légèrement désorientés les uns par rapport aux autres. Un outil adapté pour mesurer ces désorientations (mosaïcité) est l'approche de Laue refocalisée. Le principe de l'expérience de Laue est l'utilisation d'un faisceau polychromatique divergent qui est capable de mesurer un grain dans tout son volume.

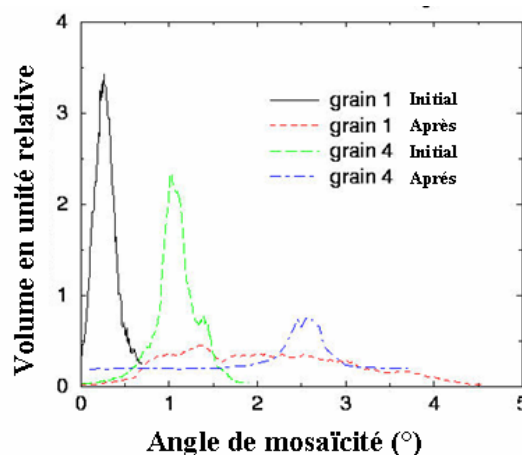
La figure 1.13a représente le cas de deux grains avec une distribution de la mosaïcité de chacune des familles de plans. La figure 1.13b montre la zone analysée ainsi que l'orientation de l'éprouvette de traction par rapport au faisceau incident.



**Figure 1.13** : a/ Distribution de l'intensité sur le détecteur représenté en fonction de l'angle de mosaïcité pour le grain 1 et 4; b/ Géométrie de l'éprouvette de traction avec les grains 1 et 4 en fonction du faisceau incident [F. Eberl et al., 1998].

Dans le cas de la figure 1.13a, le faisceau incident fait un angle de  $26^\circ$  avec le plan (200) du grain 1 et avec le plan (220) du grain 4. Les taches de diffraction de différentes familles de plans des deux grains s'élargissent dans la direction de la ligne de mosaïcité définie sur la figure 1.12a. La mosaïcité représente donc la longueur de la tache le long de cette ligne.

F. Eberl a sélectionné le plan (200) du grain 1 et le plan (220) du grain 4, pour étudier l'évolution de la mosaïcité dans ces grains. La figure 1.14 résume les résultats obtenus dans ces grains avant et après la déformation plastique. Les grains 1 et 4 ont une distribution de la mosaïcité relativement faible ( $0,4^\circ$ ) à l'état initial. Après la déformation plastique, le grain 4 garde une orientation principale (car le pic n'a pas disparu) comparée à celle du grain 1 qui a une distribution de mosaïcité très importante ( $>3^\circ$ ) (le pic est très étalé).



**Figure 1.14** : Projection des taches de Laue des grains 1 et 4 avant et après la traction. L'aire sous les pics représente le volume analysé, la largeur des pics représente la dispersion de mosaïcité autour d'une valeur moyenne [F. Eberl et al., 1998].

Ceci montre la forte hétérogénéité dans le grain 1 ainsi que la différence entre les résultats numériques et de mesures expérimentales des courbures de réseau [F. Eberl *et al.*, 1998]. Cette étude montre qu'il est important de considérer l'évolution de la mosaïcité lors d'un essai de traction en plasticité.

## **II.5/ Conclusion**

Cette rapide présentation de quelques-uns des principaux résultats obtenus par l'emploi des méthodes de diffraction aux grands instruments, montre que l'utilisation de ces techniques permet d'obtenir des informations en volume très précieuses sur différentes grandeurs et à différentes échelles, comme par exemple les transferts de charge entre phase ou l'évolution de la mosaïcité dans un cristal. A ce jour, les plus récentes de ces techniques n'ont pas encore été mises en œuvre pour caractériser la transformation martensitique et surtout aucune étude d'ensemble n'a été entreprise pour analyser, en volume et à différentes échelles, le comportement superélastique comme cela a été réalisé par exemple dans la thèse de B. Kaouache [B. Kaouache, 2006] en couplant des essais de traction *in-situ*, des observations en microscopie optique et des analyses de contrainte à différentes échelles par diffraction des rayons X de laboratoire. Tel est l'objectif de la présente étude, pour cela, nous devons disposer d'un matériau unique pour l'ensemble des analyses sur les différents instruments, comme dans la thèse de B. Kaouache, notre choix se porte sur le alliage superélastique CuAlBe.

## **III/ Principales caractéristiques des alliages à mémoire de forme CuAlBe**

Le fil conducteur des travaux présentés dans ce mémoire de thèse étant l'analyse à différentes échelles de la transformation martensitique sous contrainte dans les AMF, il était indispensable de disposer d'un alliage permettant de réaliser des analyses macroscopiques et des analyses très locales allant jusqu'à l'échelle des variantes de martensite. Dans cet objectif, le matériau CuAlBe a été retenu pour deux raisons pratiques.

Premièrement, selon la quantité de béryllium ajouté, sa température de transformation est proche de la température ambiante ce qui évite d'imposer des contraintes trop importantes lors du comportement superélastique. Deuxièmement, il offre la possibilité de faire varier, par traitement thermique, la taille de grains d'environ 70 $\mu\text{m}$  à plus d'un millimètre [Y. Gao, 2005].

De nombreux alliages à base cuivre sont susceptibles de présenter l'effet mémoire de forme : CuZn, CuAl, CuSn, CuZnAl, CuAlNi, CuAlMn, CuAlBe. Tous ces alliages ont des structures et des comportements voisins. Dans notre étude, nous avons choisi de caractériser la transformation

martensitique sous contraintes dans l'alliage CuAlBe. D'une part ces alliages ont déjà fait l'objet de nombreuses études [H.F. Zuniga, 1993], [F. Moreau, 1998], [M.P. Baron, 1998], [C.H. Gonzalez, 2002], [B. Kaouache, 2006], et leurs caractéristiques sont de ce fait bien documentées ; d'autre part ils présentent :

- une stabilité thermique supérieure aux AMF CuZnAl eux aussi largement étudiés,
- une mise en oeuvre plus aisée que les AMF CuAlNi (absence de précipités fragilisants),
- des propriétés mécaniques supérieures à celle des AMF CuZnAl,

La structure des phases ainsi que les propriétés de l'addition du béryllium dans l'alliage CuAlBe sont présentée dans la suite de cette section.

### III.1/ Structure des phases de l'alliage CuAlBe

Nous pouvons considérer le matériau CuAlBe comme un dérivé de l'alliage Cu<sub>3</sub>Al dont le diagramme d'équilibre est représenté figure 1.15. Un refroidissement à partir de la phase stable à haute température (Austénite -  $\beta$ ) permet à cette phase de se transformer à l'équilibre lors de l'eutectoïde à 570°C en une phase malléable  $\alpha$  et une phase  $\gamma_2$  très fragile. La température de transformation et le type de martensite dépendent de la composition chimique des alliages. Le diagramme CuAl dans la partie riche en cuivre montrent quatre phases d'équilibre ( $\alpha$ ,  $\gamma_2$ ,  $\alpha_2$ ,  $\beta$ ) et quatre phases métastables ( $\beta_1$ ,  $\beta'$ ,  $\beta'_1$ ,  $\gamma'$ ).

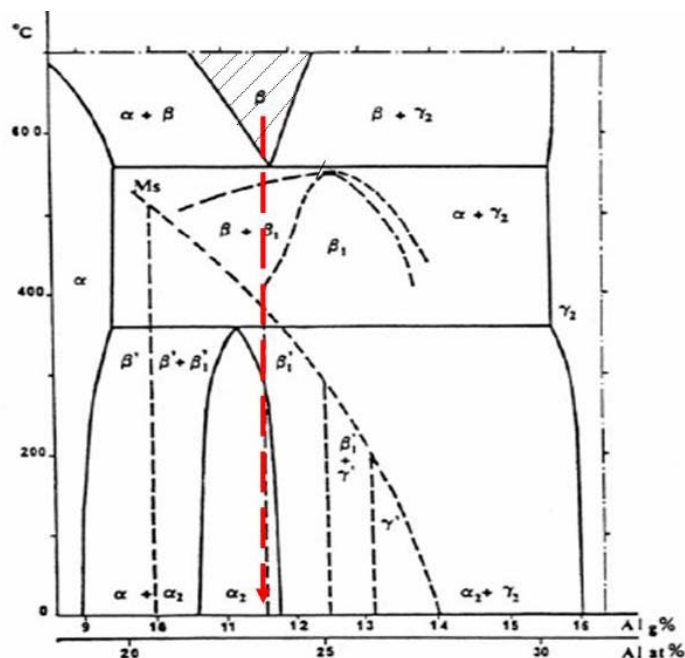


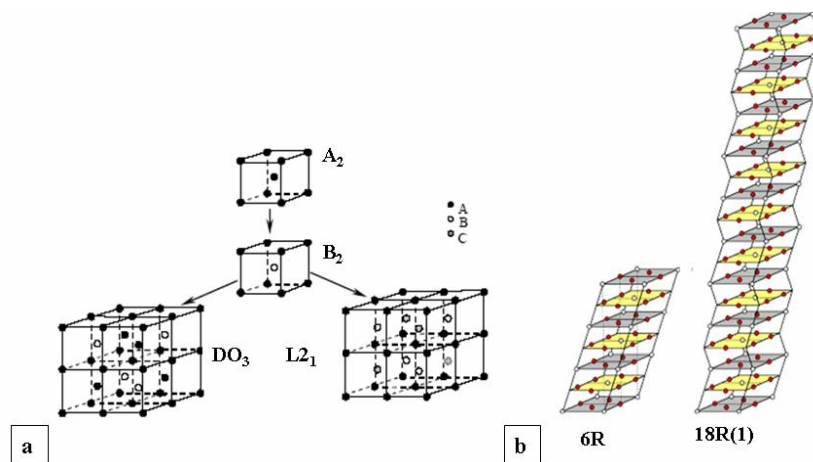
Figure 1.15 : Diagramme d'équilibre de l'alliage Cu-Al [H.F. Zuniga, 1993]

La phase  $\alpha$  a une structure cubique à faces centrées. Elle se forme soit à partir de la phase liquide, soit par décomposition de la phase  $\beta$ . Cette phase est très malléable et sa résistance mécanique augmente avec la concentration en aluminium.

La phase  $\gamma_2$  a une structure ordonnée complexe à cube centré. Du point de vue mécanique, cette phase est dure et très fragile, il est souhaitable d'éviter sa formation pour conserver de bonnes propriétés mécaniques.

La phase  $\beta$  est une phase intermétallique dans laquelle, si on ne tient pas compte de leur nature, les atomes se disposent suivant une structure cubique centrée. En fonction des alliages et de leur composition, cette structure cubique peut présenter des ordres atomiques différents:  $A_2$ ,  $B_2$ ,  $DO_3$  ou  $L2_1$ .

La figure 1.16a présente les configurations atomiques des structures ordonnées de la phase  $\beta$ . A l'équilibre cette phase présente une décomposition eutectoïde au voisinage de  $570^\circ\text{C}$  et aucune transformation martensitique n'est donc possible. Pour obtenir la transformation martensitique, il est nécessaire de rendre la phase  $\beta$  métastable jusqu'à la température de transformation martensitique. Cet état métastable est obtenu par trempe à partir de la zone de stabilité de la phase  $\beta$  ; ce traitement est connu sous le nom de bétatisation.



**Figure 1.16 :** a/ Représentation atomique des structures de la phase austénitique  $\beta$ , b/ Représentations structurelles de types de martensites du  $\text{CuAlBe}$  [F. Moreau, 1998]

La phase martensitique peut se présenter sous des formes structurales variées selon la composition chimique, l'état ordonné hérité de la phase austénitique et la nature du chargement thermomécanique imposé. Il n'y a donc pas une, mais plusieurs martensites possibles. Les structures de ces martensites peuvent être représentées par un empilement de plans compacts de type cubique à faces centrées (voir figure 1.16b). Le nombre de plans denses de la maille dépend de l'ordre hérité de la phase mère. Ces différentes martensite sont nommées :  $\alpha'$ ,  $\beta'$  et  $\gamma'$ . La

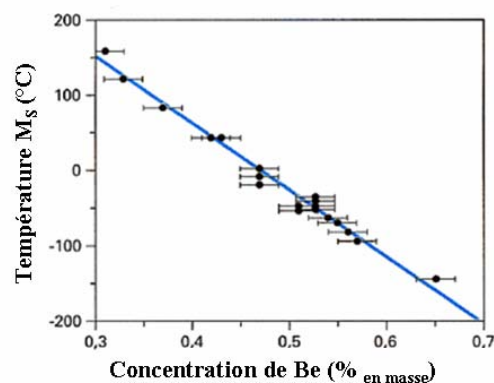


nomenclature de Ramsdell classifie les martensites en fonction de la structure et de la périodicité des plans compacts (ex. : 3R, 9R).

Lorsque la martensite est formée à partir de la phase  $\beta$  ordonnée  $DO_3$  ou  $L2_1$ , la périodicité des fautes d'empilement des différentes martensites sont doublées (exemple : 6R, 18R). Les martensites  $\alpha'$  et  $\gamma'$  présentent une microstructure interne maclée. Les structures  $\beta'$  peuvent présenter une distorsion orthorhombique de quelques degrés (monoclinique), elles sont alors identifiées par M9R ou M18R. Pour les alliages contenant moins de 13% en poids d'aluminium, il est établi que la phase martensitique est de type 18R [P.R. Swan *et al.*, 1963], ce qui est le cas pour l'alliage utilisé dans cette étude. Un complément cristallographique de la transformation martensitique sur l'alliage CuAlBe est documenté dans le travail de F. Moreau [F. Moreau, 1998].

### III.2/ Influence du béryllium sur la température de transformation

Dans le système binaire Cu-Al, pour obtenir une température  $M_s$  au voisinage de la température ambiante, il faut une concentration d'environ 14% en masse d'aluminium. Or pour cette valeur, il est pratiquement impossible d'obtenir la phase  $\beta$  exempte de précipités  $\gamma_2$  très fragile, et l'alliage est inutilisable. L'ajout d'un troisième élément permet de baisser très fortement la température de transformation martensitique pour un pourcentage d'aluminium donné. L'optimum de composition en aluminium est obtenu pour la composition eutectoïde car l'aptitude à la trempe et donc au traitement de bétatisation est maximale pour cette composition. L'emploi du béryllium dans le système Cu-Al est donc une solution pour éviter la fragilisation par la phase  $\gamma_2$ . L'addition d'une très faible quantité de béryllium permet de réduire très fortement la température  $M_s$ , comme la figure 1.17 le montre, sans entraîner de modification sur la structure de la martensite obtenue (structure 9R).



**Figure 1.17 :** Influence de la teneur massique en béryllium sur la température  $M_s$  de l'alliage CuAlBe à 11,8% en masse d'Al [S. Belkahl, 1990]

Belkahla [S. Belkahla, 1990] a établi une expression pour l'estimation de la température  $M_s$  en fonction de la composition en masse de l'alliage :

$$M_s(^{\circ}\text{C}) = 1245 - 71\% \text{Al} - 893\% \text{Be} \quad (1.8)$$

## Conclusion

Les progrès récents, tant dans les techniques d'acquisition et de traitement des données que dans celle du pilotage et de la focalisation des faisceaux, permettent désormais de disposer d'outils de diffraction très performants ; cela est tout particulièrement vrai aux grands instruments pour la diffraction de neutrons et le rayonnement synchrotron. Ces avancées autorisent des caractérisations microstructurales de plus en plus précises et pour des échelles différentes. A côté de la détermination de grandeurs moyennée sur l'ensemble de l'échantillon, il est désormais possible d'obtenir des informations très locales comme l'évolution de l'orientation individuelle de grains dans un polycristal ou celle de la mosaïcité dans un cristal. L'application de ces techniques à l'étude de la transformation martensitique dans les alliages à mémoire de forme permettra de comprendre comment des évolutions microstructurales fines sont capable d'affecter fortement la réponse globale de l'alliage à une sollicitation thermomécanique extérieure. Ce travail a pour ambition de contribuer à une meilleure compréhension de la superélasticité, en utilisant et en adaptant, parfois pour la première fois, ces techniques d'analyse à l'étude d'échantillons de CuAlBe superélastique. Ces différentes techniques seront appliquées à l'étude *in-situ* de la traction uniaxiale dans ces alliages. Avant de présenter les résultats obtenus aux différentes échelles d'analyse, il est nécessaire de présenter, en détail, les différentes caractéristiques des techniques qui seront mises en œuvre.

## **Chapitre II: Techniques expérimentales mises en oeuvre**

<b>Introduction</b>	P.35
<b>I/ Principes de base de la diffraction</b>	P.36
I.1/ La loi de Bragg	P.36
I.2/ Mesure des déformations	P.39
I.3/ Détermination des contraintes	P.41
I.3.1/ La méthode des $\sin^2\psi$	P.41
I.3.2/ La méthode des contraintes principales	P.42
I.3.3/ Détermination des contraintes dans un matériau biphasé	P.42
I.4/ Elargissement des raies de diffraction	P.43
I.5/ Dosage de phase	P.43
I.6/ Analyse <i>in-situ</i>	P.45
<b>II/ Les apports des grands instruments</b>	P.47
II.1/ Pénétration dans la matière	P.47
II.2/ Volumes d'analyses	P.48
II.2.1/ Pour le rayonnement neutronique	P.48
II.2.2/ Pour les rayons X du rayonnement synchrotron	P.50
II.3/ Résumé	P.51
<b>III/ Les techniques expérimentales monocristallines</b>	P.53
III.1/ Le microscope 3DXRD	P.53
III.1.1/ Montage	P.53
III.1.2/ Principe de la technique 3DXRD	P.54
III.1.3/ Détermination de l'orientation des grains	P.55
III.1.4/ Calcul d'erreur du tenseur de déformation	P.56
III.1.5/ Elargissement des taches de diffraction dans les directions $\eta$ et $2\theta$	P.56
III.2/ Technique Micro-Laue ou Microdiffraction polychromatique	P.58
III.2.1/ Introduction	P.58
III.2.2/ Acquisition des clichés	P.58
III.2.3/ Analyse de la technique	P.59
III.2.3.1/ Calibration	P.60
III.2.3.2/ Indexation des pics	P.61

III.2.3.3/ Détermination des erreurs	P.62
III.3/ La méthode de Laue refocalisée à haute énergie	P.63
III.3.1/ Introduction	P.63
III.3.2/ Principe de la méthode	P.64
III.3.3/ Méthode d'analyse	P.67
<b>IV/ Les différentes éprouvettes utilisées</b>	<b>P.70</b>
IV.1/ Epreuve plate à petits grains	P.71
IV.2/ Epreuves plates à grains millimétriques	P.72
IV.3/ Epreuves cylindriques à petits grains	P.72
IV.4/ Epreuve plate monocristalline	P.74
<b>Conclusion</b>	<b>P.75</b>

## Chapitre II : Techniques expérimentales mises en œuvre

Avant de discuter les résultats obtenus, nous présentons dans ce chapitre, les principales techniques d'analyses mises en œuvre dans cette étude. L'ensemble de ces techniques utilisant la diffraction, la première partie du chapitre expose les principes de base de la diffraction, ainsi que la procédure expérimentale de détermination des contraintes et des fractions volumiques de la phase austénitique. Les techniques d'analyses *in-situ* y sont également présentées ; ce type d'analyse permet de caractériser les évolutions microstructurales pendant un chargement mécanique.

La seconde partie du chapitre traite des apports des grands instruments par rapport aux rayons X de laboratoire. Les principales caractéristiques des rayonnements X synchrotron et des rayonnements neutroniques y sont rappelées.

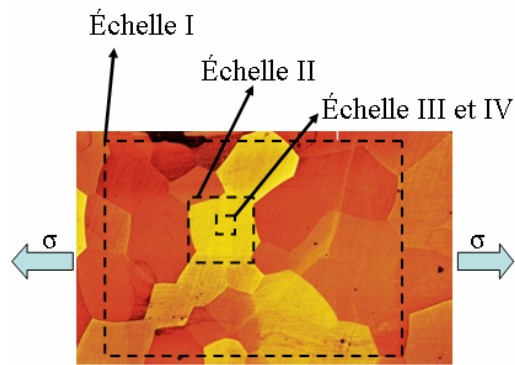
La troisième partie du chapitre est consacrée aux méthodes d'analyse monocristallines. Ces méthodes permettent d'effectuer des analyses fines des évolutions microstructurales. Trois techniques ont été utilisées. Deux récemment développées à l'ESRF: le microscope 3DXRD et le micro-Laue. La troisième développée à l'ILL depuis une dizaine d'année : la méthode de Laue refocalisée qui est une transposition à haute énergie de la méthode de Guinier et Tennevin (1949).

Ainsi différentes échelles d'analyse peuvent être atteintes :

- l'échelle du grain dans le polycristal ou mésoscopique avec le microscope 3DXRD.
- l'échelle intragranulaire grâce à la mise en œuvre de faisceau de taille micrométrique avec le micro Laue.
- l'échelle de l'échantillon avec la méthode de Laue refocalisée mais en donnant des informations globales sur la perfection du réseau cristallin. Elle permet, entre autres, de déterminer la mosaïcité du cristal et de détecter la présence de macles ou de variantes de martensite.

Les caractéristiques majeures de ces techniques sont présentées, ainsi que leur échelle d'analyse (cf. figure 2.1).

Enfin, dans la quatrième et dernière partie nous présentons les caractéristiques des éprouvettes utilisées.



**Echelle I** : Echelle macroscopique, le polycristal est considéré comme l'unité.

**Volume d'analyse avec la diffraction de neutron** :  $10\text{mm}^3$ ,

**Echelle II** : Echelle mésoscopique ou intergranulaire, le grain est considéré comme l'unité.

**Volume d'analyse avec la méthode 3DXRD** :  $1\text{mm}^3$ ,

**Echelle III** : Echelle intragranulaire, hétérogénéités dans le grain (rotation et gradient de rotation, gradient de déformation, ...).

**Volume d'analyse avec la technique Micro-Laue** :  $50\mu\text{m}^3$ ,

**Echelle IV** : Echelle du réseau cristallin (courbe de réseau).

**Volume d'analyse avec les rayons X refocalisé à haute énergie**: quelques  $\text{cm}^3$  dans un monocristal.

*Figure 2.1 : Les échelles de l'analyse multiéchelle in-situ*

## I/ Principes de base de la diffraction

La diffraction, des rayons X et/ou des neutrons, est un outil incontournable dans l'étude du comportement mécanique des matériaux cristallins. Le principe de base est simple, il consiste à éclairer l'échantillon à analyser par une source de rayons X et à utiliser un détecteur mobile pour mesurer l'intensité du faisceau diffracté en fonction de la position angulaire du détecteur. On obtient de cette façon un diffractogramme dont l'exploitation permet d'obtenir de nombreuses informations microstructurales : orientation cristalline, nature et fraction volumique des phases en présence, microdéformations locales du réseau cristallin.

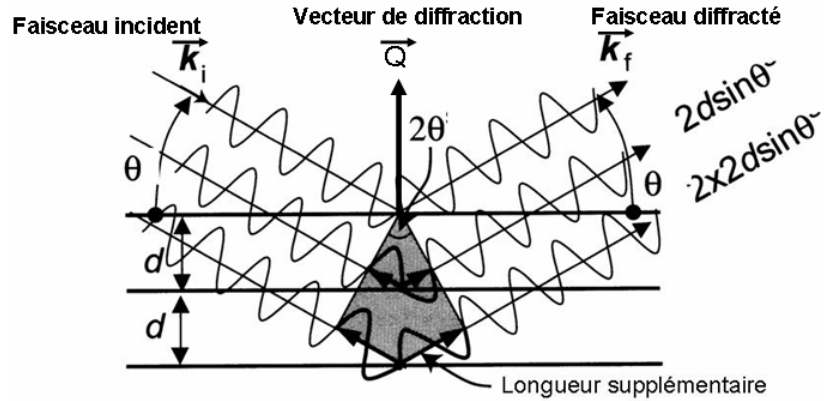
### I.1/ La loi de Bragg

Considérons, dans le cas d'un matériau cristallin, une famille de plans réticulaires  $\{hkl\}$ , équidistants de  $d_{hkl}$ , et un faisceau incident de rayons X (ou neutrons) monochromatique de longueur d'onde  $\lambda$  (de même ordre de grandeur que la distance interatomique), formant l'angle  $\theta$  avec chacun des plans de la famille. Le faisceau incident est diffracté si l'angle d'incidence  $\theta$  obéit à la loi de Bragg qui est :

$$2 \cdot d_{hkl} \cdot \sin\theta_{hkl} = n \cdot \lambda \quad (2.1)$$

où  $n$  est un nombre entier strictement positif. L'angle  $\theta_{hkl}$  ainsi défini est l'angle de diffraction de la famille de plans  $\{hkl\}$ .

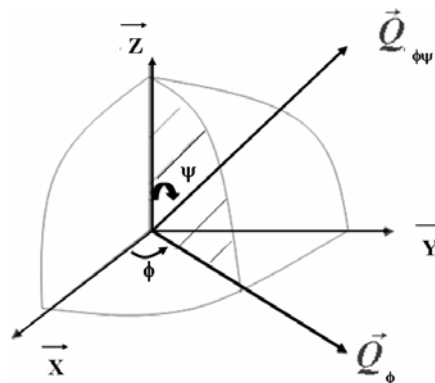
D'un point de vue géométrique, le faisceau incident ( $\vec{k}_i$ ) et le faisceau diffracté ( $\vec{k}_f$ ) sont coplanaires. Le plan formé par ces deux derniers est normal au plan diffractant. La bissectrice des faisceaux incident et diffracté est confondue avec la normale au plan diffractant, elle est notée  $\vec{Q}$ .



**Figure 2.2 :** Principe de la diffraction des photons ou des neutrons

L'enregistrement, sur un détecteur, de l'intensité diffractée en fonction de l'angle d'incidence  $\theta$ , permet d'obtenir un diffractogramme composé des pics de diffraction correspondant aux différentes familles de plans cristallographiques.

La figure 2.3 montre que l'orientation de  $\vec{Q}$  par rapport à un repère de mesure (X, Y, Z) attaché à l'échantillon est définie par les angles  $\phi$ , l'azimut, et  $\psi$ , l'inclinaison. Dans ce repère de mesure  $\vec{X}$  représente la direction de traction,  $\vec{Y}$  la direction perpendiculaire à la direction de traction et  $\vec{Z}$  la normale à l'échantillon.



**Figure 2.3 :** Définition du repère de mesure et des angles  $\phi$  et  $\psi$

La relation (2.1) montre que pour un plan (hkl) donné, l'angle de diffraction  $\theta_{hkl}$  est très sensible à toute variation de la distance interréticulaire  $d_{hkl}$ . Cette sensibilité explique l'importance prise par les techniques de diffraction dans la détermination des déformations élastiques du réseau cristallin et en analyse des contraintes.

En conséquence de la relation (2.1), le volume élémentaire pour lequel la diffraction sur un plan cristallographique donné se produit pour un même angle  $\theta$  est appelé domaine cohérent de diffraction. Ces domaines sont de très petites tailles car la présence des défauts du réseau cristallin (dislocations, précipités, joints de grains) en modifiant localement la distance  $d_{hkl}$  entraîne une dispersion sur l'angle  $\theta$ . Chaque domaine cohérent de diffraction est caractérisé par son orientation et par son état propre de déformation et de contrainte. Dans un agrégat polycristallin, ces domaines sont de taille très largement inférieure à celle du grain et généralement, pour une direction  $(\phi, \psi)$  donnée, tous les domaines cohérents de diffraction d'un même grain ne diffractent pas simultanément. Ces légères désorientations définissent la mosaïcité du réseau cristallin. Grâce à cette sensibilité aux variations locales de microstructures, les techniques de diffraction se montrent des outils d'analyse particulièrement bien adaptés aux études multiéchelles [F. Eberl, 2000].

De façon classique, l'analyse sur polycristaux intègre l'ensemble de ces informations et les pics de diffraction résultent de la contribution simultanée d'un grand nombre de domaines cohérents de diffraction distribués dans les grains du volume irradié. Il est donc indispensable de réaliser un traitement de ces pics comportant la soustraction du bruit de fond et le lissage par une fonction (Gaussienne, Lorentzienne, Pseudo-Voigt...) afin d'obtenir des informations pertinentes.

Ces informations sont les suivantes :

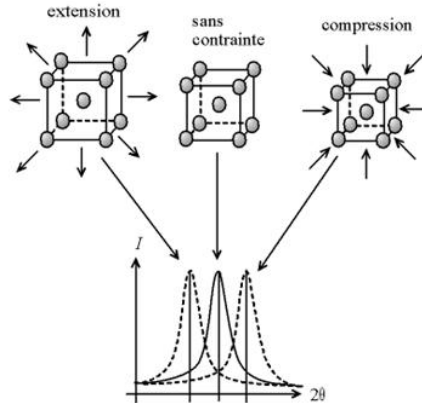
- la position  $2\theta$  du pic. Cette position permet la mesure des déformations. La taille du volume analysé par le faisceau de diffraction comportant en général un très grand nombre de grains. Cette mesure est macroscopique.
- la hauteur (l'intensité) et l'aire (intensité intégrée) du pic qui permettent le dosage des phases lors des changements de phase. Cette mesure est également macroscopique,
- la largeur à mi-hauteur ou Full Width at Half Maximum (FWHM). Cette largeur est reliée à la dispersion des domaines diffractants, elle permet d'obtenir des informations plus locales sur la microstructure du matériau.

Ces différentes informations et les exploitations qui en sont faites sont détaillées dans les paragraphes suivants.



## I.2/ Mesure des déformations

Les déformations peuvent se mesurer par le biais du déplacement du pic de diffraction qui est caractérisé par sa position  $2\theta$ . La figure 2.4 propose un exemple simple avec des plans cristallins perpendiculaires à la direction de traction/compression uniaxiale.



**Figure 2.4 :** Variation de la position du pic due à une contrainte

Si une contrainte de traction est appliquée dans la direction de traction, alors la distance inter-réticulaire des plans  $\{hkl\}$ ,  $d_{hkl}$ , augmente ; d'après la loi de Bragg (cf. relation 2.1), leur angle de diffraction  $\theta$  diminue. Inversement, pour une contrainte de compression, les plans atomiques se rapprochant, la distance  $d_{hkl}$  diminue et l'angle de diffraction  $\theta$  augmente.

Pour la mesure des déformations, les distances inter-réticulaires  $d_{hkl}$  sont donc utilisées comme jauge de déformation. La déformation mesurée peut être exprimée par rapport à un état initial, ou à un état de référence du matériau considéré sans contrainte (ou matériau « non contraint »). Dans ce dernier cas, la distance inter-réticulaire des plans  $\{hkl\}$  ( $d_{0,hkl}$ ) est la distance inter-réticulaire des plans  $\{hkl\}$  du matériau non contraint. La déformation qui en résulte est donnée par :

$$\varepsilon_{hkl} = \frac{d_{hkl} - d_{0,hkl}}{d_{0,hkl}} = \frac{\Delta d_{hkl}}{d_{0,hkl}} = 1 - \frac{\sin \theta_{hkl}}{\sin \theta_0} \quad (2.2)$$

En différenciant la loi de Bragg (2.1), on obtient :

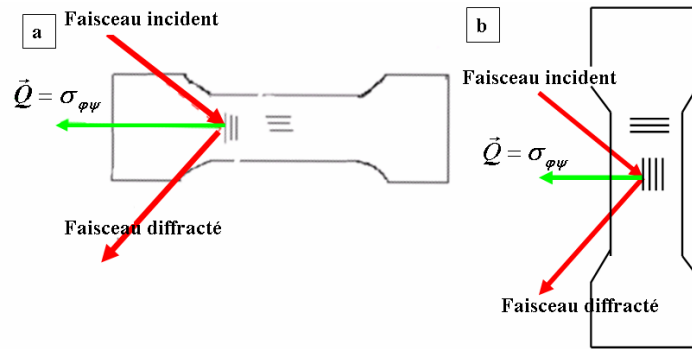
$$\varepsilon_{hkl} = - \cot(\theta_{0,hkl}) \Delta \theta_{hkl} \quad (2.3)$$

Pour interpréter les résultats obtenus dans ce travail, il est essentiel de garder à l'esprit que les déformations évaluées par décalage du pic de diffraction ( $\Delta \theta_{hkl}$ ) sont :

- des déformations élastiques moyennées sur le volume analysé. En effet, en diffraction, le volume d'analyse dans l'échantillon est défini par l'intersection des faisceaux incidents et

diffractés. La déformation mesurée est donc une déformation moyenne sur le volume diffractant.

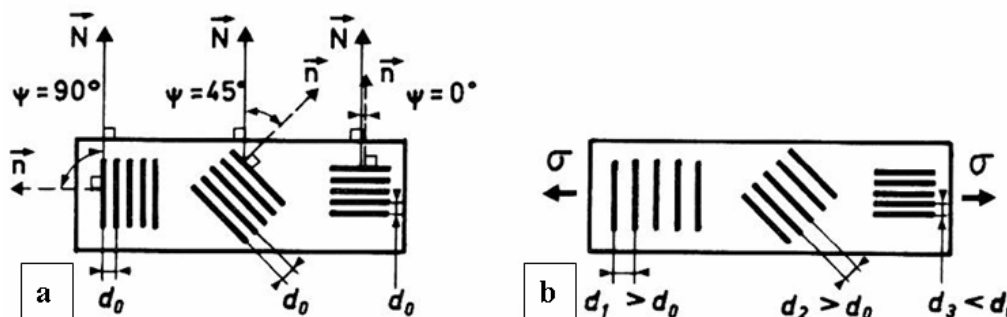
- spécifiques à l'orientation des cristaux de chaque phase. La direction de mesure de la déformation est la direction du vecteur de diffusion  $\vec{Q}$ , normal aux plans  $\{hkl\}$  considérés comme le montre la figure 2.5.



**Figure 2.5 :** a/ Mesure d'une déformation axiale ou dans l'axe de l'éprouvette ( $\phi = 0^\circ$ ,  $\psi = 90^\circ$ ), b/ Mesure d'une déformation radiale ou dans une direction transverse à l'éprouvette ( $\phi = 0^\circ$ ,  $\psi = 0^\circ$ )

Lorsque l'on mesure dans le sens de traction (cf. figure 2.5a), c'est-à-dire que la normale au plan diffractant est parallèle à la direction de traction ( $\psi = 90^\circ$ ), on appelle la déformation, déformation axiale, longitudinale ou dans le sens de traction. Lorsque la normale au plan diffractant est perpendiculaire à la direction de traction ( $\psi = 0^\circ$ ) (cf. figure 2.5b), on dit que l'on mesure la déformation radiale. Ceci permet de déterminer la relation de Poisson.

La figure 2.6 montre que pour un matériau parfait non contraint, la valeur initiale  $d_{0,hkl}$  de la famille de plans  $\{hkl\}$  est indépendante de l'orientation des plans  $\{hkl\}$  par rapport à la surface (définie par les angles  $\psi$ ). Lorsqu'on soumet ce matériau à une contrainte  $\sigma$ , uniaxiale, la figure 2.6b montre que la variation des distances  $d_{hkl}$  de cette famille de plans dépend de l'orientation de ces plans par rapport à la direction de traction.



**Figure 2.6 :** Variation de la distance inter-réticulaire en fonction de l'angle  $\psi$ . a/ état du matériau non déformé. b/ application d'une contrainte  $\sigma$

La déformation  $\varepsilon$  mesurée dépend donc de la direction  $(\phi, \psi)$  dans laquelle est effectuée la mesure. De cette déformation, on peut en déduire l'état de contrainte du matériau. Dans la prochaine partie, nous présentons deux méthodes de détermination des contraintes.

### I.3/ Détermination des contraintes

Les contraintes peuvent être déterminées par la méthode des  $\sin^2\psi$  ou la méthode des contraintes principales.

#### I.3.1/ La méthode des $\sin^2\psi$

C'est en 1958 que Macherauch a développé la méthode des  $\sin^2\psi$  [E. Macherauch, 1958]; [E. Macherauch *et al.*, 1959]. On suppose que les hypothèses suivantes sont respectées :

- les cristaux composant le matériau étudié ont un comportement élastique linéaire (Loi de Hooke) et isotrope.
- les grains sont de petites tailles et orientés de manière aléatoire (pas de texture cristallographique)
- l'état de contraintes et de déformation est homogène dans le volume irradié par les rayons X.

Si l'on considère le cas d'un état triaxial de contraintes, il est nécessaire de mesurer la déformation suivant une direction  $\vec{Q}$  décrite par deux angles  $\phi$  et  $\psi$  de la figure 2.3. Les lois de la mécanique des milieux continus permettent de relier la déformation moyenne  $\varepsilon_{\phi\psi}$  suivant une direction définie par les angles  $\phi$  et  $\psi$ , et la contrainte  $\sigma$  par l'équation suivante :

$$\varepsilon_{\phi\psi} = 1 - \frac{\sin\theta_{\phi\psi}}{\sin\theta_0} = \frac{1}{2} S_{2(hkl)} \cdot [(\sigma_{\phi} - \sigma_{33}) \cdot \sin^2\psi + \sigma_{33}] + S_{1(hkl)} \cdot \text{Tr}(\sigma) + \frac{1}{2} S_{2(hkl)} \cdot \tau_{\phi} \cdot \sin 2\psi \quad (2.4)$$

avec  $\sigma_{\phi} = \sigma_{11} \cos^2 \phi + \sigma_{22} \sin^2 \phi + \sigma_{12} \sin 2\phi$ , et  $\tau_{\phi} = \sigma_{13} \cos \phi + \sigma_{23} \sin \phi$

$\theta_{\phi\psi}$  est la position du pic de diffraction mesuré dans la direction  $(\phi, \psi)$  ;  $\text{Tr}(\sigma)$  est la trace du tenseur des contraintes et  $\tau_{\phi}$ , le cisaillement.

$S_{1(hkl)}$  et  $1/2 S_{2(hkl)}$  sont les Constantes d'Elasticité Radiocristallographiques (C.E.R.). Pour les calculer, plusieurs approches sont possibles : l'approximation de Voigt, l'approximation de Reuss et l'approximation de Kröner-Eshelby [J.C. Michel, 1998], [M. François, 1997].

La comparaison entre les valeurs calculées par les modèles (Voigt, Reuss et Kröner-Eshelby) et les valeurs obtenues expérimentalement est présentée en annexe 1 de ce chapitre. Dans la suite de

ce travail, nous avons utilisé le modèle de Kröner-Eshelby. Dans le cas de l'AMF CuAlBe, les C.E.R. de la famille de plans {422} de l'austénite obtenues sont :

$$\frac{1}{2} S_2 \{422\} = 11,01 \times 10^{-6} \text{ MPa}^{-1} \quad S_1 \{422\} = -2,83 \times 10^{-6} \text{ MPa}^{-1}$$

La courbe  $\varepsilon_{\phi\psi} = f(\sin^2 \psi)$  est une ellipse dont une branche correspond aux valeurs positives de  $\psi$  et l'autre aux valeurs négatives. La pente de cette ellipse est proportionnelle à  $(\sigma_{\phi} - \sigma_{33})$  et son ouverture est proportionnelle au cisaillement  $\tau_{\phi}$ .

L'existence d'une texture cristallographique limite l'application de cette méthode et conduit à des oscillations dans la courbe  $\varepsilon_{\phi\psi} = f(\sin^2 \psi)$ .

### I.3.2/ La méthode des contraintes principales

La méthode des contraintes principales, bien qu'elle soit moins précise, est très souvent utilisée en diffraction de neutrons pour limiter les temps d'analyses. Les directions de contraintes principales doivent être connues et sont déduites de la géométrie de l'échantillon. De ce fait, nous mesurons uniquement  $\varepsilon_1$  la déformation axiale ( $\psi = 90^\circ$ ) et  $\varepsilon_2 = \varepsilon_3$  (dans le cadre de l'élasticité isotrope) la déformation radiale (dans le sens perpendiculaire à la direction de traction  $\psi = 0^\circ$ ).

Ceci revient à assumer implicitement que la relation  $\varepsilon_{\phi\psi} = f(\sin^2 \psi)$  est considérée comme linéaire, c'est-à-dire que le matériau est isotrope [G.A. Webster *et al.*, 1997]. Ces hypothèses supposent d'abord que les grains du matériau analysé ont un comportement élastique, linéaire et isotrope, puis que la taille de ces grains soit petite par rapport à la taille du faisceau. De plus, l'état de contrainte doit être homogène sur l'ensemble du volume irradié. La relation entre la déformation principale  $\varepsilon_i$  et la contrainte principale  $\sigma_i$  est alors:

$$\sigma_i = \frac{2(4S_{1(hkl)} + S_{2(hkl)})}{S_{2(hkl)}(6S_{1(hkl)} + S_{2(hkl)})} \varepsilon_i - \frac{4S_{1(hkl)}}{S_{2(hkl)}(6S_{1(hkl)} + S_{2(hkl)})} \sum_j \varepsilon_j \quad \text{avec } i,j=1,2,3 \text{ et } j \neq i \quad (2.5)$$

La mesure de  $\varepsilon_1$ ,  $\varepsilon_2$  et  $\varepsilon_3$  permet donc de déterminer  $\sigma_1$ ,  $\sigma_2$  et  $\sigma_3$

### I.3.3/ Détermination des contraintes dans un matériau biphasé

Les positions de diffraction étant propres à chaque structure cristallographique, les techniques de diffraction sont particulièrement bien adaptées à l'étude des matériaux multiphasés. Néanmoins des difficultés peuvent apparaître : en effet, les pics des différentes phases peuvent se chevaucher, voire se superposer. Il devient alors plus difficile de les déconvoluer et les moyens à mettre en œuvre pour y arriver sont relativement lourds.

D'autre part, l'intensité du signal diffracté dépend de la fraction volumique de la phase qui diffracte. Dans le cas de la transformation martensitique, il est donc difficile d'avoir accès aux informations sur la martensite lorsque celle-ci est présente en faible proportion.

Aussi, nous nous sommes limités à la détermination des contraintes dans l'austénite tout en tenant compte des pics de diffraction de la martensite apparaissant pour l'analyse des pics de la phase austénitique.

#### **I.4/ Elargissement des raies de diffraction**

Outre le déplacement du pic de diffraction pour l'analyse des déformations et contraintes du 1<sup>er</sup> ordre, la largeur à mi-hauteur du pic de diffraction (Full Width at Half Maximum - FWHM) peut être utilisée pour étudier l'état de microdéformation du matériau. En effet, un matériau cristallin parfait présente des raies de diffraction symétriques et extrêmement fines. Cependant, les matériaux contiennent en général un grand nombre de défauts cristallins par exemple des dislocations, des macles, des joints de grains, des sous-joints de grains et des fautes d'empilement. Le pic de diffraction s'élargit alors par rapport à l'état parfait.

L'augmentation de la largeur à mi-hauteur des pics de diffraction est le résultat de deux contributions :

- *l'élargissement instrumental* : il est fonction de l'angle de diffraction et est caractéristique de l'instrument utilisé. Il est dû à de multiples facteurs tels que la divergence et la taille du faisceau de rayons X, la dimension finie de la source du faisceau, à la focalisation imparfaite, etc... On se reportera à [R. Guinebretière, 2006] pour les rayons X et [A.W. Hewat, 1975] pour les neutrons. Cet élargissement instrumental s'établit grâce à des poudres très fines et parfaitement déterminées de type LaB<sub>6</sub> qui ne présentent pas d'élargissement intrinsèque.
- *l'élargissement lié au matériau* : il est fonction de la densité des défauts de structure [M.T. Hutchings *et al.*, 2005], de la distorsion du réseau cristallin [M.F. Ashby, 1970], [M. Montagnat *et al.*, 2001].

#### **I.5/ Dosage de phase**

Enfin, nous nous sommes intéressés à l'évolution de l'intensité des pics afin d'estimer les fractions volumiques de chacune des phases. Pour cela, nous avons choisi d'utiliser l'évolution des intensités intégrées ( $I_{hkl}^A$ ), correspondant à l'aire sous les pics, de différentes familles de plans {hkl} de la phase austénitique (A). Connaissant l'intensité incidente ( $I_0$ ), pour une phase A

donnée de volume  $V_A$  et un plan  $\{hkl\}$  ayant donné naissance à un pic d'intensité intégrée  $I_{hkl}^A$ , on a :

$$I_{hkl}^A = I_0 R_{hkl}^A V_A \quad (2.6)$$

où  $R_{hkl}^A$ , est un facteur qui dépend, entre autres, de la structure cristalline de la phase A et de la famille de plans diffractants  $\{hkl\}$ , ainsi que de l'absorption du rayonnement par le matériau. Dans notre étude, ne connaissant pas tous les paramètres nécessaires, nous n'avons pas calculé ce facteur  $R_{hkl}^A$ .

Néanmoins, pour les neutrons, nous avons accès, pour chaque expérience, à l'intensité incidente ( $I_0$ ). Aussi, nous avons d'abord mesuré le diffractogramme d'un échantillon 100% austénitique faiblement texturé ; en utilisant la relation (2.6), on peut donc estimer la valeur du facteur  $R_{hkl}^A$  pour chaque famille de plans. Lors des essais *in-situ*, l'évolution de la fraction volumique d'austénite  $f_A$  ( $f_A = V_A / V$ ) est calculée par la relation :

$$f_{A,hkl}^{\sigma_{appl.}} = \frac{I_{hkl}^{A,\sigma_{appl.}}}{I_{hkl}^{A,0}} \times \frac{I_0^0}{I_0^{\sigma_{appl.}}} \quad (2.7)$$

avec :

\*  $I_{hkl}^{A,\sigma_{appl.}}$  et  $I_0^{\sigma_{appl.}}$ , respectivement l'intensité du pic de diffraction (hkl) de l'austénite et l'intensité du rayonnement incident mesurées sur l'échantillon soumis à une contrainte appliquée  $\sigma_{appl}$

\*  $I_{hkl}^{A,0}$  et  $I_0^0$ , respectivement l'intensité du pic de diffraction (hkl) et l'intensité du rayonnement incident mesurées sur l'échantillon 100% austénitique.

Nous avons ainsi suivi l'évolution de la fraction volumique d'austénite par famille de plans et également calculé une fraction volumique moyenne sur l'ensemble des familles de plans par la

$$\text{relation : } f_A^{\sigma_{appl.}} = \frac{\sum I_{hkl}^{A,\sigma_{appl.}}}{\sum I_{hkl}^{A,0}} \times \frac{I_0^0}{I_0^{\sigma_{appl.}}} \quad (2.8)$$

Néanmoins, il ne s'agit là que d'estimations de la fraction volumique d'austénite. En effet, pour un matériau texturé on ne peut plus utiliser les intensités obtenues à partir d'un simple diffractogramme puisque ces intensités sont celles des pics diffractés pour seulement une orientation définie par les angles  $\phi$  et  $\psi$  ( $\phi$  et  $\psi$  étant les deux angles de rotation de l'échantillon montrés sur la figure 2.3. En faisant varier ces deux angles, l'intensité des pics de diffraction

varie à cause de la texture du matériau. Ainsi, pour réaliser un dosage de phase en s'affranchissant de l'effet de la texture du matériau, il est recommandé de prendre en compte les intensités moyennes déduites des figures de pôles des différents plans diffractants. Compte tenu du temps d'expérience que cela nécessiterait et de la faible texture des échantillons (cf. partie IV de ce chapitre), nous nous sommes limités à l'utilisation de diffractogrammes.

Lors d'un cycle superélastique, les évolutions des fractions volumiques de l'austénite ( $f_A$ ) disparaissant et de martensite ( $f_M$ ) apparaissant sont dépendantes car la fraction volumique de martensite est égale à :  $f_M = 1 - f_A$  (2.9)

### I.6/ Analyse *in-situ*

L'originalité de ce travail est de suivre l'évolution de ces différents paramètres (déformation, contraintes, fraction volumique) lors de cycles superélastiques. Ce type d'analyse est appelé « *in-situ* ». « *in-situ* » signifie dans notre étude : « ***Pendant l'application d'une contrainte macroscopique de traction simple*** » (*contrainte uniaxiale*).

Une difficulté a été, pour chacune des expériences, d'adapter la forme des éprouvettes et du système de traction. Chaque machine de traction a été choisie en fonction :

- de ses spécificités mécaniques,
- de la géométrie des éprouvettes de traction,
- de son encombrement par rapport aux diffractomètres utilisés.

La figure 2.7 représente la machine « Kammrath-Weiss ». Elle a la particularité de pouvoir être utilisée à la fois dans le microscope à balayage et sur le diffractomètre à rayons X du LPMM.

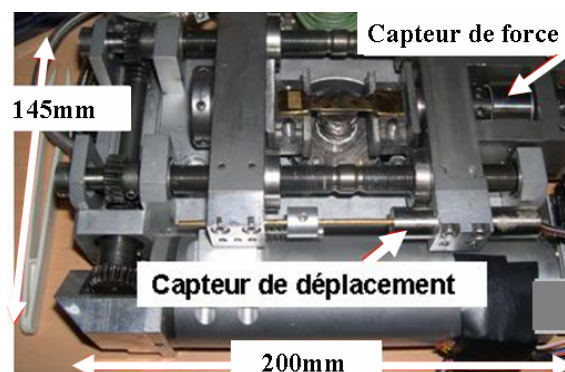
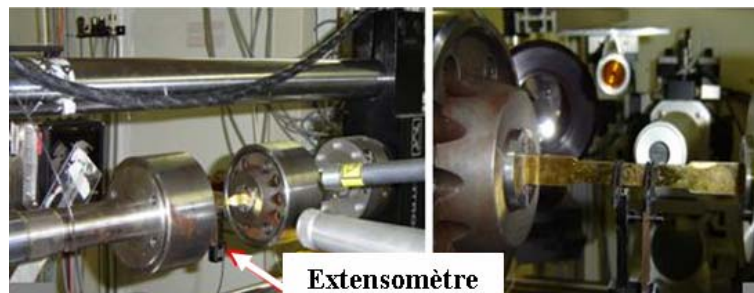


Figure 2.7: Machine de traction *in-situ* Kammrath-Weiss.

Ce système a été adapté pour être monté sur les diffractomètres SALSA et D20 et la ligne de rayons X focalisés à haute énergie à l'ILL. Il nous a permis d'accéder à plusieurs informations

telles que la caractérisation mécanique macroscopique, l'analyse de contraintes et l'observation de la microstructure. La machine est équipée d'un capteur de force piézoélectrique et d'un capteur de déplacement qui mesure le déplacement des mors. La force appliquée par cette machine peut atteindre 5 kN, avec des vitesses de déplacement de traverse comprises entre 0,2  $\mu\text{m/s}$  et 100  $\mu\text{m/s}$ .

La figure 2.8 montre une machine « INSTRON », elle a été utilisée sur le microscope de diffraction de rayons X du rayonnement synchrotron (3DXRD) de la ligne de lumière ID11.



**Figure 2.8 :** Machine de traction *in-situ* INSTRON de 25kN sur l'installation 3DXRD

La force appliquée par cette machine peut atteindre 25 kN. La déformation macroscopique du volume analysé a été mesurée par un extensomètre attaché autour de la zone analysée (cf. figure 2.8b).

Enfin, la figure 2.9 représente la machine de traction fabriquée au LPMM. Elle a été utilisée avec l'instrument de microdiffraction sur la ligne de lumière BM32. Pour cette expérience, l'éprouvette devait être placée au dessus du système de traction de façon à éviter au maximum « l'ombre » de la machine sur les images du détecteur.



**Figure 2.9 :** Machine de traction *in-situ* du LPMM de 5 kN

La force appliquée par cette machine peut atteindre 5 kN. Elle est équipée d'un capteur de force piézoélectrique et d'un capteur de déplacement qui mesure l'allongement entre les mors.

Il est important de signaler que lors de toutes les mesures *in-situ* de ce travail, nous avons laissé le temps à la chaleur produite lors de la transformation martensitique de diffuser dans l'échantillon.



## II/ Les apports des grands instruments

Toutes les méthodes présentées dans la première partie peuvent être utilisées indifféremment en diffraction de rayons X de laboratoire ou en diffraction de rayonnement de type neutronique et synchrotron. Ces deux derniers types de rayonnement sont produits par ce que l'on appelle des grands instruments. Il faut cependant garder à l'esprit que les mesures sur ces grands instruments sont :

- compliquées à mettre en place. Un même instrument est amené à changer de configuration plusieurs fois par semaine.
- onéreuses. Le coût de la production de neutrons et de rayonnement synchrotron excède largement le coût de production de rayons X d'un générateur de laboratoire.
- peu faciles d'accès. Ces grands instruments sont mis à disposition de différentes communautés de scientifiques sélectionnées sur proposition d'expériences. Le délai entre le dépôt de la proposition et l'expérience elle-même est d'environ 7 mois.

Dans cette partie, nous décrivons les caractéristiques propres de ces rayonnements. Puis, nous présentons les techniques expérimentales monocristallines utilisées lors des mesures à l'échelle du grain et des variantes de martensite par diffraction de rayons X synchrotron et de rayons X refocalisés.

### II.1/ Pénétration dans la matière

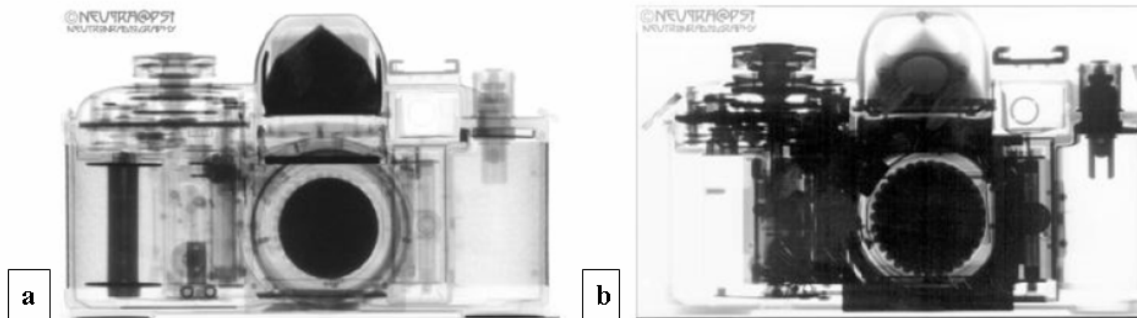
Les rayons X synchrotron sont capables de produire des photons d'énergie supérieure à 150 keV. Ceci permet, par rapport aux rayons X de laboratoire, d'augmenter la profondeur de pénétration dans les matériaux de plusieurs ordres de grandeur. Coupler la haute énergie et un flux important permet des mesures à l'intérieur d'éprouvettes de quelques millimètres jusqu'à plusieurs centimètres. La relation entre l'énergie des photons  $E$  et la longueur d'onde  $\lambda$  est donnée par la relation ci-dessous :

$$\lambda(\text{Å}) = \frac{hc}{E(\text{keV})} = \frac{12,3985}{E(\text{keV})} \quad (2.10)$$

Où  $h$  est la constante de Planck et  $c$  la vitesse de la lumière. La haute énergie signifie que les longueurs d'onde sont plus petites que les rayonnements en laboratoire. Une production de longueurs d'ondes plus courtes induit des angles de diffraction plus petits.

Avec les neutrons, l'absorption est mesurée par ce qu'on appelle la section efficace d'absorption qui est exprimée en barns ( $1 \text{ barn} = 10^{-24} \text{ cm}^2$ ). Cette section représente la surface de capture et elle varie de façon non linéaire d'un élément à un autre. Avec le rayonnement X l'absorption est

proportionnelle au nombre d'électron autour de l'atome. La figure 2.10 montre le contraste d'absorption entre les neutrons et les rayons X synchrotron pour le même échantillon. Ce contraste d'absorption est dû au fait que la diffraction de neutron est localisée sur le noyau plutôt que sur le nuage électronique dans le cas des rayons X.



**Figure 2.10** : Contraste d'absorption entre la diffraction a/ de neutrons et b/ de rayons X synchrotron

Le tableau 2.1 permet de comparer les profondeurs de rayons X de laboratoire et du rayonnement X synchrotron à haute énergie (150 keV), correspondant à 63% d'absorption du faisceau incident. Ces comparaisons ont été faites pour les deux éléments principaux de notre AMF CuAlBe, c'est-à-dire le cuivre et l'aluminium.

ELEMENT	Neutrons $\lambda = 1,8 \text{ \AA}$ (E = 253 meV)	Synchrotron $\lambda = 0,08 \text{ \AA}$ (E = 150 keV)	Rayons X CuK $\alpha$ $\lambda = 1,54 \text{ \AA}$ (E = 8 keV)
Al	96 mm	39 mm	0,076 mm
Cu	10 mm	5 mm	0,021 mm

**Tableau 2.1** : Profondeur en mm correspondant à 63% d'absorption du faisceau neutronique, de rayons X de laboratoire et du rayonnement synchrotron.

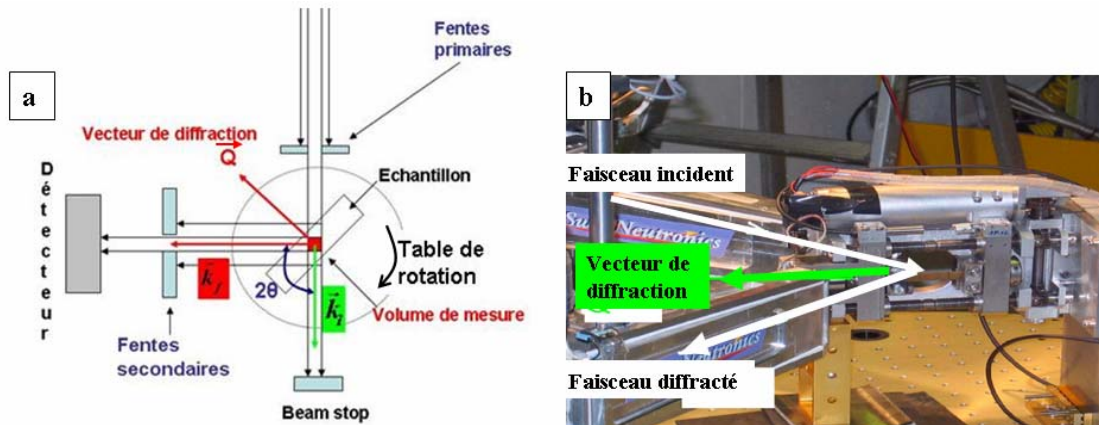
Pour ces deux éléments, la profondeur d'analyse avec les neutrons est environ deux fois plus importantes que celles avec les rayonnements synchrotron, et s'élève à 1000 entre les neutrons et les rayons X de laboratoire.

## II.2/ Volumes d'analyses

### II.2.1/ Pour le rayonnement neutronique

Les études par diffraction de neutrons contenues dans cette thèse ont été effectuées avec des neutrons thermiques. Les neutrons thermiques peuvent être produits par deux types de sources, un réacteur ou une source à spallation. Nous n'avons utilisé que la première sorte de source dans notre travail, la technique utilisée est donc la technique par dispersion d'angle. Un faisceau monochromatique de neutrons de divergence connue est produit d'un faisceau polychromatique en utilisant un monochromateur. La taille du faisceau incident diffracté est obtenue par une fente

primaire. Le faisceau diffracté est sélectionné par une fente secondaire et est intercepté par un détecteur (cf. figure 2.11a).



**Figure 2.11 :** a/ Définition du volume de mesure du diffractomètre SALSA, b/ Fentes incidentes et secondaires définissant le volume d'analyse sur une éprouvette de CuAlBe

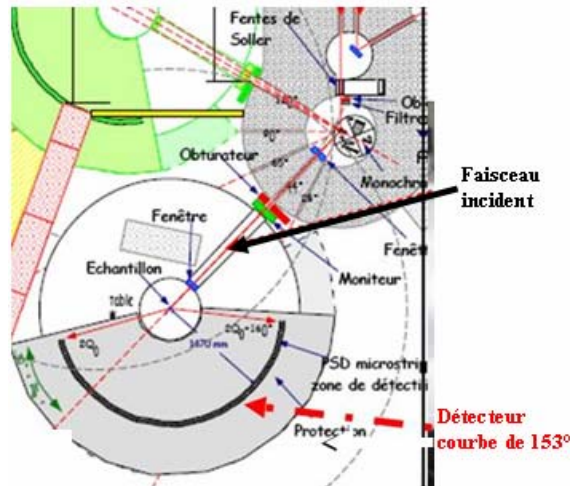
Par exemple, sur le diffractomètre SALSA (Strain Analyser for Large and Small scale engineering Applications) de l'ILL le détecteur est un détecteur sensible à la position (Position Sensitive Detector). Dans le cas de la diffraction, la taille du volume de jauge, c'est à dire le volume de matière analysé est défini par le volume d'interception entre le faisceau incident et diffracté.

Le vecteur de diffraction  $\vec{Q}$  est la bissectrice des faisceaux incidents  $\vec{k}_i$  et diffractés  $\vec{k}_f$  (cf. figure 2.11b). On essaye de mettre l'angle de diffraction  $2\theta$  est en général le plus proche de  $90^\circ$  pour avoir un volume de jauge de forme cubique. De plus, avec l'équation 2.4 à  $2\theta = 90^\circ$ , on obtient une relation simple

$$\varepsilon_{hkl} = \Delta\theta_{hkl} \quad (2.11)$$

Ce volume d'analyse de forme cubique permet de cartographier en 3 dimensions tout le volume de l'échantillon. De plus, la diffraction de neutrons permet une importante pénétration dans la plupart des matériaux. C'est pourquoi, pour une analyse de contraintes dans des pièces industrielles de grandes dimensions, elle reste la seule technique non destructive et tridimensionnelle [T. Pirling *et al.*, 2006].

Au cours de ce travail, nous avons aussi mesuré les évolutions de fraction volumique d'austénite grâce au diffractomètre D20 à l'ILL. Il possède un détecteur courbé (cf. figure 2.12) permettant de mesurer en une seule fois un diffractogramme de  $153^\circ$ .



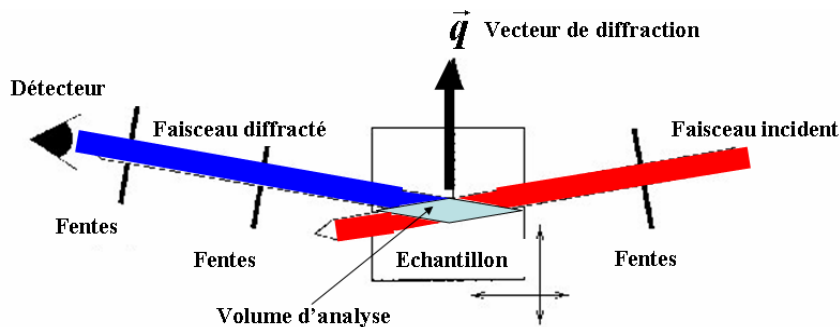
**Figure 2.12** : Schéma d'ensemble du diffractomètre D20 [Yellow book ILL]

Ce diffractomètre à deux axes est situé près du réacteur ce qui permet un flux de neutrons d'environ  $10^7$  neutrons. $s^{-1}$ . $cm^{-2}$  en haute résolution ( $\delta d/d = 10^{-3}$ ).

### II.2.2/ Pour les rayons X du rayonnement synchrotron

Les rayons X du rayonnement synchrotron peuvent pénétrer en profondeur, jusqu'à environ 40 mm (à 150 keV) dans les matériaux légers, tels que l'aluminium. D'autre part, le flux du rayonnement synchrotron sur l'échantillon est d'environ 6 ordres de grandeur supérieur au flux neutronique des sources actuelles. Ceci permet des mesures très rapides.

