



HAL
open science

Modélisation de la fragilisation dynamique d'un matériau polycristallin sous traction monotone

Zhidan Sun, Lahouari Benabou

► **To cite this version:**

Zhidan Sun, Lahouari Benabou. Modélisation de la fragilisation dynamique d'un matériau polycristallin sous traction monotone. 11e colloque national en calcul des structures, CSMA, May 2013, Giens, France. hal-01717064

HAL Id: hal-01717064

<https://hal.science/hal-01717064>

Submitted on 25 Feb 2018

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

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

Public Domain

Modélisation de la fragilisation dynamique d'un matériau polycristallin sous traction monotone

Zhidan SUN¹*, Lahouari BENABOU¹

¹ Laboratoire d'Ingénierie des Systèmes de Versailles (LISV), Université de Versailles-Saint-Quentin-en-Yvelines (UVSQ)
45 Avenue des Etats-Unis, 78000 Versailles

* Auteur correspondant, zhidan.sun@uvsq.fr

Résumé — Pour analyser les conditions de la fragilisation aux joints de grains dans un alliage de cuivre et simuler le processus de fissuration, nous présentons un modèle de fissuration intergranulaire dépendante du temps, qui intègre les points suivants : (i) la plasticité cristalline, (ii) la diffusion des impuretés assistée par contrainte hydrostatique, et (iii) la dégradation de la résistance des joints de grains liée à la couverture de l'impureté. Les premiers résultats des expériences numériques sont présentés.

Mots clés — fragilisation dynamique, plasticité cristalline, diffusion assistée par contrainte, méthode à zone cohésive

1. Introduction

Le développement du phénomène de fragilisation dynamique des alliages de cuivre à durcissement structural lors des essais de traction conduit à la décohésion des joints de grains. L'importance de la décohésion intergranulaire s'accroît avec l'augmentation de la température et/ou la diminution du taux de déformation [1]. Ce phénomène est dû à l'affaiblissement de la cohésion des joints de grains (Fig. 1) engendrée par la diffusion assistée par contrainte de l'élément fragilisant vers les joints [2]. Il est bien connu que la ségrégation des impuretés sur les joints de grains de métaux polycristallins peut induire une fragilisation intergranulaire. Selon [3], la présence d'une quantité suffisante de l'élément fragilisant aux joints de grains peut changer le mode de rupture des alliages de cuivre d'une rupture ductile à un mode de rupture fragile intergranulaire. Le champ de contraintes local hétérogène, qui présente une forte hétérogénéité influencée par l'orientation des différents grains, joue un rôle prépondérant dans le processus de fragilisation dynamique des métaux. Dans la littérature, de nombreux travaux ont été engagés pour étudier numériquement la fragilisation dynamique à l'échelle macroscopique. Cependant, l'incorporation dans les simulations des mécanismes à l'échelle microscopique reste à développer.

Pour analyser les conditions de fragilisation dynamique et simuler le processus de fissuration, un modèle de diffusion assistée par contrainte, couplé à un mécanisme d'endommagement intergranulaire, est implémenté dans le code éléments finis ABAQUS. Ce modèle intègre trois aspects fondamentaux : la plasticité cristalline, la diffusion des impuretés, et la fissuration des joints de grains. Un modèle de plasticité cristalline est utilisé comme base pour décrire le comportement mécanique de chaque grain en fonction de son orientation cristallographique. La diffusion des impuretés assistée par contrainte est simulée, quant à elle, en résolvant une équation de diffusion standard complétée par le gradient de contrainte hydrostatique. Ce dernier paramètre permet d'examiner la redistribution des impuretés sous chargement mécanique. Par ailleurs, un modèle à zone cohésive, dépendant de la concentration des impuretés, permet de décrire la fragilisation des joints en simulant l'évolution de leur résistance mécanique et reproduisant ainsi la fissuration intergranulaire du matériau.

