



HAL
open science

Caractérisation de l'énergie stockée par diffraction des rayons X dans les multicristaux de cuivre : effet sur la recristallisation statique.

Ghiath Monnet

► To cite this version:

Ghiath Monnet. Caractérisation de l'énergie stockée par diffraction des rayons X dans les multicristaux de cuivre : effet sur la recristallisation statique.. Matière Condensée [cond-mat]. Université Paris-Nord - Paris XIII, 1999. Français. ⟨NNT : ⟩. ⟨tel-00426731⟩

HAL Id: tel-00426731

<https://theses.hal.science/tel-00426731v1>

Submitted on 27 Oct 2009

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.



HAL Authorization

Thèse de Doctorat de l'Université Paris 13

Spécialité : Mécanique, Option : Matériaux

**Soutenue publiquement
le 5 février 1999**

Par :

Ghiath MONNET

Titre :

**Caractérisation de l'énergie stockée par diffraction
des rayons X dans les multicristaux de cuivre : Effet
sur la recristallisation statique**

Table de matières

| | |
|--|-----------|
| 1. Introduction | 5 |
| 2. Energie stockée | 9 |
| 2.1 . Introduction | 9 |
| 2.2 . Aspects thermodynamiques | 9 |
| 2.3 . Sources de l'énergie stockée | 10 |
| 2.3.1 . Introduction | 10 |
| 2.3.2 . Défauts ponctuels | 11 |
| 2.3.3 . Dislocations | 11 |
| 2.3.4 . Contraintes internes | 18 |
| 2.4 . Conclusions | 20 |
| 3. Mesures de l'énergie stockée | 22 |
| 3.1 . Introduction | 22 |
| 3.2 . Méthodes directes | 22 |
| 3.2.1 . Méthode directe non destructive | 22 |
| 3.2.2 . Méthode directe destructive | 23 |
| 3.3 . Méthodes indirectes | 24 |
| 3.3.1 . Analyses de l'élargissement de profils de diffraction | 24 |
| 3.3.2 . Densité | 24 |
| 3.3.3 . Résistivité | 24 |
| 3.4 . Discussion des résultats de la littérature | 25 |
| 3.4.1 . Concernant la valeur absolue de l'énergie stockée | 25 |
| 3.4.2 . Effet de l'orientation | 26 |
| 3.5 . Conclusion | 26 |
| 4. Energie stockée et diffraction des rayons X | 28 |
| 4.1 . Introduction | 28 |
| 4.2 . Usage des Coefficients de Fourier | 28 |
| 4.3 . Modélisation de l'élargissement de profils | 29 |
| 4.3.1 . Modèle de Warren-Averbach | 29 |
| 4.3.2 . Modèle de Krivoglaz-Ryaboshapka | 31 |
| 4.3.3 . Théorie de Wilkens - Distribution Aléatoire Restreinte | 33 |
| 4.3.4 . Modèle de Groma-Ungar-Wilkens | 35 |
| 4.4 . Contraste de dislocations - facteur géométrique | 37 |
| 4.4.1 . Facteur géométrique d'un système de dislocations | 37 |
| 4.4.2 . Contraste de plusieurs systèmes de dislocations. | 39 |
| 4.5 . Conclusions | 39 |
| 5. Démarche expérimentale | 41 |
| 5.1 . Introduction | 41 |
| 5.2 . Moyens de caractérisation | 41 |
| 5.2.1 . Diffractomètre à haute résolution | 41 |
| 5.2.2 . Rayonnement synchrotron (ESRF) | 42 |
| 5.2.3 . Microscopies électroniques | 43 |

| | | |
|------------|--|-----------|
| 5.3 | . Echantillons | 44 |
| 5.3.1 | . Matériau | 44 |
| 5.3.2 | . Préparations | 44 |
| 5.4 | . Mode et taux de déformation | 45 |
| 5.5 | . Recuits | 46 |
| 5.6 | . Démarche expérimentale générale | 46 |
| 5.7 | . Conclusions | 46 |
| 6. | <i>Analyses de profils de diffraction</i> | 48 |
| 6.1 | . Introduction | 48 |
| 6.2 | . Résolution physique du diffractomètre | 48 |
| 6.3 | . Normalisation des échelles | 49 |
| 6.4 | . Analyses de l'élargissement | 50 |
| 6.4.1 | . Densité de dislocations et rayon de coupure | 50 |
| 6.4.2 | . Bruit de fond | 51 |
| 6.4.3 | . Traitement des profils ESRF | 52 |
| 6.5 | . Asymétrie de profils et contraintes internes | 52 |
| 6.5.1 | . Introduction | 52 |
| 6.5.2 | . Modèle composite de Mughrabi | 53 |
| 6.5.3 | . Traitement numérique de l'asymétrie | 54 |
| 6.5.4 | . Remarques sur l'analyse des profils asymétriques | 54 |
| 6.6 | . Précision expérimentale | 55 |
| 6.7 | . Conclusion | 56 |
| 7. | <i>Caractérisation expérimentale de l'écrouissage</i> | 57 |
| 7.1 | . Introduction | 57 |
| 7.2 | . Ecrouissage intragranulaire dans un multicristal | 57 |
| 7.2.1 | . Densités de dislocations apparentes | 57 |
| 7.2.2 | . Evaluation de la densité de dislocations réelle | 59 |
| 7.3 | . Ecrouissage dans les monocristaux | 63 |
| 7.3.1 | . Densité de dislocations | 63 |
| 7.3.2 | . Microstructure révélée par le MET | 63 |
| 7.3.3 | . Anisotropie de distribution de dislocations | 64 |
| 7.4 | . Ecrouissage intragranulaire dans les bicristaux | 65 |
| 7.5 | . Diffraction en transmission - Rayonnement synchrotron | 66 |
| 7.5.1 | . Comparaison réflexion - transmission | 66 |
| 7.5.2 | . Ecrouissage intergranulaire | 67 |
| 7.6 | . Contraintes internes à longue portée | 68 |
| 7.7 | . Erreur expérimentale | 69 |
| 7.8 | . Conclusion | 70 |
| 8. | <i>Discussion des résultats</i> | 70 |
| 8.1 | . Introduction | 70 |
| 8.2 | . Energie stockée associée aux dislocations | 70 |
| 8.2.1 | . Rayon de coupure des dislocations | 71 |
| 8.2.2 | . Densité de dislocations | 72 |
| 8.2.3 | . Calcul de l'énergie stockée | 73 |

| | | |
|--------------------|---|------------|
| 8.3 | . Contribution des contraintes internes | 73 |
| 8.4 | . Anisotropie de la déformation plastique par laminage | 74 |
| 8.5 | . Rotations cristallographiques induites par le laminage | 75 |
| 8.6 | . Ecrouissage intergranulaire | 75 |
| 8.7 | . Hétérogénéité dans l'épaisseur de l'échantillon | 76 |
| 8.8 | . Conclusion | 77 |
| 9. | <i>Effet de l'énergie stockée sur la recristallisation</i> | 78 |
| 9.1 | . Introduction | 78 |
| 9.2 | . Recristallisation intragranulaire - monocristaux | 78 |
| 9.2.1 | . Température critique de recristallisation | 78 |
| 9.2.2 | . Relation avec l'énergie stockée | 79 |
| 9.2.3 | . Orientations des grains recristallisés | 79 |
| 9.2.4 | . Discussion | 81 |
| 9.3 | . Recristallisation intergranulaire | 83 |
| 9.3.1 | . Cinétique de recristallisation dans les bicristaux | 83 |
| 9.3.2 | . Cinétique de recristallisation dans le multicristal | 85 |
| 9.3.3 | . Nouvelles orientations | 88 |
| 9.3.4 | . Discussion | 89 |
| 9.4 | . Conclusion | 90 |
| 10. | <i>Conclusions et perspectives</i> | 91 |
| Annexes | | |
| . | Annexe 1 : Diffraction - Aspects fondamentaux | 94 |
| . | Annexe 2 : Diffraction - Aspects techniques | 99 |
| 11. | <i>Bibliographie</i> | 104 |

1. Introduction

Compte tenu de son importance dans le milieu scientifique et dans le milieu industriel, le phénomène de la recristallisation statique a fait l'objet d'un grand nombre d'études à travers plusieurs décennies. Pourtant, de nombreux aspects de ce phénomène restent encore inexpliqués. Le rôle de l'énergie stockée en est un exemple typique.

L'énergie stockée après la déformation plastique est une caractéristique fondamentale de l'état déformé. Elle résulte de l'irréversibilité du processus de déformation et représente l'écart thermodynamique à l'état d'équilibre. Elle constitue, ainsi, la force motrice pour tous les changements microstructuraux à haute température, notamment la recristallisation. Cette dernière conduit à libérer l'énergie par l'élimination de tous les défauts cristallins engendrés par la déformation.

Du point de vue expérimental, l'étude de l'influence de l'énergie stockée sur la recristallisation n'est pas une tâche facile. D'une part, comme la recristallisation est contrôlée par plusieurs mécanismes (restauration, germination, croissance..), l'énergie stockée peut avoir différentes influences sur ces mécanismes. D'autre part, de multiples formes d'hétérogénéités et de localisations de déformation présentes à une échelle très fine (quelques dixièmes de microns), faussent l'interprétation du comportement moyen de recristallisation observé à une plus grande échelle (quelques dizaines voire centaines de microns).

L'ensemble des travaux présentés dans la littérature sur l'énergie stockée propose des résultats controversés, parfois contradictoires, ce qui empêche l'obtention d'une meilleure compréhension de son rôle sur les mécanismes de la recristallisation.

Les nouveaux développements des analyses de l'élargissement de profils de diffraction permettent de concevoir une nouvelle approche dans l'étude de l'énergie stockée. Par le moyen de cette technique, les mesures locales de l'état d'écrouissage rendent possible la caractérisation des hétérogénéités intragranulaires, voire intergranulaires. Cette caractérisation non destructive permet de comprendre, lors des recuits appropriés, l'impact de ces hétérogénéités sur les différents mécanismes de recristallisation.

Le projet présenté dans ce mémoire est de nature expérimentale ; il consiste à étudier la variation de l'énergie stockée au niveau inter- et intragranulaire dans des échantillons de cuivre multicristallins, et ensuite, à mettre en évidence l'effet de ces hétérogénéités sur la recristallisation.

Guide de lecture

Ce mémoire est divisé en deux parties principales : la première concernant l'étude bibliographique, est constituée de trois chapitres ; la deuxième expliquant le travail effectué et les résultats obtenus, se compose de cinq chapitres. Nous présentons ci-dessous les principaux points traités dans chaque chapitre.

Partie I - Bibliographie

Energie stockée

- Origine et théorie de l'énergie stockée
- Contribution des différentes sortes de défauts cristallins
- Importance de la densité et de la distribution des dislocations
- Contribution des contraintes internes à longue portée

Mesures de l'énergie stockée

- Principes des méthodes les plus utilisées pour la mesure de l'énergie stockée
- Ordres de grandeur donnés par les différentes méthodes
- Résultats concernant l'effet de l'orientation cristallographique
- Avantage de la méthode d'analyses de l'élargissement de profils de diffraction

Energie stockée et diffraction des rayons X

- Effet des défauts cristallins sur l'élargissement des profils de diffraction
- Evolution historique de l'interprétation de l'élargissement
- Présentation du modèle retenu dans notre travail
- Contraste cristallographique des dislocations sur l'élargissement des profils

Partie II - Travail effectué, résultats et discussions

Démarche expérimentale

- Moyens de caractérisation disponibles au laboratoire
- Choix du matériau
- Choix du mode et du taux de déformation
- Nature et but recherché des recuits à haute température

Analyses de profils

- Résolution physique du diffractomètre
- Evaluation de la densité de dislocations apparente et du rayon de coupure
- Traitement des profils mesurés au Synchrotron de Grenoble
- Analyses de l'asymétrie de profils sur la base du modèle composite de Mughrabi

Caractérisation expérimentale de l'écrouissage

- Résultats de mesures de la densité de dislocations apparentes et du rayon de coupure
- Influence de la nature et de la distribution de dislocations
- Interprétation et évaluation de la densité de dislocations réelle
- Relation entre la densité de dislocation et la microstructure
- Influence de l'état de déformation macroscopique sur la distribution des dislocations
- Comparaison entre les techniques de diffraction en transmission et en réflexion
- Variation de la densité de dislocations près des joints de grains
- Détermination de l'état de contraintes internes à longue portée
- Précision expérimentale

Discussion des résultats

- Evaluation de l'énergie stockée
- Contribution des contraintes internes
- Effet de l'anisotropie de la déformation plastique en laminage
- Rotation cristallographique induite par la déformation
- Ecrouissage intergranulaire
- Hétérogénéité dans l'épaisseur de l'échantillon

Effet de l'énergie stockée sur la recristallisation

- Effet de l'énergie stockée sur la température de recristallisation
- Effet de l'énergie stockée sur le comportement intergranulaire
- Cinétique de recristallisation dans un multicristal
- Relation d'orientation entre les grains recristallisés et la matrice déformée.

Annexes

Ce mémoire se termine par deux annexes concernant la diffraction des rayons X. Dans la première, nous présentons quelques aspects fondamentaux de la diffraction comme la loi de Bragg, l'effet de la taille des cristaux diffractants et des déplacements atomiques sur l'élargissement. La deuxième annexe est consacrée aux aspects techniques comme les paramètres contrôlant la résolution physique d'un diffractomètre (fentes, monochromateur ...) et la technique de la diffraction en transmission réalisée au Synchrotron de Grenoble.

2. Energie stockée

2.1. Introduction

L'énergie stockée est l'énergie retenue dans le matériau après la déformation plastique. La connaissance de cette énergie permet de mieux comprendre le processus de l'écrouissage, car elle caractérise l'irréversibilité de ce dernier. Elle intervient également dans la plupart des phénomènes spontanés accompagnant l'évolution à hautes températures des matériaux déformés à froid, comme la restauration et le vieillissement. Peu d'études ont été consacrées à la théorie de l'énergie stockée. Une éventuelle approche générale nécessite une connaissance approfondie des mécanismes de la déformation plastique, ce qui ne semble pas être le cas à nos jours. La plupart des idées connues ont été proposées dans des travaux réalisés pour la compréhension des phénomènes adjacents, comme la description du comportement mécanique ou l'élargissement des pics de diffraction de rayons X.

Cette difficulté sur le plan théorique est accompagnée malheureusement par une dispersion des résultats expérimentaux rencontrés dans la littérature. Nous allons consacrer un chapitre pour présenter ces résultats avec les différentes techniques utilisées.

Dans ce chapitre, nous allons présenter quelques aspects théoriques de l'énergie des matériaux déformés, sans prétendre faire le tour de tous les modèles de la déformation plastique.

2.2. Aspects thermodynamiques

Le cadre de l'étude est limité à l'énergie stockée engendrée par la déformation plastique schématisée dans la Figure 2-1.

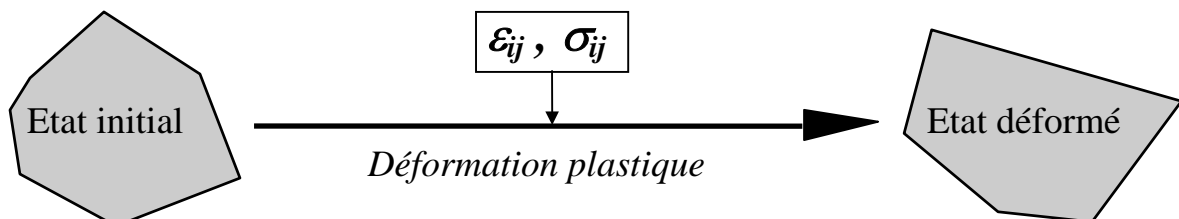


Figure 2-1. Représentation schématique de la déformation plastique.

L'énergie stockée E_{st} , par définition, est la différence entre l'énergie interne de l'état déformé et celle de l'état initial avant la déformation :

$$E_{st} = E_{int}(\text{Etat déformé}) - E_{int}(\text{Etat initial}). \quad (2-1)$$

Selon la première loi de la thermodynamique, cette énergie peut être exprimée en fonction du travail mécanique nécessaire pour effectuer la déformation (W) et de la chaleur échangée pendant la transformation (Q) :

$$E_{st} = \Delta E_{int} = Q + W, \quad (2-2)$$

Bien entendu, une déformation purement élastique, par définition réversible, ne provoque aucun changement de l'énergie interne ($Q = -W$). En revanche, la déformation plastique, dans la plupart des cas, fait augmenter l'énergie interne du matériau ($\Delta E_{int} > 0$).

Le travail total dépensé dans un volume V pendant une déformation plastique peut être écrit en fonction des tenseurs des déformations (ε_{ij}) et des contraintes (σ_{ij}) :

$$W = \int_V \int_0^{\varepsilon_{ij}} \sigma_{ij} d\varepsilon_{ij} dV. \quad (2-3)$$

L'intégration de $d\varepsilon_{ij}$ entre 0 et ε_{ij} finale montre que le travail plastique ne dépend pas seulement des changements des dimensions, mais également du chemin de la déformation utilisé. Par conséquent, en l'absence d'une loi universelle de comportement, ce travail dépend du matériau, de la forme de l'éprouvette, du mode de déformation et des conditions aux limites. Deux cas extrêmes peuvent être distingués :

1) en plasticité parfaite, Bridgman [1] a montré que la totalité du travail de déformation est convertie en chaleur et qu'il n'y a pas lieu de stockage d'énergie ($E_{st} = 0$);

2) en élasticité, sous chargement uniaxial, et dans un état uniforme de déformation, le travail par unité de volume s'écrit (voir équation 2-3) :

$$W = 1/2 E \varepsilon^2 = 1/2 \sigma^2 / E, \quad (2-4)$$

où E est le module de Young.

La thermodynamique classique peut difficilement être utilisée pour analyser plus finement la déformation plastique, car cette dernière est irréversible et n'est caractérisée ni par un état d'équilibre ni par un état stationnaire. Elle a été précisément décrite par Bridgman [1] comme « *une île dans une mer d'irréversibilités.* »

2.3. Sources de l'énergie stockée

2.3.1. Introduction

L'augmentation de l'énergie interne pendant la déformation plastique est la conséquence de l'accumulation des défauts cristallins créés par le glissement cristallographique. Différentes sortes de défauts peuvent être distinguées : les défauts ponctuels (lacunes et interstitiels), les dislocations, les macles de déformation, les joints de grains. Ces deux derniers ne seront pas traités dans ce chapitre vue leurs faibles contributions à l'énergie stockée [2,3].

2.3.2. Défauts ponctuels

Le rôle des défauts ponctuels, essentiellement les lacunes et les interstitiels, dans la déformation plastique n'est pas bien compris. D'une part, leur taille très faible rend difficile les observations expérimentales directes, et d'autre part, leurs principales caractéristiques thermodynamiques sont difficiles à évaluer théoriquement du fait que ces défauts changent d'une façon complexe l'énergie et l'entropie du matériau. Dans les métaux de structure cubique à faces centrées, les lacunes ont une énergie de formation largement inférieure à celle des interstitiels (respectivement 1 et 3 eV [4]). Ceci est en accord avec les résultats expérimentaux confirmant l'absence à l'équilibre des interstitiels dans les cfc même à hautes températures. C'est pourquoi les lacunes étaient, souvent, les seules considérées dans la discussion sur l'effet des défauts ponctuels. La concentration des lacunes à l'équilibre diminue exponentiellement quand la température diminue, ce qui permet de négliger leur présence à température ambiante. Mais la déformation plastique, faisant évoluer le système loin de l'équilibre, en crée une quantité supplémentaire difficile à estimer. Le rôle de ces défauts est contrôlé par un compromis mettant en jeu leur énergie de formation et leur mobilité. En effet, tant que la mobilité, qui est une fonction croissante de la température, n'est pas assez élevée, la concentration des lacunes, créées par la déformation plastique, ne pourra pas évoluer rapidement vers celle à l'équilibre. Du fait, l'énergie stockée sous forme de lacunes augmente quand la température de déformation diminue jusqu'à atteindre un niveau très important à basses températures. Pour les métaux courants, la chaleur dissipée pendant et après la déformation à température ambiante, est essentiellement attribuée à l'élimination des défauts ponctuels produits par la déformation [5,6]. Pour ce qui concerne leur part dans l'énergie stockée, c'est une question plus difficile. En effet, tout au long de la déformation plastique, des lacunes sont créées et annihilées à des rythmes différents. Une fois la déformation achevée, la production des lacunes s'arrête mais leur annihilation continue, diminuant ainsi leur part dans l'énergie stockée avec le temps. Wolfenden [7] a estimé à 20 % leur contribution au moment de la décharge pour des monocristaux déformés. Ce pourcentage constitue vraisemblablement une limite supérieure du stockage d'énergie sous forme de lacunes car la restauration observée ultérieurement ne fait que diminuer leur concentration. C'est pourquoi, la contribution des défauts ponctuels est généralement écartée (parfois injustement) de la discussion sur l'énergie stockée.

2.3.3. Dislocations

2.3.3.1. Introduction

La densité et la structure des dislocations sont considérées comme les principaux (et souvent les seuls) paramètres déterminant l'énergie stockée. Contrairement au cas des défauts ponctuels, la littérature sur les caractéristiques des dislocations est abondante. La quasi-totalité de ces travaux montre une organisation des dislocations dans des structures bien déterminées (Figure 2-2), qui semblent jouer un rôle important dans le mécanisme de l'écrouissage. Un bon nombre de modèles ont été proposés depuis quelques dizaines d'années pour l'interprétation de ces structures et la prévision du comportement mécanique. Cependant, aucun modèle ne fait l'unanimité parmi les scientifiques. La déformation plastique est, en effet, un processus très complexe sur deux niveaux. D'une part le nombre de variables est élevé : systèmes de glissement, fautes d'empilement, joints de grains, impuretés.... D'autre

part, les lois réunissant ces variables ne sont pas assez connues, même si quelques relations phénoménologiques ont pu être trouvées. Pour une littérature générale, voir [8,9,10],

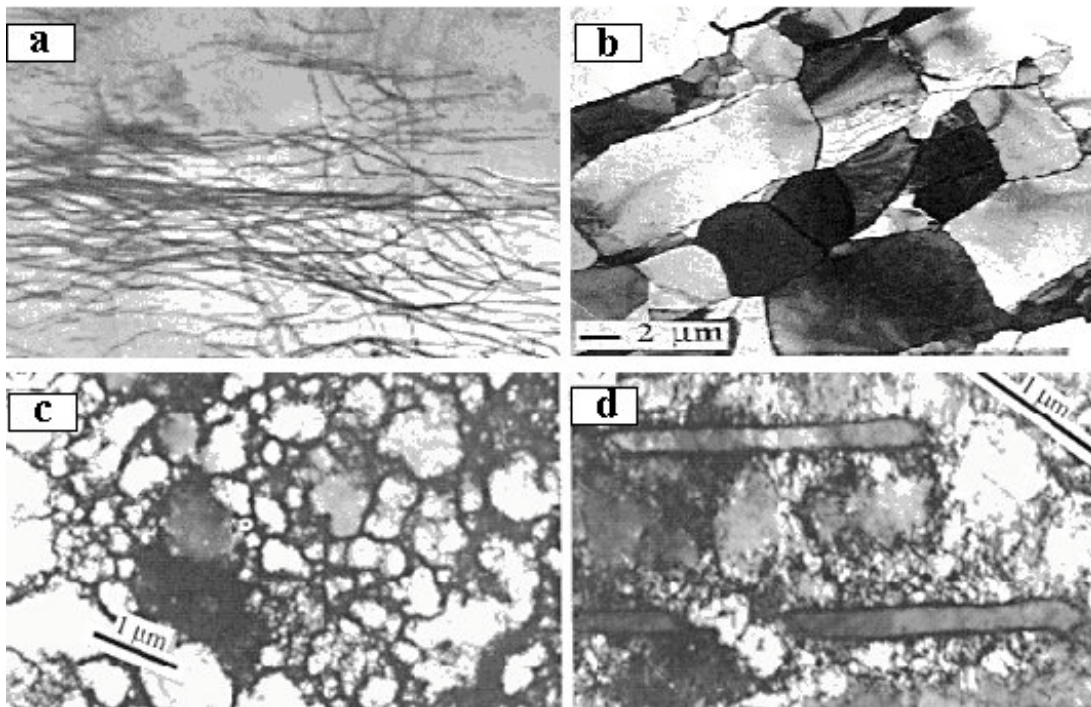


Figure 2-2. Différentes structures de dislocations observées par MET, a) Ge à faible déformation [11], b) Al déformé en compression ($\epsilon = 0.91$) à 400°C [12], c) et d) cuivre laminé à 25 et 18 % [13]

Après une longue controverse sur l'influence de la cinétique du glissement sur l'organisation des dislocations, la plupart des scientifiques attribuent la formation de ces structures aux aspects énergétiques. Dans ce contexte, l'énergie stockée d'un ensemble de dislocations dépend fortement de leur organisation spatiale. L'étude du cas d'une dislocation isolée permet de comprendre la nature et l'origine de l'énergie élastique associée aux dislocations. Ensuite, l'examen du cas de deux dislocations révèle l'importance de l'interaction entre les dislocations. Finalement, nous étudierons l'énergie d'un ensemble d'un grand nombre de dislocations avec quelques distributions spécifiques.