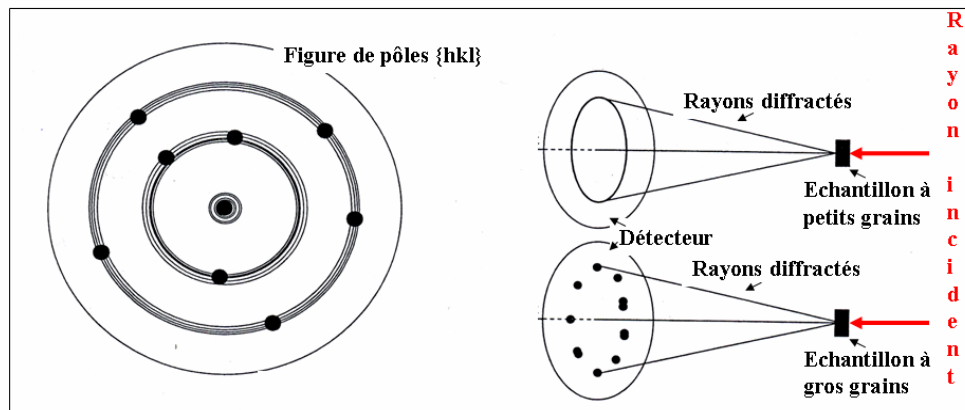
De plus, d'après l'équation de Bragg (2.1), la forte énergie des photons entraîne un petit angle de diffraction. La figure 2.13 montre la géométrie du volume d'analyse avec ces petits angles de diffraction.



**Figure 2.13** : Volume d'analyse en forme de losange du aux faibles angles de diffraction du rayonnement X synchrotron

Le volume d'analyse est en forme de losange, avec une petite dimension dans la direction du vecteur de diffraction (direction de mesure) et une dimension beaucoup plus importante dans la direction perpendiculaire. Cette forme du volume de mesure permet d'avoir une résolution spatiale micrométrique dans la direction de mesure. La résolution micrométrique est avantageuse

dans l'étude des caractérisations d'interfaces [H. Reichert *et al.*, 2003], mais pose des problèmes quand le matériau analysé a de gros grains. La figure 2.14 représente un schéma de principe dans le cas d'anneaux de Debye-Scherrer continus (grains fins par rapport à la taille du faisceau) et discontinus (gros grain ou mesure sur monocristaux).



**Figure 2.14** : Schéma de principe entre des cercles de Debye-Scherrer entier dans le cas des grains fins et des taches ponctuelles (on se rapproche du cas monocristallin) dans le cas des gros grains,

La technique de diffraction des rayons X du rayonnement synchrotron offre donc de très hautes résolutions spatiales associées à une pénétration de plusieurs millimètres et des temps de comptage de l'ordre de la seconde (par pic de diffraction). Cependant, pour le moment elle reste une analyse 2D en déformation. En effet, il est très difficile de pouvoir mesurer dans la troisième direction qui est pourtant nécessaire pour le calcul des contraintes (la dispersion d'énergie permet de faire des cartographies en 3D, mais pas en même temps [A. Steuwer *et al.*, 2004]).

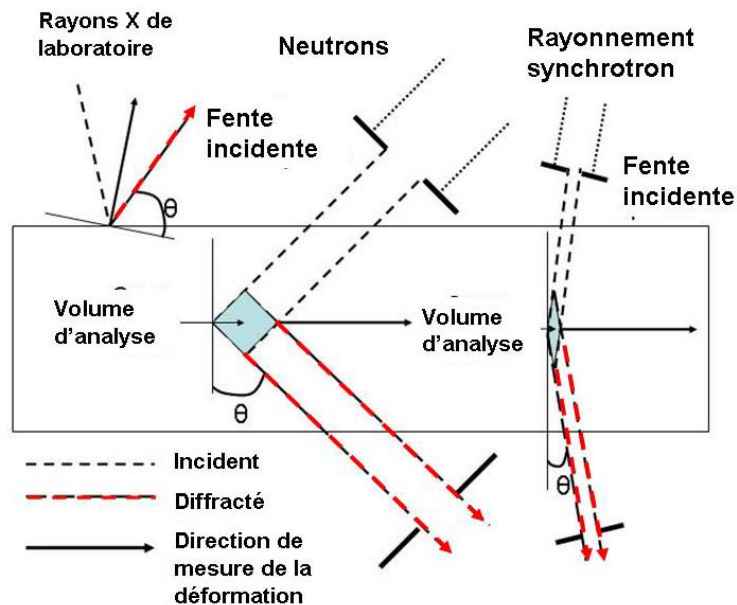
Les qualités optiques du rayonnement synchrotron, en particulier la faible divergence du faisceau dans le plan vertical et l'excellente définition de la longueur d'onde, rendent la résolution instrumentale élevée. Ainsi on peut étudier les paramètres microstructuraux et les micro-contraintes par analyse de l'élargissement des pics de diffraction.

### II.3/ Résumé

Les rayons X de laboratoire sont limités à des mesures en surface. Obtenir des profils de déformation en profondeur nécessite d'enlever successivement des couches de matériau par attaque chimique. Cette technique n'est pas non plus capable de mesurer les composantes des déformations perpendiculaires (déformations radiales) à la surface de l'échantillon dû à un manque de pénétration.

La diffraction de neutrons et les rayons X synchrotron à haute énergie (normalement > 60 keV) ont une pénétration dans les matériaux permettant de mesurer la composante perpendiculaire à la

surface. La figure 2.15 montre les différences de pénétration et de forme du volume d'analyse entre les trois radiations.



**Figure 2.15** : Comparaison du volume d'analyse pour un rayonnement X de laboratoire, synchrotron et neutronique [A.D. Evans, 2005]

Le volume d'analyse avec les neutrons tend à être proche du cube (cuboïde en trois dimensions). Les volumes du rayonnement synchrotron sont plutôt en forme de diamant (losange en trois dimensions) due aux faibles angles de diffraction inhérents à leur forte énergie. Dans le tableau 2 sont résumées et comparées les principales caractéristiques des rayonnements neutronique et synchrotron.

	<b>Neutrons</b>	<b>Synchrotron (Haute énergie)</b>
<b>Pénétration</b> Alliage Cu <sub>3</sub> Al	Environ 20 mm	10 mm
<b>Résolution spatiale</b>	Millimétrique (1 mm <sup>3</sup> )	Micrométrique dans direction de mesure Millimétrique dans l'autre
<b>Cartographie des déformations</b>	3D	2D (ou 3D)
<b>Tenseur complet des contraintes</b>	Oui	Non ou très difficilement
<b>Problèmes de tailles de grains</b>	Non en général	Oui
<b>Temps de comptage</b>	1/2h – 1h	Quelques secondes - minutes

**Tableau 2.2** : Principales caractéristiques des rayonnements neutronique et synchrotron pour l'analyse des contraintes. [P. Withers, 2004].

Les caractéristiques du rayonnement synchrotron vont nous permettre d'utiliser des techniques monocristallines en volume.

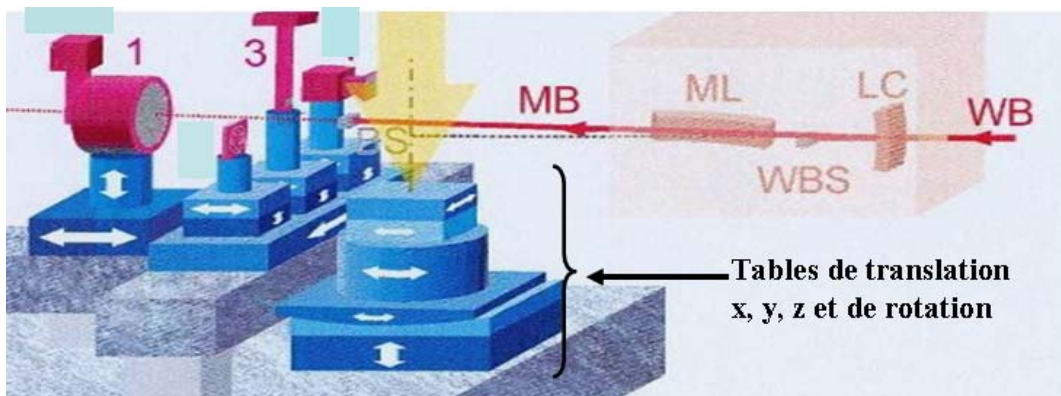
### III/ Les techniques expérimentales monocristallines

Nous allons maintenant présenter les techniques expérimentales monocristallines permettant de mesurer, aux échelles du grain et intragranulaire, les caractéristiques propres à la transformation martensitique.

#### III.1/ Le microscope 3DXRD

##### III.1.1/ Montage

Le concept du microscope en 3 dimensions, par diffraction de rayons X du rayonnement synchrotron (3DXRD), est basé sur la mesure des orientations cristallographiques locales permettant de créer des cartographies de la microstructure. Le microscope 3DXRD a été développé en coopération entre le laboratoire de Risø (Danemark) et l'ESRF sur la ligne ID11. La figure 2.16 représente un schéma de ces principaux composants [S. Schmidt *et al.*, 2005]. Le faisceau polychromatique incident est monochromatisé par le cristal de Laue courbé (LC sur la figure 2.16) avec une énergie variant de 45 à 100 keV. La focalisation verticale du faisceau est obtenue par les cristaux de Laue courbés [U. Lienert *et al.*, 1998]. Tandis que la focalisation horizontale est obtenue par le miroir multicouche courbé (ML). Le faisceau monochromatique incident est limité par des fentes et traverse toute l'épaisseur de l'échantillon.

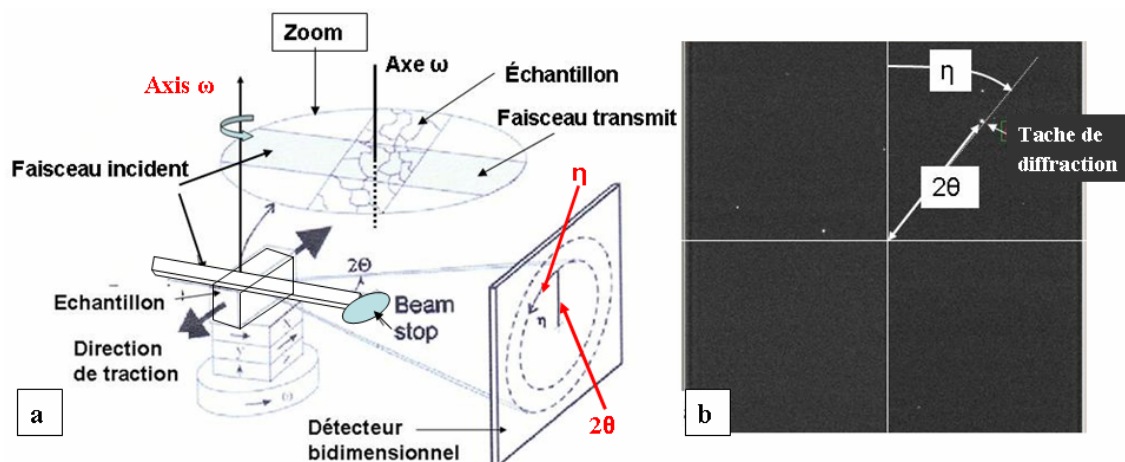


**Figure 2.16** : Schéma des principaux composants du microscope 3DXRD. WB est le faisceau blanc ; LC, le cristal de Laue courbé ; ML, le miroir multicouche courbé ; WBS, le beamstop du faisceau blanc ; MB, le faisceau 2D monochromatique micro-focalisé ; BS, le beamstop du faisceau monochromatique. 1: détecteur 3: détecteur à haute résolution [S. Schmidt *et al.*, 2005].

Celui-ci est placé dans une machine de traction sur les tables de translation x, y, z et de rotation oméga. Différents détecteurs (détecteur bidimensionnel, détecteur à haute résolution) peuvent ensuite être placés après l'échantillon pour intercepter les rayons diffractés.

### III.1.2/ Principe de la technique 3DXRD

La technique 3DXRD est une technique qui combine la forte pénétration, la forte intensité et la haute résolution spatiale fournie par le rayonnement synchrotron des sources de troisième génération. Les concepts de base de cette technique sont détaillés dans [H.F. Poulsen, 2004] et [E.M. Lauridsen and *al.*, 2001]. La figure 2.17a illustre l'installation de l'expérience 3DXRD sur la ligne ID11. La figure 2.17b montre l'image et les coordonnées oméga ( $\omega$ ), éta ( $\eta$ ) et 2théta ( $2\theta$ ) d'une tache de diffraction de grains irradiés. Ce cliché de diffraction a été observé sur le détecteur bidimensionnel.



**Figure 2.17 :** a/ Schéma du faisceau incident traversant entièrement l'éprouvette sur une table de translation ( $x, y, z$ ) et de rotation  $\omega$  et faisceau diffracté sur le détecteur bidimensionnel, [H.F. Poulsen et *al.*, 2001] b/ Les 3 coordonnées (oméga  $\omega$ , éta  $\eta$  et 2théta  $2\theta$ ) de chaque tache pour un point de chargement

Les grains illuminés qui respectent la condition de Bragg diffractent sous forme de taches sur le détecteur. Pour obtenir le maximum de taches de diffraction sur le détecteur, on applique « la méthode de rotation » [H.F. Poulsen et *al.*, 2001], c'est-à-dire que l'on fait tourner l'éprouvette autour de l'axe  $\omega$  de  $-38^\circ$  à  $38,25^\circ$  par pas équidistants de  $0,25^\circ$ . Il y a donc 305 images du détecteur enregistrées par point d'analyse. A chaque angle oméga une image sur le détecteur est enregistrée. Les images sont corrigées en distorsion, en intensité et un seuil d'intensité est défini. Ce seuil d'intensité est de 1000 coups pour cette expérience c'est-à-dire que le logiciel identifie une tache sur l'image de diffraction que si celle-ci a une intensité supérieure à 1000 coups.

Toutes les taches qui ne coïncident pas (selon l'incertitude de mesure entrée) avec la structure cristallographique de l'austénite sont rejetées.



### III.1.3/ Détermination de l'orientation des grains

L'orientation des grains est déterminée grâce à la position des taches de diffraction sur les images de détecteur connaissant la valeur de rotation de l'échantillon ( $\omega$ ). L'équation de base décrivant la diffraction dans le système de l'éprouvette est :

$$q^i = \Omega.W.U^i.B.Q_{hkl} \quad (2.12)$$

Le développement pour atteindre cette équation est détaillé à l'annexe 3 du chapitre 2.

- $q^i$  est le vecteur de diffraction mesuré par l'expérience pour un grain  $i$  dans le référentiel de l'éprouvette
- $Q_{hkl}$  est le vecteur de diffraction dans l'espace réciproque obtenu par le calcul.
- $\Omega$  est la matrice de changement de base du référentiel du laboratoire lors de la rotation  $\omega$  autour de l'axe  $\Omega$ .
- $W$  est la matrice de changement de base du référentiel de l'éprouvette de l'angle  $w$  (angle entre le faisceau incident et l'axe de rotation  $\Omega$  - nommé Wedge).
- $U^i$  est la matrice d'orientation cristallographique inconnu d'un grain  $i$  diffractant par rapport à la représentation des angles d'Eulers.
- $B$  est la matrice qui transforme le système cristallographique de l'espace réciproque vers l'espace réel.

La liste des vecteurs de diffraction  $q^i$  est obtenue grâce au logiciel ImageD11 [2] écrit par J. Wright (pour plus de détails sur la procédure voir l'annexe 3 du chapitre 2). Pour obtenir une tache de diffraction en 3 dimensions (3D), ce logiciel compile les images de diffraction consécutives (par pas en  $\omega$  de  $0,25^\circ$ ) ayant des taches en 2 dimensions.

Le vecteur de diffraction  $q^i$ , dans le repère de l'éprouvette est le vecteur entre le centre de l'éprouvette (le point d'intersection entre l'axe  $\omega$  et le faisceau incident) et le centre de gravité de la tache de diffraction en 3D. Les centres de gravité de ces taches en 3D sont définis par leurs coordonnées dans le référentiel de l'éprouvette; le nombre de taches de diffraction minimal pour l'indexation d'un grain est 10. Les matrices d'orientations  $U^i$  sont obtenues grâce au logiciel GrainSpotter [3], [S. Schmidt, 2007] qui est un programme d'indexation résolvant les orientations cristallographiques de grains dans les matériaux polycristallins. Les données d'entrées sont:

- la liste des vecteurs de diffraction  $q^i$  obtenue par ImageD11,
- le groupe d'espace et les paramètres de maille de l'austénite,
- l'intervalle et le pas de mesure en  $\omega$ ,
- les incertitudes autour de  $\eta$ ,  $2\theta$  et  $\omega$

La donnée de sortie est la liste des taches satisfaisant l'équation 2.12. Ces taches sont regroupées par grain représenté par une unique matrice d'orientation ( $U^i$ ). Pour obtenir la matrice d'orientation  $U^i$ , nous avons deux options.

- *Option 1* : On affine ensemble  $U^i$  et B avec le produit inverse de la matrice d'orientation et de la matrice des paramètres de maille  $(UB)^{-1}$ .

- *Option 2* : On affine seulement  $U^i$  en considérant la matrice B constante.

Dans cette liste, représentant une matrice  $U^i$ , sont inscrits les mesures de  $2\theta$  obtenues par l'expérience, les valeurs de  $2\theta$  obtenus par la théorie et le delta  $2\theta$ , c'est-à-dire la différence entre ces deux valeurs. Il en est de même pour  $\omega$  et  $\eta$ . Les erreurs de mesure sur les vecteurs de diffraction sont propagées par l'affinement des moindres carrés entre les orientations calculées et mesurées.

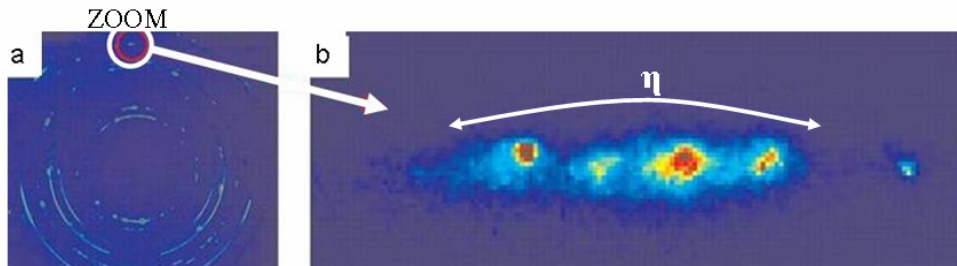
#### **III.1.4/ Calcul d'erreur du tenseur de déformation**

Dans des travaux précédents, avec des conditions expérimentales similaires, L. Marguiles et al. [L. Marguiles *et al.*, 2002] ont mesuré le tenseur des déformations dans une éprouvette de cuivre durant un essai de traction. Une erreur expérimentale sur la déformation d'environ  $10^{-4}$  a été obtenue. En première approximation, un niveau similaire d'erreur expérimentale est attendu dans notre expérience. Nous avons d'ailleurs évalué toutes les erreurs de mesures inhérentes à notre expérience dans l'annexe 4 du chapitre 2. Ces erreurs expérimentales ajoutées à l'incertitude sur la mesure de  $d_0$  dû à la méthode d'obtention de la poudre de CuAlBe ne nous permettent pas de déterminer les contraintes absolues avec précision. Nous nous sommes donc focalisés lors de cette expérience, sur l'étude de l'évolution d'orientations à l'intérieur de quelques grains. Ces évolutions d'orientation des grains sont suivies par le déplacement des taches de diffraction selon  $\omega$  mais que peut-on analyser lorsque les taches de diffraction s'élargissent dans les directions  $\eta$  et  $2\theta$  ?

#### **III.1.5/ Elargissement des taches de diffraction dans les directions $\eta$ et $2\theta$**

Les étalements de taches de diffraction d'austénite dans le sens de rotation  $\omega$  sont relativement faciles à observer et à mesurer. Par contre les phénomènes d'élargissement des taches de diffraction sur le détecteur dans les directions  $\eta$  et  $2\theta$  sont observables mais très difficiles à mesurer sans un montage à haute résolution. Ces phénomènes d'élargissement et de fragmentation en plusieurs maxima ont été observés par B. Jakobsen [B. Jakobsen *et al.*, 2006] avec l'instrument 3DXRD sur un échantillon de cuivre déformé plastiquement à 3%. Pour étudier

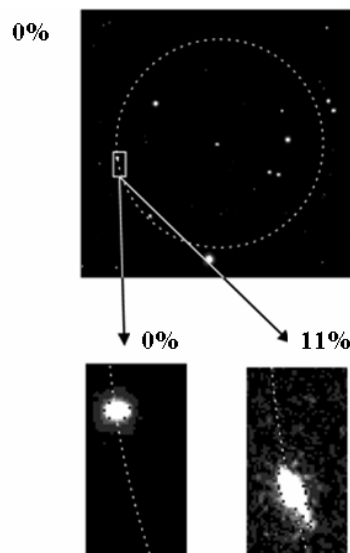
quantitativement ces effets, ils ont utilisé un détecteur à haute résolution. Ils l'ont placé sur le chemin du faisceau diffracté à l'origine de la tache entourée sur la figure 2.18a.



**Figure 2.18** : a/ Diffractogramme complet obtenu à 3% de déformation avec un détecteur bidimensionnel, b/ Cliché (avec un détecteur à haute résolution) de la tache entourée dans 4.11a [B. Jakobsen et al., 2006]

On peut remarquer sur leurs clichés de diffraction un étalement des taches de diffraction. Dans leur cas, les taches s'élargissent et se fragmentent uniquement dans la direction de  $\eta$ . B. Jakobsen *et al.* ont mesuré que les évolutions des intensités intégrées et des largeurs à mi hauteur (FWHM)  $\Delta\eta$  correspondent à des tailles et des concentrations de dislocations dans des sous-domaines mesurés précédemment par microscopie électronique à transmission. De plus, ils ont effectué des tests lors de cette expérience pour vérifier que ces fragmentations ne proviennent pas d'aberrations des rayons X du rayonnement synchrotron. De tels tests sont décrits par A. Snigirev *et al.* [A. Snigirev *et al.*, 2007].

Un autre exemple tiré de [L. Margulies *et al.*, 2001] montre sur la figure 2.19 l'effet de la déformation sur la position en  $\omega$  et  $\eta$  d'une tache de diffraction de (220).



**Figure 2.19** : Exemple d'une tache pour  $\omega = 1^\circ$  et une déformation macroscopique de 0% (en haut). Le cercle en pointillé représente l'anneau de Debye-Scherrer de (220) et la boîte identifie une tache relative à un grain. Les zones zoomées (en bas) montre le mouvement de cette tache sur l'anneau en comparant avec l'image correspondante à  $\omega = -5^\circ$  et une déformation macroscopique de 11%.

Initialement une tache de diffraction apparaît sur une image à un  $\omega$  donné ( $\omega = 1^\circ$ ). En augmentant la déformation à 11%, la tache apparaît à un  $\omega$  différent ( $\omega = -5^\circ$ ) et bouge le long de la direction azimutal  $\eta$ . Les taches s'élargissent dans les deux directions ( $\omega$  et  $\eta$ ), ce qui entraîne d'éventuelles superpositions de taches.

Contrairement à l'utilisation de clichés consécutifs (par pas de  $\omega = 0,25^\circ$ ), comme expliqué dans la partie présentant le principe de 3DXRD, il nous est difficile d'obtenir une information précise sur l'étalement  $\Delta\eta$  et  $\Delta\theta$  des tache sur le détecteur. Cette difficulté vient du fait que nous n'avons pas de détecteur à haute résolution, par contre nous avons utilisé le logiciel Fabian [1] pour obtenir un agrandissement de ces taches.

La prochaine technique expérimentale présentée permet de mesurer des évolutions d'orientations à l'échelle des variantes de martensitique, elle se nomme méthode « micro-Laue ».

### **III.2/ Technique « Micro-Laue » ou Microdiffraction polychromatique**

#### **III.2.1/ Introduction**

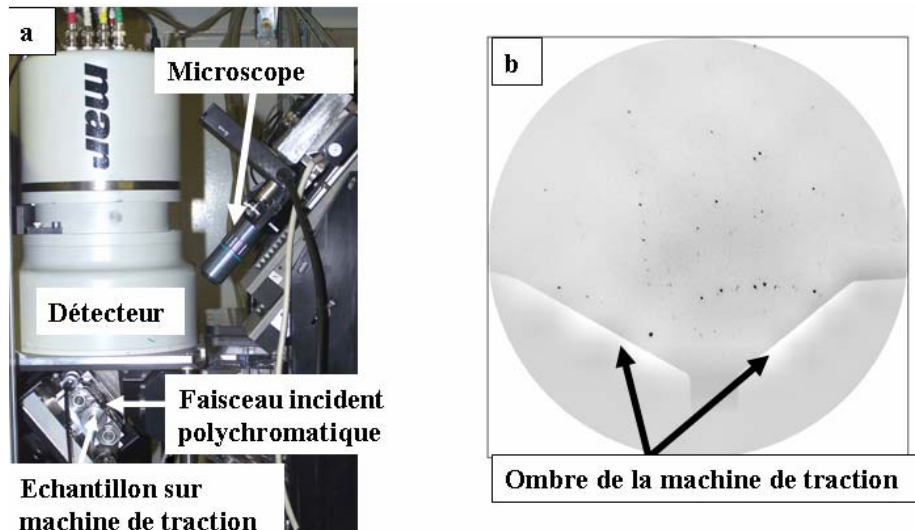
Un des avantages des rayons X produits dans les synchrotrons est qu'ils sont au moins 10000 fois plus intenses que les rayons X de laboratoire (anode tournante). Ainsi, les faisceaux sont si intenses que même un signal d'un volume d'un micron cube ou moins peut être distingué du bruit de fond [H.F. Poulsen, 2004]. Pour observer de l'austénite entre deux variantes de martensite, la taille de faisceau doit être de l'ordre du micromètre. Durant un cycle superélastique, nous avons mesuré l'évolution des orientations de l'austénite entre les variantes de martensite. Cette mesure a été faite avec la technique de microdiffraction en faisceau polychromatique sur la ligne BM32 à l'E.S.R.F. Le faisceau polychromatique permet, avec une seule mesure, d'avoir accès aux déformations angulaires de la maille cristallographique sans être obligé de tourner l'éprouvette.

#### **III.2.2/ Acquisition des clichés [A.A. MacDowell *et al.*, 2001]**

La figure 2.20a montre l'installation expérimentale sur la ligne de lumière BM32 à l'ESRF. Le microscope permet de nous positionner avec précision sur la zone d'analyse souhaitée. Ensuite, on enlève le microscope puis on descend le détecteur.

Un microfaisceau polychromatique (5 à 25 keV) d'environ  $2\mu\text{m}$  de diamètre irradie un grain de l'éprouvette de traction au niveau de la zone d'analyse choisie avec le microscope.

L'échantillon est incliné d'environ  $40^\circ$  par rapport au faisceau incident. Cet angle est un bon compromis entre la plus grande ouverture possible en  $2\theta$  et la plus petite taille verticale du faisceau en projection sur la surface de l'échantillon. La géométrie en réflexion permet d'éviter de traverser tout l'échantillon, et de sonder la zone proche de la surface dans les échantillons épais ou les films minces.



**Figure 2.20** : a/ Installation de la machine de traction sur le système de microdiffraction à BM32  
b/ Taches de diffraction de l'austénite et ombre de la machine de traction sur le détecteur

Les différentes familles de plans réticulaires du cristal vont réfléchir les longueurs d'onde du faisceau incident pour lesquelles la relation de Bragg est vérifiée. La figure 2.20b montre une image du détecteur (diagramme de Laue) interceptant un certain nombre de faisceaux diffractés de l'austénite ainsi que l'ombre que crée la machine de traction. Chaque tache du diagramme de Laue correspond à un plan réticulaire dont la direction de la normale à ce plan se déduit de la direction du faisceau diffracté. La normale aux plans réticulaires réflecteurs est la bissectrice de l'angle formé par les rayons incidents et diffractés.

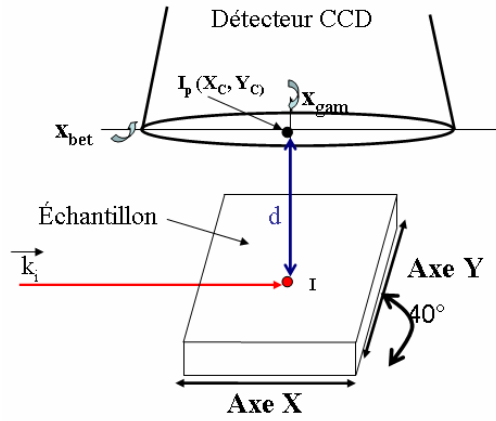
### III.2.3/ Analyse de la technique

L'analyse des diagrammes de Laue est faite grâce au logiciel XMAS [4] mis au point par N. Tamura. Ce logiciel permet de déterminer l'orientation du grain et son état de contrainte. Ce logiciel est basé sur un algorithme décrit par Chung et al. [J.S. Chung *et al.*, 1999]. Dans la suite de ce chapitre, nous développons uniquement la calibration et l'indexation des pics car l'affinement des déformations et la détermination des contraintes mesurables avec cette technique ne sont pas utilisées.

### III.2.3.1/ Calibration

Tout d'abord, il faut définir la géométrie exacte de l'installation expérimentale déterminée par 5 paramètres indépendants (cf. figure 2.21). Pour cela, on applique la méthode d'affinement des moindres carrés non linéaire à l'image de Laue de l'échantillon de calibration. Ainsi on détermine les 5 paramètres géométriques indépendants qui sont :

- les 2 coordonnées  $(X_c, Y_c)$ .  $X_c, Y_c$  sont les coordonnées dans les axes de la caméra de la projection  $I_p$  du point  $I$  sur l'écran de la caméra, projection réalisée perpendiculairement à l'écran.  $I$  étant le point d'impact du microfaisceau sur la surface de l'échantillon
- la distance  $d$  entre le centre de la tache et le point d'impact sur l'échantillon,
- les 2 tilts angulaires du détecteur par rapport au faisceau incident,  $X_{bet}$  et  $X_{gam}$ .



**Figure 2.21** : Paramètres de calibration spatiale pour le détecteur (caméra CCD) par rapport à l'échantillon.

La calibration de la géométrie de l'installation expérimentale nous permet de calculer le vecteur de diffraction attaché à chaque réflexion de Laue. La direction du faisceau incident se note  $\vec{k}_i$  et la position des taches sur le détecteur permet de connaître  $\vec{k}_f$ . Dans l'hypothèse d'une diffraction élastique  $|\vec{k}_i| = |\vec{k}_f|$ , la direction du vecteur de diffraction est :

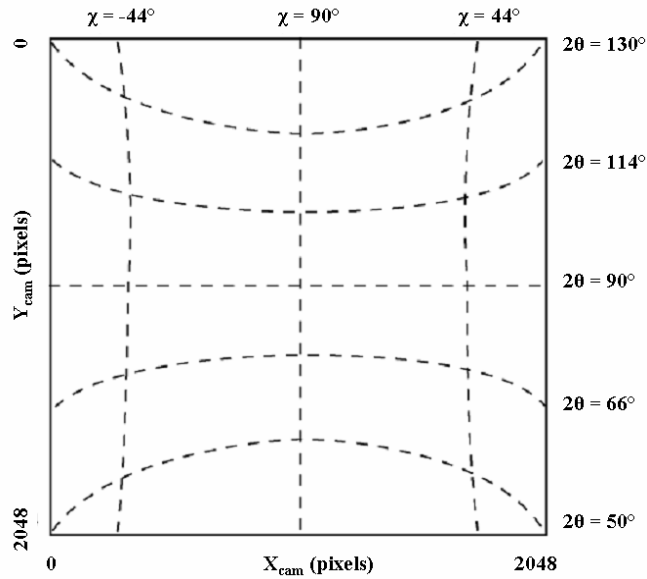
$$\vec{q}_{exp} = \vec{k}_f - \vec{k}_i \quad (2.13)$$

L'affinement géométrique est obtenu en minimisant la fonction :

$$\alpha_0 = \frac{\sum (\alpha_i^{theo} - \alpha_i^{exp})^2}{\sum w_i} \quad (2.14)$$

et en supposant que l'échantillon calibré est non contraint.  $\alpha_i^{theo}$  et  $\alpha_i^{exp}$  sont les valeurs théoriques et expérimentales de la différence d'angle entre une paire de vecteurs de diffraction  $\vec{q}_{exp}$  et  $w_i$  est un facteur pondéral.

Cette calibration nous permet pour chaque point de coordonnée  $(X_{\text{cam}}, Y_{\text{cam}})$  de la caméra (tache de diffraction) de lui affecter les valeurs  $2\theta$  et  $\chi$  et ainsi définir les coordonnées (cf. figure 2.22).



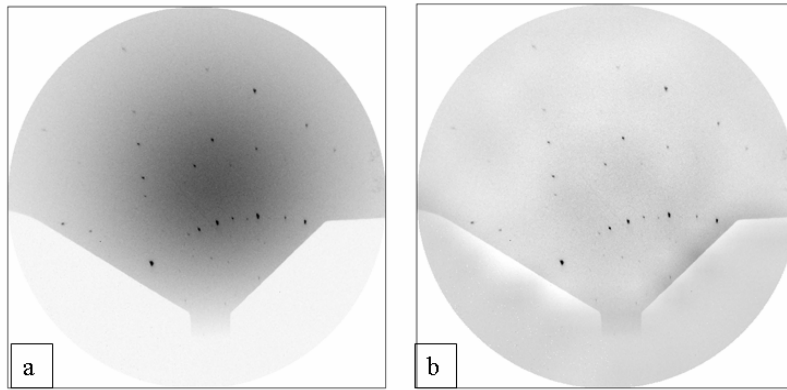
**Figure 2.22 :** Lignes  $2\theta$  et  $\chi$  constantes avec les orientations des pixels de la caméra CCD

$2\theta$  est égal à 2 fois l'angle de Bragg, ( $\cos 2\theta = \vec{u}_f \cdot \vec{u}_i$ ) et  $\chi$  est l'angle entre  $\vec{u}_f$  et sa projection sur le plan  $(x_G, y_G)$ .

Avec  $R_G = (x_G, y_G, z_G)$  repère orthonormé direct construit à partir des vecteurs  $\vec{u}_i$  et  $-\vec{n}$ .  $\vec{n}$  étant la normale au détecteur,  $\vec{u}_i$  le vecteur unitaire suivant  $\vec{k}_i$  ( $\vec{u}_i = \vec{k}_i / \|\vec{k}_i\|$ ) et  $\vec{u}_f$  le vecteur unitaire suivant  $\vec{k}_f$ . ( $x_G = \vec{u}_i$ ,  $y_G$  dans le plan  $(\vec{u}_i, -\vec{n})$ ,  $z_G$  suivant  $(\vec{u}_i \wedge (-\vec{n}))$ ).

### III.2.3.2/ Indexation des pics

Les distorsions spatiales du détecteur sont corrigées par l'ordinateur de la caméra MAR puis XMAS soustrait le bruit de fond (le fond qui est soustrait de l'image est une fonction type parabole ou gaussienne à 2D) qui ne varie pas si l'on reste sur le même grain. Les figures 2.23a et b montrent un cliché de Laue avec et sans bruit de fond dans le cas de la phase austénitique de notre échantillon CuAlBe. Ensuite, une routine recherche les coordonnées des taches  $(X_{\text{pic}}, Y_{\text{pic}})$  par maximum local en 2 dimensions. Ces pics sont classés par ordre d'intensité décroissante et ajustés grâce à une fonction Lorentzienne. La résolution de cet ajustement est un facteur de précision sur l'évaluation de la déformation.



**Figure 2.23 :** a/ Image sur la caméra CCD avant la soustraction du bruit de fond montrant les réflexions de l'austénite et le bruit de fond de la fluorescence ;  
 b/ Tache de diffraction de l'austénite après soustraction du bruit de fond de la fluorescence.

Une sous liste N des réflexions les plus intenses est utilisé par le code pour indexer le diffractogramme. Les angles entre les vecteurs de diffraction expérimentaux de cette liste de N réflexions sont tabulés dans une liste de  $(N(N-1)/2)$  composants. Ensuite cette liste expérimentale est comparée avec une liste de référence théorique pour la structure cristalline recherchée et une bande spectrale donnée.

Pour notre étude, ces correspondances angulaires sont valides pour une tolérance de  $0,1^\circ$ . Le code de XMAS cherche alors les correspondances angulaires entre des triplets de réflexions. Ces correspondances dépendent de la bande en énergie utilisée, de la dimension et de la géométrie du détecteur. Chaque triplet et ses indices hkl correspondants sont alors utilisés pour calculer une matrice d'orientation. Plusieurs facteurs, comme la symétrie du cristal ou le facteur de structure, sont utilisés pour limiter le nombre de possibilités de correspondance. La meilleure correspondance est le triplet capable d'indexer le plus grand nombre de taches de diffraction.

### III.2.3.3/ Détermination des erreurs

Les origines des erreurs d'orientation sont des défauts de calibration et une mauvaise appréciation de la position des taches de diffraction (pic). On rencontre donc :

- des sources d'erreur systématiques. Pour cette expérience, ce sont d'une part les erreurs résiduelles sur la correction de grille de la caméra CCD et d'autre part l'erreur dans la conversion de  $X_{cam}, Y_{cam}$  en  $2\theta, \chi$  (calibration).
- des sources d'erreur de type incertitude (non systématiques). Par exemple, l'incertitude sur l'estimation de la position d'une tache ( $X_{pix}, Y_{pix}$ ) qui dépend de la forme du pic (simple - ronds ou elliptiques- ou complexe).



La forme des taches d'un diagramme de Laue, relative à un cristal parfait, dépend des conditions géométriques de l'expérience, de la densité, de l'épaisseur du cristal et de la divergence du faisceau incident. Si le cristal est formé de petits blocs légèrement désorientés les uns par rapport aux autres (structures mosaïque), les taches du diagramme de Laue s'élargissent.

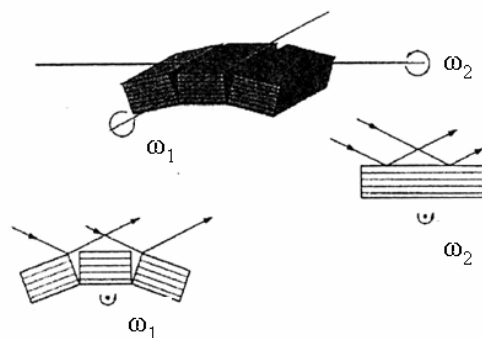
Des analyses sur la précision de mesure de l'orientation par microdiffraction Laue a été fait à l'A.L.S Berkeley sur l'instrument 7.3.3 [B.C. Valek, 2003]. Du fait de la relative jeunesse de l'instrument BM32 dont le fonctionnement est très proche de celui de l'A.L.S, l'influence des différents paramètres expérimentaux sur la précision finale des mesures de déformation n'a pas encore été décrite en détail dans la littérature, et fait l'objet d'études dans d'autres groupes [O. Robach, 2007].

Les effets de déformation et d'orientation du réseau sont imbriqués et ne sont pas facilement séparables. Dans le cas de faibles désorientations (jusqu'à quelques degrés), ceci peut être réalisé en utilisant la technique de Laue refocalisée à haute énergie. Cette dernière méthode, présentée en détaille dans le prochain paragraphe, a été utilisée pour suivre l'évolution de la mosaïcité du réseau de l'austénite.

### III.3/ La méthode de Laue refocalisée à haute énergie

#### III.3.1/ Introduction

Pour des conditions de Bragg données, la mesure d'une désorientation se fait en général au moyen de rotations de l'échantillon par rapport au faisceau incident. En effet, si on représente schématiquement le cristal par des blocs de cristallites de même distance interréticulaire légèrement désorientées les uns par rapport aux autres (cf. figure 2.24), les différentes rotations permettront d'amener successivement chaque bloc en position de diffraction et ainsi d'obtenir l'information désirée.



**Figure 2.24** : Blocs de cristallites dans un grain déformé [R.. Dupke, 1995]

Les désorientations n'ont, à priori, pas de raison d'être isotropes et suivant l'axe de rotation choisi, l'élargissement des pics de diffraction dû à la courbure de l'échantillon sera différent.

### III.3.2/ Principe de la méthode

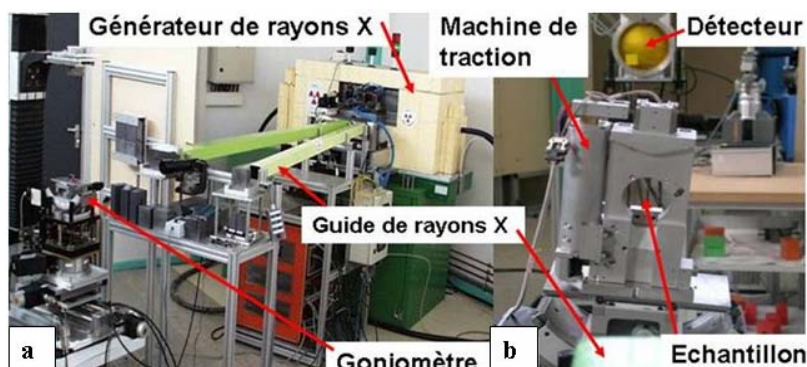
Les effets de déformation (variation des distances interréticulaires) et de rotation (variation de l'orientation) du réseau sont imbriqués lors des expériences de diffraction des rayons X. Leur séparation peut s'obtenir en tirant profit des propriétés de la diffraction. En effet, la dérivation de la formule de Bragg montre que l'influence d'une variation de paramètre de maille sur l'angle de Bragg dépend de la valeur de ce dernier à travers un coefficient  $tg(\theta_B)$ .

$$\Delta\theta = -tg(\theta_B) \times \frac{\Delta d}{d} \quad (2.15)$$

alors qu'une variation d'orientation est indépendante de  $\theta_B$ . Il suffit donc de travailler avec des angles de Bragg très petits (inférieur ou de l'ordre du degré) pour pratiquement s'affranchir des variations de paramètre de maille. Alors qu'une bonne résolution des distances interréticulaires s'obtiendra en travaillant avec de grands angles de Bragg.

Or la méthode de Laue refocalisée à haute énergie travaille avec des angles très faibles. De ce fait, elle est bien adaptée pour la mesure des variations d'orientation. De plus, bien qu'elle mette en œuvre un faisceau divergent, elle permet d'obtenir une très bonne résolution grâce au principe de focalisation.

La figure 2.25 montre le diffractomètre de Laue refocalisée à haute énergie développée à l'Institut Laue Langevin sous la responsabilité de B. Hamelin et P. Bastie [P. Bastie *et al.*, 1996]. C'est une transposition à haute énergie de la méthode de Guinier et Tennevin décrite en 1949 [A. Guinier *et al.*, 1949].

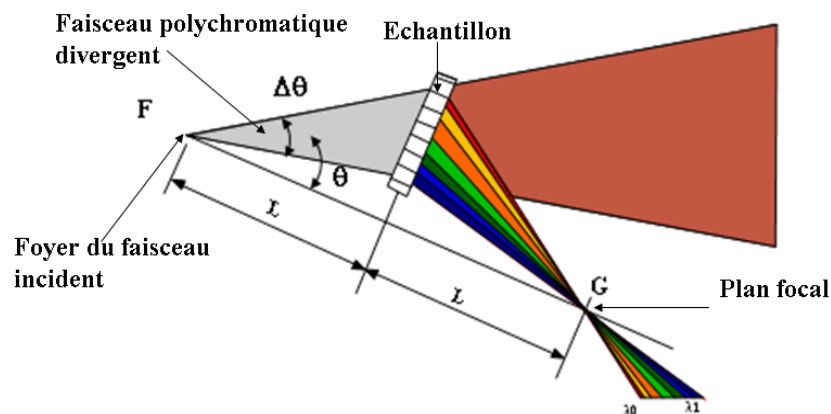


**Figure 2.25 :** Photo de l'installation a/ Vue du générateur, des tubes servant à matérialiser le faisceau de rayons X et du goniomètre accueillant la machine de traction ; b/ Vue de la machine de traction avec le monocristal et du détecteur bidimensionnel (au fond).

Elle utilise un générateur de rayons X haute tension (450 kV) qui délivre par rayonnement de freinage un faisceau blanc, de longueur d'onde comprise entre 0,2 Å et 0,03 Å. Un tel faisceau peut traverser des échantillons de plusieurs centimètres d'épaisseur. L'échantillon est placé sur un goniomètre permettant trois rotations :

- Omega ( $\omega$ ) est la rotation autour de l'axe vertical.
- Phi ( $\varphi$ ) est la rotation autour de l'axe horizontal perpendiculaire à la direction du faisceau des rayons X.
- Psi ( $\psi$ ) est la rotation autour de l'axe du faisceau de rayons X

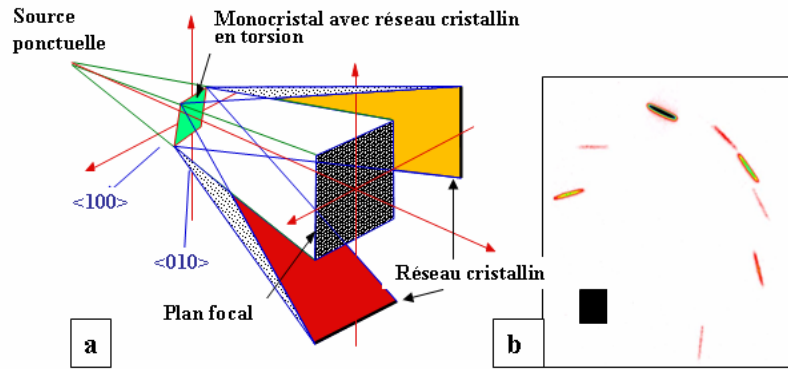
Cette technique utilise une propriété de la diffraction de Laue en transmission dont le principe de refocalisation est rappelé sur la figure 2.26. Grâce à cette refocalisation, la tache de diffraction conserve une petite taille malgré la divergence du faisceau. On garde ainsi une grande précision sur la mesure tout en analysant des volumes importants dans l'échantillon. La convergence du faisceau se produit au point symétrique du foyer par rapport à la normale aux plans diffractants, à la même distance  $L$  que la distance source-échantillon.



**Figure 2.26** : Principe de refocalisation par un cristal parfait,  $F$  est la source ponctuelle de rayons X,  $G$  est le point de focalisation [P. Bastie et al., 1996]

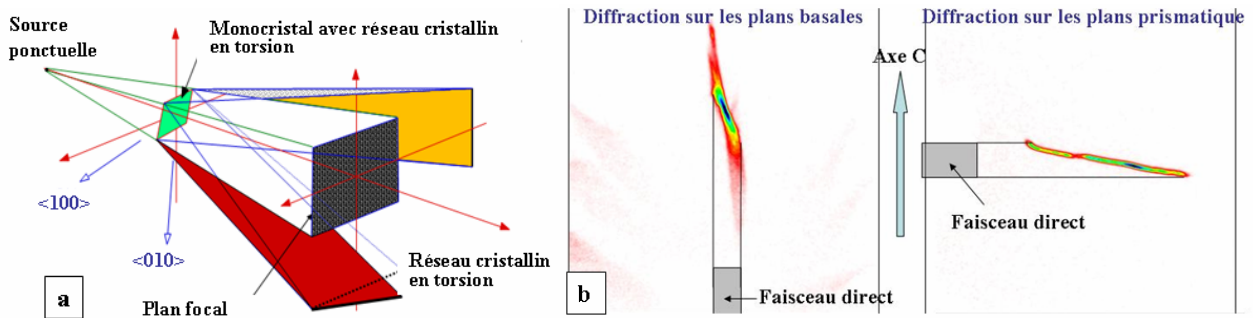
Si le détecteur est placé dans le plan focal et si l'échantillon est un monocristal parfait et mince, la tache de diffraction aura la taille du foyer du générateur [P. Bastie et al., 1996]. Ce résultat est intéressant car la résolution de l'instrument ne dépend pas de la collimation du faisceau incident mais de la distance  $2L$  entre le foyer et le détecteur.

En fait la focalisation ne se produit que dans le plan de diffraction. Dans le plan normal au plan de diffraction le faisceau continuera à diverger. On recueillera donc sur le détecteur non pas des points mais des lignes (cf. figure 2.27b).



**Figure 2.27 :** a/ Représentation schématique 3D de la formation des diagrammes de diffraction, b/ Exemple de diagramme obtenu avec un cristal parfait de Germanium.

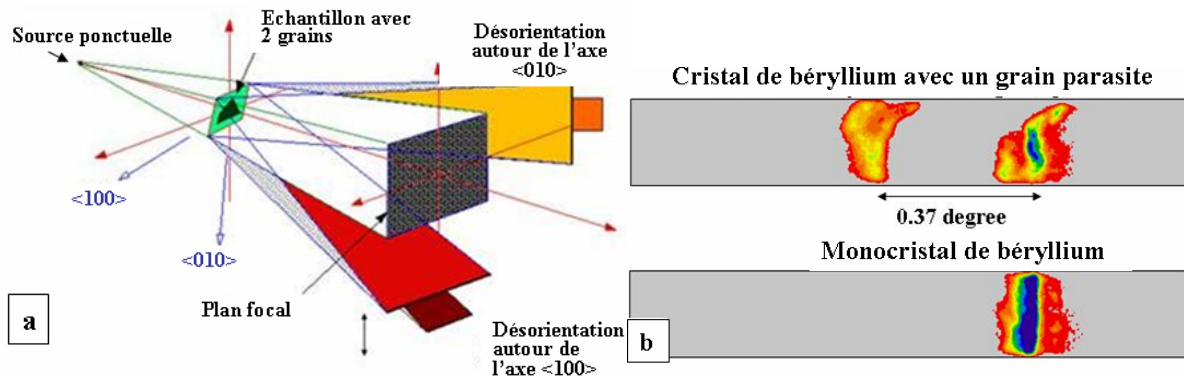
Si l'on considère un monocristal imparfait avec un réseau cristallin en torsion, les signaux sont répartis comme sur la figure 2.28a. La figure 2.28b montre un exemple de la technique sur un cristal de glace d'un glacier d'Antarctique de 1 cm<sup>3</sup>.



**Figure 2.28 :** a/ Diffraction des plans (100) et (010) pour un monocristal avec un réseau en torsion autour de <100> ; b/ Exemple sur un cristal de glace de 1cm<sup>3</sup> présentant des torsions autour des axes a et c.

La torsion se mesure par l'inclinaison de la tache. Dans cet exemple, on observe une torsion importante du cristal autour des axes a et c d'environ 0,05°/mm.

Maintenant, si l'on considère un monocristal imparfait formé de deux grains d'orientations voisines, les signaux seront répartis comme sur la figure 2.29a. Si de plus, les grains sont mosaïques (orientation du réseau cristallin distribuée autour d'une valeur moyenne) on observera un élargissement et une déformation des lignes. La figure 2.29b représente l'exemple de cristaux de béryllium mosaïques.



**Figure 2.29 :** a/ Diffraction des plans (100) et (010) pour un échantillon avec deux grains, b/ Exemples sur des cristaux de béryllium avec deux sous grains (en haut), avec une forte mosaïcité (en bas)

Dans ces exemples (cf. figure 2.29b), on observe, en haut deux sous-grains dans un monocristal de béryllium avec une désorientation de  $0,37^\circ$  et en bas un monocristal de béryllium avec une mosaïcité de  $0,06^\circ$ . La différence d'orientation s'observe par un dédoublement des taches dans le plan de focalisation. Ainsi la désorientation de deux grains peut être quantifiée directement grâce à la distance entre les deux taches. La largeur des taches mesure la mosaïcité qui est la distribution des plans cristallins autour d'une orientation moyenne.

### III.3.3/ Méthode d'analyse

Au cours de l'analyse *in-situ* de la transformation martensitique cette méthode va nous permettre d'observer :

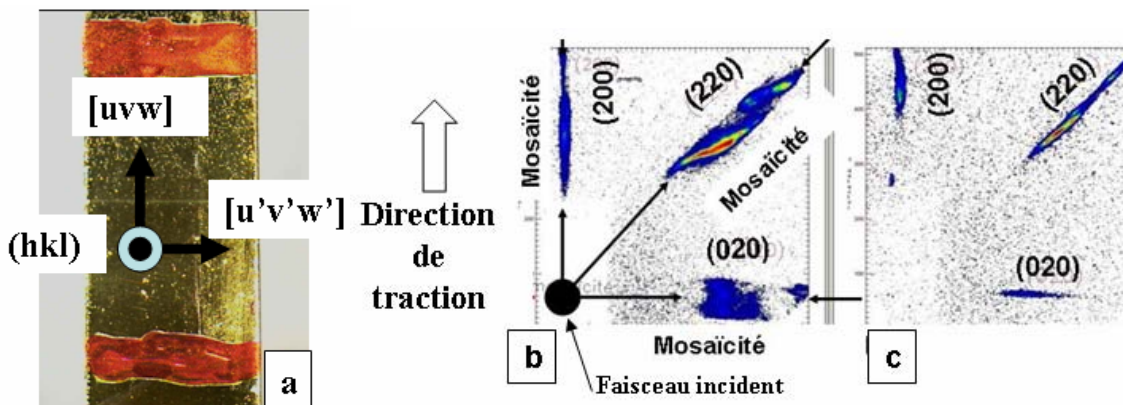
- les taches de l'austénite,
- l'effet de la traction sur ces taches,
- le changement d'orientation (mouvement de la position du centre de la tache),
- la mosaïcité ou courbure de réseau (distribution autour des orientations de ces taches),
- l'apparition des différentes variantes de martensite.

Voici, l'exemple d'une éprouvette de traction en CuAlBe orientée  $(hkl) = (001)$  ;  $[uvw] = [100]$  et  $[u'v'w'] = [010]$  avec une orientation  $[100]$  dans la direction de traction en position verticale (cf. figure 2.30a).

- le plan de laminage où  $(hkl)$  sont les indices du plan du cristal contenu dans le plan de l'éprouvette. Ainsi dans le repère du cristal, ceci revient à déterminer les indices de la normale au plan de la surface du monocristal,
- la direction de laminage (DL) avec  $[uvw]$  correspondant aux indices de la direction du cristal parallèle à la direction de traction,

- la direction transverse (DT) où  $[u'v'w']$  sont les indices de la direction qui forme un repère direct orthonormé avec les deux directions précédentes.

Les figures 2.30b et c représentent les taches de diffraction de cette éprouvette avec deux tailles de fentes différentes. Cette figure 2.30 provient de l'expérience d'une éprouvette test permettant de bien comprendre le principe de la méthode. Durant notre étude au chapitre 5, l'éprouvette utilisée a une orientation différente de celle-ci.



**Figure 2.30** : a/ Orientation du monocristal de CuAlBe . Image des plans (200), (220) et (020) avec des fentes de b/ 10 mm \* largeur du monocristal c/ 1 mm \* largeur du monocristal. Les flèches en noires représentent la largeur radiale des taches et donc la somme des courbures macroscopique et microscopique.

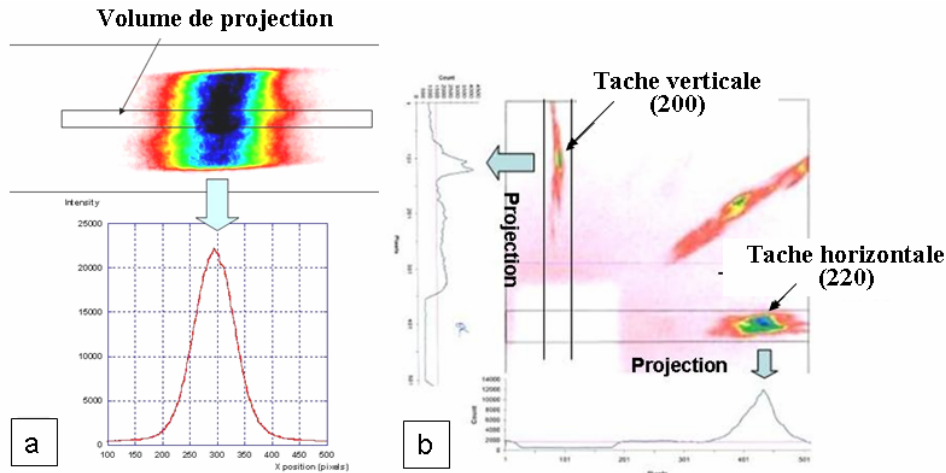
L'orientation du monocristal permet de déduire que la tache horizontale sur le détecteur (cf. figure 2.30b) est due au plan (020) et la tache verticale au plan (200). La tache en diagonale appartient quant à elle à la famille (220).

La largeur radiale des taches, indiquée par les flèches noires sur la figure 2.30b, est la convolution de la courbure macroscopique de l'éprouvette avec la mosaïcité du réseau de l'austénite. En diminuant la hauteur de la fente, on réduit la largeur radiale de la réflexion (200) Ceci montre que cet échantillon possède une courbure macroscopique autour de l'axe  $\langle 020 \rangle$  et permet de séparer les deux contributions

La largeur transverse des taches (perpendiculaire à la direction radiale) est liée aux dimensions de l'échantillon (largeur pour la réflexion (200), hauteur pour la réflexion (020)). Par ailleurs il faut se rappeler que l'on mesure en transmission et que le signal est une moyenne sur l'épaisseur de l'échantillon.

On procède ensuite à la projection du signal de la tache verticale et de la tache horizontale et on analyse les évolutions de ces projections. Voici en figure 2.31a, un exemple de la projection

d'une tache d'un monocristal de cuivre et en figure 2.31b celui de deux taches d'une éprouvette de CuAlBe (cf. figure 2.31b).



**Figure 2.31** : a/ Exemple de projection d'une tache d'un monocristal de cuivre ; b/ Projection des taches de diffraction horizontales et verticales de l'alliage de CuAlBe dans un domaine équivalent.

Dans notre cas, l'appareil utilisé avait:

- une hauteur de fente égale à 5 mm,
- une distance entre échantillon et détecteur,  $L = 3600$  mm.
- la résolution pour 1 pixel du détecteur était égale à  $0,17$  min d'arc =  $0,0028^\circ$ .
- la divergence du faisceau était de  $\Delta\theta = 1,1$  mrad =  $0,06^\circ$
- l'angle de Bragg moyen  $\theta \approx 1^\circ$ .

Nous prendrons comme valeur d'erreur  $\pm 2$  pixels ce qui correspond à  $\pm 0,006^\circ$ . Nous rappelons que la largeur instrumentale, liée à la taille du foyer du générateur, est de 3 pixels et doit être prise en compte lorsqu'on travaille avec des cristaux quasi parfaits

On obtient dans cette configuration une mosaïcité pour le cuivre de 88 pixels =  $0,25^\circ$  et pour le CuAlBe de 33 pixels =  $0,09^\circ$  pour (200) et de 50 pixels =  $0,14^\circ$  pour (220).

Lors de plusieurs cycles superélastiques d'un monocristal de CuAlBe, nous avons suivi, avec cette méthode d'analyse :

- l'évolution de la position du centre des pics horizontal et vertical représentant respectivement la rotation des plans de l'austénite (220) autour de l'axe  $\langle 00h \rangle$  et (200) autour de l'axe  $\langle hh0 \rangle$ .
- l'évolution des largeurs à mi-hauteur de ces pics décrivant la distribution de la rotation autour de la valeur moyenne, correspondant à la mosaïcité ou à la courbure du réseau de l'austénite.

La projection de la tache de diffraction, l'ajustement du pic avec une fonction de type Gaussienne et un bruit de fond linéaire se fait avec le logiciel : the Large Array Manipulation Program (LAMP) [5].

Nous nous sommes servis des techniques d'analyses décrites dans ce chapitre pour étudier les trois échelles de la matière (macroscopique, mésoscopique et microscopique) de l'alliage à mémoire de forme CuAlBe pendant le cycle superélastique (un ou plusieurs cycles mécaniques). Dans cette dernière partie, nous présentons les différentes éprouvettes utilisées lors de ces analyses multiéchelles.

#### **IV/ Les différentes éprouvettes utilisées**

Dans cette étude, l'ensemble des techniques de diffraction décrites dans ce chapitre a été mis en œuvre. Les contraintes expérimentales propres à chaque instrument nous ont conduits à utiliser des éprouvettes dont les dimensions et les formes de la section utile (plate ou cylindrique) sont différentes. Il en est de même pour la microstructure de ces échantillons, plusieurs tailles de grains ont du être employées en fonction de la taille du faisceau utilisé et de l'objectif visé par l'analyse [Y. Gao, 2005]. Des tailles de grain de 70  $\mu\text{m}$  à plus de 1 mm ont été obtenues en utilisant les traitements thermiques décrits au premier chapitre.

Les éprouvettes cylindriques, utilisées pour les analyses macroscopiques, ont été découpées dans des fils de différents diamètres puis usinées sous forme d'éprouvette. Les extrémités de ces éprouvettes ont été filetées de façon à réduire le glissement de l'éprouvette dans les mors.

Les éprouvettes plates ont été découpées dans des tôles sous forme de bandes de dimension 10 mm  $\times$  60 mm. Ces bandes ont été laminées à chaud ( $\sim 800^\circ\text{C}$ ) pour réduire leur épaisseur. Elles ont ensuite été usinées sous forme d'éprouvettes de traction.

Tous ces travaux indispensables à la bonne qualité des résultats ont été réalisés grâce aux compétences de A. Eberhardt, D. Bouscaud et M. Wary au LPMM. Le tableau 2.3 présente une vue d'ensemble des sept échantillons utilisés et des analyses effectuées.

Les échantillons ont été réalisés en utilisant un alliage CuAlBe de composition nominale massique voisine de 87,8 % de cuivre, 11,6 % d'aluminium et 0,6 % de béryllium. La température  $M_s$  théorique de cet alliage est égale à  $-114^\circ\text{C}$ . Les traitements mis en œuvre pour réaliser les échantillons varient fortement d'un échantillon à l'autre, ce qui entraîne des variations importantes de comportement.



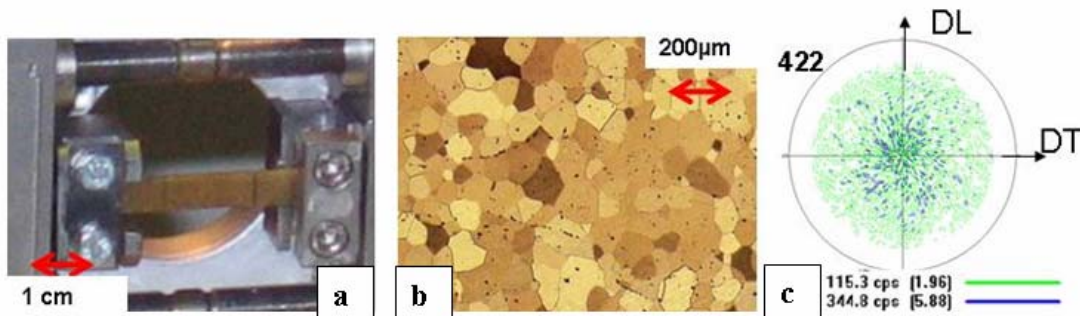
Eprouvette	Géométrie	Microstructure	Techniques utilisées	Echelle d'analyse
EP1	Plate	Petits grains	DRX + neutrons	Macroscopique
EP2	Plate	Gros grains	3DXRD	Monocristalline
EP3	Plate	Gros grains	Micro-Laue	Locale
EP4	Plate	Monocristalline	Laue refocalisée à haute énergie	Utilisé ici comme la mesure d'une échelle locale
EC1	Cylindrique	Petits grains	Neutrons	Macroscopique
EC2	Cylindrique	Petits grains	Neutrons	Macroscopique
EC3	Cylindrique	Petits grains	Neutrons	Macroscopique

**Tableau 2.3** : Géométrie et microstructure des différents échantillons de CuAlBe utilisés dans cette étude. Présentation synthétique des différentes techniques utilisées et des échelles d'analyse.

Celles-ci sont sans conséquence pour la présente étude car nous ne cherchons pas à déterminer avec précision des grandeurs telles que les contraintes par exemple, mais à mettre en évidence les mécanismes liés à la transformation martensitique sous contrainte dans les alliages superélastiques.

#### IV.1/ Eprouvette plate à petits grains

Cette éprouvette plate, notée EP1, a une épaisseur de 0,36 mm avec une partie utile de 50 mm de long et 8mm de large (cf. figure 2.31a) et une taille de grains d'environ 100  $\mu\text{m}$  (cf. figure 2.31b).