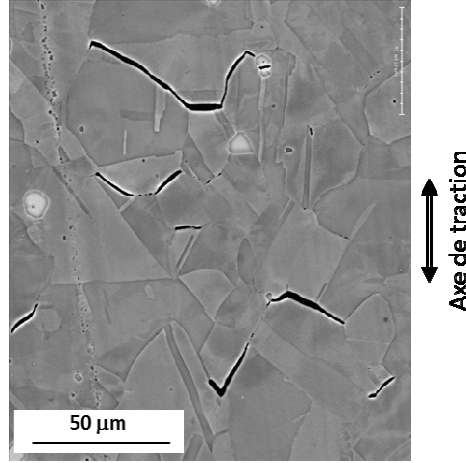


Figure 1 - Observation de la section longitudinale d'une éprouvette rompue en Cu-Ni-Si par MEB montrant la présence de nombreuses fissures aux joints de grains.

2. Modélisation de la fragilisation dynamique

2.1. Modèle de plasticité cristalline

Vue à l'échelle du cristal, la plasticité macroscopique des matériaux métalliques peut s'expliquer par le glissement de dislocations dans les plans cristallographiques. Ces plans cristallographiques sont des familles de plans denses, par exemple la famille $\{111\}$ dans les cristaux cubiques à faces centrées (CFC). Connaissant la géométrie et l'orientation de chaque grain d'un polycristal, il est possible de décrire le comportement du polycristal par un modèle continu de plasticité cristalline. Se plaçant dans un grain, on considère un groupe de systèmes de glissement avec le plan de glissement de normale \underline{n}^s et la direction de glissement \underline{l}^s . Le tenseur d'orientation pour le système s est défini par :

$$\underline{m}^s = \frac{1}{2} (\underline{n}^s \otimes \underline{l}^s + \underline{l}^s \otimes \underline{n}^s) \quad (1)$$

Selon la loi de Schmid, la contrainte de cisaillement résolue (cission résolue) dans le système s s'écrit $\tau^s = \underline{\sigma} : \underline{m}^s$. Dans ce travail, une formulation cinétique dépendante du temps, développée par Méric et Cailletaud [4], est choisie. Le comportement mécanique se résume en quelques équations, écrites ici dans l'hypothèse des petites déformations. Dans ce modèle, le taux de glissement cristallographique $\dot{\gamma}^s$ dans le système s s'exprime par une fonction de puissance de la cission résolue τ^s comme suit :

$$\dot{\gamma}^s = \left\langle \frac{|\tau^s - \chi^s| - \kappa^s}{g} \right\rangle^n \text{sgn}(\tau^s - \chi^s) \quad (2)$$

où g et n sont les paramètres de viscosité ; n représente la dépendance du taux de déformation. Les lois d'écroûissage cinématique χ^s et isotrope κ^s font respectivement intervenir les variables d'état α^s et q^s :

$$\chi^s = C\alpha^s \quad \text{avec} \quad \dot{\alpha}^s = \dot{\gamma}^s - D|\dot{\gamma}^s|\alpha^s \quad (3)$$

$$\kappa^s = \kappa_0 + Q \sum_{r=1}^N h^{sr} (1 - \exp(-Bv^r)) \quad \text{avec} \quad v^r = |\dot{\gamma}^r| \quad (4)$$

Les paramètres g , n , C , D , κ_0 , Q , B et les termes de la matrice d'interaction h^{sr} sont à déterminer. On en déduit le tenseur de la vitesse de déformation inélastique macroscopique à partir du glissement dans chaque système :

$$\underline{\underline{\dot{\varepsilon}}}^p = \sum_{s=1}^N \dot{\gamma}^s \underline{\underline{m}}^s \quad (5)$$

Enfin, le tenseur d'élasticité permet de relier les contraintes de Cauchy et les déformations élastiques à l'aide de la loi de Hooke : $\sigma_{ij} = C_{ijkl} \varepsilon_{kl}$. L'alliage de cuivre Cu-Ni-Si est un alliage à durcissement structural avec une structure CFC pour la matrice en cuivre. Le tenseur des rigidités est réduit à trois paramètres indépendants qui sont définis comme C11, C12 et C44 en utilisant la notation de Voigt.