2.3.3.2. Dislocation isolée

Prenons le cas simple d'une dislocation droite contenue dans un cristal cylindrique dont l'axe Z est parallèle à la dislocation (Figure 2-3). Si le cylindre est de rayon R et de longueur infinie, nous considérons l'énergie par unité de longueur de la dislocation. Selon l'équation (2-3), cette énergie résulte des perturbations cristallographiques représentées en tout point par le tenseur de déformations (ϵ_{ij}) et le tenseur de contraintes (σ_{ij}). Dans le cas général, ces deux tenseurs dépendent du vecteur de Burgers (\mathbf{b}), des constantes d'élasticité du matériau et de la dimension caractéristique du cristal (R). Toutes ces variables sont nécessaires pour le calcul et aucune ne peut être négligée.

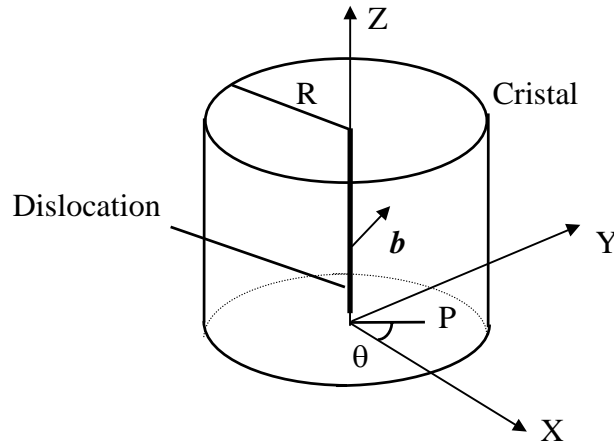


Figure 2-3. Schéma d'un cristal contenant une dislocation rectiligne.

Les solutions analytiques n'existent que pour des cas simples. Toutes les solutions, si le cristal est de taille très grande ($R = \infty$), montrent que les ε_{ij} et σ_{ij} en un point P sont inversement proportionnelles à la distance (r) qui sépare P de la dislocation. Ceci montre d'une part que la perturbation cristallographique engendrée par une dislocation est à **longue portée**, et d'autre part que l'énergie associée à un volume infinitésimal (dV) contenant P , est *proportionnelle* à $1/r^2$ (voir équation 2-4). Cette dernière est aussi proportionnelle à μb^2 , car ε_{ij} est proportionnelle à b et σ_{ij} est proportionnelle à μb . L'intégrale dans (2-4) peut être simplifiée et réécrite pour exprimer l'énergie par unité de longueur de la dislocation E_{st} en fonction de la variable r :

$$E_{st} = \alpha \mu b^2 \int_0^{R_e} \frac{dr}{r^2} = \alpha \mu b^2 [\ln(r)]_0^{R_e}, \quad (2-5)$$

où α est une constante dépendant du caractère de la dislocation, des constantes d'élasticité et des dimensions du cristal. L'équation (2-5) implique deux divergences logarithmiques caractéristiques des dislocations. La première pour $r = R_e$ (rayon de coupure). Quand R_e tend vers l'infini, E_{st} tend vers l'infini. Dans le cas du cylindre de rayon R , R_e devient du même ordre de grandeur que R . Nous allons voir que ce problème ne se pose pas de la même façon pour un nombre important de dislocations. La deuxième divergence ($r = 0$) résulte de la non validité de l'élasticité linéaire au voisinage proche de la dislocation. Ce problème a été contourné en délimitant la borne inférieure de l'intégrale dans (5) à un rayon r_o , et en ajoutant à l'équation (2-5) un terme représentant l'énergie du cœur de la dislocation (de rayon r_o). Cohlen et al. [14] a estimé r_o entre $1.25b$ et $1.65b$ pour une dislocation coin $\langle 100 \rangle$ dans le fer- α . Il a également calculé l'énergie du cœur et conclu qu'elle est faible (d'environ 10 %) et qu'elle peut être incorporée dans la forme logarithmique de l'équation (2-5) en diminuant la borne d'intégration r_o à une fraction de b (entre b et $b/2$). Par souci de simplicité, r_o sera considéré égal à b dans le reste du texte. Finalement, nous pouvons réécrire l'équation (2-5) comme :

$$E_{st} = \alpha \mu b^2 \ln \frac{R_e}{b} \quad (2-6)$$

Dans les métaux, l'équation (2-6) donne des valeurs entre 5 et 10 eV par plan atomique perpendiculaire à la dislocation. L'entropie associée étant largement négligeable, l'énergie

calculée selon l'équation (2-6) est une énergie libre. Par conséquent, *un cristal contenant des dislocations n'est jamais en équilibre thermodynamique.*

2.3.3.3. Deux dislocations

L'évaluation de l'énergie de deux dislocations nécessite l'examen au cas par cas : selon leurs caractères et selon leur configuration géométrique dans le cristal. D'une façon générale, cette énergie peut être évaluée en superposant les champs de déformations des deux dislocations. On obtient alors : $E_{st} = E_1 + E_2 + E_{int}$, où E_1 et E_2 sont l'énergie de chaque dislocation isolée dans le cristal; et E_{int} est leur énergie d'interaction. Dans un milieu infini et isotrope, E_{int} est facile à calculer et elle peut être positive ou négative.

Il est important de noter que, si les deux dislocations sont proches et forment un dipôle, les déformations résultantes deviennent proportionnelles à $1/r^2$ (pour r très grand). C'est à dire que le champ de déformation d'un tel dipôle *n'est pas de longue portée*. Dans ce cas, l'intégrale présentée dans l'équation (2-5) ne diverge plus avec la borne supérieure (r tend vers l'infini) et l'énergie de ce dipôle reste finie quelle que soit la taille du cristal.

Quand les deux dislocations sont dans un cristal fini, les calculs sont modifiés par l'intervention des dimensions du cristal. Un exemple simple de deux dislocations vis parallèles, dans un cylindre dont l'axe est parallèle aux dislocations, a été traité par Kocks et al. [15]. Il a montré l'existence de positions d'équilibre minimisant l'énergie des dislocations, alors que les calculs dans un milieu infini ne présentent aucune configuration d'énergie minimale. Il a également prouvé que, même si les deux dislocations ont le même vecteur de Burgers, elles peuvent s'attirer ou se repousser en fonction de leurs positions relatives dans le cristal.

Les résultats ci-dessus montrent l'importance de l'effet de la configuration des dislocations sur leur énergie. Quand les matériaux déformés sont caractérisés par des densités de dislocations très élevées, il est donc indispensable d'étudier l'influence de la distribution des dislocations sur l'énergie stockée.

2.3.3.4. Distribution aléatoire

Il aura fallu longtemps avant de reconnaître l'importance de l'aspect statistique dans la distribution des dislocations. Considérons un ensemble de N dislocations vis droites parallèles dans un cylindre dont l'axe est parallèle aux dislocations (Figure 2-4). Toutes les dislocations sont caractérisées par le même vecteur de ligne (\mathbf{l}), mais la moitié ($N/2$ dislocations) a un vecteur de Burgers (\mathbf{b} parallèle à \mathbf{l}) et l'autre moitié a le vecteur de Burgers inverse ($-\mathbf{b}$). Cette configuration est relativement importante à examiner, parce que la grande majorité des parois de dislocations, observés expérimentalement, sont de nature polaire ou multipolaire [16]. Wilkens [17,18,19,20] a participé activement à l'élaboration de quelques approches importantes dans ce domaine. Une distribution aléatoire de dislocations implique une densité de probabilité uniforme sur toute la surface S (Figure 2-4). Ce qui signifie que dans toute zone $s \subset S$, le nombre de dislocations n_s dans cette zone est proportionnel à s : $n_s = P \times s$, où P est la densité de probabilité définie par $P = N/S$.

Pour pouvoir estimer l'énergie totale par unité de volume (E_{st}) d'une distribution aléatoire, il est utile de séparer, comme on l'a vu pour deux dislocations, la somme des énergies des dislocations prises isolées (NE_1) de leur énergie d'interaction E_{int} :

$$E_{st} = N \times E_1 + E_{int}. \quad (2-7)$$

Supposons que la distribution des dislocations provoque en un point (p) un champ de déformation $\varepsilon_{ij}(p)$ et de contrainte $\sigma_{ij}(p)$. On note $\sigma_{ij}(d,p)$ la composante (ij) du tenseur de contraintes au point (p) engendré par une dislocation située en d . Par souci de simplicité, nous allons omettre les indices (ij) en notant que les équations qui suivent sont valables pour toute composante non nulle. L'énergie élastique de toutes les dislocations est donnée à l'aide de l'équation (2-4) en fonction de toutes les composantes du tenseur de contraintes final $\sigma(p)$ [15] :

$$E_{st} = \alpha \int_S \sigma^2(p) ds = \alpha \int_S \left[\sum_d \sigma(d, p) \right]^2 ds, \quad (2-8)$$

où α est une constante dépendant des constantes élastiques. Pour aboutir à la forme de l'équation (2-7), nous pouvons réécrire l'équation (2-8) sous la forme :

$$E_{st} = \alpha \sum_d \int_S \sigma^2(d, p) ds + \alpha \sum_{d, d'} \int_S \sigma(d, p) \sigma(d', p) ds \quad (2-9)$$

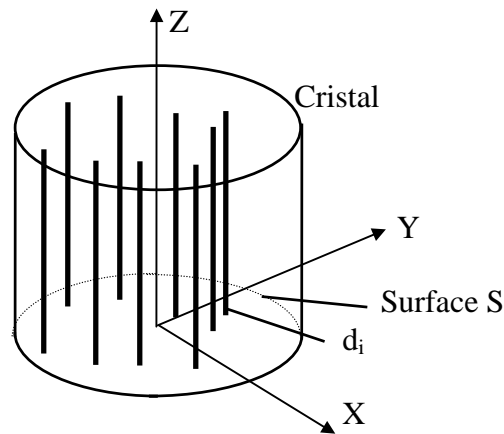


Figure 2-4. Groupe de N dislocations parallèles coupant la section droite du cylindre dans les points d_i .

Il est facile de constater que le premier terme dans l'équation (2-9) représente la somme des énergies des dislocations prises individuellement qui est équivalente au terme $N \times E_1$ dans l'équation (2-7), alors que le deuxième terme représente l'énergie d'interaction E_{int} . Ainsi, l'équation (2-9) peut être réécrite à l'aide de l'équation (2-7) :

$$E_{st} = \alpha \mu \rho b^2 \ln \frac{R_e}{b} + E_{int}, \quad (2-10)$$

ici α est une constante, $R_e \approx R$ et ρ (la densité de dislocations = N/S) remplace N afin d'aboutir à l'énergie par unité de volume. Dans le cas d'une distribution aléatoire, Wilkens [17], en accord avec Kocks et al. [15], a montré que cette distribution implique une **énergie moyenne d'interaction nulle** et que l'énergie totale stockée dans notre cristal se réduit au premier terme de l'équation (2-10). On peut avoir une idée sur l'ordre de grandeur de cette énergie en considérant : un cylindre de rayon $R = 1$ cm et de longueur infinie d'aluminium (considéré comme élastiquement isotrope), une densité de dislocations moyenne de 10^{15} m^{-2} , $\alpha = 0.1$ pour une moyenne de caractère vis et coin, $\mu = 40$ GPa et $b = 0.286$ nm. Le calcul donne une valeur d'énergie stockée de 57 J/mol. Les valeurs expérimentales typiques d'énergie stockée, obtenues par calorimétrie, pour une telle densité de dislocations en laminage atteignent environ 5,4 J/mol [21], soit environ un dixième de la valeur calculée. Evidemment, cette dernière ne peut pas représenter l'énergie d'une distribution réelle de dislocations. Par conséquent, nous aboutissons aux remarques suivantes :

- 1) la distribution aléatoire de dislocations est associée à une énergie très élevée et il est facile de constater que dans la déformation plastique, les dislocations n'adoptent pas une telle distribution.
- 2) La portée du champ de déformation des dislocations ne peut pas être de même ordre de grandeur que les dimensions du cristal.
- 3) L'énergie d'interaction E_{int} est négative et elle ne peut pas être négligée, car elle est du même ordre que la somme des énergies des dislocations isolées (ρE_I).

2.3.3.5. Distribution aléatoire restreinte

Dans une tentative hypothétique, Wilkens [17,18,19] a essayé de restreindre artificiellement la distribution aléatoire en introduisant la notion de la distribution aléatoire restreinte. La surface (S) de la section droite (Figure 2-4) est divisée en nombre fini (n) de zones de superficies égales (s) et de taille L . La distribution aléatoire restreinte est définie par les hypothèses : (i) la densité de dislocation dans chaque zone est rigoureusement la même que la densité de dislocations moyenne ρ ; (ii) la distribution des (N/n) dislocations présentes dans chaque zone (s) est complètement aléatoire.

Wilkens [17] a démontré que, dans ce cas spécifique, le rayon de coupure R_e , présent dans l'équation (2-6), n'est plus proportionnel à la taille du cristal mais approximativement égal à la taille des zones considérées L ($R_e \approx L = \sqrt{s}$). Par conséquent, une forme plus simple de l'équation (2-10) peut être utilisée :

$$E_{st} = \alpha\mu\rho b^2 \ln \frac{R_e}{b}. \quad (2-11)$$

Comme l'équation (2-10) est une expression générale de l'énergie, le résultat de Wilkens ($R_e \approx \sqrt{s}$) implique que l'énergie d'interaction permet d'éliminer les champs de déformations des dislocations pour $r > L = \sqrt{s}$. Pour évaluer l'énergie d'interaction, on peut écrire :

$$E_{int} = E_{st} - \alpha\mu\rho b^2 \ln \frac{L}{b}, \quad (2-12)$$

ce qui donne l'équation :

$$E_{int} = -\alpha\mu\rho b^2 \ln \frac{R}{L}. \quad (2-13)$$

L'importance de l'énergie d'interaction est donc fonction du rapport R/L . Autrement dit, une distribution de dislocations est d'autant plus efficace, au sens énergétique du terme, que les zones de distribution aléatoire de dislocations sont plus petites. Les champs de déformations des dislocations peuvent donc se masquer mutuellement, diminuant ainsi leur énergie élastique globale. Wilkens reconnaît qu'il est difficile de relier le paramètre L aux distances expérimentales caractéristiques de la distribution de dislocations.

2.3.3.6. Distribution générale

L'équation (2-11), qui nécessite la connaissance de la portée et la densité de dislocations, est largement utilisée pour évaluer l'énergie stockée par les dislocations, quelles que soient les conditions de déformation. Si la densité de dislocations peut être plus au moins mesurée avec une bonne précision, le rayon de coupure R_e ne l'est pas. La raison est que, dans l'équation (2-11), R_e représente la portée moyenne des dislocations. Or les dislocations sont toujours distribuées d'une façon hétérogène. La difficulté fondamentale d'évaluer l'énergie stockée selon une description (type équation (2-11)) est l'étape d'homogénéisation "forcée", dans laquelle les caractéristiques physiques de la distribution réelle des dislocations (comme la taille des cellules ou l'espacement réel des dislocations) ne figurent pas. Cependant, en l'absence actuellement d'une approche théorique différente et générale, l'équation (2-11) reste la seule approximation disponible.

Wilkens [19] a proposé d'introduire le paramètre M pour caractériser la distribution des dislocations :

$$M = R_e \sqrt{\rho} = \frac{R_e}{d_{dis}}. \quad (2-14)$$

Comme on peut le constater, M est le rapport entre le rayon de coupure et la distance moyenne entre les dislocations (d_{dis}). M est défini, comme le cas de R_e , d'une façon moyenne sur tout l'échantillon. Nous pouvons distinguer trois cas :

i) ($M \gg 1$), cas où les zones dans lesquelles les dislocations distribuées aléatoirement contiennent beaucoup de dislocations. Conclusion : cette configuration est de haute énergie (voir le cas de la distribution aléatoire restreinte).

ii) ($M \approx 1$) décrit une distribution à faible énergie où la portée d'une dislocation s'arrête au voisinage de la dislocation la plus proche. Cette hypothèse est la plus utilisée et implique donc que $R_e = \rho^{-0.5}$.

iii) ($M \ll 1$), le cas provoqué par les joints de grains de faibles désorientations [22] largement observés dans la littérature et par les groupes de dipôles ou multipôles de dislocations, rencontrés souvent dans la déformation cyclique [20,22,23]. Par conséquent, dans ce cas, l'étendue de champ de déformation des dislocations est très courte et l'énergie totale est faible (principe de Structures de Dislocations à Faible Energie : LEDS [16]).

Straub et al. [24] ont montré que pour une densité de dislocations de $\rho = 2 \cdot 10^{14} \text{ m}^{-2}$ ($d_{dis} = 0.07 \text{ } \mu\text{m}$), la taille des cellules de dislocations observées par MET est d'environ $0.6 \text{ } \mu\text{m}$, soit 10 fois plus élevée que la distance moyenne entre les dislocations d_{dis} , alors que la

distance entre les dislocations dans les parois est d'environ 5 nm. Cet exemple illustre la difficulté du choix de la valeur du rayon de coupure R_e entre les données expérimentales (0.6 et 0.005 μm).

Récemment, Verdier et al. [21] ont comparé l'évolution de l'énergie stockée, mesurée par calorimétrie, avec celle de la densité de dislocations mesurée par le changement de la résistivité, dans des alliages Al-Mg pour différents taux de laminage (Figure 2-5 - courbe a). Cette courbe montre que l'énergie stockée n'est pas proportionnelle à la densité de dislocations. La courbe b (Figure 2-5) représente le meilleur lissage de la courbe (a) par une équation de la forme :

$$E_{st} = A\rho \ln \frac{l}{b\sqrt{\rho}}, \quad (2-15)$$

où A est une constante de lissage. Comme on peut le constater, la description de l'évolution de l'énergie stockée par l'équation (2-11) avec $R_e = \rho^{-0.5}$, n'est pas proche de la réalité. La portée moyenne des champs de déformations des dislocations n'est donc pas proportionnelle à la distance moyenne entre les dislocations. **R_e diminue plus vite que la fonction $\rho^{-0.5}$.**

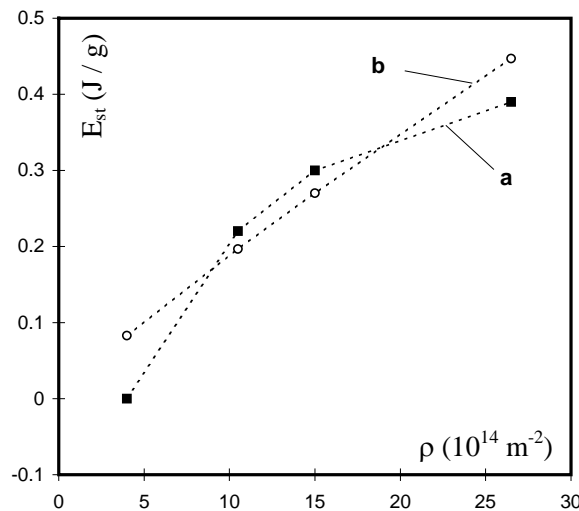


Figure 2-5. Variation de l'énergie stockée en fonction de la densité de dislocations [16].

D'autres approches ont été proposées dans la littérature, considérant un aspect composite du matériau (voir par exemple Mughrabi [25,26], Pedersen et al. [27], Estrin et al. [28]). Ces modèles composites divisent le matériau en une partie riche en dislocations (parois de dislocations) et une partie pauvre en dislocations (cellules). Ceux-ci n'ont pas réussi à présenter une approche nouvelle concernant l'énergie stockée car la plupart des estimations sont basées sur la relation $R_e \approx \rho^{-0.5}$, voir figure 5 dans [26].

2.3.4. Contraintes internes

Ces contraintes ont un rôle déterminant dans le contrôle du mouvement des dislocations et conditionnent l'évolution de l'écrouissage pendant la déformation plastique. Il en existe différentes sortes corrélées aux discontinuités cristallographiques caractéristiques de chaque échelle d'observation. Du point de vu expérimental, Il est souvent difficile d'identifier et séparer ces catégories de contrantes, bien qu'elles ne remplissent pas la même fonction dans les mécanismes de la déformation plastique.

2.3.4.1. Classification

Pour les matériaux purs (monophasés), nous pouvons distinguer différents ordres de contraintes correspondant aux différentes échelles suivantes (Figure 2-6).

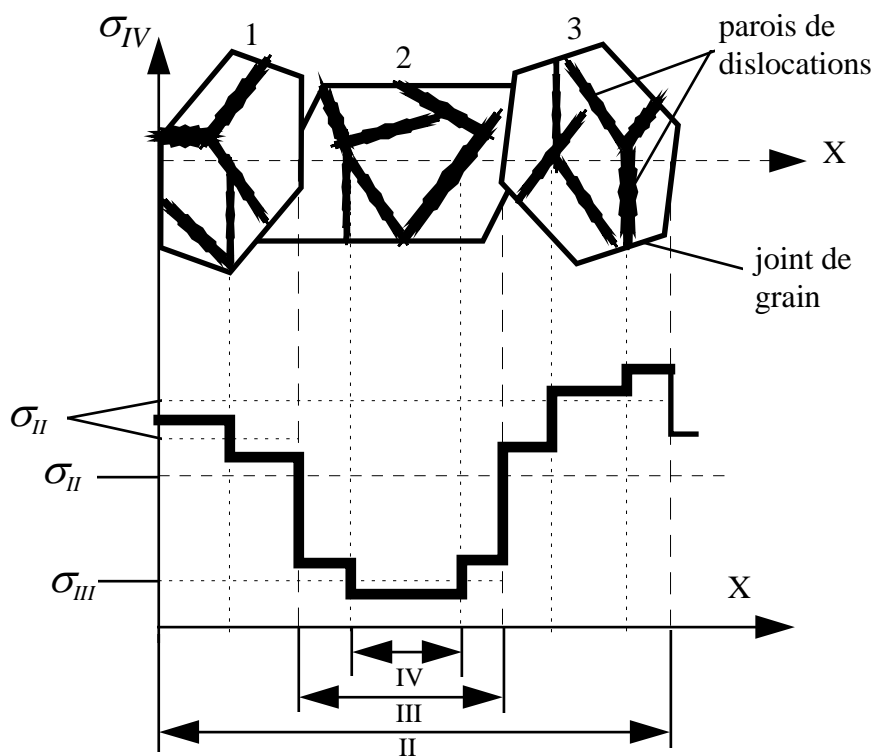


Figure 2-6. Représentation schématique des différentes échelles de contraintes.
La ligne épaisse représente la contrainte à l'échelle IV.

1^{ère} échelle (σ_I) : échelle de l'échantillon, où la contrainte moyenne doit coïncider avec la contrainte externe appliquée (nulle à l'état déchargé).

2^{ème} échelle (σ_{II}) : échelle des hétérogénéités macroscopiques induites par les procédés de mise en forme, par exemple, la localisation de déformation pendant le laminage [29], soudure [30], l'emboutissage, l'extrusion, etc. Ces contraintes concernent généralement un grand nombre de grains dans l'échantillon.

3^{ème} échelle (σ_{III}) : échelle du grain, où régit une contrainte résultant de l'orientation cristallographique et de l'environnement du grain [31].

4^{ème} échelle (σ_{IV}) : échelle caractérisant les structures de dislocations (parois, cellules, etc.) Les contraintes souvent appelées contraintes à longue portée (en anglais : *long-range internal stresses*). La nature de telles contraintes a fait l'objet de plusieurs modèles (voir par exemple [25,27,28,32,33]) car l'explication de leur apparition permet de résoudre l'énigme de la formation des structures de dislocations. Cependant, aucun modèle ne fait l'unanimité parmi les scientifiques.

5^{ème} échelle (σ_V) : échelle atomique, où les contraintes sont liées aux forces de Peierls-Nabarro qui caractérisent les liaisons interatomiques.