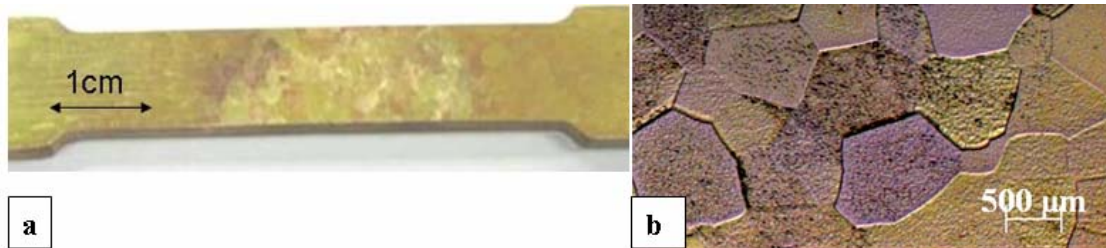


**Figure 2.31** : a/ Eprouvette plate EP1 dans le système de traction durant les analyses de contrainte, b/ Microstructure initiale de cette même éprouvette, c/ Figure de pôles {422} initiale mesurée par RX.

Elle a servi à la comparaison des mesures de contrainte en surface et en volume. La texture cristallographique mesurée sur la famille de plans {422} est peu marquée car le rapport des intensités est au maximum de 3 (cf. figure 2.31c).

#### IV.2/ Eprouvettes plates à grains millimétriques

L'éprouvette plate, notée EP2 présente une microstructure à gros grains (cf. figure 2.32a). Sa longueur utile est égale à 45mm, sa largeur est de 8 mm et son épaisseur 2 mm (cf. figure 2.32b).



**Figure 2.32 :** a/ Vue d'ensemble et b/ Microstructure de l'éprouvette plate EP2

L'éprouvette EP2 a été laminée à chaud à partir d'un cylindre de diamètre 10mm. Elle a servi à des mesures monocristallines sur des grains millimétriques dans le volume par diffraction de rayonnement synchrotron grâce au microscope 3DXRD.

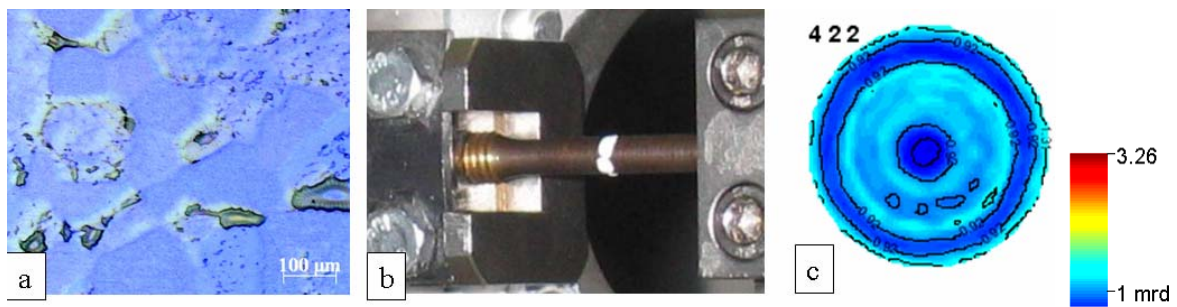
Une seconde éprouvette plate à grains millimétriques, notée EP3, a été utilisée (cf. figure 2.33). Ses dimensions sont différentes de celles d'EP2, sa longueur utile est égale à 19mm, sa largeur est égale à 5,76 mm et son épaisseur égale à 1,16 mm. L'éprouvette EP3 a servi à mesurer l'évolution de rotation des grains par diffraction de rayonnement synchrotron grâce à la technique micro-Laue sur BM32.



**Figure 2.33 :** Photo macroscopique de l'éprouvette plate à grains millimétriques EP3

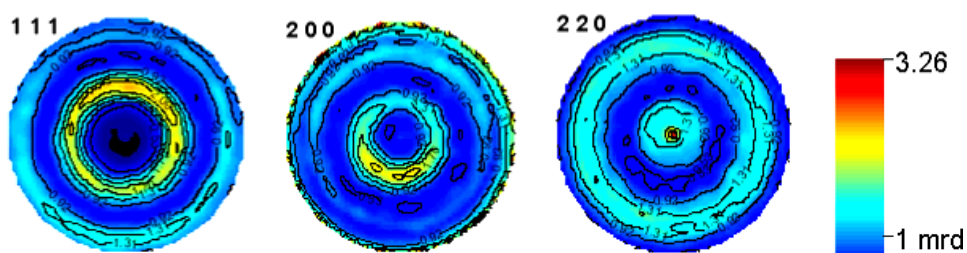
#### IV.3/ Eprouvettes cylindriques à petits grains

Trois éprouvettes cylindriques ont été utilisées. La première, notée EC1, possède un diamètre de 4,5 mm, une longueur utile de 38,2 mm (cf. figure 2.34a) et une taille de grains de 100-150 μm (cf. figure 2.34b). Sa température de transformation  $M_s$  a été mesurée par DSC et est égale à -40°C Elle a servi à déterminer les contraintes dans l'austénite en comparant les méthodes des  $\sin^2\psi$  et des contraintes principales sur SALSA. Les opérations de filage ont induit une légère texture. La texture cristallographique mesurée sur la famille de plans  $\{422\}$  est peu marquée (cf. figure 2.34c).



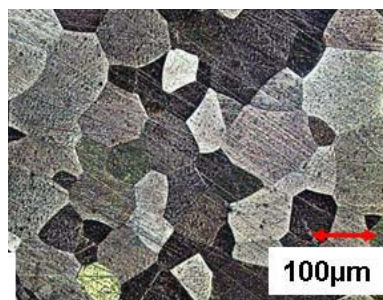
**Figure 2.34 :** a/ Microstructure de l'éprouvette cylindrique à petits grains EC1, b/ Cette même éprouvette dans le système de traction, c/ Figure de pôles  $\{442\}$  mesurée par neutrons

Cette éprouvette présente une légère texture de fibre  $\langle 220 \rangle$  (cf. figure 2.35).



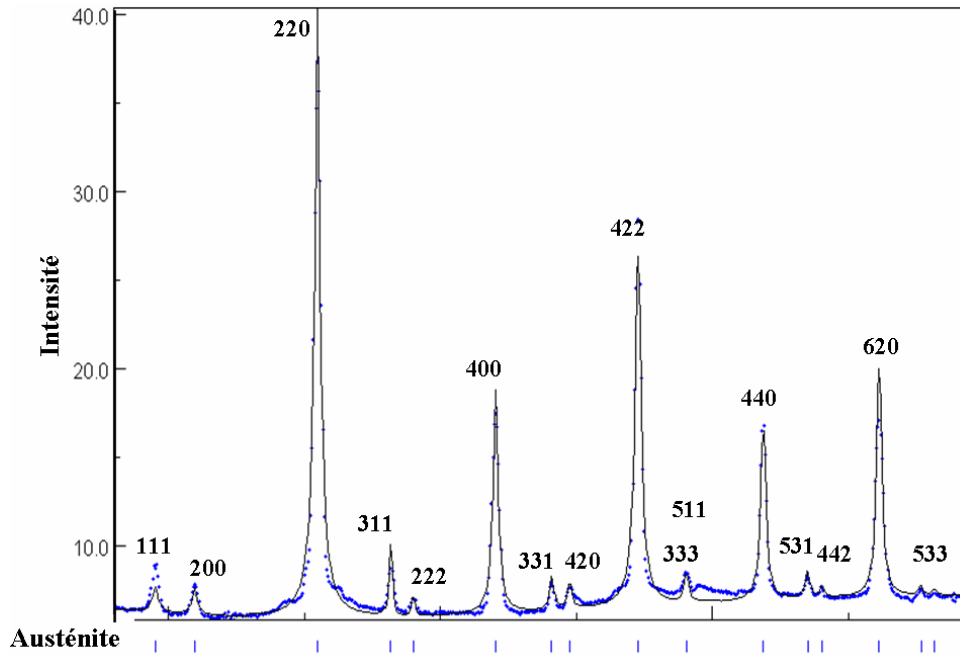
**Figure 2.35 :** Figures de pôles expérimentale  $\{111\}$ ,  $\{200\}$  et  $\{220\}$  de l'éprouvette EC1 après le premier cycle, mesurée par neutrons.

Les éprouvettes cylindriques notées EC2 et EC3 avec un diamètre de 2,5 mm, une longueur utile de 21 mm et une taille de grains de 100-150  $\mu\text{m}$  (cf. figure 2.36) ont servi à mesurer l'évolution des fractions volumiques de l'austénite. Ceci a été réalisé par diffraction de neutrons sur D20, pour deux contraintes maximales appliquées et durant le 1<sup>er</sup> et le 10<sup>ème</sup> cycles.



**Figure 2.36 :** Microstructure de l'éprouvette EC2

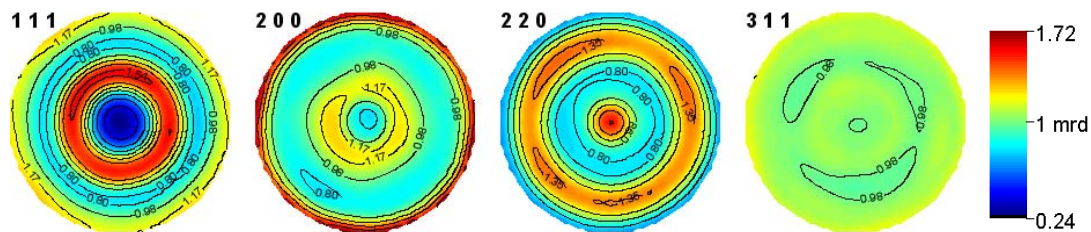
La figure 2.37 représente le diffractogramme, obtenu par diffraction de neutrons sur l'éprouvette EC2 à l'état initial.



**Figure 2.37** : Diffractogramme de l'éprouvette EC2 à l'état initial. Les familles de plans sont représentées au-dessus des pics correspondants.

Dans ce diffractogramme, on n'observe que des pics de diffraction appartenant à la phase austénitique. Cela montre qu'à l'état initial, l'échantillon est bien 100% austénitique.

La texture initiale des éprouvettes EC2 et EC3 est représentée par les figures de pôles expérimentales de la figure 2.38.



**Figure 2.38** : Figures de pôle expérimentales à l'état initial pour les éprouvettes de diamètre 2,5mm

Ces figures de pôle présentent une très légère texture de fibre  $\langle 220 \rangle$ .

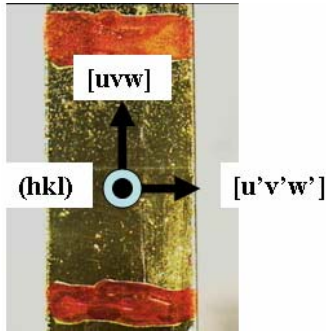
#### IV.4/ Eprouvette plate monocristalline

Le monocristal étudié (cf. figure 2.39) a été préparé au laboratoire par la méthode Bridgman modifiée. Il a servi à mesurer l'évolution des courbures de réseau. Ses dimensions sont une longueur utile de 41,2 mm, une largeur égale à 2,8 mm, et une épaisseur de 0,9 mm. Son orientation a été mesurée par rayons X de laboratoire avec une figure de pôles  $\{440\}$ :

$$(hkl) = (0,904 ; 0,104 ; 0,414);$$

$$[uvw] = [-0,369; 0,457; 0,810];$$

$$[u'v'w'] = [-0,104; -0,886; 0,452].$$



*Figure 2.39 : Monocrystal utilisé lors de l'expérience en rayons X refocalisés avec le repère d'orientation*

## Conclusion

Ce chapitre, centré sur la description des techniques expérimentales mise en œuvre dans cette étude, clos la partie bibliographie de ce mémoire. Les trois prochains chapitres porteront sur l'utilisation de ces techniques de diffraction pour décrire, à différentes échelles, les évolutions microstructurales se produisant pendant la transformation martensitique sous contrainte dans les alliages à mémoire de forme. Dans ce travail, nous nous limiterons à analyser les évolutions observées dans l'austénite, une limitation identique à celle adoptée dans la thèse de B. Kaouache [B. Kaouache, 2006], mais pour des raisons différentes qui seront explicités dans la suite du document.

La diffraction de neutrons, réalisée sur les diffractomètres SALSA et D20 de l'ILL nous permet d'effectuer une analyse globale des échantillons pendant un essai de traction in-situ. Nous chercherons à déterminer l'évolution, au cours du chargement, de paramètres moyens caractéristiques de la transformation à cette échelle, comme la fraction volumique ou la contrainte moyenne dans l'austénite.

L'intensité du rayonnement X du rayonnement synchrotron nous donne accès à des informations aux échelles fines. En utilisant une analyse monocristalline et le microscope 3DXRD, des informations à l'échelle du grain dans un polycristal deviennent accessibles. Cette partie de l'étude constitue un développement particulièrement original, car cette technique n'avait jamais été appliquée pour l'étude d'une transformation de phase. Des informations encore plus locales sont obtenues avec la microdiffraction Laue sur l'instrument BM32 de l'ESRF et avec la méthode de Laue refocalisée, cette dernière technique permettant de déterminer la mosaïcité du réseau cristallin à l'intérieur d'un cristal. Pour ces deux instruments également, l'application à l'étude de la transformation martensitique constitue une première.

L'utilisation de ces différentes techniques pour déterminer les évolutions microstructurales observées au cours d'un essai de traction *in-situ* sur un alliage superélastique nous donne ainsi accès à des informations sur plusieurs échelles caractéristiques, depuis l'éprouvette de traction jusqu'au réseau cristallin. C'est cet aspect multiéchelle qui constitue l'originalité principale de ce travail.

# CHAPITRE III : Comportement du polycristal

<b>Introduction</b>	P.79
<b>I/ Evolution de la contrainte moyenne dans l'austénite</b>	P.79
I.1/ Introduction	P.79
I.2/ Influence des taches de diffraction de la phase martensitique	P.80
I.3/ Analyse des contraintes en volume	P.81
I.3.1/ L'état initial de l'éprouvette EC1	P.81
I.3.2/ Mesure lors d'un cycle superélastique	P.81
I.3.2.1/ Détermination des contraintes par deux méthodes de calculs	P.83
I.3.2.1.1/ Méthode des $\sin^2\psi$	P.83
I.3.2.1.2/ Méthode des contraintes principales	P.85
I.3.2.2/ Résultats et discussion	P.86
I.4/ Comparaison des contraintes déterminées en surface et en volume	P.87
I.4.1/ Conditions expérimentales	P.88
I.4.2/ Résultats	P.89
I.4.2.1/ Contraintes en surface	P.89
I.4.2.2/ Contraintes en volume	P.91
I.4.2.3/ Discussion	P.92
I.5/ Conclusions	P.93
<b>II/ Evolution de la fraction volumique d'austénite</b>	P.93
II.1/ Caractérisation du comportement mécanique des éprouvettes	P.94
II.1.1/ Premier cycle	P.95
II.1.2/ Les neuf cycles suivants	P.96
II.2/ Dosage de l'austénite par diffraction de neutrons	P.97
II.2.1/ Analyses des diffractogrammes obtenus	P.97
II.2.2/ Evolutions des fractions volumiques par orientation	P.100
II.2.3/ Evolution de la fraction volumique globale	P.102
II.3/ Relations entre martensite stabilisée et déformation résiduelle	P.105
II.3.1/ Contrainte maximale inférieure à la limite élastique de l'austénite	P.105
II.3.2/ Contrainte maximale supérieure à la limite élastique de l'austénite	P.107

<b>III/ Evolution des largeurs à mi-hauteurs des pics de diffraction</b>	P.108
III.1/ Evolution en fonction du nombre de cycles	P.109
III.2/ Evolution lors d'un essai de traction <i>in-situ</i>	P.110
III.3/ Evolution avec la fraction volumique	P.111
III.4/ Discussions sur les évolutions de la FWHM	P.113
<b>Conclusion</b>	P.114



# **Chapitre III : Comportement du polycristal**

## **Introduction**

Les deux premiers chapitres, à caractère bibliographique, ont permis de préciser le cadre de ce mémoire et de le situer par rapport aux travaux existants. Nous allons maintenant nous intéresser à l'évolution de grandeurs moyennes à l'échelle d'un ensemble de grain dans le polycristal pendant un chargement superélastique. Cette étude à caractère macroscopique, a été réalisée aux neutrons pour disposer d'un volume d'analyse important et sur des matériaux à petits grains de telle sorte que le volume d'analyse soit représentatif de l'ensemble du comportement du polycristal. Nous nous sommes attachés à étudier deux grandeurs : la contrainte moyenne dans l'austénite et la fraction volumique d'austénite. La détermination de ces deux grandeurs ayant déjà fait l'objet d'analyse en diffraction X de laboratoire, la première partie du chapitre compare les résultats obtenus à l'aide de ces deux techniques de diffraction.

La seconde partie du chapitre détermine s'il existe une relation entre la déformation résiduelle accumulée au cours des premiers cycles de chargement mécanique et la quantité de martensite stabilisée par ce chargement.

## **I/ Evolution de la contrainte moyenne dans l'austénite**

### **I.1/ Introduction**

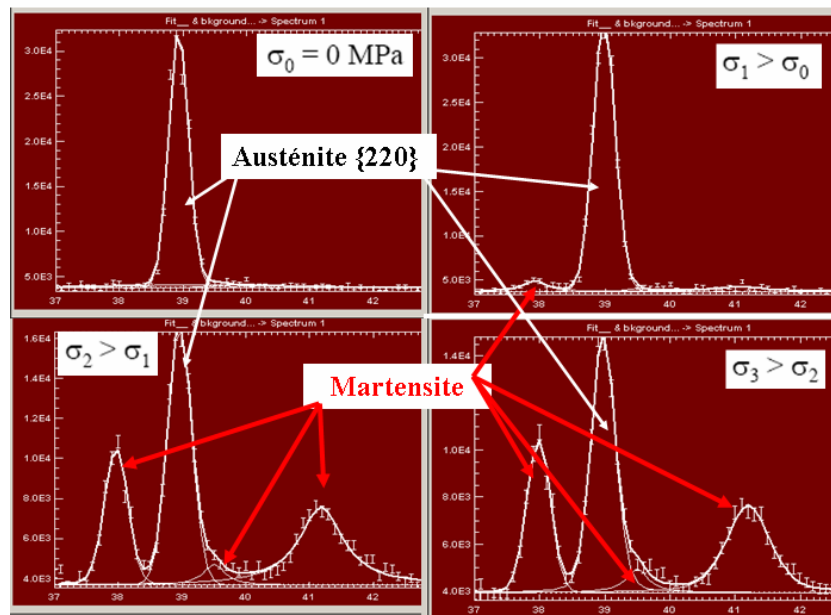
Lors de la transformation martensitique sous contrainte, l'apparition d'une seconde phase [P. Sittner *et al.*, 2002], [P. Sittner *et al.*, 2004] ou l'ajout de particules en TiC [R. Vaidyanathan *et al.*, 1999] conduit à une redistribution des contraintes entre les phases. L'austénite étant la phase qui se transforme, il est intéressant de connaître son état de contrainte. Aussi, nous avons suivi l'évolution de la contrainte dans l'austénite au cours d'un essai de traction uniaxiale.

Des mesures ont été réalisées sur la ligne de diffraction de neutrons SALSA de l'ILL, en utilisant une éprouvette cylindrique à petits grains, l'éprouvette EC1. Compte tenu de la taille du faisceau et de la taille de grains, le volume d'analyse comporte environ 2500 grains. Deux méthodes de détermination des contraintes en volume ont été utilisées : la loi des  $\sin^2\psi$  et la méthode des contraintes principales.

Les mêmes analyses ont ensuite été réalisées avec des rayons X de laboratoire qui donnent accès à une information de surface. Ces mesures, réalisées sur le même échantillon, ont permis de comparer les contraintes en surface et dans le volume de l'échantillon.

## I.2/ Influence des tâches de diffraction de la phase martensitique

Avant de présenter les résultats obtenus, nous tenons à souligner les précautions à prendre au cours de l'analyse. En diffraction neutronique, la taille importante du volume d'analyse permet d'obtenir les tâches de diffraction caractéristiques de la phase martensitique y compris pour de très faibles fractions volumiques. Cependant, malgré les travaux sur le sujet [F. Moreau, 1998], l'étude sur la martensite est délicate par rapport au nombre de variantes présentes (jusqu'à 24) même dans des volumes inférieurs au millimètre cube. De ce fait, nous avons choisi de concentrer notre étude sur les mesures dans l'austénite, phase pour laquelle la structure cristallographique est parfaitement connue. Pour cela, les différentes informations provenant des deux phases en présence lors de la transformation martensitique ont été séparées. Ainsi, il a fallu tenir compte de l'influence des tâches de diffraction de la martensite sur la forme des pics de diffraction de l'austénite lors des analyses des clichés de diffraction. La figure 3.1 illustre ce problème. Ces quatre diffractogrammes ont été obtenus par diffraction de neutrons sur l'éprouvette EC1 pour des contraintes appliquées croissantes.



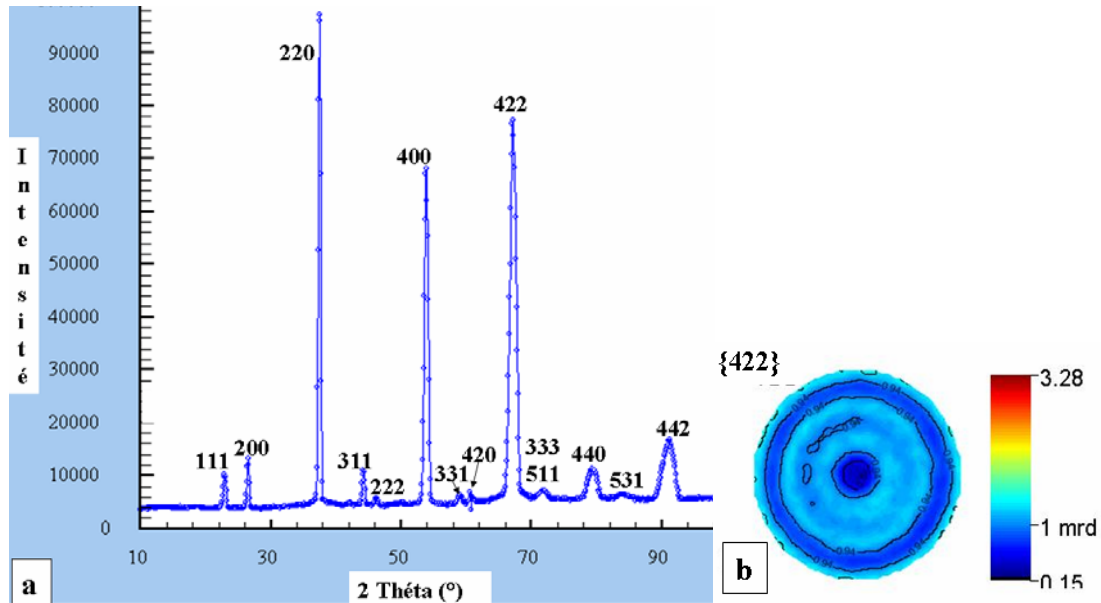
**Figure 3.1 :** Diffractogramme partiel de l'austénite à charge nulle (haut à gauche) puis apparition à différentes charges appliquées de la martensite par diffraction de neutrons sur un polycristal

On aperçoit nettement l'apparition des pics de martensite autour du pic {220} de l'austénite. La présence de ces pics a été prise en compte pour affiner les pics d'austénite pour les mesures de déformation et de fraction volumique. De façon à déterminer avec précision leur position  $2\theta$ , la forme des pics d'austénite est approchée par une Gaussienne tandis que les pics de martensite sont affinés par une fonction de Pseudo-Voigt avec un coefficient d'asymétrie.

### I.3/ Analyse des contraintes en volume

#### I.3.1/ Etat initial de l'éprouvette EC1

L'état initial de l'éprouvette cylindrique EC1 de diamètre 4,5mm a été caractérisé sur l'instrument D20 à l'ILL, avec une longueur d'onde  $\lambda$  égale à 1,3Å. Le diffractogramme obtenu avant chargement mécanique et la figure de pôles {422} sont présentés respectivement figures 3.2a et 3.2b.



**Figure 3.2 :** a/ Diffractogramme de l'éprouvette EC1, b/ Figure de pôles {422} mesurée sur le diffractomètre à poudre D20 à l'ILL

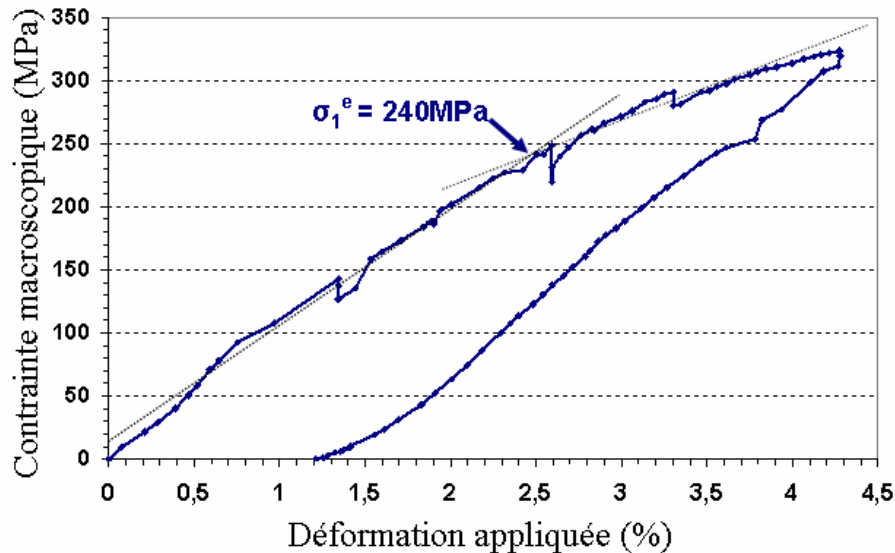
On vérifie que l'échantillon est 100% austénitique car les seuls pics observés sur la figure 3.2a sont ceux de la phase austénitique. La figure de pôles {422} est peu marquée avec un rapport d'intensité inférieur à 2. On en conclue que cet échantillon présente une texture quasiment isotrope.

#### I.3.2/ Mesure lors d'un cycle superélastique

La figure 3.3 montre l'évolution de la contrainte macroscopique en fonction de la déformation appliquée. Cette courbe a été obtenue avec la machine de traction *in-situ* Kammrath-Weiss équipée d'un capteur qui mesure le déplacement des mors pendant la mesure de déformation de l'austénite par diffraction de neutrons.

A partir de 240 MPa, un changement de pente pourrait marquer le début de la transformation martensitique. Cependant, il est difficile de différencier une rupture nette et de plus il est difficile de justifier que la pente initiale est si faible (de l'ordre de 10GPa) et puisse conduire à des

déformations macroscopiques ‘élastiques’ de l’ordre de 2,5%. L’éprouvette a certainement glissé dans les mors mais les phénomènes de relaxation présentés plus bas doivent également intervenir dans ce constat de pente ‘trop’ faible. Nous avons appliqué une contrainte maximale de 330 MPa pour une déformation macroscopique de 4,3%.



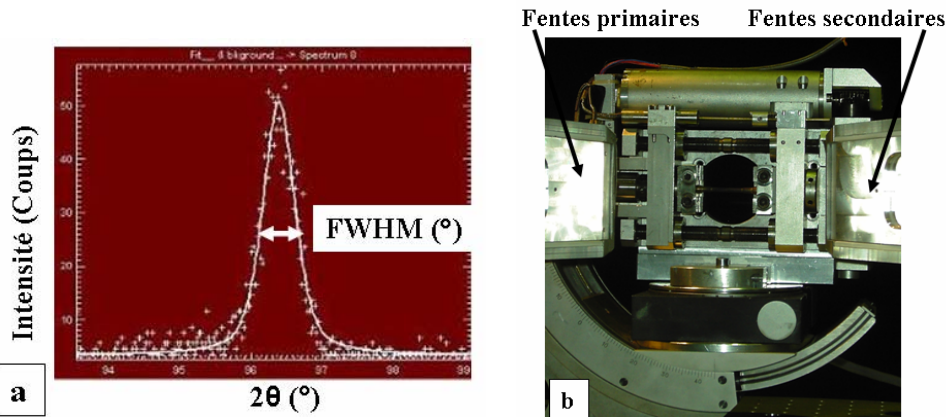
**Figure 3.3 :** Courbe de contrainte macroscopique en fonction de la déformation appliquée

On observe des chutes de contrainte très marquées pour les déformations suivantes : 1,3%, 2,6%, 3,3% et 4,3%. Ces chutes représentent la relaxation de la machine de traction pendant la mesure (2h environ par point). Ces différentes relaxations qui ne sont pas intervenues à tous les points de chargement peuvent expliquer la déformation résiduelle importante (1,2%) lorsque la contrainte macroscopique est relâchée.

D’après la relation de Bragg (2.1), une longueur d’onde  $\lambda$  égale à 1,76 Å a été choisie pour mesurer un angle  $2\theta$  de diffraction aux environs de 96,5° (cf. figure 3.4a). Cet angle permet d’effectuer des mesures avec un volume d’analyse presque cubique. Le volume de mesure de  $2 \times 2 \times 2 \text{ mm}^3$  est complètement immergé dans l’échantillon pour éviter de mesurer les pseudo-déformations provenant d’erreurs de positionnement (cf. annexe 1 du chapitre 3).

Nous avons vu dans l’introduction de ce chapitre qu’il existait plusieurs façons de déterminer les valeurs de contrainte. La méthode des contraintes principales (cf. 1.3.2 Chp.2) est la plus couramment utilisée en diffraction de neutrons car elle permet de limiter les temps d’analyse. En diffraction de rayons X de laboratoire, la méthode la plus utilisée est celle dite « des  $\sin^2 \psi$  » (cf. 1.3.1 Chp.2). Nous avons comparé les résultats obtenus avec ces deux méthodes au cours d’un chargement superélastique sur la ligne SALSA.

La figure 3.4b représente l'éprouvette en position horizontale lorsque  $\phi = 0^\circ$ . Pour la méthode des  $\sin^2\psi$ , les mesures de déformation ont été effectuées par pas de  $5^\circ$  en  $\psi$  avec  $\psi$  compris entre  $0^\circ$  et  $35^\circ$  puis entre  $60^\circ$  et  $85^\circ$  (soit 14 points de mesure). Les valeurs comprises entre  $40^\circ$  et  $55^\circ$  ainsi que l'angle de  $90^\circ$  n'ont pas pu être mesurées à cause de la trop forte absorption des neutrons pas les mors de la machine de traction.



**Figure 3.4 :** a/ Exemple de pic de diffraction par neutrons de l'AMF CuAlBe {422} avec  $\lambda = 1,76 \text{ \AA}$   
b/ Epreuve en position horizontale ( $\phi = 0^\circ$ ).

Les déformations mesurées sont des déformations radiales ( $\epsilon_{22} = \epsilon_{33}$ ) lorsque  $\psi$  est égal à  $0^\circ$  et des déformations axiales ( $\epsilon_{11}$ ) ou déformations dans la direction de traction lorsque  $\psi$  est égal à  $85^\circ$ . Pour la méthode des contraintes principales seuls les résultats obtenus pour  $\psi = 0^\circ$  et  $\psi = 85^\circ$  servent au calcul.

### I.3.2.1/ Détermination des contraintes par deux méthodes de calcul

La détermination des contraintes nécessite la mesure des déformations sur au moins une famille de plans cristallographiques. Nous avons utilisé la famille de plans {422} car :

- l'intensité de ce pic est importante,
- la valeur de l'angle de diffraction  $2\theta$  de ce plan est suffisamment grande pour permettre de réduire les erreurs de calcul des déformations,
- la figure de pôles {422} est peu marquée.

#### I.3.2.1.1/ Méthode des $\sin^2\psi$

Avec la méthode des  $\sin^2\psi$ , l'équation utilisée pour évaluer les contraintes dans un état biaxial est :

$$\varepsilon_{\varphi\psi} = \frac{(d_{\psi} - d_0)}{d_0} = \frac{\sin \theta_{\psi}}{\sin \theta_{\psi=0}} - 1 = \frac{1}{2} S_{2\{422\}} \cdot (\sigma_{\varphi}^I - \sigma_{33}^I) \cdot \sin^2 \psi - S_{1\{422\}} \cdot (\sigma_{11}^I + \sigma_{22}^I) \quad \text{où } d_0 = d_{\psi=0} \quad (3.1)$$

La relation 3.1, provenant de l'équation 2.4, nous permet d'avoir une dépendance directe entre la déformation mesurée et la contrainte grâce à la pente de la droite  $\varepsilon_{\varphi\psi} = f(\sigma_{\varphi}^I)$  et par l'intermédiaire de la constante d'élasticité radiocristallographique  $S_{2\{422\}}$  déterminée par le modèle de Kröner – Eshelby :  $\frac{1}{2} S_{2\{422\}} = 11,01 \cdot 10^{-6} \text{ MPa}^{-1}$ .

Les constantes radiocristallographiques  $S_{1\{422\}}$  et  $\frac{1}{2} S_{2\{422\}}$  ont été mesurées expérimentalement et comparées avec succès aux valeurs obtenues avec les modèles de Kröner – Eshelby, Reuss et Voigt (cf. annexe du chapitre 2). Ces mesures expérimentales valident les valeurs utilisées pour le calcul des contraintes.

Les figures 3.5 et 3.6 montrent l'évolution des déformations  $\varepsilon_{\varphi\psi}$  en fonction de  $\sin^2 \psi$  pour une contrainte appliquée de 185 MPa et de 320 MPa.

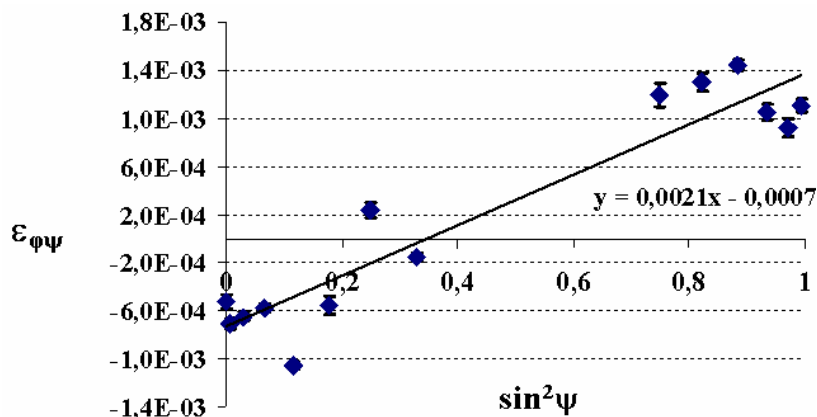


Figure 3.5 : Evolution des déformations  $\varepsilon_{\varphi\psi}$  en fonction de  $\sin^2 \psi$  pour 185 MPa

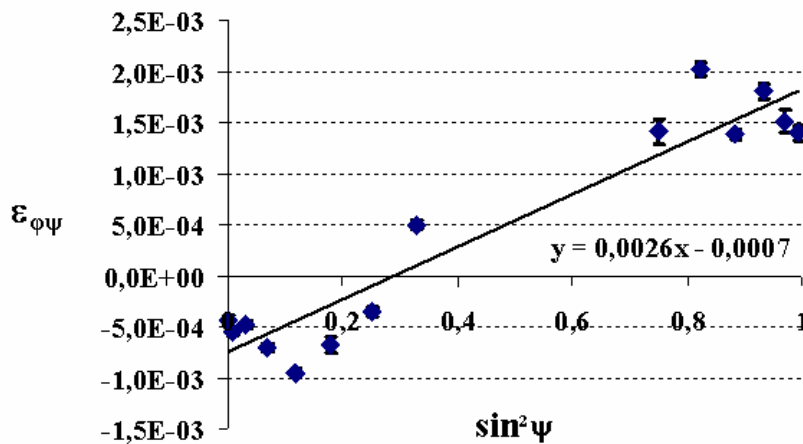


Figure 3.6 : Evolution des déformations  $\varepsilon_{\varphi\psi}$  en fonction de  $\sin^2 \psi$  pour 320 MPa

D'après 3.1, pour la contrainte appliquée de 185 MPa (cf. figure 3.5), la contrainte interne ( $\sigma'_{11} - \sigma'_{33}$ ) dans l'austénite est de 190 MPa $\pm$ 25 MPa. Pour la contrainte appliquée de 320 MPa (cf. 3.6), la contrainte interne dans l'austénite est de 235 MPa $\pm$ 30 MPa. La même démarche a été appliquée à chaque point du cycle superélastique.

### I.3.2.1.2/ Méthode des contraintes principales

Les figures 3.7 et 3.8 représentent l'évolution des déformations, pour les mêmes contraintes appliquées, avec seulement deux points de mesures pour  $\psi$  égal à 0° et 85°. D'après l'équation 2.5, la mesure de  $\varepsilon_{11}$ ,  $\varepsilon_{22}$  et  $\varepsilon_{33}$  permet de déterminer  $\sigma'_{11}$ ,  $\sigma'_{22}$  et  $\sigma'_{33}$ .

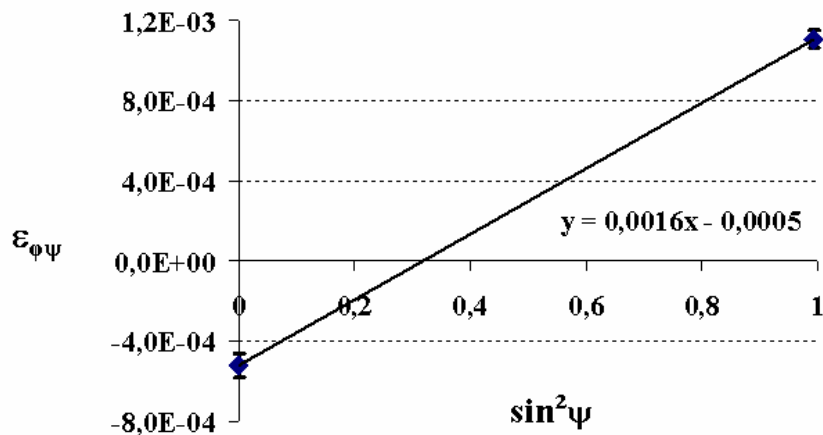


Figure 3.7 : Evolution des déformations  $\varepsilon_{\phi\psi}$  en fonction de  $\sin^2\psi$  pour 185 MPa

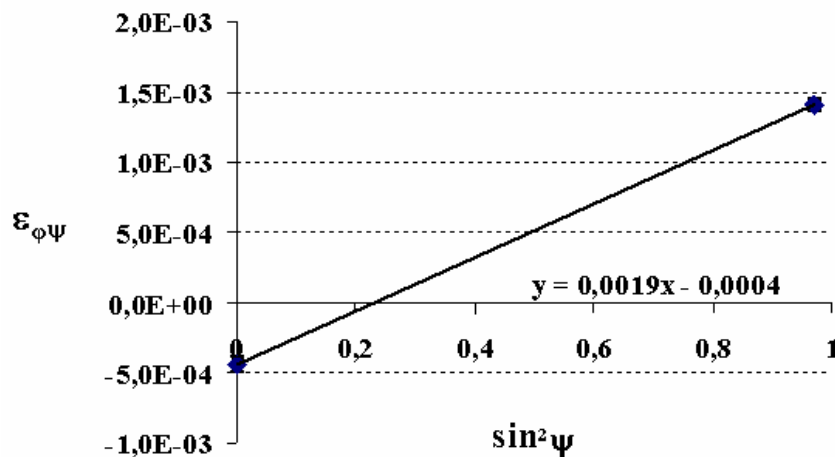


Figure 3.8 : Evolution des déformations  $\varepsilon_{\phi\psi}$  en fonction de  $\sin^2\psi$  pour 320 MPa

Dans le cas d'une contrainte appliquée de 185 MPa et d'après l'équation 2.5, on obtient une contrainte interne dans l'austénite de 150 MPa $\pm$  30 MPa. Dans le cas d'une contrainte appliquée

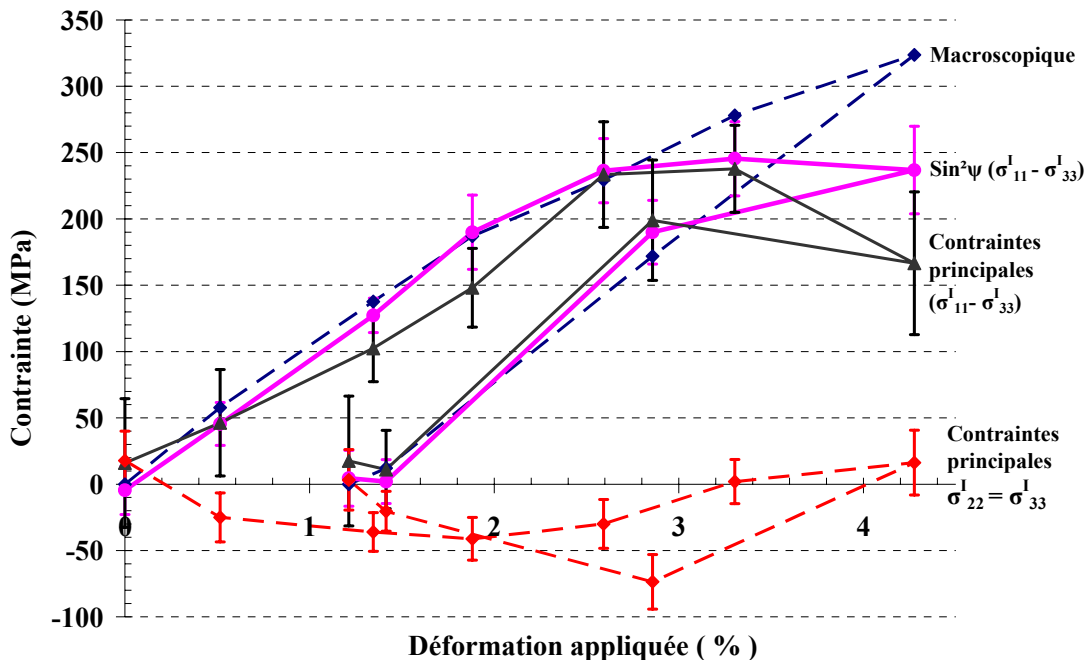
de 320 MPa, on obtient une contrainte interne dans l'austénite de 165 MPa±50 MPa. La même démarche a été appliquée pour chaque point du cycle superélastique.

### I.3.2.2/ Résultats et discussion

La figure 3.9 compare la contrainte macroscopique (en pointillé) avec :

- la contrainte  $(\sigma_{11}^I - \sigma_{33}^I)$ , dans la direction de traction, obtenue par la méthode des  $\sin^2\psi$  (symbole : point),
- la contrainte déterminée par la méthode des contraintes principales (symbole : triangle).

La courbe  $(\sigma_{22}^I = \sigma_{33}^I)$  pour la méthode des contraintes principales (pointillé) est également ajoutée.



**Figure 3.9 :** Courbes contrainte - déformation appliquée macroscopique et obtenus par la méthode des  $\sin^2\psi$  et la méthode des contraintes principales [B. Malard et al., 2006]

Lors de la charge, la courbe de comportement macroscopique présente deux domaines :

- Un domaine élastique de l'austénite, entre 0 MPa et 240 MPa, pour lequel on observe que l'état de contrainte, obtenu par les deux méthodes correspond à la contrainte appliquée. Cela a été vérifié pour l'état de contrainte dans la direction de traction uniquement.
- Un domaine de transformation, pour les contraintes appliquées supérieures à 240 MPa, le matériau est alors biphasé, l'austénite se transformant en martensite. On observe que si la contrainte appliquée continue de croître, il n'en est pas de même pour les contraintes déterminées dans l'austénite. Ce résultat confirme l'existence d'un transfert de contrainte



entre l'austénite et la martensitique pendant la transformation, transfert mis en évidence par B. Kaouache [B. Kaouache, 2006] par diffraction de rayons X et par P. Sittner et al. [P. Sittner *et al.*, 2001] par diffraction de neutrons.

Les deux méthodes confirment l'existence de ce transfert de charge, elles ne diffèrent que légèrement :

- À 3,3% de déformation appliquée, il y a 40 MPa de différence entre la contrainte macroscopique et la contrainte dans l'austénite ( $\sigma_{11}^I - \sigma_{33}^I$ ) déterminée par les deux méthodes.
- À 4,4% de déformation appliquée, l'écart avec la contrainte macroscopique atteint 90 MPa±30 MPa pour la méthode des  $\sin^2\psi$  et 170 MPa±50 MPa pour la méthode des contraintes principales.

Lorsqu'on relâche la contrainte appliquée et jusqu'à la décharge complète, la contrainte ( $\sigma_{11}^I - \sigma_{33}^I$ ) dans l'austénite redevient équivalente à la contrainte macroscopique. À nouveau, la présence de la seule phase austénitique permet cette observation.

Les valeurs de  $\sigma_{22}^I = \sigma_{33}^I$  ont pu être mesurées par la méthode des contraintes principales. Dans le domaine élastique de l'austénite, cette valeur est de 30 MPa±15 MPa. Quand la transformation démarre cette valeur tend vers 0 MPa±15 MPa. Lorsque l'on relâche la contrainte appliquée les valeurs de  $\sigma_{22}^I = \sigma_{33}^I$  chutent à -75 MPa±25 MPa pour finalement atteindre 0 MPa±20 MPa à contrainte appliquée nulle. Ces valeurs restent faibles

Les mesures sont effectuées dans le volume de l'éprouvette et dans la direction de traction. Dans le domaine élastique, la différence de résultat entre les deux méthodes est du même ordre de grandeur que l'incertitude des mesures. On observe néanmoins que la méthode des contraintes principales conduit toujours à des valeurs légèrement plus faibles. La méthode des  $\sin^2\psi$  permet de mesurer plusieurs orientations  $\psi$ , tandis que la méthode des contraintes principales ne permet que deux mesures ( $\psi = 0^\circ$  et  $\psi = 85^\circ$ ). La précision de la régression linéaire étant liée au nombre de points de mesure, la méthode des  $\sin^2\psi$  est plus précise.

La méthode des contraintes principales est en revanche beaucoup plus rapide à mettre en œuvre, deux mesures suffisent pour obtenir un chiffre de contrainte. Le choix entre les deux méthodes va donc dépendre du critère mis en avant : précision sur le chiffre de contrainte obtenue ou rapidité d'acquisition. Dans la suite de cette étude, nous allons privilégier la diminution des incertitudes de mesures et choisir la méthode des  $\sin^2\psi$ .

#### **I.4/ Comparaison des contraintes déterminées en surface et en volume**

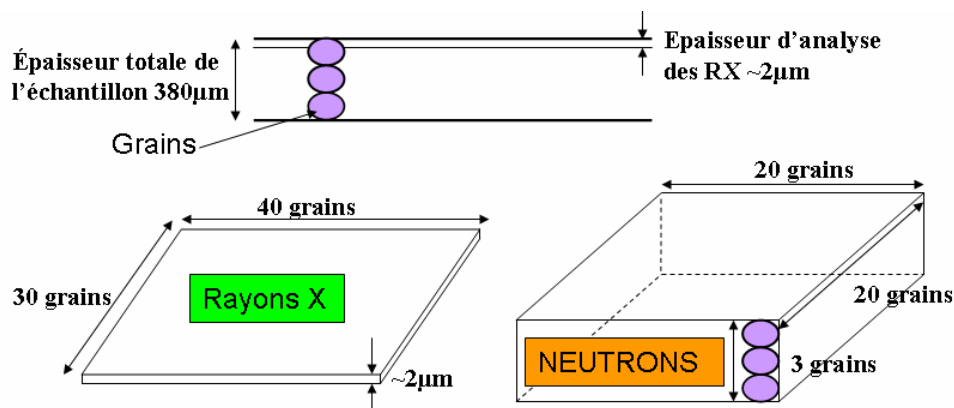
Nous avons mis en oeuvre deux techniques pour déterminer les déformations se produisant dans l'austénite au cours de la transformation martensitique. Nous avons utilisé la diffraction de rayons X de laboratoire pour l'analyse en surface et la diffraction de neutrons pour l'analyse en volume. Nous avons utilisé une éprouvette plate pour faciliter les mesures avec les rayons X. Pour les deux appareils, les contraintes internes ont été déterminées par la méthode des  $\sin^2\psi$  et nous avons choisi, comme dans l'expérience précédente et pour les mêmes raisons, d'utiliser la famille de plans {422}. Pour faire le lien entre les évolutions de la microstructure de l'alliage, la contrainte dans l'austénite et la contrainte appliquée, nous avons pris des micrographies au microscope optique avant chaque mesure de déformation par rayons X.

Avant cette analyse, nous avons effectué un traitement thermique sur l'éprouvette plate EP1 de façon à disposer d'un état initial totalement austénitique, un diffractogramme a permis de confirmer l'absence de martensite résiduelle.

##### **I.4.1/ Conditions expérimentales**

Avec le diffractomètre « Proto iXRD » (anticathode de chrome,  $\lambda(K\alpha)$  est égal à 2,2897 Å), les plans {422} diffractent pour un angle  $2\theta$  égal à 148,7°. Les mesures ont été réalisées dans la direction de traction, 16 points ont été mesurés, par pas de 5°. Le volume de mesure est de  $3 \times 4 \times 0,002 \text{ mm}^3$ , la taille des grains est d'environ 0,100 mm ; environ 1200 grains sont mesurés en surface (sur 2  $\mu\text{m}$  de profondeur).

Avec les neutrons de longueur d'onde  $\lambda$  égale à 1,76 Å, les plans {422} de l'austénite ont un angle de diffraction  $2\theta$  égal à 96,5°. Les mesures ont été réalisées dans la direction de traction par pas de  $\psi$  égal à 5° avec  $\psi$  compris entre 0° et 35° puis entre 60° et 85° pour chaque pas de chargement mécanique. Le volume d'analyse est de  $2 \times 2 \times 2 \text{ mm}^3$  ce qui est supérieur aux dimensions de l'échantillon dont l'épaisseur est égale à 0,38 mm. Dans ce cas, pour moyenniser l'effet de variation de longueur d'onde [J. Saroun *et al.*, 2001] nous avons oscillé l'échantillon à l'intérieur du volume d'analyse, perpendiculairement à la direction de charge, avec une amplitude de 1 mm et une fréquence de 0,1 Hz. Du fait de la faible épaisseur de l'échantillon EP1, le nombre de grains diffractants durant cette expérience en volume est du même ordre de grandeur que celui de la mesure en surface soit environ 1200 si on considère ces grains comme sphérique (cf. figure 3.10). Néanmoins, dans ce cas, ils sont totalement immergés dans le volume de l'échantillon.

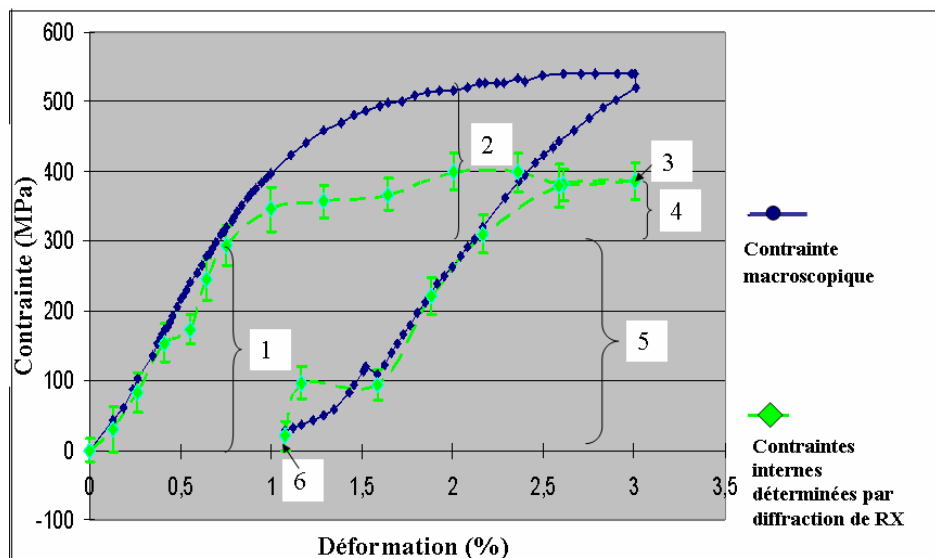


**Figure 3.10 :** Représentation schématique des volumes analysés en rayons X de laboratoire et aux neutrons.

## I.4.2/ Résultats

### I.4.2.1/ Contraintes en surface

La figure 3.11 présente la courbe macroscopique de contrainte (symbole : point) - déformation et la courbe de contrainte interne dans l'austénite (symbole : losange) mesurée par diffraction de rayons X.

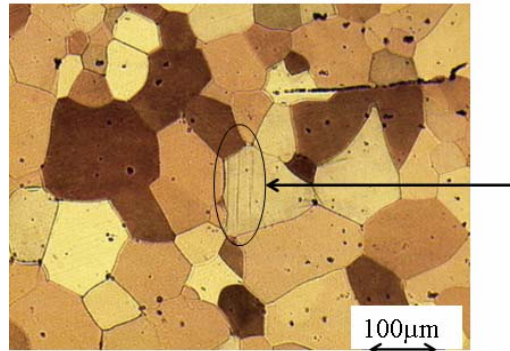


**Figure 3.11 :** Courbe de contrainte macroscopique – déformation appliquée (avec les points) et courbe de contrainte en surface dans l'austénite – déformation appliquée (avec des losanges).

Chaque partie numérotée de la figure 3.11 est décrite ci-dessous :

- 1- de 0 MPa à 300 MPa (domaine élastique de l'austénite), la contrainte interne dans l'austénite déterminée par diffraction de rayons X correspond à la contrainte macroscopique appliquée.
- 2- lorsque la contrainte macroscopique atteint 300 MPa (pour une déformation de 0,7%), la transformation de l'austénite en martensite démarre pour certains grains favorablement

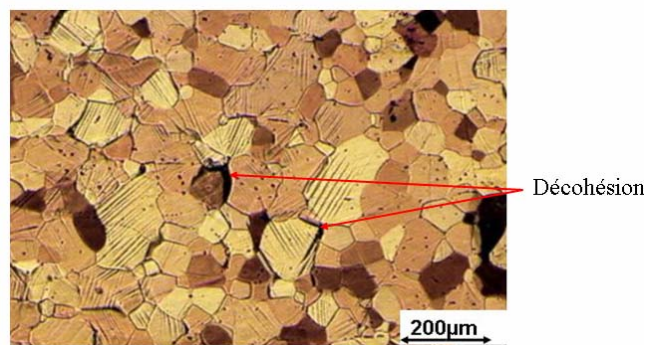
orientés. La figure 3.12 montre que pour cette contrainte appliquée, les premières variantes de martensite sont observées.



**Figure 3.12 :** Apparition de martensite à la contrainte appliquée de 300 MPa

La contrainte dans l'austénite, déterminée par diffraction, est de  $290 \text{ MPa} \pm 20 \text{ MPa}$ . À partir de 350 MPa et jusqu'à 540 MPa de contrainte macroscopique appliquée, l'écart entre cette dernière et la contrainte dans la phase austénitique augmente progressivement. La contrainte dans l'austénite atteint un plateau à  $400 \text{ MPa} \pm 20 \text{ MPa}$  jusqu'à 3% de déformation appliquée.

- pour le dernier point de charge (contrainte et déformation appliquées respectivement de 540 MPa et 3%), nous constatons que les grains d'austénite ne sont pas tous transformés et que des décohésions apparaissent aux joints de grains (cf. figure 3.13). Dans la majorité des grains transformés, nous n'observons qu'une seule variante. L'écart mesuré entre la contrainte macroscopique et la contrainte dans l'austénite est d'environ 150 MPa.



**Figure 3.13 :** Microstructure à la contrainte appliquée de 540 MPa

- lors de la décharge, la contrainte macroscopique reste supérieure à la contrainte dans l'austénite jusqu'à la valeur de 300 MPa. Durant cette décharge, les variantes de martensite se retransforment en austénite.
- à partir de 300 MPa et jusqu'à la décharge totale, la contrainte dans l'austénite redevient égale à la contrainte macroscopique.

6- à la décharge complète on observe la présence de martensite résiduelle (cf. figure 3.14). La contrainte interne dans l'austénite est égale à  $20 \text{ MPa} \pm 20 \text{ MPa}$  et une déformation résiduelle de 1,1% subsiste.

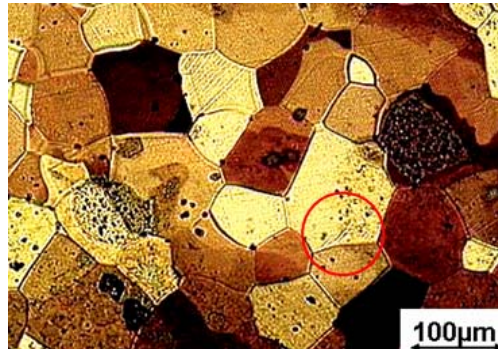


Figure 3.14 : Microstructure après décharge

La déformation résiduelle a-t-elle pour seule origine la martensite résiduelle présente? Cette question fera l'objet de la deuxième partie de ce chapitre.

#### I.4.2.2/ Contraintes en volume

Lors d'un deuxième cycle superélastique, nous avons étudié en volume, l'évolution des contraintes dans l'austénite pour la même éprouvette plate par diffraction de neutrons. Les résultats obtenus sont présentés figure 3.15. Les neuf points de mesures y sont représentés par des triangles placés sur la courbe de comportement macroscopique. Ces résultats en volume sont superposés à ceux obtenus précédemment en surface par diffraction de rayons X.

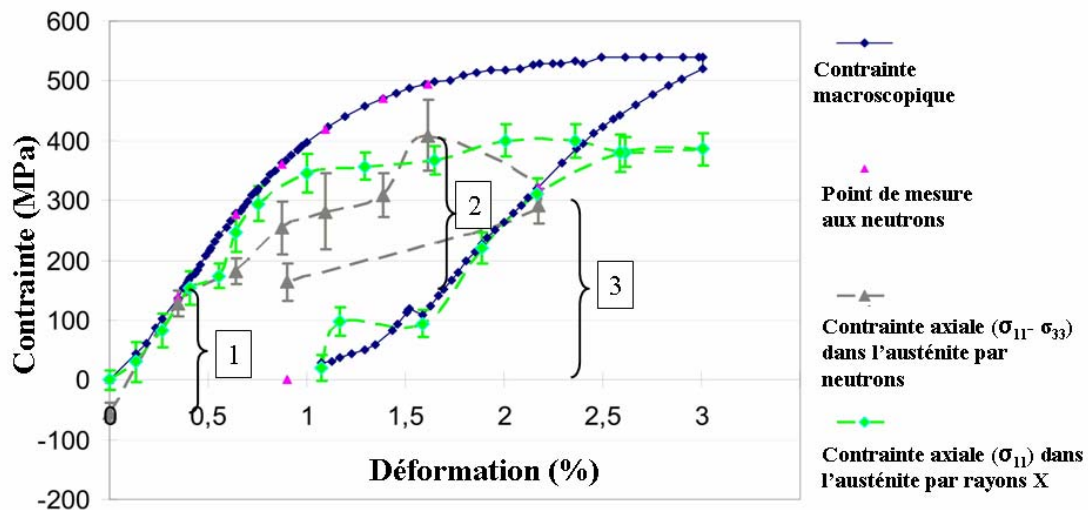


Figure 3.15 : Courbes de contrainte - déformation des contraintes internes obtenues par diffraction des rayons X (losange) et des neutrons (triangle) [B. Malard et al., 2006].

Nous allons commenter les domaines, numérotés de 1 à 3, indiqués figure 3.15.

- 1- En l'absence de chargement appliquée, nous observons que l'austénite se trouve dans un état de compression ( $-50 \text{ MPa} \pm 20 \text{ MPa}$ ). Cet état initial de compression qui n'a pas été observé en DRX lors du premier cycle, peut s'expliquer par la présence de martensite résiduelle. Cet effet de compression disparaît quand la contrainte appliquée augmente. Lors du chargement dans le domaine élastique de l'austénite de 0 MPa à 180 MPa, l'austénite a la même contrainte que la contrainte macroscopique.
- 2- À partir de 180 MPa, l'évolution des contraintes obtenues par diffraction de neutrons est analogue à celle obtenue par DRX avec cependant un écart de 50 MPa. Cet écart peut à nouveau être attribué à l'influence du premier chargement, le cyclage d'un échantillon faisant baisser la contrainte de transformation [L. Contardo *et al.*, 1990]. En revanche lorsque la contrainte appliquée atteint 500 MPa, la contrainte dans l'austénite donnée par l'analyse aux neutrons est légèrement supérieure à celle obtenue par DRX.
- 3- Au cours de la décharge, nous avons mesuré deux points : le premier à 300 MPa où la contrainte dans l'austénite, déterminée par neutrons, est identique à celle déterminée par diffraction de rayons X ; le second, après décharge complète de l'échantillon (0 MPa). Une contrainte de traction de  $170 \text{ MPa} \pm 30 \text{ MPa}$  est alors déterminée dans l'austénite. Cette valeur est beaucoup plus importante que la valeur obtenue par DRX ( $20 \text{ MPa} \pm 20 \text{ MPa}$ ) à l'issue du premier cycle.

### **I.4.2.3/ Discussion**

Cette étude comparative des deux techniques d'analyse, en surface par diffraction des rayons X de laboratoire et en volume par diffraction de neutrons, conduit à des résultats globalement similaires pour la composante axiale de la contrainte dans l'austénite au cours du chargement superélastique de l'alliage CuAlBe. On observe cependant des différences à contrainte nulle et à forte contrainte appliquée.

La différence observée en début de chargement, à contrainte nulle, n'est pas significative car elle peut être associée à la présence de la martensite stabilisée mécaniquement au cours de la première analyse. Pour vérifier si cette différence trouve son origine dans la nature du volume analysé, une seconde analyse sur éprouvette vierge mais en inversant l'ordre des analyses ou sur une éprouvette stabilisée mécaniquement serait nécessaire. Ce résultat est à rapprocher de celui obtenu par S.D. Prokoshkin *et al.* [S.D. Prokoshkin *et al.*, 2006]. Au cours d'une étude par diffraction de rayons X et de neutrons, ils ont comparé in situ des mesures sur les paramètres de mailles de la martensite d'un alliage de NiTi contraint et non contraint. Ces mesures menées sur

un échantillon trempé (austénite avec un fort taux d'écrouissage) et un échantillon totalement recuit ont mis en évidence des différences entre la surface et le volume des échantillons, différences attribués à l'influence d'un champ de contraintes en tension, généré par des contraintes résiduelles présentes dans l'austénite.

A forte contrainte, les deux techniques d'analyse conduisent à des résultats sensiblement différents. Pour 500 MPa de contrainte appliquée, la contrainte déterminée aux neutrons dans l'austénite augmente brusquement et devient supérieure à celle déterminée par DRX. Il aurait été utile de confirmer cette tendance avec d'autres mesures à contraintes plus élevées. Cependant, cela n'a pas été possible faute de temps disponible sur le faisceau pour poursuivre la campagne d'essai. Il serait utile de pouvoir confirmer ou infirmer ce résultat à l'aide d'une nouvelle campagne d'essai, de façon à déterminer si cette différence est liée aux incertitudes de mesure ou si elle traduit l'influence croissante des incompatibilités de déformation entre grains à l'intérieur du volume d'analyse.

## **I.5/ Conclusions**

Au cours de la première partie de cette étude nous avons confirmé le résultat obtenu par B. Kaouache [B. Kaouache, 2006] concernant l'existence d'un transfert de contrainte entre les phases austénitiques et martensitiques. Nous avons montré que les analyses obtenus en surface avec les rayons X de laboratoire et celle en volume réalisée aux neutrons, donnent des résultats très similaires. A forte contrainte, nous observons une différence, mais il est délicat de tirer des conclusions à partir d'un seul point de mesure. Une campagne d'essais supplémentaire axée sur les forts niveaux de contrainte devra être réalisée pour infirmer ou confirmer la tendance observée.

Au cours de cette première partie, nous avons également comparé deux méthodes de détermination de l'état de contraintes, la méthode des  $\sin^2\psi$  et celle des contraintes principales. Nous avons montré que la méthode des  $\sin^2\psi$  conduit à des résultats plus proches des valeurs macroscopiques, mais cette précision à un coût car elle nécessite des temps de mesures plus importants ce qui n'est pas toujours envisageable aux grands instruments.