Le modèle de plasticité cristalline introduit donc huit paramètres. Dans cette étude, seuls les 12 systèmes de glissement dans les plans {111} et suivant les directions <110> sont pris en compte. L'identification de ces paramètres est simplifiée dans la mesure où une seule courbe de traction est utilisée pour l'ensemble des paramètres. L'identification est réalisée à partir d'un schéma d'homogénéisation de Berveiller-Zaoui [5] permettant de calculer la réponse macroscopique du polycristal dans le cas d'un chargement monotone. Dans ce modèle à champ moyen, la contrainte locale dans chaque grain est donnée de manière explicite en fonction des champs macroscopiques de contrainte et de déformation plastique, $\underline{\underline{\Sigma}}$ et $\underline{\underline{E}}^p$ respectivement :

$$\underline{\underline{\sigma}}^i = \underline{\underline{\Sigma}} + \mu \beta (\underline{\underline{E}}^p - \underline{\underline{\varepsilon}}^{pi}) \quad (6)$$

La fonction β , faisant intervenir un module plastique sécant, évolue avec la déformation plastique totale au cours du chargement. Le modèle a été implémenté dans le logiciel Mathematica et a permis d'identifier l'ensemble des paramètres à partir de la courbe de traction macroscopique issue d'un essai réel (Fig. 2). Les valeurs des paramètres identifiés sont données dans le Tableau 1.

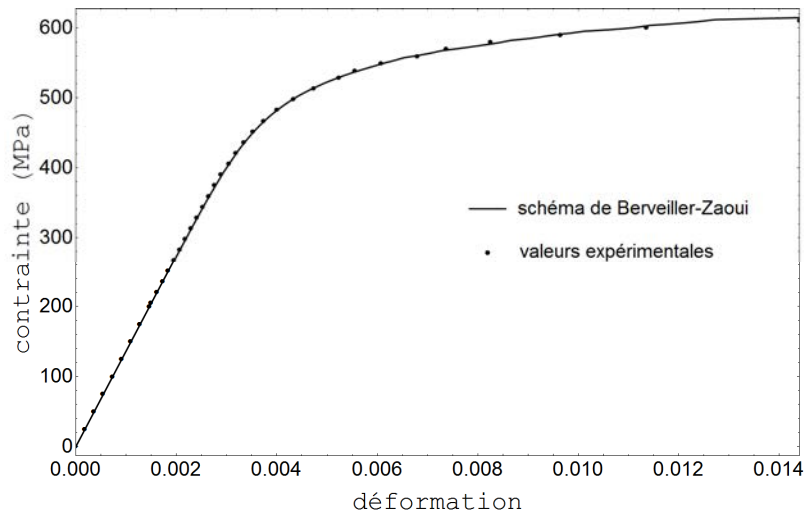


Figure 2 - Optimisation des paramètres du modèle de plasticité cristalline en utilisant une estimation de Berveiller-Zaoui sur 40 grains d'orientation aléatoire. Les valeurs expérimentales de microplasticité ont été obtenues à l'aide des jauges de déformation collées sur l'éprouvette [6].

Tableau 1 - Paramètres utilisés pour la simulation avec la loi de plasticité cristalline.

C11 (GPa)	C12 (GPa)	C14 (GPa)	g (MPa·s ^{1/n})	N	κ_0 (MPa)	Q (MPa)	B	h^{sr}	C (MPa)	D
168,4	121,4	75,4	1,8	9,2	475	6	15	1	38000	2000