2.3.4.2. Contribution à l'énergie stockée

En général, les formules donnant l'énergie stockée en fonction de la densité de dislocations (par exemple équation 2-11) sont théoriquement valables quand les dislocations sont distribuées aléatoirement dans une zone de taille proche du rayon de coupure. Ceci exclue la formation des contraintes à long portée. Donc, en présence de ces contraintes, une formule plus générale doit être utilisée, comme l'équation (2-10). Autrement dit, une énergie d'interaction supplémentaire doit être associée aux contraintes résiduelles (équation 2-4). Mais, un simple calcul suffit pour se rendre compte que cette énergie ne représente pas une part significative de l'énergie stockée globale. Par exemple, l'existence d'un état de contrainte uniaxiale et uniforme de 100 MPa dans un acier de module de Young de 200 GPa, ne fait augmenter l'énergie globale que de 25 kJ/m³. Cette contribution ne constitue que quelque pour-cent de la valeur expérimentale de l'énergie stockée donnée dans la littérature (voir par exemple [34]), à savoir quelques milliers de kJ/m³. Ainsi, la contribution des contraintes résiduelles ne dépasse pas au maximum quelque pour-cent de l'énergie totale, et l'équation (2-11) peut être utilisée sans en tenir compte.

2.4. Conclusions

Les dislocations réagissent fortement avec leur environnement (autres dislocations) et leur énergie en dépend. Cet effet rend impossible la détermination de l'énergie stockée d'un ensemble de dislocations sans prendre en compte leur distribution dans la microstructure. Ceci implique une description fine de la microstructure et confirme que la mesure de la densité de dislocations n'est pas suffisante.

La prise en compte des résultats expérimentaux montre que les dislocations dans un état déformé ne peuvent pas être distribuées aléatoirement. Cette distribution est défavorable énergiquement car elle ne permet pas de restreindre la portée des déformations créées par les dislocations.

L'organisation des dislocations dans des structures plus ou moins formées doit servir à masquer les champs de déformations à longue portée. Les dipôles, les multipôles et les joints de grains de faibles désorientations devraient participer à la formation de telles structures. Les expériences révèlent leur existence et les calculs montrent la faible énergie associée à ces organisations de dislocations.

Finalement, l'équation (2-11) avec $R_e \approx \rho^{-0.5}$, la plus utilisée pour évaluer l'énergie stockée, ne permet pas de tenir compte des résultats expérimentaux sur un large domaine de déformation. Tout au long de la déformation, les dislocations choisissent des modes d'organisations différents (dipôles, multipôles, parois de dislocations à faibles désorientations...) selon leur densité et leur interaction. La portée moyenne des dislocations R_e , pour une densité de dislocations croissante, semble diminuer plus vite que la fonction $\rho^{-0.5}$,

et par conséquent, l'utilisation de l'équation (1-11) pour l'évaluation de l'énergie stockée reste controversée.

3. Mesures de l'énergie stockée

3.1. Introduction

L'énergie stockée ne constitue que quelques pourcents du travail dépensé pendant la déformation plastique [35]. Pour donner un ordre de grandeur, dans un polycristal de cuivre déformé en traction à $\varepsilon = 0,3$, l'énergie stockée mesurée par calorimétrie est d'environ 25,6 J/mol [36], ce qui est à peine suffisant pour chauffer le matériau d'un degré. Ceci est peut-être à l'origine des difficultés expérimentales de mesures et de la dispersion des résultats obtenus.

Nous allons présenter dans ce chapitre les principes des méthodes les plus utilisées pour la mesure de l'énergie stockée. Ensuite, nous allons présenter les résultats de quelques travaux dans la littérature sur l'influence de l'orientation sur cette énergie.

D'une façon générale, nous pouvons classer les différentes méthodes de mesure de l'énergie stockée dans deux groupes : les *méthodes directes* les *méthodes indirectes*.

3.2. Méthodes directes

Conformément à l'équation 1-2, nous avons :

$$E_{st} = Q + W, \quad (3-1)$$

où W est le travail mécanique utile et Q la chaleur dissipée pendant la déformation ($Q < 0$). Nous pouvons distinguer ici deux méthodes : une *non destructive* qui consiste à mesurer W et Q pendant la déformation et à en déduire E_{st} , et une autre *destructive* qui mesure directement E_{st} lors de sa libération pendant un traitement thermique à haute température.

3.2.1. Méthode directe non destructive

(Calorimétrie pendant la déformation)

Evaluation de W : pendant la déformation, les efforts mécaniques et les déplacements relatifs sont enregistrés. L'intégration des courbes $\sigma_{ij} = f(\varepsilon_{ij})$ fournit le travail mécanique selon l'équation :

$$W = \int_V \int_0^{\varepsilon_{ij}} \sigma_{ij} d\varepsilon_{ij} dV \quad (3-2)$$

Il est important de noter que seuls les efforts utiles à la déformation plastique sont à prendre en compte. C'est pourquoi, le travail de la déformation élastique de la machine ainsi que l'énergie dissipée par le frottement, sont à déduire du travail mécanique total.

La détermination de W ne pose pas de problèmes particuliers dans le cas des chargements simples (traction, compression plane ..), en revanche, quand l'état des contraintes est relativement complexe ou mal connu (laminage, extrusion), la méconnaissance de l'effort mécanique exacte s'ajoute aux problèmes de frottement, pour rendre très difficile la détermination de W . C'est pourquoi cette méthode est plus utilisée dans le cas des essais mécaniques simples.

Mesure de Q : puisque la chaleur produite par la déformation est consommée en chauffant le matériau, cette chaleur peut être calculée selon la formule :

$$Q = M \int_{T_r}^T C_p dT, \quad (3-3)$$

où M est la masse de l'échantillon, C_p la chaleur spécifique à pression constante et T_r la température de référence.

L'évaluation de la chaleur par cette équation nécessite l'absence de toute perte de chaleur par conduction, c'est-à-dire que l'échantillon ne doit pas être en contact avec un conducteur de chaleur. Nous pouvons alors imaginer les difficultés expérimentales liées à l'isolation de l'échantillon dans le cas du laminage ou de compression.

Cette méthode était prédominante jusqu'aux années cinquante [35], depuis, elle a subi un certain déclin, sans doute, du fait des difficultés expérimentales qui lui sont propres. Celles-ci sont peut-être à l'origine des valeurs de E_{st} trop élevées rencontrées dans la littérature [37]. Mais, depuis le début des années quatre-vingts, des progrès techniques importants engendrent un regain d'intérêt pour cette méthode [38].

3.2.2. Méthode directe destructive (calorimétrie après la déformation)

L'énergie stockée peut être libérée lors des traitements thermiques à haute température des matériaux déformés à froid. En effet, la restauration/recristallisation sont deux phénomènes exothermiques qui conduisent à l'élimination partielle ou totale des défauts cristallins engendrés par la déformation.

Cette méthode (calorimétrie), qui est la plus connue pour la mesure de l'énergie stockée, consiste à déterminer la quantité de chaleur dégagée lors du recuit (isotherme ou anisotherme) du matériau. Il s'agit de comparer la température de l'échantillon à celle d'un étalon neutre (échantillon standard) qui sert de référence permettant d'éliminer l'apport de chaleur externe par le four. Ainsi, l'échantillon et l'étalon (de même nature que l'échantillon) sont placés dans un four qui permet de porter l'ensemble à la température souhaitée. L'énergie stockée, dans le cas du recuit anisotherme, est évaluée par l'équation 2-3 en remplaçant T_r par la température de l'étalon. Avec cette méthode, on peut s'affranchir des difficultés expérimentales de la méthode précédente, c'est-à-dire la détermination du travail mécanique W et l'estimation des fuites de chaleur. Cette technique a connu un grand développement depuis les années cinquante [39,40] et est utilisée dans des travaux récents [41].

3.3. Méthodes indirectes

L'énergie stockée résulte de l'accumulation des défauts cristallins, notamment les dislocations, pendant la déformation plastique. Plusieurs méthodes de mesure sont basées sur la détermination de la concentration de ces défauts.

Dans le chapitre 1, nous avons montré que seules les dislocations sont considérées dans la discussion sur l'énergie stockée, or ces défauts provoquent plusieurs changements macroscopiques, ce qui permet de mettre en place différentes méthodes de mesure de leur densité dans le matériau.

Quant à l'évaluation de l'énergie stockée, non seulement la densité de dislocations doit être prise en compte, mais en plus, leur distribution y joue un rôle important (voir chapitre 1). A part la méthode d'analyse de profils de diffraction, les autres techniques indirectes ne fournissent aucun détail sur cette distribution, et par conséquent, la détermination de l'énergie stockée par ces méthodes, n'est pas une étape neutre et nécessite la considération d'hypothèses supplémentaires.

3.3.1. Analyses de l'élargissement de profils de diffraction

La déformation plastique induit un élargissement significatif des profils de diffraction, dans lequel les dislocations jouent le rôle majeur [42]. Dans cette méthode, la densité de dislocations ne peut pas être séparée de la portée moyenne de leur champ de déformation [43]. Nous ne rentrons pas dans les détails de cette méthode, le chapitre suivant lui étant consacré.

3.3.2. Densité

La variation de la densité (D) induite par la déformation plastique, bien qu'elle ne dépasse pas quelque 10^{-4} , a été signalée depuis les années trente par Maier et al. [44]. Les calculs effectués par simulation numérique [45] sur la structure du coeur de la dislocation, montrent qu'il provoque, par unité de longueur de dislocation, un changement de volume d'environ b^2 , où b est le vecteur de Burgers. Par conséquent, nous pouvons écrire :

$$\frac{\Delta D}{D} = -b^2 \rho. \quad (3-4)$$

Si la relation entre la variation de densité et la densité de dislocations semble simple, celle avec l'énergie stockée ne l'est pas (voir la revue de Bever et al. [35]). Par ailleurs, l'emploi de cette méthode nécessite des précautions « draconiennes » afin de diminuer l'erreur expérimentale sur la mesure de la densité (il faut une précision meilleure que 10^{-5}), ce qui n'est pas toujours facile. Parfois, les densités de dislocations obtenues sont difficiles à interpréter à cause de leur dispersion [46].

3.3.3. Résistivité

Les dislocations provoquent également une augmentation de la résistivité électrique. Il semble que cette augmentation est liée à la structure du coeur des dislocations et qu'elle est indépendante de l'organisation de ces dernières [47].

Dans les métaux purs, cette augmentation est proportionnelle à la densité de dislocations [48]. Le facteur de proportionnalité étant dépendant de la température, la mesure de la densité de dislocations absolue par cette technique, nécessite un « étalonnage » en fonction de la température.

3.4. Discussion des résultats de la littérature

3.4.1. Concernant la valeur absolue de l'énergie stockée

La dispersion des résultats expérimentaux présentés dans la littérature rend très difficile l'étude quantitative de l'ensemble de ces travaux sur l'énergie stockée. Ainsi, les valeurs données varient, non seulement avec la technique utilisée mais également avec le laboratoire dans lequel ces mesures ont été effectuées [35].

En général, nous pouvons constater que les valeurs de l'énergie stockée données par les méthodes de calorimétrie pendant la déformation, sont largement supérieures à celles données par calorimétrie après la déformation. Par exemple, Lugscheider et al. [49] ont réalisé des mesures par calorimétrie dans des échantillons l'aluminium de pureté 99,99 %, déformés en traction à basse température (78°K). L'énergie stockée donnée par ces auteurs pour une déformation vraie de 0,4 est d'environ 25 J/mol, alors que Welfenden et al. [50,51], par la méthode directe non destructive et pour un taux de déformation voisin ($\epsilon = 0,46$), fournissent une valeur de E_{st} d'environ 157 J/mol, c'est-à-dire six fois plus élevée que celle donnée par Lugscheider et al.

Gottstein et al. [36] ont proposé deux raisons possibles pour expliquer cet écart. La première résulte du fait que, quand E_{st} est évaluée selon l'équation 2-1, la valeur obtenue est largement influencée par la contribution des défauts ponctuels (50 à 70 % !), tandis que la mesure de la chaleur libérée pendant la recristallisation ne l'est pas. En effet, ces défauts s'annihilent dans une étape antérieure à la recristallisation. Ceci peut expliquer, en partie, les valeurs élevées de E_{st} données par la méthode directe non destructive. La deuxième raison découle du changement non négligeable de C_p pendant la recristallisation, ce qui implique que C_p dans l'équation 2-3 est fonction de la température et qu'il faut en tenir compte dans le calcul de l'intégrale dans cette équation, or ceci est rarement le cas.

Par ailleurs, en comparant les différentes techniques, les valeurs de E_{st} de quelques centaines de joules par mole [37], ce qui est souvent l'ordre de grandeur donné par la calorimétrie pendant la déformation, semblent exagérées, au moins dans les matériaux purs modérément déformés. Dans ces matériaux, les autres techniques de mesure (calorimétrie et méthodes indirectes) fournissent des valeurs qui dépassent rarement quelques dizaines de J/mol. Ceci a été confirmé dans plusieurs travaux récents : I. Baker et al. [52] dans les polycristaux de nickel laminés, Mandal et al. [53] et Liu et al. [54] dans les polycristaux de cuivres laminés.

3.4.2. Effet de l'orientation

Dans le cas des monocristaux, les différents auteurs sont d'accord sur l'influence de l'orientation sur l'énergie stockée [35,38,55]. Cependant, les conclusions de leurs travaux sont contradictoires.

Compte tenu de la dispersion des résultats, il n'est pas possible de confirmer que les polycristaux stockent plus d'énergie que les monocristaux. Gottstein et al. [36] trouvent que E_{st} est moins élevée dans les polycristaux de cuivre déformés en traction que dans les monocristaux d'orientation proches de $\langle 111 \rangle$ et de $\langle 110 \rangle$, alors que Liu et al. [54] prouvent le contraire dans le cas du cuivre. Quant à Nakada [56], il confirme qu'ils ont la même énergie dans le cas des échantillons d'aluminium déformés en compression. Toutefois, il semble, pour les grandes déformations, que l'énergie stockée dans les polycristaux dépasse celles dans les monocristaux toutes orientations confondues. Les travaux récents confirment, d'une façon générale, que l'énergie stockée augmente quand la taille de grains diminue [52,53].

Pour Gottstein et al. [36] et Steffen et al. [55], l'énergie stockée augmente quand l'orientation des monocristaux de cuivre déformés en traction change de $\langle 110 \rangle$ à $\langle 111 \rangle$, alors que pour Nakada [56] ces deux orientations conduisent à la même énergie.

D'autre part, même quand il s'agit du même auteur, les résultats ne sont pas faciles à interpréter. Ainsi, Nakada [56] trouve, pour les monocristaux d'aluminium déformés en compression, que l'orientation $\langle 100 \rangle$ conduit à une énergie largement inférieure à celle associée à l'orientation $\langle 111 \rangle$, mais dans le cas de l'argent, Nakada [56] trouve l'inverse.

Pour les trois métaux explorés, la structure cristalline est identique (cfc) et il est peu probable que la seule différence au niveau de l'énergie de faute d'empilement conduit à une telle dispersion des résultats. Ceci reflète, en général les difficultés expérimentales particulières associées à la mesure de l'énergie stockée.

3.5. Conclusion

Dans ce chapitre nous avons passé en revue les principes des différentes techniques de mesures de l'énergie stockée. Nous avons montré qu'en général, il n'est pas facile d'interpréter les résultats présentés dans la littérature sans prendre en compte des facteurs extrinsèques à l'énergie stockée comme l'effet de la technique de mesures. Souvent, les résultats des travaux expérimentaux présentés dans la littérature sont dispersés, voire parfois, contradictoires. *Les valeurs absolues de l'énergie stockée estimées dans ces travaux, caractérisent plus la technique de mesure que l'état déformé.*

Toutefois, les travaux récents réalisés avec plusieurs techniques, semblent converger vers des valeurs largement plus faibles que celles fournies dans la littérature dans les décennies passées.

Dans le cas où les mesures d'écrouissage **intragranulaires** sont nécessaires pour l'étude des mécanismes de la recristallisation, nous sommes confrontés à un contexte particulier, car les méthodes directes ne peuvent pas être utilisées. D'une part, la mesure d'énergie stockée

pendant la déformation ne fournit pas d'informations intragranulaires, et d'autre part, la calorimétrie est une technique destructive qui exclue l'étude ultérieure de la recristallisation.

Pour cette dernière raison, nous ne pouvons pas utiliser, non plus, les méthodes non directes comme la mesure de densité ou de résistivité électrique.

Comme nous pouvons le constater, la méthode des analyses de l'élargissement de profils de diffraction constitue la seule alternative possible et appropriée à nos besoins. Cette méthode est la seule à fournir la possibilité de réaliser des mesures locales de l'énergie stockée, caractérisant ainsi les hétérogénéités inter- et intragranulaires. C'est pourquoi, nous adoptons cette méthode pour notre travail et nous lui consacrons le chapitre suivant.

4. Energie stockée et diffraction des rayons X

4.1. Introduction

Après la découverte des rayons X, les scientifiques ont été surpris de constater que les matériaux fortement déformés gardaient leurs structures cristallines (révélées par les raies de Debye-Scherrer) « presque » inchangées [57]. Ce « presque » inchangé allait devenir ce que l'on appelle actuellement « les analyses de profils de diffraction ». L'élargissement de profils peut résulter de la taille des cristaux diffractants [58] et de l'hétérogénéité microscopique de déformation [59]. Du point de vue théorique, tous les défauts cristallins contribuent à l'élargissement des profils. Krivoglaz [60] a divisé l'ensemble des défauts en deux classes en fonction de la portée de leurs champs de déformations : défauts de classe I à longue portée ($\varepsilon \approx 1/r$), provoquant des perturbations cristallographiques à longue distance (exemple : dislocations, précipités cohérents, interfaces dans les matériaux multicouches, etc.) et défauts de classe II à courte portée ($\varepsilon \approx 1/r^2$) regroupant les défauts ponctuels, inclusions ou précipités, etc. Les effets des défauts sur l'élargissement sont mélangés et les séparer est difficile quand ils coexistent. Néanmoins, l'effet de la classe I est largement prépondérant devant celui de la deuxième classe, car les champs à courte distance ne contribuent qu'à l'intensité diffractée dans la partie extérieure du pic, alors que les défauts de classe I influencent tout le pic [60]. Par conséquent, étant donné que seule la partie centrale du pic est concernée par les analyses d'élargissement, nous pouvons négliger l'effet des défauts de classe II sur l'élargissement [60,61]. Si, par ailleurs, on s'intéresse aux métaux purs, cadre des études de ce mémoire, les dislocations peuvent être considérées comme les seules sources d'élargissement de déformation. C'est sur cette base que la plupart des modèles d'analyses de profils de diffraction ont été développés. Nous verrons dans ce chapitre que les approches théoriques ont évolué au fur et à mesure que les dispositifs expérimentaux étaient améliorés en résolution et en sensibilité. Nous montrerons également que l'analyse de l'élargissement de profils n'est pas seulement un moyen efficace d'évaluer la densité de dislocations, mais aussi une source d'informations concernant la distribution et l'organisation de ces dislocations.

4.2. Usage des Coefficients de Fourier

La théorie cinétique de la diffraction permet, sans hypothèse quelconque sur la nature ou la distribution des déformations résiduelles, de calculer les coefficients de Fourier obtenus par la transformée de Fourier du pic diffracté (voir annexe I) :

$$A(n) = \exp \{2\pi i \mathbf{g} \cdot (\delta \mathbf{R}_k - \delta \mathbf{R}_l)\}, \quad (4-1)$$

où n est le paramètre de Fourier, \mathbf{g} est le vecteur de diffraction et $\delta \mathbf{R}_i$ est le vecteur déplacement de l'atome (i) par rapport à sa position initiale. L'équation (4-1), implique que $A(n)$ est évalué comme une moyenne sur toutes les paires d'atomes (k, l) dont la distance $(\mathbf{R}_k - \mathbf{R}_l) \cdot \mathbf{g} / |\mathbf{g}| = n \times a$, où a est la distance de périodicité dans la direction de \mathbf{g} . Nous pouvons alors remplacer $(\delta \mathbf{R}_k - \delta \mathbf{R}_l)$ par une fonction $U(n)$ décrivant le déplacement relatif à la distance $n \times a$.

Par ailleurs, $U(n)/na$ est égale à la déformation ε_n (sur la distance $n \times a$), et l'équation (4-1) peut alors s'écrire sous la forme :

$$A(n) = \langle \exp (2\pi i g a n \varepsilon_n) \rangle, \quad (4-2)$$

Le calcul de cette moyenne doit, en effet, faire intervenir les paramètres caractérisant la microstructure de l'état déformé. Par conséquent, l'évaluation des coefficients de Fourier n'est donc pas possible sans considérer quelques hypothèses, plus au moins fortes selon les modèles, sur l'état déformé. Nous présenterons dans ce chapitre les principales approches ayant permis d'aboutir au traitement actuel de l'élargissement de profils.

4.3. Modélisation de l'élargissement de profils

4.3.1. Modèle de Warren-Averbach

Cette théorie [62] a été la première à utiliser les coefficients de Fourier pour représenter l'élargissement de pics et tenter de séparer l'effet de l'élargissement de taille de celui de la déformation.

Hypothèses

1) Il n'y a pas de raison pour qu'un pic de diffraction ne soit pas symétrique. Il faut noter que dans les années cinquante, les rayons X utilisés étaient polychromatiques ($K_{\alpha 1} + K_{\alpha 2}$), ce qui nécessitait des prétraitements comme la correction de Stocks [63], et les détecteurs utilisés comme les compteurs à scintillation [64] ne fournissaient pas une bonne résolution en (2θ). Avec de tels dispositifs expérimentaux, une éventuelle asymétrie de profils était noyée dans l'élargissement instrumental. Comme la transformée de Fourier d'un pic symétrique est réelle, les « diffractionnistes » ont longtemps ignoré la partie imaginaire des coefficients de Fourier. L'équation (4-2) peut donc être réduite à la forme :

$$A(n) = \langle \cos(2\pi g a n \varepsilon_n) \rangle, \quad (4-3)$$

2) La déformation plastique divise le matériau en domaines désorientés l'un par rapport à l'autre et ces domaines diffractent d'une façon incohérente, c'est-à-dire que chaque domaine est considéré comme un cristal indépendant, produisant ainsi un élargissement de taille (voir annexe I). Ces domaines sont divisés en colonnes de taille moyenne (dans la direction de \mathbf{g}) égale à $N \times a$. Par conséquent, la formule dans l'équation (4-3) représente l'élargissement de déformation $A_d(n)$ et un autre terme dû à la taille $A_t(n)$ est à introduire [62,65] : $A(n) = A_t(n) \times A_d(n)$. Les résultats de calculs donnent $A_t(n) = N_n/N$, où N_n est le nombre moyen par colonne de paires d'atomes dont la distance est $n \times a$. Comme on peut le constater, l'élargissement de taille est indépendant de l'ordre de diffraction (module du vecteur de diffraction).

3) Les déformations (ε_n) sont faibles et aléatoires. L'équation (4-3) peut être simplifiée par un développement limité (n petit) :

$$\ln(A(n)) = \ln(A_i(n)) - 2\pi^2 g^2 a^2 n^2 \langle \varepsilon_n^2 \rangle. \quad (4-4)$$

4) L'approximation prônée par l'hypothèse 3 (ε_n et n très faibles), n'est pas nécessaire si la distribution de ε_n est gaussienne (normale). En effet, l'équation (4-4) est toujours valable si la déformation ε_n suit une fonction de densité de probabilité normale centrée (Figure 4-7) de la forme :

$$P(\varepsilon) = \frac{1}{\sqrt{2\pi \langle \varepsilon_n^2 \rangle}} e^{-\frac{\varepsilon_n^2}{2\langle \varepsilon_n^2 \rangle}}. \quad (4-5)$$

La distribution en (4-5) est centrée afin d'imposer une déformation moyenne globale nulle. La conséquence immédiate d'une telle distribution (Figure 4-7) est que la probabilité décroît très fortement avec ε_n . Autrement dit, la distribution de la déformation résiduelle est supposée à courte portée.

Remarques

1) Désaccord expérimental avec l'hypothèse 1 : les diffractomètres à haute résolution (voir annexe II) montrent que la plupart des profils de diffraction sont asymétriques [66]. Par conséquent, la partie imaginaire des coefficients de Fourier ne peut être négligée.

2) Que signifient les domaines cohérents ? Dans une étude théorique de sous-joints de dislocations, Wilkens [67] a démontré que ce concept est difficile à concevoir dans le cas des cellules de dislocations. D'abord parce que les dislocations sont des défauts linéaires. Ensuite, parce que ces domaines sont cohérents et incohérents à la fois : pour n faible, ils diffractent d'une façon cohérente, et ne peuvent pas donner lieu à un élargissement de taille, mais pour n grand, les parois de dislocations se comportent comme des joints de grains à part entière (provoquant un élargissement de taille) [68]. Du point de vue expérimental, même avec un diffractomètre à haute résolution, l'élargissement de taille n'est mesurable qu'en dessous de quelques dixièmes de microns (voir annexe I), limite au dessus de laquelle l'effet de taille est noyé dans l'élargissement instrumental. En accord avec ce fait, la méthode de Warren-Averbach fournit des valeurs expérimentales de taille de domaines cohérents largement inférieures à taille des sous-grains observées dans la Microscopie Electronique à Transmission (MET).