## **II/ Evolution de la fraction volumique d'austénite**

Dans la seconde partie de ce chapitre, portant sur l'analyse du comportement à l'échelle du polycristal, nous allons suivre l'évolution de la fraction volumique d'austénite au cours des dix premiers cycles de chargement mécanique. Le dosage de phase par diffraction de neutrons est

effectué sur le diffractomètre D20 de l'ILL et les essais de traction *in-situ* sont réalisés à l'aide de la machine Kammrath-Weiss.

Les cyclages sont réalisés à contrainte maximale imposée en choisissant deux valeurs maximales de contrainte encadrant la limite élastique de l'austénite. L'objectif visé consiste à déterminer s'il existe une relation entre la déformation résiduelle accumulée au cours du cyclage et la quantité de martensite stabilisée par le chargement mécanique.

## II.1/ Caractérisation du comportement mécanique des éprouvettes

Deux séries d'expériences ont été réalisées, sur deux éprouvettes cylindriques de diamètre 2,5 mm provenant du même lingot, les éprouvettes EC2 et EC3. Ces éprouvettes ont été cyclées 10 fois. Nous avons étudié le cyclage seulement pour les dix premiers cycles car il est admis que c'est principalement durant les premiers cycles que le comportement des alliages à mémoire de forme évolue le plus fortement [L. Contardo *et al.*, 1990], [B. Kaouache, 2006].

Deux niveaux de contrainte maximale ont été imposés : 450 MPa pour l'éprouvette EC2 (cf. figure 3.16) et 635 MPa pour l'éprouvette EC3 (cf. figure 3.17). Ces deux valeurs de contrainte maximale ont été choisies car elles encadrent le seuil de plasticité de l'austénite, seuil estimée pour cet alliage à 600 MPa [S. Montecinos *et al.*, 2007].

Les essais ont été réalisés en utilisant la machine de traction *in-situ* Kammrath-Weiss, les déformations sont déterminées à partir de la mesure du déplacement de la traverse. Les figures 3.16 et 3.17 présentent les courbes contraintes appliquées - déformation obtenues au cours de cette expérience.

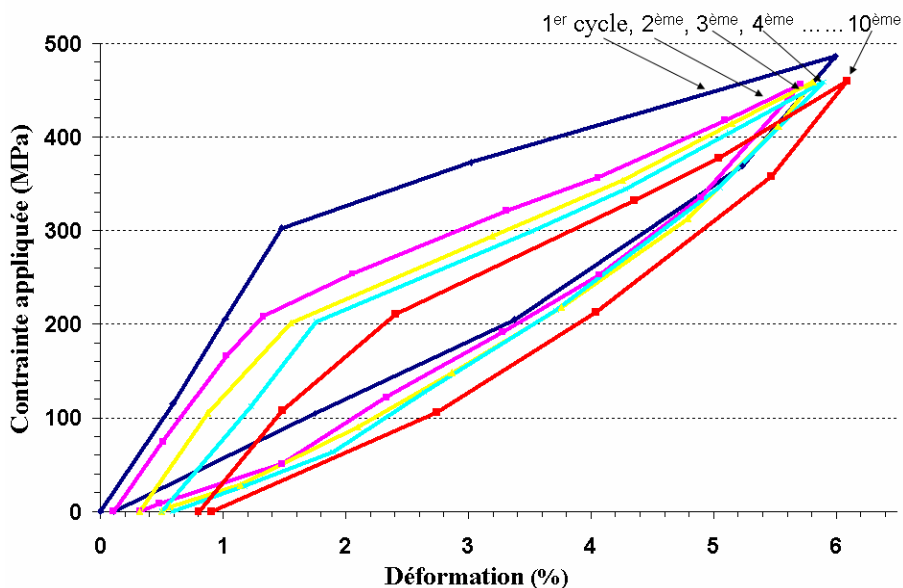


Figure 3.16 : Courbe de chargement macroscopique de 10 cycles à 450 MPa



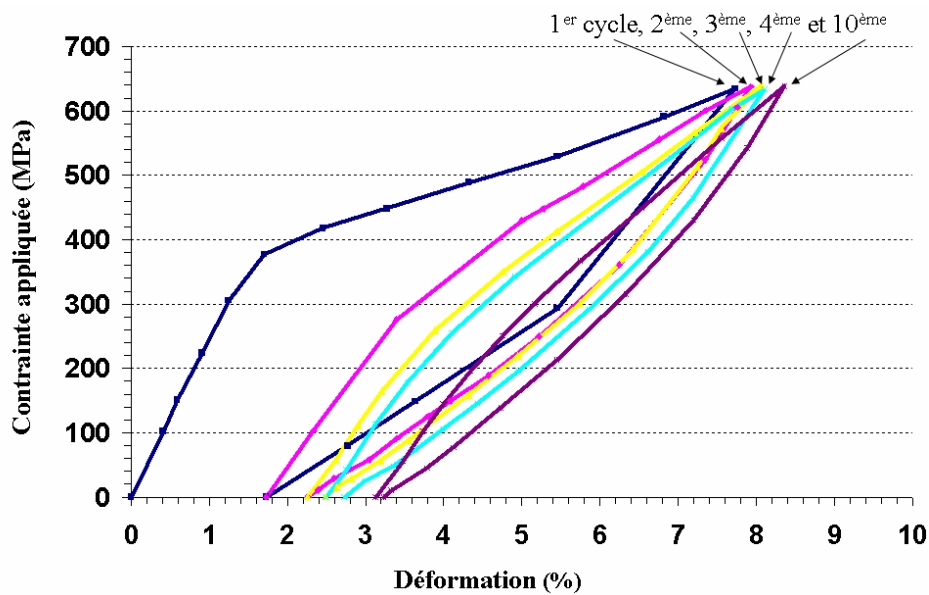


Figure 3.17 : Courbe de chargement macroscopique lors de 11 cycles à 635 MPa

Il est à noter que, suite à un problème technique, la limite de 450 MPa a été dépassée au cours du premier chargement sur l'éprouvette EC1. Le chargement imposé a atteint 490 MPa, cette valeur restant largement inférieure au seuil de plasticité de l'austénite, nous supposons que les conséquences de ce dépassement ne sont pas de nature à modifier de façon sensible les résultats obtenus.

Nous allons d'abord décrire le premier cycle de ces deux courbes puis les neuf cycles suivants.

### II.1.1/ Premier cycle

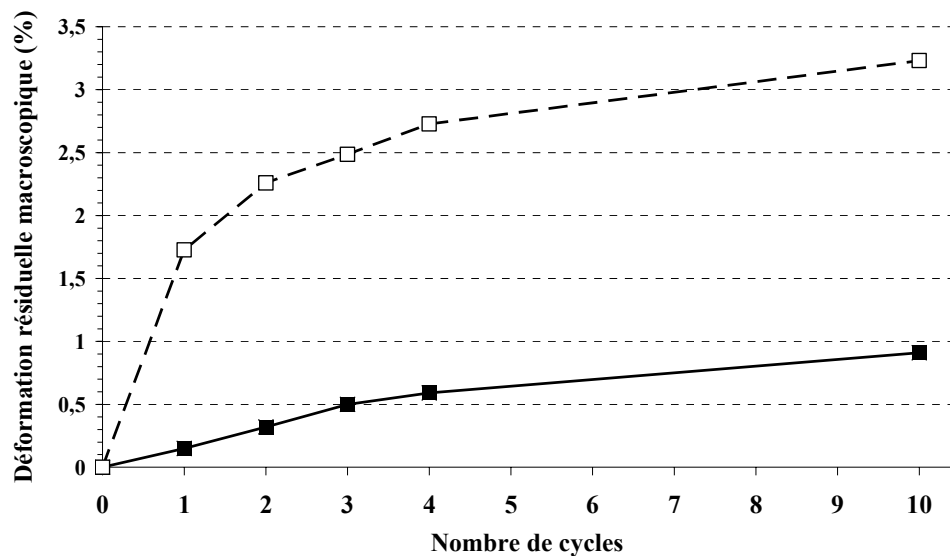
La contrainte de début de transformation macroscopique du premier cycle, représentée par les points de rupture de pentes du domaine élastique de l'austénite et du domaine de transformation, est de 300 MPa pour les deux éprouvettes. Au-delà de cette contrainte, l'austénite se transforme en martensite ce qui induit une déformation de transformation importante. La déformation maximale obtenue pour le premier cycle est de 6% pour l'éprouvette EC2, pour une contrainte appliquée de 490 MPa et de 7,7% pour l'éprouvette EC3 et une contrainte appliquée de 635 MPa. Les deux courbes de chargement ont globalement la même allure (cf. figures 3.16 et 3.17). A la décharge, la déformation macroscopique diminue en même temps que la martensite se retransforme en austénite, mais une déformation résiduelle subsiste après décharge complète. Cette déformation macroscopique résiduelle est égale à 0,1% pour le chargement à 490 MPa et à 1,7% pour celui à 635 MPa. On constate que la déformation résiduelle est très sensible à la contrainte appliquée.

## II.1.2/ Les neuf cycles suivants

Pour les cycles à 450 MPa (cf. figure 3.16), la contrainte de début de transformation chute fortement dès le second chargement, où elle est égale à 200 MPa. Puis elle se stabilise durant les troisième et quatrième cycles, pour finalement atteindre 120 MPa lors du dixième cycle. La déformation macroscopique maximale mesurée augmente de façon régulière avec le nombre de cycle. Elle est égale à 5,7% au second cycle et elle atteint 6,1% au dixième.

Pour le cyclage avec la contrainte imposée de 635 MPa (cf. figure 3.17), la contrainte de début de transformation diminue régulièrement au deuxième (200 MPa), troisième (160 MPa), quatrième cycle (140 MPa) pour atteindre 100 MPa au dixième cycle. La déformation macroscopique maximale augmente de façon régulière, passant de 7,7% au premier cycle à 8,4% au dixième cycle.

La figure 3.18 représente l'évolution de la déformation macroscopique résiduelle au cours des deux cyclages.



**Figure 3.18** : Evolution de la déformation résiduelle macroscopique pour le cyclage à 450 MPa et 635 MPa en fonction du nombre de cycles.

Cette évolution est conforme à celle indiquée dans la littérature pour l'alliage CuAlBe [L. Saint-Sulpice *et al.*, 2008]. La déformation macroscopique résiduelle augmente fortement au cours des premiers cycles, puis se stabilise. Le niveau de stabilisation dépend de la contrainte imposée. Il est voisin de 1% pour le cyclage à 450 MPa et dépasse les 3% pour 635 MPa. On observe que l'essentiel de cette différence de niveau de stabilisation est produite au cours du premier chargement. Il est admis que cette déformation résiduelle provient soit de la présence de martensite stabilisée, soit d'une déformation plastique liée à la transformation martensitique [P.

Sittner *et al.*, 2002] cependant la part respective prise par chacun de ces deux mécanismes reste un sujet de discussion [S. Calloch *et al.*, 2006]. L'utilisation de la diffraction neutronique, couplée à un essai de traction *in-situ*, permet de doser l'évolution de la martensite au cours de ces deux chargements cycliques et d'apporter ainsi des éléments d'analyse supplémentaires.

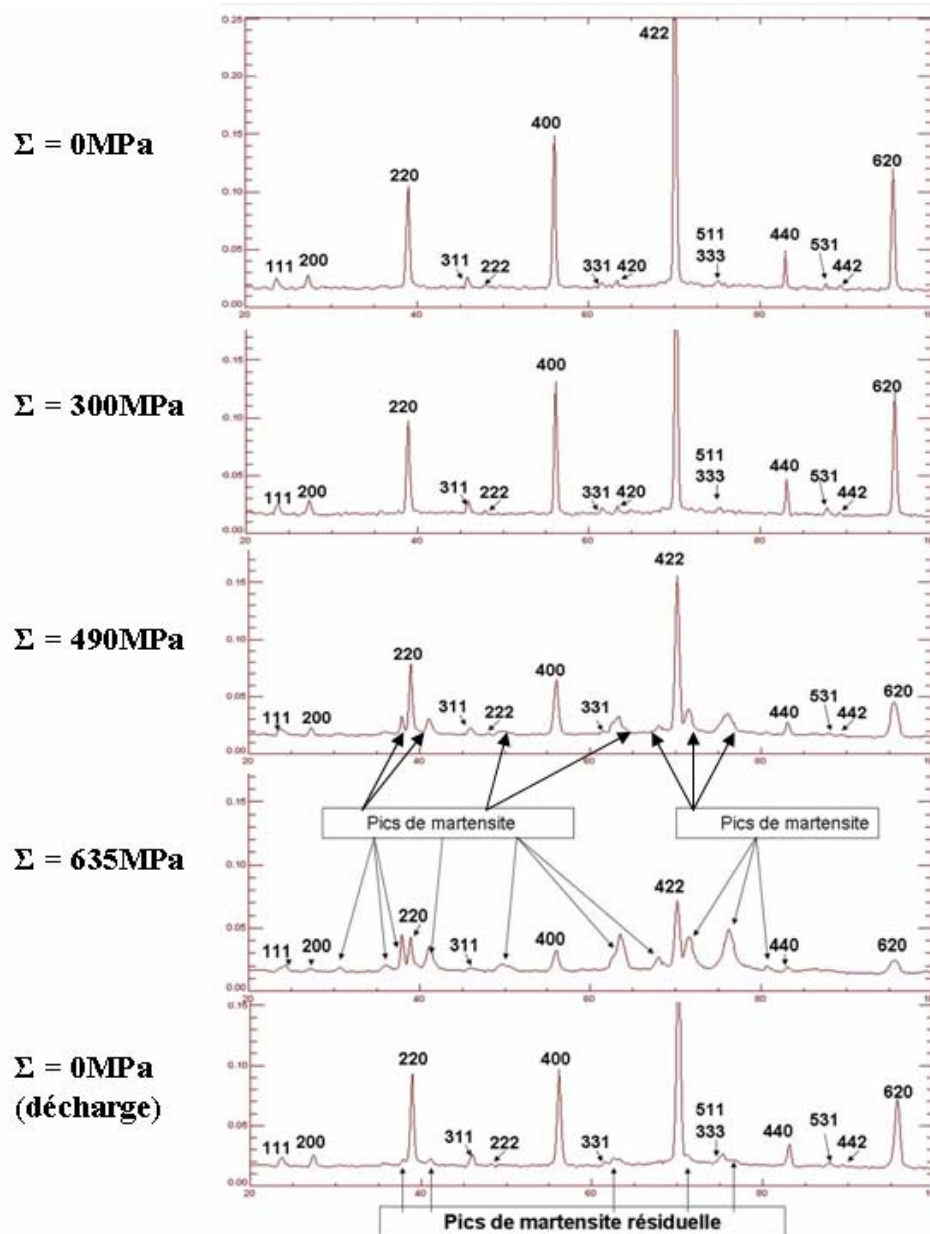
## **II.2/ Dosage de l'austénite par diffraction de neutrons**

Nous avons utilisé le diffractomètre D20 de l'ILL en configuration haute résolution et avec une longueur d'onde  $\lambda$  égale à 1,3597 Å et La taille des fentes permettant le passage du faisceau étant égales à 4 mm × 7 mm, les éprouvettes EC1 et EC2, de diamètre 2,5 mm, sont totalement englobées dans le faisceau incident. Si l'on représente les grains comme des cubes de taille moyenne  $0,125 \times 0,125 \times 0,125 \text{ mm}^3$  (125 μm étant la taille moyenne des grains dans ces éprouvettes), le nombre de grains dans le volume de mesure est d'environ 15000. Il est donc tout à fait réaliste de considérer ce volume d'analyse comme représentatif du comportement global des échantillons.

### **II.2.1/ Analyse des diffractogrammes obtenus**

La figure 3.19 représente 5 diffractogrammes réalisés sous différentes contraintes appliquées sur l'éprouvette EC2 lors de son premier cycle. Pour une contrainte donnée, la réalisation d'un enregistrement dure cinq minutes.

Le diffractogramme à 0 MPa présente les pics caractéristiques des familles de plans de la phase austénitique. Ainsi on peut affirmer que le matériau est constitué à 100% d'austénite à l'état initial. Pour une contrainte appliquée de 300 MPa, le diffractogramme obtenu est similaire, on observe un léger déplacement des pics de l'austénite mais l'intensité intégrée de ces pics reste inchangée. Ce résultat est en accord avec la courbe macroscopique du comportement, la contrainte de 300 MPa correspondant à la limite supérieure du comportement élastique de l'austénite. Pour une contrainte de 490 MPa, les pics caractéristiques de la phase martensitique sont présents et les pics d'austénite s'élargissent, ils arrêtent de se déplacer et leur intensité diminue. Ces observations sont amplifiées dans le diffractogramme obtenu sous une contrainte de 635 MPa.

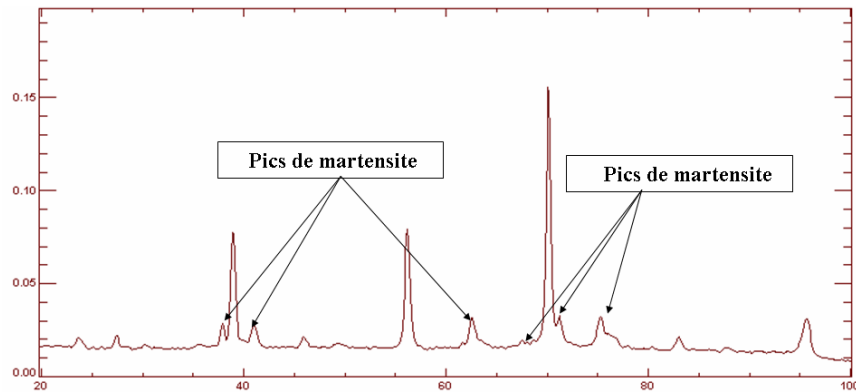


**Figure 3.19 :** Diffractogrammes par diffraction de neutrons avec  $\lambda = 1,3597\text{\AA}$  obtenus sur l'éprouvette EC2 en traction in-situ à différents niveaux de contraintes.

Quand on relâche la contrainte, le diffractogramme effectué après décharge complète montre que les pics de la phase austénitique augmentent en intensité et se rétrécissent à nouveau. On note aussi la présence de petits pics de martensite, prouvant ainsi l'existence de martensite stabilisée dans l'éprouvette à l'issue du chargement.

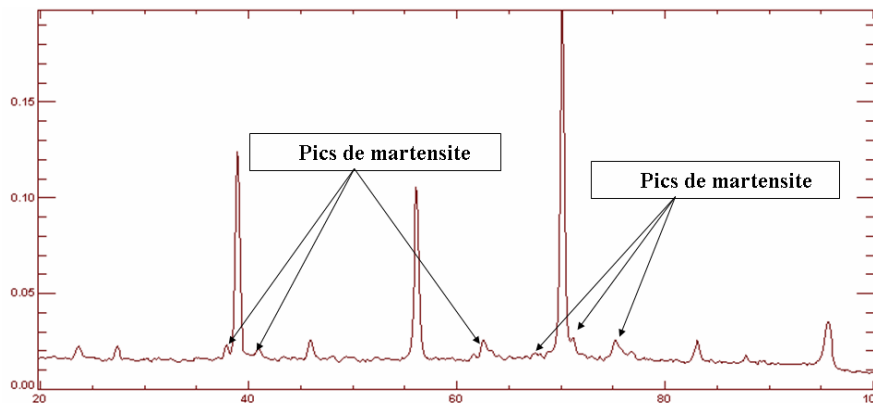
La quantité de martensite stabilisée augmente au cours du cyclage mécanique comme l'indique le diffractogramme de la figure 3.20, obtenue, sur la même éprouvette, après 9 cycles de chargement superélastique jusqu'à la contrainte maximum de 635 MPa. On observe que les pics caractéristiques de la martensite sont beaucoup plus prononcés sur ce diffractogramme que sur

celui mesuré à l'issue du premier cycle de chargement (cf. 3.19). Le niveau de chargement maximal imposé au cyclage influence également sur la quantité de martensite stabilisée.



**Figure 3.20 :** Diffractogramme obtenu sur l'éprouvette EC2 après 9 cycles de chargement sous  $\Sigma_{max,imposé} = 635 \text{ MPa}$

Le diffractogramme mesuré sur l'échantillon EC1 après le même nombre de cycles de chargement, mais pour une contrainte maximale de 450 MPa, présente des pics de martensite nettement moins prononcés (cf. figure 3.21).



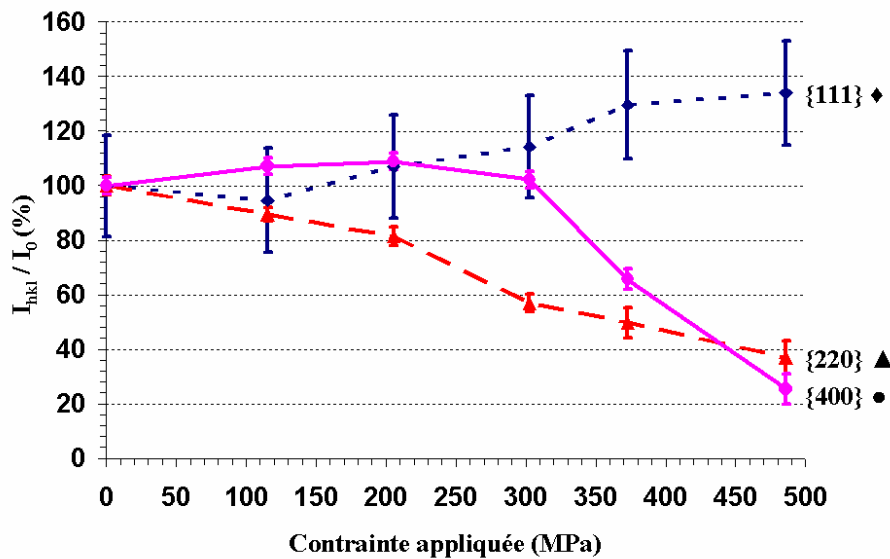
**Figure 3.21 :** Diffractogramme obtenu sur l'éprouvette EC1 après 9 cycles de chargement sous  $\Sigma_{max,imposé} = 450 \text{ MPa}$

L'utilisation de l'équation 2.7 (cf. chapitre 2) permet d'obtenir des informations quantitatives sur l'évolution de la transformation martensitique sous contrainte. Plusieurs diffractogrammes sont enregistrés pour les éprouvettes EC1 et EC2 pour différentes étapes du chargement au cours des premiers et dixièmes cycles de chargement. Leur étude permet de suivre l'évolution de la fraction volumique d'austénite en fonction de la contrainte maximale imposée et du nombre de cycles de chargement. Nous allons d'abord analyser l'évolution de la fraction volumique d'austénite en ne considérant individuellement que quelques pics particuliers des diffractogrammes, puis nous allons considérer l'évolution de la moyenne des intensités, moyenne définie à partir de sept pics caractéristiques de la structure cubique de l'austénite.

## II.2.2/ Evolution de la fraction volumique par orientation

Avant d'analyser les fractions volumiques moyennes, c'est-à-dire avant d'utiliser une moyenne des informations de différents pics, nous avons évalué et comparé les quantités de martensite à charge appliquée maximale et à la décharge pour les familles de plans {400}, {220} et {111}. Les figures 3.22 et 3.23 comparent les intensités intégrées normalisées ( $I_{hkl}/I_0$ ) pour ces trois pics. Les mesures ayant été effectuées à  $\phi$  égal à  $0^\circ$  et  $\psi$  égal à  $0^\circ$ , étudier la famille de plans {111} correspond à des grains d'orientation  $\langle 111 \rangle$  dans la direction de traction. Il en est de même des grains orientés  $\langle 400 \rangle$  et  $\langle 220 \rangle$ . Nous avons utilisé le pic {111} pour commenter l'orientation de la direction  $\langle 111 \rangle$ , le pic {220} pour la direction  $\langle 110 \rangle$  et le pic {400} qui était beaucoup plus intense que le pic {200} pour commenter l'orientation  $\langle 100 \rangle$ . Ces trois orientations particulières sont choisies car, dans les alliages cuivreux, les monocristaux orientés selon ces orientations présentent des comportements fortement différents [T.A. Schroeder *et al.*, 1979].

La figure 3.22 représente l'évolution de ( $I_{hkl}/I_0$ ) en fonction de la contrainte appliquée pour le premier cycle à 490 MPa de l'éprouvette EC1.

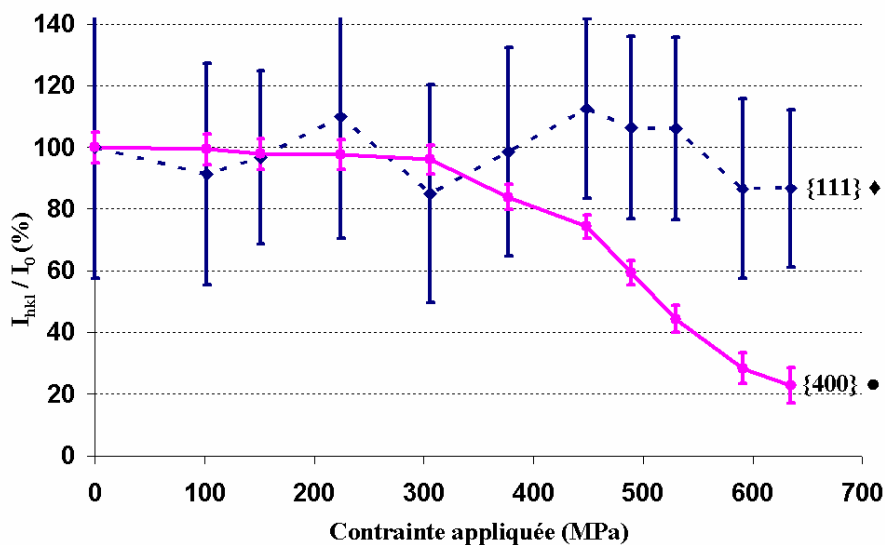


**Figure 3.22** : Evolution de l'intensité intégrée normalisée de différentes orientations en charge au 1<sup>er</sup> cycle pour 450 MPa de contrainte appliquée maximale.

Cette analyse par orientation indique que la transformation martensitique se produit de façon fort différente en fonction de l'orientation cristallographique des domaines diffractants. La contrainte de transformation diffère fortement d'une famille de plans à l'autre. La famille {220} commence à se transformer dès le premier pas de chargement à 115 MPa, puis se transforme de façon régulière, son intensité relative atteint  $38\% \pm 6$  à la contrainte appliquée maximum. L'orientation

{400} commence par rester stable, puis présente une rupture de pente à 300 MPa, elle s'affaiblit alors rapidement pour atteindre  $30\% \pm 6$  à la fin du chargement. Les barres d'erreurs sont importantes pour {111} car ce pic de diffraction est petit (cf. figure 3.19), on observe cependant une non-transformation pour cette orientation. L'intensité intégrée sur cette famille semble augmenter, mais cette évolution n'est pas reliée à une augmentation absolue du nombre de grains orientés selon  $\langle 111 \rangle$ , mais à un effet de texture.

La figure 3.23 représente l'évolution de  $(I_{hkl}/I_0)$  en fonction de la contrainte appliquée pour le premier cycle à 635 MPa pour l'éprouvette EC2. Les évolutions observées pour les familles d'orientation {400} et {111} sont identiques à celles observées sur la figure 3.22. Ce n'est qu'à partir de 530 MPa que les grains orientés selon  $\langle 111 \rangle$  semble commencer à se transformer. Ce résultat est connu pour cet alliage CuAlBe. Il a été observé que les grains orientés selon  $\langle 111 \rangle$  par rapport à la direction de traction, se transforment très difficilement [B. Kaouache, 2006]. Pour cette éprouvette, le pic {220} n'a pas pu être étudié car il présentait 2 sous-pics qu'il n'a pas été possible de déconvoluer.



**Figure 3.23 :** Evolution de l'intensité intégrée normalisée de différentes orientations en charge au 1<sup>er</sup> cycle pour une contrainte maximale de 635 MPa.

Ces résultats ainsi que les mesures effectuées au dixième cycle nous ont permis, en utilisant la relation 2.9 du chapitre 2, de calculer la fraction de martensite à charge maximale  $f_{M,max}$  et la fraction volumique de martensite stabilisée  $f_{M,Sta}$  à la décharge complète pour chaque orientation de grain. Ces résultats sont résumés pour l'éprouvette EC1 (cycle à 450 MPa) dans le tableau 3.1 et pour l'éprouvette EC2 (cycle à 635 MPa) dans le tableau 3.2.

<b>Eprouvette EC1 (450 MPa)</b>				
	<b>1<sup>er</sup> cycle</b>		<b>10<sup>ème</sup> cycle</b>	
Familles	$f_{M,max}$	$f_{M,Sta}$	$f_{M,max}$	$f_{M,Sta}$
<b>{111}</b>	<b>0%±10</b>	0%±10	<b>0%±15</b>	0%±15
<b>{400}</b>	<b>75%±5</b>	15%±3	<b>76%±5</b>	35%±4
<b>{220}</b>	<b>60%±5</b>	5%±5	<b>61%±5</b>	10%±5

**Tableau 3.1 :** Taux de martensite à la contrainte maximale et résiduelle dans différents grains orientés pour le cycle à 450 MPa

<b>Eprouvette EC2 (635 MPa)</b>				
	<b>1<sup>er</sup> cycle</b>		<b>10<sup>ème</sup> cycle</b>	
Familles	$f_{M,max}$	$f_{M,Sta}$	$f_{M,max}$	$f_{M,Sta}$
<b>{111}</b>	<b>10%±15</b>	10%±15	<b>10%±15</b>	10%±15
<b>{400}</b>	<b>75%±5</b>	15%±5	<b>85%±5</b>	40%±5
<b>{220}</b>	-----	-----	<b>70%±5</b>	20%±5

**Tableau 3.2 :** Taux de martensite à la contrainte maximale et résiduelle dans différents grains orientés pour le cycle à 635 MPa. (---- représente les valeurs manquantes pour {220}).

A la contrainte appliquée maximale, le taux de martensite est le même au premier cycle comme au dixième cycle pour le cyclage à 450 MPa. Par contre, le taux de martensite stabilisée augmente avec le nombre de cycles sauf pour {111} qui ne se transforment pas. Au dixième cycle, le taux de martensite stabilisée le plus important est observé dans {100}, où il atteint 35% ; alors qu'il n'est que de 10% pour {110}.

Au cyclage à 635 MPa, à la contrainte appliquée maximale, le taux de martensite du dixième cycle est légèrement supérieur à celui du premier cycle pour {100} et le taux de martensite stabilisée est supérieur à celui obtenu au cours du cyclage à 450 MPa. Ceci se vérifie pour les 3 orientations. Pour le dixième cycle à 635 MPa, le taux de martensite stabilisée (38%) est plus important dans {100} puis ce taux diminue jusqu'à 20% pour {110} et enfin jusqu'à 10% pour {111}. Ces évolutions de fractions volumiques de martensite par orientation seront comparées et discutées dans la dernière partie de ce chapitre (au § III.5) avec les évolutions des largeurs à mi-hauteurs des pics de diffraction.

### II.2.3/ Evolutions de la fraction volumique globale

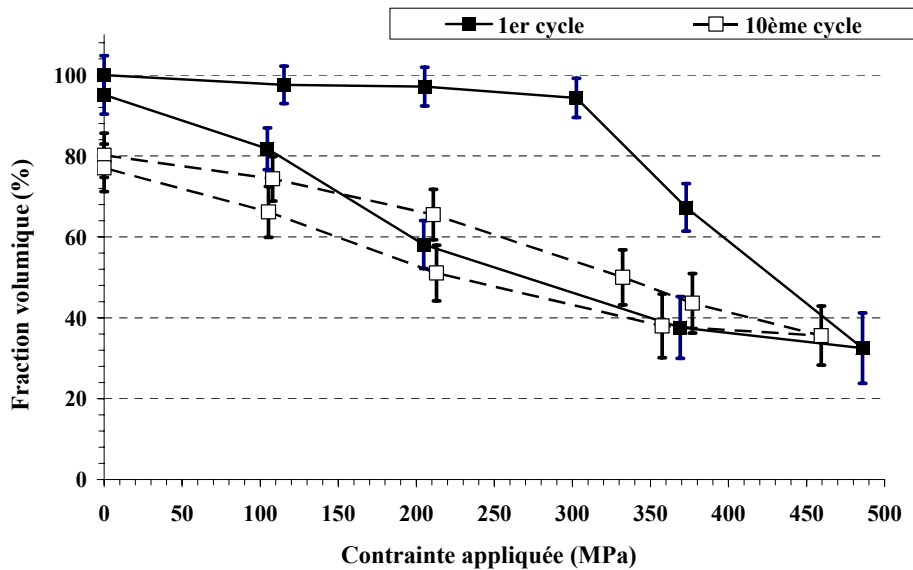
Pour les deux éprouvettes, nous avons déterminé la fraction volumique globale d'austénite en calculant la moyenne des intensités intégrées pour sept familles d'orientation, les familles {111}, {220}, {311}, {400}, {422}, {442} et {620} représentées par leurs différents pics de diffraction. Cependant comme nous déjà énoncé au chapitre précédent, pour l'éprouvette EC2, nous n'avons pas utilisé la familles {220} dû au problème de déconvolution du pic correspondant.



$$f_A^\sigma = \left( \frac{I_{111}^{A,\sigma} + I_{220}^{A,\sigma} + I_{311}^{A,\sigma} + I_{400}^{A,\sigma} + I_{422}^{A,\sigma} + I_{442}^{A,\sigma} + I_{620}^{A,\sigma}}{I_{111}^{A,\sigma_0} + I_{220}^{A,\sigma_0} + I_{311}^{A,\sigma_0} + I_{400}^{A,\sigma_0} + I_{422}^{A,\sigma_0} + I_{442}^{A,\sigma_0} + I_{620}^{A,\sigma_0}} \right) \times \frac{I_0^{\sigma_0}}{I_0^\sigma} \quad (3.3)$$

Cette moyenne sur plusieurs familles d'orientation permet de s'affranchir de l'influence de la faible texture présentée par les éprouvettes EC1 et EC2. Cependant cette moyenne reste une estimation de la fraction volumique globale d'austénite car elle n'utilise qu'une partie des pics de diffraction.

La figure 3.24 présente l'évolution de la fraction globale d'austénite au premier et au dixième cycle de chargement pour l'éprouvette EC1. On observe qu'au premier cycle cette fraction reste sensiblement égale à 100% jusqu'à 200 MPa puis diminue très légèrement à 95%±5 à 300 MPa. A partir de 300 MPa, la fraction d'austénite baisse très fortement avec l'augmentation de la contrainte appliquée, il ne reste plus qu'une fraction volumique d'austénite égale à 32%±8 à la contrainte de 490 MPa. Lors de la décharge, le taux d'austénite remonte régulièrement jusqu'à 95%±5. La fraction de martensite stabilisée mécaniquement au cours de ce premier cycle à 490 MPa, est donc égale à 5%.

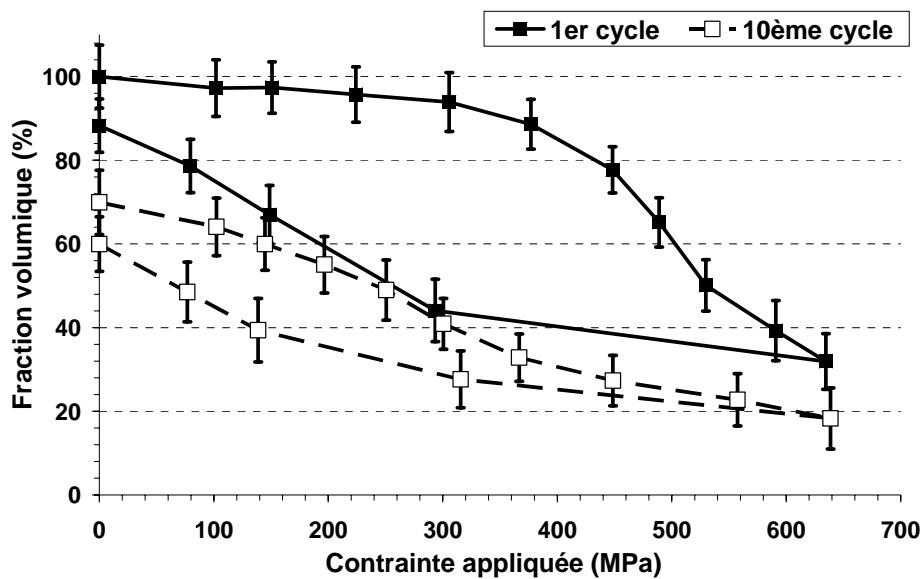


**Figure 3.24 :** Evolution de la fraction volumique d'austénite en fonction de la contrainte appliquée pour les 1<sup>er</sup> et 10<sup>ème</sup> cycles à  $\Sigma_{max\ imposé} = 450\ MPa$  pour l'éprouvette EC1.

Au début du dixième cycle, la fraction volumique d'austénite est égale à 80%±5 donc la fraction de martensite stabilisée mécaniquement est de 20%. Ensuite au cours du chargement le taux d'austénite diminue jusqu'à 35%±5 à 450 MPa, ce qui est sensiblement identique à la valeur obtenue au premier cycle.

Un cyclage à 450 MPa semble ne pas avoir d'influence sur la quantité de martensite formée. A la fin du chargement, la fraction volumique d'austénite est sensiblement égale aux premier et dixième cycles. Lorsque l'on relâche la contrainte, la fraction volumique revient à  $75\% \pm 5$ . La quantité de martensite stabilisée mécaniquement augmente faiblement au cours du cyclage pour ce niveau de chargement mécanique.

La figure 3.25 présente l'évolution de la fraction globale d'austénite, pour l'éprouvette EC2, déterminée pour le premier et le dixième cycle de chargement à 635 MPa de contrainte appliquée maximale. Au premier cycle, l'évolution observée est globalement peu différente de celle obtenue sur l'éprouvette EC1. En considérant les incertitudes de mesure, la fraction d'austénite reste proche de 100% jusqu'à 300 MPa, puis elle décroît rapidement, il ne reste que  $30\% \pm 5$  d'austénite à 635 MPa. Lorsque l'on relâche la contrainte appliquée, le taux d'austénite augmente jusqu'à  $90\% \pm 5$ . Cette valeur est plus faible que celle observée à la fin du premier cycle à 450 MPa de contrainte imposée. L'augmentation de la contrainte appliquée accroît donc de façon tout à fait significative la quantité de martensite stabilisée mécaniquement et on observe que cette accroissement se poursuit au cours du cyclage.



**Figure 3.25 :** Evolution de la fraction volumique d'austénite en fonction de la contrainte appliquée pour le 1<sup>er</sup> et 10<sup>ème</sup> cycle à  $\Sigma_{max\ imposé} = 635\text{ MPa}$  pour l'éprouvette EC2.

Au début du dixième cycle de chargement, la fraction volumique d'austénite n'est plus que de  $70\% \pm 5$  et cette valeur tombe à 60% à la fin du dixième cycle. Un chargement cyclique à 635 MPa augmente également la quantité de martensite formée sous contrainte, la fraction volumique d'austénite diminue jusqu'à  $20\% \pm 5$  pour le dixième cycle.

Les évolutions observées pour la fraction volumique d'austénite sont cohérentes avec les principales caractéristiques des courbes macroscopiques contrainte – déformation. Le taux d'austénite reste très proche de 100% pendant la phase élastique du chargement. On détermine une valeur de contrainte de début de transformation égale à 300 MPa dans les deux cas. Cependant, on s'aperçoit que la fraction volumique d'austénite diminue de manière régulière dès le début de charge ce qui rend difficile de définir la contrainte de transformation macroscopique à 300MPa. Dans le travail de P. Schlosser [P. Schlosser, 2008], elle montre par des études thermiques dans des NiTi que des grains d'austénite commencent à se transformer dans la partie dite élastique de l'austénite c'est-à-dire avant la contrainte de transformation macroscopique. On observe la même chose dans notre étude où les grains orientés {220} se transforment régulièrement dès le premier pas de chargement (cf. figure 3.22).

La partie inélastique du comportement correspond à une baisse très rapide de la fraction volumique d'austénite. Cette fraction remonte au cours de la décharge. Après décharge totale de l'échantillon on observe la présence de martensite stabilisée et une déformation résiduelle subsiste. Ces résultats sont classiques, ils confirment des observations déjà réalisées à partir d'autres approches expérimentales comme le dosage de phase par résistivité par exemple [V. Novak *et al.*, 2008].

La présente étude par diffraction neutronique a permis de mettre en évidence des différences notable dans l'évolution de la transformation martensitique en fonction de l'amplitude du chargement mécanique imposé. Si la contrainte maximale est inférieure à la limite élastique de l'austénite, le chargement n'induit qu'une faible quantité de martensite stabilisée et la quantité maximale de martensite formée est indépendante du nombre de cycle réalisé. Par contre, si la contrainte maximale est supérieure à la limite élastique, la quantité de martensite stabilisée devient beaucoup plus importante et la quantité maximale de martensite formée s'accroît au cours du cyclage.

Dans le paragraphe suivant, nous allons exploiter les résultats obtenus pour déterminer les relations entre la quantité de martensite stabilisée à l'issue d'un chargement mécanique et l'amplitude de la déformation résiduelle.

### **II.3/ Relations entre martensite stabilisée et déformation résiduelle**

Le dosage, par diffraction neutronique, de l'austénite pendant un essai de traction *in-situ* a montré que la quantité de martensite stabilisée mécaniquement et l'amplitude de la déformation résiduelle évoluaient de façon similaire en fonction de la contrainte maximale appliquée au cours

du chargement. Il est donc fondé de considérer que ces deux variables sont liées. Nous allons utiliser les résultats obtenus sur les éprouvettes EC1 et EC2 pour déterminer ces relations en fonction du niveau de contrainte.

### II.3.1/ Contrainte maximale inférieure à la limite élastique de l'austénite

Nous allons utiliser les résultats obtenus au cours des 10 cycles à 450 MPa réalisés sur l'éprouvette EC1. Le dosage de phase, figure 3.24, indique qu'au début du dixième cycle, la quantité de martensite stabilisée est égale à 20%. La courbe de comportement macroscopique, figure 3.16, montre qu'au début de ce dixième cycle, la déformation macroscopique résiduelle est égale à 0,8%.

On considère que la déformation macroscopique résiduelle est composée d'une déformation de transformation résiduelle et d'une déformation plastique [M.P. Baron, 1998], [P. Sittner *et al.*, 2002]. La déformation de transformation résiduelle est la conséquence de la stabilisation d'une partie de la martensite pendant la charge de l'éprouvette. Mais quelle est la proportion de déformation de transformation résiduelle par rapport à la déformation de plasticité?

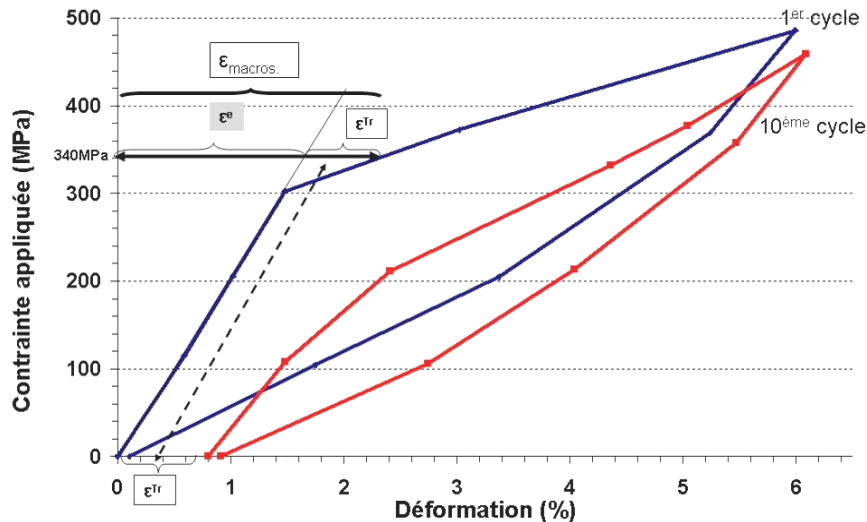
Les résultats que nous avons obtenus permettent d'apporter une réponse à cette question. A partir de la figure 3.24, nous pouvons déterminer qu'il faut appliquer une contrainte de 340 MPa lors du premier cycle de chargement pour induire 20% de martensite, une quantité qui correspond à la fraction de martensite stabilisée observée au début du dixième cycle. En reportant la valeur de 340 MPa sur la courbe de comportement macroscopique (cf. figure 3.16) nous déterminons la valeur de la déformation macroscopique  $\epsilon^{macro}$  correspondante. La contrainte appliquée étant inférieure à la limite élastique de l'austénite, la déformation  $\epsilon^{macro}$  est composée d'une déformation élastique  $\epsilon^e$  et de la déformation de transformation  $\epsilon^{Tr}$  (cf. figure 3.26). L'application de la loi de Hooke permet de déterminer la valeur de la déformation élastique :

$$\epsilon^e = \frac{\Sigma}{E} \quad (3.4)$$

avec  $\Sigma$  la contrainte macroscopique appliquée et  $E$  le module d'Young du matériau déterminé à partir de la courbe de comportement.

La connaissance de la déformation élastique associée à la contrainte de 340 MPa, nous permet de déterminer la valeur de la déformation de transformation  $\epsilon^{Tr}$  correspondante à la fraction volumique de 20% pour le chargement mécanique imposé à l'éprouvette EC1.

$$\epsilon^{Tr} = \epsilon^{macro} - \epsilon^e = \epsilon^{macro} - \frac{\Sigma}{E} \quad (3.5)$$



**Figure 3.26 :** Relation entre la quantité de martensite stabilisée et la déformation résiduelle pour une contrainte maximale imposée inférieure à la limite élastique de l'austénite.

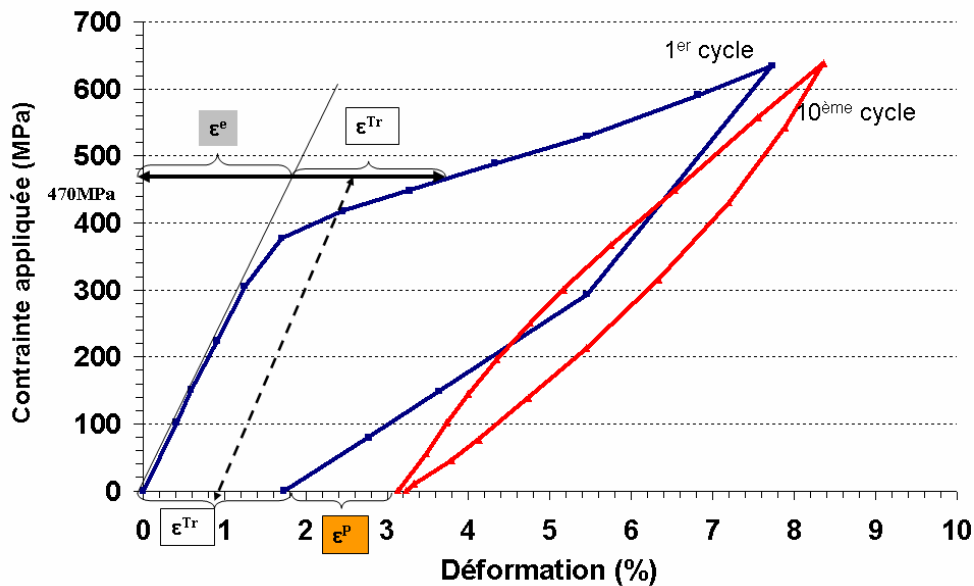
La déformation de transformation déterminée avec la relation (3.5) est égale à  $0,7\% \pm 0,1$ . Cette valeur est très proche de celle de la déformation macroscopique résiduelle mesurée au début du dixième cycle  $0,8\% \pm 0,1$  (cf. figures 3.16 ou 3.26). L'écart entre ces deux valeurs, étant du même ordre de grandeur que les incertitudes de mesure, nous pouvons conclure que dans le cas d'un chargement maximum inférieur à la limite élastique de l'austénite, la totalité de la déformation résiduelle est constituée par la déformation de transformation associée à la présence de la martensite stabilisée. Pour ce cas de chargement, la déformation plastique est négligeable.

### II.3.2/ Contrainte maximale supérieure à la limite élastique de l'austénite

Nous allons appliquer un raisonnement identique dans le cas où la contrainte maximale appliquée est supérieure à la limite élastique de l'austénite. Pour cela, nous utilisons les résultats obtenus au cours des 10 cycles à 635 MPa réalisés sur l'éprouvette EC2. La courbe de comportement macroscopique, figure 3.17, montre qu'au début du dixième cycle, la déformation macroscopique résiduelle est égale à  $3,1\% \pm 0,1$ . Le dosage de phase, figure 3.25, indique qu'au début de ce dixième cycle, la quantité de martensite stabilisée est égale à 30% et qu'il faut appliquer une contrainte de 470 MPa lors du premier cycle de chargement pour induire sous contrainte une quantité identique de martensite

En reportant la valeur de 470 MPa sur la courbe de comportement macroscopique (cf. figure 3.17) nous déterminons la valeur de la déformation macroscopique  $\epsilon^{macro}$  correspondante. Cette contrainte étant inférieure à la limite élastique de l'austénite, estimée à 600 MPa pour cet alliage, nous pouvons à nouveau considérer que la déformation  $\epsilon^{macro}$  est composée d'une déformation

élastique  $\epsilon^e$  et de la déformation de transformation  $\epsilon^{Tr}$  (cf. figure 3.27). L'application de la relation (3.5) permet de déterminer la déformation de transformation associée à la fraction volumique de 30% de martensite pour le chargement imposé sur l'éprouvette EC2. Cette déformation est égale à  $1,9\% \pm 0,1$ . Cette valeur, est très nettement inférieure à la déformation macroscopique résiduelle mesurée au début du dixième cycle (cf. figures 3.17 ou 3.27). L'écart ainsi déterminé est égal à  $1,2\% \pm 0,1$ . Il est logique d'associer cet écart à une déformation plastique  $\epsilon^P$ .



**Figure 3.27 :** Relation entre la quantité de martensite stabilisée et la déformation résiduelle pour une contrainte maximale imposée supérieure à la limite élastique de l'austénite.

Nous pouvons en conclure que, pour un chargement à 635 MPa, la déformation macroscopique résiduelle de  $3,1\% \pm 0,1$  est composée d'une déformation de transformation résiduelle de  $1,9\% \pm 0,1$  et d'une déformation plastique  $\epsilon^P$  de  $1,2\% \pm 0,1$ .

### III/ Evolution des largeurs à mi-hauteur des pics de diffraction

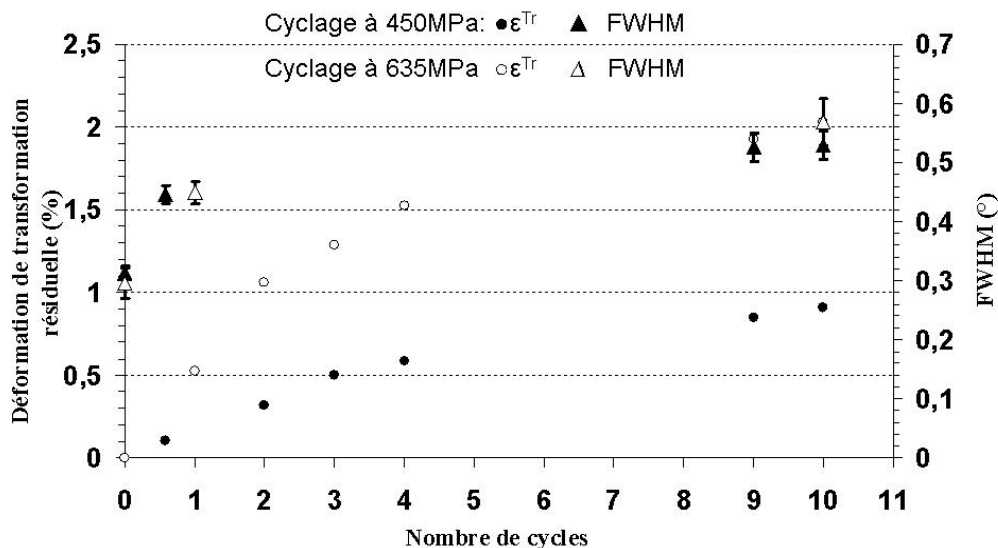
L'analyse de l'évolution de la largeur à mi-hauteur des pics de diffractions (FWHM) permet d'obtenir des informations sur les évolutions microstructurales au sein du matériau. Cette analyse a été possible grâce à l'utilisation en haute résolution du diffractomètre D20. La présence de pics étroits est associée à l'existence de domaines diffractants de grande taille, alors qu'un élargissement des pics correspond à la présence de nombreux domaines de petites tailles, faiblement désorientés les uns par rapports aux autres [L. Avril, 2003]. De nombreuses études portent sur l'analyse de ces élargissements de raies en plasticité [Z. Budrovic *et al.*, 2004], [H.

Bougrab, 2004]. Par contre, cet aspect n'a pour l'instant été que peu étudié pour la transformation martensitique et avec un appareillage de faible résolution [F. Moreau, 1998].

A partir des diffractogrammes obtenus en traction *in-situ* sur les éprouvettes EC1 et EC2 nous allons déterminer l'évolution de la FWHM en fonction de différents paramètres, comme le nombre de cycles, la contrainte maximale imposée et la fraction volumique de martensite. De façon analogue au calcul de la fraction volumique globale, nous déterminons la valeur moyenne de la FWHM en considérant les sept familles d'orientation suivantes {111}, {220}, {311}, {400}, {422}, {442} et {620}.

### III.1/ Evolution en fonction du nombre de cycles

La figure 3.28 présente l'évolution de la valeur moyenne des largeurs à mi-hauteur (FWHM) en fonction du nombre de cycles pour les échantillons EC1 et EC2 (symbole : triangle).



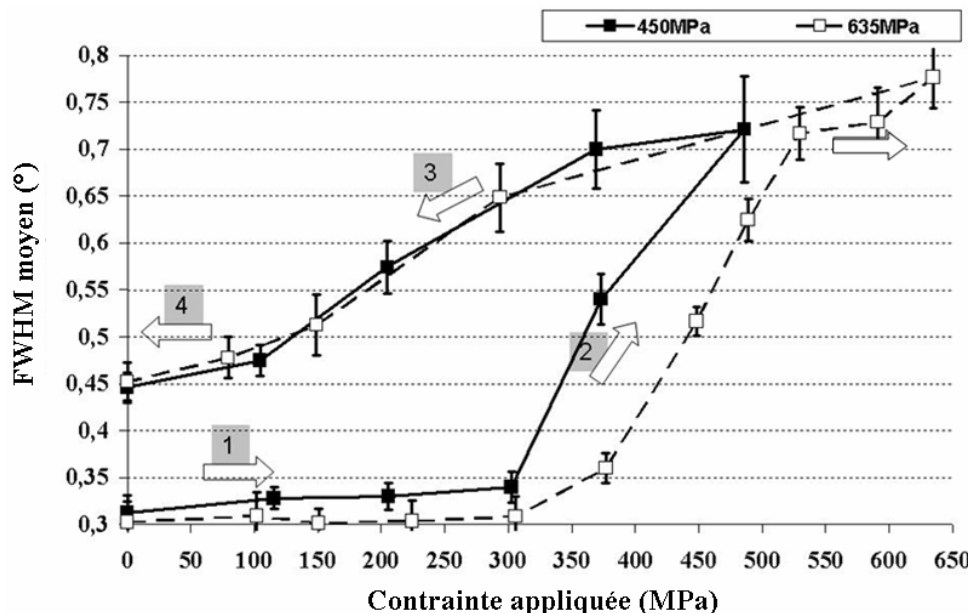
**Figure 3.28** : Comparaison entre les évolutions des FWHM moyennées et des déformations de transformation résiduelles en fonction du nombre de cycles à 450 MPa et 635 MPa.

On observe qu'il n'y a pas de différence notable entre les valeurs des FWHM obtenues suite à un cyclage à 450 MPa (symbole plein) ou à 635 MPa (symbole vide). Elles augmentent rapidement au cours du premier cycle puis semblent se stabiliser. Cette évolution est comparée à celle de la déformation de transformation résiduelle (symbole : point). La déformation de transformation résiduelle est obtenue par soustraction de la déformation plastique, déterminée au paragraphe II.3.2, à la déformation résiduelle totale. Les évolutions de la FWHM et de la déformation de transformation résiduelle suivent des tendances identiques : forte augmentation au cours des premiers cycles puis stabilisation. Cependant, une différence notable est mise en évidence : l'évolution de la déformation de transformation résiduelle est sensible à la contrainte de cyclage,

ce qui n'est pas le cas pour le FWHM. Pour le cyclage à 635 MPa (symbole vide), la déformation de transformation augmente plus rapidement que pour le cyclage à 450 MPa (symbole plein). Nous avons montré précédemment que cette différence de comportement était liée à la présence ou à l'absence d'écoulement plastique. Il n'y a pas de déformation plastique lors du cyclage à 450 MPa alors qu'elle est activée pour celui à 635 MPa. Pourtant la moyenne des FWHM augmente de la même façon dans les deux cas. Nous en déduisons que l'augmentation observée de la moyenne des FWHM au cours des premiers cycles dépend principalement de la transformation martensitique et seulement de façon marginale de la déformation plastique.

### III.2/ Evolution lors d'un essai de traction *in-situ*

La figure 3.29 représente l'évolution des FWHM moyennées en fonction de la contrainte appliquée au cours du premier cycle pour l'éprouvette EC1 (450 MPa) et EC2 (635 MPa).



**Figure 3.29** : Evolution de la FWHM en fonction de la contrainte appliquée pour le 1<sup>er</sup> cycle à 450 MPa et à 635 MPa

Quatre domaines sont observés sur ces deux courbes.

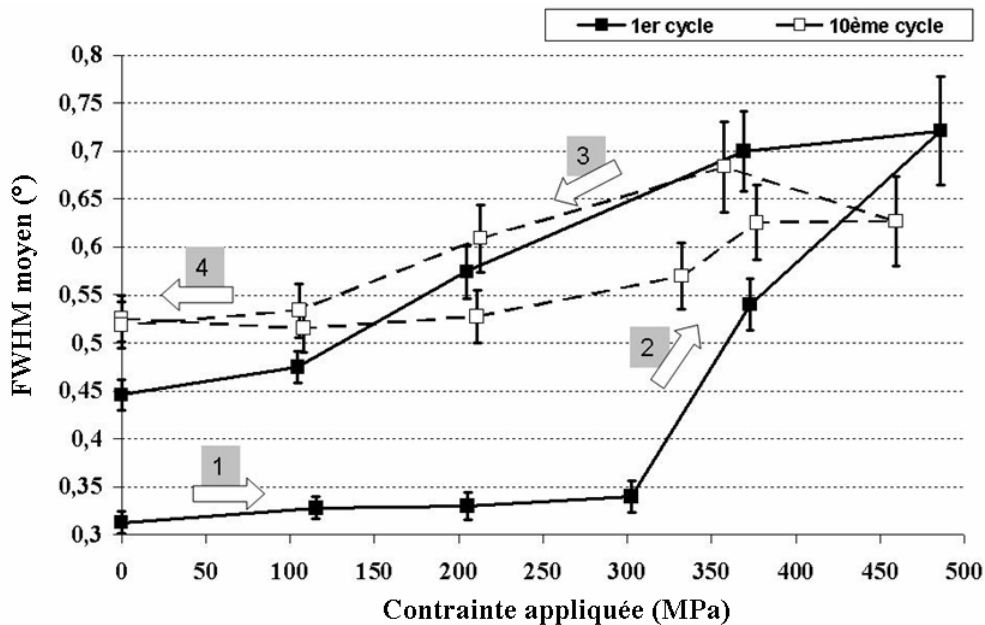
- au domaine (1) définissant le domaine élastique de l'austénite, la FWHM n'évolue pas.
- le domaine (2) débute à partir de la contrainte de transformation caractéristique de la transformation de l'austénite en martensite. Il y a concordance entre le début de transformation martensitique et l'augmentation de la FWHM moyenne. La FWHM augmente fortement et de façon presque identique pour les deux chargements. A forte contrainte, au partir de 530 MPa, la FWHM se stabilise.



- la décharge (3) se traduit par une forte diminution de la FWHM. L'évolution observée est identique pour les deux chargements.
- le domaine (4) signifiant le retour au domaine élastique de l'austénite se traduit par un plateau pour les FWHM.

Au cours de ce premier cycle, la FWHM est passée de  $0,3^\circ$  à  $0,45^\circ$  soit une hausse de 50%. Or cette hausse ne peut pas être due à la déformation plastique car à 450 MPa de cyclage, nous n'avons pas mesuré de déformation plastique. Cette observation confirme qu'en superélasticité, l'élargissement des pics de diffraction trouve son origine dans un autre mécanisme que la plasticité.

La figure 3.30 compare les évolutions de la FWHM au cours du premier et du dixième cycle pour l'éprouvette EC1 cyclée à 450 MPa. Nous y retrouvons les différents domaines notés 1, 2, 3 et 4.



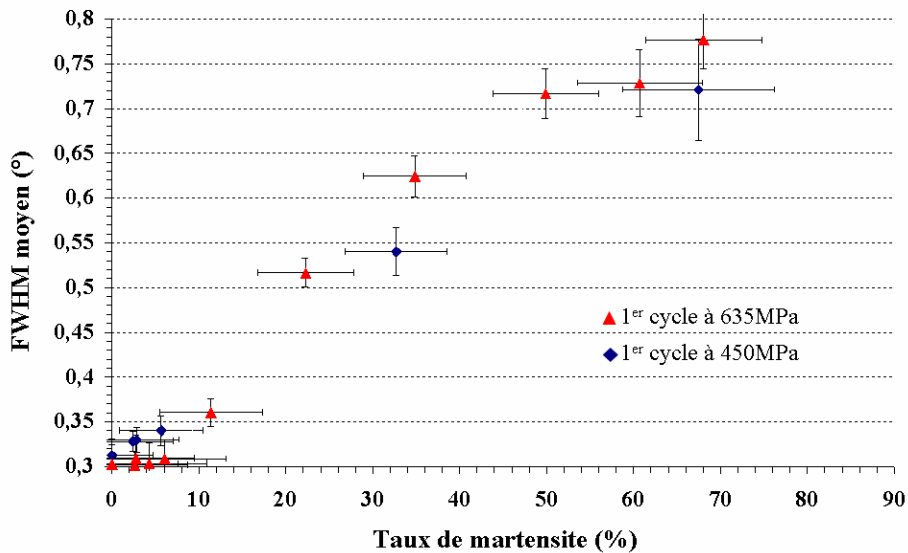
**Figure 3.30** : Evolution de la FWHM en fonction de la contrainte appliquée à 450 MPa pour le 1<sup>er</sup> et 10<sup>ème</sup> cycles

- au domaine (1), pour le dixième cycle, la FWHM débute avec une valeur plus importante qu'au premier cycle. Cette valeur initiale de  $5,25^\circ$  est aussi plus élevée que la valeur de fin de premier cycle.
- pendant la transformation sous contrainte, domaine (2), la FWHM augmente de manière beaucoup plus faible pour le dixième cycle que pour le premier.
- la décharge (3) se traduit par une diminution de la FWHM.

- le domaine élastique (4) se traduit, dans les deux cas, par un plateau pour les FWHM. On remarque que pour le dixième cycle, les valeurs de début et de fin de cycle sont identiques.