2.2 Modèle de diffusion assistée par contrainte

La diffusion de l'impureté dans un métal est contrôlée par le gradient du potentiel chimique. La présence de la contrainte hydrostatique σ_h modifie le potentiel chimique de l'impureté dans le réseau atomique du matériau [2] :

$$\mu = \mu_0 + RT \ln(\gamma C) - V_s \sigma_h \quad (7)$$

où V_s est le volume molaire partiel de l'impureté et $\sigma_h = tr(\sigma)/3$ est la contrainte hydrostatique locale. Le flux de l'impureté J en tenant compte de l'effet de σ_h est déduit comme suit :

$$\vec{J} = -D\vec{\nabla}C + \frac{DCV_s}{RT}\vec{\nabla}\sigma_h \quad (8)$$

où D est le coefficient de diffusion ; C est la concentration de l'impureté. La diffusivité dans les solides est supposée obéir à la loi d'Arrhenius, ce qui conduit à une diffusivité dépendante de la température :

$$D(T) = D_0 \exp(-Q/RT) \quad (9)$$

où D_0 est le coefficient de diffusion de référence ; Q est l'énergie d'activation de diffusion. Les valeurs des paramètres utilisés dans ce modèle de diffusion sont données dans le Tableau 2. La concentration initiale du soufre C_0 dans l'alliage Cu-Ni-Si étudié a été mesurée à l'aide de la technique GDMS (Glow Discharge Mass Spectrometry).

Tableau 2 - Paramètres pour le modèle de diffusion assistée par contrainte dans le cuivre et leurs valeurs prises dans ce travail.

Coefficient de diffusion de référence D_0	3×10^{-4} (m ² /s) [7]
Energie d'activation de diffusion Q (pour le domaine de température concerné dans ce travail : 20 – 300 °C)	206 (kJ/mol) [8]
Constante gaz R	8,3144 (J/mol/K)
Volume molaire partiel de soufre V_s	$1,702 \times 10^{-5}$ (m ³ /mol)
Concentration initiale de soufre C_0	$1,55 \times 10^{24}$ (atom/m ³) [6]
Nombre d'atomes de solvant (cuivre) par unité de volume N_L	$8,46 \times 10^{28}$ (atom/m ³)

2.3. Modèle à zone cohésive tenant compte de la couverture d'impureté

La loi de traction-séparation à l'échelle atomique peut être décrite par la relation suivante [9] :

$$T = A\Delta e^{-\Delta/\Delta_c} \quad (10)$$

où A est le module d'élasticité d'un paire simple de plans atomiques sous déformation uniaxiale ; Δ_c est la séparation critique à laquelle T atteint sa valeur maximale $T_c = A\Delta_c e^{-1}$. L'énergie de rupture du joint de grain est calculée par :

$$2\gamma = \int_0^\infty T d\Delta = \int_0^\infty A\Delta e^{-\Delta/\Delta_c} d\Delta = eT_c\Delta_c \quad (11)$$

Pour prendre en compte l'influence de la concentration d'impuretés sur la loi de traction-séparation, les paramètres T_c et γ sont supposés être dépendants de la couverture d'impureté θ qui varie de 0 à 1 [10] :

$$T_c(\theta) = \frac{2\gamma(\theta)}{e\Delta_c} \quad (12)$$

On suppose que Δ_c n'est pas sensible à θ [11], et il peut être pris comme constante en première approximation. La couverture d'impureté est définie comme fonction de la concentration locale de l'impureté C_s , selon l'équation de Langmuir-McLean [12] :

$$\frac{\theta}{1-\theta} = \frac{aC_s}{1-C_s} \exp\left(\frac{Q_s}{RT}\right) \quad (13)$$

où Q_s est l'enthalpie de séparation et a est une constante. L'équation de Langmuir-McLean décrit l'équilibre de ségrégation du point de vue de l'énergie minimum de Gibbs [13]. Concernant la forme de

dépendance de l'énergie de cohésion des joints de grains par rapport à la couverture d'impureté, les données de Jiang et Carter [10] donnent par exemple pour le système hydrogène CC Fe(110) :

$$2\gamma(\theta) = (1 - 1,0467\theta + 0,1687\theta^2) 2\gamma_0 \quad (14)$$

où $2\gamma_0$ est l'énergie de rupture des joints de grains correspondant pour une couverture d'impureté nulle. Avec l'ensemble des équations décrites ci-dessus, la loi de traction-séparation normalisée en tenant compte de la couverture d'impureté est déduite comme suit :

$$\frac{T(\theta)}{T_{\max}} = \frac{A(\theta)}{A_0} \frac{\Delta}{\Delta_c} e^{(-\Delta/\Delta_c+1)} = (1 - 1,0467\theta + 0,1687\theta^2) \frac{\Delta}{\Delta_c} e^{(-\Delta/\Delta_c+1)} \quad (15)$$