3) L'élargissement de profils de diffraction induit par la déformation est essentiellement dû aux dislocations [60]. Or la fonction de distribution des déformations provoquées par des dislocations n'est pas gaussienne et tend vers une asymptote [60,69] quand ε tend vers l'infinie :

$$P(\varepsilon) \propto \frac{1}{|\varepsilon|^3}, \text{ pour } \varepsilon \text{ très grande.} \quad (4-6)$$

Ceci est évidemment en contradiction avec l'équation (4-5) (Figure 4-7) et par conséquent, cette distribution ne semble pas appropriée pour la description de la déformation plastique.

4) Cette méthode permet d'évaluer la moyenne du carré des déformations et la taille des domaines cohérents. En revanche, pour l'évaluation de la densité et du rayon de coupure des

dislocations, paramètres nécessaires pour le calcul de l'énergie stockée, il faut considérer d'autres modèles supplémentaires [70,71].

5) Le modèle de Warren-Averbach, malgré les remarques précédentes, continue à être utilisé [72,73] pour l'exploration de l'état déformé, car il peut présenter, quelquefois, une méthode efficace et simple pour la séparation des deux élargissements. Toutefois, les travaux d'Ungar [74] ont montré qu'il est nécessaire pour l'application de ces analyses, de prendre en compte le contraste des dislocations sur l'élargissement de profils.

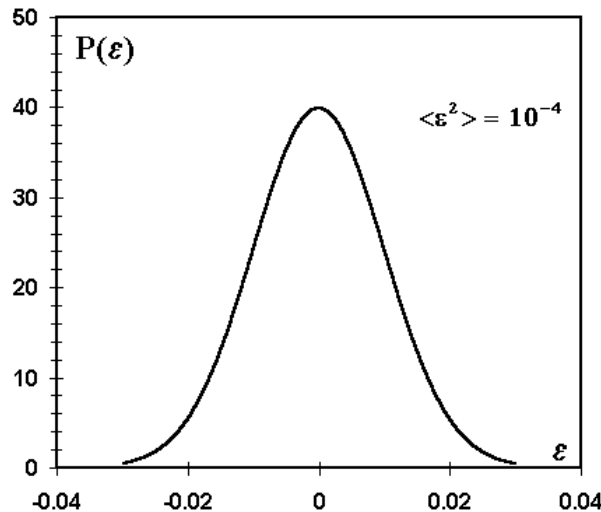


Figure 4-7. Distribution normale (gaussienne) centrée de variance $\langle \epsilon^2 \rangle = 10^{-4}$.

6) Dans la même philosophie de raisonnement, Berkum et al. [75] proposent d'autres développements afin d'intégrer les résultats expérimentaux qui n'étaient pas en accord avec le modèle de Warren-Averbach.

4.3.2. Modèle de Krivoglaz-Ryaboshapka

Ce modèle [76] a été le premier à prôner un aspect statistique pour la distribution des dislocations et à prendre le champ des déformations des dislocations comme base de calculs des déplacements atomiques dans le cristal. Comme on peut le deviner, il fallait commencer par la distribution la plus simple : la distribution aléatoire. La définition du système est la même que celle présentée dans le chapitre 1.3.3.4 (Figure 4-8). Si le déplacement $\delta \mathbf{R}_k$ est provoqué seulement par les dislocations, nous pouvons alors écrire :

$$\delta \mathbf{R}_k = \sum_d B(d) \mathbf{u}(d, k), \quad (4-7)$$

où $B(d)$ est une fonction binaire valant 1 ou 0 selon que le site (d) est occupé par une dislocation ou non et $\mathbf{u}(d, k)$ est le déplacement d'un atome dans le site k provoqué par une dislocation occupant le site (d). L'équation (4-1), peut donc s'écrire :

$$A(n) = \exp \left\{ 2\pi i \mathbf{g} \sum_d B(d) [\mathbf{u}(d, k) - \mathbf{u}(d, l)] \right\}. \quad (4-8)$$

Hypothèses

- 1) Pour simplifier les calculs, on considère un ensemble de dislocations vis dans un milieu élastique isotrope.
- 2) La distribution des dislocations est aléatoire, ce qui revient à supposer une probabilité de présence des dislocations constante dans tous les sites.
- 3) Le nombre de dislocations N est très élevé.

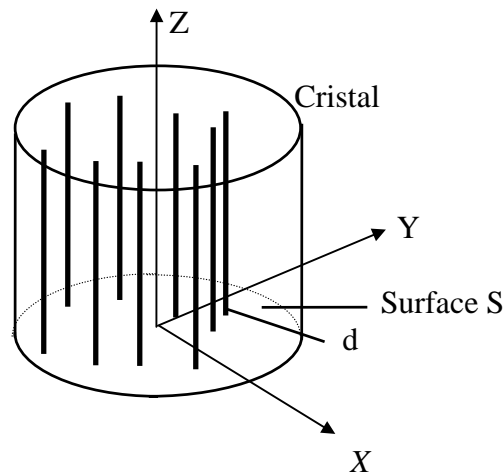


Figure 4-8. Distribution aléatoire de N dislocations parallèles à l'axe du cylindre.

- 4) On effectue un développement limité en n , donc le domaine de validité est restreint à n petit.
- 5) La partie imaginaire de $A(n)$ est négligeable.

Les résultats des calculs donnent l'expression suivante de $A(n)$:

$$\ln [A(n)] = -\frac{\rho}{8\pi} (gb)^2 n^2 \ln \frac{2\pi R}{|gb| n}, \quad (4-9)$$

où ρ est la densité de dislocations égale à $\langle B(d) \rangle / h^2$ (h est la distance entre les sites dans le plan S) et R est la taille du cristal.

Remarques

- 1) Dans (4-9) il y a un seul terme, celui-ci contenant le vecteur de diffraction \mathbf{g} . C'est-à-dire qu'il n'y pas de terme relié à un effet de taille. Par conséquent, contrairement à la prévision du modèle de Warren-Averbach, les dislocations ne provoquent pas d'élargissement de taille.

2) Les coefficients $A(n)$ dépendent d'une façon logarithmique de la taille du cristal R . Ce résultat est la conséquence directe du mode de distribution aléatoire dans lequel la portée des dislocations s'étend sur tout le cristal [77,78]. Cette distribution, comme on l'a vu dans le chapitre 1.3.3.4, ne peut pas présenter un mode réaliste d'organisation de dislocations, car l'énergie stockée associée à cette distribution diverge avec la taille du cristal.

3) Selon Wilkens [68], les coefficients de Fourier donnés dans (4-9) conduisent à une distribution gaussienne de l'intensité, or une forme gaussienne du profil ne peut être la réponse totale dans un pic de diffraction (voir équation 4-6).

4.3.3. Théorie de Wilkens - Distribution Aléatoire Restreinte

Pendant une trentaine d'années, Wilkens a largement contribué aux développements des différents aspects de l'énergie stockée et des analyses de profils de diffraction. Il a également critiqué [68] et montré les domaines de validité des différents modèles antérieurs. En évitant l'aspect purement aléatoire de la distribution de dislocations, Wilkens a introduit la notion de distribution aléatoire restreinte [78,79] (voir chapitre 1.3.3.5).

Hypothèses

1) Wilkens considère, comme dans les modèles précédents, que les profils de diffraction sont symétriques ($A(n)$ est réel), ainsi l'expression de départ pour $A(n)$ est la même que celle donnée dans l'équation (4-3). En revanche, Wilkens choisit d'évaluer ε_n à partir du tenseur des déformations locales selon l'équation :

$$\varepsilon_n = \frac{1}{n} \int_{-\frac{n}{2}}^{\frac{n}{2}} \varepsilon_N(r+x) dx, \quad (4-10)$$

où x est une longueur parallèle à \mathbf{g} et ε_N est la composante normale des déformations parallèle à \mathbf{g} : $\varepsilon_N(x) = \mathbf{g} \cdot \hat{\mathbf{E}}(x) \cdot \mathbf{g} / g^2$, où $\hat{\mathbf{E}}(x)$ est le tenseur des déformations en x induites par l'ensemble des dislocations.

2) A travers la distribution aléatoire restreinte, il va de soi que chaque zone de distribution aléatoire de taille L (voir chapitre 1.3.3.5) contient au moins une dislocation. Ceci revient à supposer que le paramètre d'écrantage ***M doit être supérieur ou égal à 1*** [68], et par conséquent, les profils révélant un paramètre $M \ll 1$ ne peuvent pas être traités dans le cadre de ce modèle.

3) La suite des calculs est basée sur le développement limité de (4-3) et aboutit, en considérant uniquement le premier terme, à la formule suivante :

$$\ln [A(n)] \cong -\frac{\pi}{2} g^2 b^2 n^2 C \rho \left[0.36 + \ln \frac{R_e}{n} + C' \right], \quad (4-11)$$

avec :

$$C' = \ln \frac{2}{|(g \cdot b) \sin \Phi|}, \quad (4-12)$$

où R_e est le rayon de coupure ($R_e \approx L$, voir chapitre 1) et ϕ l'angle entre \mathbf{g} et \mathbf{l} (le vecteur ligne de dislocations). On voit apparaître, pour la première fois, la notion d'un facteur géométrique C qui traduit le contraste du système de dislocations sur la réflexion de Bragg associée à \mathbf{g} . Ce facteur, qui sera abordé plus tard dans ce chapitre, a permis à Wilkens [79] de généraliser le traitement ci-dessus sur plusieurs systèmes de dislocations. Cette généralisation s'effectue par l'introduction d'un facteur géométrique moyen défini par l'équation :

$$C = \frac{1}{k} \sum_k C_k, \quad (4-13)$$

où C_k est le contraste du système (k). Faire la moyenne arithmétique de C_k conduit à une densité de dislocations ρ' différente de la densité réelle ($\rho = \sum \rho_k$) :

$$\rho' = \frac{1}{C} \sum_k C_k \rho_k, \quad (4-14)$$

où ρ_k est la densité des dislocations du système (k).

Remarques

1) Malgré le bon accord avec les résultats expérimentaux [80], la distribution aléatoire restreinte reste pour le moins ambiguë, car il est difficile de relier les paramètres de cette distribution avec les caractéristiques réelles des microstructures expérimentales. Ce point a été signalé par Wilkens lui-même [68] : « ...*This agreement is hard to explain as being only fortuitous and it is surprising even to the present author.* »

2) Dans ce modèle, on voit pour la première fois l'aspect géométrique du contraste des dislocations (facteur C) séparé des aspects reliés à la distribution des dislocations.

3) La méthode de généralisation sur plusieurs systèmes proposée par Wilkens [79], en considérant la moyenne arithmétique des contrastes, n'est pas correcte. Car, à l'exception du cas où ρ_k est une constante indépendante de k , elle ne permet pas d'accéder à la vraie densité de dislocations totale ($\rho \neq \rho'$). Nous verrons dans le modèle suivant une méthode plus appropriée.

4) Ce modèle, comme ceux précédents, ne permet pas de tenir compte des profils asymétriques observés expérimentalement [66].

5) L'hypothèse ($M \geq 0.5$) restreint le champ de validité du modèle et exclue l'application de l'équation (4-11) pour décrire, par exemple, les Structures de Dislocations à Faible Energie (LEDS) [81].

6) Selon Wilkens [79], la forme du profil, à densité de dislocations constante, change en fonction du paramètre M qui caractérise la distribution des dislocations. Il a également montré que la forme « gaussienne » du profil du pic, supposée par Warren-Averbach [62,65] et Krivoglaz-Ryaboshapka [60,76], n'est possible que si M tend vers l'infini (cas de la distribution aléatoire). Ce résultat implique que les formes des profils de diffraction sont

fonction de la densité et de la distribution des dislocations. Ainsi, l'analyse des profils de diffraction peut être considérée parmi les rares techniques expérimentales non destructives susceptibles de fournir d'importantes informations sur la microstructure.

4.3.4. Modèle de Groma-Ungar-Wilkens

Avec la mise au point d'un diffractomètre à haute résolution par Ungar et al. [82], l'élargissement instrumental (voir annexe II) a pu être réduit à un niveau négligeable par rapport à celui induit par les dislocations. Une telle performance a été récompensée par la découverte des profils asymétriques de diffraction. Contrairement aux idées répandues, les profils de diffraction sont, en général, asymétriques. Ceci implique que la partie complexe des coefficients de Fourier ne peut être négligée. Ainsi, le modèle de Groma-Ungar-Wilkens [83,84] a été développé dans un contexte général permettant de tenir compte de l'asymétrie des profils en proposant une distribution de dislocations avec différentes corrélations.

Hypothèses et développements

Le système de dislocations choisi est identique à celui présenté antérieurement (Figure 4-8). La distribution des dislocations est décrite au moyen de deux sortes de corrélations.

a) **Fonctions de corrélation primaire** à une « particule » $w_+(d)$ (et $w_-(d)$) : fonction de distribution de probabilité de trouver une dislocation (+b) (et -b) au site (d). Ainsi, la densité de dislocations locale dans une zone de taille s autour du point r peut être définie par :

$$\rho(r) = \frac{N}{s} \int_s [w_+(r+z) + w_-(r+z)] d^2z. \quad (4-15)$$

Une fonction de polarisation locale $P(r)$ est définie par l'équation :

$$P(r) = \frac{N}{s} \int_s [w_+(r+z) - w_-(r+z)] z d^2z. \quad (4-16)$$

Une autre variable très utile appelée densité de dislocation apparente $\rho^*(r)$ est définie de la façon suivante :

$$\rho^*(r) = C \rho(r), \quad (4-17)$$

où C est le même facteur géométrique de contraste de dislocations introduit par Wilkens.

b) **Fonctions de corrélation secondaire** à deux « particules » $w_{++}(d_1, d_2)$: fonction de distribution de probabilité de trouver une dislocation (+b) au site (d_2) en même temps qu'une dislocation (+b) occupe le site (d_1). On peut définir d'une façon analogue les fonctions $w_+(d_1, d_2)$, $w_{-+}(d_1, d_2)$ et $w_{--}(d_1, d_2)$.

Après des transformations mathématiques assez fastidieuses, la partie réelle de coefficients de Fourier pour n faible ($n \times a \ll \text{rayon de coupure } R_e$) peut être donnée par la formule :

$$Re [\ln A(n)] = -\eta \langle \rho^* \rangle n^2 \ln \frac{R_{eff}}{n} + \frac{\eta^2}{2} \left[\langle \rho^{*2} \rangle - \langle \rho^* \rangle^2 \right] n^4 \ln \frac{R_2}{n} \ln \frac{R_3}{n}, \quad (4-18)$$

et la partie imaginaire :

$$Im [\ln A(n)] = -\eta \langle S\rho^* \rangle n^3 \ln \frac{R_1}{n} - \frac{\eta^2}{2} \left[\langle S\rho^{*2} \rangle - 2\langle \rho^* \rangle \langle S\rho^* \rangle^2 \right] n^5 \ln \frac{R_4}{n} \ln \frac{R_5}{n}, \quad (4-19)$$

où $\eta = \pi/2 g^2 b^2$, ρ^* est la densité apparente de dislocations, $[\langle \rho^{*2} \rangle - \langle \rho^* \rangle^2]$ est la fluctuation de la densité de dislocations symbolisée par $\Delta\rho^2$ et R_{eff} le rayon de coupure effectif, qui est proportionnel au vrai rayon de coupure des dislocations R_e . Dans la partie imaginaire, $S(r)$ est une fonction caractérisant la polarisation de la structure de dislocations, $\langle S\rho^* \rangle$ est interprété comme le moment dipolaire de la distribution de dislocations (noté P_o) et $[\langle S\rho^{*2} \rangle - 2\langle \rho^* \rangle \langle S\rho^* \rangle^2]$, noté P_1 , représente la fluctuation du paramètre P_o . Les paramètres R_i sont des constantes mathématiques dont la signification physique n'a pas été donnée dans le modèle. Les équations (4-18) et (4-19) peuvent être réécrites sous une forme plus simple (pour la simplicité, le signe de la moyenne $\langle \dots \rangle$ a été supprimé) :

$$\begin{aligned} \ln A(n) = & -\eta \rho^* n^2 \ln \frac{R_{eff}}{n} + \frac{\eta^2}{2} \Delta\rho^{*2} n^4 \ln \frac{R_2}{n} \ln \frac{R_3}{n} \\ & - iP_o n^3 \ln \frac{R_1}{n} - \frac{i}{2} P_1 n^5 \ln \frac{R_4}{n} \ln \frac{R_5}{n} \end{aligned} \quad (4-20)$$

Remarques

1) Les analyses spectrales d'un profil de pic de diffraction fournissent quatre paramètres : ρ^* , $\Delta\rho^2$, P_o et P_1 , qui représentent quatre degrés de liberté possibles pour la distribution des dislocations. Les modèles antérieurs ne permettent pas d'en avoir plus que deux (ρ et R).

2) Comme la partie imaginaire ne produit pas d'élargissement, ce dernier résulte seulement de la densité moyenne de dislocations et de sa fluctuation.

3) Le modèle explique l'existence d'une partie imaginaire dans les coefficients de Fourier par la polarisation de la structure des dislocations. Par conséquent, la déformation plastique, bien que provoquant toujours un élargissement, ne conduit à une asymétrie que si le moment dipolaire résultant des dislocations est non nul. Ceci est en accord avec l'étude théorique d'une population de dipôles de dislocations vis réalisée quatre ans plus tôt par Gaal [85].

4) La polarisation des structures de dislocations étant suffisante pour expliquer l'asymétrie de profils, il n'y a donc pas besoin a priori d'ajouter des hypothèses supplémentaires concernant la distribution spécifique des dipôles de dislocations, comme dans le cas des modèles composites de Mughrabi [86] et Argon et al. [87].

5) La comparaison avec d'autres techniques expérimentales (surtout le MET) révèle un accord satisfaisant [88,89].

6) Récemment, Groma [90] a démontré que les équations précédentes sont valables seulement quand les fonctions de corrélation secondaires sont faibles. Par conséquent, les

microstructures ayant une forte organisation de dislocations ne peuvent pas être décrites par ce modèle.

4.4. Contraste de dislocations - facteur géométrique

L'élargissement d'un profil dépend des seules composantes parallèles au vecteur de diffraction \mathbf{g} des déplacements atomiques induits par les dislocations (voir annexe I). De ce fait, la densité de dislocations mesurée directement à partir du profil ρ^* , ne peut être qu'apparente et une correction est nécessaire pour la détermination de la « vraie » densité. Aucun modèle ne peut prétendre être proche de la réalité s'il ne prend pas en compte l'aspect géométrique du système. Par exemple, quand le vecteur de diffraction est parallèle aux dislocations d'un système donné, ce dernier ne peut contribuer à l'élargissement du profil. Cet aspect n'est pas pris en compte dans le modèle de Warren-Averbach. L'effet de la configuration géométrique est représenté dans les deux derniers modèles que l'on a vus par le facteur C qui exprime la relation entre le vecteur de Burgers (\mathbf{b}), le vecteur ligne (\mathbf{l}) et le vecteur de diffraction (\mathbf{g}).

4.4.1. Facteur géométrique d'un système de dislocations

Bien que Wilkens [79] soit le premier à isoler l'effet géométrique sur l'élargissement de profils, une définition claire n'a été donnée que récemment par Ungar [91]. Dans un repère cartésien (x_1, x_2, x_3) , le facteur géométrique associé à une dislocation droite parallèle à l'axe x_3 , dont le vecteur de Burgers est \mathbf{b} , est donné par la formule :

$$C = \frac{1}{\pi} \int_0^{2\pi} K^2(\varphi) d\varphi, \quad (4-21)$$

où $K(\varphi)$ est une fonction trigonométrique qui peut être définie d'une façon plus simple dans le repère cylindrique (r, φ, x_3) :

$$K(\varphi) = \sum_{i=1}^3 \sum_{j=1}^2 \gamma_i \gamma_j B_{ij}(\varphi), \quad i = 1, 2, 3 \text{ et } j = 1, 2. \quad (4-22)$$

γ_i est le cosinus directeur de \mathbf{g} dans le repère cartésien, $B_{ij}(\varphi)$ est une fonction qui prend en compte d'une façon explicite le champ des déplacements associés à la dislocation :

$$B_{ij}(\varphi) = \frac{2\pi r}{b} \frac{\delta u_i(r, \varphi)}{\delta x_j}, \quad (4-23)$$

$u_i(r, \varphi)$ représente le déplacement parallèle à l'axe x_i , à une distance r de la dislocation. Les premiers calculs ont été effectués par Wilkens [79] dans le cas le plus simple, cas de l'élasticité isotrope. Ainsi, des formules analytiques ont pu être trouvées. Pour la dislocation vis :

$$C = \sin^2(\phi) \cos^2(\phi), \quad (4-24)$$

et pour la dislocation coin :

$$C = \frac{1}{8(1-\nu)^2} \left[1 - 4\nu + 8\nu^2 + 4(1-2\nu)\cos^2\gamma \right] \sin^4\Phi, \quad (4-25)$$

où ϕ est l'angle entre \mathbf{g} et \mathbf{l} , ν est le coefficient de Poisson et γ est l'angle défini par la relation :

$$(\mathbf{g} \times \mathbf{l}) \cdot \mathbf{b} = g \cdot l \cdot b \sin\phi \sin\gamma. \quad (4-26)$$

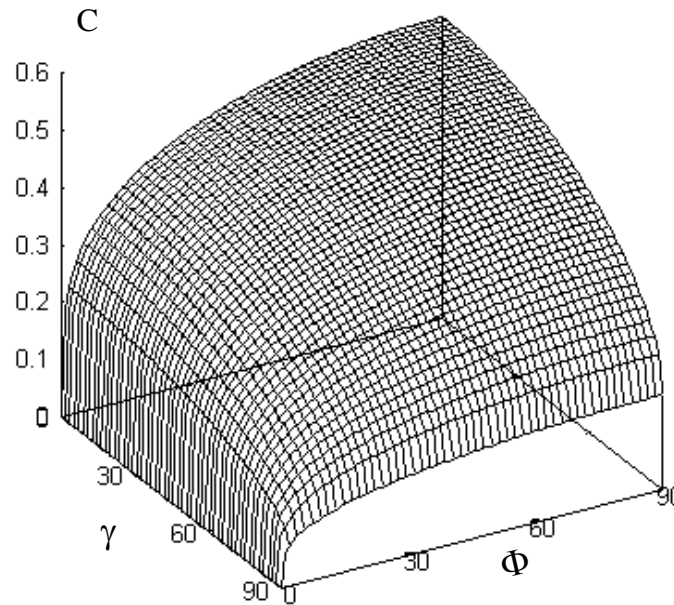


Figure 4-9. Variation du contraste géométrique avec les angles γ et ϕ .

Pour l'aluminium, considéré comme isotrope avec $\nu = 0.345$, nous pouvons simplifier la formule (4-24) par l'équation : $C = (0.166 + 0.36 \cos^2\gamma) \sin^4\phi$. Une représentation tridimensionnelle de cette fonction permet de mieux visualiser la variation de C (Figure 4-9). Nous pouvons constater qu'un système de dislocations peut avoir un contraste nul, c'est-à-dire ne provoquant aucun élargissement, si le vecteur de diffraction est parallèle aux dislocations ($\mathbf{g} \times \mathbf{l} = 0$). Ceci montre l'importance de la détermination du facteur géométrique sur l'évaluation de la densité de dislocations.

Si l'évaluation de C se fait directement par les formules (4-24) et (4-25) pour les matériaux élastiquement isotropes, il n'en est pas ainsi pour les matériaux présentant une forte anisotropie élastique. Wilkens [92] a évalué numériquement ce facteur pour les réflexions $\{200\}$ et $\{111\}$ du cuivre. Il a montré que la prise en compte de l'anisotropie élastique contribue à une variation significative des valeurs de C . Kusel et Klimanek [93,94,95] ont effectué un travail similaire pour les métaux hexagonaux et ont conclu que l'effet de l'anisotropie se limite à apporter des faibles corrections. Récemment, Borbely et al. [96] ont présenté une procédure d'évaluation numérique systématique. Leur travail a permis d'une part

de confirmer les résultats de Wilkens et d'autre part de constater que la tendance de variation de C en fonction des trois variables ($\mathbf{g}, \mathbf{b}, \mathbf{l}$), donnée avec ou sans l'approximation d'isotropie, est pratiquement la même.