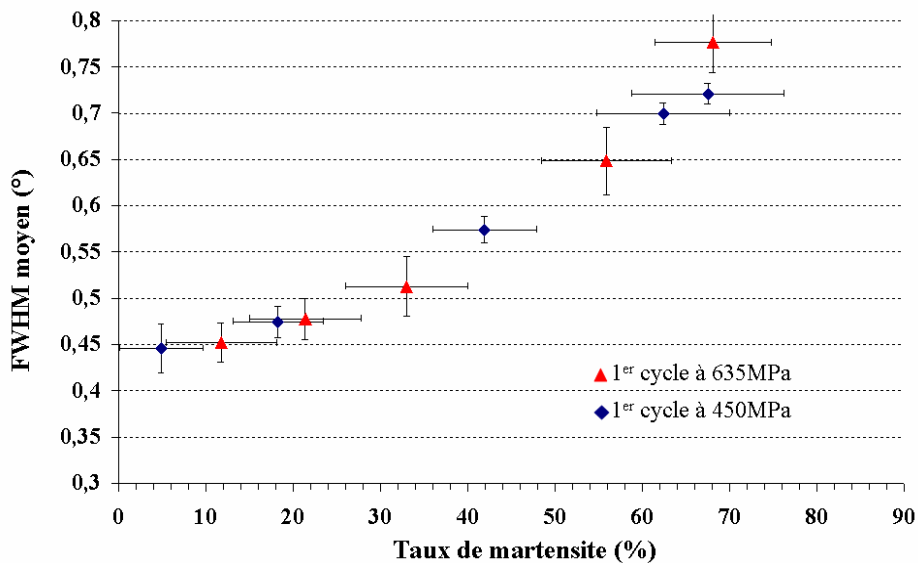
### III.3/ Evolution avec la fraction volumique

La figure 3.31 représente les évolutions des FWHM moyennées en fonction du taux de martensite pendant l'application de la contrainte au premier cycle à 490 MPa et à 635 MPa.



**Figure 3.31 :** Evolution des FWHM en fonction du taux de martensite lors de l'augmentation de la contrainte appliquée pour le premier cycle à 490 MPa et à 635 MPa

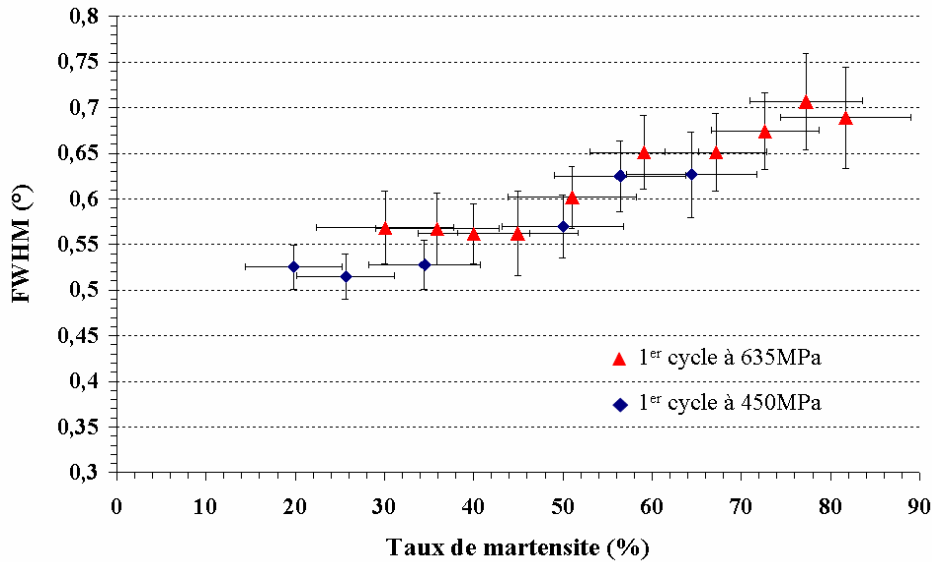
La figure 3.32 représente l'évolution de la FWHM moyennées en fonction du taux de martensite quand la contrainte appliquée est relâchée au premier cycle.



**Figure 3.32 :** Evolution des FWHM en fonction du taux de martensite lors de la diminution de la contrainte appliquée pour le premier cycle à 450 MPa et à 635 MPa

Dans les deux cas, les évolutions des FWHM déterminées pour les conditions de cyclage sont identiques. Ces évolutions suivent une courbe en S.

La figure 3.33 représente les évolutions des FWHM moyennées en fonction de la fraction volumique de martensite des cyclages à 450 MPa et 635 MPa au dixième cycle.



**Figure 3.33 :** Evolution des FWHM en fonction du taux de martensite lors de l'augmentation de la contrainte appliquée pour le dixième cycle à 450 MPa et à 635 MPa

L'évolution des FWHM en fonction du taux de martensite des deux cyclages débute par un plateau. La valeur du plateau est légèrement plus importante pour le cyclage à 635 MPa ( $0,57^{\circ} \pm 0,4^{\circ}$ ) que pour le cyclage à 450 MPa ( $0,52^{\circ} \pm 0,3^{\circ}$ ). Cependant aux incertitudes de mesures près, nous pouvons considérer les évolutions des deux courbes identiques.

### III.4/ Discussions sur les évolutions de la FWHM

L'élargissement des raies de diffraction est généralement associé aux mécanismes de déformation plastique, tels que l'augmentation de la densité de dislocation ou celle de la densité de fautes d'empilements dans certaines familles de plan. Ces mécanismes conduisent à une augmentation des hétérogénéités des contraintes intragranulaires dans le matériau.

B. Kaouache [B. Kaouache, 2006] a suivi l'évolution du tenseur des contraintes de l'austénite dans un grain d'une éprouvette polycristalline à gros grain de l'AMF CuAlBe. Cette analyse des contraintes a été corrélée à l'évolution microstructurale au cyclage. Il a ainsi montré que l'apparition de la composante ( $\sigma_{22}$ ) au cours du cyclage n'est pas due à une modification du

champ de contraintes résiduelles dans le grain mais plutôt aux interactions intergranulaires et en particulier aux incompatibilités de déformations de grains voisins se transformant bien.

Ses résultats ont également montré que les changements les plus marqués interviennent aux cours des premiers cycles. Par exemple, la contrainte de début de transformation diminue entre le premier et le cinquième cycle. Après le cinquième cycle, le comportement mécanique, l'évolution des contraintes internes déterminées et la fraction de martensite observée restent stables à chaque cycle.

Pour chaque cycle, même si la contrainte macroscopique de transformation et la contrainte interne  $\sigma_{11}$  de transformation baissent, les calculs des cissions critiques de transformation dans le grain analysé confirment qu'elles restent identiques et sont le critère déterminant de la transformation.

Dans notre étude, l'analyse des diffractogrammes obtenus sur les échantillons EC1 et EC2 en traction *in-situ* montre que la transformation martensitique possède un mécanisme particulier responsable des élargissements de raies observés en superélasticité. L'analyse réalisée pour deux niveaux de contrainte met clairement en évidence que dans notre cas la plasticité ne joue qu'un rôle tout à fait marginal dans les évolutions observées de FWHM. Ce résultat est très important car il met en évidence l'existence d'un nouveau mécanisme en rapport avec la transformation martensitique dans les grains du polycristal.

Les résultats obtenus montre que ce mécanisme est peu sensible au niveau de contrainte imposé, il semble corrélé à la fraction globale de martensite et ses effets évoluent en cours de cyclage. L'analyse macroscopique réalisée dans ce chapitre, ne permet pas d'identifier le mécanisme en question. Pour cela il est nécessaire de réaliser des études à des échelles plus fines. Cela constitue l'objet des chapitres suivants.

## **Conclusion**

Les résultats présentés dans ce chapitre portent sur l'échelle du volume élémentaire représentatif dans le polycristal. Les analyses ont été réalisées par diffraction de neutrons à l'ILL et leur réalisation a nécessité d'adapter de tenir compte de l'influence des taches de diffraction de la martensite sur la forme des pics de diffraction de l'austénite. Après traitement des pics, seules les données relatives à l'austénite ont été conservées. Cette étude à l'échelle du VER a été effectuée sur des éprouvettes à petits grains en utilisant deux lignes de diffractions, les lignes SALSA et D20. Les mesures réalisées sur SALSA, ont été utilisées pour déterminer l'évolution de la

contrainte moyenne dans l'austénite au cours d'un essai de traction uniaxial. Les mesures réalisées sur D20 ont permis de relier la déformation résiduelle accumulée au cours des premiers cycles de chargement mécanique à la quantité de martensite stabilisée par ce chargement.

L'analyse de contrainte en volume réalisée sur la ligne de diffraction de neutrons SALSA confirme l'existence d'un transfert de contrainte entre l'austénite et la martensitique. La contrainte dans l'austénite, ainsi déterminée, est identique à celle obtenue lors d'une analyse en surface par diffraction des rayons X de laboratoire. Les valeurs ne diffèrent qu'à forte contrainte appliquée. Il est cependant difficile de conclure, à partir d'une seule mesure, que l'intensité de la contrainte déterminée en volume est supérieure à celle déterminés en surface du fait de l'influence des incompatibilités de déformation entre grains à l'intérieur du volume d'analyse. Il sera nécessaire de confirmer ou infirmer ce résultat à l'aide d'une nouvelle campagne d'essai.

Le dosage de phase réalisé sur la ligne D20 met en évidence l'importance du niveau de contrainte maximum imposé au cours d'un cyclage. Conformément aux résultats présents dans la littérature, après décharge totale de l'échantillon nos mesures indiquent la présence de martensite stabilisée et celle d'une déformation résiduelle macroscopique. La présente analyse montre que pour une contrainte maximale inférieure à la limite élastique de l'austénite, le chargement n'induit qu'une faible quantité de martensite stabilisée et que cette fraction de martensite est responsable de la totalité de la déformation résiduelle observée. A l'inverse, pour une contrainte supérieure à la limite élastique, la quantité de martensite stabilisée bien que s'accroissant fortement n'est plus associée qu'à une partie de la déformation résiduelle observée. Une proportion importante de cette déformation est maintenant d'origine plastique.

Les résultats obtenus sur la ligne de diffraction D20 ont également permis de suivre l'évolution de la valeur moyenne des largeurs à mi hauteurs (FWHM) des pics de diffraction en fonction du nombre de cycles et du niveau de contrainte appliquée. Si ce type d'analyse est relativement courant pour le comportement plastique, son application à l'étude de la transformation martensitique est une première. Classiquement, l'élargissement des raies de diffraction est associé à des phénomènes tels que l'augmentation de la densité de dislocations ou celle des fautes d'empilements. La présente analyse montre qu'il n'y a pas de différence significative du niveau de contrainte appliquée sur l'évolution des valeurs de FWHM au cours du cyclage et que cette évolution semble indépendante de la présence ou non d'une composante plastique de déformation. Nous en déduisons que l'augmentation observée de la moyenne des FWHM dépend

essentiellement de la transformation martensitique. Ce résultat est très important car il montre clairement que le mécanisme qui conduit à une augmentation des hétérogénéités intragranulaires dans ces matériaux est lié à la transformation de phase et non à la plasticité. Pour tenter d'identifier ce mécanisme nouveau, nous allons réaliser dans le chapitre suivant une analyse grain à grain.

## **CHAPITRE IV : Analyse à l'échelle mésoscopique**

<b>Introduction</b>	P.119
<b>I/ Procédure expérimentale</b>	P.119
<b>II/ Mise au point de la méthode d'analyse pour un alliage biphasé</b>	P.123
II.1/ Présentation	P.123
II.2/ Evolution des taches de diffraction	P.123
II.2.1/ Evolution de l'intensité en fonction d'oméga	P.125
II.2.1.1/ Lors de l'augmentation de la contrainte appliquée	P.125
II.2.1.2/ Lors de la diminution de la contrainte appliquée	P.126
II.2.2/ Elargissement de la tache de diffraction dans les directions $\eta$ et $\theta$	P.128
II.2.3/ Discussion	P.129
II.3/ Détermination de l'orientation cristallographique de l'austénite : influence des deux méthodes d'affinement des paramètres de maille	P.129
<b>III/ Résultats</b>	P.131
III.1/ Evolution de l'orientation	P.131
III.1.1/ Evolution de l'orientation à la charge	P.131
III.1.2/ Evolution de l'orientation à la décharge	P.133
III.2/ Evolution de l'orientation pour les 4 grains au cours du cycle superélastique	P.135
III.3/ Evolution du facteur de Schmid des variantes les mieux orientées	P.137
<b>IV/ Discussions</b>	P.138
<b>Conclusion</b>	P.140

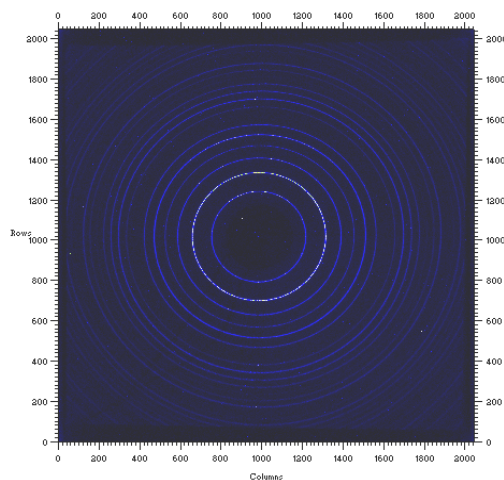
## Chapitre IV : Analyse à l'échelle mésoscopique

### Introduction

Après avoir étudié le comportement du polycristal à l'échelle macroscopique, nous nous sommes intéressés au comportement local des grains du polycristal. Pour ce faire, nous avons utilisé une méthode monocristalline avec les rayons X du rayonnement synchrotron, la méthode 3DXRD. C'est la seule nous permettant d'obtenir des informations en volume, à l'échelle du grain, sans détruire l'éprouvette. Jusqu'à présent, cette- technique avait été appliquée à des matériaux monophasés [L. Margulies *et al.*, 2001], [G. Winther *et al.*, 2004]. Une des originalités de ce travail a été d'étendre cette méthode au cas de la transformation martensitique, c'est-à-dire avec apparition d'une seconde phase au sein du matériau.

### I/ Procédure expérimentale

Le principe de cette méthode est décrit au chapitre 2, paragraphe III.1. La première étape consiste à rechercher l'axe oméga de rotation autour duquel tourne l'échantillon. Pour cela, on utilise un cliché de diffraction d'un capillaire rempli de poudre d'hexaborure de lanthane ( $\text{LaB}_6$ ) (cf. figure 4.1).



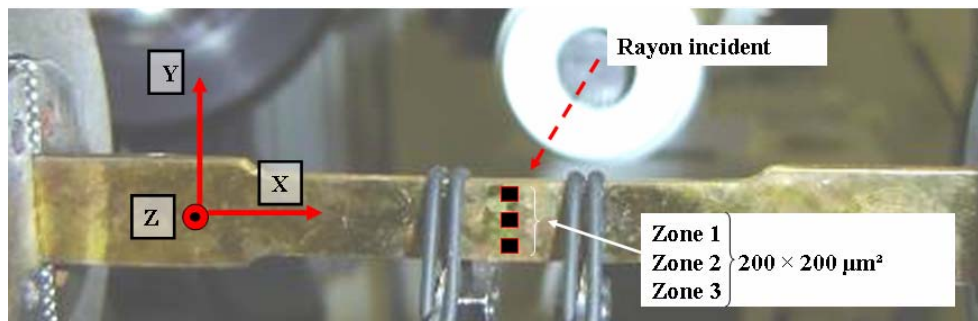
**Figure 4.1** : Cercles de Debye-Scherrer de la poudre de  $\text{LaB}_6$

Les cercles de Debye-Scherrer de la poudre de  $\text{LaB}_6$  sont continus et fins. Ceci est dû à la présence de grains fins avec des orientations aléatoires. La connaissance cristallographique parfaite de ce composé permet de calibrer la distance axe oméga - détecteur (293,557 mm) et l'énergie du rayonnement utilisé (80 keV soit  $\lambda$  égal à 0,1547 Å).



Le point d'intersection entre l'axe de rotation oméga et le faisceau incident est un point invariant fixé au centre du volume de notre échantillon. Ainsi, un repère visuel est inscrit sur la surface de l'échantillon pour replacer ce point invariant avec une précision de  $50 \mu\text{m}$ , à chaque pas de chargement. Ceci est effectué grâce à un microscope. Cette observation sous-entend que les grains à la surface de l'échantillon se déplacent dans la même direction et avec la même valeur que les grains dans le volume et que la transformation est homogène.

Dans notre étude, les mesures ont été réalisées avec un faisceau de  $200 \times 200 \mu\text{m}^2$  en trois zones de mesures distinctes de l'éprouvette plate EP2 à grains millimétrique (cf. chapitre 2 paragraphe IV.2). La figure 4.2 montre ces trois zones de mesures et le repère de l'éprouvette. La zone 1 est 2 mm au-dessus du centre, la zone 2 est au centre de l'éprouvette et la zone 3, 2 mm en dessous.



**Figure 4.2 :** Eprouvette plate EP2 à grains millimétriques sur l'installation 3DXRD avec le référentiel de l'éprouvette X, Y et Z

Dans le repère de l'éprouvette :

- X est dans la direction de traction (la direction de laminage [uvw]),
- Y est dans la direction transverse à l'éprouvette (la direction transverse [u'v'w']),
- Z est dans le sens de la normale à l'éprouvette (le plan de laminage (hkl)).

Comme nous l'avons montré dans la détermination des erreurs de mesures (cf. annexe du chapitre 2 paragraphe II.3), les grains non alignés avec le centre de rotation diffractent avec un décalage par rapport aux grains situés au centre. Ceci entraîne des erreurs lors de la conversion des valeurs en  $2\theta$  et  $\eta$ . En connaissant la forme des grains, on peut compenser ce décalage, avec une correction géométrique systématique [R.V. Martins *et al.*, 2004]. Dans notre cas, ne connaissant pas la forme des grains, seuls les grains présents tout au long de la rotation oméga ont été considérés, c'est-à-dire les grains dont la gamme d'observation en oméga s'étend entre  $-38^\circ$  et  $38,25^\circ$ .

Nous avons ainsi pu suivre quatre grains qui correspondaient à ce critère : le grain 1 est situé dans la zone 1, le grain 2 dans la zone 2 et les grains 3 et 4 dans la zone 3.

Le tableau 4.1 donne l'orientation cristallographique initiale de chacun de ces grains. La figure 4.3 montre leurs représentations sur une figure de pôles inverse dans la direction de traction.

Grain	Direction X : Direction de laminage [UVW] et Direction de traction	Direction Y : Direction transverse [U'V'W']	Direction Z : Plan de laminage (HKL)
1	[-0,12 ; 0,86 ; 0,49]	[0,03 ; -0,50 ; 0,87]	(0,99 ; 0,12 ; 0,03)
2	[-0,17 ; -0,95 ; 0,28]	[0,96 ; -0,22 ; -0,15]	(0,21 ; 0,24 ; 0,95)
3	[-0,81 ; -0,12 ; 0,57]	[-0,08 ; 0,99 ; 0,09]	(-0,58 ; 0,03 ; -0,82)
4	[-0,17 ; 0,50 ; 0,85]	[0,05 ; -0,86 ; 0,51]	(0,98 ; 0,13 ; 0,12)

Tableau 4.1 : Orientation cristallographique initiale des quatre grains étudiés.

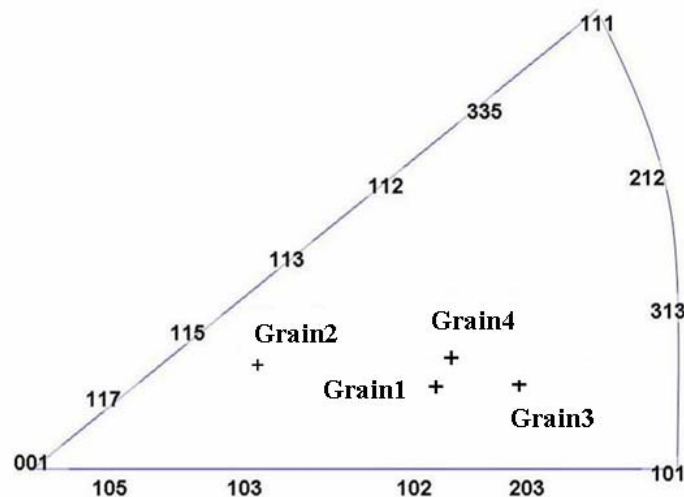


Figure 4.3 : Position des quatre grains sur une figure de pôles inverse dans la direction de traction.

Les quatre grains sont dans la partie basse de la figure de pôles inverse, entre la direction [100] qui est une direction de 'facile' transformation pour les alliages à base cuivre et la direction [110] qui est une direction 'moins facile' [P. Sittner *et al.*, 2002].

Le tableau 4.2 résume les facteurs de Schmid des 24 variantes susceptibles d'être activées dans les quatre grains. Les indices des 24 variantes sont détaillés dans l'annexe du chapitre 1. C'est le grain 2 qui a le facteur de Schmid le plus grand, 0,49. Ensuite vient le grain 4 avec 0,41 puis le grain 3 (0,40) et le grain 1 (0,31).

Variante	Grain 1	Grain 2	Grain3	Grain 4
1	-0,31	-0,38	0,06	0,14
2	0,16	0,44	-0,09	-0,30
3	-0,29	-0,35	0,28	0,20
4	0,21	0,37	-0,16	-0,27
5	0,22	-0,01	-0,24	0,41
6	-0,08	-0,04	0,08	-0,34
7	0,03	0,1	-0,21	0,22
8	-0,11	0,03	0,12	-0,36
9	-0,22	-0,43	0,05	0,23
10	<b>0,31</b>	0,31	-0,18	-0,17
11	-0,19	-0,42	0,26	0,30
12	0,25	0,38	-0,13	-0,21
13	-0,13	0,04	0,19	-0,39
14	0,22	-0,01	-0,17	<b>0,41</b>
15	-0,07	-0,04	0,14	-0,33
16	0,02	0,1	-0,14	0,21
17	0,22	0,35	-0,36	0,21
18	-0,36	-0,39	<b>0,40</b>	-0,07
19	0,24	<b>0,49</b>	-0,27	0,02
20	-0,36	-0,42	0,21	-0,12
21	-0,37	-0,44	0,18	-0,13
22	0,26	0,33	-0,36	0,23
23	-0,32	-0,43	0,41	-0,03
24	0,26	0,44	-0,32	0,03

Tableau 4.2 : Facteur de Schmid des 24 variantes susceptibles d'être activées dans les quatre grains

La figure 4.4 représente le cycle superélastique de l'éprouvette plate. Ce cycle superélastique a été enregistré par le logiciel de la machine de traction grâce à un extensomètre ajusté sur la partie analysée. Les 18 points de mesure lors du chargement mécanique et les 9 points au cours de la décharge y sont également représentés. A la décharge complète, la mesure a été répétée trois fois de suite de façon à estimer l'incertitude de mesure.

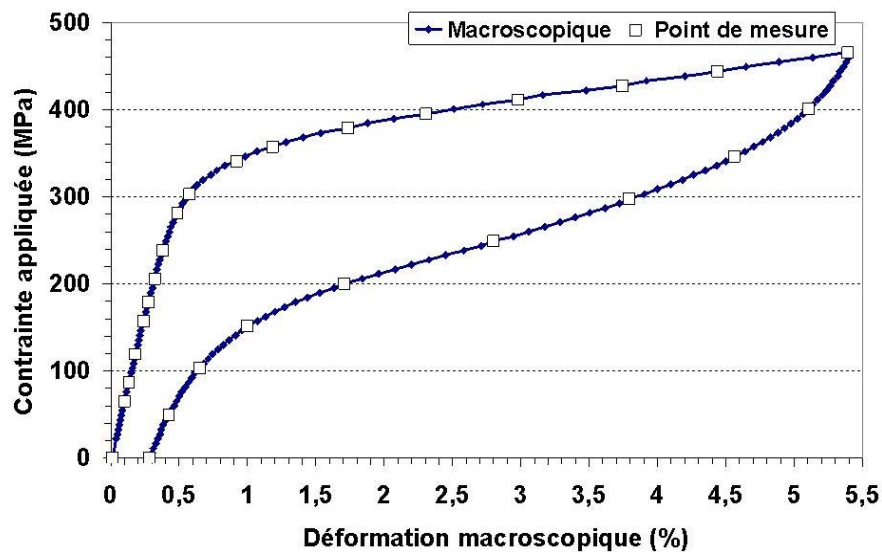


Figure 4.4 : Courbe contrainte – déformation macroscopique de l'éprouvette EP2 et les points de mesure

La courbe contrainte-déformation présente un domaine élastique jusqu'à 280 MPa. A partir de cette valeur, l'austénite se transforme progressivement en martensite jusqu'à la contrainte maximale appliquée de 465 MPa.

L'éprouvette est déformée jusqu'à 5,4% à 465 MPa de contrainte appliquée. A la décharge, une importante hystérésis est observée avec une déformation macroscopique résiduelle de 0,3%. Comme nous l'avons vu au chapitre 3, la valeur maximale de 465 MPa permet d'éviter la déformation plastique de l'austénite donc la déformation résiduelle est seulement due à la martensite résiduelle.

A chaque point de mesure, 305 clichés de diffraction ont été enregistrés. Ils correspondent à  $\omega$  variant de  $-38^\circ$  à  $38,25^\circ$  par pas équidistants de  $0,25^\circ$ . Chaque cliché de diffraction est réalisé en 3 secondes. Ces clichés ont servi à déterminer les matrices d'orientation nommées  $U^i$  de quatre grains selon la méthode de rotation développée dans l'annexe du chapitre 2 au paragraphe 2.2.

## **II/ Mise au point de la méthodologie d'analyse pour un alliage biphasé**

### **II.1/ Présentation**

Une des originalités de ce travail a été de mettre au point la méthode d'analyse pour suivre la phase austénitique au cours de l'apparition de la seconde phase. Comme mentionné au chapitre 2, elle donne accès à l'orientation de chaque grain analysé.

Dans un premier temps, l'évolution des taches de diffraction de l'austénite en fonction de la contrainte appliquée a été étudiée. Dans un deuxième temps, les calculs de l'orientation cristallographique du grain ont été effectués avec 2 options différentes :

- *Option 1* : affinement du produit inverse  $(UB)^{-1}$  de  $U^i$  (matrice d'orientation) et de B (matrice des paramètres de maille).
- *Option 2* : affinement de  $U^i$  seule en considérant la matrice B constante.

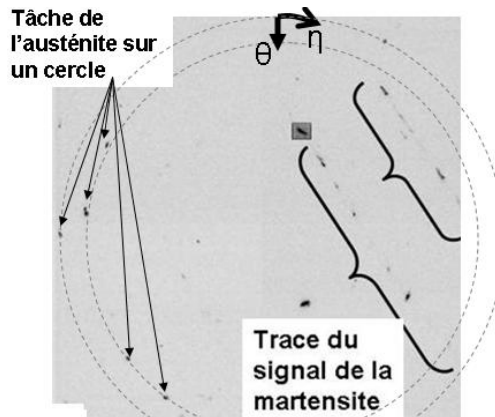
Puis, une fois la mise au point de la méthodologie établie, les données provenant des quatre grains ont été analysés afin de caractériser l'influence de l'orientation initiale du grain lors d'un cycle superélastique.

### **II.2/ Evolution des taches de diffraction**

La figure 4.5 présente un exemple d'image de diffraction obtenue pour un  $\omega$  donné, de l'éprouvette EP2 sollicitée à la contrainte maximale (465 MPa).

On rappelle les deux axes de coordonnées des taches de diffraction sur le détecteur :

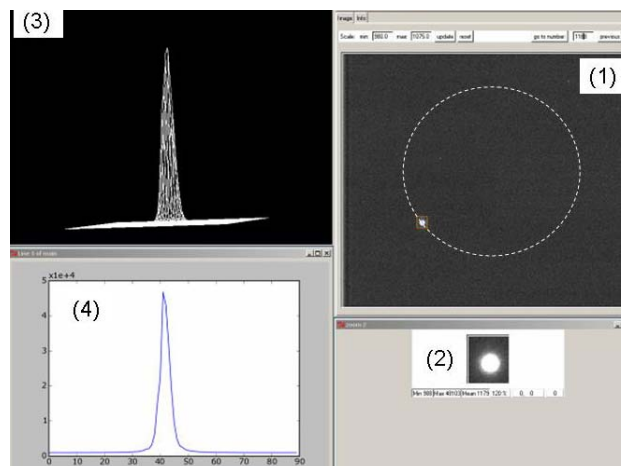
- $\eta$  représente la position le long du cercle de Debye-Scherrer,
- $\theta$  représente le rayon des cercles correspondant à différentes familles de plans.



**Figure 4.5** : Cliché de diffraction de l'éprouvette EP2 sollicitée à 465 MPa. Taches de l'austénite sur les cercles de Debye-Scherrer et de la martensite sous forme de taches allongées et alignées par diffraction de rayonnement synchrotron.

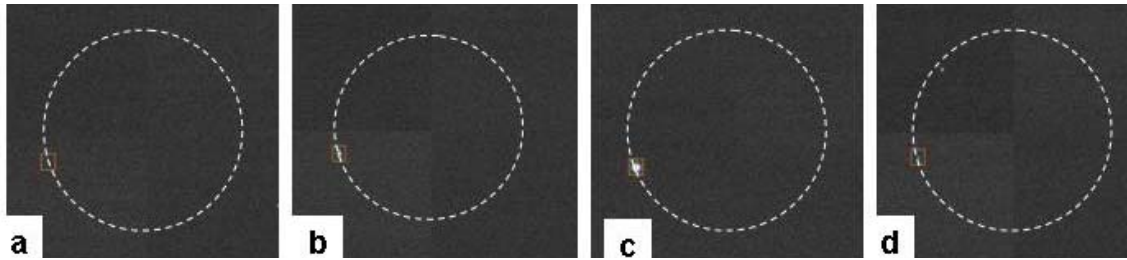
Sur ce cliché, des taches de diffraction de l'austénite (phase  $\beta$ ) sont observés le long des cercles de Debye-Scherrer et des taches de la martensite formant des lignes. Les cercles de Debye-Scherrer sont discontinus, preuve d'un signal de grains de tailles importantes par rapport à la taille du faisceau. L'intérêt de cette première partie est de vérifier que les taches servant à calculer l'orientation proviennent effectivement de l'austénite et non des taches de martensite.

Pour mesurer l'intensité et le profil des taches d'austénite, le logiciel Fabian [1] a été utilisé. La figure 4.6 montre les possibilités de ce logiciel : il permet pour chaque image du détecteur (1), de définir un zoom (2), un tracé en 3 dimensions (3) et un profil en 2 dimensions selon la direction  $\theta$  (4).



**Figure 4.6** : Profil de la tache de diffraction (220) à la contrainte initiale 0 MPa avec le logiciel Fabian. (1) Image du détecteur, (2) Zoom, (3) Tracé en 3 dimensions (4) Profil en 2 dimensions selon la direction  $\theta$ .

La figure 4.7 montre les clichés de diffraction (l'image du détecteur (1)) acquis durant quatre rotations oméga consécutives.



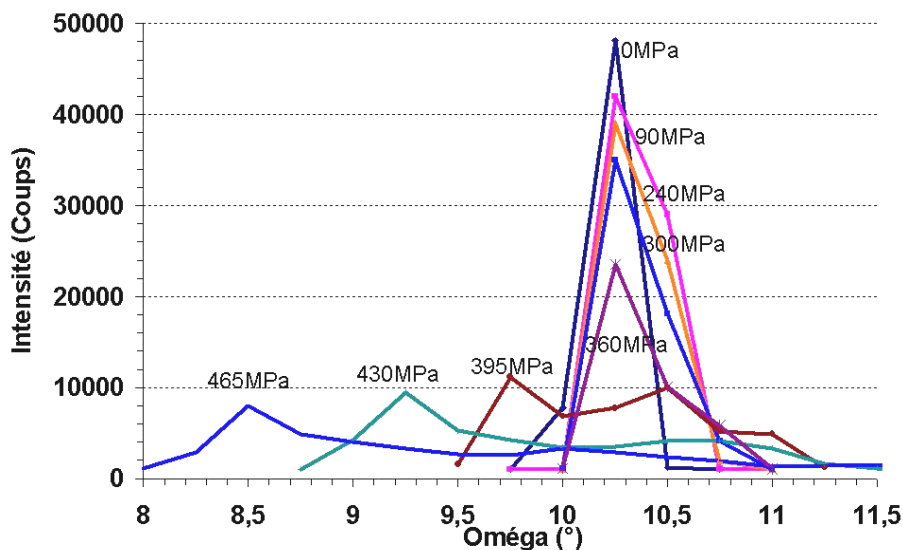
**Figure 4.7 :** Evolution d'une tache de diffraction (220) pour une contrainte appliquée de 0 MPa à différents  $\omega$  (a/  $9,75^\circ$ , b/  $10^\circ$ , c/  $10,25^\circ$ , d/  $10,5^\circ$ ),  $2\theta = 4,3^\circ$  et  $\eta = 255,6^\circ$ .

La tache de diffraction apparaît quand la loi de Bragg est satisfaite, c'est-à-dire lorsque les points du réseau réciproque sont sur la sphère d'Ewald ou en sont très proches. Pendant la rotation de l'échantillon, l'intersection continue entre le vecteur de diffraction et la sphère d'Ewald est observée par la variation de l'intensité de la tache de diffraction. Ainsi dans notre exemple, l'intensité de la tache est maximale à oméga égal à  $10,25^\circ$  (cf. figure 4.7c).

## II.2.1/ Evolution de l'intensité en fonction d'oméga

### II.2.1.1/ Lors de l'augmentation de la contrainte appliquée

Logiciel Fabian a été utilisé pour suivre l'évolution de l'intensité d'une tache (220) en fonction d'une augmentation de la contrainte appliquée. La tache (220) a été choisie car elle est la plus intense. La figure 4.8 montre la position en oméga lorsque la contrainte appliquée augmente.



**Figure 4.8 :** Evolution de l'intensité d'une tache de diffraction de (220) de l'austénite et de sa position en oméga en fonction de la contrainte appliquée.

Pour ne pas surcharger les figures, nous avons choisi de représenter seulement huit points en charge (sur les dix huit mesurés). Ces points ont été choisis de façon à avoir une augmentation d'une centaine de méga Pascals (MPa) pendant la déformation élastique de l'austénite puis une augmentation d'une quarantaine de MPa une fois la transformation commencée (à partir de 300 MPa).

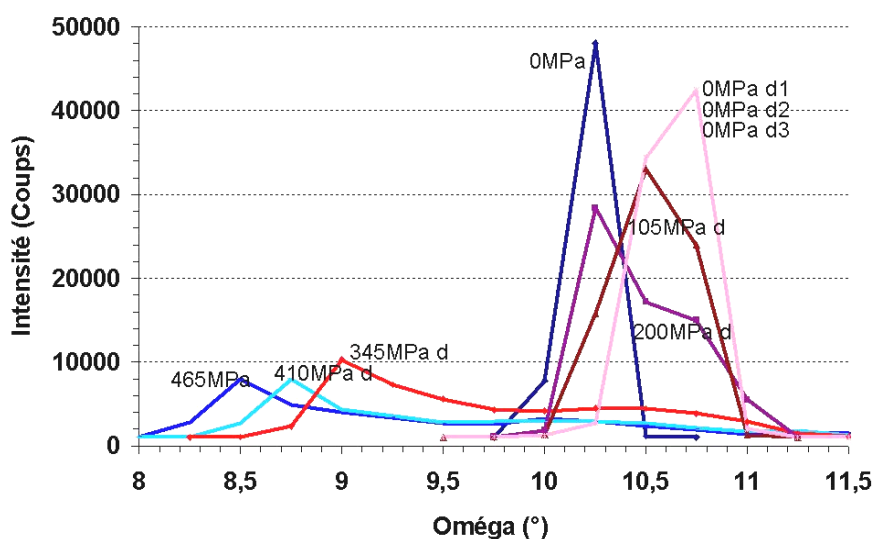
De 0 MPa à 300 MPa, dans le domaine élastique de l'austénite, l'aire sous le pic diminue très faiblement et oméga a une valeur de  $10,25^\circ$ . Dès le début de la transformation martensitique (à 360 MPa) l'aire diminue fortement. Oméga a encore une valeur de  $10,25^\circ$  à cette contrainte appliquée.

L'apparition de deux maxima s'opère à partir de 395 MPa, et l'intensité du pic diminue encore alors qu'il s'élargit. Le premier maximum s'observe à  $9,75^\circ$  et le second à  $10,5^\circ$ .

A 430 MPa, l'un des maxima a tourné jusqu'à  $9,25^\circ$  tandis que le second n'a pas tourné et a même presque disparu. A la contrainte maximale de 465 MPa, le seul maximum restant a une position en oméga de  $8,5^\circ$ . Cette tache a donc tourné d'un angle de  $1,75^\circ$  par rapport à l'état initial. La tache de diffraction (220) appartenant à l'austénite a donc été suivie lors d'une augmentation de la contrainte appliquée de 0 MPa à 465 MPa.

### II.2.1.2/ Lors de la diminution de la contrainte appliquée

De la même façon, il nous a fallu être sûr que lors de la décharge, les taches analysées soient celles de l'austénite. Pour ne pas surcharger les figures seulement cinq points en décharge ont été sélectionnés (sur les neuf mesurés). La figure 4.9 représente cette même tache (220) lors de la décharge.



**Figure 4.9** : Evolution de l'intensité des taches de diffraction de (220) et de leurs positions en oméga en fonction de la contrainte appliquée.

Les valeurs de la contrainte appliquée initiale (0 MPa) et maximale (465 MPa) ont été ajoutées pour suivre l'évolution de l'intensité. Le symbole \_d signifie que l'on est en décharge tandis que 0 MPa\_d1, 0 MPa\_d2 et 0 MPa\_d3 sont trois points mesurés à 1 minute d'intervalle lors de la décharge totale.

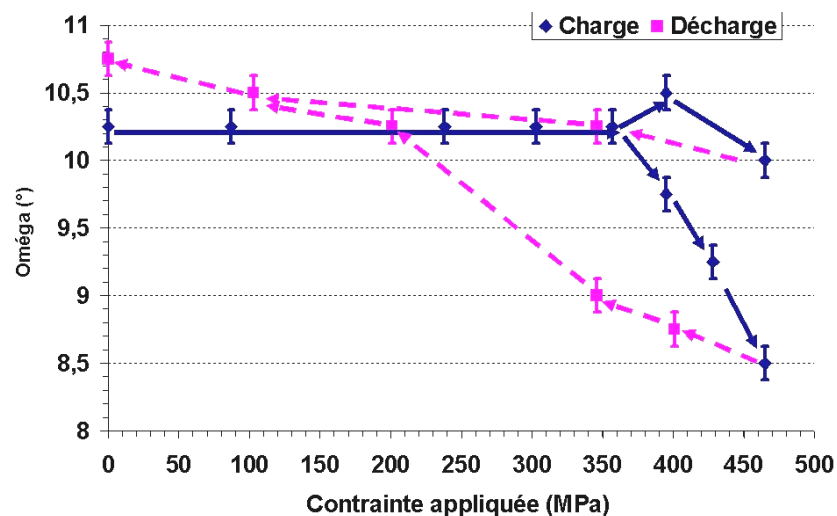
De 465 MPa à 410 MPa, le maximum se déplace de 8,5° à 8,75° sans changer de forme.

A 345 MPa, l'intensité du pic augmente à nouveau et sa position en oméga tourne à 9°.

A 200 MPa, le pic se rétrécit et deux maxima se reforment, l'un à 10,25°, l'autre à 10,75°.

Finalement, les trois derniers pics à la décharge totale (0 MPa d1, 0 MPa d2 et 0 MPa d3) sont à la même position en oméga à 10,75°. Ces 3 pics servent à estimer l'incertitude de mesure. Dans le cas de (220), les mesures sont reproductibles : On obtient exactement les mêmes pics. L'aire sous ces trois derniers pics est égale à l'aire sous le pic à charge initiale, le volume d'austénite est donc le même. Par contre, ces trois derniers pics ne reviennent pas exactement à la valeur en oméga lors de l'état initial. On observe une différence de 0,5°.

Pour faciliter l'observation, la figure 4.10 montre l'évolution de la position oméga de deux maxima de (220) en fonction de la contrainte appliquée.



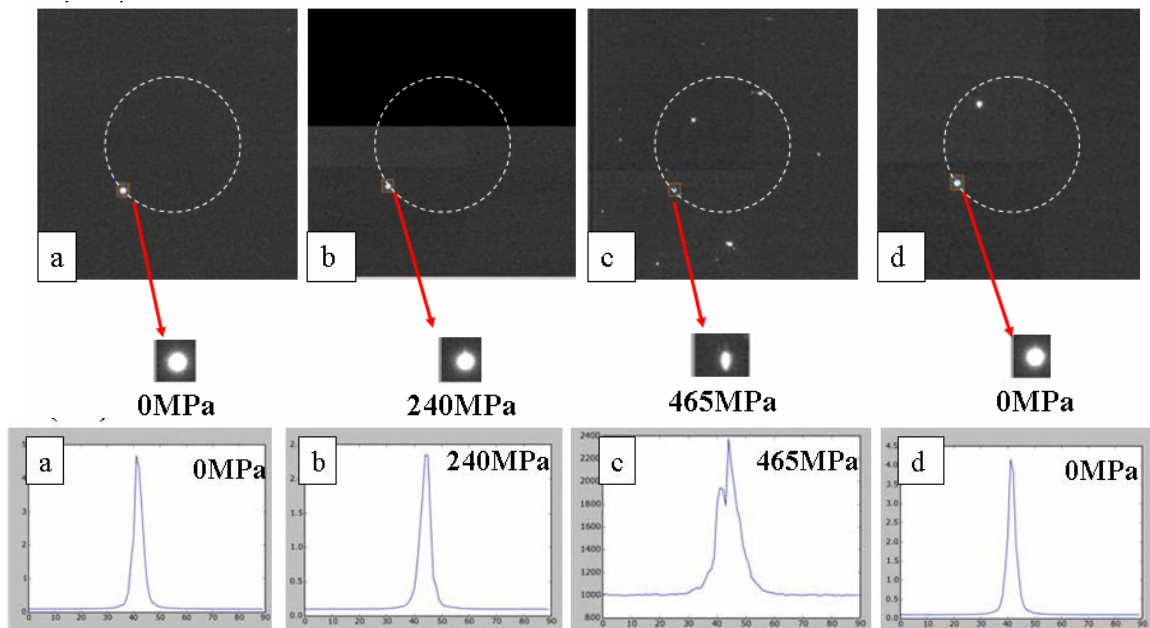
**Figure 4.10 :** Evolution de oméga pour deux maxima de la tache (220) en fonction de la contrainte appliquée.

De 0 MPa à 360 MPa un seul maximum est observé et celui-ci ne change pas de position en oméga. A partir de 360 MPa, deux maxima se forment et prennent une orientation différente. L'un atteint 8,5° à la contrainte appliquée maximale, l'autre, après avoir très légèrement tourné de 0,25°, revient à la valeur d'angle oméga initiale. A la décharge, une hystérésis est observée pour le sous domaine le plus éloigné de la position initiale. Finalement, à la décharge totale, un seul domaine subsiste en oméga égal à 10,75°.



## II.2.2. Elargissement de la tache de diffraction dans les directions $\eta$ et $2\theta$

Comme nous venons de le voir, l'étalement des taches de diffraction dans le sens de rotation  $\omega$  est relativement facile à observer et à quantifier. Cependant, l'élargissement des taches de diffraction a lieu dans les trois directions  $\omega$ ,  $\eta$  et  $\theta$ . On parle donc des élargissements (FWHM)  $\Delta\omega$ ,  $\Delta\eta$  et  $\Delta\theta$  des taches. A titre d'exemple, la figure 4.11 montre quelques clichés de l'étalement de la tache (220) en  $\theta$ . En annexe du chapitre 4 est inséré le suivi de 3 taches de diffraction d'austénite lors d'un cycle superélastique. Une tache représentant (200) et deux taches (220).



**Figure 4.11** : Evolution d'une tache (220) à a/ l'état initial b/ 240 MPa, c/ 465 MPa et d/ la décharge  
En haut : Image de la tache sur le détecteur avec un zoom de la tache.  
En bas : Coupes selon  $\theta$  des mêmes taches pour évaluer leur FWHM

Sur cette figure, une tache (220) est suivie lors de différentes contraintes appliquées avec une position en  $\omega$  constante. Donc cette fois-ci,  $\omega$  est constant et les évolutions de forme de la tache sont observées.

A la charge initiale, l'intensité du pic de forme circulaire est de 48000 coups.

A 240 MPa, la tache est toujours circulaire et son intensité maximale est de 24000 coups.

A 465 MPa, la tache est en forme d'ovale tandis que son intensité a diminué à 2400 coups.

Lorsque la contrainte appliquée est totalement relâchée, la forme du pic redevient circulaire et son intensité remonte à 42000 coups.

Pour une étude systématique des taches, c'est-à-dire l'évolution des projections selon  $\omega$ ,  $\theta$  et  $\eta$ , un logiciel en cours de développement doit être utilisé. L'idée de ce logiciel est survenue lors de ce travail. Il permettra d'automatiser la recherche des pics d'austénite, leurs indexations et

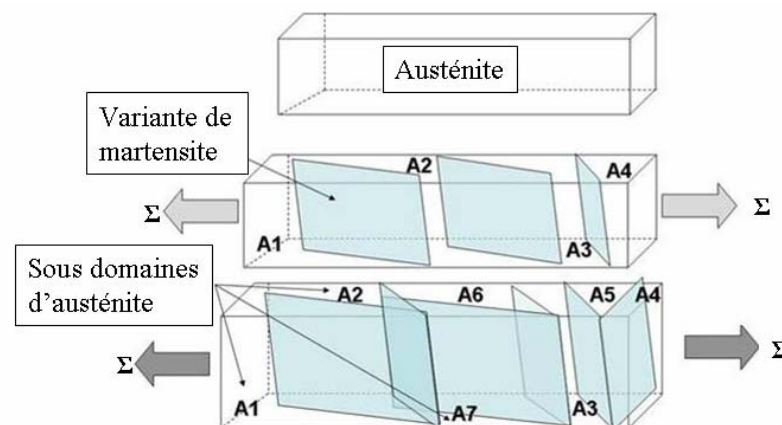
l'évolution de leurs différents élargissements. Nous ne sommes pas allés plus loin dans ce type d'analyse manuelle systématique qui est extrêmement longue à mettre en œuvre et pourra être une des perspectives de ce travail une fois le logiciel opérationnel.

### II.2.3/ Discussion

A partir d'une certaine contrainte appliquée les taches d'austénite initiales se divisent. Ces différentes taches de diffraction indiquées sur les figures 4.8 et 4.9 par les maxima observés en fonction d'oméga amènent à considérer l'observation de sous-domaines d'austénite légèrement désorientés les uns par rapport aux autres.

B. Jakobsen *et al.* [B. Jakobsen *et al.*, 2006] ont déjà montré que les évolutions des intensités intégrées et des largeurs à mi hauteur (FWHM)  $\Delta\eta$  des taches de diffraction, avec la méthode 3DXRD, correspondent à des concentrations et à des tailles de dislocations dans des sous-domaines mesurés précédemment par microscopie électronique à transmission.

La figure 4.12 schématise l'apparition possible des sous-domaines d'austénite lorsqu'une plaquette de martensite se crée dans un grain d'austénite lors d'une contrainte appliquée.



**Figure 4.12 :** Apparition des variantes de martensite en fonction de l'augmentation de la contrainte appliquée. Cette apparition sépare le grain en plusieurs sous-domaines d'austénite. A1, A2, ..., A7 correspondent aux différents sous-domaines.

La création des plaquettes de martensite scinde le grain en multiples sous-domaines légèrement désorientés les uns par rapport aux autres.

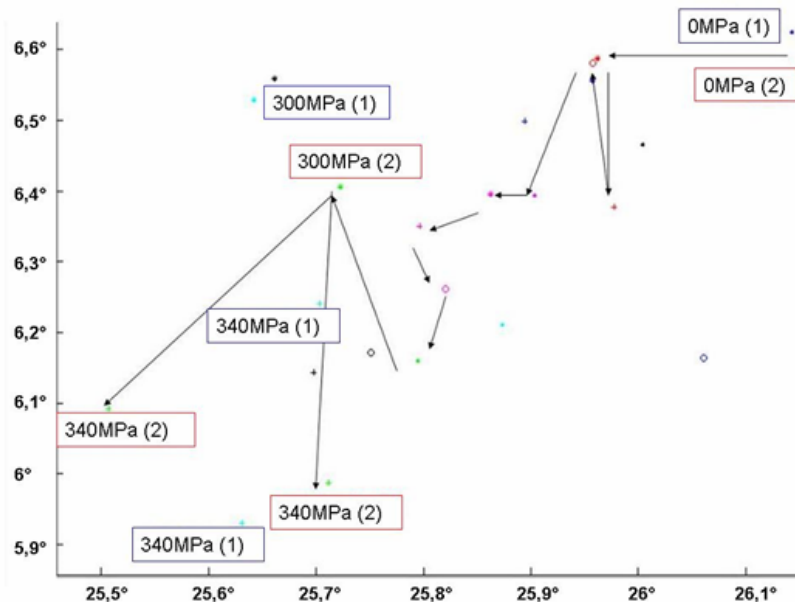
### II.3/ Détermination de l'orientation cristallographique de l'austénite : influence des deux méthodes d'affinement des paramètres de maille

Après avoir vérifié que les taches analysées appartenaient à l'austénite, l'orientation de l'austénite a été déterminée. Pour étudier l'orientation de l'austénite, *toutes les taches des familles de plans appartenant à l'austénite sont prises en compte*. Sur le détecteur, (111) est

mesurée avec un  $2\theta$  théorique de  $2,62^\circ$  puis (200), (220), (311), (222), (400), (331), (420), (422), (333), (511), (440), (511), (531), (620), (642) et enfin (800) avec un  $2\theta$  théorique de  $12,18^\circ$ . Comme indiqué dans le chapitre 2, la détermination de la matrice d'orientation  $U^i$  peut avoir lieu selon 2 options :

- (1) Option 1 : le produit  $(U^i B)^{-1}$  est affiné par ImageD11 [2]
- (2) Option 2 : on suppose B constant et on affine  $U^i$

Avec la seconde option, les valeurs des paramètres de maille de l'austénite (B) sont considérées constantes et égales à  $a_0 = 5,825 \text{ \AA}$  et  $\alpha = \beta = \gamma = 90^\circ$  [F. Moreau, 1998]. Les valeurs de la matrice  $U^i$  sont ensuite affinées grâce au logiciel Grainspotter [3]. Les valeurs de la matrice  $U^i$  avec les deux options ont été projetées sur une figure de pôles inverse (cf. figure 4.13) dans la direction de l'axe de traction.



**Figure 4.13** : Evolution de l'orientation de l'austénite projetée selon la direction de traction au cours du chargement avec les deux options d'affinement, Le chemin suivi par les flèches représente l'option 2 ( $U$  est constant).

Sur cette figure, à 300 MPa, la différence d'orientation entre les deux options (Option 1 (1) et Option 2 (2)) est inférieure à l'écart entre deux mesures ( $0,25^\circ$ ). La différence entre les deux options n'est pas importante dans le domaine élastique de l'austénite. De plus, il nous a fallu tenir compte des impératifs de temps pour réaliser ces analyses et choisir une méthode adaptée.

La méthode d'analyse à l'aide du logiciel Grainspotter automatisé (affinement de  $U^i$ ) utilise un algorithme provenant de la théorie de Rodrigues [S. Schmidt, 2007] permettant d'éviter des superpositions et des doublons de résultats (effet de pseudo maillage). Ce logiciel est rapide mais

garde un paramètre de maille constant.

Pour sa part le logiciel ImageD11 (affinement de  $(U^iB)^{-1}$ ) ne prend pas en compte l'effet de pseudo maillage et nécessite plus de temps, n'étant pas automatisé. Les paramètres de maille de l'austénite ont été affinés dans son domaine élastique avec ImageD11 puis ces valeurs ont été réintroduites comme données d'entrées dans Grainspotter. La proximité des taches de diffraction de l'austénite et de la martensite nous a renforcé dans le choix d'utiliser un algorithme robuste pour éviter la confusion lors de l'indexation entre les deux phases.

Aussi, dans la suite de ce travail, nous avons adopté la démarche suivante :

1. Dans le domaine élastique de l'austénite, nous avons utilisé l'affinement  $(U^iB)^{-1}$  avec ImageD11,
2. Durant la transformation de phase, nous avons utilisé l'affinement de  $U^i$  avec Grainspotter, en prenant les paramètres de maille affinés (B) au dernier point de chargement du domaine élastique.

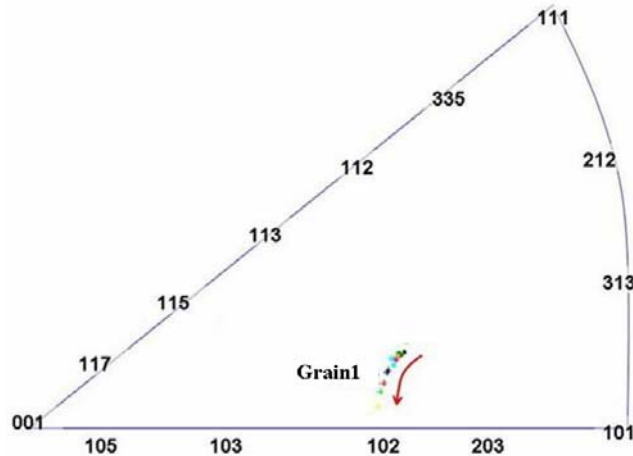
### **III. Résultats**

#### **III.1/ Evolution de l'orientation**

Les évolutions d'orientation de l'austénite pour le grain 1 sont représentées dans la direction de traction. Nous rappelons que pour déterminer les orientations, nous avons suivi l'évolution de toutes les taches des différentes familles de plans mesurées durant cette expérience. La première famille est (111) puis (200), (220), (311), (222), (400), (331), (420), (422), (333), (511), (440), (511), (531), (620), (642) et enfin (800). Grâce au logiciel Grainspotter [2], les différents paramètres de maille de l'austénite ont été calculés avec l'évolution de la matrice d'orientation U.

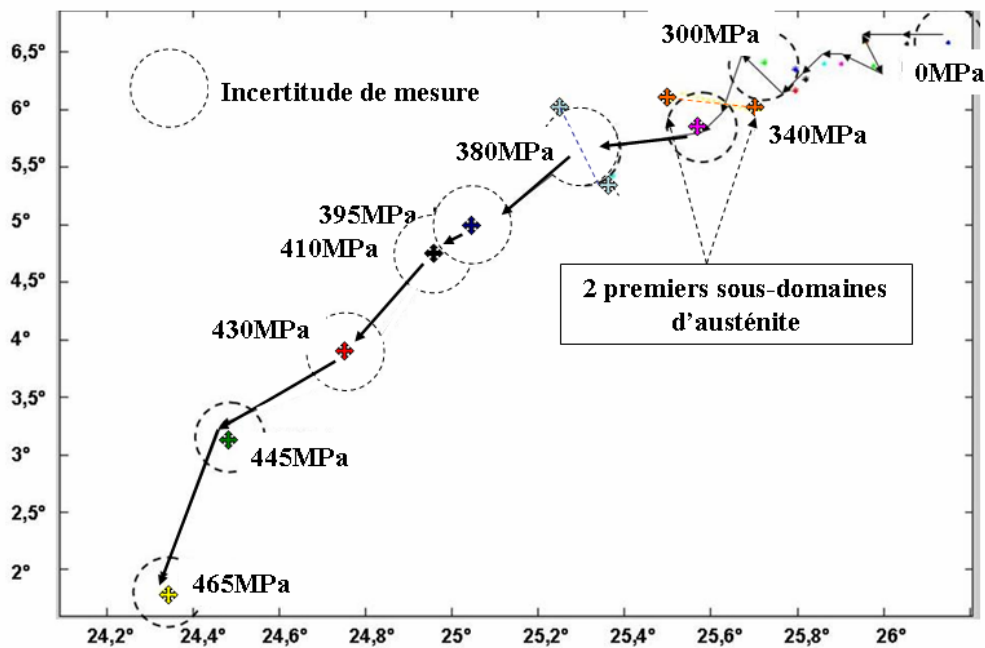
##### **III.1.1/ Evolution de l'orientation à la charge**

La figure 4.14 représente l'évolution de la matrice d'orientation du grain 1 projetée selon la direction de traction au cours du chargement de 0 MPa à 465 MPa (0% à 5,4% en déformation). Une évolution de l'orientation de l'austénite dans le grain 1 est observée. Il tourne de façon importante et sa direction d'évolution d'orientation est dirigée vers [102].



**Figure 4.14** : Représentation de l'évolution d'orientation de l'austénite dans le grain 1 sur une figure de pôles inverse dans la direction de traction. La flèche représente l'évolution de l'orientation pour une augmentation de contrainte appliquée de 0 MPa à 465 MPa (déformation 0% à 5,4%)

La figure 4.15 montre en détail les évolutions des orientations de ce grain 1 dans la direction de traction au cours du chargement.



**Figure 4.15** : Zoom sur le grain 1 de la représentation de l'évolution d'orientation de l'austénite sur une figure de pôles inverse dans la direction de traction. Les flèches représentent l'évolution de l'orientation avec la contrainte appliquée (0 MPa à 465 MPa). Les traits en pointillé représentent les sous domaines de l'austénite pour une même contrainte.

Dans la figure 4.15 apparaissent :

1. la contrainte initiale (0 MPa), la contrainte de début de transformation macroscopique (300 MPa), la contrainte maximale appliquée (465 MPa), quelques contraintes intermédiaires, les flèches indiquant le sens l'augmentation de la contrainte appliquée,

2. la dispersion d'orientation des sous-domaines. *Nous nommons « dispersion d'orientation » la différence de rotation entre les deux sous-domaines les plus éloignés.* Lorsque des sous-domaines d'austénite apparaissent, ils sont reliés par un trait en pointillé de même couleur et le centre de ces dispersions est utilisé comme orientation moyenne.
3. L'incertitude de mesure a été obtenue en analysant 3 fois le même point à la contrainte finale. Cette incertitude est représentée par un cercle en trait discontinu.

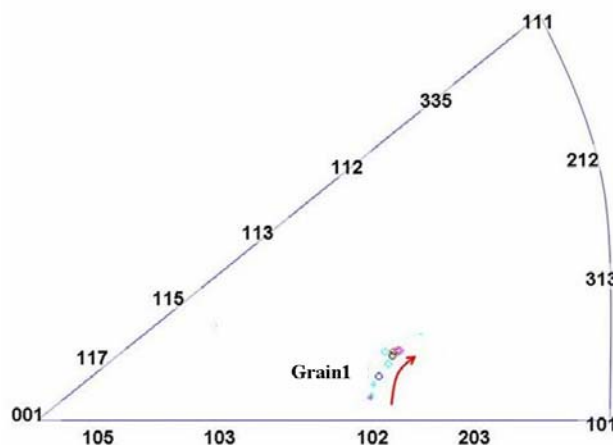
Dans le grain 1, l'orientation de l'austénite évolue de  $0,5^\circ$  de 0 MPa à 300 MPa. Puis à partir de 300 MPa, l'orientation de l'austénite évolue plus rapidement et régulièrement pour atteindre une rotation de  $1,9^\circ$  (à 410 MPa) et jusqu'à  $4,9^\circ$  (à 465 MPa). La rotation du grain est importante dès que la transformation martensitique démarre.

L'autre nouveau résultat mesuré avec cette technique est l'apparition de sous-domaines austénitiques. Pour ce grain 1, les sous-domaines s'observent à partir de la contrainte appliquée 340 MPa. Ainsi à 340 MPa, la première division du domaine austénitique initial en deux sous-domaines est observée avec une dispersion d'orientation d'environ  $0,3^\circ$ .

Il existe deux sous-domaines jusqu'à 380 MPa puis on ne suit plus qu'un seul domaine. Cette disparition peut s'expliquer par le fait qu'un des sous-domaine a tout de suite été transformé en martensite et n'est donc plus observable. Le comportement de ce grain 1 va maintenant être examiné lors de la décharge.

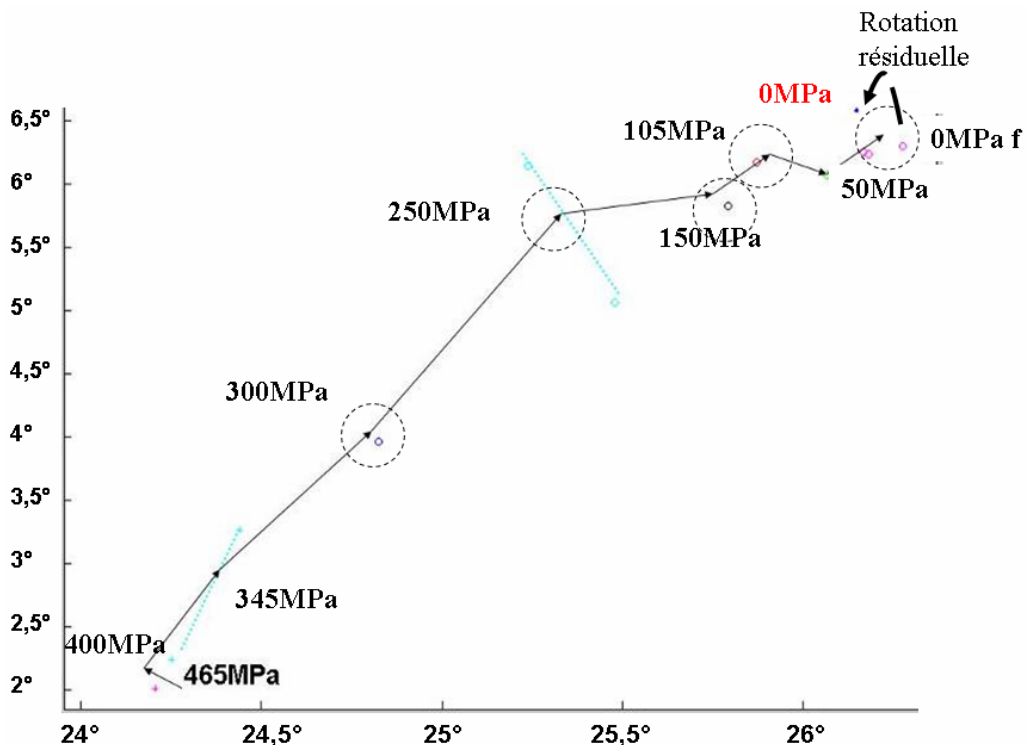
### III.1.2/ Evolution de l'orientation à la décharge

La figure 4.16 représente l'évolution de la matrice d'orientation du grain 1 projetée selon la direction de traction au cours du déchargement de 465 MPa à 0 MPa (5,4% à 0,3% en déformation).



**Figure 4.16 :** Représentation de l'évolution d'orientation de l'austénite dans le grain 1 sur une figure de pôles inverse dans la direction de traction de 465 MPa à 0 MPa (5,4% à 0,3% en déformation).

Durant la décharge, le grain 1 retourne à sa position initiale, à une « rotation résiduelle » près. Cette rotation résiduelle est la différence entre la position du grain avant et après le cycle superélastique. Cette notation fait référence à la déformation résiduelle macroscopique obtenue, après un cycle superélastique sur un polycristal. L'évolution de ce grain et la valeur de cette rotation résiduelle sont détaillées à la figure 4.17.



**Figure 4.17** : Zoom sur le grain 1 de la représentation de l'évolution d'orientation de l'austénite sur une figure de pôles inverse dans la direction de traction. Les flèches représentent l'évolution de l'orientation (465 MPa à 0 MPa). Les traits en pointillé représentent les sous domaines de l'austénite.

Sur cette figure est notée :

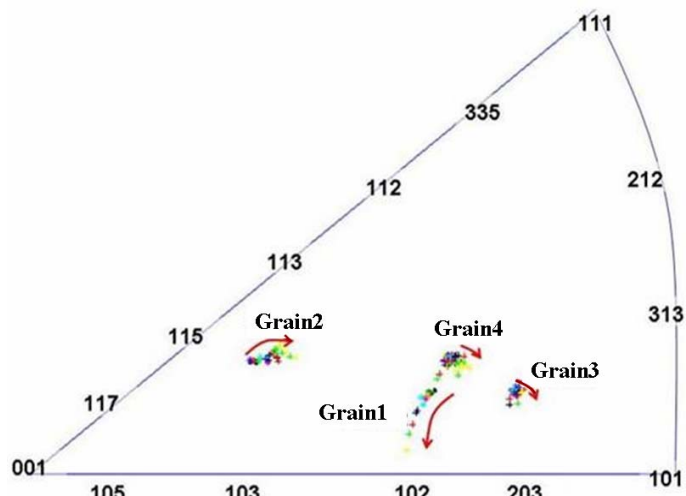
1. la contrainte maximale appliquée (465 MPa), la contrainte finale (0 MPa f), la contrainte nulle initiale (0 MPa) (pour observer « la rotation résiduelle »), quelques contraintes intermédiaires, les flèches indiquant la diminution des contraintes appliquées.
2. la dispersion d'orientation des sous-domaines (représentée par des traits en pointillé).
3. les incertitudes de mesure (représentées par des cercles en pointillé).