La Figure 3 montre les lois de traction-séparation normalisées tracées avec différents niveaux de couverture d'impureté. Plus la couverture est importante, moins la contrainte cohésive maximale est élevée, ce qui décrit le fait que la ségrégation intergranulaire de l'impureté diminue la cohésion des joints de grains.

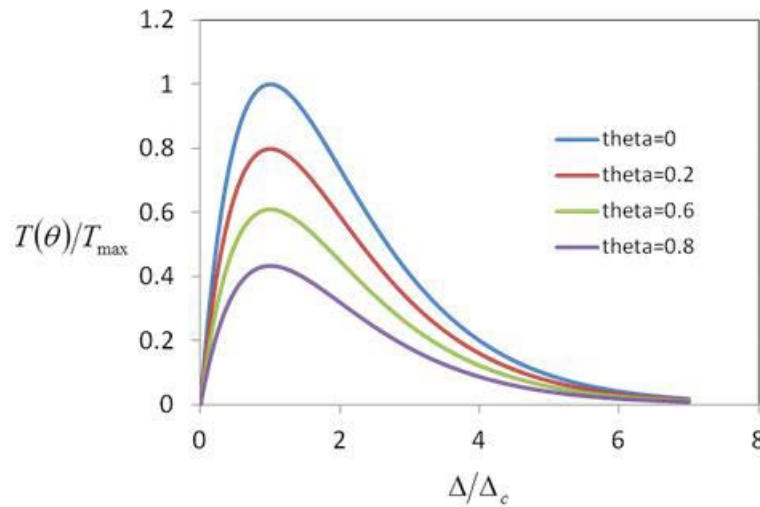


Figure 3 - Lois de traction-séparation normalisées pour différents niveaux de couverture d'impureté.

Il est bien connu que la fissuration intergranulaire se produit sur des joints de grains dont l'orientation est normale par rapport à la contrainte de traction appliquée. La fissuration est donc essentiellement contrôlée par la traction critique normale dans le joint de grain. Ainsi, seul le mode d'ouverture (mode I) est pris en compte dans cette étude. Un autre point important à indiquer est qu'en pratique les impuretés peuvent traverser les joints de grains pour passer d'un grain à l'autre. Pour modéliser ce mécanisme, il faut ajouter, à la loi de traction-séparation décrivant la dégradation mécanique, le phénomène de diffusion au niveau des éléments cohésifs représentant les joints (phénomène analogue à la conduction thermique).

2.4 Procédure générale de calcul

Les développements qui précèdent définissent un problème transitoire avec le couplage mécanique-diffusion. La partie diffusion gouverne le transport de soufre dans la zone de process, alors que la partie mécanique traite la plasticité cristallographique et la fissuration aux joints de grains. Le couplage entre la partie diffusion et la partie mécanique a lieu de la manière suivante : d'une part, la diffusion affecte les propriétés mécaniques par l'accumulation d'impuretés aux joints de grains, comme indiqué dans Eq. (12), en dégradant la cohésion des joints de grains ; et d'autre part, la mécanique affecte la diffusion via les contraintes hydrostatiques qui modifient le potentiel chimique de l'impureté, comme décrit par Eq. (7). Pour implémenter l'ensemble de ces problèmes couplés, trois sous-routines principales (UMAT, UMATHT et UEL) ont été utilisées dans le code ABAQUS. La sous-routine UMAT, dans laquelle la loi de plasticité cristalline est implémentée, calcule l'état de contrainte. Les composantes du tenseur de contrainte sont ensuite récupérées en chaque point d'intégration grâce à la sous-routine utilitaire GETVRM, puis passées à la sous-routine USDFLD pour calculer le gradient de contrainte hydrostatique. Avec ce gradient de contrainte hydrostatique,