4.4.2. Contraste de plusieurs systèmes de dislocations.

La généralisation des formules précédentes, basées sur l'effet d'un seul système de dislocations (système s défini par \mathbf{b} et \mathbf{l}) à un nombre N de systèmes, peut être effectuée de la façon suivante : d'une part, nous pouvons écrire :

$$\rho = \sum_{s=1}^N \rho_s , \quad (4-27)$$

et d'autre part :

$$\rho^* = \sum_{s=1}^N \rho_s^* . \quad (4-28)$$

Par conséquent, nous pouvons définir un facteur géométrique moyen $C = \rho^*/\rho$. Comme nous pouvons le constater, c'est un cercle vicieux : pour calculer la densité de dislocations réelle, il faut connaître le facteur géométrique moyen C , or pour calculer ce dernier, il faut connaître les densités de dislocations réelles sur chaque système !

La première généralisation, qui a été donnée par Wilkens [79] (voir paragraphe 4.3.3), consiste à prendre la moyenne arithmétique des facteurs associés à chaque système. Cette méthode ne permet de calculer la vraie densité ρ que si les densités de dislocations sur chaque système est la même.

Plus tard, Ungar et al. [84] ont utilisé une moyenne de C_s pondérée par le « poids » de chaque système P_s , c'est-à-dire le rapport entre la densité de dislocations sur le système en question et la densité totale :

$$C = \sum_{s=1}^N P_s C_s , \quad \text{avec } P_s = \frac{\rho_s}{\rho} . \quad (4-29)$$

En faisant des hypothèses sur le poids de chaque système, cette méthode permet sans approximation, de calculer la densité de dislocations réelle dans l'échantillon.

Pour les microstructures présentant une population similaire des différents systèmes de glissement, nous pouvons calculer C en considérant l'approximation $P_s = P = C^{te}$. Dans le cas des métaux de structure cfc, du fait de la présence de 12 systèmes, P est égale à 1/12. Les valeurs de C , ainsi calculées, deviennent fonction du type de la famille de plans diffractant, c'est-à-dire que C est fonction de $\{hkl\}$ et non pas de (hkl) . Ungar et Tichy [97] ont montré que ces valeurs peuvent être dérivées directement de la symétrie cristallographique de la famille $\{hkl\}$ en question.

4.5. Conclusions

Dans ce chapitre, nous avons montré le lien fondamental entre l'élargissement de profils de diffraction et l'énergie stockée. Les principales approches des analyses de l'élargissement ont été présentées et critiquées. Le modèle de Warren-Averbach, qui a introduit l'utilisation des coefficients de Fourier pour l'étude de l'élargissement, relie ce dernier à la moyenne des déformations au carré $\langle \varepsilon^2 \rangle$ et à l'effet de taille induit par la déformation. Nous avons montré la difficulté de relier ce genre d'analyses aux microstructures observées expérimentalement. Krivoglaz et Ryabochapka, après avoir démontré que les dislocations ne conduisent pas à un élargissement de taille, ont été les premiers à étudier directement l'effet des dislocations. Wilkens, dans ses nombreuses études critiques, a mis l'accent sur l'importance de la distribution des dislocations sur l'élargissement. Enfin, le modèle de Groma-Ungar-Wilkens, qui décrit l'organisation des dislocations par différentes corrélations, présente une approche générale et efficace pour l'analyse de l'élargissement de profils. Ce modèle peut fournir une description satisfaisante de la structure des dislocations sans être alourdi par de nombreuses hypothèses. C'est pourquoi, il a été retenu pour la caractérisation de l'état d'écrouissage dans le travail expérimental présenté dans ce mémoire.

5. Démarche expérimentale

5.1. Introduction

L'énergie stockée a toujours été considérée comme la force motrice de la recristallisation. Cette énergie dépend de tous les paramètres contrôlant la déformation plastique [98] : le taux et le mode de déformation, la nature et l'orientation cristallographique, l'énergie de faute d'empilement, les impuretés, la taille de grains, la texture et la microstructure initiales, etc. Il est souvent difficile d'élaborer une démarche expérimentale tenant compte de tous ces paramètres pour identifier le rôle de l'hétérogénéité de l'écroutissage (différence d'énergie stockée) sur les mécanismes de recristallisation. C'est pourquoi, un grand nombre de travaux rencontrés dans la littérature a été consacré aux études des cas simples présentant un intérêt plutôt fondamental. Dans la plupart des cas, les choix sont souvent déterminés par le compromis entre l'apport scientifique et la disponibilité des dispositifs expérimentaux nécessaires. Dans ce chapitre, nous allons présenter les moyens dont nous disposons pour la caractérisation de la microstructure et les possibilités offertes pour le choix des matériaux, ce qui conditionne la méthode adoptée pour la préparation et le recuit des échantillons. Tout ceci va aider à la mise en place de la démarche expérimentale générale suivie au long de ce travail.

5.2. Moyens de caractérisation

5.2.1. Diffractomètre à haute résolution

La mise au point d'un diffractomètre à haute résolution au laboratoire permet d'effectuer des mesures *non destructives* de l'énergie stockée dans les multicristaux (une description de cet appareil est présentée dans l'annexe II). La haute résolution signifie ici que l'élargissement instrumental est négligeable par rapport à celui induit par les dislocations. Cette performance expérimentale a été le résultat de longs efforts ayant abouti à des progrès techniques importants : (i) la compensation de l'élargissement spectral de la raie $K_{\alpha 1}$ [99], (ii) l'élimination de la raie $K_{\alpha 2}$ par un jeu de fentes verticales [100], (iii) l'usage des monochromateurs courbes et (iv) l'emploi des détecteurs linéaires à haute résolution permettant de travailler loin des limites de saturation.

Cependant, l'utilisation d'un tel diffractomètre pose le problème du temps de l'acquisition. En effet, bien que le monochromateur courbe permet de focaliser le faisceau dans le plan vertical, la qualité de rayonnement nécessaire pour la haute résolution conduit inévitablement à une diminution sensible de l'intensité incidente I_0 . Ainsi, la chute du rapport *signal/bruit*, qui traduit la qualité de l'enregistrement du profil, exclut la possibilité d'effectuer des mesures sur les polycristaux et sur les monocristaux fortement déformés.

Le matériel associé

- 1) **Source de rayons X** : tube scellé d'anticathode de Cobalt (AEG-SEIFERT) à foyer fin $0.04 \times 8 \text{ mm}^2$.
- 2) **Monochromateur** : monocristal courbe de germanium (fabriqué par T. Ungar) et utilisé avec la réflexion {440}.
- 3) **Porte-échantillon** : goniomètre à quatre cercles manuel (conçu au laboratoire). L'utilisation du goniomètre est indispensable pour les mesures de profils, car, dans un contexte de diffraction par un monocristal, l'échantillon doit être mis en position de diffraction, est donnée par la construction d'Ewald (Figure 5-10). Dans cette figure, la sphère de réflexion passe par le centre du réseau réciproque (0,0,0) et son rayon est égal à $(1/\lambda)$. Cette sphère se réduit à un cercle de diffraction de même rayon dans le plan horizontal si le détecteur est placé dans ce plan. Pour qu'un noeud du réseau réciproque (hkl) puisse donner lieu à une réflexion (hkl), il faut donc que ce noeud soit situé sur le cercle. Autrement dit, pour faire diffracter la famille de plans (hkl), il faut disposer de deux rotations indépendantes pour pouvoir ramener le noeud correspondant sur le cercle. Les mesures d'orientation par EBSD (voir ci-après) nous permettent de calculer les deux angles de rotation correspondants.

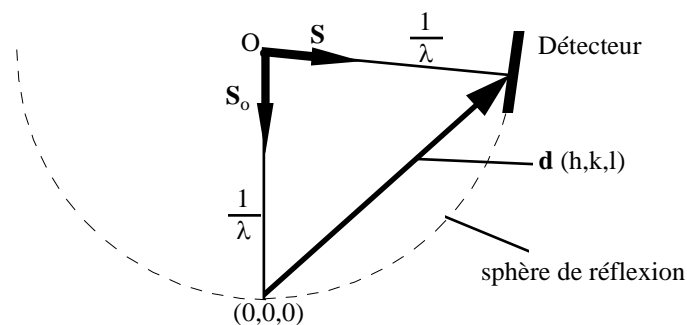


Figure 5-10. Construction d'Ewald. Le noeud (hkl) est associé à une réflexion s'il est situé sur le cercle de réflexion. S_0 et S sont les vecteurs unitaires des faisceaux incident et réfléchi.

- 4) **Détection des rayons X** : détecteur (CPS 120-INEL) linéaire courbe de rayon $R = 250 \text{ mm}$ et de résolution physique de $64 \times 2 \text{ } \mu\text{m}$. Etant donnée la distance fixée à 1000 mm entre l'échantillon et le détecteur, la résolution angulaire dans l'échelle (2θ) est de 0.00367° . Une carte d'acquisition installée dans un PC permet de communiquer avec le multicanal (INEL). Enfin, la conversion de chaque mesure de profil en fichier ASCII est assurée par un logiciel approprié.

5.2.2. Rayonnement synchrotron (ESRF)

Les caractéristiques de ce rayonnement sont décrites dans l'annexe II. Le travail dans la ligne ID15A du Synchrotron de Grenoble (ESRF : European Synchrotron Radiation Facilities), offre les avantages suivants.

1) La haute intensité du rayonnement permet de réduire la taille du spot du faisceau, et donc d'étudier les hétérogénéités à une échelle inférieure à celle accessible au laboratoire. Ainsi, nous avons pu explorer les voisinages des joints de grains et quantifier l'écrouissage intergranulaire.

2) La possibilité de choisir des rayons X de haute énergie permet de mesurer les profils de diffraction en transmission. Les plans concernés dans cette technique ne peuvent pas être étudiés en réflexion (technique utilisée avec les sources de rayons X classiques). Par conséquent, la diffraction en transmission constitue une nouvelle source d'informations.

3) Le deuxième avantage de la transmission est que les informations obtenues caractérisent le volume de l'échantillon, contrairement celles donnée en réflexion qui ne concernent que la couche de la surface à quelques micromètres en profondeur. Nous pouvons, ainsi, vérifier la validité de nos mesures au laboratoire et leur représentativité de l'état déformé.

Malgré les performances citées ci-dessus, le bruit de fond élevé nuit à la qualité des profils mesurés et rend les analyses de l'élargissement relativement délicates.

5.2.3. Microscopies électroniques

La Microscopie Electronique à Balayage (de marque *LEO*) et à Transmission (de marque *PHILIPS 100 kV*) sont deux techniques indispensables pour l'exploration de la microstructure. Différents types d'informations peuvent être obtenus grâce aux multiples applications développées autour de cette technique :

- 1) **MEB - électrons secondaires** : morphologie de la surface,
- 2) **MEB - électrons rétrodiffusés** : contraste de phase, désorientations locales (mosaïcité),
- 3) **MEB - four électrique à conduction** : recuits in situ,
- 4) **MEB - équipement TSL** : Electron Back Scattering Diffraction (**EBSD**) avec la possibilité d'obtenir des micrographies d'orientation automatiques (Orientation Imaging Mapping),
- 5) **MET - clichés de diffraction** : orientation cristallographique,
- 6) **MET - application classique** : structures et organisations des dislocations.

Par ailleurs, l'utilisation de la microscopie électronique pose la problématique d'échelle. Les informations données par cette technique expérimentale, qui opère sur une échelle microscopique (typiquement de quelques dizaines de microns), ne sont représentatives de l'état déformé qui si le matériau ne présente pas d'hétérogénéité aux échelles plus élevées. De plus, faire le lien avec les résultats des analyses de l'élargissement de profils implique également une certaine homogénéité à l'échelle mésoscopique, échelle typique de diffraction (quelques centaines de microns).

5.3. Echantillons

5.3.1. Matériau

La caractérisation de l'écroutissage par le diffractomètre à haute résolution et le caractère fondamental du sujet de la thèse ont limité le choix du matériau pour les raisons suivantes.

- a) Afin de conserver une intensité de rayonnement raisonnable (rapport signal/bruit satisfaisant), le matériau doit être constitué de gros grains (mono- ou multicristaux).
- b) Les valeurs du facteur géométrique de contraste ne sont connues que pour quelques métaux : le cuivre et les métaux élastiquement isotropes (voir chapitre 3). Le matériau choisi doit faire partie de cet ensemble.
- c) Les différents modèles développés autour de l'élargissement de profils de diffraction sont limités au seul effet des dislocations, en l'absence de fortes contraintes internes. Par conséquent, il est difficile d'appliquer de tels modèles pour la description des matériaux dont les microstructures révèlent une forte localisation de la déformation plastique (microbandes de cisaillement, bandes de déformation...).

Compte tenu des remarques précédentes, **le cuivre** (mon- et multicristallin) se présente comme le matériau le plus approprié. Celui-ci est par ailleurs, assez connu dans le domaine de la diffraction ; il a servi comme matériau modèle pour la mise en place de la technique de diffraction à haute résolution [101,102]. Enfin, l'élaboration du cuivre monocristallin est une technique fréquemment pratiquée au laboratoire. Les lingots sont fabriqués par la procédure de Bridgman à partir du cuivre massif électrolytique de pureté commerciale 99.9% (correspond à la désignation ISO : Cu-ETP de marque LAGICA). Cette procédure conduit à une purification du cuivre pendant la solidification par la migration des impuretés vers l'extrémité des lingots. Cette extrémité est éliminée à la fin de la solidification, avant la préparation des échantillons. Nous estimons la pureté finale à 99.99%. Ce petit changement de la composition n'est pas sans importance étant donnée la haute sensibilité de la recristallisation à la concentration des impuretés [103,104].

5.3.2. Préparations

Des échantillons de forme parallélépipédique destinés au laminage sont préparés à partir des lingots de cuivre mono ou multicristallins (Figure 5-11). Dans le cas général, les plans de joints de grains, dans les lingots multicristallins, sont parallèles à l'axe de croissance (axe du lingot), ce qui permet de préparer des échantillons avec un seul grain dans l'épaisseur. Toutes les découpes ont été effectuées par électroérosion.

Cette technique laisse une couche de quelques dizaines de microns fortement perturbée à la surface découpée. C'est pourquoi nous avons procédé systématiquement à un polissage mécanique jusqu'au papier 1200.

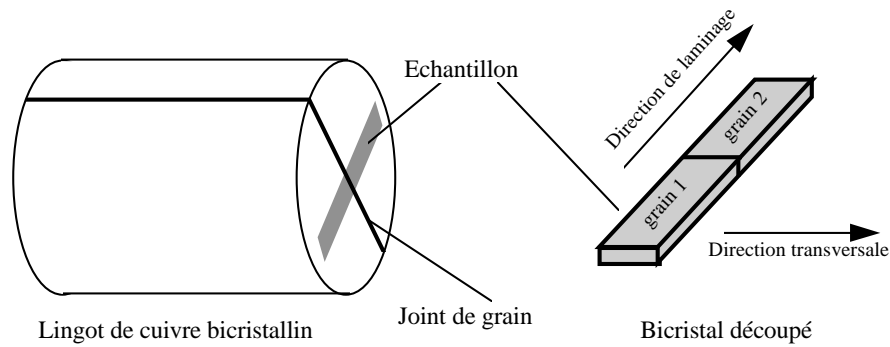


Figure 5-11. Procédure de préparation des échantillons, exemple d'un bicristal.

Ensuite, une attaque chimique dans une solution concentrée d'acide nitrique (HNO_3) est effectuée afin d'éliminer la couche écrouie produite, par le polissage. La procédure ainsi décrite ne nécessite aucun effort mécanique qui aurait pu induire un écrouissage profond de l'échantillon. Les mono-, bi- et multicristaux sont de forme parallélépipédique avec des dimensions similaires : une longueur entre 40 et 60 mm, une largeur d'environ 10 mm et une épaisseur variant de 1-3 mm.

5.4. Mode et taux de déformation

Nous avons choisi d'appliquer la même déformation pour tous les échantillons : un laminage multipasse à une vitesse de déformation moyenne de 1 s^{-1} . Le taux de réduction a été fixé à 33% ($\epsilon = 0.4$). Le but d'une telle procédure est de bénéficier des avantages cités ci-après.

- 1) Le laminage est un mode de déformation permettant d'effectuer des grandes déformations sans provoquer d'endommagement ou d'hétérogénéités macroscopiques, comme, par exemple, la striction observée dans le cas de la traction.
- 2) Compte tenu de la géométrie des lingots utilisés pour la préparation des échantillons, les formes parallélépipédiques sont les plus faciles à découper et les plus convenables pour la déformation par laminage.
- 3) L'étude de la déformation des multicristaux n'est pas une tâche facile à cause de (ou grâce à) la présence simultanée des aspects intra- et intergranulaires. Pour rendre cette étude plus simple, nous pouvons choisir la géométrie du multicristal qui permet de s'approcher des conditions idéales de déformation. Ainsi, le laminage des multicristaux, présentant un seul grain dans l'épaisseur, autorise à considérer la déformation comme uniforme d'un grain à l'autre (conditions de déformation imposée). Ceci nous permettra, par la suite, de faire la comparaison avec l'état d'écrouissage des monocristaux.
- 4) Avec un taux de réduction de 33% ($\epsilon = 0.4$), nous avons, d'une part, une intensité diffractée suffisante pour l'étude de l'élargissement de profils, et d'autre part, un écrouissage relativement élevé permettant de provoquer facilement la recristallisation. Une déformation largement supérieure risquerait de provoquer de grandes rotations cristallographiques, ce qui noierait l'effet de l'orientation initiale diminuant ainsi l'écart entre les énergies stockées.

5.5. Recuits

Une fois les échantillons déformés caractérisés, nous procédons à des recuits dans un bain de sel fondu (four *ETR* avec le sel *STAL 250*). Ce type de traitement thermique assure une montée en température très rapide et permet de rester en condition de recuit isotherme. Par ailleurs, étant donné la neutralité chimique du sel vis-à-vis du cuivre, les échantillons sont à l'abri d'une oxydation atmosphérique. Par rapport aux fours sous vide, cette procédure garantit une durée précise de traitement, car après la durée souhaitée du traitement, l'échantillon peut être trempé directement dans l'eau. Afin de pouvoir mesurer la température critique de recristallisation T_c de chaque échantillon, nous avons choisi de fixer la durée des recuits à 15 min et de faire varier la température de recuit.

Pour explorer la cinétique de la recristallisation, spécialement au voisinage de grains, un autre type de recuit a été utilisé. Il s'agit du recuit *in situ* (dans le *MEB*). Nous disposons d'un four électrique qui assure une grande vitesse de chauffage ($5^\circ/\text{s}$). Le contraste cristallographique obtenu grâce à l'imagerie par électrons rétrodiffusés permet de détecter les changements de l'orientation, ce qui rend possible le suivi de la germination et de la croissance de nouveaux grains.

5.6. Démarche expérimentale générale

Le travail expérimental consiste à élaborer des échantillons (mono ou multicristallins) de cuivre pur (99.99%) de forme parallélépipédique et d'orientations cristallographiques initialement différentes. Après la déformation par laminage à 33%, l'écrouissage, en terme de densité et de structure de dislocations, est caractérisé par les analyses de l'élargissement de profils de diffraction et par les différentes techniques de la microscopie électronique. La variation de l'énergie stockée entre les différents échantillons est le résultat du seul changement de l'orientation cristallographique. Ensuite, chaque échantillon est découpé en plusieurs morceaux auxquels on fait subir des recuits à différentes températures, le but étant de cibler le mieux possible la température critique de recristallisation. Ainsi, nous pouvons étudier l'influence de l'énergie stockée sur la recristallisation statique dans le cuivre.

Un autre type de recuit est utilisé pour suivre la recristallisation intergranulaire (au voisinage des joints). En fait, une tranche contenant le joint et parallèle à celui-ci est portée en contact avec le four à conduction dans le *MEB*. Les changements d'orientation dus à la germination et/ou la croissance sont accompagnés, dans la plupart de cas, par des changements du contraste cristallographique. De cette façon, nous pouvons étudier l'effet de la présence des joints de grains et leur apport aux résultats précédents.

5.7. Conclusions

L'hétérogénéité intragranulaire de l'écrouissage, due à la désorientation des grains, semble contrôler la germination de nouveaux grains. Cet effet peut être élucidé par les mesures de la température critique de recristallisation en fonction de l'énergie stockée dans les monocristaux de différentes orientations. Une fois cet effet compris, nous pouvons compléter cette description par l'étude de la recristallisation au voisinage de joints de grains.

La méthode expérimentale présentée ci-dessus, a été élaborée afin de répondre à des questions précises. La première concerne la possibilité de quantifier l'écroissance inter- et intragranulaire par les analyses de l'élargissement de profils de diffraction. La deuxième porte sur le rôle, admis mais pas assez connu, de l'énergie stockée sur les mécanismes de recristallisation. La troisième concerne le suivi de la cinétique de recristallisation aux joints de grains.

Dans les chapitres suivants, nous allons voir que cette démarche expérimentale permet d'atteindre les objectifs ainsi décrits.

6. Analyses de profils de diffraction

6.1. Introduction

Les analyses de profils de diffraction représentent un large domaine englobant des multiples applications comme la détermination des contraintes internes, l'étude de la mosaïcité cristalline, la mesure de la densité de dislocations, etc. Ainsi, les caractéristiques physiques et géométriques des diffractomètres sont choisies en fonction de l'emploi souhaité des profils mesurés.

Les analyses de profils de diffraction, mesurés par un diffractomètre à haute résolution, peuvent fournir d'importantes informations sur la microstructure de déformation. Ces types d'analyses ne sont pas des traitements simples et directs. De multiples étapes intermédiaires rendent assez complexe le traitement général.

Nous présenterons dans ce chapitre les différentes procédures de traitement adaptées à la démarche expérimentale décrite dans le chapitre 4.

6.2. Résolution physique du diffractomètre

La résolution physique constitue la principale caractéristique d'un diffractomètre. Elle peut être évaluée par la mesure d'un profil de diffraction d'un cristal parfait. Dans notre cas, nous avons choisi la réflexion (400) d'un monocristal de silicium (Figure 6-12).

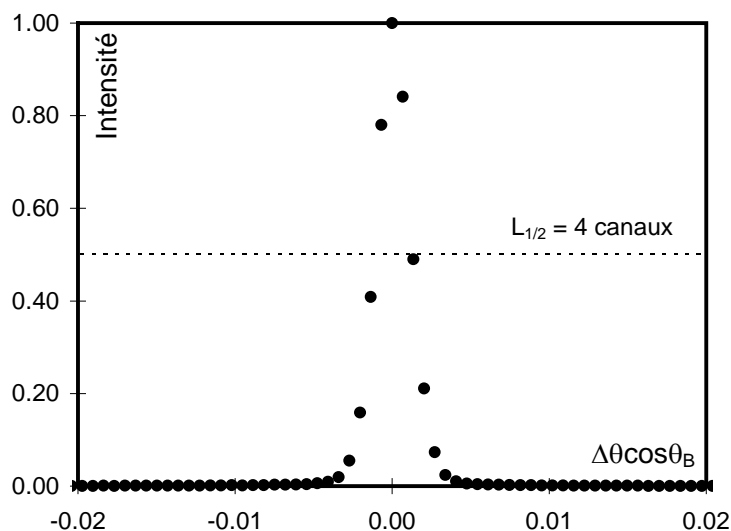


Figure 6-12. Profil de la réflexion (400) du silicium. L'écart angulaire entre deux points de mesure est de $\Delta\theta = 0.00188^\circ$.

Le profil ainsi mesuré représente l'*élargissement instrumental total* du diffractomètre de différentes sources : la dispersion spectrale du rayonnement, la résolution physique du détecteur et les défauts de positionnement géométrique de l'échantillon.

La largeur à mi-hauteur a été trouvée égale à 4 canaux du détecteur, ce qui correspond à 0.9' (minute d'arc). Connaissant l'angle théorique de Bragg pour cette réflexion ($\theta_B = 68^\circ$), nous pouvons estimer la résolution réelle du diffractomètre par la relation (voir annexe 2) :

$$\frac{\Delta\lambda}{\lambda} = \frac{\Delta(2\theta)}{\tan \theta_B}, \quad (6-1)$$

Ainsi, nous calculons une résolution de 10^{-4} , résolution suffisante pour pouvoir analyser directement les profils enregistrés sans correction nécessaire [105].

Nous signalons ici que les premières mesures ont été effectuées avec la raie $K_{\alpha 1}$ du cuivre ($CuK_{\alpha 1} = 0.15405$ nm), le reste, ce qui constitue la majeure partie des mesures, a été réalisé avec la raie $K_{\alpha 1}$ de Cobalt ($CoK_{\alpha 1} = 0.17889$ nm).

6.3. Normalisation des échelles

Une représentation simple et efficace des profils nécessite la normalisation des échelles. Pour les ordonnées, l'intensité diffractée est normalisée par l'intensité maximale.