Lors de la diminution de la contrainte, l'orientation de l'austénite du grain 1 évolue en sens inverse par rapport au chargement jusqu'à une rotation résiduelle de 0,3°.

L'évolution d'orientation est deux fois plus rapide entre 465 MPa et 250 MPa qu'entre 250 MPa et 0 MPa. Dans le cas de ce grain, les sous-domaines sont visibles seulement à la contrainte appliquée 345 MPa et 250 MPa.

### III.2/ Evolution de l'orientation pour les quatre grains au cours du cycle superélastique

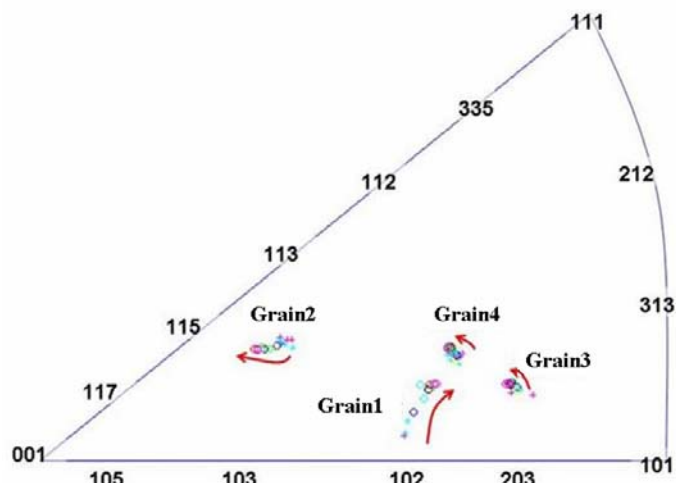
La figure 4.18 représente l'évolution des orientations des quatre grains au cours du chargement.



**Figure 4.18** : Représentation de l'évolution d'orientation de l'austénite dans les quatre grains sur une figure de pôles inverse dans la direction de traction de 0 MPa à 465MPa (0% à 5,4% en déformation).

L'évolution de l'orientation de l'austénite est observée dans tous les grains avec néanmoins une évolution plus grande pour les grains 1 et 2.

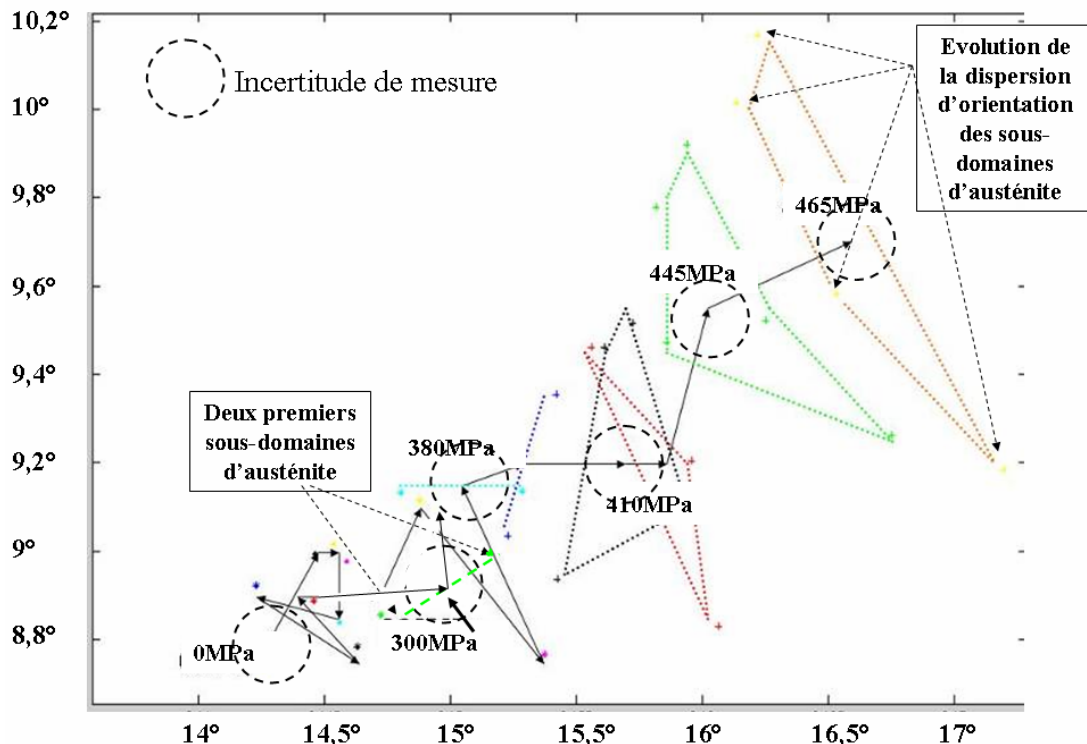
A la décharge, les quatre grains tournent dans le sens inverse et ce quelle que soit leur orientation initiale (cf. figure 4.19)



**Figure 4.19** : Représentation de l'évolution d'orientation de l'austénite dans les quatre grains de 465 MPa à 0 MPa sur une figure de pôles inverse dans la direction de traction (5,4% à 0,3% en déformation).

La figure 4.20 représente l'évolution d'orientation des domaines d'austénite dans le grain 2. Quand, au cours de la transformation martensitique, l'austénite se scinde en plusieurs domaines pour une même contrainte appliquée, les orientations de ces domaines sont reliées par des traits en pointillés.



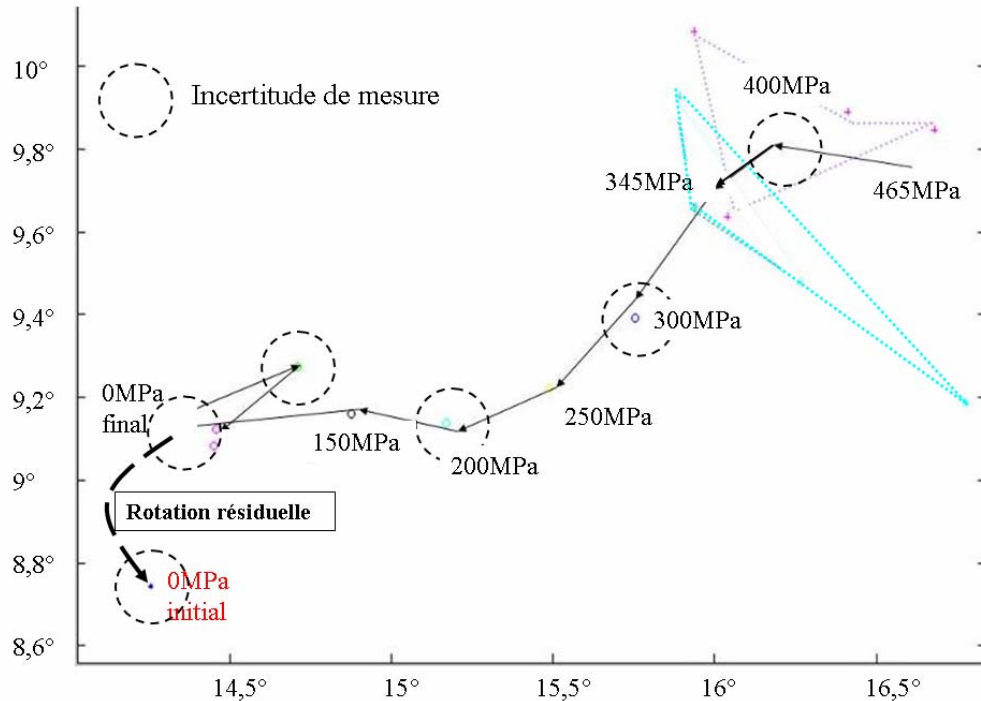


**Figure 4.20 :** Zoom sur le grain 2 de la représentation de l'évolution d'orientation de l'austénite sur une figure de pôles inverse dans la direction de traction. Les flèches représentent l'évolution de l'orientation de 0 MPa à 465 MPa. Les traits en pointillé représentent les sous domaines de l'austénite.

Dans le grain 2, l'orientation de l'austénite évolue de  $0,5^\circ$  de 0 MPa à 300 MPa. A partir de 300 MPa, l'orientation de l'austénite évolue plus rapidement pour atteindre une rotation de  $1,5^\circ$  (à 410 MPa) et jusqu'à  $2,5^\circ$  (à 465 MPa). A 300 MPa, la première division du domaine austénitique initial en deux sous-domaines désorientés de  $0,5^\circ$  est observée. A 410 MPa, quatre sous-domaines ayant une dispersion d'orientation de  $0,7^\circ$  sont dénombrés. A 465 MPa, il y a cinq sous-domaines désorientés de  $1,5^\circ$ .

Plus la transformation évolue, plus le nombre de sous-domaines d'austénite augmente. La dispersion d'orientation de ces sous-domaines augmente également avec la contrainte appliquée.

La figure 4.21 représente l'évolution d'orientation des domaines d'austénite dans le grain 2 lors de la diminution de la contrainte appliquée. Lors de la diminution de la contrainte; l'orientation de l'austénite du grain 2 évolue en sens inverse par rapport au chargement avec une rotation résiduelle de  $0,4^\circ$ . A la décharge, quatre sous-domaines réapparaissent à partir de 400 MPa puis on n'en observe plus que trois à 345 MPa. Cette diminution des sous-domaines d'austénite est due à la disparition des variantes de martensite.

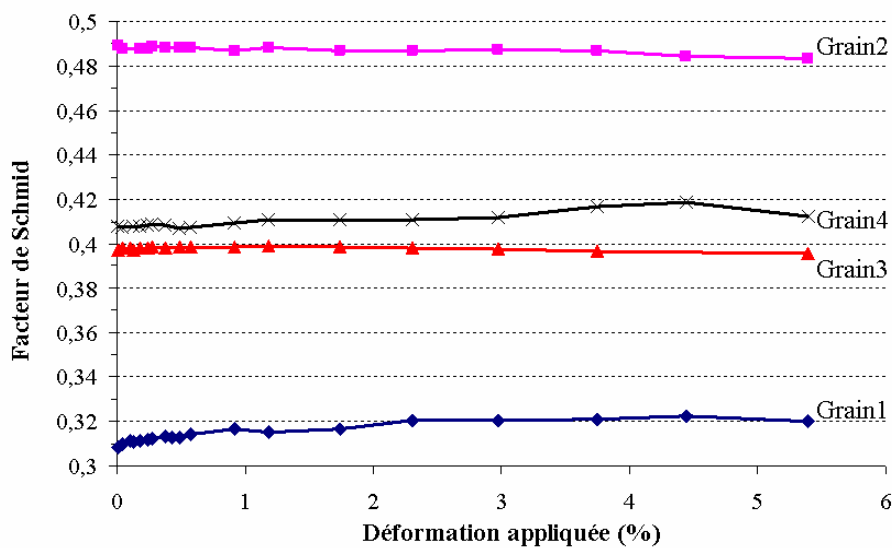


**Figure 4.21 :** Zoom sur le grain 2 de la représentation de l'évolution d'orientation de l'austénite sur une figure de pôles inverse dans la direction de traction. Les flèches représentent l'évolution de l'orientation avec la diminution de la contrainte appliquée (465 MPa à 0 MPa).

Les mêmes analyses ont été effectuées pour les grains 3 et 4, tous les résultats sont résumés dans les tableaux 4.4 et 4.5 de la partie discussion.

### III.3/ Evolution du facteur de Schmid des variantes les mieux orientées

L'évolution du facteur de Schmid de la variante la mieux orientée est calculée pour les quatre grains (cf. figure 4.22).



**Figure 4.22 :** Evolution du facteur de Schmid de la variante la mieux orientée pour les quatre grains analysés.

Ainsi, au cours du chargement, les facteurs de Schmid sont sensiblement constants pour les quatre grains. Il n'y a pas de modification significative de leurs valeurs. Les grains 1 et 4 semblent augmenter légèrement tandis que les grains 2 et 3 diminuent très légèrement.

#### IV/ Discussions

Nous rappelons que les quatre grains sont situés dans le volume de l'éprouvette. Le tableau 4.3 résume les résultats obtenus sur l'évolution de l'orientation moyenne pour ces quatre grains.

Grain	1	2	3	4
Rotation entre 0 MPa et 300 MPa (0% et 0,6%)	0,5°	0,5°	0,3°	0,4°
Evolution à 360 MPa (1,3%)	1°	1°	0,5°	0,5°
Evolution à 410 MPa (3%)	1,9°	1,5°	0,6°	0,6°
Evolution à 430 MPa à (3,7%)	2,9°	1,8°	1°	0,8°
Evolution à 445 MPa (4,5%)	3,8°	2,0°	1,8°	1,3°
Evolution à 465 MPa (5,4%)	4,9°	2,5°	2°	1,4°
<b>Rotation résiduelle à la décharge totale</b>	<b>0,3°</b>	<b>0,4°</b>	<b>0,5°</b>	<b>0,2°</b>

**Tableau 4.3 :** Evolution de l'orientation moyenne de l'austénite au cours d'un cycle superélastique

Le tableau 4.4 résume les résultats obtenus sur le facteur de Schmid initial, l'ordre d'apparition, le nombre et la dispersion d'orientation de ces sous-domaines.

Grain	1	2	3	4
Facteur de Schmid	0,30	0,49	0,41	0,40
Contrainte d'apparition du premier sous domaine $\sigma_i^{app}$	340MPa	300MPa	360MPa	360MPa
Ordre d'apparition	2ème	1 <sup>er</sup>	3 <sup>ème</sup>	3 <sup>ème</sup>
Nb de sous-domaines à 360MPa (Dispersion maximale)	2 (0,3°)	2 (0,5°)	2 (0,6°)	4 (0,6°)
Nb de sous-domaines à 410MPa (Dispersion maximale)	1	4 (0,7°)	3 (0,8°)	5 (1,1°)
Nb de sous-domaines à 430MPa (Dispersion maximale)	1	4 (0,8°)	3 (1,0°)	6 (2,0°)
Nb de sous-domaines à 445MPa (Dispersion maximale)	1	4 (0,9°)	1	7 (2,2°)
Nb de sous-domaines à 465MPa (Dispersion maximale)	1	5 (1,5°)	1	6 (1,8°)

**Tableau 4.4 :** Evolution du nombre et de la dispersion des orientations des sous-domaines d'austénite des quatre grains au cours du chargement

Plusieurs modélisations [Q.P. Sun *et al.*, 199], [M. Tokuda *et al.*, 1999] prennent comme hypothèse l'existence d'une corrélation forte entre le facteur de Schmid et l'ordre de transformation des grains. Les grains où la transformation se développe en premier sont les grains

où le facteur de Schmid peut prendre des valeurs fortes. Cependant, dans notre cas le grain 1 avec le facteur de Schmid le plus faible se transforme en second.

L'étude expérimentale de B. Kaouache [B. Kaouache, 2006] a déjà montré que l'hypothèse de cette corrélation entre ordre de transformation et le facteur de Schmid n'est pas systématiquement vérifiée. Ainsi un grain possédant un facteur de Schmid plus faible qu'un autre grain peut se transformer avant celui-ci. Ce résultat provient de l'hétérogénéité des contraintes à l'intérieur d'un grain et du fait que la transformation martensitique est un phénomène localisé. Ainsi une concentration de contrainte, causée par les interactions intergranulaires, peut produire un état de contrainte local supérieur à la contrainte moyenne dans le grain, et contribuer à la transformation de ce grain avant d'autres mieux orientés.

En utilisant les valeurs du tableau 4.3 et 4.4, on obtient les valeurs de rotation maximale de l'austénite dans chaque grain au cours du chargement.

<b>Grain</b>	<b>1</b>	<b>2</b>	<b>3</b>	<b>4</b>
Rotation maximale à 360 MPa (1,3%)	1,15°	1,25°	0,8°	0,8°
Rotation maximale à 410 MPa (3%)	1,9°	1,85°	1°	1,15°
Rotation maximale à 430 MPa (3,7%)	2,9°	2,2°	1,5°	1,8°
Rotation maximale à 445 MPa (4,5%)	3,8°	2,45°	1,8°	2,4°
Rotation maximale à 465 MPa (5,4%)	4,9°	3,25°	2°	2,3°

**Tableau 4.5** : Rotation maximale de l'austénite au cours du chargement

Ainsi, lors d'un cycle superélastique, on a mesuré:

1. l'évolution de l'orientation de l'austénite lorsque l'on applique une contrainte. Dans le domaine élastique (jusqu'à 300 MPa), la rotation de l'austénite est faible ( $\leq 0,5^\circ$ ) alors que dans le domaine de transformation martensitique (de 300 MPa à 465 MPa), l'austénite tourne fortement (de  $0,5^\circ$  à  $4,9^\circ$ ) (cf. tableau 4.3). C'est « une rotation de transformation ».
2. que l'orientation de l'austénite évolue dans le sens inverse avec une hystérésis lors de la décharge.
3. qu'une rotation résiduelle persiste à la décharge totale. C'est « une rotation plastique ».

Pendant le cycle à 465 MPa, la déformation plastique est négligeable, comme nous l'avons mesuré au chapitre 3, c'est pourquoi la déformation résiduelle macroscopique mesurée de 0,3% (cf. figure 4.4) se compose de la déformation de transformation résiduelle due à la martensite résiduelle mais aussi de la déformation due aux rotations résiduelles des différents grains (« rotations plastiques »).

La mesure d'une « rotation de transformation » couplée avec une « rotation plastique » n'apparaît dans aucun autre travail. G. Winther *et al.* [G. Winther *et al.*, 2004] mesure une rotation des grains durant la déformation plastique. Cette rotation se fige quand la contrainte appliquée est relâchée, par conséquent aucune rotation inverse n'a pu être mesurée.

A une échelle plus fine, l'apparition de plaquette de martensite à l'intérieur des grains d'austénite scinde les grains en sous-domaines d'austénite. Dès que les sous-domaines apparaissent, leurs orientations évoluent toujours dans la même direction et leurs désorientations augmentent avec la contrainte appliquée (cf. tableau 4.4).

Certains de ces sous-domaines disparaissent comme c'est le cas pour le grain 1 à 395 MPa ou le grain 3 à 445 MPa. Ces disparitions s'expliquent par le fait que les plaquettes de martensite s'étendent sur tout le sous-domaine.

C'est le grain 1, qui ne fait apparaître qu'un seul sous-domaine au dessus de 360 MPa, qui tourne le plus  $4,9^\circ$  (cf. tableau 4.3). De même, le grain 4 qui fait apparaître beaucoup de sous-domaines (jusqu'à 7) est celui qui tourne le moins ( $1,4^\circ$ ). On peut en conclure que moins il y a de sous-domaines et plus l'austénite tourne. Cette subdivision en sous-domaines accommode les déformations à l'intérieur du grain lors de la formation des plaquettes de martensite.

Enfin, il ne semble pas y avoir de corrélation entre l'orientation initiale des grains et leurs rotations. Ce sont donc les grains environnants qui influenceraient ce processus. Une observation cependant manque à ces résultats pour pouvoir compléter l'analyse. Elle consiste à connaître le comportement d'au moins 50 grains voisins présentant des orientations initiales différentes et réparties sur le triangle standard des orientations cristallographiques. Par conséquent, des zones de comportement se définiraient en fonction de l'orientation initiale des grains comme [G. Winther *et al.*, 2004] sur la figure 1.10.

## **Conclusion**

Une des spécificités de ce travail a été de mettre au point la méthode d'analyse 3DXRD pour l'étude de la transformation martensitique induite par la contrainte. Grâce à ce travail en collaboration avec les auteurs des logiciels (J. Wright, S. Soeren, A. Gotz et G. Suchet), nous avons automatisé Grainspotter et ImageD11.

L'application de cette technique sur quatre grains d'orientation différente a permis de mettre en évidence une rotation de l'austénite au cours de la transformation martensitique, dont l'amplitude

varie en fonction des grains. Ce changement d'orientation moyen s'accompagne de la formation de sous-domaines dans un grain, caractérisés par des orientations légèrement différentes. La rotation ainsi que la formation des sous-domaines sont des phénomènes réversibles : ainsi, à la décharge, le grain retrouve sensiblement son orientation initiale et les sous-domaines disparaissent. Dans le chapitre 3, nous avons mis en évidence un élargissement des pics de diffraction lié à la transformation martensitique. Les résultats obtenus dans ce chapitre montrent que pour interpréter cet élargissement, il faut considérer une composante liée d'une part à la rotation moyenne des grains et, d'autre part, à leur subdivision en « sous-domaines ».

Ces premiers résultats encourageants doivent être confortés par des mesures sur des grains d'orientations bien distinctes, par exemple des grains orientés  $\langle 100 \rangle$ ,  $\langle 110 \rangle$  et  $\langle 111 \rangle$ . D'autre part, la rotation moyenne a été calculée en considérant la figure de pôles inverse dans la direction de traction. Un calcul complet prenant en compte l'orientation complète reste à développer.

Enfin, si la méthode 3DXRD met en évidence la formation des sous-domaines, elle ne permet pas de localiser ces zones à l'intérieur du grain. Aussi, nous avons utilisé deux autres méthodes de caractérisation afin de coupler des observations microstructurales locales à des mesures d'orientation microscopique : la microdiffraction Laue et la techniques des rayons X refocalisés.

# **CHAPITRE V : Hétérogénéités microstructurales intragranulaires**

**Introduction** P.145

**I/ Etude de l'orientation locale de l'austénite** P.145

I.1/ Conditions expérimentales P.145

I.2/ Volume et temps d'analyse P.147

I.3/ Résultats et discussions P.148

I.3.1/ Evolution de l'angle  $\theta$  au cours du cycle superélastique P.149

I.3.2/ Evolution de l'orientation moyenne P.155

I.4/ Conclusion P.156

**II/ Etude de la courbure du réseau de l'austénite lors de cycles superélastiques**

P.157

II.1/ Conditions expérimentales P.157

II.2/ Courbe de comportement et évolution microstructurale P.158

II.3/ Résultats P.160

II.3.1/ Mesure du signal de la martensite P.161

II.3.2/ Rotation des plans d'austénite P.161

II.3.3/ Elargissement de la tache de diffraction P.162

**Conclusions** P.165

# Chapitre V : Hétérogénéités microstructurales intragranulaires

## Introduction

Les analyses réalisées aux échelles macroscopiques, puis mésoscopiques ont mis en évidence des hétérogénéités de comportement dans l'austénite : au cours du chargement superélastique, la rotation moyenne des grains semble s'accompagner de la formation de sous-domaines d'austénite caractérisés par des orientations différentes. Afin d'identifier l'origine de ces sous-domaines, nous avons utilisé deux techniques de caractérisation locale : la microdiffraction Laue et la méthode de Laue refocalisée. La première technique permet de déterminer l'orientation à l'échelle microscopique, tandis que la deuxième donne accès à la mosaïcité du réseau. Comme pour toutes les autres expériences, ces mesures ont été réalisées uniquement dans l'austénite.

### I/ Etude de l'orientation locale de l'austénite

Comme indiqué précédemment, l'orientation locale de l'austénite a été déterminée par microdiffraction Laue, méthode utilisant un microfaisceau polychromatique. Cette dernière permet de tracer des cartographies d'orientation sur une zone de quelques centaines de micromètres carrés. Après avoir décrit les principales conditions expérimentales, nous présentons les différents résultats obtenus.

#### I.1/ Conditions expérimentales

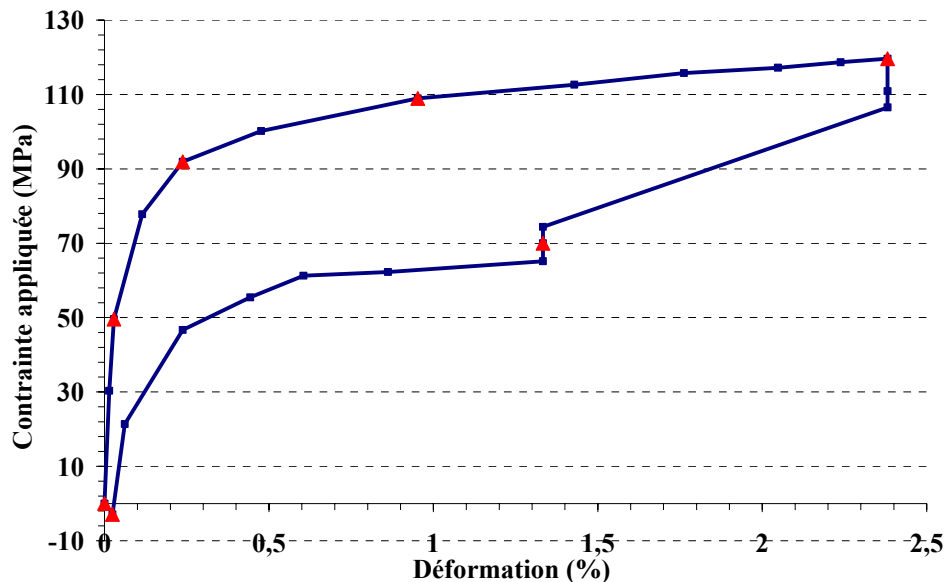
L'éprouvette EP3 utilisée est représentée en figure 5.1. Elle a des grains de taille millimétrique (voir description de l'éprouvette EP3 au chapitre 2). La machine de traction ne pouvant que faiblement se déplacer sur l'installation de diffraction, il n'a été possible d'étudier qu'un seul grain (dont les contours ont été surlignés sur la micrographie de la figure 5.1). Un chargement préalable dans le domaine élastique a permis de s'assurer que ce grain se transformait relativement facilement. Afin de s'affranchir des effets de joints de grains, la mesure a été effectuée à l'intérieur du grain (cf. figure 5.1).



**Figure 5.1** : Eprouvette de traction avec le repère de l'éprouvette (X, Y et Z). La zone cartographiée est représentée par le carré à l'intérieur du grain.



X correspond à la direction de laminage (DL) et de traction, Y à la direction transverse (DT) et Z à la direction normale (DN) à l'éprouvette. La courbe de comportement, représentée en figure 5.2, a été obtenue avec la machine de traction du LPMM (cf. figure 2.9), sans extensomètre. La déformation correspond donc au déplacement des mors de la machine. Les 7 points de mesure y sont également représentés.



**Figure 5.2 :** Courbe macroscopique contrainte-déformation de l'éprouvette avec les points de mesure des cartographies durant l'expérience sur BM32.

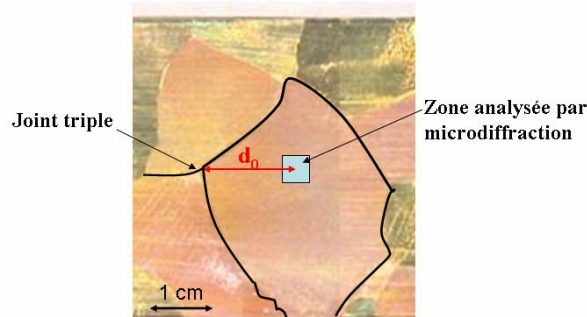
En raison de la taille des grains ( $> 1 \text{ mm}^3$ ) par rapport à la taille de l'éprouvette, la courbe de comportement macroscopique est proche de celle d'un monocristal.

A chaque chargement, la traction s'opère par le déplacement d'un seul mors, l'autre étant fixe. La zone à cartographier bouge donc lors de chaque point de mesure et doit être repositionnée précisément. Le rôle du microscope est d'identifier la zone d'analyse. Mais l'agencement de l'installation de microdiffraction (BM32) ne permet pas d'utiliser le microscope et le détecteur ensemble. Donc, pour cette expérience *in-situ* qui nécessite une traction uniaxiale sur l'éprouvette, la zone à analyser n'a pas pu être suivie en continu au microscope. Pour palier à ce problème, un joint triple a été utilisé comme référence. Les images Laue des trois grains voisins d'orientation différente sont faciles à repérer ce qui permet de se replacer sur le point de référence avec une précision de l'ordre de quelques micromètres.

Ensuite, nous avons fait les hypothèses suivantes :

- la zone d'analyse se déplace uniquement dans la direction x (pas en y),
- la déformation dans l'éprouvette est homogène (pas de localisation)

- la distance  $d_0$ , qui représente la distance initiale entre le joint triple et le centre de la cartographie (cf. figure 5.3), est connue



**Figure 5.3 :** Distance  $d_0$  entre le centre de la cartographie et le joint triple de référence.

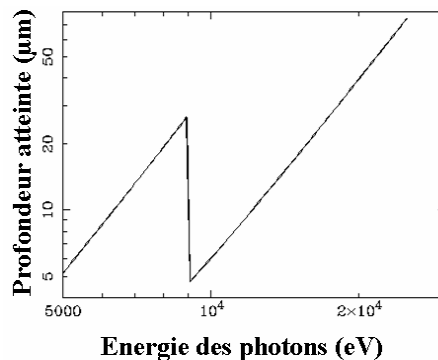
Donc, après chaque augmentation de contrainte, la distance  $d$  entre le joint triple et le centre de la

cartographie est égale à : 
$$d = d_0 \times \frac{L - L_0}{L_0} \quad (5.1)$$

avec  $L_0$  la longueur initiale de l'éprouvette et  $L$  la longueur de l'éprouvette après l'augmentation de contrainte.

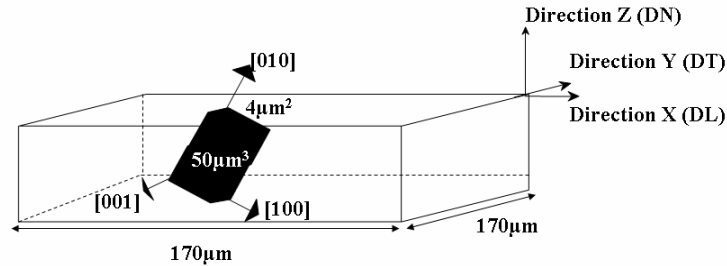
## I.2/ Volume et temps d'analyse

La figure 5.4 indique la profondeur de pénétration des rayons X dans l'alliage CuAlBe en fonction de l'énergie des photons.



**Figure 5.4 :** Profondeur de pénétration dans l'alliage CuAlBe en fonction de l'énergie des photons.

Avec un angle entre le faisceau incident et l'échantillon d'environ  $40^\circ$ , une densité de 7,3 du CuAlBe et d'après la gamme d'énergie utilisée (5 keV à 25 keV), la profondeur de pénétration des rayons X varie de 5  $\mu\text{m}$  à 52  $\mu\text{m}$ . La valeur moyenne de pénétration est d'environ 15  $\mu\text{m}$  en réflexion. Le faisceau ayant un diamètre de 2  $\mu\text{m}$ , l'information est donc analysée sur un volume d'environ 50  $\mu\text{m}^3$  (cf. figure 5.5).



**Figure 5.5 :** Volume et surface moyenne d'analyse de l'austénite. DL = Direction de Laminage; DT = Direction Transverse ; DN = Direction Normale

Le grain a été cartographié, en son centre, sur une zone de  $170 \mu\text{m} \times 170 \mu\text{m}$  par pas horizontal et vertical de  $3 \mu\text{m}$ . Une cartographie comporte 3306 images ( $58 \times 57$ ) ; pour chaque image, le temps d'exposition est de 2 secondes et le temps de lecture du détecteur de 7,3 secondes. Au total, une cartographie dure 9h. Au vu du volume d'analyse, du temps d'analyse et du temps nécessaire à la lecture des informations du détecteur, nous avons négligé les effets d'échauffement de l'échantillon dû au rayonnement polychromatique.

Le traitement des clichés de diffraction nécessite que :

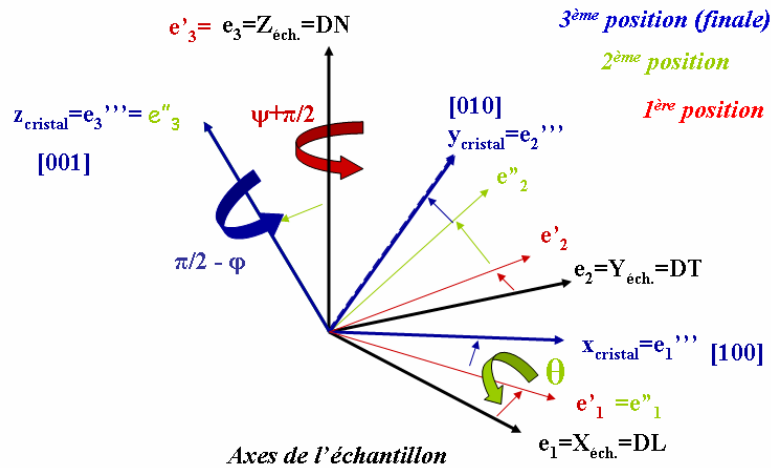
- il y ait suffisamment de signal : le ratio (Intensité/Bruit de fond) doit être supérieur à 4,
- les pics soient suffisamment larges pour une détermination correcte de la position du pic (c'est-à-dire qu'ils soient étalés sur au moins 8 pixels),

L'analyse des images est alors réalisée avec la méthode décrite au chapitre 2 paragraphe III.2. Le temps d'analyse d'une image par le logiciel XMAS [4] dépend du nombre de taches de diffraction par image, du nombre de grains par image et de la vitesse et capacité de traitement du processeur. Dans notre cas, avec un seul grain, le temps d'analyse par image était de 10 minutes et l'exploitation d'une cartographie complète dure 25 jours.

### I.3/ Résultats et discussions

L'orientation de l'austénite a été cartographiée pour différents points de chargement au cours du cycle superélastique. Cette orientation est donnée par le logiciel XMAS sous la forme des trois angles d'Euler  $\phi$  (nommé rotation propre),  $\theta$  (nutation) et  $\psi$  (précession). L'angle  $\theta$  utilisé dans cette partie est donc différent de l'angle de diffraction. Les trois angles ( $\psi, \theta, \phi$ ) permettent de passer du repère de l'échantillon au repère du cristal en trois rotations. Ces rotations sont décrites sur la figure 5.6. L'ordre et les angles de rotation sont les suivants :

1. Rotation de  $\psi + \pi/2$  autour de la normale à l'échantillon  $e_3$
2. Rotation de  $\theta$  autour de la nouvelle direction de laminage  $e'_1$
3. Rotation de  $\pi/2 - \phi$  autour de la nouvelle normale à l'échantillon  $e''_3$

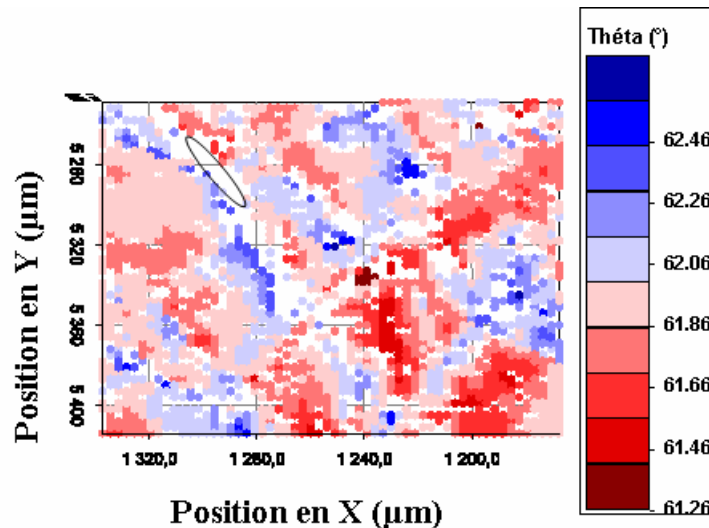


**Figure 5.6 :** Passage du repère de l'échantillon au repère du cristal avec les trois rotations successives  $\psi + \pi/2$ ,  $\theta$  puis  $\pi/2 - \phi$ .

Les cartographies des évolutions d'orientation de l'austénite sont donc décrites avec ces trois angles de rotation ( $\psi$ ,  $\theta$ ,  $\phi$ ). Dans la suite, seules les cartographies de l'angle  $\theta$  de chaque contrainte appliquée sont reportées. Les cartographies en  $\phi$  et  $\psi$  figurent en annexe du chapitre 5.

### 1.3.1/ Evolution de l'angle $\theta$ au cours du cycle superélastique

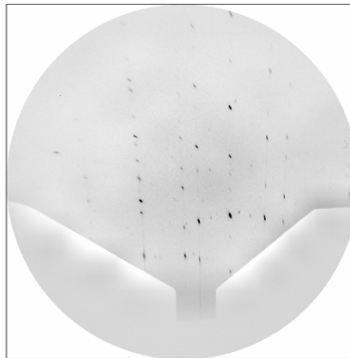
La figure 5.7 montre la cartographie en  $\theta$  à l'état initial, c'est-à-dire avant chargement. Nous rappelons que l'angle  $\theta$  n'est pas l'angle de diffraction mais l'angle de nutation des angles d'Euler.



**Figure 5.7 :** Cartographie en angle d'Euler  $\theta$  ( $^\circ$ ) à l'état initial

Sur la figure ci-dessus, les zones blanches sont des points qui n'ont pu être indexés en austénite. Elles révèlent soit des résultats non satisfaisants dus à une trop faible intensité des pics d'austénite, soit la présence de martensite. Dans ce cas, les pics de martensite sont visibles sur

les clichés de Laue (cf. figure 5.8), ce qui permet de localiser les zones de martensite mais nécessite l'observation des clichés un à un. Cela représente un travail très long mais nous n'avons pas d'autres critères de sélection.

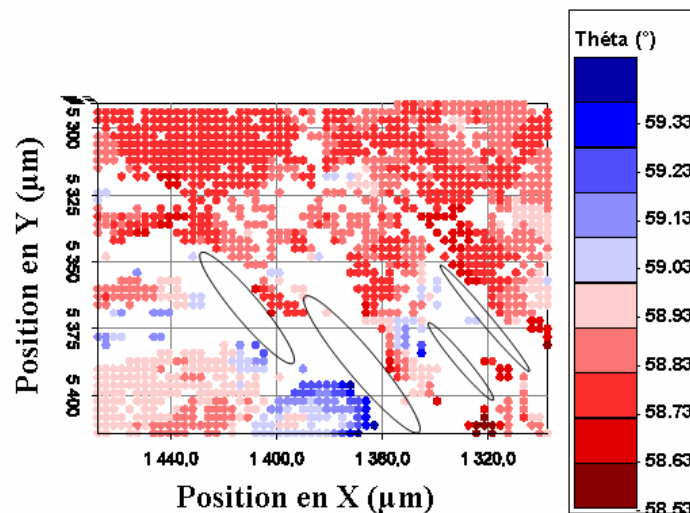


**Figure 5.8 :** Image Laue de la phase martensitique

Ainsi la zone blanche entourée sur la figure 5.7 représente effectivement une plaquette de martensite résiduelle en surface du grain à analyser. Nous l'avons observé lors de la charge préliminaire.

A l'état initial, l'austénite dans la zone analysée n'a pas une orientation uniforme. La dispersion des orientations, c'est-à-dire la différence entre la valeur minimale et la valeur maximale de l'angle  $\theta$ , est de  $1,2^\circ$ , la valeur minimale étant de l'ordre de  $61,3^\circ$ .

La figure 5.9 représente la cartographie en  $\theta$  lors d'une contrainte appliquée de 50 MPa.



**Figure 5.9 :** Angle d'Euler  $\theta$  (°) pour une contrainte appliquée de 50 MPa

Les zones blanches entourées correspondent aux plaquettes de martensite résiduelle. Encore une fois cette identification a été possible grâce à l'analyse des images de Laue. Ces plaquettes de martensite grandissent et ont maintenant des tailles moyennes de  $2 \mu\text{m} \pm 2 \mu\text{m}$ .

Les valeurs de  $\theta$  varient maintenant entre environ  $58,5^\circ$  et  $59,5^\circ$ . A l'état initial,  $\theta$  était entre  $61,0^\circ$  et  $62,5^\circ$ . Cette forte variation est attribuée à une mise en place de l'éprouvette dans les mors et non à une rotation locale du réseau. La dispersion des orientations diminue à  $0,8^\circ$ .

La figure 5.10 montre la cartographie de l'angle  $\theta$  pour une contrainte appliquée de 90 MPa.

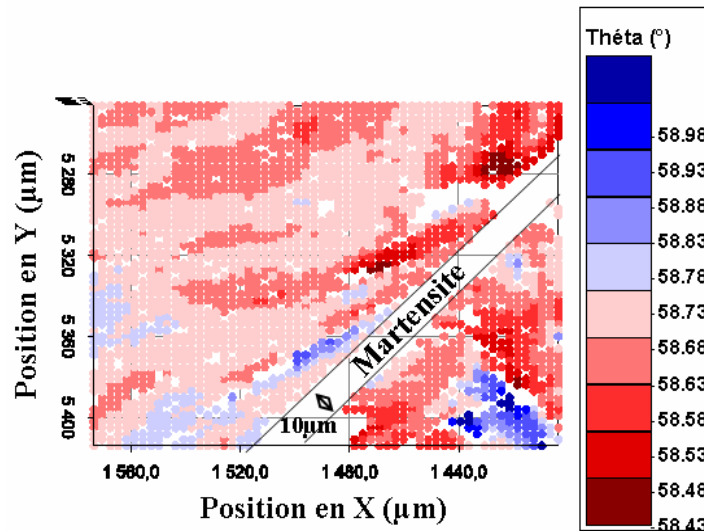


Figure 5.10 : Angle d'Euler  $\theta$  ( $^\circ$ ) à la contrainte appliquée de 90 MPa

La bande diagonale blanche représente une autre variante de martensite qui s'est formée. Son orientation est différente des variantes observées au point de chargement précédent. La largeur de la variante de martensite mesurée est de  $10 \mu\text{m} \pm 2 \mu\text{m}$ . On remarque également que les anciennes plaquettes de martensite ont disparu. La dispersion de l'angle  $\theta$  dans la cartographie atteint maintenant  $0,55^\circ$ .

Pour la mesure à une contrainte appliquée de 110 MPa, un problème avec le détecteur est survenu. Toute une partie du cliché n'a pas été enregistrée, ce qui a conduit à la formation d'une bande blanche horizontale (Y variant entre  $5250 \mu\text{m}$  à  $5365 \mu\text{m}$ ), comme le montre la figure 5.11. Il est néanmoins possible de localiser une variante de martensite. La largeur de la variante de martensite a augmenté pour atteindre  $25 \mu\text{m} \pm 2 \mu\text{m}$ . On note l'apparition d'une seconde bande martensitique. La dispersion de l'angle  $\theta$  est maintenant de  $0,4^\circ$  : les points d'orientation similaire semblent regroupés, formant des « bandes ».

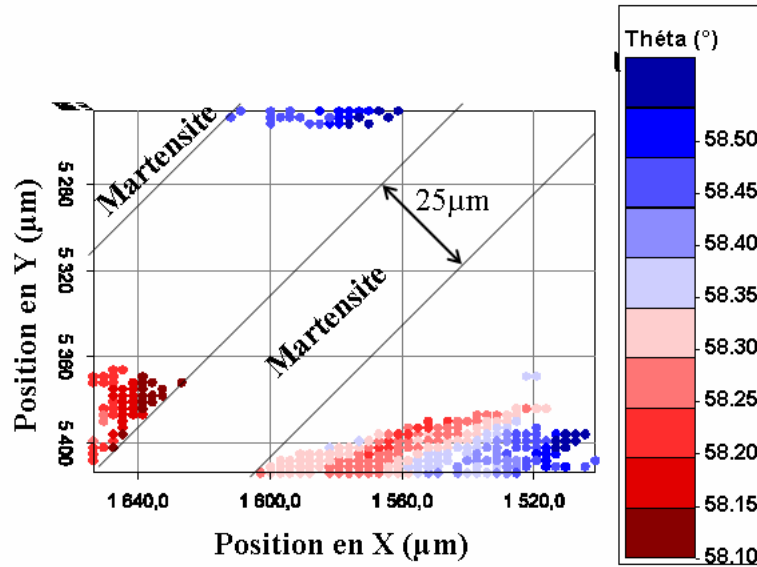


Figure 5.11 : Angle d'Euler  $\theta$  ( $^{\circ}$ ) à la contrainte appliquée de 110 MPa

La figure 5.12 représente la cartographie de l'angle  $\theta$  avec une contrainte appliquée de 120 MPa, qui est la contrainte maximale. Comme précédemment, la bande blanche horizontale Y de 5370  $\mu\text{m}$  à 5390  $\mu\text{m}$  est la conséquence d'un problème du détecteur. La largeur de la variante de martensite atteint  $45 \mu\text{m} \pm 2 \mu\text{m}$ . La dispersion des orientations de l'angle  $\theta$  atteint  $0,6^{\circ}$ . Il semble y avoir deux orientations légèrement différentes : la zone entre les 2 variantes a un angle  $\theta$  plutôt voisin de  $57,8^{\circ}$  et les quelques points situés en bas à droite de la cartographie ont une valeur de  $\theta$  supérieure à  $58,2^{\circ}$ .

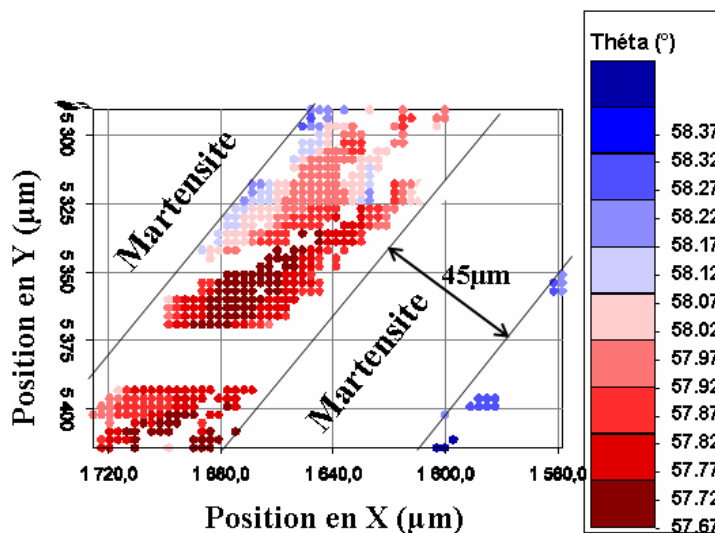


Figure 5.12 : Angle d'Euler  $\theta$  ( $^{\circ}$ ) à la contrainte appliquée de 120 MPa

La figure 5.13 représente la cartographie de l'angle  $\theta$  lors de la décharge de l'éprouvette à la contrainte appliquée de 70 MPa.

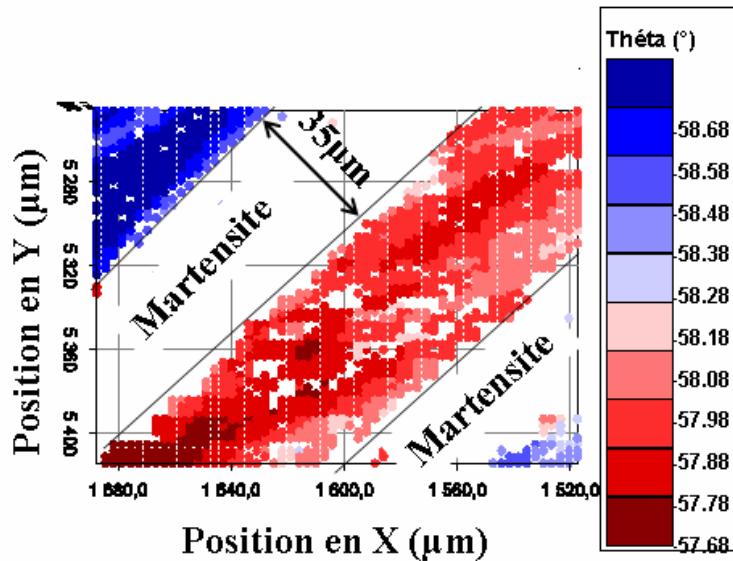


Figure 5.13 : Angle d'Euler  $\theta$  (°) lors de la décharge à 70 MPa

A la contrainte appliquée de 70 MPa en décharge, la largeur de la variante de martensite diminue à  $35 \mu\text{m} \pm 2 \mu\text{m}$ . La dispersion de l'angle  $\theta$  dans la cartographie augmente à  $1,0^\circ$ . Cette fois, les orientations des deux sous-domaines peuvent être mesurées séparément. Le sous-domaine d'austénite en haut à gauche dans la cartographie 5.13 a une orientation moyenne de  $58,6^\circ$  et une dispersion de  $0,3^\circ$ , tandis que le sous-domaine d'austénite au centre de la cartographie a une orientation moyenne de  $58^\circ$  et une dispersion de  $0,4^\circ$ . Cette désorientation moyenne entre les deux sous-domaines est égale à  $0,6^\circ$ . Ces observations sont aussi constatées dans les cartographies des angles  $\phi$  et  $\psi$  dans l'annexe du chapitre 5.

Sur ces trois dernières cartographies (cf. figures 5.11, 5.12 et 5.13), on note également que les deux variantes de martensite et la bande d'austénite restent positionné au centre de la cartographie. L'hypothèse que l'éprouvette se déforme de façon homogène est donc acceptable et l'erreur de repositionnement que l'on peut mesurer est d'une dizaine de micromètre.

La cartographie en angle  $\theta$  après décharge complète est représentée à la figure 5.14.



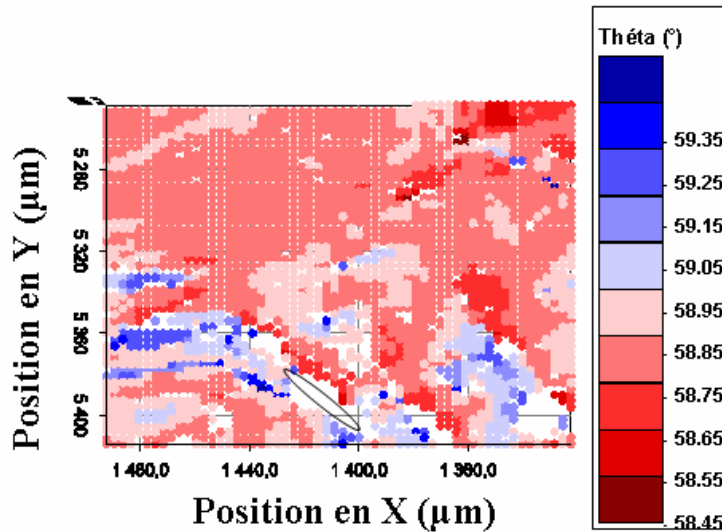


Figure 5.14 : Angle d'Euler  $\theta$  ( $^{\circ}$ ) après décharge complète

La variante de martensite des points de chargement 90 MPa, 110 MPa, 120 MPa et 70 MPa en décharge a disparu au profit de la variante déjà observée au début du cycle à 0 MPa et 50 MPa. La dispersion des orientations de l'angle  $\theta$  dans la cartographie à la décharge totale atteint  $1,1^{\circ}$ .

Les figures 5.15a et b représentent les cartographies à la décharge complète des deux autres angles d'Euler  $\phi$  et  $\psi$ .

Grâce aux zones désorientées de la cartographie d'angle  $\psi$ , on aperçoit la trace d'une ancienne variante de martensite. Cette variante « fantôme » est la variante observée pour les contraintes 90 MPa, 110 MPa, 120 MPa et 70 MPa.

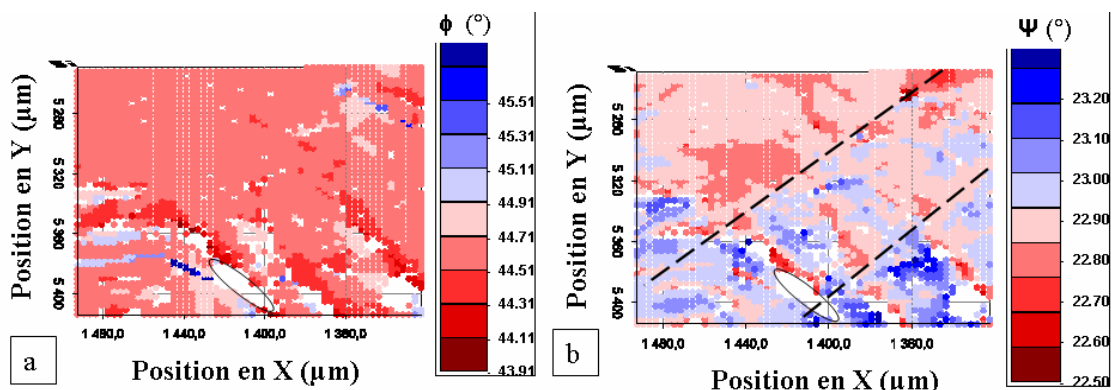


Figure 5.15: Angles d'Euler a/  $\phi$  et b/  $\psi$  à la décharge complète

Ce type de variantes « fantômes » a déjà été observé par S. Besseghini *et al.* [S. Besseghini *et al.*, 2004]. Leur expérience était réalisée sur un AMF de type NiTiCu par imagerie en contraste de phase, avec un rayonnement synchrotron. Pour S. Besseghini *et al.* ces variantes « fantômes » sont la conséquence des deux précédents cycles et le lieu de nucléation préférentielle pour le cycle suivant.

### I.3.2/ Evolution de l'orientation moyenne

Le tableau 5.1 donne les valeurs moyennes des 3 angles d'Euler en fonction de la contrainte appliquée. Ces valeurs correspondent à la moyenne des valeurs de tous les points de la cartographie.

Contrainte appliquée (MPa)	$\phi$	$\theta$	$\psi$
0	39,80°	61,85°	21,90°
50	44,30°	58,80°	22,90°
90	44,45°	58,65°	22,75°
110	45,30°	58,30°	22,35°
120	46,90°	57,85°	21,70°
70	45,65°	58,05°	22,05°
0	44,55°	58,85°	22,85°

Tableau 5.1 : Evolution des valeurs moyennes de  $\phi$ ,  $\theta$  et  $\psi$  en fonction de la contrainte appliquée

La matrice d'orientation est par définition la matrice de passage du repère de l'échantillon vers le repère du cristal. Cette matrice s'exprime en fonction des angles d'Euler :

$$\begin{bmatrix} \cos \phi \cos \theta \cos \psi - \sin \phi \sin \psi & -\sin \phi \cos \theta \cos \psi - \cos \phi \sin \psi & \sin \theta \cos \psi \\ \sin \phi \cos \psi + \cos \phi \cos \theta \sin \psi & -\sin \phi \cos \theta \sin \psi + \cos \phi \cos \psi & \sin \theta \sin \psi \\ -\cos \phi \sin \theta & \sin \theta \sin \phi & \cos \theta \end{bmatrix} \quad (5.2)$$

Les figures 5.16a et b représentent l'évolution de l'orientation moyenne sur une cartographie de l'austénite dans le triangle standard. Cette représentation va permettre de comparer, avec les résultats du chapitre précédent, les rotations de l'austénite au cours d'un cycle superélastique.

Cette représentation confirme à nouveau que le saut entre 0 MPa et 50 MPa est dû à un mouvement de l'éprouvette dans les mors de la machine de traction puisqu'à la contrainte appliquée de 90 MPa l'austénite a la même orientation qu'à 50 MPa. Ainsi, avec les indices de Miller (hkl)[uvw], l'orientation du grain analysé est (0,79 ; 0,33 ; 0,52) [0,07 ; 0,79 ; -0,61]. Sa direction de traction est donc proche de [110] ; son facteur de Schmid maximal est de 0,4.

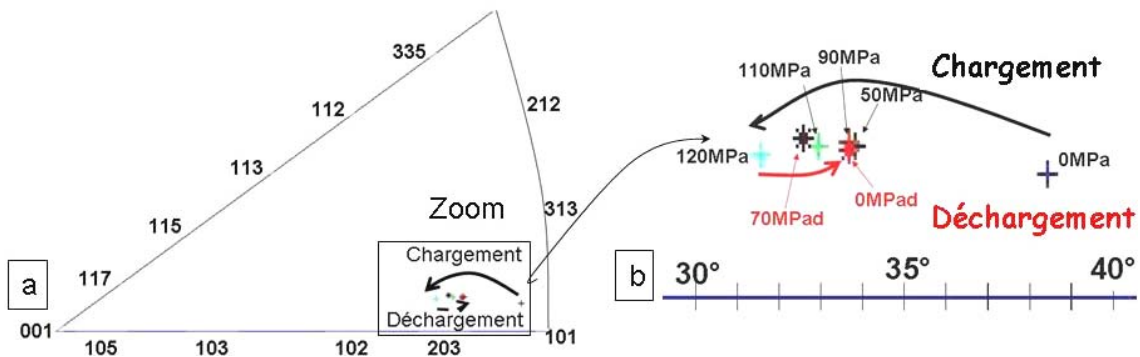


Figure 5.16 : a/ Représentation sur une figure de pôles inverse dans la direction de traction de l'évolution d'orientation de l'austénite lors de l'application d'une contrainte de 0 MPa à 120 MPa (0 à 2,4%) et à la décharge ; b/ Zoom de a (70 MPa et 0 MPa représente la contrainte appliquée en décharge)

Le tableau 5.2 résume les résultats obtenus.

<b>Contrainte appliquée (déformation macroscopique)</b>	<b>Rotation du sous-domaine d'austénite</b>
90MPa (0,25%)	$0^{\circ} \pm 0,1^{\circ}$
110MPa (0,95%)	$1^{\circ} \pm 0,1^{\circ}$
120MPa (2,4%)	$2,5^{\circ} \pm 0,1^{\circ}$
70MPa (1,3%)	$1,5^{\circ} \pm 0,1^{\circ}$
0MPa (0,02%)	$0^{\circ} \pm 0,1^{\circ}$

**Tableau 5.2 :** Résumé des résultats de rotation du sous-domaine d'austénite

Dans le chapitre précédent, les rotations moyennes de l'austénite variaient entre  $1^{\circ}$  et  $1,9^{\circ}$  pour les quatre grains analysés à 410 MPa à 3% de déformation. Ici, la rotation de l'austénite à 120 MPa de contrainte appliquée est de l'ordre de  $2,5^{\circ}$  (valeur à considérer néanmoins avec précaution compte tenu du faible nombre de points indexés). Comparativement au chapitre 4, la mesure est ici beaucoup plus locale (sur quelques centaines de micromètres), entre deux variantes de martensite.

Concernant les dispersions d'orientation entre les sous-domaines, à l'échelle mésoscopique, elle variait entre  $0,7^{\circ}$  et  $1,1^{\circ}$  pour une déformation de 3%, et entre  $0,3^{\circ}$  et  $0,6^{\circ}$  pour une déformation de 1,3%. A l'échelle microscopique, pour une déformation de 2,4% (soit à 120 MPa), la dispersion moyenne sur la cartographie est de  $0,6^{\circ}$  et l'écart d'orientation entre les deux sous-domaines est de  $0,4^{\circ}$  ; à une déformation de 1,3% (70 MPa à la décharge), la désorientation entre les deux domaines est de  $0,6^{\circ}$ . Donc les valeurs mesurées aux deux échelles de la microstructure sont en bonne correspondance.

#### **I.4/ Conclusion**

Lors de cette partie, on a décrit la mise en place de la première expérience sur microfaisceau Laue durant un cycle superélastique. Grâce à ces mesures, on a pu déterminer, à l'échelle microscopique et pour sept points de contrainte appliquée, les évolutions :

- des orientations de l'austénite ainsi que leurs distributions et gradient,
- des tailles des variantes de martensite,

Ainsi, l'austénite située entre les plaquettes de martensite, aussi appelée sous-domaine d'austénite, tourne puis revient à sa position initiale. Chaque sous-domaine a une rotation particulière. En effet, il tourne pour accommoder localement la déformation de la transformation martensitique. Ces résultats confirment les données du chapitre précédent.

L'apparition d'une variante initiale a été observée puis cette dernière a disparu au profit d'une seconde variante due au mouvement de l'éprouvette dans les mors. La taille de cette seconde variante augmente linéairement avec la déformation appliquée.

Le résultat obtenu à la décharge totale (cf. figures 5.13 et 5.14) sur les phénomènes de variantes « fantômes » amène à se questionner sur l'évolution de la mosaïcité du réseau de l'austénite traversée par des plans d'habitats. Nous allons mesurer cette évolution dans la deuxième partie de ce chapitre.

## **II/ Etude de la courbure du réseau de l'austénite lors de cycles superélastique**

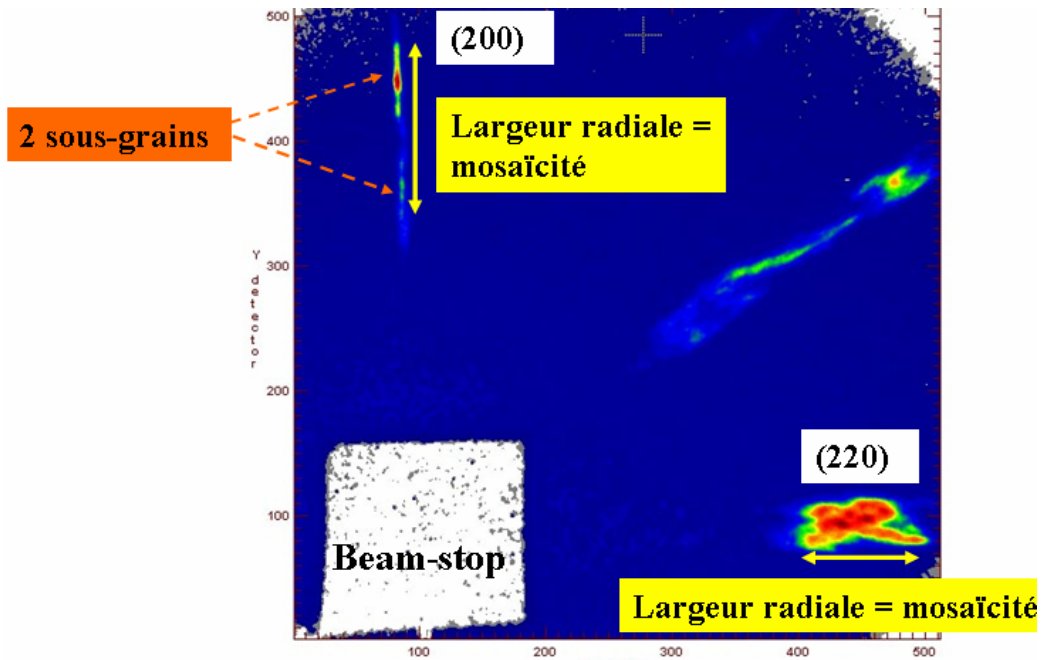
Lors de l'expérience 3DXRD, à l'échelle du grain, des rotations de l'austénite ont été observées. Afin de caractériser encore un peu plus finement la microstructure, la mosaïcité du réseau d'austénite a été étudiée grâce aux rayons X refocalisés à haute énergie (explication de la méthode au chapitre 2 paragraphe III.3), et ce, au cours d'un cycle superélastique.

### **II.1/ Conditions expérimentales**

Pour connaître la qualité d'un cristal, on mesure la mosaïcité du réseau cristallin de l'austénite. Plus la mosaïcité est faible, plus le cristal est parfait. Le montage utilisé pour l'expérience avec les rayons X refocalisés à haute énergie a les caractéristiques suivantes :

- une fente incidente de dimension égale à 5 mm × 5 mm,
- une distance entre l'échantillon et le détecteur, L de 3600 mm, la résolution moyenne pour un pixel est donc de 0,0028°,
- la divergence du faisceau  $\Delta\theta$  est de 1,1 mrad soit 0,06°,
- l'angle de Bragg moyen  $\theta$  est environ égal à 1°.

L'échantillon utilisé est un monocristal d'orientation (hkl)[uvw] égale à (0,90 0,10 0,41)[-0,37 0,46 0,81] (cf. chapitre 2 paragraphe IV.4). La machine de traction (et donc l'éprouvette) a été positionnée sur le montage de diffraction de manière à ce que les plans (220) soient représentés par la tache horizontale et les plans (200) par la tache verticale (cf. figure 5.17).