l'équation de diffusion assistée par contrainte est résolue dans la subroutine UMATHT. Une fois la concentration de l'impureté obtenue, la réponse des joints de grains peut être déterminée dans la subroutine UEL. Il est important de noter que les temps caractéristiques des phénomènes étudiés, généralement très différents, nécessitent l'utilisation de pas de temps petits pour des raisons de stabilité du schéma d'intégration temporel.

3. Simulation numérique

3.1 Géométrie et conditions aux limites

Un ensemble de points triples de joints de grains est généré à l'aide du diagramme de Voronoi. Ces points sont ensuite reliés pour créer les lignes représentant les joints de grains. En vue de créer le maillage des éléments cohésifs au niveau des joints de grains, ces lignes sont dupliquées et déplacées à une très faible distance qui représente l'épaisseur fictive des éléments cohésifs. La microstructure polycristalline est extrudée en 3D et le maillage est généré pour l'ensemble du domaine. Une attention particulière est portée à l'orientation des éléments cohésifs. La direction normale des éléments cohésifs de chaque joint de grain doit être perpendiculaire à ce joint. Chaque grain est affecté d'une orientation cristallographique aléatoire. Les grains sont anisotropes et peuvent se déformer plastiquement par glissement cristallographique. Les éléments cohésifs implémentés au niveau des joints de grains permettent de simuler la décohéssion intergranulaire. En ce qui concerne les conditions aux limites, la concentration initiale de soufre est considérée comme uniforme dans le matériau. Une condition de flux nul dans la direction normale (condition limite adiabatique) est imposée sur l'ensemble de la frontière de la microstructure, soit :

$$J_n = \vec{J} \cdot \vec{n} = 0 \quad (16)$$

où \vec{n} désigne le vecteur unité normal à la frontière.

3.2 Résultats et discussion

Comme présenté dans Section 2, le modèle de décohéssion dans lequel la ségrégation intergranulaire de soufre diminue l'énergie cohésive des joints permet de décrire la fragilisation dynamique de l'alliage Cu-Ni-Si. En vue de comprendre la fragilisation aux joints de grains qui se traduit par leur décohéssion, il est nécessaire d'évaluer les contraintes et la concentration des impuretés au niveau de ces joints et d'analyser le processus de décohéssion intergranulaire. Pour ce faire, les simulations numériques sous différentes conditions (température et taux de déformation) doivent être étudiées. Dans le présent papier, seuls les premiers résultats des simulations numériques sont présentés.

Une expérience numérique de traction monotone a été effectuée avec une vitesse de déformation de $0,0025 \text{ s}^{-1}$. La Figure 4 illustre l'état de contrainte et l'état d'endommagement respectivement pour 0,75% et 1,75% de déformation globale. A 0,75% de déformation globale, on peut voir une concentration des contraintes au voisinage des joints de grains (Fig. 4a). Ceci est lié au fait que les joints de grains bloquent le glissement plastique. Ce phénomène est d'autant plus important que l'angle entre les orientations de deux grains adjacents est important. Quant aux joints de grains, ce sont ceux situés au bord de la microstructure qui commencent à s'endommager ; ce qui est logique car les joints à la frontière sont davantage sollicités. Au fur et à mesure que la déformation augmente, l'endommagement évolue sur ces joints de frontière (Fig. 4d). Lorsqu'un joint est totalement rompu, la fissure arrive au joint triple et une concentration de contrainte se crée à cet endroit (Fig. 4c). Remarquons aussi que les joints les plus endommagés sont principalement ceux qui possèdent une orientation normale à l'axe de chargement (Fig. 4b et 4d). Ce phénomène est en cohérence avec les observations contenues dans la littérature car il est connu que la fissuration intergranulaire se produit sur des joints de grains dont l'orientation est normale par rapport à la contrainte de traction appliquée. La fissuration est donc essentiellement contrôlée par la traction critique normale au joint de grain. Ce résultat de simulation est conforme au résultat expérimental illustré dans la Figure 1.