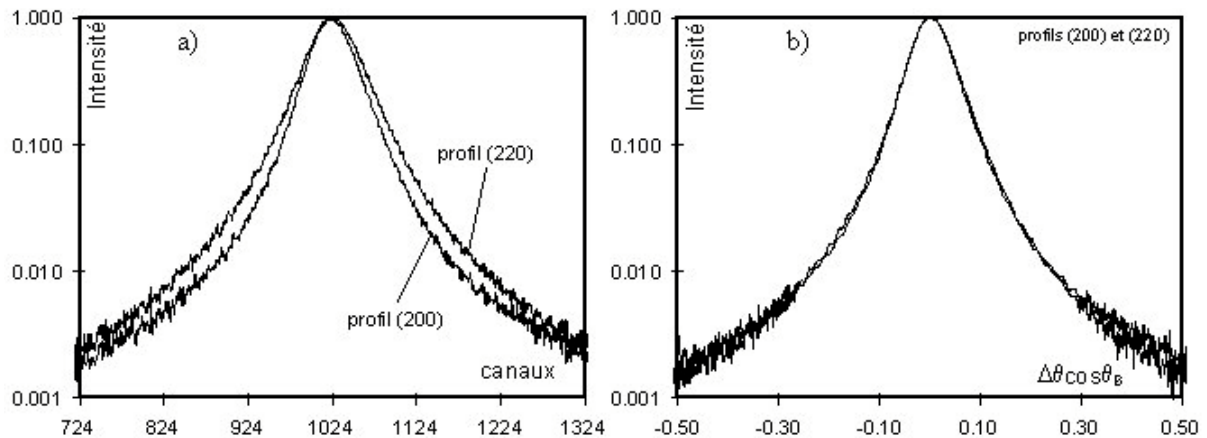


Figure 6-13. Effet de la normalisation de l'échelle ($\Delta\theta$), a) échelle directe en canaux (2θ), b) échelle normalisée. Les deux profils donnent la même densité de dislocations apparente (10^{15} m^{-2}).

Pour les abscisses, nous avons vu que la variable universellement utilisée pour les analyses de profils de diffraction, n'est pas l'angle θ , mais la variable de Bragg s (voir annexe I) :

$$s = \frac{2(\sin \theta - \sin \theta_B)}{\lambda}. \quad (6-2)$$

Au voisinage de θ_B , nous pouvons considérer l'approximation suivante :

$$s = \frac{2\Delta(\theta - \theta_B) \cos \theta_B}{\lambda} \quad (6-3)$$

Par souci de simplicité et étant donné que la longueur d'onde a été fixée ($\lambda = 0.17889$ nm), nous pouvons négliger λ et représenter directement les profils dans l'échelle $\Delta\theta \cos\theta_B$. Ceci permet de comparer l'élargissement des profils correspondant aux différentes familles de plans (Figure 6-13). Les deux profils {(200), et (220)} présentés dans cette figure, qui donnent la même densité de dislocations apparente $\rho^* = 10^{15} \text{ m}^{-2}$, sont initialement différents (courbe a) mais se superposent dans l'échelle normalisée (courbe b).

6.4. Analyses de l'élargissement

6.4.1. Densité de dislocations et rayon de coupure

Les analyses de profils de diffraction selon le modèle de Groma-Ungar-Wilkens, permettent d'évaluer, entre autres, la densité de dislocations apparente et le rayon de coupure (voir chapitre 3). Cette démarche est constituée des étapes suivantes :

1) Les profils sont mesurés par le détecteur de rayons X qui permet de fournir un signal électrique proportionnel à l'intensité reçue. L'intervalle d'enregistrement s'étend à 5.6° en 2θ (équivalent à un nombre de canaux $N_E = 1500$ canaux).

2) Etant donné que la largeur de profil varie en fonction des réflexions, l'intervalle de traitement (sur lequel les analyses sont effectuées) est choisi en fonction de la largeur à mi-hauteur $L_{1/2}$ du pic. Celui-ci est souvent pris égal à $10 \times L_{1/2}$, c'est-à-dire $5 \times L_{1/2}$ de part et d'autre du centre du profil. Ce choix est nécessaire afin de prendre en compte d'une façon cohérente, pour les différents types de réflexions, la contribution des ailes et celle de la partie centrale du pic. Nous verrons que ceci est associé à une signification physique bien déterminée.

3) Afin de pouvoir effectuer la transformée de Fourier rapide du profil, le nombre de points constituant ce dernier est complété pour atteindre un nombre multiple de 2 (nombre de l'ensemble $\{2^n\}$).

4) Les coefficients de Fourier $A(n)$, ainsi obtenus, font l'objet d'un lissage par la fonction [106] :

$$\ln|A(n)| = -\eta n^2 [\rho^*] \ln ([R_e]/n) + K n^4 \ln (R_2/n) \ln (R_3/n) + o(n^4), \quad (6-4)$$

où $\eta = \pi/2 g^2 b^2$, g est le vecteur de diffraction, b le vecteur de Burgers, n le paramètre de Fourier, $[\rho^*]$ la densité de dislocation apparente, $[R_e]$ le rayon de coupure effectif ; K , R_2 et R_3 sont des constantes non traitées dans le cadre de ce modèle (voir chapitre 3).

5) Comme nous pouvons le constater, les paramètres $[R_e]$ et $[\rho^*]$ obtenus par l'équation précédente sont sans dimension. En effet, ils sont normalisés implicitement par le facteur a qui résulte de la transformée de Fourier :

$$a = \frac{\lambda}{L \cos \theta_B}, \quad (6-5)$$

où L est l'intervalle de traitement en radian. Par conséquent, la densité de dislocations apparente ρ^* et le rayon de coupure effectif R_e sont donnés par les relations :

$$\rho^* = [\rho^*] / a^2, \quad R_e = [R_e] \times a. \quad (6-6)$$

6.4.2. Bruit de fond

Dans le chapitre 3, nous avons montré que la plupart des modèles développés pour les analyses de l'élargissement de profils sont valables lorsque n tend vers zéro. Par conséquent, les ailes de profils ont une grande influence sur l'évaluation du paramètre ρ^* (Figure 6-14). Dans cette figure, les deux réflexions $\{200\}$ sont caractérisées par une partie centrale identique, mais l'écart dans les ailes est suffisant pour faire passer la densité de dislocations apparente du simple au double.

C'est pourquoi, afin de mesurer précisément les ailes, l'acquisition nécessite un rapport signal/bruit relativement élevé (proche de 1000). Ceci se traduit par l'allongement du temps de l'acquisition, généralement compris entre 3 à 15 heures par profil pour nos échantillons (multicristaux de cuivre laminé à 33 %). Par ailleurs, quand l'intensité diffractée est faible et le temps d'acquisition est long, un autre problème apparaît : l'accumulation du bruit de fond. Nous disposons d'un programme permettant de visualiser chaque profil. Ainsi, nous pouvons imposer aux ailes (parties extérieures de profils) une variation linéaire dans l'échelle logarithmique de l'intensité. Ceci permet de tenir compte des résultats de Krivoglaz [107] et Wilkens [108] indiquant une variation de l'intensité proportionnelle à l'inverse de s^3 (voir chapitre 3).

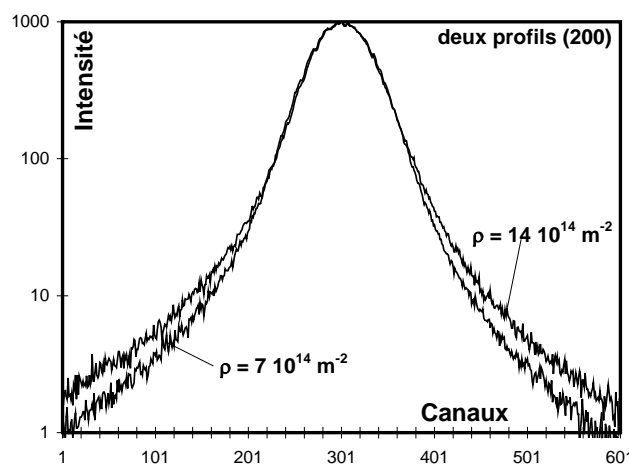


Figure 6-14. Influence des ailes de profils sur la densité de dislocations apparente.

6.4.3. Traitement des profils ESRF

Les profils mesurés dans la ligne ID15-A du Synchrotron de Grenoble, ne peuvent pas être analysés directement sans un pré-traitement approprié. En effet, malgré la haute intensité du rayonnement, l'enregistrement point par point du profil (effectué en faisant tourner l'analyseur) nécessite un long temps d'acquisition. De plus, le niveau de bruit de fond s'est avéré très élevé à cause du rayonnement diffusé dans tout l'environnement. Un programme a été réalisé pour effectuer les opérations : (i) extraire les données de chaque profil à partir du fichier ESRF, (ii) lisser les points de mesure par une moyenne mobile, supprimer un niveau élevé de bruit de fond, (iii) lisser les ailes de profil (dans l'échelle logarithmique) par un polynôme de deuxième ou troisième degré (Figure 6-15).

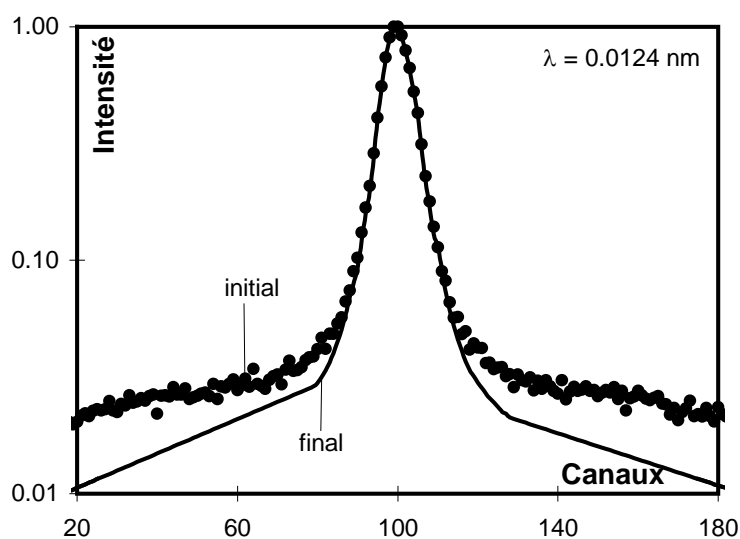


Figure 6-15. Les étapes de traitement des profils ESRF

Toutefois, quelques profils n'ont pas pu être traités, car il semble qu'une éventuelle analyse aurait induit une grande erreur numérique.

6.5. Asymétrie de profils et contraintes internes

6.5.1. Introduction

Outre l'élargissement de profils, la déformation plastique conduit à une asymétrie de ces profils. Grâce au diffractomètre à haute résolution, nous avons pu constater cette asymétrie sur la plupart de nos profils. Comme nous l'avons vu dans le chapitre 3, l'origine de cette asymétrie ne semble pas être complètement clarifiée. Toutes les approches rencontrées dans la littérature donnent des interprétations *suffisantes mais non nécessaires*, c'est-à-dire proposent les structures ou les organisations des dislocations qui peuvent induire une telle asymétrie. L'approche la plus simple et la plus facile à utiliser est celle présentée dans le

modèle composite de Mughrabi [109], qui sera à la base des traitements des profils asymétriques effectués dans ce travail.

6.5.2. Modèle composite de Mughrabi

Selon ce modèle, l'hétérogénéité microscopique des contraintes internes à longue portée (*long-range internal stresses*), serait à l'origine de l'asymétrie des profils de diffraction. Un matériau déformé plastiquement, dont la microstructure révèle une distribution hétérogène de dislocations, peut être considéré comme un composite constitué de zones qui diffèrent par leurs densités de dislocations. Dans le cas d'une distribution cellulaire de dislocations, structure largement observée dans la littérature, on peut distinguer deux zones : les parois de dislocations (fraction volumique f_w) et les zones intermédiaires pauvres en dislocations (cellules de fraction f_c). A cause de cette différence de densité de dislocations, les parois sont associées à une contrainte d'écoulement τ_p plus élevée que celle dans des cellules τ_c . Lors de la déformation plastique d'un tel matériau, c'est-à-dire l'application d'une contrainte externe macroscopique τ , les deux zones sont cisailées simultanément et nous pouvons écrire :

$$\tau_p = \tau + \Delta\tau_p \quad \text{et} \quad \tau_c = \tau + \Delta\tau_c . \quad (6-7)$$

D'où l'existence des contraintes internes à longue portée $\Delta\tau_p$ et $\Delta\tau_c$. Par ailleurs, comme τ est une contrainte moyenne, nous avons la relation :

$$\tau = f_p \tau_p + f_c \tau_c . \quad (6-8)$$

Avec la relation ($f_p + f_c = 1$), les équations (6-5 et 6-6) donnent la règle d'Albenga :

$$f_p \Delta\tau_p + f_c \Delta\tau_c = 0 . \quad (6-9)$$

Autrement dit, à cause des contraintes internes à longue portée, la contrainte locale est inférieure à la contrainte moyenne τ dans les cellules de dislocations et supérieure à τ dans les parois de dislocations. Conséquence : les deux « matériaux », constituant les cellules et les parois, ne diffractent pas dans le même angle de Bragg théorique θ_B , c'est-à-dire que les deux profils respectifs sont décalés. Comme les deux zones n'ont pas la même fraction volumique, les sous-pics n'ont pas la même surface, ce qui conduit à un pic ***total asymétrique***.

Mughrabi a complété cette description dans un deuxième article [110] afin de donner, sur la base de ce modèle, une interprétation des différentes observations expérimentales comme, par exemple, la relation entre la densité de dislocations et la taille des cellules (ρ proportionnel à d^{-2}).

Bien que ce modèle présente une description statique de la microstructure, Nabarro [111] a proposé une approche dynamique de la formation des structures de dislocations basée sur ce modèle, et a montré que ce dernier est stable si l'on considère quelques hypothèses plausibles.

6.5.3. Traitement numérique de l'asymétrie

Le principe de traitements de pics asymétriques sur la base du modèle de Mughrabi, a été déjà décrit dans la littérature [112]. Nous nous contentons ici de rappeler brièvement les étapes principales ; il s'agit de :

- 1) déterminer la limite inférieure θ_l et de la limite supérieure θ_2 de l'intervalle de traitement ;
- 2) associer le centre de « gravité » du pic à l'angle théorique de Bragg θ_B (Figure 6-16) ;

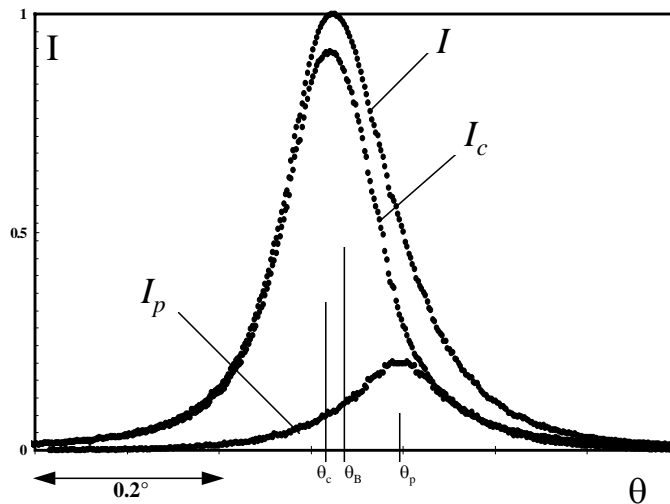


Figure 6-16. Décomposition d'un pic asymétrique selon le modèle composite de Mughrabi.

- 3) décomposer le pic asymétrique initial $I(\theta)$ en deux sous-pics symétriques $I_c(\theta)$ et $I_p(\theta)$. La procédure de décomposition (*mirroring procedure*), décrite par Mughrabi et al. [112], ne nécessite aucun lissage du profil initial et conserve la relation $I(\theta) = I_c(\theta) + I_p(\theta)$;
- 4) mesurer les fractions volumiques de chaque pic et associer le pic avec la fraction la moins élevée aux parois de dislocations ;
- 5) déterminer le centre de chaque pic (θ_p et θ_c) afin d'évaluer les déformations résiduelles respectives ε_p et ε_c par les relations :

$$\varepsilon_c = -(\theta_c - \theta_B) \cotg(\theta_B), \quad \varepsilon_p = -(\theta_p - \theta_B) \cotg(\theta_B). \quad (6-10)$$

6) On note ici que les sous profils ainsi déterminés ne peuvent pas être utilisés pour l'évaluation de la densité de dislocations dans les parois et dans les cellules par les analyses spectrales (transformée de Fourier). La principale raison vient de l'imprécision de la méthode de décomposition utilisée (par miroir), surtout dans les ailes de profils.

6.5.4. Remarques sur l'analyse des profils asymétriques

1) Si le profil associé aux parois de dislocations est symétrique par construction (procédure de miroir), le profil associé aux cellules ne l'est pas. Celui-ci dépend du choix du canal initial de décomposition et garde dans la plupart des cas un caractère plus au moins asymétrique. Afin de déterminer sans ambiguïté le meilleur canal initial, nous proposons un critère de choix basé sur un **facteur d'asymétrie** δ [113], qui est défini par la relation :

$$\delta = \left| 1 - \frac{2}{S} \int_{\theta_m}^{\theta_2} I(\theta) d\theta \right|, \text{ avec } S = \int_{\theta_1}^{\theta_2} I(\theta) d\theta, \quad (6-11)$$

où θ_m est la position de l'intensité maximale. On peut facilement constater que si le profil est parfaitement symétrique, le facteur δ est nul. Le choix du canal de décomposition est fait pour le canal qui permet d'avoir le profil I_c (profil associé aux cellules) le moins asymétrique (c'est-à-dire avec le facteur δ minimal). Ce facteur peut être également utilisé pour caractériser l'asymétrie de profil en général. Nous avons constaté qu'il est compris entre 0 et quelques pour-cent pour les profils les plus asymétriques.

2) Les premières analyses effectuées dans un monocristal de cuivre d'orientation [001] déformé en traction [112], ont révélé un état de traction uniaxial dans la direction de traction initiale, en accord avec le modèle de Mughrabi. Les profils utilisés étaient les trois réflexions {200}.

3) Plus tard, des analyses ont été effectuées dans différentes conditions expérimentales, voir par exemple [114,115,116]. Les réflexions {200} étaient également les seules utilisées car elles étaient **les plus asymétriques**.

4) Les mesures tridimensionnelles de l'état de contraintes à longue portée dans un monocristal de cuivre d'orientation [112] déformé en traction à 12 % [113], montrent que ces contraintes dépendent, en plus de l'état des contraintes appliquées, de l'orientation cristallographique de l'échantillon. Les axes <100> semblent jouer un rôle particulier.

5) La remarque précédente pose le problème de l'origine de ces contraintes attribuée aux **dislocations d'interface** dans le modèle de Mughrabi. Cette dépendance cristallographique peut être, en effet, le lien entre ces contraintes et les mécanismes de glissement qui sont censés introduire de telles dislocations d'interface.

6.6. Précision expérimentale

L'évaluation de la précision expérimentale dans le cas des analyses de profils de diffraction est l'un des problèmes les plus difficiles à résoudre. La principale raison est la multitude des étapes de traitement pouvant engendrer :

- 1) une erreur statistique de comptage dans l'enregistrement des profils (question de reproductibilité de profils de diffraction),
- 2) une erreur associée à la suppression du bruit de fond.

Pour l'évaluation de la densité de dislocations, on peut ajouter les sources suivantes :

- 3) une erreur accompagnant la transformée de Fourier à cause de la limitation de l'intervalle de traitement et à la fréquence d'échantillonnage,
- 4) une approximation due à l'utilisation de l'équation (6-3), dans laquelle les termes d'ordre supérieur à (n^4) sont négligés,
- 5) une erreur de détermination des coefficients ρ^* , R_e , résultant de la méthode de moindres carrées.

Pour l'analyse de l'asymétrie de profils, nous avons les sources suivantes :

- 6) erreur due à l'espacement entre les points de mesures. Elle est donnée par la résolution maximale du détecteur ($\Delta\theta = 0.00188^\circ$),
 - 7) erreur de décomposition du pic initial en deux pic symétriques. Toutefois, cette erreur peut être diminuée jusqu'à la résolution du détecteur en utilisant le critère de choix du canal de décomposition (voir équation 6-11).
- Dans le chapitre suivant, nous allons donner l'ordre de grandeur de l'erreur expérimentale pour chaque mesure réalisée.

6.7. Conclusion

En adoptant les procédures de traitement décrites dans ce chapitre, nous espérons aboutir aux objectifs fixés dans notre démarche expérimentale (chapitre 4) : la caractérisation de l'écrouissage inter- et intragranulaire. Concrètement, les résultats attendus des analyses de profils de diffraction sont :

- 1) les densités de dislocations inter- et intragranulaires,
- 2) la description de la structure de dislocations,
- 3) la détermination des contraintes internes.

Nous allons voir dans le chapitre suivant, les principaux résultats obtenus et la discussion apportée afin d'aboutir à la description souhaitée de l'état déformé.

7. Caractérisation expérimentale de l'écrouissage

7.1. Introduction

Il est souvent plus difficile de dépouiller les résultats expérimentaux que de les recueillir. Quand les mesures brutes fournissent des chiffres abstraits, comme les analyses de profils de diffraction, il devient nécessaire d'adopter une procédure rigoureuse afin d'intégrer ces résultats dans une conception physique cohérente.

Nous ne pouvons pas présenter les différents résultats sur l'écrouissage par thème, car la démarche expérimentale et les analyse des mesures ont subi une évolution importante au cours de l'avancement dans chaque étape de notre travail. Ainsi, par exemple, nos premières mesures effectuées sur un multicristal nous ont permis, comme on le verra par la suite, d'élaborer la procédure d'évaluation de la densité de dislocations qui a été appliquée dans toutes les analyses ultérieures.

Après la mise en place au laboratoire de la procédure générale d'analyses de profils, nous avons tenté de comparer et de compléter nos études par le projet expérimental réalisé au Synchrotron de Grenoble (ESRF-ID15 A). Les résultats alors obtenus constituent, en effet, une description complémentaire de l'état déformé.

Nous allons donc présenter nos résultats selon le cheminement historique des expériences, ce qui permet d'illustrer l'évolution de nos idées tout au long de ce travail.

7.2. Ecrouissage intragranulaire dans un multicristal

7.2.1. Densités de dislocations apparentes

Un multicristal de cuivre de forme parallélépipédique ($1.48 \times 11 \times 36 \text{ mm}^3$) est constitué de 7 grains (Figure 7-17). Les joints de grains sont parallèles à la direction normale de laminage, ce qui nous permet de confirmer la présence d'un seul grain dans l'épaisseur. Les mesures d'orientation ont été effectuées dans le MEB par *Electron Back Scattering Diffraction* (EBSD). D'après les mesures des dimensions de l'échantillon après laminage (environ $0.96 \times 11 \times 55 \text{ mm}^3$), nous pouvons estimer le taux de laminage à 35 %, ce qui est équivalent à une déformation vraie de 0.43. Par ailleurs, la stabilité de la largeur et l'évolution de la longueur de l'échantillon, autorisent à considérer que la déformation s'est effectuée dans les conditions idéales de laminage (sans cisaillement transversal). Toutefois, les distorsions observées autour des joints de grains, indiquent une forte accommodation de la déformation à cause de la différence de comportement mécanique des différents grains, due sans doute à la différence d'orientations cristallographiques.

Dans le cas du cuivre, les réflexions de Bragg accessibles au laboratoire (limitation en 2θ à 140°) sont $\{111\}$, $\{200\}$, $\{220\}$, $\{311\}$ et $\{222\}$ (voir annexe I). Nous avons mesuré au moins quatre profils par grain.

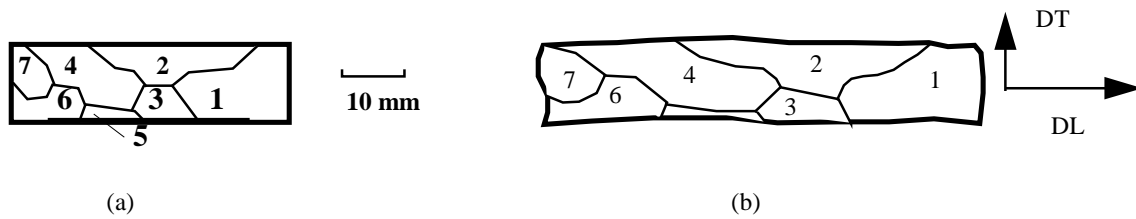


Figure 7-17. Le multicristal (a) avant laminage (épaisseur de 1.48 mm), (b) après laminage (épaisseur 0.97 mm).