*Figure 5.17 : Image du monocristal sur le détecteur à l'état initial*

Les valeurs des trois angles du goniomètre pour permettre ce cliché à la charge initiale sont égales à :  $\omega = 9,99^\circ$  ;  $\phi = 2,92^\circ$  ;  $\psi = 7^\circ$ .

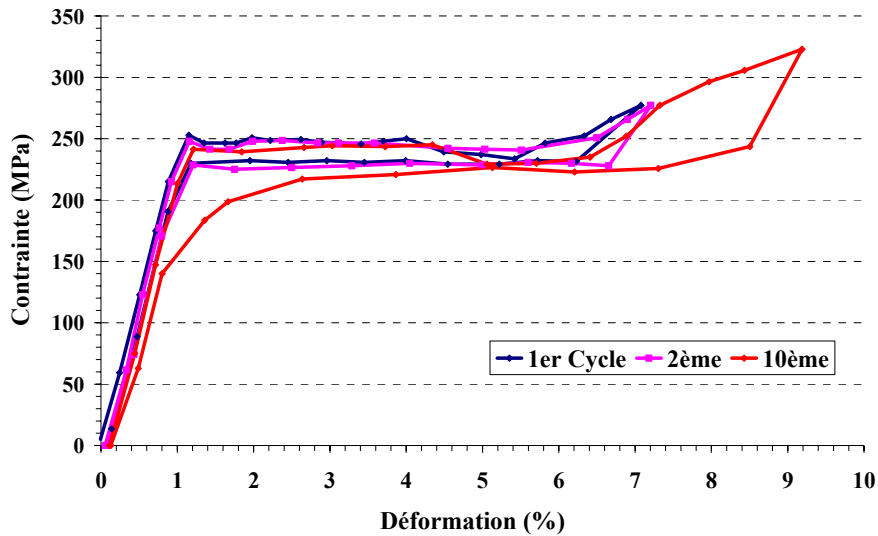
De façon générale, si les faces de l'échantillon correspondent au zéro des différents angles du goniomètre, les valeurs de  $\omega$  et  $\phi$  (moins la valeur de l'angle de Bragg mais qui en général est inférieure à un degré) représentent la désorientation du cristal par rapport aux faces de l'échantillon. Concernant  $\psi$  si les taches sont bien dans les plans horizontal et vertical, c'est la mesure directe de la désorientation du cristal autour de l'axe du faisceau de rayons X.

On peut observer sur la figure 5.17 deux sous-grains dans le monocristal grâce à la séparation de la tache (200). Le plan (220) est parallèle à la longueur de l'échantillon et a une mosaïcité plus faible que le plan (200) parallèle à la largeur de l'échantillon. Ceci peut être causé soit :

- par un front de solidification non plan durant l'élaboration du monocristal,
- par un gradient radial dans le four Bridgman.

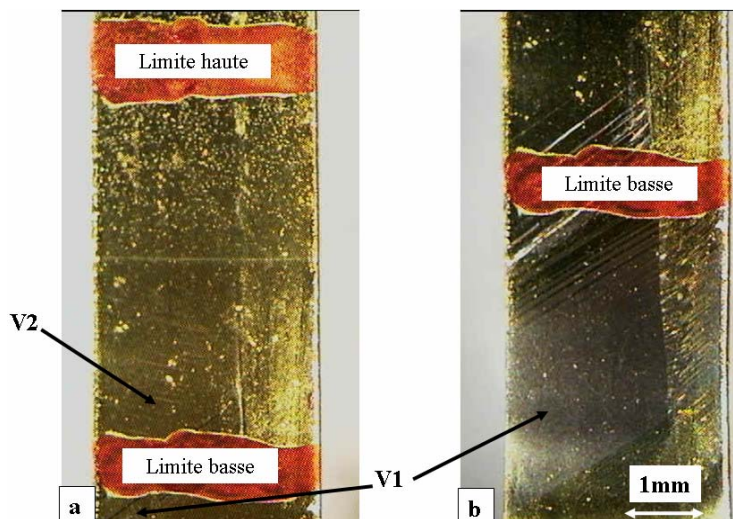
## **II.2/ Courbe de comportement et évolution microstructurale**

Après avoir été caractérisé à l'état initial, l'éprouvette a été cyclée 10 fois (cf. figure 5.18).



**Figure 5.18** : Courbe contrainte –déformation du monocristal pour les premier, deuxième et dixième cycles.

Au deuxième et dixième cycle, la courbe macroscopique est sensiblement identique à celle du premier cycle. Lors du premier cycle, nous avons suivi l'évolution de la microstructure. Comme le montre la figure 5.19 où la zone mesurée est représentée entre les deux limites, deux variantes de martensite notées  $V_1$  et  $V_2$  apparaissent dès le début de la transformation. La variante  $V_1$  est située au centre de l'échantillon, légèrement en dessous de la zone mesurée. La variante  $V_2$  se situe au-dessus de la zone considérée. On remarque également sur la figure 5.19b l'apparition d'une zone plus foncée à gauche.



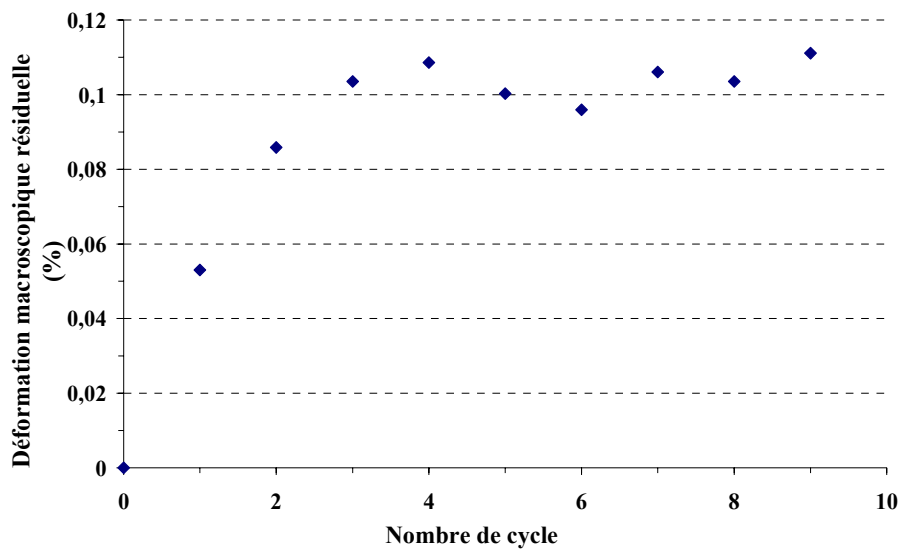
**Figure 5.19** : a/ Début de transformation dans le monocristal ( $\epsilon = 1,15\%$ ) ; deux variantes différentes apparaissent en même temps ; b/ à partir de 1,9% la variante  $V_1$  se propage dans les deux directions

A partir de 1,9%, la transformation se traduit par la propagation en bande de la variante  $V_1$  (cf. figure 5.19b). A 4%, on note une baisse de contrainte qui intervient quand des plaquettes de

martensite apparaissent au niveau des mors. De 5,4% à 7%, la contrainte remonte pour atteindre 280 MPa. A 6,3% de déformation, le monocristal était totalement martensitique car les deux interfaces de la variante V1 ont rejoint les plaquettes des mors.

Lorsque l'on décharge l'éprouvette, le plan d'habitat évolue dans le sens inverse à celui observé à la charge. Puis il disparaît à la décharge totale.

La figure 5.20 représente la déformation macroscopique résiduelle en fonction du nombre de cycles.



**Figure 5.20 :** Déformation macroscopique résiduelle de l'éprouvette en fonction du nombre de cycle

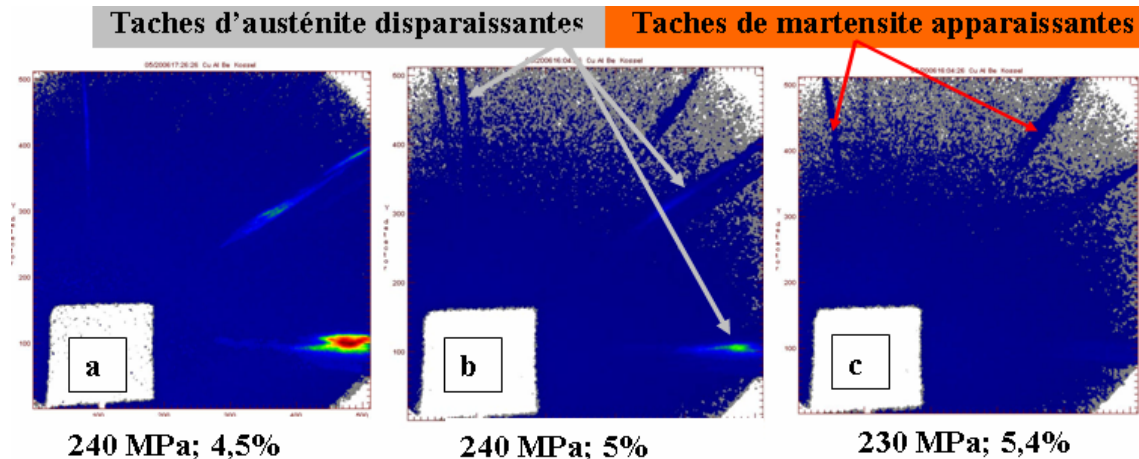
La déformation macroscopique résiduelle augmente fortement pendant les quatre premiers cycles puis se stabilise. Ce résultat est sûrement dû à la présence d'un sous-joint de grain (cf. 5.17) où de la martensite résiduelle peut se bloquer.

### II.3/ Résultats

Les analyses avec les rayons X refocalisés à haute énergie ont été effectuées uniquement aux premier, deuxième et dixième cycles. Pendant les cycles superélastiques du monocristal de CuAlBe, nous avons suivi l'évolution de la position du centre des pics horizontal et vertical (qui représentent respectivement la rotation des plans (220) et (200)), ainsi que les largeurs à mi-hauteur de ces pics qui mesurent la distribution autour de la valeur moyenne de rotation (mosaïcité). On rappelle qu'au vu de la précision de l'installation et de l'affinement des pics l'erreur de mesure sur les positions et les largeurs à mi-hauteur a été prise égale à  $\pm 2$  pixels soit  $\pm 0,006^\circ$ .

### II.3.1/ Mesure du signal de la martensite

La figure 5.21 représente trois images du détecteur à différentes déformations macroscopiques. Lorsque la déformation appliquée augmente, le signal de la martensite apparaît et celui de l'austénite disparaît.



**Figure 5.21 :** Cliché à différentes déformations appliquées a/ à 4,5% de déformation, et avant que le front de martensite ne passe devant le faisceau, b/ à 5% de déformation, la martensite apparaît sur le cliché, c/ à 5,4% de déformation.

A 4,5% de déformation, on aperçoit trois taches issues de trois plans d'austénite.

A 5% de déformation, trois taches de la martensite apparaissent et celles de l'austénite commencent à disparaître.

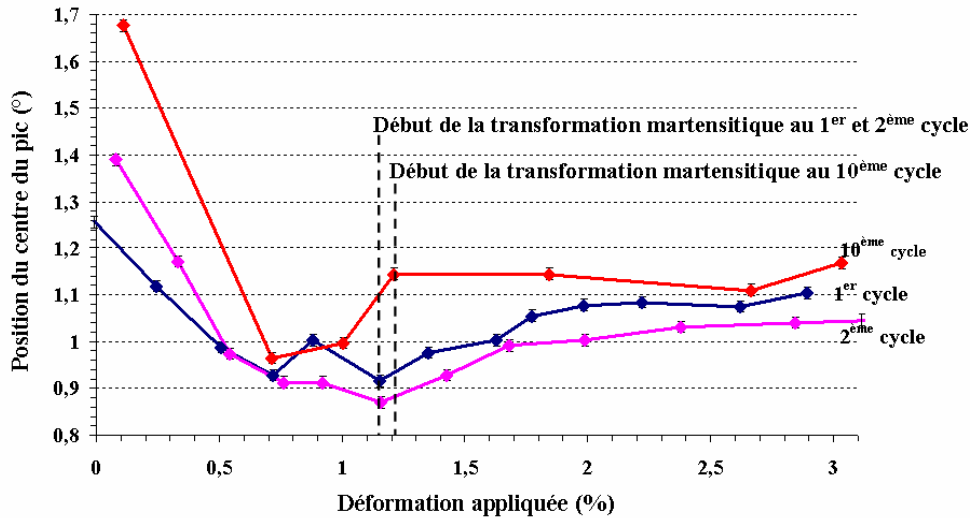
A 5,4% de déformation, les taches de martensite sont de plus en plus visibles et celles de l'austénite continuent à disparaître.

Ces clichés démontrent que l'on peut suivre l'apparition de la martensite. De plus cette technique permet d'étudier les angles entre les variantes de martensite apparaissant et certains plans de l'austénite. Néanmoins, dans notre étude, nous nous sommes focalisés sur l'austénite uniquement.

### II.3.2/ Rotation des plans d'austénite

La figure 5.22 représente l'évolution du centre du pic de (200) lors des premier, deuxième et dixième cycles en fonction de la déformation appliquée ; la valeur maximale de 3% sur le graphe correspond à la valeur, au cours du dixième cycle, pour laquelle il n'y a plus d'austénite dans la zone analysée. Pour aider à la compréhension et à l'analyse, le début de transformation martensitique a été indiqué pour les premier et dixième cycles.



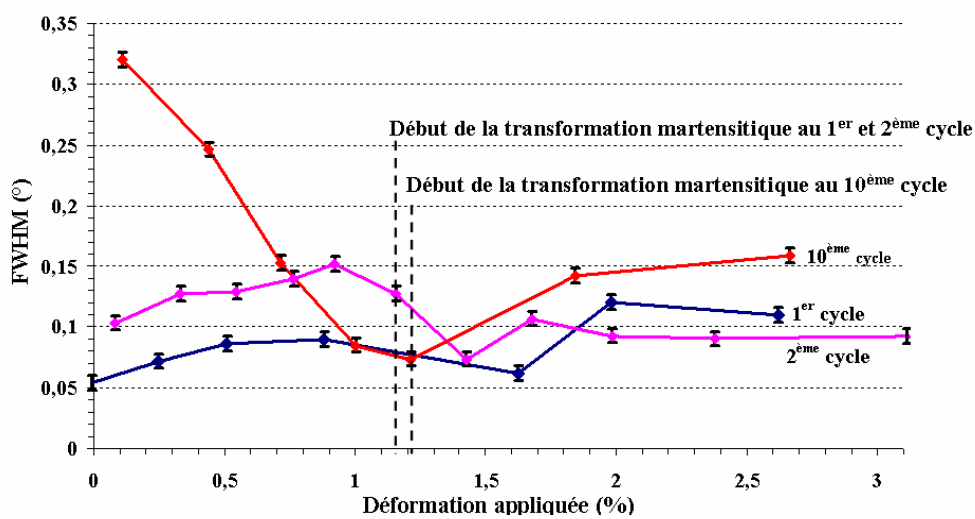


**Figure 5.22:** Position du centre de la tache (200) en fonction de la déformation appliquée en charge

Au premier cycle, les plans (200) tournent de  $0,35^\circ$  entre 0% et 1,2% de déformation macroscopique. Puis ces plans se stabilisent avec le début de la transformation martensitique dans l'éprouvette. Il semble donc y avoir un lien entre l'apparition de la transformation et la rotation des plans. Mais cette rotation peut également être due des rotations du monocristal sous le faisceau lors des mises en charge du monocristal. Aussi, ne pouvant déconvoluer les deux composantes, nous n'avons pas pu analyser plus ces évolutions.

### II.3.3/ Elargissement de la tache de diffraction

La figure 5.23 représente l'évolution des FWHM en fonction des déformations macroscopiques des pics projetés pour (200). Ces FWHM informent sur la distribution d'orientation autour de la position du centre du pic.

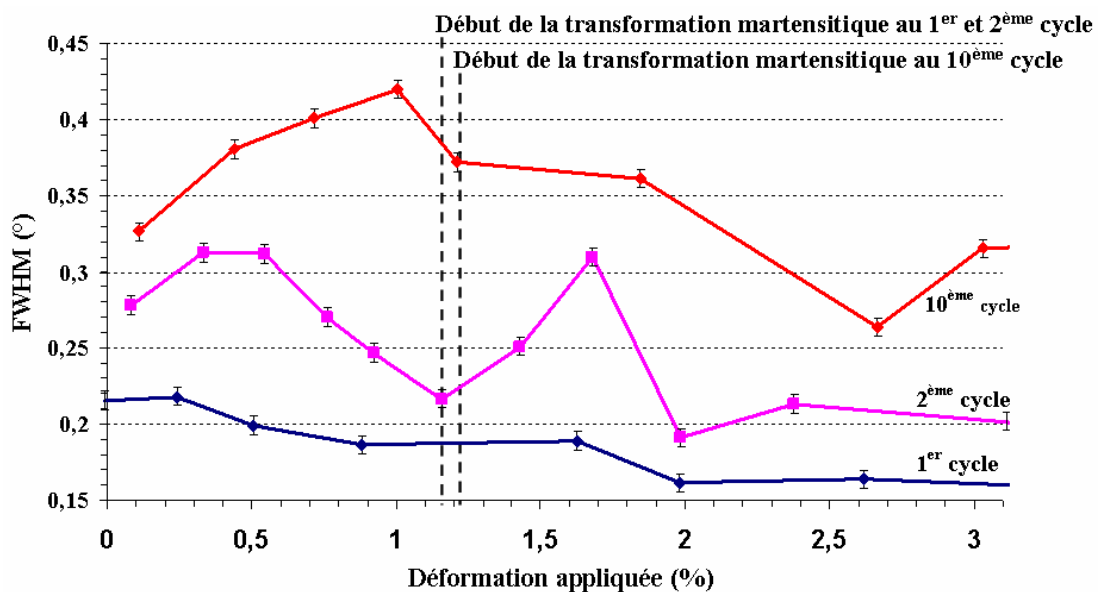


**Figure 5.23 :** Evolution de la FWHM de la tache (200) en fonction de la déformation appliquée en charge

Lors des deux premiers cycles, la mosaïcité des plans (200) de l'austénite n'évolue presque pas avec la déformation appliquée. Pour le dixième cycle, on observe une diminution importante de  $0,32^\circ$  à  $0,07^\circ$  avant la transformation martensitique ; puis une augmentation jusqu'à  $0,16^\circ$  à 2,7% de déformation.

On note également que la FWHM de début de cycle augmente de  $0,05^\circ$  entre les premier et deuxième cycles, puis de  $0,25^\circ$  entre les deuxième et dixième cycles.

La figure 5.24 représente l'évolution des FWHM en fonction des déformations macroscopiques des pics projetés pour (220).



**Figure 5.24:** Evolution de la FWHM de la tache (220) en fonction de la déformation appliquée en charge

La mosaïcité du plan (220) diminue très légèrement durant le premier cycle de  $0,22^\circ$  (0%) à  $0,16^\circ$  (3,4%).

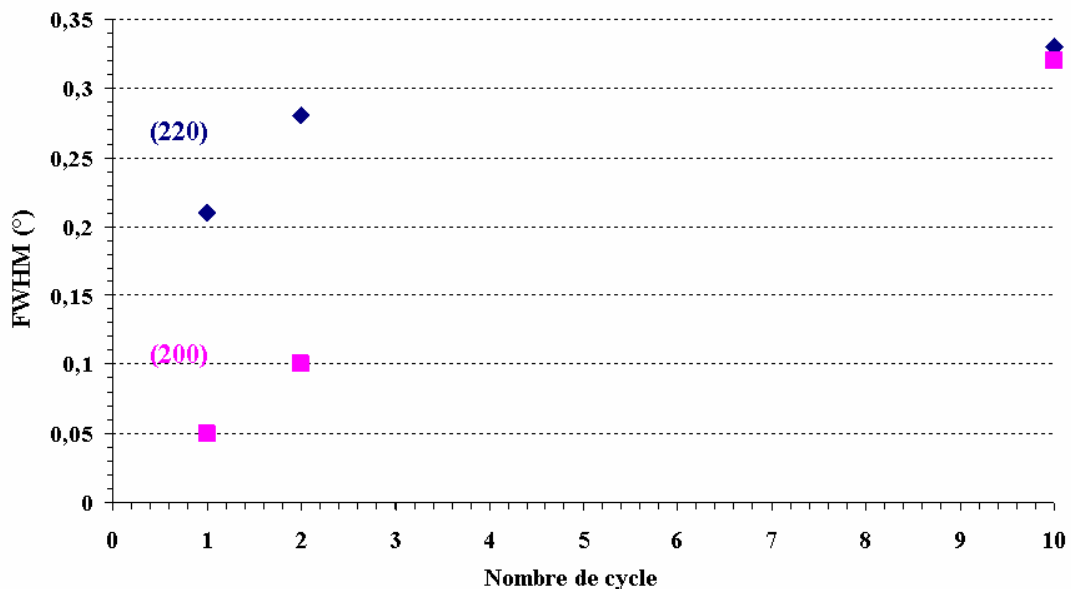
Après décharge complète au premier cycle, la mosaïcité a déjà augmenté de  $0,16^\circ$  à  $0,28^\circ$  (valeur de départ du second cycle).

Pendant le deuxième cycle, la mosaïcité diminue jusqu'au début de la transformation martensitique puis augmente pour redescendre à  $0,19^\circ$  à 2% de déformation.

Au début du dixième cycle, la mosaïcité à 0 MPa est de  $0,33^\circ$ . Elle a donc encore augmenté depuis le deuxième cycle ( $0,28^\circ$ ). Dans le domaine élastique, la mosaïcité augmente jusqu'à  $0,42^\circ$  pour diminuer au début de la transformation et atteindre la valeur de  $0,31^\circ$  à 3,2% de déformation.

Là encore, on note une augmentation de la FWHM à 0 MPa en fonction du nombre de cycles, mais moins marquée que pour le plan (220). Ces résultats sont résumés sur la figure 5.25.

Ce résultat rejoint les mesures faites à l'échelle macroscopique ; en effet, au chapitre 3, nous avons montré que, pour le polycristal, la largeur moyenne des pics de diffraction de différentes familles de plans augmente rapidement durant les premiers cycles puis se stabilise avec le nombre de cycles (cf. figure 3.28). Ce résultat a été mis en parallèle avec la déformation de transformation résiduelle.



**Figure 5.25 :** Evolution de la FWHM à 0MPa de (200° et (220) en fonction du nombre de cycle

Ici, dans le monocristal, le même phénomène est observé : la mosaïcité de l'austénite augmente durant les premiers cycles puis semble se stabiliser avec le cyclage. Si l'on compare avec la figure 5.20, on observe la même évolution entre la FWHM et la déformation macroscopique résiduelle.

Ce résultat est surprenant pour un monocristal mais Roqueta *et al.* [D.O. Roqueta *et al.*, 1997] ont montré que la présence des précipités dans des monocristaux de CuAlZn ne peut être évitée même après une trempe à l'eau. Le passage à de multiples reprises de l'interface austénite/martensite sur les précipités provoque des amas de dislocations autour de ceux-ci. Le champ de contraintes dû à ces dislocations finit par être suffisant pour bloquer la martensite résiduelle de chaque côté du précipité.

Dans notre échantillon la présence d'un sous-joint de grains (cf. 5.16) peut représenter un obstacle à la transformation inverse, conduisant à la présence de martensite résiduelle. Il serait donc intéressant d'analyser localement la microstructure au voisinage de ce sous-joint.

## Conclusions

Ce chapitre s'est focalisé sur l'échelle de l'austénite « piégée » entre des variantes de martensite. Au moyen de la diffraction de rayonnement X synchrotron, nous avons ainsi mesuré, dans l'austénite, les évolutions en fonction de la contrainte appliquée:

- des orientations de leurs distributions et de leurs gradients.
- des l'augmentation de la taille des plaquettes de martensite. Celle-ci augmente linéairement avec la déformation appliquée,
- des phénomènes microscopiques le long du plan d'habitat. Des zones appelées variantes « fantômes » ont été mises en évidence. Ces variantes « fantômes » n'ont pas les mêmes valeurs d'angles que l'austénite environnante. Ceci s'amplifie au niveau du plan d'habitat.

Tous ces résultats ont permis de confirmer que les rotations des sous-domaines, quand les plaquettes de martensite apparaissent, évoluent pour accommoder localement la transformation martensitique.

D'autre part, nous avons travaillé avec la méthode d'analyse des rayons X refocalisés à haute énergie. Ceci a permis de suivre les évolutions de la mosaïcité sur un monocristal au cours de plusieurs cycles. Ainsi on a mesuré que la mosaïcité du réseau d'austénite augmente avec le nombre de passages du plan d'habitat austénite-martensite. L'ajout d'un microscope sur la zone d'analyse permettrait de suivre simultanément l'évolution de la microstructure et les mesures de la mosaïcité.

Les rotations résiduelles des grains, les incompatibilités mécanique au joints de grains dues à la forte anisotropie élastique et l'augmentation de la mosaïcité des réseaux austénitiques dans chaque grain entraînent dans le polycristal des contraintes respectivement intergranulaires et intragranulaires.

Tous ces résultats au niveau des rotations de grains, des désorientations des sous-domaines austénitiques devront permettre d'affiner les modèles micromécaniques.

Les résultats présentés ici sont le fruit d'expériences *in-situ* réalisées pour la première fois. Cependant beaucoup d'ajustements et de corrections restent à faire. Il faudra par exemple améliorer l'installation de la machine de traction dans les goniomètres, le positionnement de l'éprouvette de traction, la calibration du détecteur et l'analyse des données.

Quoi qu'il en soit ce travail ouvre de nouvelles voies d'analyses *in-situ* dans le domaine de la transformation martensitique à l'échelle microscopique.

## Conclusion générale

Ce travail expérimental montre que les techniques de diffractions aux grands instruments permettent de réaliser des analyses microstructurales sur une très large gamme d'échelle. Les échelles couvertes dans ce travail vont de l'échelle du Volume Élémentaire Représentatif (VER) jusqu'à celle des domaines d'austénite situés entre deux plaquettes de martensite.

La réalisation de ce mémoire a conduit à adapter plusieurs techniques expérimentales à l'étude de matériaux biphasés et a contribué au développement d'essais *in-situ* sur différents appareils à l'European Synchrotron Radiation Facility (ESRF) et à l'Institut Laue Langevin (ILL). En ce sens, le travail réalisé a parfaitement atteint son objectif, à savoir montrer comment les outils de caractérisation multiéchelle, actuellement en cours de développement, peuvent s'appliquer à l'étude de la transformation martensitique sous contrainte dans les alliages à mémoire de forme. Le couplage d'essais de traction *in-situ* avec la diffraction de neutrons, la diffraction du rayonnement X synchrotron (microscope 3DXRD et la microdiffraction Laue) et les rayons X à haute énergie refocalisés, a permis d'analyser la transformation martensitique sous contrainte depuis des volumes de l'ordre du millier de grains, jusqu'à des domaines intragranulaires de seulement  $50 \mu\text{m}^3$ .

Les analyses par diffraction de neutrons de l'ILL, présentées au chapitre 3, ont permis de caractériser les évolutions microstructurales moyennes à l'échelle du volume élémentaire représentatif. Le microscope 3DXRD de l'ESRF appliqué à l'étude de la superélasticité d'un alliage à mémoire de forme (AMF) a permis d'obtenir des informations, en volume, à l'échelle du grain dans le polycristal. Ces résultats ont fait l'objet du chapitre 4. Des techniques très locales, comme la microdiffraction Laue et les rayons X à haute énergie refocalisés, ont permis d'obtenir les informations intragranulaires tout à fait originales présentées au cinquième et dernier chapitre.

Cette approche multiéchelle a permis d'obtenir plusieurs résultats marquants. En reliant de façon quantitative, la déformation résiduelle générée par un cyclage mécanique et la quantité de martensite stabilisée par ce chargement, les analyses par diffraction de neutrons sur la ligne D20 de l'ILL, ont ainsi permis, pour la première fois, de déterminer dans la déformation résiduelle, la contribution associée à la présence de martensite stabilisée et celle liée à la déformation plastique. Une conséquence importante de cette détermination a été d'établir que dans les AMF, l'élargissement des raies de diffraction, observé au cours des chargements successifs, n'a pas pour origine principale l'augmentation de la densité de dislocations, comme cela est généralement le cas dans les autres alliages. Cet élargissement doit être recherché dans un autre mécanisme d'augmentation des hétérogénéités intragranulaires, un mécanisme directement lié à la transformation de phase.

Les analyses réalisées aux échelles fines ont permis de mettre en évidence ce mécanisme particulier. Cela constitue un résultat majeur de ce travail. L'utilisation du microscope 3DXRD de l'ESRF, a montré que la transformation martensitique s'accompagne d'une rotation non négligeable du réseau cristallin de l'austénite à l'échelle du grain dans le polycristal et d'une fragmentation de l'austénite en plusieurs sous-domaines d'orientation différente. Ce mécanisme est largement réversible avec la transformation inverse. La microdiffraction Laue a permis d'analyser les changements d'orientation de l'austénite à l'échelle des variantes de martensite. Cette analyse a confirmé que dès que les plaquettes de martensite se forment, l'austénite située de part et d'autre des plaquettes s'oriente de façon différente. Il est fort probable que ce mécanisme réversible d'orientation soit à l'origine des élargissements, lui aussi réversible, des raies de diffraction observées dans les analyses macroscopique. L'ensemble de ces résultats devrait permettre d'affiner les modélisations micromécaniques de la transformation martensitique ainsi que les modèles de champs de phase.

Ce travail d'analyse multiéchelle sur un alliage à mémoire de forme de type CuAlBe ouvre la voie à de nouvelles études, d'une part pour confirmer et améliorer les résultats obtenus dans ce mémoire, mais surtout pour développer de nouvelles voies d'analyses *in-situ* à l'échelle microscopique de façon à mieux comprendre les évolutions microstructurales liées à l'éducation, la fatigue et le vieillissement des AMF. Le nickel-titane étant le principal alliage utilisé dans les applications, l'utilisation des techniques mises en œuvre au cours de la présente étude pour caractériser les évolutions de sa microstructure, constitue un challenge de première importance.

## Bibliographie

[1] : <http://fable.wiki.sourceforge.net/fabian>

[2] : <http://fable.sourceforge.net/index.php/ImageD11>

[3] : <http://fable.sourceforge.net/index.php/Grainspotter>

[4] : [http://xraysweb.lbl.gov/microdif/user\\_resources.htm](http://xraysweb.lbl.gov/microdif/user_resources.htm)

[5] : [http://www.ill.fr/data\\_treat/lamp/lamp.html](http://www.ill.fr/data_treat/lamp/lamp.html)

[6] : [http://www.nimesis.com/plaquettes/fap\\_nimesis.pdf](http://www.nimesis.com/plaquettes/fap_nimesis.pdf)

[M.F. Ashby, 1970]: M.F. Ashby. The deformation of plastically non-homogeneous alloys. *Phil. Mag.* I.21, p.399, 1970

[M. Ashby et al., 2001]: M. Ashby, Y. Bréchet, L. Salvo. Traité des matériaux 20. Sélections des matériaux et des procédés de mise en œuvre. *Presses Polytechniques et Universitaires Romandes*, 2001

[L. Avril, 2003] : L. Avril, *Thèse de doctorat* de l'ENSAM (C.E.R d'Angers). Elaboration de revêtements sur acier inoxydable, simulation de la fusion par irradiation laser, caractérisation structurale, mécanique et tribologique. 2003

[M.P. Baron, 1998]: M.P Baron, *Thèse de doctorat* INSA de Lyon. Etude du comportement des interfaces austenite/martensite et martensite/martensite de deux AMF : Le CuZnAl et le CuAlBe. 1998

[P. Bastie et al., 1996]: P. Bastie, B. Hamelin. La méthode de Laue refocalisée à haute énergie : une technique d'étude en volume des monocristaux. *J. de Phys. IV*, colloque C4, supplément au J. de Phys. III, V6, 1996.

[S. Belkhala, 1990]: S. Belkhala, *Thèse de doctorat* de l'INSA de Lyon. Elaboration et caractérisation de nouveaux AMF basse température de type Cu–Al–Be. 1990

[M. Benchiheb et al., 2000]: M. Benchiheb, S. Belkahla, G. Guénin. Etude de la stabilisation sous contrainte d'un alliage ternaire à mémoire de forme type CuZnAl. *Revue de Métallurgie*, p.1471, 2000

[M. Berveiller et al., 1984] : M. Berveiller, A. Zaoui. Modelling of the plastic behaviour of inhomogeneous media. *J. Eng. Mater. Technol.*, Vol.106, p.295, 1984

[S. Besseghini et al., 2004]: S. Besseghini, F. Stortiero, G. Carcano, E. Villa, L. Mancini, G. Traomba, F. Montanari, G. Airoldi. Characterisation of phase evolution under load by means of phase contrast imaging using synchrotron radiation. *Mat. Sc. and Eng. A*, Vol.378, p.125, 2004

[H. Bougrab, 2004]: H. Bougrab. *Thèse de doctorat* de l'ENSAM (C.E.R de Metz). Analyse et identification de microstructures de dislocations : approche micromécanique de la distorsion du réseau et élargissement des raies de diffraction des rayons. 2004

[W.L. Bragg, 1912]: W.L. Bragg, *Proc. Camb. Phil. Soc*, Vol.17, p.43, 1912

[C. Brinson et al., 2004]: C. Brinson, I. Schmidt, R. Lammering. Stress-induced transformation behavior of a polycrystalline NiTi shape memory alloy: micro and macromechanical investigations via in situ optical microscopy. *J. of the Mech. and Phys. of Solids*. Vol.52, I.7, p.549, 2004

- [**T.E. Buchheit et al., 1995**]: T.E. Buchheit, S.L. Kumpf, J.A. Wert. Modelling the stress-induced transformation behavior of shape memory alloy single crystals, *Acta Metall and Mater.*, Vol.43, p.4189, 1995
- [**Z. Budrovic et al., 2004**]: Z. Budrovic, H. Van Swygenhoven, P. M. Derlet, S. Van Petegem, B. Schmitt. Plastic deformation with reversible peak broadening in nanocrystalline nickel. *Science*. Vol. 304, n° 5668, p. 273, 2004
- [**H.J. Bunge, 1982**]: H.J. Bunge. Texture analysis in materials science — Mathematical Methods. Ed. Butterworths (Londres), 1982
- [**S. Calloch et al., 2006**]: S. Calloch, K. Taillard, S. Arbab Chirani, C. LExcellent, E. Patoor. Relation between the martensite volume fraction and the equivalent transformation strain in shape memory alloys. *Mat. Sc. & Eng. A*. Vols.438-440, p.441, 2006
- [**M. Ceretti et al., 2002**]: M. Ceretti, K. Hirschi, B. Marini, J.M. Sprauel, J.P. Lauriat, E. Elkaim, Residual stresses and hardening near crack tip regions of austenitic steel. *Appl. Phys. A: Mat. Sc. & Processing*, Vol.74, 2002
- [**J.S. Chung et al., 1999**]: J.S. Chung and G.E. Ice. Automated indexing for texture and strain measurement with broad-bandpass x-ray microbeams. *J. Appl. Phys.* Vol.86, p.5249, 1999
- [**L. Contardo et al., 1990**]: L. Contardo, G. Guenin. Training and Two Way Memory Effect in Cu–Zn–Al Alloy. *Acta Metall. and Mater.* Vol.38, p.1267, 1990
- [**F. Cuevas et al., 2005**]: F. Cuevas, M. Latroche, F. Bourrée-Vigneron, A. Percheron-Guégnan. Relationship between polymorphism and hydrogenation properties in Ti<sub>0.64</sub>Zr<sub>0.36</sub>Ni alloy. *J. of Alloys and Compounds*, Vols.404-406, p.545, 2005
- [**T.W. Duerig et al., 1990**]: T.W. Duerig, R. Zadno. An engineer's perceptive of pseudoelasticity – Engineering Aspects of Shape Memory Alloys. (Woburn, MA:Butterworth-Heinemann), p.369, 1990
- [**R. Dupke, 1995**]: R. Dupke, *Ph.D. Thesis* Technische Universität Berlin. Röntgenographische Untersuchungen zum Spannungs- und Verformungszunstand sowie zur Lebensdauer der Superlegierung, 1995
- [**F. Eberl, 2000**]: F. Eberl. *Thèse de doctorat* de l'ENSAM (CER de Paris). Second order heterogeneities in a multicrystal: Experimental developments using X-ray diffraction and comparaison with finite element model, 2000
- [**F. Eberl et al., 1998**]: F. Eberl, J.L. Lebrun, G. Cailletaud. X ray analysis of the mechanical state of a Nickel based multicrystal on the mesoscopic scale: Role of the grain orientation and its boundary. *Adv. X-ray Anal.*, Vol.42; CD-ROM. [Proc. Denver X-ray Conf. (1998)]
- [**D. Entemeyer, 1996**]: D. Entemeyer. *Thèse de doctorat* de l'Université de Metz. Etude micromécanique du comportement thermomécanique des alliages à mémoire de forme. 1996
- [**A.D. Evans, 2005**]: A.D. Evans, *Ph.D Thesis* University of Manchester. Residual stress characterisation of peened aerospace materials. 2005
- [**M. François, 1997**]: M. François. Détermination des contraintes résiduelles par diffraction des rayons X. *Document de formation générale*. Chap. 4, ENSAM Paris, 1997
- [**ISO-TTA3, 2001**]: *ISO-TTA3, 2001*. Polycristalin materials determination of residuals stresses by neutrons diffraction, 2001
- [**Y. Gao, 2005**]: Y. Gao, *Rapport de DEA*, LPMM, ENSAM de Metz. Etude de la transformation martensitique d'un AMF Cu–Al–Be à grains fins par rayons X et neutrons. 2005



- [**G.B. Greenough, 1952**]: G.B. Greenough. *Progress in Metal Phys.*, Pergamon Press. Vol.3, p.176, 1952
- [**G. Guenin, 1988**]: G. Guenin. Alliages à mémoire de forme, *Technique de l'ingénieur*, Vol. M530, 1998
- [**R. Guinebrière, 2006**]: R. Guinebrière. Diffraction des rayons X sur échantillons polycristallins, instrumentation et étude de la microstructure. *Hermès Science*, 2006
- [**A. Guinier et al., 1949**]: A. Guinier, J. Tennevin. Sur deux variantes de la méthode de Laue et leurs applications. *Acta Cryst.* Vol.2, p.133, 1949
- [**C.H Gonzalez, 2002**]: C.H. Gonzalez, *Thèse de doctorat* de l'INSA de Lyon. Etude des comportements électro-thermomécaniques et de la stabilisation martensitique d'alliages monocristallins à mémoire de forme base cuivre. 2002
- [**R.F. Hamilton et al., 2008**]: R.F. Hamilton, H. Sehitoglu, K. Aslantas, C. Efstathiou, H.J. Maier. Intermartensite strain evolution in NiMnGa single crystals. *Acta Mater.* Vol.56, I.10, p.2231, 2008
- [**A.W. Hewat, 1975**]: A.W. Hewat. Design for conventional high-resolution neutron powder diffractometer. *Nucl. Instr. And methods*, Vol.127, p.361, 1975
- [**M.T. Hutchings et al., 2005**]: M.T. Hutchings, P.J. Withers, T.M. Holden, T. Lorentzen. Introduction to the characterization of residual stress by neutron diffraction. *Taylor & Francis*, London, 2005
- [**G.E. Ice and al., 2000**]: G.E. Ice, B.C. Larson. 3D X-Ray Crystal Microscope. *Adv. Eng. Materials*, I.10, Vol.2 , p.643, 2000
- [**H.R. Isenburger, 1953**]: H.R. Isenburger. Bibliography on X-Ray stress analysis. 2nd Edition New Jersey, St. John X-Ray Laboratory, 1953
- [**B. Jakobsen et al, 2006**]: B. Jakobsen, H.F. Poulsen, U. Lienert, J. Almer, S.D. Shastri, H.O. Sørensen, C. Gundlach, and W. Pantleon. Formation and Subdivision of Deformation Structures During Plastic Deformation. *Science*, Vol.312, p.889, 2006
- [**C. Jourdan et al., 1995(a)**]: C. Jourdan, J. Castaldi, V. Roques, G. Grange, S. Belkahla, G. Guenin, In Situ study of the self-accomodating process during the martensitic transformation of a Cu–Zn–Al single crystal by synchrotron X-Ray topography – I. Crystallographic study.– *Acta. Metal. Mater.* Vol.43, No.12, p.4213, 1995
- [**C. Jourdan et al., 1995(b)**]: C. Jourdan, J. Castaldi, G. Grange, S. Belkahla, G. Guenin. In Situ study of the self-accomodating process during the martensitic transformation of a Cu–Zn–Al single crystal by synchrotron X-Ray topography – II. Dynamics of the process and role of crystalline defects. *Acta. Metal. Mater.* Vol.43, No.12, p.4227, 1995
- [**C. Jourdan et al., 1999**]: C. Jourdan, J. Castaldi, A. Baronnet, S. Belkahla, G. Guenin. In Situ study by synchrotron X-ray diffraction of the motion of basal stacking faults during the reverse-phase transformation of a Cu–Zn–Al single crystal. *Mat. Sc. & Eng. A*, Vol.266, p.191, 1999
- [**S. Kajiwara, 1976**]: S. Kajiwara. Experimental aspects of the crystallography of the martensitic transformation of BCC to 9R close-packed structure. *Trans. of the J. Inst. of Metals*, Vol.17, p.447, 1976
- [**B. Kaouache, 2006**]: B. Kaouache. *Thèse de doctorat* de l'ENSAM (CER Metz). Analyse multiéchelles de la transformation martensitique induite par contrainte dans les AMFs. Corrélation Contraintes-Microstructure, 2006
- [**J. Khalil-Allafi et al., 2004**]: J. Khalil-Allafi , B. Hasse, M. Klönne, M. Wagner, T. Pirling, W. Predki, W.W. Schmahl. In-situ diffraction investigation of superelastic NiTi shape memory alloys under mechanical stress with neutrons and with synchrotron radiation. *Mat.-wiss. u. Werkstofftech.* Vol.35, n°5, p.280, 2004

[S. Kok et al., 2003]: S. Kok, M.S. Bharathi, A.J. Beaudoin, C. Fressengeas, G. Ananthakrishna, L.P. Kubin, M. Lebyodkin. Spatial coupling in jerky flow using polycrystal plasticity. *Acta Mater.*, Vol.51, I.13, p.3651, 2003

[B.C. Larson et al., 2002]: B.C. Larson, W. Yang, G.E. Ice, J.D. Budai and J.Z. Tischler. Three dimensional X-ray structural microscopy with submicrometre resolution. *Nature*, Vol.415, p.887, 2002

[E.M. Lauridsen and al., 2001]: E.M. Lauridsen, S. Schmidt, R.M. Suter and H.F. Poulsen. Tracking: A method for structural characterization of grains in powders or polycrystals. *J. Appl. Cryst.* Vol.34, p.744, 2001

[H. Lester et al., 1925]: H. Lester, R. Aborn,. Army Ordnance, Vol.6, p.120, 1925

[U. Lienert et al., 1998]: U. Lienert, C. Schulze, V. Honkimäki, Th. Tschentscher, S. Garbe, O. Hignette, A. Horsewell, M. Lingham, H. F. Poulsen, E. Ziegler. Focusing optics for high-energy x-ray diffraction. *J. of Synchrotron Radiat.*, Vol.5, p.226, 1998

[A.A. MacDowell et al., 2001]: A.A. MacDowell, R.S. Celestre, N. Tamura, R. Spolenak, B. Valek, W.L. Brown, J.C. Bravman, H.A. Padmore, B.W. Batterman, J.R. Patel. Submicrom X-ray diffraction. *Nucl. Instr. & Meth. in Physics Research A*, Vol.467-468, p.936, 2001

[E. Macherauch, 1958]: E. Macherauch. Die Eigenspannungsbestimmung mit Röntgenstrahlen. Internat. Kolloquium der Hochschule für Elektrotechnik. Ilmenau, p.359, 1958

[E. Macherauch et al., 1959]: E. Macherauch, P. Müller, Das  $\sin^2\psi$  – Verfahren der röntgenographischen Spannungsmessung, *Z. angew. Physik* Vol.13, p.305, 1959

[B. Malard et al., 2006]: B. Malard, T. Pirling, K. Inal, E. Patoor, S. Berveiller. Stress determination during the mechanically-induced martensite phase transformation in the superelastic alloy Cu–Al–Be by neutron diffraction. *Mat. Sc. Forum* Vol.524-525, p.905, 2006

[J. Malarria et al., 1994]: J. Malarria. and M. Sade. The effect of temperature on pseudoelastic cycling of Cu–Zn–Al single crystals. *Scripta Metall. and Mat.*, Vol.30, p.2, 1994

[L. Margulies et al., 2001]: L. Margulies, G. Winther, H.F. Poulsen. In situ measurement of grain rotation during deformation of polycrystals. *Science*, Vol.291. N°5512, p.2392, 2001

[L. Marguiles et al., 2002]: L. Marguiles, T. Lorentzen, H.F. Poulsen. Strain tensor development in a single grain in the bulk of a polycrystal under loading. *Acta Mater.* Vol.50, p.1771, 2002

[L. Marguiles et al., 2004]: L. Marguiles, H.F. Poulsen. Three-dimensional X-ray diffraction analysis. Evolution of deformation microstructures in 3D. *Proc. 25<sup>th</sup> Riso Int. Symp. Mater. Sci.*, (Ed.) Riso National Laboratory, Roskilde, Denmark, p.61, 2004

[R.V. Martins et al., 2004]: R.V. Martins, L. Margulies, S. Schmidt, H.F. Poulsen, T. Leffers. Simultaneous measurement of the strain tensor of 10 individual grains embedded in an Al tensile sample. *Mat. Sc. & Eng. A*, Vols.387–389, p.84, 2004

[A. Mehta et al., 2007]: A. Mehta, X.Y. Gong, V. Imbeni, A.R. Pelton and R.O. Ritchie. Understanding the Deformation and Fracture of Nitinol Endovascular Stents Using In Situ Synchrotron X-ray Microdiffraction. *Adv. Mater.* Vol.19, p.1183, 2007

[J.C. Michel, 1998]: J.C. Michel. Méthodes d'homogénéisation des matériaux en mécanique. Chap. 4, Ecole thématique du CNRS, p.79, 1998

[A. Molinari et al., 1994]: A. Molinari, L.S. Tóth. Tuning a self consistent viscoplastic model by finite element results - I. Modeling. *Acta Metall. et Mat.*, Vol.42, I.7, p.2453, 1994

- [**P. Molnar et al., 2008**]: P. Molnar, P. Sittner, V. Novak and P. Lukas Twinning processes in Cu–Al–Ni martensite single crystals investigated by neutron single crystal diffraction method. *Mat. Sc. & Eng.: A*, Vols.481-482, p.513, 2008
- [**J.P. Moniroli, 2001**]: J.P. Moniroli. Microscopie électronique. *Ed. Soc. Fr. de microscopie*, 2001
- [**M. Montagnat et al., 2001**]: M. Montagnat, P. Duval, P. Bastie, O. Brissaud, M. de Angelis, J.R. Petit, V.Y. Lipenkov. High crystalline quality of large single crystals of subglacial ice above Lake Vostok (Antarctica) revealed by hard X-ray diffraction. *Earth and Planetary Sc.*, Vol.333, p.419, 2001
- [**S. Montecinos et al., 2007**]: S. Montecinos, A. Cuniberti. Thermodynamical behaviours of the CuAlBe shape memory alloy. *J. of Alloys and Compounds*, 2007
- [**F. Moreau, 1998**] : F. Moreau, *Thèse de doctorat* de l'Université de Metz. Etude par diffraction des rayons X des effets du cyclage pseudoélastique de AMF CuAlBe. 1998
- [**V. Novak et al., 1999**]: V. Novak, P. Sittner, D. Vokoun, N. Zarubova. On the anisotropy of martensitic transformations in Cu-based alloys. *Mat. Sc. & Eng. A*, Vols.271-275, p.280, 1999
- [**V. Novak et al., 2008**]: V. Novak, P. Sittner, G.N. Dayananda, F.M. Braz-Fernandes and K.K. Mahesh. Electric resistance variation of NiTi shape memory alloy wires in thermomechanical tests: Experiments and simulation. *Mater. Sc. Eng. A*. Vols 481-482, p.127, 2008
- [**E.C Oliver et al., 2003**]: E.C Oliver, N. Kobayashi, T. Mori, M.R. Daymond. Structure of a stress-induced martensite plate and its formation stress. *Scripta Mater.*, Vol.49, p.1013, 2003
- [**E.C. Oliver et al., 2004**]: E.C. Oliver, T. Mori, M.R. Daymond, P.J. Withers. Neutron diffraction study of stress-induced martensitic transformation and variant change in Fe-Pd. *Mater. Sc. Eng. A*, Vol.378, p.328, 2004
- [**G. Olson, 2001**]: G. Olson. Beyond Discovery: Design for a New Material World. *Calphad*, Vol.25, n°2, p.175, 2001
- [**K. Otsuka et al., 1976**]: K. Otsuka, C.M. Wayman, K. Nakai et K. Shimizu. Superelasticity effects and stress-induced martensitic transformations in Cu–Al–Ni alloys. *Acta Metall.*, Vol.24, p.207, 1976
- [**K. Otsuka et al., 1977**]: K. Otsuka and C.M. Wayman. Deformation behaviour of materials. *Israël Freud Publishing House*. Vol.2, p.98, 1977
- [**J.R. Patel et al., 1953**]: J.R. Patel and M. Cohen. Criterion for the action of applied stress in martensitic transformation. *Acta Metall.* Vol.1, p.531, 1953
- [**E. Patoor et al., 1988**]: E. Patoor, A. Eberhard, M. Berveiller. Thermomechanical behaviour of shape memory alloys. *Arch. Mech.* Vol.40, I.5–6, p.775, 1988
- [**E. Patoor et al., 1994**]: E. Patoor et M. Berveiller. Technologie des AMF. Hermès, 1994
- [**J.I. Pérez-Landazábal et al., 2003**]: J.I. Pérez-Landazábal, V. Recarte, M.L. No, J. San Juan. Determination of the order in  $\gamma_1$  intermetallic phase in Cu–Al–Ni shape memory alloys. *Intermetallics*, Vol.11, p.927, 2003
- [**T. Pirling et al., 2000**]: T. Pirling, G. Bruno, P.J. Withers. SALSA: Advances in Residual Stress Measurement at ILL. *Mat. Sc. Forum*. Vols.524–525, p. 217, 2000
- [**T. Pirling, 2003**]: T. Pirling. Stress Determination with High Lateral Resolution Using Neutron Diffraction. *Mat. Sc. Forum*, Vols.426–432, p.3975, 2003

[**T. Pirling et al., 2006**]: T. Pirling, G. Bruno, P. Withers. SALSA - A new instrument for strain imaging in engineering materials and components. *Mat. Sc. & Eng. A* Vol.437, I.1, p.139, 2006

[**H.F. Poulsen et al., 1997**]: H.F. Poulsen, S. Garbe, T. Lorentzen, D.J. Jensen, F.W. Poulsen, N.H. Andersen, T. Frello, R. Feidenhans'l, H. Graafsma. Applications of high-energy synchrotron radiation for structural studies of polycrystalline materials. *J. Synchrotron radiation*, Vol.4, p.147, 1997

[**H.F. Poulsen et al., 2001**]: H. F. Poulsen, S. F. Nielsen, E. M. Lauridsen, S. Schmidt, R. M. Suter, L. Margulies, T. Lorentzen and D. Juul Jensen. Three-dimensional maps of grain boundaries and the stress state of individual grains in polycrystals and powders. *J. Appl. Cryst.*, Vol.34, p.751, 2001

[**H.F. Poulsen et al., 2002**]: H.F. Poulsen, and D. Juul Jensen. From 2D to 3D microtexture investigations-ICOTOM 13, *Trans. Tech. Publ.*, Zürich, Switzerland, Vol.49, 2002

[**H.F. Poulsen, 2004**]: H.F. Poulsen. Three-Dimensional X-Ray Diffraction microscopy: Mapping polycrystals and their dynamics. Springer, Berlin, Germany, *Springer Tracts in Modern Physics*, vol.205, p.154, 2004

[**S.D. Prokoshkin et al., 2006**]: S.D. Prokoshkin, A.V. Korotitskiy, A.V. Tamonov, I. Yu Khmelevskaya, V. Brailovski, S. Turenne. Comparative X-ray and time-of-flight neutron diffraction studies of martensite crystal lattice in stressed and unstressed binary Ti-Ni alloys. *Mat. Sc. & Eng. A*. Vols.438-440, p.549, 2006

[**N. Rebelo et al., 2001**]: N. Rebelo, N. Walker, H. Foadian. In simulation of implantable Nitinol Stents. Abaqus Users' Conf., ABAQUS Inc., Providence, RI, 2001

[**N. Rebelo et al., 2004**]: N. Rebelo, X.Y. Gong, M. Connally. Finite element analysis of Nitinol's plastic behaviour. *Proc. of SMST-2003* (Eds: A.R. Pelton, T.W. Duerig), SMST Society, Pacific Grove, CA, 2004

[**V. Recarte et al., 2004**]: V. Recarte, J.I. Perez-Landazábal, A. Ibarra, M.L. No, J. San Juan. *Mat. Sc. & Eng. A*, Vol.378, p.238, 2004

[**H. Reichert et al., 2003**]: H. Reichert, V. Honkimäki, A. Snigirev, S. Engemann, H. Dosch. A new x-ray transmission-reflection scheme for the study of deeply buried interfaces using high-energy microbeams. *Physica B*. Vol.336, p.46, 2003

[**H.M. Rietveld, 1969**]: H.M. Rietveld. A profile refinement method for nuclear and magnetic structures. *J. of Applied Cryst.* Vol.2, p.65, 1969

[**O. Robach, 2007**]: Communication privée avec O. Robach, 2007

[**D.O. Roqueta et al., 1997**]: D.O. Roqueta, F.C. Lovey and M. Sade. Hysteresis evolution in the martensitic transformation cycling in  $\beta$ -CuZnAl samples with  $\gamma$ -phase precipitates. *Scripta Materialia*, Vol.36, I.4, p.385, 1997

[**L. Saint-Sulpice et al., 2008**]: L. Saint-Sulpice, S. Arbab Chirani and S. Calloch. Super-elastic behavior of shape memory alloys under proportional cyclic loadings. *Mat. Sc. & Eng. A*, Vols. 481-482, p.174, 2008

[**J. Saroun. et al., 1974**]: J. Saroun., T. Pirling, R.B. Rogge. Optimization of a focusing monochromator for neutron strain-scanning diffractometer. *Applied Physics A, Mat. Sc. & Processing*, p.1489, 1974

[**E. Scheil and al., 1932**]: E. Scheil. Zeitschrift für anorganische und allgemeine chemie. *Z. anorg u allgem Chemie* Vol.207, p.21, 1932

[**P. Schlosser, 2008**]: P. Schlosser. *Thèse de doctorat* de l'Université Joseph-Fourier (Grenoble), Influence of thermal and mechanical aspects on the deformation behaviour of NiTi alloys, 2008

**[W.W. Schmahl et al., 2004]:** W.W. Schmahl, J. Khalil-Allafi, B. Hasse, M. Wagner, A. Heckmann, Ch. Somsen. Investigation of the phase evolution in a superelastic NiTi SMA (50.7at.%Ni) under extensional load with synchrotron radiation. *Mat. Sc. & Eng. A*, I.1-2, Vol.378, p.81, 2004

**[S. Schmidt et al., 2004]:** S. Schmidt, S.F. Nielsen, C. Gundlach, L. Margulies, X. Huang, D. Juul Jensen. Watching the growth of bulk grains during recrystallization of deformed metals. *Science*, Vol.305, p.229, 2004

**[S. Schmidt et al., 2005]:** S. Schmidt and D.J. Jensen. Metal structures in four dimensions. *Arch. Metall. Mater.* Vol.50, p.181, 2005

**[S. Schmidt, 2007]:** Private communication with S.Schmid, 2007.

**[J.R. Schneider et al., 1994]:** J.R. Schneider, R. Bouchard, T. Brückel, M. Lippert, H.B. Neumann, H.F. Poulsen, U. Rutt, T. Schmidt, M. Von Zimmermann. High energy synchrotron radiation. A new probe for condensed matter research. *J. Phys. IV France*, Vol.4, (n° C9), p. 415, 1994

**[C.C. Seepersad, 2004]:** C.C. Seepersad. *PhD thesis* Georgia Institute of Technology. A Robust topological preliminary design exploration method with materials design, 2004

**[H. Sitepu et al., 2003]:** H. Sitepu, M. Klöner, W.W. Schmahl, W. Predki, T. Pirling. Measurements of strain, texture and phase fraction in aged Ni-rich NiTi shape memory alloys by neutron powder diffraction technique under in situ torsional loading. *J. de Phys. IV*, Vol.112, p.811, 2003

**[P. Sittner et al., 2001]:** P. Sittner, V. Novak, D. Neov, P. Lukas. Load partition in shape memory alloy polycrystals. *Proceedings of I.M.M.M*, Japan, p.35, 2001

**[P. Sittner et al., 2002]:** P. Sittner, P. Lukas. Stress-induced martensitic transformation in Cu–Al–Zn–Mn polycrystal investigated by two in-situ neutron diffractions techniques. *Mat. Sci. & Eng. A*. Vol.324, p.225, 2002

**[P. Sittner et al., 2004]:** P. Sittner, P. Lukás, V. Novák, M.R. Daymond, G.M. Swallowe. In situ neutron diffraction studies of martensitic transformations in NiTi polycrystals under tension and compression stress. *Mat. Sc. & Eng. A*, Vol.378, p.97, 2004

**[A. Snigirev et al., 2007]:** A. Snigirev, A. Bjeoumikhov, A. Erko, I. Snigireva, M. Grigoriev, V. Yunkin, M. Erko and S. Bjeoumikhova. Two-step hard X-ray focusing combining Fresnel zone plate and single-bounce ellipsoidal capillary. *J. Synchrotron Rad.* Vol.14, p.326, 2007

**[A. Steuwer et al., 2004]:** A. Steuwer, J.R. Santisteban, M. Turski, P.J. Withers and T. Buslaps. High-resolution strain mapping in bulk samples using full-profile analysis of energy-dispersive synchrotron X-ray diffraction data. *J. Appl. Cryst.* Vol.37, p.883, 2004

**[Q.P. Sun et al., 1994]:** Q.P. Sun, K. Hwang, S. Yu. Micromechanics constitutive modeling of transformation plasticity with shear and dilatation effect. *Ad. Appl. Mech.*, Vol.31, p.249, 1994

**[P.R. Swan et al., 1963]:** P.R. Swan, H. Warlimont. The Electron-Metallography and Crystallography of Copper-Aluminum Martensites. *Acta. Met.* Vol.11, p.511, 1963

**[M. Tokuda et al., 1999]:** M. Tokuda, M. Ye, M. Takakura, P. Sittner. Thermomechanical behavior of shape memory alloy under complex loading conditions. *Int. J. of Plast.*, Vol.15, p.223, 1999

**[L.S. Tóth et al., 1994]:** L.S. Tóth, A. Molinari. Tuning a self consistent viscoplastic model by finite element results - II. Application to torsion textures. *Acta Metall. et Mat.* Vol.42, I.7, p.2459, 1994

**[R. Vaidyanathan et al., 1999]:** R. Vaidyanathan, M.A.M. Bourke and D.C. Dunand. Phase fraction, texture and strain evolution in superelastic NiTi and NiTi-TiC composites investigated by neutron diffraction. *Acta Mater.* Vol.47, N°12, p.3353, 1999

**[B.C. Valek, 2003]:** B.C. Valek, *Ph.D. Thesis of material science and engineering* of Stanford University. X-ray microdiffraction studies of mechanical behaviour and electromigration in thin film structure, 2003

**[J. Van Humbeeck, 1999]:** J. Van Humbeeck. Non-medical applications of shape memory alloys. *Mat. Sc. & Eng. A*, Vols.273–275, p.134, 1999

**[C.A. Volkert et al., 2004]:** C.A. Volkert, C. Eberl, R. Mönig, M. Walter and O. Kraft. 3D analysis of microstructures by focused ion beam microscopy. *Proc. 25th Riso Int. Symp.Mater.Sci.*, (Eds) Riso National Laboratory, Roskilde, Denmark, p.171, 2004

**[G.A. Webster et al., 1997]:** G.A. Webster, A.N Ezeilo. Residual stress distributions and their influence on fatigue lifetimes. *Phys. B* Vol. 949, p.234, 1997

**[M.S. Wechsler et al., 1953]:** M.S. Wechsler, D.S. Lieberman, T.A. Read. On the theory of the formation of martensite. *Trans. AIME*, 1953

**[A.J.C. Wilson et al., 1999]:** A.J.C. Wilson, E. Prince. *International table for crystallography*, Vol.C, London, 1999

**[G. Winther et al., 2004]:** G. Winther, L. Margulies, S. Schmidt, H.F. Poulsen. Lattice rotations of individual bulk grains. Part 2: Correlation with initial orientation and model comparison. *Acta Mater.* Vol.52, p.2863, 2004

**[P.J. Withers, 2004]:** P.J. Withers. Depth capabilities of neutron and synchrotron diffraction strain measurement instruments. II. Practical implications. *J. Appl. Cryst.*, Vol.37, p.607, 2004

**[Workshop Prague 2008]:** Modelling of SMAs and SMA Actuated Structures. Workshop ESF-Eurocores Programme, S3T, Prague, 4-7 Mai 2008

**[H.F. Zuniga, 1993]:** H.F. Zuniga, *Thèse de doctorat* de l'INSA Lyon. Stabilité thermique de la phase  $\beta$  et de l'effet mémoire double sens d'un alliage à mémoire de forme du type CuAlBe. 1993

## Annexe du chapitre 1

### I/ Coordonnées des 24 variantes susceptibles d'être activées au cours du chargement mécanique d'un AMF de type CuAlBe

Variante	$n_1$	$n_2$	$n_3$	$m_1$	$m_2$	$m_3$
Var 1	0,1786	0,6628	0,7271	0,1606	- 0,7448	0,6476
Var 2	0,1786	0,7271	0,6628	0,1606	0,6476	- 0,7448
Var 3	- 0,1786	0,6628	0,7271	- 0,1606	- 0,7448	0,6476
Var 4	- 0,1786	0,7271	0,6628	- 0,1606	0,6476	- 0,7448
Var 5	- 0,6628	0,1786	0,7271	0,7448	0,1606	0,6476
Var 6	- 0,7271	0,1786	0,6628	- 0,6476	0,1606	- 0,7448
Var 7	- 0,6628	- 0,1786	0,7271	0,7448	- 0,1606	0,6476
Var 8	- 0,7271	- 0,1786	0,6628	- 0,6476	- 0,1606	- 0,7448
Var 9	0,1786	- 0,6628	0,7271	0,1606	0,7448	0,6476
Var 10	0,1786	- 0,7271	0,6628	0,1606	- 0,6476	- 0,7448
Var 11	- 0,1786	- 0,6628	0,7271	- 0,1606	0,7448	0,6476
Var 12	- 0,1786	- 0,7271	0,6628	- 0,1606	- 0,6476	- 0,7448
Var 13	0,7271	0,1786	0,6628	0,6476	0,1606	- 0,7448
Var 14	0,6628	0,1786	0,7271	- 0,7448	0,1606	0,6476
Var 15	0,7271	- 0,1786	0,6628	0,6476	- 0,1606	- 0,7448
Var 16	0,6628	- 0,1786	0,7271	- 0,7448	- 0,1606	0,6476
Var 17	0,6628	- 0,7271	- 0,1786	- 0,7448	- 0,6476	- 0,1606
Var 18	0,7271	- 0,6628	- 0,1786	0,6476	0,7448	- 0,1606
Var 19	- 0,6628	0,7271	- 0,1786	0,7448	0,6476	- 0,1606
Var 20	- 0,7271	0,6628	- 0,1786	- 0,6476	- 0,7448	- 0,1606
Var 21	- 0,7271	- 0,6628	- 0,1786	- 0,6476	0,7448	- 0,1606
Var 22	- 0,6628	- 0,7271	- 0,1786	0,7448	- 0,6476	- 0,1606
Var 23	0,7271	0,6628	- 0,1786	0,6476	- 0,7448	- 0,1606
Var 24	0,6628	0,7271	- 0,1786	- 0,7448	0,6476	- 0,1606

Tableau 1.1 : Normales aux plans d'habitat ( $n_1$ ,  $n_2$ ,  $n_3$ ) et directions de glissement ( $m_1$ ,  $m_2$ ,  $m_3$ ) de la transformation martensitique pour l'AMF CuAlBe [S. Kajiwara, 1976].