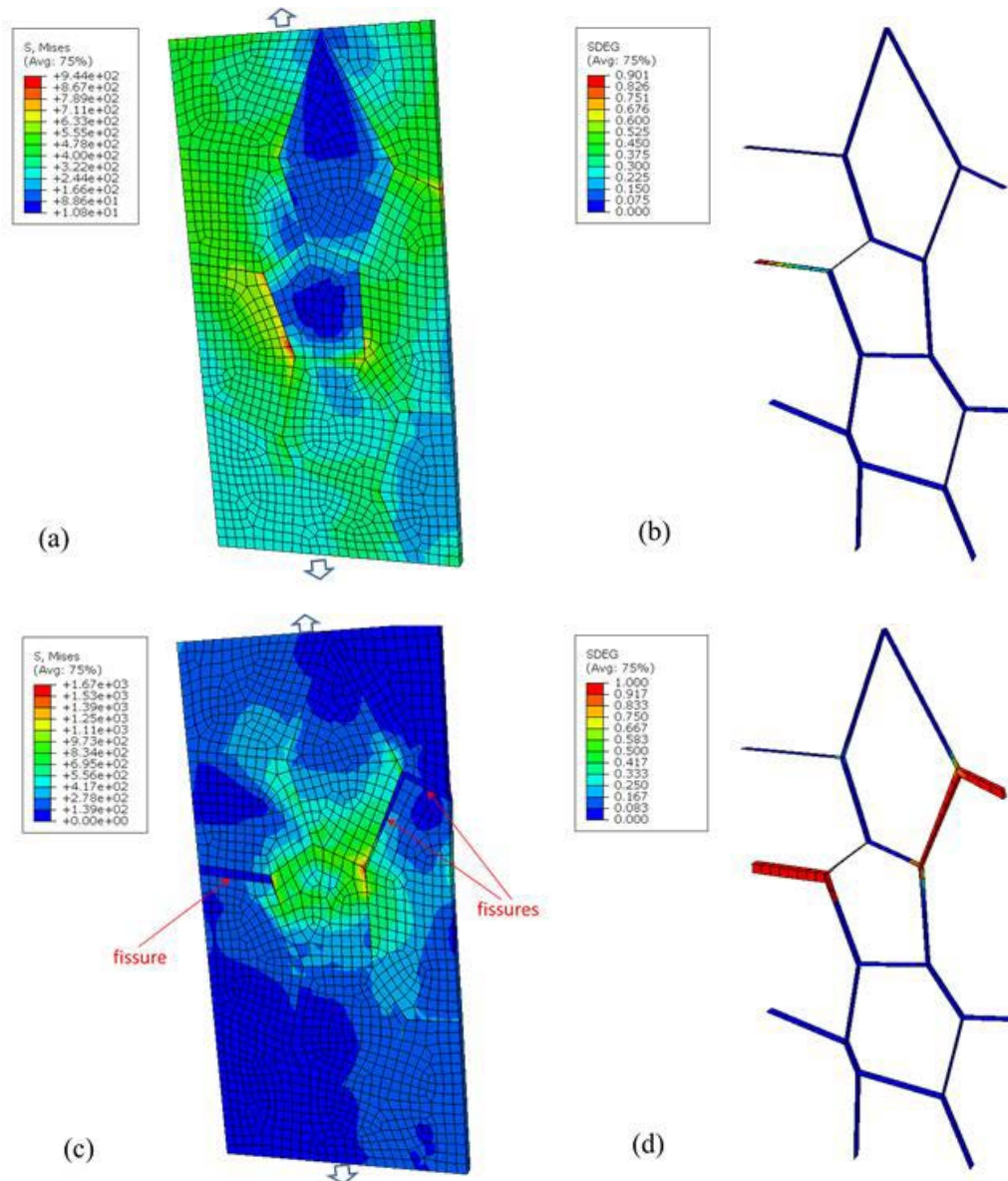


Figure 4 - Champ de contrainte montrant la concentration de contraintes et l'état d'endommagement aux joints de grains pour : (a) et (b) 0,75% de déformation, (c) et (d) 1,75% de déformation.