Les résultats de l'évaluation des densités de dislocations apparentes et des rayons de coupure effectifs sont montrés dans le Tableau 7-1. Nous n'avons pas pu effectuer des mesures sur le grain n° 5 à cause de sa faible taille. Nous pouvons constater que ρ^* ne dépend pas seulement du grain, mais également du vecteur de diffraction \mathbf{g} . Autrement dit, ces valeurs ne peuvent pas donner de renseignements directs sur la densité de dislocations réelle dans chaque grain.

| Orientation \ {hkl} | 200 | 220 | 311 | 222 |
|---|-------------------------------|--------------------------------|--------------------------------|--------------------------------|
| Grain 1 (4 $\bar{3}$ 7) [$\bar{3}$ 0 2] | $\rho^* = 3,5$ $R_e = 0,2$ | $\rho^* = 1,6$ $R_e = 0,2$ | $\rho^* = 2,55$ $R_e = 0,1$ | $\rho^* = 1,17$ $R_e = 0,1$ |
| Grain 2 (1 1 4) [2 2 $\bar{1}$] | $\rho^* = 3,2$ $R_e = 0,2$ | $\rho^* = 1,6$ $R_e = 0,2$ | $\rho^* = 2,1$ $R_e = 0,1$ | $\rho^* = 1,17$ $R_e = 0,1$ |
| Grain 3 (3 $\bar{1}$ 5) [0 4 1] | $\rho^* = 2,4$ $R_e = 0,2$ | $\rho^* = 1,35$ $R_e = 0,2$ | $\rho^* = 1,7$ $R_e = 0,1$ | $\rho^* = 0,89$ $R_e = 0,2$ |
| Grain 4 (2 $\bar{1}$ 4) [4 9 0] | $\rho^* = 3,0$ $R_e = 0,2$ | $\rho^* = 1,35$ $R_e = 0,2$ | $\rho^* = 2,0$ $R_e = 0,1$ | $\rho^* = 0,96$ $R_e = 0,2$ |
| Grain 5 (3 $\bar{1}$ 8) [8 2 $\bar{3}$] | - - | - - | - - | - - |
| Grain 6 (4 1 8) [5 5 $\bar{3}$] | $\rho^* = 2,7$ $R_e = 0,2$ | $\rho^* = 1,6$ $R_e = 0,1$ | $\rho^* = 2,0$ $R_e = 0,1$ | $\rho^* = 0,90$ $R_e = 0,2$ |
| Grain 7 (2 1 2) [1 $\bar{5}$ 2] | $\rho^* = 3,5$ $R_e = 0,1$ | $\rho^* = 1,75$ $R_e = 0,2$ | $\rho^* = 2,2$ $R_e = 0,1$ | $\rho^* = 1,0$ $R_e = 0,2$ |

Tableau 7-1. Résultats des analyses de profils de diffraction, ρ^* est exprimé en 10^{14} m^{-2} et R_e en μm .

Nous avons choisi de représenter les orientations dans la convention rationnelle de laminage (hkl)[uvw] avec des indices faibles afin de faciliter la lecture, c'est pourquoi les directions DN et DL ne sont pas rigoureusement perpendiculaires.

7.2.2. Evaluation de la densité de dislocations réelle

7.2.2.1. Effet de la population des systèmes de glissement

D'après le modèle de Groma-Ungar-Wilkens, la relation entre la densité de dislocation réelle et la densité apparente dans un grain est donnée par la relation :

$$\rho_i^* = C_i \rho , \quad (7-1)$$

où (*i*) désigne le numéro de la mesure correspondant à un profil donné et C_i le facteur de contraste des dislocations. Nous avons vu dans le chapitre 3 que ce facteur varie en fonction du vecteur de diffraction, c'est-à-dire en fonction de la mesure (*i*) entraînant ainsi la variation de la densité apparente ρ^* . Quant à la densité de dislocation réelle, elle représente une caractéristique de la microstructure du grain et ne change pas en fonction du vecteur de diffraction. Par conséquent, si les valeurs de C_i sont justement estimées, les points (ρ_i^*, C_i) doivent être alignés sur une droite passant par l'origine. En revanche, si ces points ne sont pas alignés, ceci indique que les valeurs C_i ne sont pas évaluées correctement, et dans ce cas, les hypothèses sous lesquelles ces valeurs ont été calculées doivent être revues.

Chaque valeur C_i peut être calculée par la formule :

$$C_i = \sum_{s=1}^N P_s C_s , \quad \text{avec } P_s = \frac{\rho_s}{\rho} , \quad (7-2)$$

où *s* désigne un système de glissement et P_s représente le poids relatif de ce système (voir chapitre 3). Le calcul de C_i n'est possible qu'en estimant les poids P_s , ce qui nécessite la considération des hypothèses sur la population relative de chaque système.

Deux hypothèses extrêmes ont été testées sur le grain n° 1

Hypothèse I : tous les systèmes sont également peuplés, c'est-à-dire $P_s = C_s^{\text{te}} = 1/12$.

Les contrastes calculés de cette façon sont appelés les contrastes moyens (C_m) et sont caractéristiques de la nature de la famille de plans diffractant $\{hkl\}$ et non de l'orientation de cette famille, c'est-à-dire la direction du vecteur $[hkl]$. Ces valeurs sont données dans le Tableau 7-2.

| | | | | |
|-----------|-------|-------|-------|----------------|
| Réflexion | {200} | {220} | {311} | {222} et {111} |
| C_m | 0,304 | 0,151 | 0,202 | 0,099 |

Tableau 7-2. Les facteurs de contraste moyens d'un seul système de glissement.

Hypothèse II : toutes les dislocations appartiennent à un seul système de glissement. Afin de corrélérer une signification physique à ce choix, nous devons considérer le système le plus sollicité mécaniquement. Pour cela, nous avons choisi un critère de type facteur de Schmid, en idéalisant le processus de laminage par une traction selon la direction de laminage (DL) et une compression selon la direction normale (DN). Le grain n° 1 est initialement d'orientation

$(4\bar{3}7)[\bar{3}02]$, ce qui implique que le système de glissement $(11\bar{1})[\bar{1}10]$ subit le cisaillement le plus élevé ($M = 0.87$). Le rayonnement $CuK_{\alpha 1}$ a été utilisé pour mesurer quatre profils : (002) , (202) , $(1\bar{1}3)$, (222) . La réflexion (002) a été remesurée avec le rayonnement $CoK_{\alpha 1}$. Les facteurs géométriques du système le plus sollicité (avec des proportions de dislocation vis et coins égales) correspondant aux différentes réflexions sont calculés par un programme et montrés dans le Tableau 7-3.

| Réflexion | $\{002\}$ | $\{202\}$ | $\{1\bar{1}3\}$ | $\{222\}$ |
|-----------|-----------|-----------|-----------------|-----------|
| C_i | 0,0327 | 0,111 | 0,045 | 0,0041 |

Tableau 7-3. Contraste du système $(11\bar{1})[\bar{1}10]$ dans le grain 1.

Nous pouvons alors tracer ρ_i^* en fonction de C_m et C_i (Figure 7-18). Cette figure montre que les cercles (points avec les valeurs C_m) sont relativement bien alignés sur une droite passant par l'origine avec une pente de $12 \cdot 10^{14} \text{ m}^{-2}$. La droite montrée dans cette figure est le résultat d'une régression linéaire obtenue avec la méthode des moindres carrés. En revanche, pour les carrés (obtenus avec C_i), la régression linéaire n'est pas significative. Par conséquent, nous concluons que l'hypothèse II est très loin de représenter la distribution de dislocations. En revanche, l'hypothèse I semble tenir compte des résultats expérimentaux.

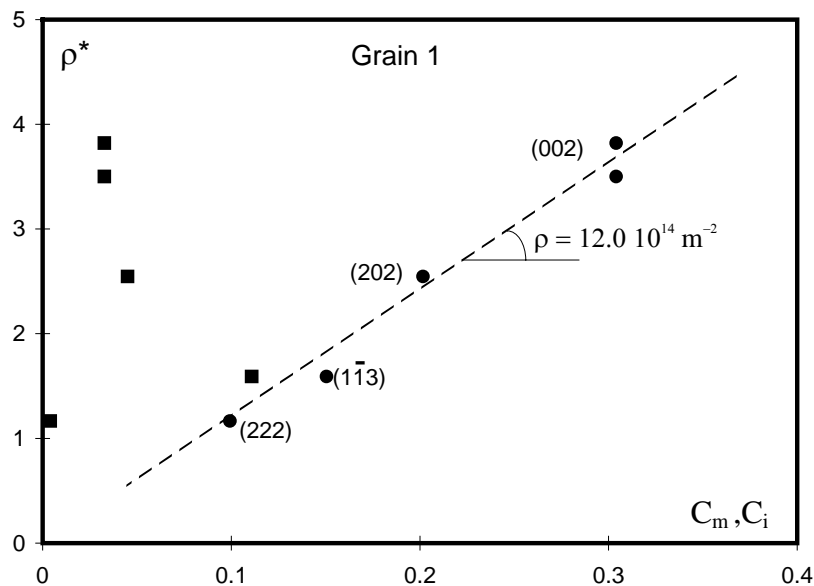


Figure 7-18. Evaluation de la densité de dislocations réelle. (●) tous les systèmes également peuplés (hypothèse I), (■) un seul système peuplé (hypothèse II).

Remarques

1) Du point de vue mathématique, la réponse que nous avons apportée au problème de la détermination des poids des systèmes actifs, n'est « malheureusement » pas unique. Le nombre de mesures, donc d'équations, dont nous disposons, qui est inférieur à 6 dans le cas général, n'est pas suffisant pour couvrir les degrés de liberté liés au nombre de variables P_s .

(12 - 1 = 11 degrés de liberté). Il ne semble donc pas possible de déterminer sans ambiguïté les poids relatifs de chaque système.

2) Nous avons également effectué des calculs de facteurs géométriques en considérant un nombre variable de systèmes peuplés avec le même poids. Il semble qu'à partir de quatre ou cinq systèmes, le facteur géométrique résultant se stabilise et devient indépendant du nombre de systèmes considérés. En effet, il tend vers la valeur de C_m associée à la même réflexion. Ce résultat autorise à penser que les valeurs C_m peuvent donc être utilisées dans le cas du glissement multiple, et que *l'hypothèse I est moins forte que ce que nous aurions pu penser.*

7.2.2.2. Effet du caractère des dislocations

Dans le cas du grain n° 3, nous avons procédé, par une méthode analogue, à l'évaluation de la densité de dislocations en examinant, cette fois, le caractère vis ou coin de ces dislocations. Nous avons constaté que le facteur de contraste varie significativement avec la nature des dislocations (Figure 7-19). L'estimation de la densité de dislocations réelle peut en dépendre sensiblement. Ainsi, sur cette figure, la densité de dislocation réelle dans le grain n° 3, estimée par la pente de la droite, augmente de 16 % en considérant que toutes les dislocations sont vis au lieu de coin. Ceci est le résultat du fait que le contraste des dislocations vis est, en moyenne, inférieur à celui des dislocations coin. Par ailleurs, la dispersion des points autour de la droite est plus élevée (écart type important) pour ces deux hypothèses que dans le cas du caractère mixte (50 % vis, 50 % coin). Toutefois, dans la plupart des grains (Figure 7-19), il nous semble que les points expérimentaux sont mieux alignés sur une droite passant par l'origine dans le cas des dislocations coin que dans celui des dislocations vis. Ceci peut avoir une origine physique dans le processus du glissement dévié qui permet d'annihiler les segments vis des dislocations et d'augmenter, par conséquent, la part des dislocations coin dans la population des dislocations.

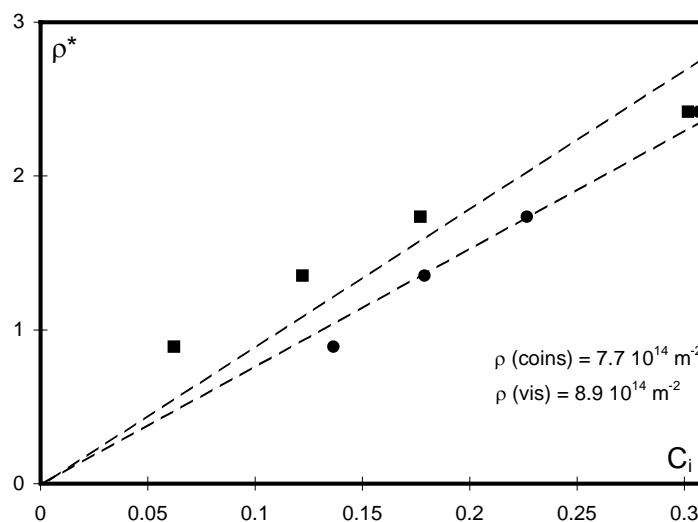


Figure 7-19. Effet du caractère des dislocations sur l'évaluation de la densité de dislocations réelle dans le grain 3, (●) pour les dislocations coins, (■) pour les dislocations vis.

7.2.2.3. Densités de dislocations intragranulaires

Grâce aux résultats montrés dans les paragraphes précédents, nous avons évalué la densité de dislocation réelle dans chaque grain du multicristal. En conservant un caractère mixte de dislocations (50 % vis et 50 % coin) pour tous les grains, nous pouvons comparer les densités de dislocations intragranulaires par la différence des pentes des droites obtenues pour chaque grain (Figure 7-20, Figure 7-21).

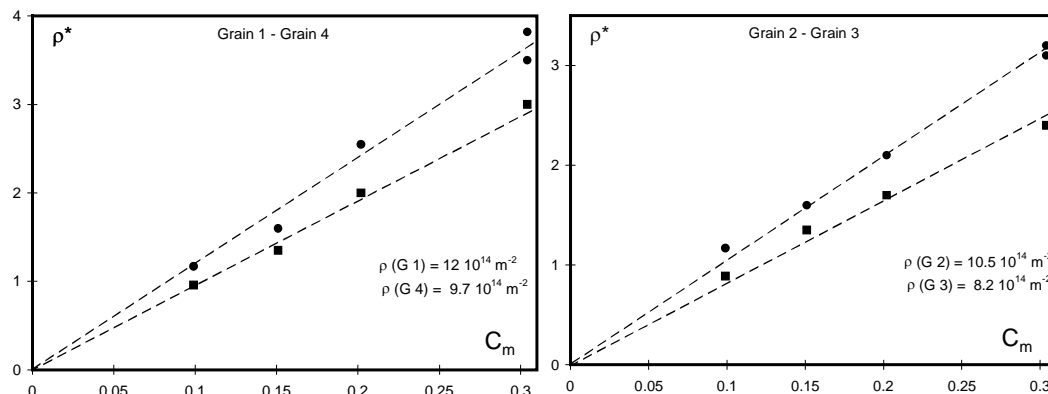


Figure 7-20. Densités de dislocations réelles dans les grains 1, 2, 3 et 4.

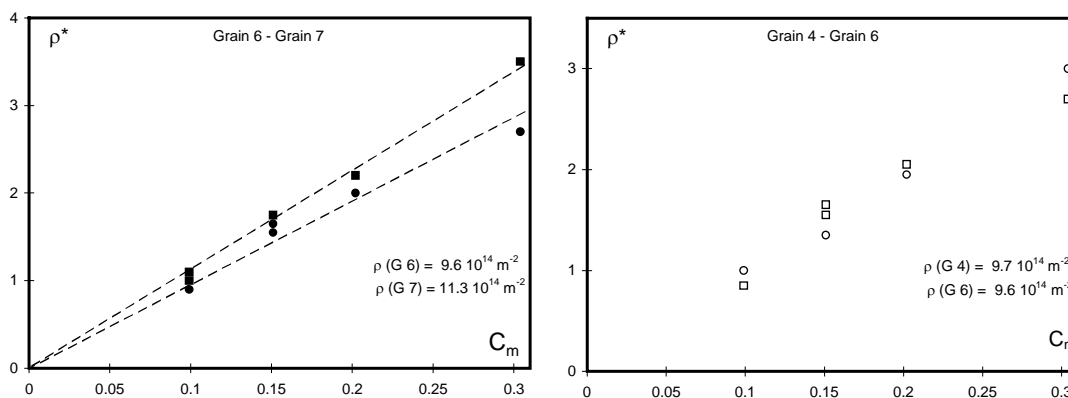


Figure 7-21. Densités de dislocations dans les grains 6 et 7.
Différence non significative entre les grains 4 et 6.

Les figures ci-dessus montrent le grain 1 comme le plus écroui et le grain 3 comme le moins écroui dans le multicristal, avec les densités respectives de $12 \text{ et } 8.2 \cdot 10^{14} \text{ m}^{-2}$. En revanche, nous ne pouvons pas confirmer une différence de densité de dislocations significative entre les grains 4 et 6.

7.3. Ecrouissage dans les monocristaux

7.3.1. Densité de dislocations

Quatre monocristaux de dimensions proches de celles du multicristal (Figure 7-17), à l'exception du monocristal (Mono-A) qui est de 5 mm d'épaisseur, ont été laminés à environ 35 %. La même procédure que celle décrite dans le paragraphe précédent a été utilisée pour l'évaluation de la densité de dislocations dans chacun des échantillons. Les résultats sont montrés dans le Tableau 7-4. Dans ce tableau, nous avons présenté les orientations « rationnelles » finales après déformation.

| nom | orientation | ε | ρ (10^{14} m^{-2}) |
|--------|--------------------------|---------------|-------------------------------------|
| Mono-A | $(\bar{3}45)[5\bar{5}7]$ | 0,43 | 10,5 |
| Mono-B | $(101)[11\bar{1}]$ | 0,46 | 7,5 |
| Mono-C | $(3\bar{2}6)[31\bar{1}]$ | 0,45 | 7,9 |
| Mono-D | $(102)[41\bar{2}]$ | 0,45 | 7,5 |

Tableau 7-4. Résultats des traitements de profils de diffraction pour les monocristaux.

Seulement deux états d'écrouissage peuvent être distingués : le monocristal Mono-A avec une densité de dislocation élevée d'environ $1,1 \cdot 10^{15} \text{ m}^{-2}$, et les trois monocristaux Mono-B, Mono-C, et Mono-D avec une densité de dislocations moyenne de $7,7 \cdot 10^{14} \text{ m}^{-2}$.

7.3.2. Microstructure révélée par le MET

Des lames minces ont été préparées et examinées au MET afin de révéler la microstructure de dislocations. La face d'observation de ces lames est perpendiculaire à l'axe de laminage (DL). Les photos obtenues (Figure 7-22) ont toutes montré une structure cellulaire marquée.

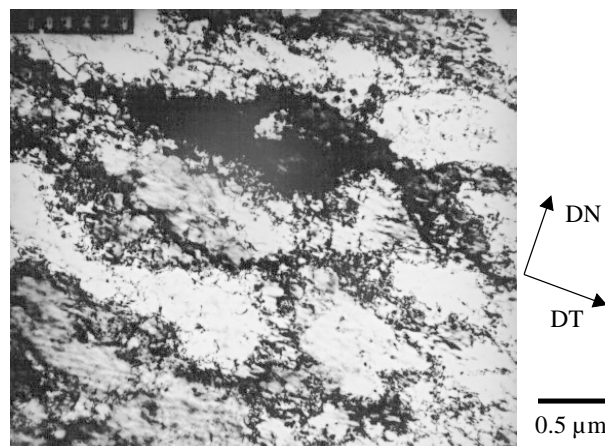


Figure 7-22. Structure cellulaire des dislocations dans le monocristal Mono-B. Le trait correspond à $0,5 \mu\text{m}$ et l'axe vertical est parallèle à DN.

Ceci confirme l'idée de glissement multiple et la population de plusieurs systèmes de glissements, ce qui constitue l'hypothèse de base pour le calcul des facteurs géométriques.

D'autre part, l'évaluation du rayon de coupure effective R_e , dans le cas des monocristaux tout comme dans le cas du multicristal, fournit des valeurs comprises entre 0.1 et 0.2 μm . En comparaison avec la Figure 7-22, nous pouvons constater que R_e est inférieur à la taille des cellules, qui est supérieure à 1 μm .

7.3.3. Anisotropie de distribution de dislocations

Afin de découvrir une éventuelle anisotropie de distribution de dislocations due au laminage, un cube de dimension 5×5×5 mm³ a été découpé dans le volume du monocristal Mono-A, dont les surfaces sont perpendiculaires aux trois directions principales du laminage DN, DT et DL (Figure 7-23). Par souci de simplicité, ces trois surfaces seront appelées, respectivement, SN, ST et SL.

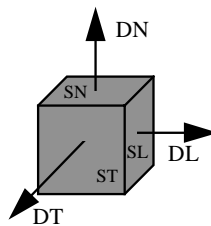


Figure 7-23. Le cube découpé dans le monocristal Mono-A.

Sur chaque surface, nous avons effectué cinq mesures de profils et nous avons tracé dans la présentation $\rho_i^* = f(C_m)$, l'ensemble de tous les points obtenus (Figure 7-24). Nous pouvons constater que l'ensemble de points se divise en deux groupes : le premier rassemblant les mesures obtenues à partir de SN et SL et s'alignant sur une droite de pente $\rho_{NL} = 10.4 \cdot 10^{14} \text{ m}^{-2}$, et le deuxième regroupant les mesures effectuées sur ST avec la pente $\rho_T = 6.9 \cdot 10^{14} \text{ m}^{-2}$. Etant donnée que la densité de dislocations réelle doit être unique, ce résultat implique que la population des dislocations n'est pas aléatoire et que les contrastes moyens C_m ne permettent pas de tenir compte des résultats expérimentaux. Afin d'obtenir la même densité de dislocations réelle sur toutes les faces, une correction sur les facteurs géométriques C_m est nécessaire. Toutefois, nous pouvons constater les remarques suivantes :

- 1) Les mesures concernant les surfaces SL et SN, semblent suivre la même droite avec une pente proche de la valeur donnée dans le Tableau 7-4 qui a été calculée à partir des profils mesurés sur SN. Ceci montre que, tant que le vecteur de diffraction \mathbf{g} reste proche de DN et DL, la densité de dislocations apparente ρ^* est peu sensible à la direction du vecteur \mathbf{g} . Par conséquent, le contraste des dislocations doit suivre le même critère.
- 2) Etant donné que les densités de dislocations apparentes (ρ^*) sur la surface ST sont inférieures à celles obtenues à partir des surfaces SN et SL, les contrastes des dislocations sur les profils mesurés sur ST doivent être inférieurs aux contrastes des dislocations sur les autres

profils. Ceci porte un renseignement important sur la nature des dislocations engagées dans la déformation plastique du laminage. Ceci va être discuté dans le chapitre suivant.

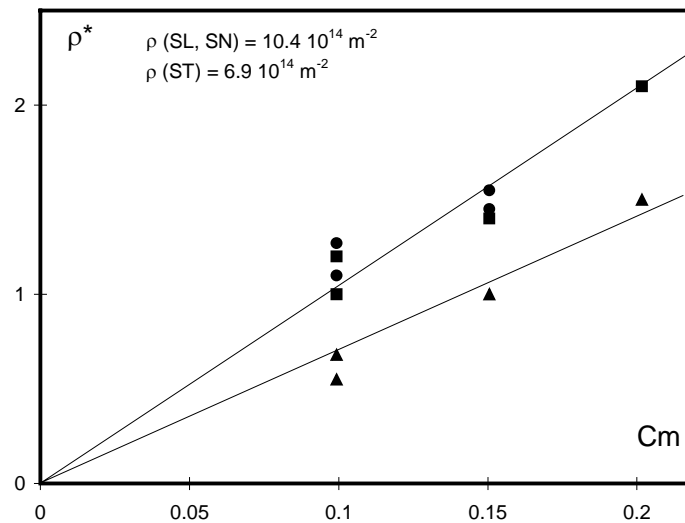


Figure 7-24. Evaluation des densités de dislocations à partir des trois faces : face SN (cercles), face ST (triangles), face SL (rectangles).

7.4. Ecroissage intragranulaire dans les bicristaux

Les bicristaux ont été découpés selon une configuration géométrique simple : le plan du joint est perpendiculaire à l'axe de laminage (Figure 4-2). Trois bicristaux (Bi-A, Bi-B et Bi-C) ont été examinés par les rayons X. Les mesures de profils ont été effectuées loin des joints de grains. Les orientations finales et les densités de dislocations sont montrées dans le Tableau 7-5. La densité de dislocations dans le grain 2 du Bi-C a été évaluée à partir d'un seul profil, car il n'a pas été possible de dépouiller les autres à des problèmes d'enregistrement.

| nom | orientation | ε | $\rho (10^{14} \text{ m}^{-2})$ |
|----------------|----------------------------------|---------------|---------------------------------|
| Bi-A (grain 1) | (8 1 9) [$\bar{4}$ 4 3] | 0,44 | 9,1 |
| Bi-A (grain 2) | (4 3 9) [$\bar{3}$ 4 0] | 0,44 | 9,2 |
| Bi-B (grain 1) | (5 $\bar{1}$ 5) [$\bar{1}$ 1 1] | 0,40 | 9,9 |
| Bi-B (grain 2) | (2 1 5) [$\bar{5}$ 5 1] | 0,40 | 8,8 |
| Bi-C (grain 1) | (2 1 4) [1 $\bar{2}$ 0] | 0,40 | 11 |
| Bi-C (grain 2) | (1 0 2) [4 $\bar{1}$ $\bar{2}$] | 0,40 | 8,6 ? |

Tableau 7-5. Densités de dislocations intragranulaires dans les bicristaux.