## Annexe du chapitre 2

### I/ Les constantes d'élasticité radiocristallographiques

#### I.1/ Définition

Dans un matériau polycristallin, l'état mécanique des cristallites est généralement différent de celui du matériau macroscopique du fait de leur anisotropie élastique. C'est ce qu'on appelle les

contraintes d'ordre II. Même si le matériau est macroscopiquement isotrope, du fait de son caractère intermédiaire entre les échelles macroscopiques et microscopiques, le volume diffractant va retenir une partie de l'anisotropie du cristallite ; par la suite, les relations contraintes - déformations de ce volume ne pourront plus être exprimées à l'aide des constantes d'élasticité E et  $\nu$  macroscopiques.

Il est possible de calculer les relations entre contraintes et déformation du volume diffractant. Pour cela il faut faire appel à un modèle du comportement de l'agrégat polycristallin, c'est à dire faire des hypothèses sur l'état mécanique d'un cristallite lorsque le matériau est soumis à un état macroscopique donné. Prenons par exemple le modèle de Kröner – Eshelby [J.C. Michel, 1998], [M. François, 1997] couramment employé, où l'on suppose que la déformation d'un cristallite est égale à la somme de la déformation macroscopique et d'une déformation supplémentaire proportionnelle à la déformation macroscopique :

$$\boldsymbol{\varepsilon}^{\text{II}} = \boldsymbol{\varepsilon}^{\text{I}} + \mathbf{u} \cdot \boldsymbol{\varepsilon}^{\text{I}} = (\mathbf{I} + \mathbf{u}) \cdot \boldsymbol{\varepsilon}^{\text{I}} \quad (\text{A1.1})$$

où  $\boldsymbol{\varepsilon}^{\text{II}}$  est la déformation d'un cristallite,  $\boldsymbol{\varepsilon}^{\text{I}}$  la déformation macroscopique, I le tenseur d'identité d'ordre 4 et u un tenseur d'ordre 4 dont le calcul ne sera pas abordé ici. La déformation mesurée par diffraction est la projection sur la direction  $\varphi\psi$  de la déformation moyenne du volume diffractant, c'est-à-dire de la moyenne des  $\boldsymbol{\varepsilon}^{\text{II}}$  des cristallites qui composent le volume diffractant :

$$\varepsilon_{\varphi\psi} = \mathbf{n} \cdot \langle \boldsymbol{\varepsilon}^{\text{II}} \rangle_{\text{vd}} \cdot \mathbf{n}^{\text{t}} = \mathbf{n} \cdot (\mathbf{I} + \mathbf{u}) \cdot \langle \boldsymbol{\varepsilon}^{\text{I}} \rangle_{\text{vd}} \cdot \mathbf{n}^{\text{t}} = \mathbf{n} \cdot (\mathbf{I} + \mathbf{u}) \cdot \mathbf{S} \cdot \boldsymbol{\sigma}^{\text{I}} \cdot \mathbf{n}^{\text{t}} \quad (\text{A1.2})$$

où  $\boldsymbol{\sigma}^{\text{I}}$  est la contrainte macroscopique, S est le tenseur de souplesse du matériau et les crochets représentent l'opération de moyenne sur le volume diffractant. En développant (1.2), on obtient :

$$\varepsilon_{\varphi\psi} = \frac{1}{2} S_{2\{\text{hkl}\}} \cdot (\sigma_{\varphi} - \sigma_{33}) \sin^2 \psi + \frac{1}{2} S_{2\{\text{hkl}\}} \cdot \sigma_{33} + S_{1\{\text{hkl}\}} \cdot \text{Tr}(\boldsymbol{\sigma}) + \frac{1}{2} S_{2\{\text{hkl}\}} \cdot \tau_{\varphi} \cdot \sin 2\psi \quad (\text{A1.3})$$

Cette formule qui est à la base de la méthode, ressemble trait pour trait à celle obtenue par la mécanique des milieux continus mais les constantes d'élasticité  $S_1$  et  $1/2 S_2$  ont été remplacées par les constantes d'élasticité radiocristallographiques (C.E.R)  $S_{1\{422\}}$  et  $1/2 S_{2\{422\}}$  qui dépendent de la famille de plans cristallins  $\{422\}$  sur lequel on effectue la mesure. Ces C.E.R vont être calculées en modélisant le comportement mécanique de l'agrégat polycristallin puis mesurées par diffraction de neutrons au cours d'un essai de traction uniaxiale.

## **I.2/ Calcul numérique de $1/2 S_{2\{422\}}$ et $S_{1\{422\}}$ par les modèles de Reuss, de Voigt et de Kröner-Eshelby**

Un solide est élastique s'il revient à son état initial lorsque les forces extérieures qui ont servi à le déformer sont supprimées. Pour un solide élastique, il existe une relation entre contraintes et



déformations qui peuvent être décrite par la loi de Hooke généralisée faisant intervenir les constantes d'élasticité  $C_{ijkl}$ . Cette loi, qui traduit la relation de linéarité entre le tenseur des contraintes  $\sigma_{ij}$  et celui des déformations  $\epsilon_{kl}$ , peut être écrite sous deux formes : la première fait intervenir le tenseur des rigidités  $C_{ijkl}$  (constantes d'élasticité) et la seconde utilise le tenseur des complaisances  $S_{ijkl}$  :

$$\sigma_{ij} = C_{ijkl} \cdot \epsilon_{kl} \quad \epsilon_{ij} = S_{ijkl} \cdot \sigma_{kl} \quad (\text{A1.4})$$

Les indices i, j, k et l peuvent prendre les valeurs 1, 2, ou 3. Le tenseur des complaisances  $S_{ijkl}$  est relié au tenseur des rigidités  $C_{ijkl}$  par des formules d'inversion (Eq. 1.4).

Le comportement élastique d'un solide peut par conséquent être caractérisé par 81 coefficients. La symétrie du tenseur des déformations ( $\epsilon_{ij} = \epsilon_{ji}$ ) et du tenseur des contraintes ( $\sigma_{ij} = \sigma_{ji}$ ) permet de réduire le nombre des constantes d'élasticité indépendantes à 36. Par ailleurs, des considérations énergétiques entraînent la symétrie du tenseur des rigidités ( $C_{ijkl} = C_{klij}$ ) et du tenseur des complaisances ( $S_{ijkl} = S_{klij}$ ). Ainsi, le nombre des constantes d'élasticité d'un solide dans le cas le plus général (anisotrope) est réduit à 21.

Pour faciliter l'écriture, on utilise une notation matricielle à deux indices suivant la règle : 11=1, 22=2, 33=3, 12=21=4, 23=32=5 et 13=31=6. Les équations 1.4 deviennent (Eq.1.5)

$$\sigma_i = C_{ij} \cdot \epsilon_j \quad \epsilon_i = S_{ij} \cdot \sigma_j \quad (\text{A1.5})$$

i et j pouvant prendre des valeurs de 1 à 6.

La présence de symétries particulières au sein du matériau permet de réduire le nombre de constants élastiques indépendants. Dans le cas d'un milieu isotrope, les matrices des rigidités et des complaisances s'écrivent :

$$[C_{ij}] = \begin{bmatrix} C_{11} & C_{12} & C_{12} & 0 & 0 & 0 \\ C_{12} & C_{11} & C_{12} & 0 & 0 & 0 \\ C_{12} & C_{12} & C_{11} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & C_{44} \end{bmatrix} \quad [S_{ij}] = \begin{bmatrix} S_{11} & S_{12} & S_{12} & 0 & 0 & 0 \\ S_{12} & S_{11} & S_{12} & 0 & 0 & 0 \\ S_{12} & S_{12} & S_{11} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & S_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & S_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & S_{44} \end{bmatrix}$$

Pour notre matériaux CuAlBe, sachant qu'on est en symétrie cubique et que les constantes d'élasticité sont données pour un monocristallin de notre matériau en état austénite ( $C_{11} = 141,6$  GPA  $C_{12} = 127,4$  GPA  $C_{44} = 94,2$  GPA), on peut calculer le tenseur de rigidité  $S_{ij}$ . A partir du tenseur de rigidité  $S_{ij}$ , trois modèle pour calculer les constantes élastiques de notre échantillon sont vérifiés :

### I.2.1- Calcul $\frac{1}{2}S_2$ et $S_1$ par le modèle de Voigt

Dans son modèle de calcul des constantes élastiques du polycristal, Voigt suppose que l'état des déformations du matériau est homogène ce qui implique que les déformations du cristallite sont égales aux déformations macroscopiques. A partir du tenseur de rigidité et la définition du modèle de Voigt, on peut calculer les constantes élastiques radiocristallographiques. On a donc :

$$\begin{aligned}\frac{1}{2} S_2 (422) &= 8.41 \times 10^{-6} \text{ MPa}^{-1} \\ S_1 (422) &= -1.937 \times 10^{-6} \text{ MPa}^{-1}\end{aligned}$$

### I.2.2- Calcul $\frac{1}{2}S_2$ et $S_1$ par le modèle de Reuss

Le modèle de calcul des constantes élastiques de Reuss suppose que l'état de contraintes du matériau est homogène dans le volume étudié ce qui implique que les contraintes dans le cristallite sont égales aux contraintes macroscopiques. A partir de tenseur de rigidité et la définition du modèle de Reuss pour le plan (4 2 2) que l'on a choisi, on a donc :

$$\begin{aligned}\frac{1}{2} S_2 (422) &= 21.575 \times 10^{-6} \text{ MPa}^{-1} \\ S_1 (422) &= -6.358 \times 10^{-6} \text{ MPa}^{-1}\end{aligned}$$

### I.2.3 - Calcul $\frac{1}{2}S_2$ et $S_1$ par le modèle de Kroner

Le modèle de Kröner-Eshelby considère que dans le polycristal, chaque cristallite peut être assimilé à une inclusion sphérique possédant les propriétés anisotropes du monocristal. Cette inclusion est entourée par la matrice isotrope formée par l'agrégat polycristallin, matrice qui possède les propriétés macroscopiques du matériau. Après le calcul, les constantes élastiques radiocristallographiques s'expriment :

$$\frac{1}{2} S_2 (hkl) = 1/2G - 3(1- 5\Gamma_{(hkl)})t_{44} \quad (\text{A1.6})$$

$$S_1(hkl) = 1/E -1/2G + (1-5\Gamma_{(hkl)})t_{44} \quad (\text{A1.7})$$

$$\text{Avec } \Gamma(hkl) = \frac{h^2k^2 + h^2l^2 + k^2l^2}{(h^2 + k^2 + l^2)^2} \quad (\text{A1.8})$$

Pour une inclusion sphérique,  $t_{44}$  s'exprime directement en fonction du module de cisaillement  $G$  du polycristal et des invariants  $\kappa$ ,  $\mu$ ,  $\nu$  du tenseur des constantes de raideur du monocristal :

$$2t_{44} = \frac{(G - \mu)(3\kappa + 6G)}{G(8G^2 + G(9\kappa + 12\mu) + 6\kappa\mu)^2} \quad (\text{A1.9})$$

avec  $3\kappa = 1/(S_{11} + 2S_{12})$ ,  $\mu = 1/S_{44}$  et  $2\nu = 1/(S_{11} - S_{12})$

Le module de cisaillement peut être calculé en résolvant l'équation suivante :

$$G^3 + \alpha G^2 + \beta G + \gamma = 0 \quad (\text{A1.10})$$

Avec  $\alpha = (9\kappa + 4\nu)/8$ ,  $\beta = -(3\kappa + 12\nu)\mu/8$  et  $\gamma = -3\kappa\nu/4$

La détermination de  $G$  puis de  $t_{44}$  permet alors de calculer le module de Young  $E$  du polycristal et les constantes élastiques radiocristallographiques. On a donc, pour le modèle Kröner-Eshelby sur  $\{422\}$ :

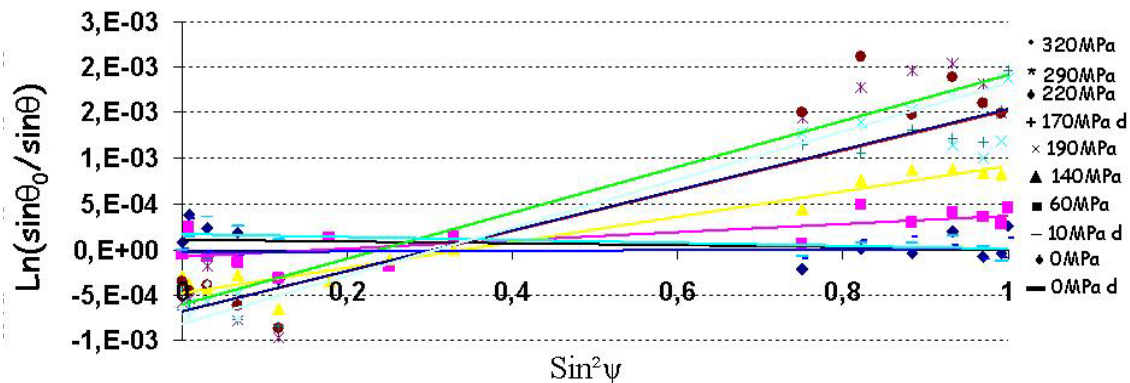
$$\frac{1}{2} S_2 \{422\} = 11.01 \times 10^{-6} \text{ MPa}^{-1}$$

$$S_1 \{422\} = -2.83 \times 10^{-6} \text{ MPa}^{-1}$$

Dans notre essai de traction nous avons également mesuré ces valeurs expérimentalement. Ces valeurs sont comparées avec les valeurs numériques des trois modèles théoriques (Voigt, Reuss, Kröner-Eshelby) à la figure 1.3.

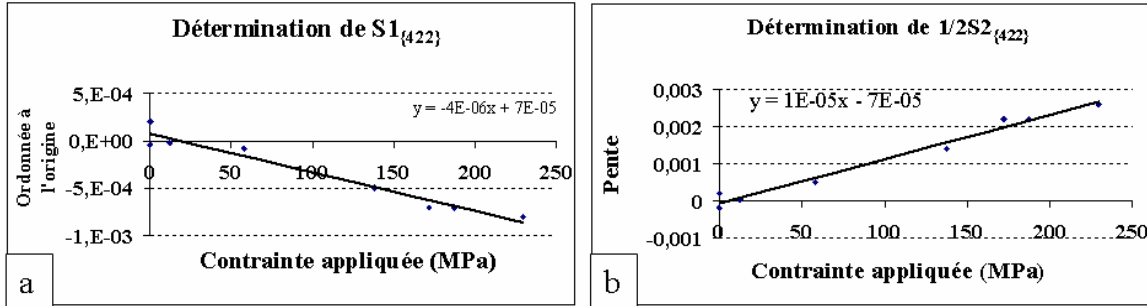
### I.3/ Mesures expérimentales de $S_{1\{422\}}$ et $1/2S_{2\{422\}}$ par diffraction de neutrons

Macherauch et al. [E. Macherauch et al., 1958] établirent une méthode précise et fiable pour déterminer les constantes élastiques radiocristallographiques (CER), qui permit dans les années suivantes d'abandonner la mesure de l'anisotropie  $\xi$ . Les incertitudes relatives à l'influence de l'anisotropie élastique purent être levées en réalisant des essais de traction ou de flexion sous différentes contraintes extérieures afin d'obtenir les CER dans le matériau pour les plans  $\{422\}$  considérés. Cette méthode sera utilisée avec notre matériau de façon à vérifier le calcul des CER. Pour notre échantillon, les variations des déformations internes rationnelles résultant des contraintes externes sont tracées en fonction de  $\sin^2\psi$  (figure 1.1).



**Figure 1.1** : Evolution de la variation des déformations rationnelles du réseau par diffraction de neutrons par une contrainte externe en fonction de  $\sin^2\psi$  pour la détermination expérimentale des constantes élastiques radiocristallographiques (CER).

La pente de l'ordonnée à l'origine de chaque point de chargement en fonction de  $\sin^2\psi$  fournit  $S_{1\{422\}}$  (figure 1.2a). La pente des pentes de la droite de chaque point de chargement en fonction de  $\sin^2\psi$  permet d'obtenir  $\frac{1}{2} S_{2\{422\}}$  (figure 1.2b).



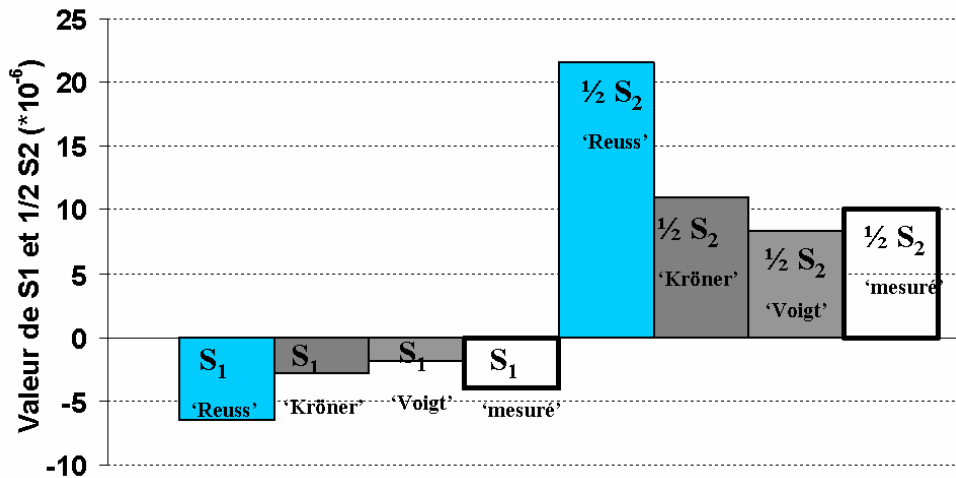
**Figure 1.2** : a/ Evolution de l'ordonnée à l'origine des différentes droites de la figure 1 en fonction des contraintes externes pour la détermination expérimentale de  $S_{1\{422\}}$  b/ des pentes des différentes droites de la figure 1 pour  $1/2S_{2\{422\}}$ .

On obtient :

$$S_{1\{422\}} = -4.10^{-6} \text{ MPa}^{-1}$$

$$1/2S_{2\{422\}} = 10.10^{-6} \text{ MPa}^{-1}$$

La figure 1.3 représente la comparaison entre les différentes valeurs de  $S_{1\{422\}}$  et  $1/2S_{2\{422\}}$  calculé par les modèles de Reuss, Kröner-Eshelby et Voigt avec la valeur de  $S_{1\{422\}}$  et  $1/2S_{2\{422\}}$  mesuré par diffraction de neutrons sur SALSA.



**Figure 1.3** : Valeurs des constantes radiacristallographiques calculées avec le modèle de Reuss (Noir), Kröner-Eshelby (gris foncé), Voigt (gris), et mesurées par diffraction de neutrons (gris clair)

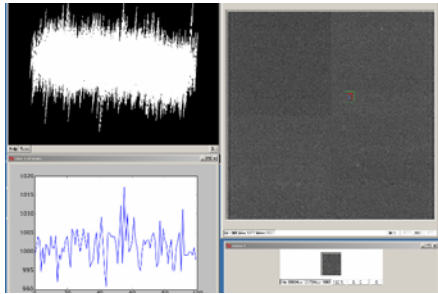
Les mesures de  $S_{1\{422\}}$  et  $1/2S_{2\{422\}}$  déterminées par diffraction de neutrons sont très proche des valeurs calculées par la théorie de Kröner –Eshelby. Le modèle de Reuss est la borne supérieure et le modèle de Voigt la borne inférieure.

Les valeurs de  $S_{1\{422\}}$  et  $1/2S_{2\{422\}}$  utilisées pour le calcul des contraintes dans le volume avec les neutrons est donc validé.

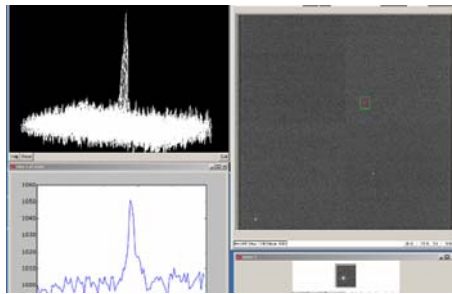
## II/ La méthode 3DXRD

### II.1/ Suivi d'une tâche de {111} pour différentes charges appliquées avec $2\theta_{\text{initial}} = 2.66^\circ$ , $\omega = -20,5^\circ$ et $\eta = 46,8^\circ$

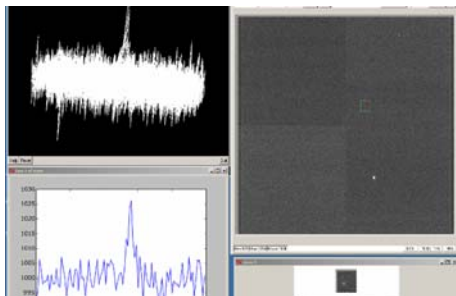
A chaque contrainte appliquée, les images suivantes contiennent 4 types d'informations. En haut à droite l'image du détecteur, en haut à gauche la projection de la tache en 3D, en bas à gauche la projection de la tache en 2D et en bas à droite un zoom de la tâche. Nous avons suivi les projections de la tâche de diffraction par pas de  $0,25^\circ$  en oméga.



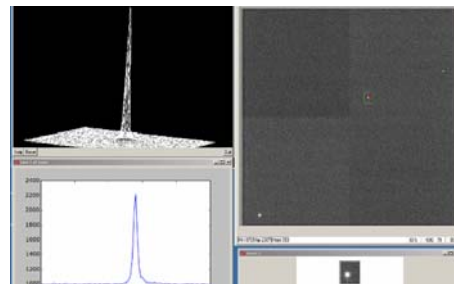
0N, Omega =  $-21,5^\circ$ , Intensité = 1017 Cts



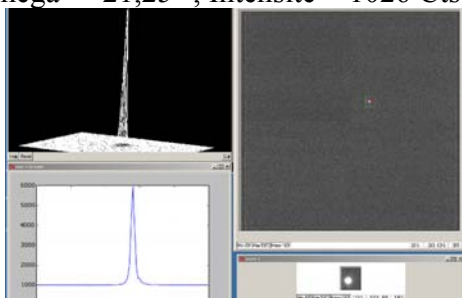
0N, Omega =  $-21^\circ$ , Intensité = 1552 Cts



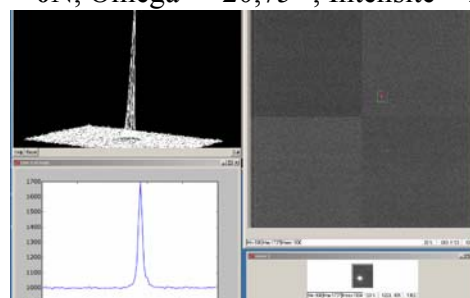
0N, Omega =  $-21,25^\circ$ , Intensité = 1026 Cts



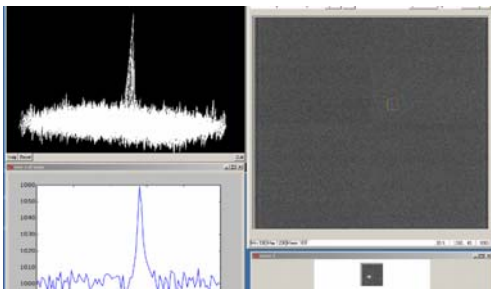
0N, Omega =  $-20,75^\circ$ , Intensité = 2200 Cts



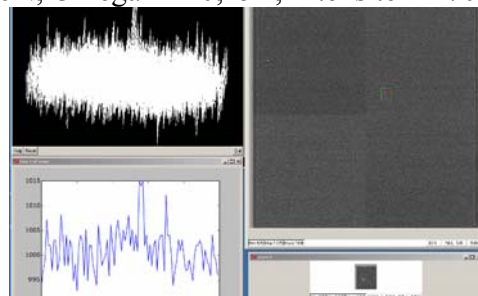
0N, Omega =  $-20,50^\circ$ , Intensité = 5970 Cts



0N, Omega =  $-20,25^\circ$ , Intensité = 1700 Cts



0N, Omega =  $-20^\circ$ , Intensité = 1060 Cts.



0N, Omega =  $-19,75^\circ$ , Intensité = 1015 Cts

## II.2/ Méthodes de calcul d'ImageD11

Nous recherchons à évaluer l'orientation initiale (matrice  $U^i$ ) de 4 grains et son évolution lors d'un cycle superélastique ainsi que l'évolution des paramètres de maille de l'austénite (la matrice  $B^i$ ) dans ces 4 mêmes grains.

Pour l'ensemble des grains, nous connaissons les paramètres suivants :

- la position du faisceau sur le détecteur ( $x_d, y_d, z_d$ ) grâce à la calibration,
- les 2 paramètres de tilt du détecteur ( $R_x, R_y$ ),
- l'angle  $\omega$  que fait l'éprouvette avec le faisceau incident (axe  $\Omega$ )
- l'angle  $w$  (angle entre le faisceau incident et l'axe de rotation  $\Omega$  - nommé Wedge),
- la longueur d'onde ( $\lambda$ ),
- la distance de l'axe de rotation au détecteur ( $D$ ).
- les paramètres de maille moyens de l'austénite et son groupe d'espace.

Par contre, nous ne connaissons pas les 3 paramètres de position du centre de masse du grain ( $x_g, y_g, z_g$ ) ainsi que la forme des grains.

Pour chaque grain et à chaque charge appliquée, le logiciel ImageD11 est utilisé pour mesurer la position ( $x, y$ ) des tâches de diffraction sur le détecteur. La même tâche de diffraction s'étend généralement sur plusieurs images consécutives, c'est-à-dire sur plusieurs positions  $\omega$ . Il nous faut donc par superposition recréer une tâche de diffraction en 3 dimensions. Le vecteur de diffraction dans le référentiel du laboratoire  $\vec{q}$  ( $q_x, q_y, q_z$ ) sera donc le vecteur joignant le point d'intersection entre le faisceau incident et l'axe de rotation  $\Omega$  et le barycentre de cette tâche en 3 dimensions.

Voici les changements de repère sur l'expérience 3DXRD :

1/ On initialise le repère du laboratoire  $Q(L)$  lorsque  $\omega = 0$  donc  $Q(L) = Q(\Omega)$ . Pour le changement de base avec les angles  $\omega$  et  $w$ , on utilise les matrices de passage  $\Omega$  et  $W$  ainsi

$$Q(L) = \Omega \cdot W \cdot Q(\Omega) \quad (A2.1)$$

$$\Omega = \begin{pmatrix} \cos \omega & \sin \omega & 0 \\ -\sin \omega & \cos \omega & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}; W = \begin{pmatrix} \cos w & 0 & \sin w \\ 0 & 1 & 0 \\ -\sin w & 0 & \cos w \end{pmatrix} \text{ W matrice de passage de l'angle Wedge}$$

2/ L'éprouvette est placée de façon à avoir :

- la direction normale à la direction de traction X(L) dans la direction de laminage (DL) l'éprouvette X(S) d'où X(S)= X(L),
- la direction de traction Y(L) dans la direction transverse (DT) de l'échantillon Y(S), d'où Y(S) = Y(L),
- la direction transverse à la direction de traction Z(L) dans la direction normale (DN) de l'éprouvette, d'où Z(S)=Z(L).

$$\text{donc } \mathbf{S} = \mathbf{1} \text{ et } \mathbf{Q}(\Omega) = \mathbf{S} \cdot \mathbf{Q}(\mathbf{S}) \quad (\text{A2.2})$$

3/ L'orientation du cristal (grain) Q(C) par rapport au repère de l'éprouvette Q(S) est donnée par la matrice U avec ses composantes en fonction des angles d'Euler ( $\Phi, \varphi_1, \varphi_2$ ) selon la notation de Bunge [H.J. Bunge, 1982] :

$$\mathbf{Q}(\mathbf{S}) = \mathbf{U} \cdot \mathbf{Q}(\mathbf{C}) \quad (\text{A2.3})$$

4/ La correspondance entre le repère Q(C) et le repère de l'espace réciproque  $Q_{hkl}$  est donnée par la matrice B telle que :

$$\mathbf{Q}(\mathbf{C}) = \mathbf{B} \cdot \mathbf{Q}_{hkl} \quad (\text{A2.4})$$

$$\mathbf{B} = \begin{pmatrix} a^* & b^* \cos(\gamma^*) & c^* \cos(\beta^*) \\ 0 & b^* \sin(\gamma^*) & c^* \sin(\beta^*) \cos(\alpha) \\ 0 & 0 & c^* \sin(\beta^*) \sin(\alpha) \end{pmatrix}, \quad \cos(\alpha) = \frac{\cos(\beta^*) \cdot \cos(\gamma^*) - \cos(\alpha^*)}{\sin(\alpha^*) \cdot \sin(\beta^*)} \quad (\text{A2.5})$$

a, b, c,  $\alpha, \beta, \gamma$  et  $a^*, b^*, c^*, \alpha^*, \beta^*, \gamma^*$  sont respectivement les paramètres de maille des réseaux direct et réciproque. Dans le cas de notre échantillon, la maille d'austénite est cubique, la matrice B peut alors se simplifier à l'état initial.

$$\mathbf{B} = \begin{pmatrix} 1/a_0 & 0 & 0 \\ 0 & 1/a_0 & 0 \\ 0 & 0 & 1/a_0 \end{pmatrix} \quad \text{et } a_0 = 5,825 \text{ \AA} \text{ [F. Moreau, 1998]}$$

5/ Soit  $\vec{q}$  ( $q_x, q_y, q_z$ ), le vecteur de diffraction de chaque grain dans le référentiel du laboratoire, obtenu en mesurant la position des taches de diffraction obtenue par l'expérience. La calibration du détecteur étant connue,  $\theta$  et  $\eta$  correspondent aux coordonnées des taches de diffractions obtenues sur le détecteur.

$$\vec{q} (q_x, q_y, q_z) = \begin{pmatrix} \frac{-\sin \theta}{d} \\ \frac{-\cos \theta \sin \eta}{d} \\ \frac{\cos \theta \cos \eta}{d} \end{pmatrix} \quad (\text{A2.6})$$

avec  $d = \left( \frac{\lambda}{2 \cdot \sin \theta} \right)$  où  $\lambda$  est la longueur d'onde utilisée (A2.7)

On obtient avec les équations A2.1, A2.2, A2.3 et A2.4 la relation suivante :

$$q = \Omega \cdot W \cdot U \cdot B \cdot Q_{hkl} \quad (A2.8)$$

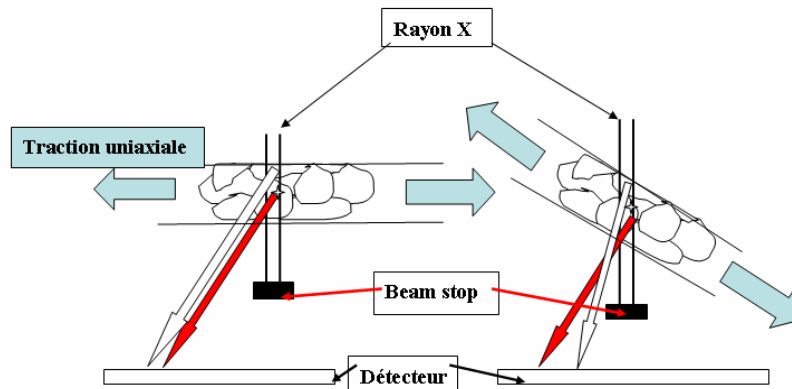
Donc connaissant  $\Omega$  et  $W$  pour chaque vecteur de diffraction calculé dans l'espace réciproque  $Q_{hkl}$  perpendiculaire au plan des familles cristallographique  $\{hkl\}$  avec  $h, k, l$  entiers, nous pouvons en déduire la matrice  $(UB)^{-1}$  par la relation :

$$\Omega \cdot W \cdot Q_{hkl} = (UB)^{-1} \cdot q \quad (A2.9)$$

### II.3/ Analyse des erreurs sur les valeurs $2\theta$ lors de l'expérience 3DXRD

#### II.3.1/ Erreur sur la position d'un grain en dehors de l'axe de rotation

Un grain non aligné avec le centre de rotation diffracte avec un décalage par rapport au même grain situé au centre (figure 2.1). Ceci amène des erreurs lors de la conversion des valeurs en  $2\theta$  et peut être corrigé en amenant une correction géométrique systématique [R.V. Martins et al., 2004].



**Figure 2.1** : Les grains non positionnés avec le centre de rotation voient leurs taches de diffraction se déplacer lors de la rotation de l'échantillon tandis que les grains centrés ont leurs taches immobiles.

Dans notre étude nous nous sommes attachés à n'étudier que les grains présents tout au long de la rotation  $\omega$ , c'est-à-dire où la gamme d'observation du grain s'étend sur une plage maximum en  $\omega$  positif et négatif.

#### II.3.2/ Erreur sur le positionnement en fonction de la distance au détecteur

Soit  $\tan 2\theta = R/D$  comme  $2\theta$  est petit dû à la haute énergie, on peut écrire :  $2\theta \approx R/D$ , d'où :

$$\frac{\Delta 2\theta}{2\theta} = \frac{\Delta R}{R} + \frac{\Delta D}{D} \quad (A2.10)$$



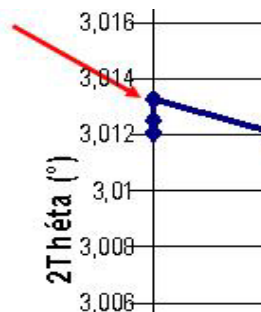
Avec  $\Delta R$  la taille d'un pixel ;  $R$  la distance du centre du détecteur au centre de la tache de diffraction ;  $\Delta D$  l'erreur de repositionnement avec le microscope et  $D$  la distance entre le centre du détecteur et le centre de l'échantillon. Le  $\Delta D$  varie en fonction du grossissement ( $\times 1000$ ) et du focus utilisée pour le microscope. On a évalué cette erreur à  $50 \mu\text{m}$  d'où :

$$\frac{\Delta 2\theta}{2\theta} = \frac{\Delta R}{R} + \frac{\Delta D}{D} = \frac{1}{1024} + \frac{50}{293557} = 0,000976 + 1,7E^{-4} = 0,00115 \Rightarrow 0,12\%$$

Donc à  $2\theta = 5.7^\circ$   $\Delta 2\theta = 0.0012 \times 5.7 = 0,007^\circ$

### II.3.3/ Erreur sur la stabilité du faisceau au cours du temps

Une autre source majeure d'erreur est la stabilité du faisceau au cours du temps. Nous avons mesuré plusieurs fois le même point à la même charge. Dans notre cas la mesure à la décharge totale a été effectuée 3 fois de suite (figure 2.2).

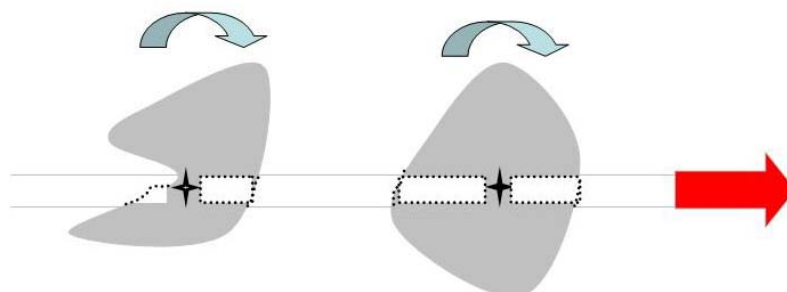


**Figure 2.2** : Evolution de la mesure en  $2\theta$  en fonction de la contrainte appliquée pour la famille  $\{020\}$  du grain 1 du scan 1.

Pour l'exemple ci-dessous, la valeur de  $2\theta$  varie de  $0,0015^\circ$ .

### II.3.4/ Erreur sur la forme du grain traversée par le faisceau

Pour deux grains centrés sur l'axe de rotation et traversés par le faisceau incident, on s'aperçoit de suite que la forme du grain va avoir une importance considérable sur le volume analysé (cf. figure 2.3)



**Figure 2.3** : Représentation schématique de deux grains de formes différentes traversés par le rayon incident, le volume analysé en pointillé est différents.

Lors de la rotation de l'éprouvette, la partie du grain qui va diffracter sera différente si le grain n'est pas parfaitement sphérique.

### **II.3.5/ Conclusion**

A la vue des sources d'erreurs possibles, l'incertitude est égale à la somme des erreurs sur  $2\theta$ .

Soit :  $\Delta 2\theta = 0,007 + 0,0015 + \text{forme du grain}$  d'où  $\Delta 2\theta > 0,008^\circ$

On peut conclure que ces erreurs accumulées ne peuvent pas justifier de mesurer des déformations absolues avec les valeurs de  $2\theta$ . Pour une analyse de contrainte précise, il nous aurait fallu :

- coller un fil très fin d'or ou de tungstène par exemple sur l'échantillon de façon à revenir précisément sur cette référence après chaque chargement mécanique,
- faire une mesure très précise d'une poudre sans contrainte de la phase austénitique de notre échantillon. Ceci n'a pas pu se faire très précisément car la poudre obtenue en limant notre éprouvette n'a pas pu être totalement libérée des contraintes introduites même lors d'un traitement thermique,
- faire une analyse tâche par tâche pour suivre leurs évolutions individuellement comme Marguiles [L. Marguiles et *al.*, 2002] l'a réalisé sur des grains d'aluminium au cours d'une traction uniaxiale.

## ***Annexe chapitre 3***

### **I/ Introduction de pseudo déformations avec les expériences neutrons**

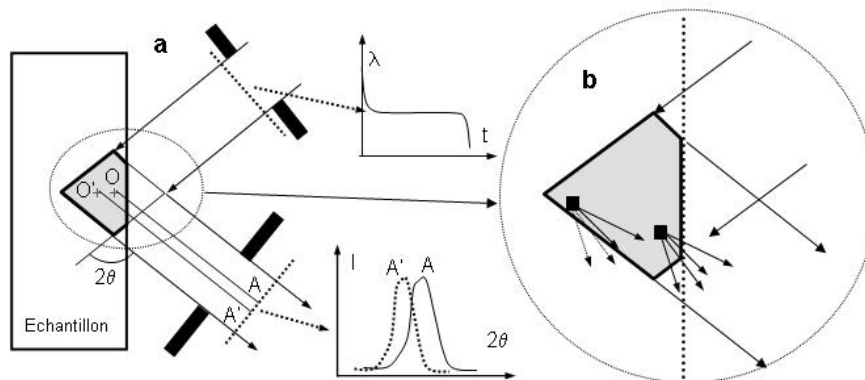
Pour mesurer avec les neutrons les déformations sur un échantillon quelconque, il est important lorsque l'on définit un volume de jauge d'avoir en tête les effets que peut entraîner le fait que ce volume soit dans l'échantillon ou en surface de l'échantillon.

Des pseudo-déformations sont générées quand le volume de jauge est partiellement immergé dans l'échantillon (mesure près de la surface). Ces pseudo-déformations proviennent d'une combinaison de causes comme la longueur d'onde, la troncature du pic et les effets géométriques. Ces effets peuvent être réduits par l'utilisation d'un collimateur radial.

#### **I.1 L'effet longueur d'onde**

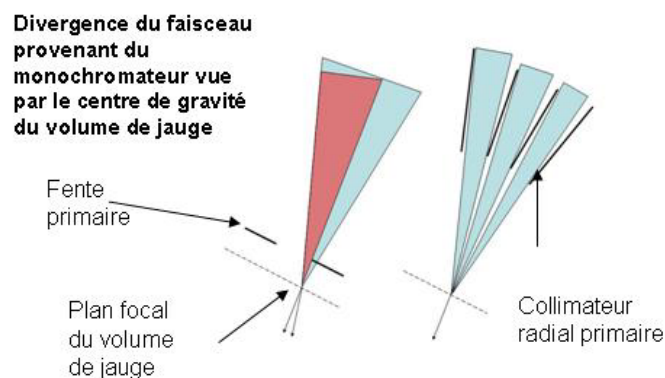
Le faisceau monochromatique est sélectionné, du rayon polychromatique (blanc) du réacteur, en diffractant sur un monochromateur courbé horizontalement ou mosaïque. Le faisceau incident monochromatique diverge autour de la longueur d'onde moyenne. Le volume de jauge est donc

« arrosé » avec une différence de longueur d'onde mais ceci n'est pas un problème si le volume est entièrement à l'intérieur de l'échantillon car l'effet de divergence est moyenné. Par contre si le volume de jauge est partiellement immergé alors le volume ne verra qu'une partie de la divergence du faisceau ce qui entraînera un décalage du pic de diffraction. Ce décalage peut entraîner des erreurs allant jusqu'à 3000  $\mu$ strain à 5000  $\mu$ strain (cf. figure 3.1a) [A.D. Evans, 2005].



**Figure 3.1 :** a) Effet de la distribution de la longueur d'onde du faisceau incident sur un volume de jauge partiellement immergé. b) L'effet de troncature de pic est montré: les flèches en pointillées ne sont pas détectées donc les régions en bordure n'offre qu'une moitié de leur mosaïcité d'où l'apparition d'un pic au profil asymétrique. [A.D.Evans, 2005]

Cet effet peut être corrigé en utilisant un collimateur radial oscillant [T. Pirling *et al.*, 2000] (cf. figure 3.2)

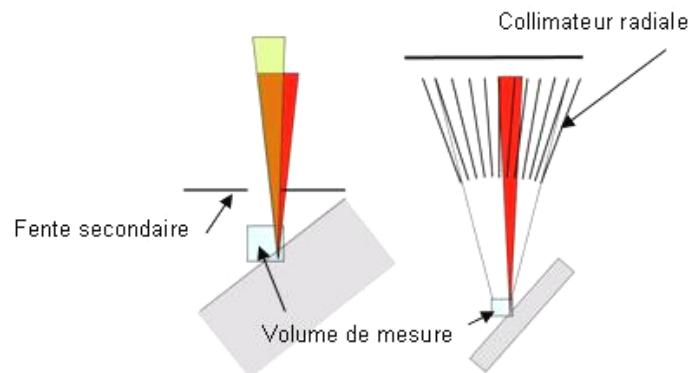


**Figure 3.2 :** L'effet de longueur d'onde causé par le masquage d'une partie de la divergence du faisceau monochromatique par la fente primaire. La solution est d'employer un collimateur radial oscillant qui permettra de voir la divergence du faisceau en tout point. [A.D.Evans, 2005]

### I.2/ Effet de troncature de pic

Quand une fente secondaire est utilisée (devant le détecteur) pour définir un volume de jauge, la divergence angulaire du faisceau peut être limitée par l'écrantage de la fente. Ceci se produit même si le volume de jauge est totalement immergé, mais les effets sont mineurs et symétriques

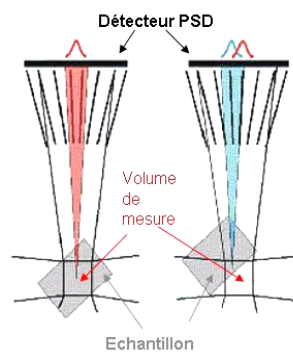
c'est à dire qu'il n'y a pas de dérive du pic mais seulement une réduction de l'intensité diffractée. Par contre quand le volume n'est que partiellement immergé, le centre de gravité du volume de jauge bouge et le pic de diffraction devient asymétrique (cf. figure 3.1b). En utilisant un collimateur radial secondaire, la large ouverture d'entrée du collimateur permet d'éviter la troncature du pic. En faisant osciller le collimateur, le pic complet de diffraction apparaît (cf. figure 3.3) [T. Pirling *et al.*, 2000], [T.Pirling, 2003], [A.D. Evans, *et al.* 2003].



**Figure 3.3 :** Illustration de l'effet troncature du pic [A.D.Evans, 2005]

### I.3/ L'effet géométrique.

Quand le volume de jauge n'est pas totalement immergé, le centre de gravité effectif du volume diffractant se translate en fonction du centre massique du volume de jauge ce qui permet d'assurer la distribution homogène des neutrons. Cette translation est traduite par le détecteur PSD (position sensitive détecteur) comme une translation de position donc générant une pseudo-déformation (cf. figure 3.4) [T. Pirling *et al.*, 2000], [T.Pirling, 2003].



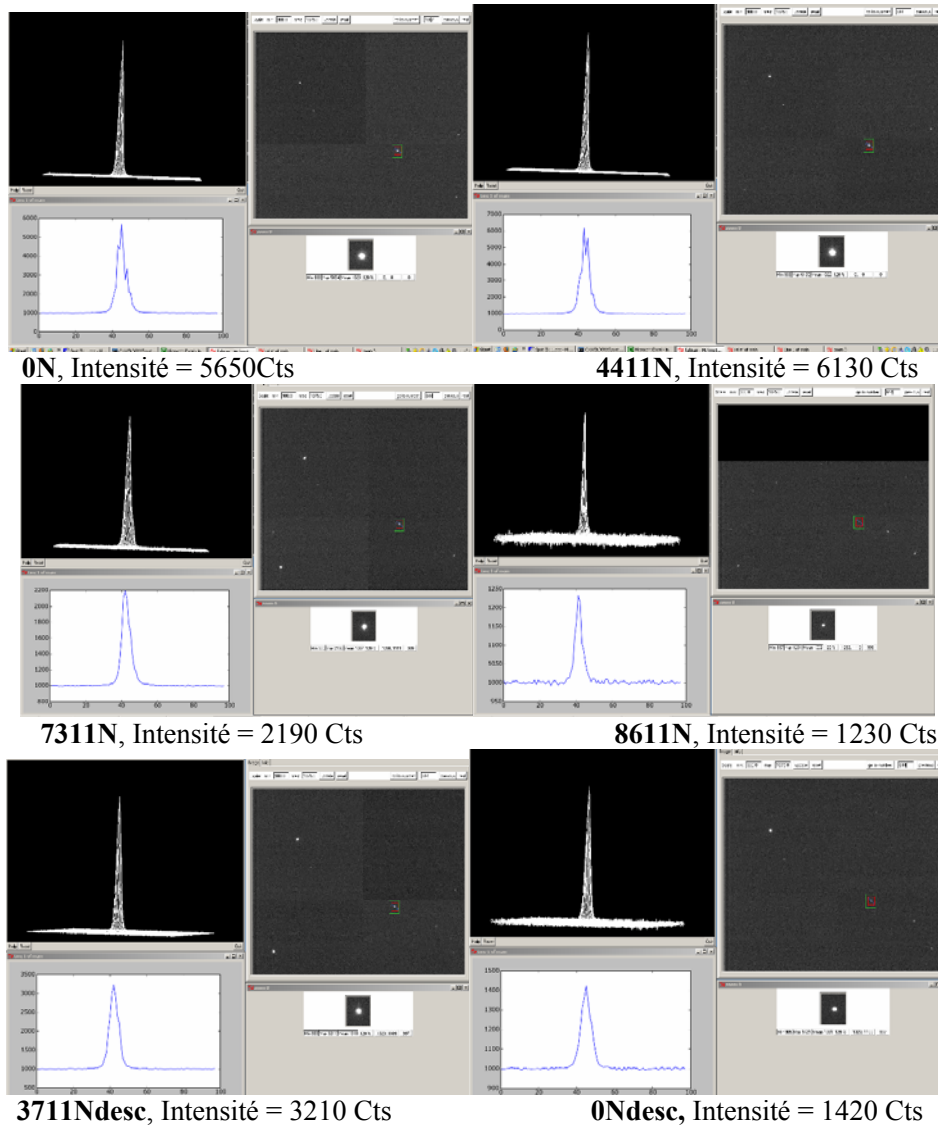
**Figure 3.4 :** Translation de pic du à une aberration géométrique [A.D.Evans, 2005]

Des corrections peuvent être apportées en mesurant à l'extérieur et à l'intérieur de l'échantillon puis en additionnant et moyennant ces deux mesures de manière à obtenir la déformation réelle. Le positionnement du volume de jauge dans l'échantillon est donc de première importance [ISO-TTA3, 2001].

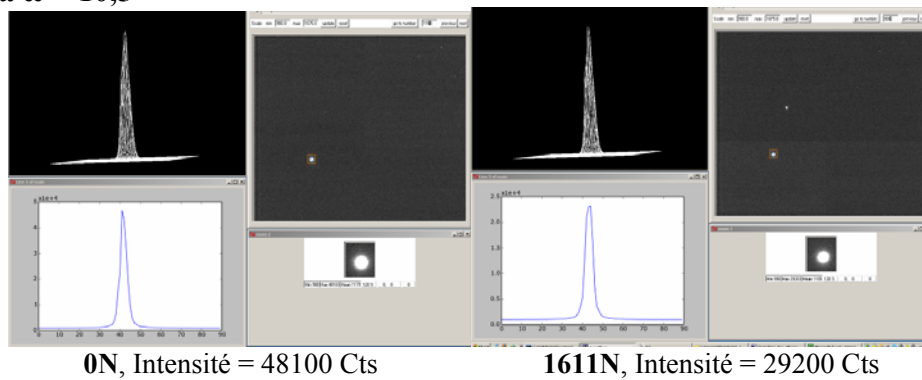
## Annexe du chapitre 4

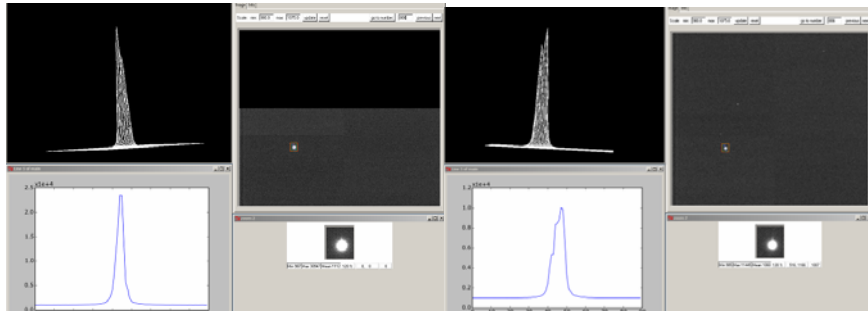
### I/ Evolution de différentes taches de diffraction pour différentes charges appliqués

#### I.1/ (200) à $\omega = -30^\circ$



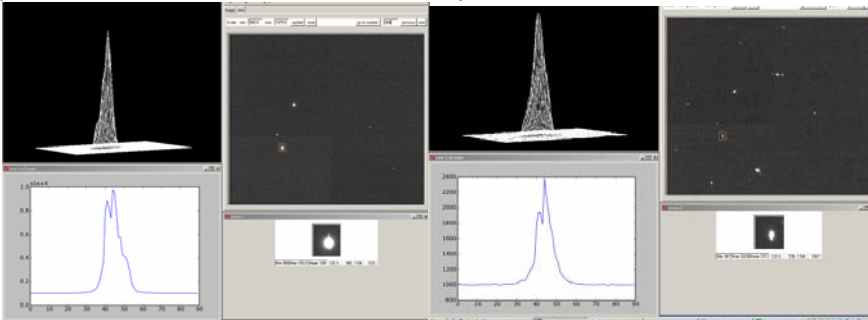
#### I.2/ (220) à $\omega = 10,5^\circ$





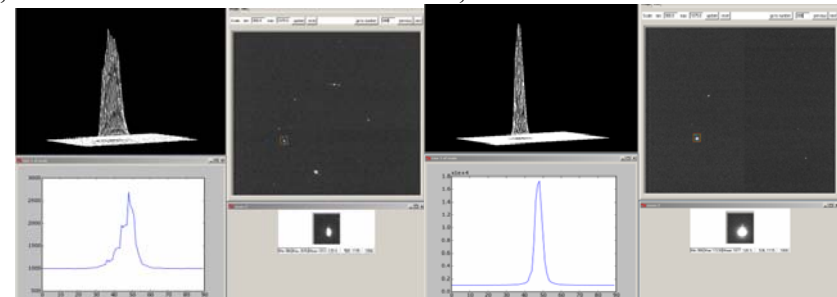
4411N, Intensité = 24000 Cts

6611N, Intensité = 10050 Cts



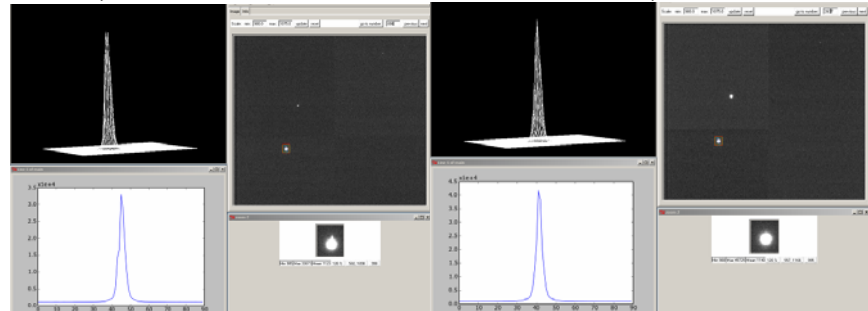
7311N, Intensité = 10000 Cts

8611N, Intensité = 2390 Cts



7411Ndesc, Intensité = 2670 Cts

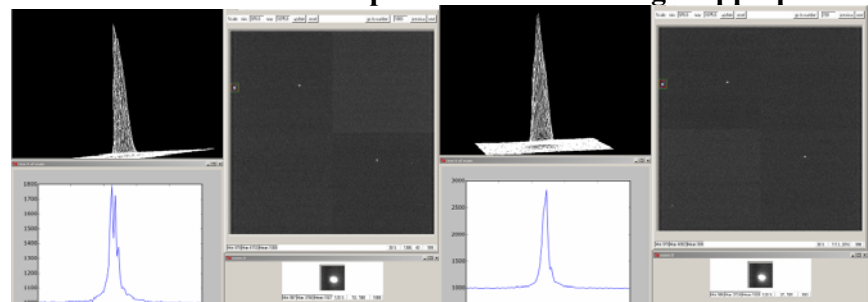
3711Ndesc, Intensité = 17200 Cts



1911Ndesc, Intensité = 33070 Cts

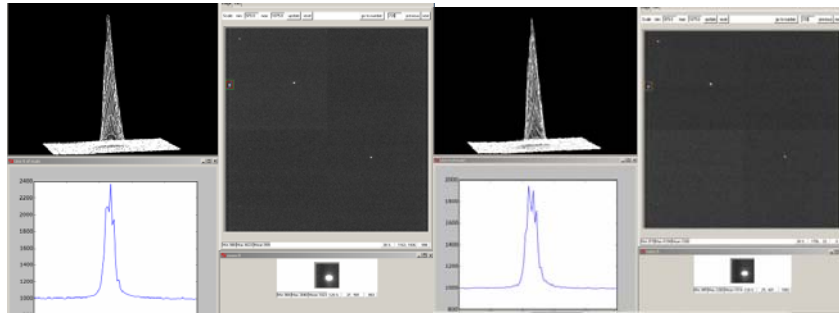
0Ndesc; Intensité = 42500 Cts

**I.3/ (220) lors de son intensité maximum pour différentes charges appliquées.**



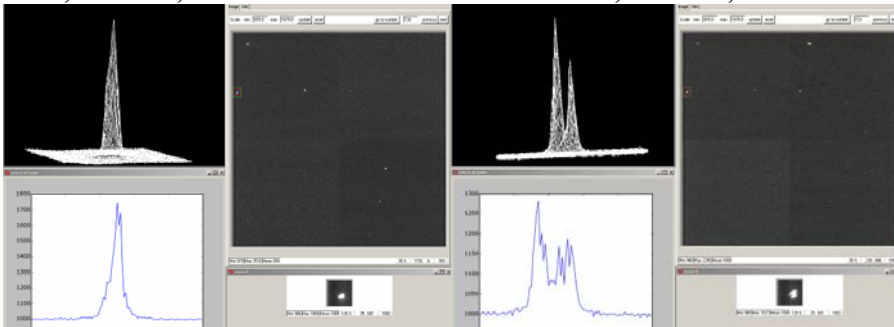
0N,  $\omega = -11^\circ$ , Intensité = 1800 cts

1611N,  $\omega = -11$ , Intensité = 2850 cts



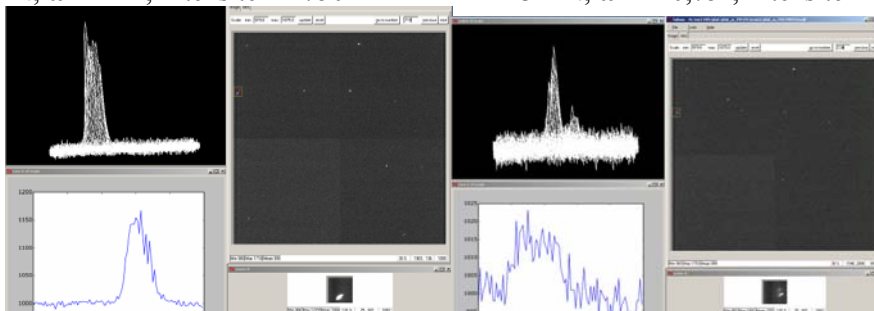
4411N,  $\omega = -11^\circ$ , Intensité = 2390

5611N,  $\omega = -11^\circ$ , Intensité= 1955



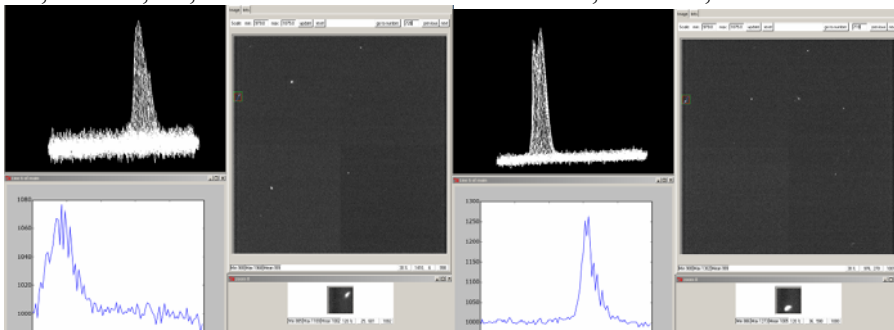
6611N,  $\omega = -11^\circ$ , Intensité = 1750

7311N,  $\omega = -10,75^\circ$ , Intensité = 1330



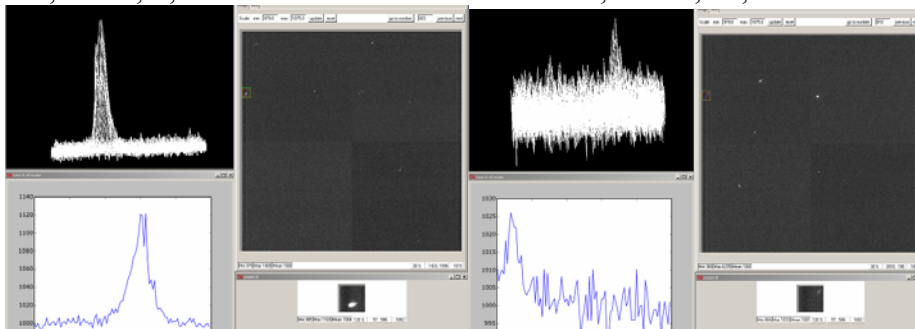
7911N,  $\omega = -11,25^\circ$ , Intensité = 1160 cts

7911N,  $\omega = -10^\circ$ , Intensité = 1023 cts



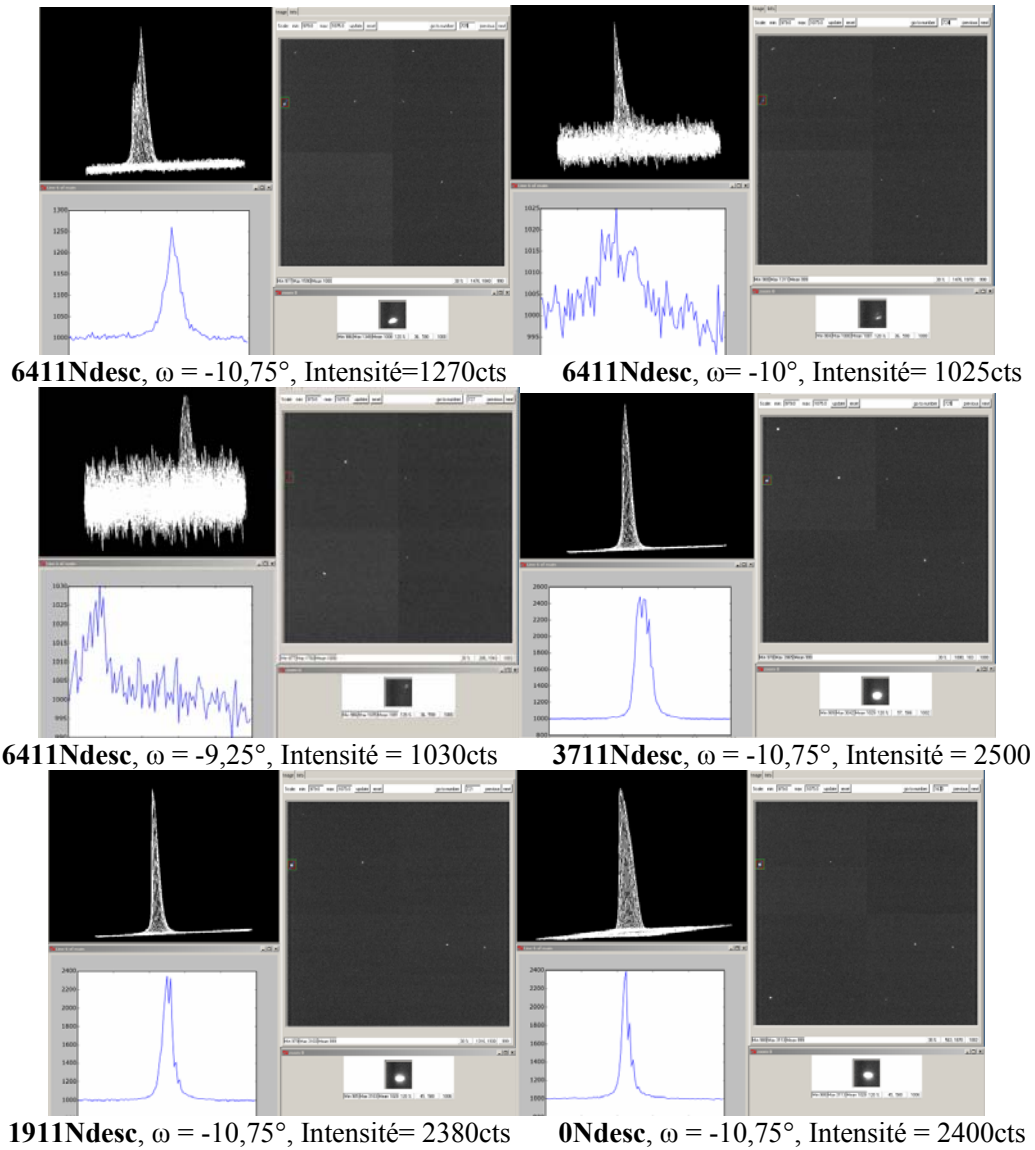
7911N,  $\omega = -9,5^\circ$ , Intensité=1078cts

8611N,  $\omega = -11,25^\circ$ , Intensité=1270cts



7411Ndesc,  $\omega = -10,75^\circ$ , Intensité= 1120cts

7411Ndesc,  $\omega = -9^\circ$ , Intensité=1026cts



## Annexe du chapitre 5

### I/ Evolution des orientations Phi ( $\phi$ ) et Psi ( $\psi$ ) en fonction de la contrainte appliquée