4. Conclusion et perspectives

Une approche modélisatrice du couplage mécanique-diffusion a été développée pour analyser les conditions de fragilisation dynamique d'un alliage Cu-Ni-Si. L'approche incorpore plusieurs mécanismes à l'échelle microstructurale : (i) la plasticité cristalline pour décrire le glissement au niveau des grains, (ii) la diffusion des impuretés assistée par contrainte hydrostatique pour décrire la ségrégation de l'impureté aux joints de grains, (iii) la dégradation mécanique des joints de grains due à la concentration de l'impureté qui y évolue. Les premières simulations de fissuration intergranulaire ont été réalisées et ont permis de démontrer la faisabilité du développement d'un outil pertinent de validation des mécanismes d'interactions localisées entre microstructure, mécanique et diffusion. Cet outil de simulation pourra être utilisé pour étudier d'autres matériaux sujets au phénomène de fragilisation mais aussi étendu pour prendre en compte d'autres mécanismes de rupture intergranulaire comme la fragilisation par métal liquide, l'endommagement sous fluage et la corrosion sous contrainte.

Références

- [1] Z. Sun, C. Laitem, A. Vincent : Dynamic embrittlement at intermediate temperature in a Cu-Ni-Si alloy, *Mater Sci Eng A*, vol. 477, pp. 145-152, 2008.
- [2] U. Krupp : Dynamic embrittlement – time dependent quasi-brittle intergranular fracture at high temperatures, *Int Mater Rev*, vol. 50, pp. 83-97, 2005.
- [3] L. Priester : *Joints de grains et plasticité cristalline*, Lavoisier, 2011.
- [4] L. Méric, G. Cailletaud, M. Gaspérini : FE calculations of copper bicrystal specimens submitted to tension-compression tests, *Acta Metall Mater*, vol. 42, pp. 921–935, 1994.
- [5] M. Berveiller, A. Zaoui : An extension of the self-consistent scheme to plastically flowing polycrystal, *J Mech Phys Solids* vol. 26, pp. 325-344, 1978.
- [6] Z. Sun : Contribution à l'étude des propriétés mécaniques des alliages de cuivre à durcissement structural Cu-Ni-Si et Cu-Cr-Zr : influence de la microstructure et des conditions d'utilisation, Thèse de Doctorat, INSA de Lyon, 2008.
- [7] S. Hofmann, R. Frech : Application of Auger Electron Spectrometry to trace analysis: determination of less than 10 ppm sulfur in copper, *Anal Chem*, vol. 57, pp. 716-719, 1985.
- [8] E.A. Brandes: *Smithells metal reference book*, 7th edition, Oxford Butterworth-Heinemann, 1998.
- [9] J.H. Rose, J.R. Smith, F. Guinea, J. Ferrante : Universal features of the equation of state of metals, *Phys Rev B*, vol. 29, pp. 2963-2969, 1984.
- [10] S. Serebrinsky, E.A. Carter, M. Ortiz: A quantum-mechanically informed continuum model of hydrogen embrittlement, *J Mech Phys Solids*, vol. 52, pp. 2403-2430, 2004.
- [11] A. van der Ven, G. Ceder: Impurity induced van der Waals transition during decohesion, *Phys Rev B*, vol. 67, 060101, 2003.
- [12] T. Miyahara, K. Stolt, D.A. Reed, H.K. Birnbaum: Sulfur segregation on nickel, *Scripta Metall*, vol. 19, pp. 117-121, 1985.
- [13] D. McLean: *Grain boundaries in metals*, Oxford: Clarendon Press, X, 346 s, 1957.