Nous pouvons constater que les deux grains dans Bi-A sont caractérisés par la même densité de dislocations, alors que dans Bi-C, le grain n° 1 semble largement plus écroui que le grain n° 2, avec les densités de dislocations respectives de 11 et $8.6 \cdot 10^{14} \text{ m}^{-2}$. Le bicristal Bi-B présente un cas intermédiaire avec une différence de densités significative. Ce dernier a fait l'objet d'une étude détaillée au microscope électronique à transmission (MET). La microstructure obtenue par le MET (Figure 7-25) révèle une structure cellulaire dans les deux

grains du multicristal. L'ensemble des photos réalisées indique que la taille des cellules de dislocations dans le grain n°1 est inférieure à celle dans le grain n°2.

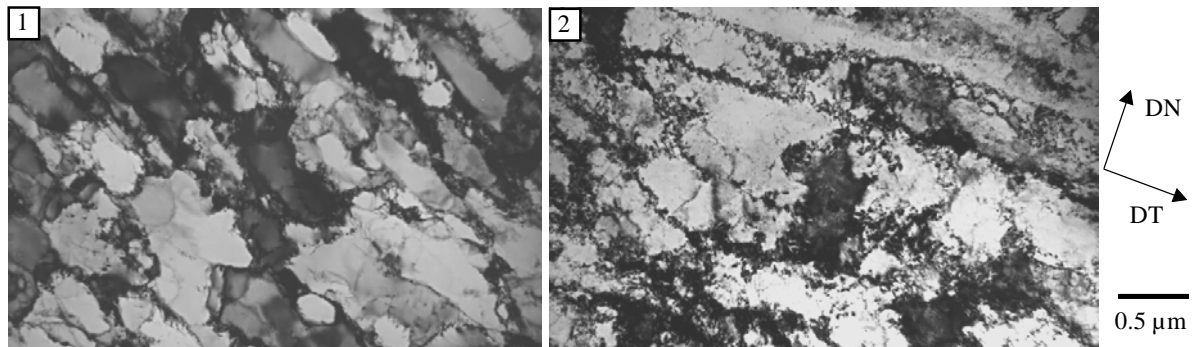


Figure 7-25. Microstructure des grains n° 1 et n° 2 dans le bicristal Bi-B, avec $\rho_1 = 9,9$, $\rho_2 = 8.8 \cdot 10^{14} \text{ m}^{-2}$.

7.5. Diffraction en transmission - Rayonnement synchrotron

7.5.1. Comparaison réflexion - transmission

Afin de pouvoir obtenir une vision relative et un recul sur la technique de diffraction en réflexion utilisée au laboratoire, nous avons effectué des mesures en transmission sur plusieurs zones qui ont déjà fait l'objet d'une exploration en réflexion.

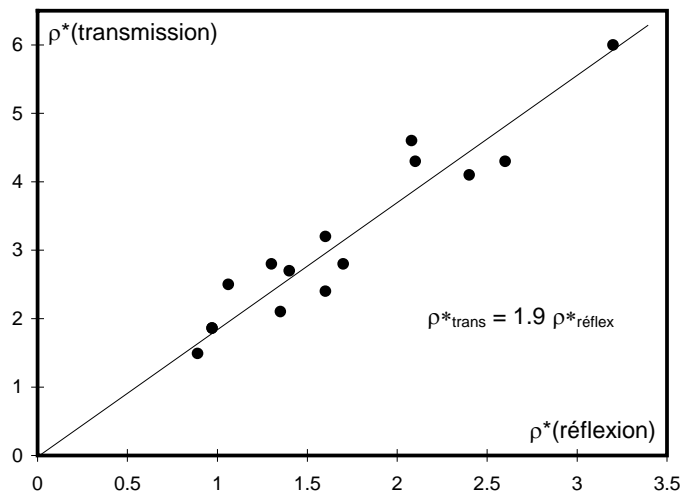


Figure 7-26. Comparaison entre les densités de dislocations apparentes mesurées en réflexion et en transmission (ESRF)

Nous pouvons ainsi comparer directement les densités de dislocations apparentes mesurées par les deux techniques (Figure 7-26). Dans cette figure nous avons tracé ρ^* (ESRF) en fonction de ρ^* (laboratoire) pour chaque famille de plans diffractants. La courbe montre, malgré une dispersion relative des points, que les densités apparentes obtenues en transmission sont proches du double de celles obtenues en réflexion. En effet, les points dans

la Figure 7-26 ont une tendance d'alignement sur une droite passant par l'origine de pente proche de 2 (1.9 exactement), et ceci est indépendant du facteur géométrique C . Par conséquent, quelle que soit la distribution des dislocations, la valeur estimée en réflexion de la densité de dislocations réelle est proche de la moitié de celle évaluée en transmission.

Pour illustrer ceci, nous avons tracé, dans la représentation $\rho_i^* = f(C_i)$, les résultats d'analyses de profils obtenus par les deux méthodes (transmission et réflexion) pour le grain n° 1 du bicristal Bi-B (Figure 7-27). Nous pouvons facilement constater un écart important entre les pentes des deux droites. La discussion de cette divergence est présentée dans le chapitre suivant.

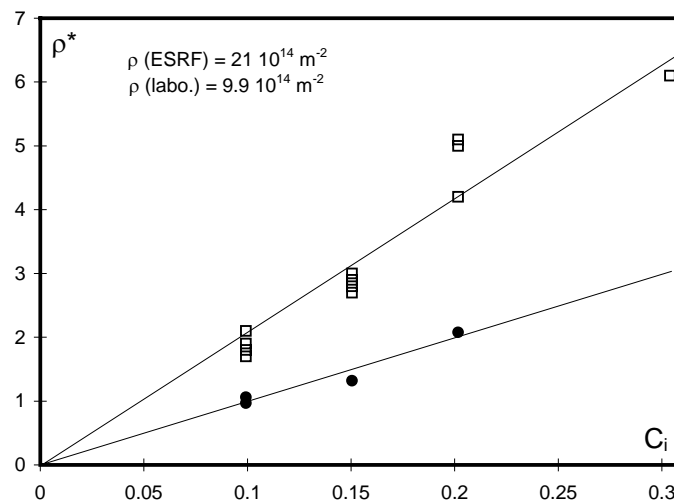


Figure 7-27. Comparaison entre les résultats des analyses de profils obtenus en transmission à l'ESRF (carrés) et en réflexion au laboratoire (cercles).

7.5.2. Ecroutissage intergranulaire

La haute intensité du rayonnement au synchrotron de Grenoble permet de diminuer la taille des fentes, ce qui conduit à réduire la taille du spot du rayonnement sur l'échantillon. Nous avons pu ainsi explorer la zone du voisinage du joint de grains dans le bicristal Bi-B et étudier l'influence du joint sur la densité de dislocations. Quatre zones ont été explorées comme le montre la Figure 7-28.

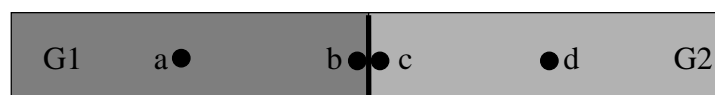


Figure 7-28. Le bicristal Bi-B de 70 mm de longueur, les cercles indiquent l'impact des mesures de rayons X.

Les points a et d correspondent aux points explorés au laboratoire et qui ont donné les valeurs de la densité de dislocations listées dans le Tableau 7-5. La taille du faisceau dans les zones b

et c était d'environ $0.2 \times 0.2 \text{ mm}^2$. Nous avons pu évaluer les densités de dislocations dans chaque zone du bicristal dont on retrouve les valeurs dans le Tableau 7-6.

| point de mesure | ρ (10^{14} m^{-2}) (labo.) | ρ (10^{14} m^{-2}) (ESRF) |
|-----------------|---|--|
| Bi-B - (a) | 9,9 | 21 |
| Bi-B - (b) | - | 18 |
| Bi-B - (c) | - | 17 |
| Bi-B - (d) | 8,8 | 15 |

Tableau 7-6. Résultat de l'ESRF sur les densités de dislocations dans le bicristal Bi-B (Figure 7-28), les valeurs trouvées au laboratoire sont données pour comparaison.

Les résultats indiqués dans ce tableau révèlent que la densité de dislocations au voisinage du joint (aux points b et c), semble la même ($17.5 \cdot 10^{14} \text{ m}^{-2}$) et correspond à la moyenne des densités des deux grains.

7.6. Contraintes internes à longue portée

Nous avons vu dans le chapitre 5 que l'asymétrie de profils de diffraction peut être expliquée, selon le modèle composite de Mughrabi, par l'existence des contraintes internes à longue portée. Nous avons suivi la procédure décrite dans le chapitre précédent pour l'évaluation des déformations résiduelles dans les parois et dans les cellules de dislocations, respectivement, $\Delta\epsilon_p$ et $\Delta\epsilon_c$. Nous avons constaté, dans les échantillons de cuivre laminés à 35 %, que $\Delta\epsilon_p$ varie en fonction de l'orientation cristallographique et du vecteur de diffraction \mathbf{g} . Les mesures effectuées sur tous les échantillons révèlent que les déformations résiduelles déterminées à partir des profils $\{200\}$ sont les plus élevées. Ceci montre, dans chaque grain, que *l'axe $\langle 100 \rangle$ le plus proche de DN est un axe principal des déformations résiduelles et par conséquent un axe principal des contraintes résiduelles*. Le Tableau 7-7 illustre les résultats obtenus à partir des profils $\{200\}$ dans le multicristal. Les contraintes sont déterminées à partir des déformation en utilisation le module de Young dans la direction $\langle 100 \rangle$ dans le cuivre ($E_{\langle 100 \rangle} = 65 \text{ GPa}^*$).

| Grain | δ (%) | f_p (%) | $\Delta\epsilon_p$ (10^{-3}) | $\Delta\sigma_p$ (MPa) | ρ (10^{14} m^{-2}) |
|---------|--------------|-----------|----------------------------------|------------------------|-------------------------------------|
| Grain 1 | 1.2 | 15 | -1.5 | -97 | 12 |
| Grain 2 | 1.9 | 13 | -1.2 | -78 | 10.5 |
| Grain 3 | 5.3 | 12 | -1.6 | -104 | 8.2 |
| Grain 4 | 2.2 | 19 | -1.5 | -97 | 9.7 |
| Grain 6 | 4.8 | 15 | -1.4 | -91 | 9.6 |
| Grain 7 | 1.4 | 19 | -1.2 | -78 | 11.3 |

Tableau 7-7. Déformations résiduelles dans le multicristal obtenues à partir des profils $\{200\}$, δ : facteur d'asymétrie, f_p fraction volumique des parois et $\Delta\epsilon_p$ déformations résiduelles.

* I.C. Noyan et J.B. Cohen, dans « Residual Stress », Springer-Verlag New York Inc. 1987.

Les déformations résiduelles sont négatives (compression) dans tous les grains et ne semblent pas corrélées directement à la densité de dislocations dans le grain. D'autre part, les valeurs des contraintes internes sont très élevées et indiquent un niveau important d'écrouissage dans les parois. Dans les cellules, les contraintes correspondantes peuvent être déduites à partir des fractions volumiques (voir chapitre 5) :

$$\Delta\sigma_c = -\frac{f_p}{f_c} \Delta\sigma_p, \quad (7-3)$$

ce qui donne des valeurs de $\Delta\sigma_c$ comprises entre 10 et 20 MPa.

Les valeurs de contraintes $\Delta\sigma_p$ et $\Delta\sigma_c$ indiquées ci-dessus sont donc les valeurs propres associées à l'axe principal de contraintes qui est parallèle à la direction cristallographique $\langle 100 \rangle$ le plus proche de DN. Malheureusement, la détermination des autres axes principaux avec les valeurs propres correspondantes n'est pas possible dans le cas général, car nous n'avons pas accès aux surfaces perpendiculaires aux directions DT et DL.

7.7. Erreur expérimentale

Nous avons vu dans le chapitre précédent que l'erreur expérimentale n'est pas facile à déterminer et qu'elle varie d'un profil à l'autre. Outre la précision expérimentale, la régression linéaire utilisée pour l'évaluation de la densité de dislocations réelle, conduit à une erreur statistique dépendant du nombre de mesures effectuées dans chaque grain. Nous avons vu également que cette erreur est mélangée avec l'erreur d'interprétation due à la détermination des facteurs géométriques C_i .

D'une façon générale, la détermination de ρ fait intervenir la précision sur ρ^* et sur C_i .

Précision sur ρ^* : grâce aux traitements de profils effectués dans les mesures présentées dans les paragraphes précédents, cette erreur peut être estimée d'une façon moyenne à 10 % de la valeur initiale. Les profils provoquant une instabilité numérique dans le programme d'évaluation de ρ^* , ne sont pas traités et ils ne sont pris en compte dans la régression linéaire.

Précision sur C_i : elle est corrélée aux hypothèses nécessaires pour le calcul de C_i . Elle se traduit par la dispersion des points $\rho_i^* = f(C_i)$ autour de la meilleure régression linéaire passant par l'origine (Figure 7-18). Par conséquent, comme on peut le constater sur les figures (Figure 7-20, Figure 7-21), cette erreur varie d'un grain à l'autre, mais nous pouvons considérer qu'en général, cette imprécision conduit à une **erreur sur l'évaluation de la densité de dislocations d'environ 5 %**.

Différence significative d'écrouissage : si les points $\rho_i^* = f(C_m)$ concernant deux grains ne peuvent être distingués comme appartenant à deux droites séparées (Figure 7-21), nous ne pouvons pas confirmer qu'il existe une différence significative entre leurs densités de dislocations. Dans ce cas, nous pouvons considérer que l'erreur expérimentale de la détermination de la densité de dislocations dépasse la différence éventuelle entre les deux densités.

7.8. Conclusion

Les résultats montrés dans ce chapitre illustrent les multiples visages de l'état d'écroutissage dans chaque échantillon. En effet, la densité de dislocations et les contraintes internes semblent varier en fonction de plusieurs paramètres :

- l'orientation cristallographique,
- l'anisotropie du processus de déformation,
- l'hétérogénéité dans l'épaisseur des échantillons,
- l'effet des joints de grains.

Une synthèse de ces résultats est donc nécessaire afin de présenter une description cohérente de l'énergie stockée. Le chapitre suivant est consacré à la discussion de ces résultats et à la conclusion qui nous permettra de compléter notre projet scientifique par les expériences de recristallisation.

8. Discussion des résultats

8.1. Introduction

Le chapitre 6 a été consacré aux résultats concernant les différents aspects de l'état déformé. La plupart de ces résultats (densité et nature des dislocations, rayon de coupure ...) constitue une caractérisation intragranulaire, qui, compte tenu de la taille de grains, représente également une description macroscopique. A une échelle plus fine, nous avons mis en évidence l'existence d'une anisotropie caractéristique du laminage ainsi qu'une hétérogénéité de déformation dans l'épaisseur de l'échantillon.

Nous montrons dans ce chapitre la procédure d'évaluation des énergies stockées associées aux dislocations et aux contraintes internes. Nous discutons également de l'influence et de l'importance de l'anisotropie du laminage et de l'hétérogénéité dans l'épaisseur sur cette énergie.

8.2. Energie stockée associée aux dislocations

A l'échelle macroscopique, nous pouvons constater que la seule forme d'hétérogénéité présente dans nos échantillons est d'origine intragranulaire. Loin de la zone perturbée par les joints de grain (quelques centaines de microns), ***La mesure de la densité de dislocations est caractéristique de la zone intragranulaire du grain***, car les mesures effectuées dans différentes zones donnent, à l'erreur expérimentale près, la même densité de dislocations. Dans cette région l'état d'écroutissage semble constant et stable. C'est pourquoi, nous distinguons deux densités de dislocations inter et intragranulaire pour chaque grain.

Vraisemblablement, dans les échantillons multicristallins, le comportement intragranulaire n'est pas caractéristique seulement de l'orientation cristallographique, mais également de l'environnement du grain qui conduit à imposer d'autres conditions aux limites.

Dans le chapitre 1, nous avons montré que l'énergie stockée par unité de volume peut être évaluée selon la formule :

$$E_{st} = \alpha \mu \rho b^2 \ln \frac{R_e}{b} . \quad (8-1)$$

Les seules variables connues sans ambiguïté sont le module de cisaillement μ et le vecteur de Burgers $\mathbf{b} = \frac{1}{2} \langle 110 \rangle$, qui est le seul vecteur de déplacement actif dans les métaux de structure cfc à la température ambiante. En revanche, la détermination des autres valeurs : la constante α qui dépend de la nature des dislocations, le rayon de coupure R_e qui dépend de l'organisation des dislocations et la densité ρ qui dépend de l'hypothèse prise sur les poids des systèmes de glissement, fera l'objet de la discussion dans les paragraphes suivants.

8.2.1. Rayon de coupure des dislocations

Nous avons vu dans le chapitre 5 que les analyses de l'élargissement de profils de diffraction peuvent fournir deux paramètres : la densité de dislocations apparente ρ^* et le rayon de coupure effectif R_e . Ce dernier représente la portée moyenne du champ des déformations associé aux dislocations. La valeur maximale de R_e , atteinte pour la distribution aléatoire des dislocations [117,118], est proche de la taille du cristal. Comme nous l'avons montré dans le chapitre 1, cette limite est peu plausible dans un matériau réel et les dislocations ont tendance à s'organiser dans des structures à faible énergie sous l'action des contraintes externes.

Dans un monocristal déformé plastiquement avec une structure cellulaire de dislocations, nous pouvons distinguer deux variables caractéristiques de la microstructure : la densité de dislocations (ρ) et la taille des cellules (d). D'autres longueurs « artificielles » ont été introduites, comme la taille des zones de distribution aléatoire restreinte [117] et la dimension des domaines cohérents de diffraction [119]. Mais ces longueurs n'ont pas de signification physique directe et leur utilisation ne semble pas conduire à une meilleure compréhension de la déformation plastique.

Les résultats montrés dans le chapitre précédent prouvent que R_e ne varie pas significativement avec la densité de dislocations. Par exemple, pour le multicristal (voir paragraphe 6-2-1), la valeur moyenne de R_e pour tous les grains est d'environ 0,15 μm . La comparaison avec les observations obtenues par MET (voir figure 6-6, 6-9), indique que cette valeur est inférieure à la taille moyenne des cellules (d) comprise entre 0,4 et 1 μm selon le grain. On retrouve fréquemment cet ordre de grandeur de taille de cellules dans la littérature (voire par exemple [120,121]). Etant donné que $d > R_e$, nous pouvons conclure que la structure cellulaire de dislocations représente un mode d'organisation efficace où le champ de déformation associé à une dislocation ne s'étend en moyenne qu'à quelques fractions de la taille des cellules.

Par ailleurs, nous constatons que cette valeur ($R_e = 0,15 \mu\text{m}$) est légèrement supérieure à la distance moyenne entre les dislocations $\rho^{-0.5}$, variant entre 0,02 et 0,03 μm . Ceci conduit, en comparaison avec l'approche de Wilkens [122], à une valeur de M (paramètre d'écrantage)

d'environ 6, ce qui implique qu'il n'y a pas de forte corrélation dans la distribution des dislocations [123] ; condition nécessaire pour l'application du modèle de Groma-Ungar-Wilkens [124].

Par ailleurs, $R_e = 0,15 \mu\text{m}$, signifie que la portée des dislocations est largement supérieure à la distance entre les dislocations dans les parois de cellules [125]. Ceci confirme, comme cela a été suggéré par Kuhlmann-Wilsdorf [126], que toutes les dislocations n'appartiennent pas à des structures à faible énergie.

Nous avons vu que, sur un large domaine de déformation, ce rayon diminue plus rapidement que la fonction $\rho^{-0.5}$ (voir chapitre 1). En effet, au fur et à mesure que la déformation plastique progresse, les dislocations adoptent de nouveaux modes d'organisation qui permettent d'écranter plus efficacement les champs des déformations qui leur sont associés. Dans ce contexte, le fait que le rayon de coupure se trouve constant dans nos échantillons pourrait apparaître surprenant. Nous pouvons expliquer cela par le fait que, à déformation constante et dans une petite marge de variation de ρ , les dislocations ne changent pas d'une façon drastique leurs structures caractéristiques. Les microstructures révélées par le MET dans tous les grains (voir chapitre précédent), illustrent invariablement une organisation cellulaire des dislocations. Bien que la taille de ces cellules varie avec la densité de dislocations, cette variation, vraisemblablement, ne provoque pas de changement significatif du rayon de coupure.

8.2.2. Densité de dislocations

L'évaluation de la densité de dislocations passe inévitablement par la considération des hypothèses sur la population des systèmes de glissement et la nature des dislocations.

Nous avons vu dans le chapitre précédent que les contrastes moyens C_m permettaient de tenir compte des résultats expérimentaux. Initialement, ces valeurs sont calculées à partir d'une hypothèse peu plausible imposant un poids identique des systèmes de glissement avec une égalité de dislocations vis et coins. Toutefois, les valeurs de contraste calculées en supposant un glissement multiple (population de plus de quatre systèmes), sont très proches des valeurs C_m . Nous pouvons alors conclure que *les contrastes moyens (C_m) peuvent être utilisés quelle que soit la déformation plastique quand celle-ci provoque un glissement multiple.*

Les preuves expérimentales sur l'existence du glissement multiple dans l'état déformé de nos échantillons, sont fournies par les observations de la microstructure par le MET. Elles confirment que le seul mode d'organisation des dislocations dans tous les échantillons est la structure cellulaire. Une telle structure nécessite l'activation de plusieurs systèmes de glissement. D'autre part, les contrastes moyens (C_m) ont été utilisés avec succès dans différentes conditions expérimentales : polycristaux déformés par fluage en compression [125] et échantillons submicroniques déformés par passages de sens alternés dans un conduit coudé (*equal-channel angular pressing*) [127].

Par ailleurs, il est difficile de comparer les valeurs de densité de dislocations obtenues dans notre travail aux valeurs données dans la littérature à cause de l'absence de travaux effectués dans des conditions expérimentales similaires. Toutefois nous pouvons citer le travail de Müller et al. [128] sur les polycristaux de cuivre laminés à différents taux. Dans ce travail, seulement les grains d'orientations $\{100\}\langle uvw \rangle$ et $\{hkl\}\langle 100 \rangle$ ont été sélectionnés pour les

mesures. Les densités de dislocations trouvées avec les analyses de profils de diffraction pour $\varepsilon = 0,22$ et $1,5$ sont de $8,0$ et $17 \cdot 10^{14} \text{ m}^{-2}$. Nous pouvons également rappeler les mesures de la densité de dislocations effectuées par Verdier et al. [129]. La valeur de ρ mesurée par résistivité dans un alliage Al-2,5Mg laminé à $\varepsilon = 0,5$, est de $1,1 \cdot 10^{15} \text{ m}^{-2}$. Ces valeurs sont compatibles avec nos valeurs comprises entre 8 et $12 \cdot 10^{14} \text{ m}^{-2}$ pour $\varepsilon = 0,45$.

La plupart des autres valeurs de densité ont été corrélées aux cissions critiques $\rho = f(\tau_c)$ estimées en traction (voir la synthèse des données effectuée par S.J. Basinski et al. [130]). Malheureusement, dans le cas du laminage, nous ne disposons pas de données relatives aux contraintes.

8.2.3. Calcul de l'énergie stockée

Etant donné que le rayon de coupure moyen ne change pas d'une façon significative avec la densité de dislocations dans nos échantillons, nous pouvons considérer, dans une première approximation, qu'il est constant et égal à $0,15 \mu\text{m}$.

Dans ce cas, *l'énergie stockée est considérée comme proportionnelle à la densité de dislocations réelle dans le matériau*. Le coefficient de proportionnalité β est évalué à partir de l'équation (7-1) par la formule :

$$\beta = \alpha \mu b^2 \ln \frac{R_e}{b} . \quad (8-2)$$

Etant donnée que α dépend du caractère des dislocations, nous pouvons considérer les résultats du chapitre précédent pour suggérer une population mixte (50 % vis, 50 % coin), ce qui donne $\alpha = 0,1$. Pour le cuivre, b est une constante égale à $0,256 \text{ nm}$ et μ peut être évalué par une moyenne d'environ 48 GPa [131]. La valeur de β alors estimée à $2,0 \cdot 10^{-9} \text{ N}$, permet de calculer l'énergie stockée *par mole* dans le cuivre :

$$E_{st} = 1.44 \cdot 10^{-14} \times \rho \quad (8-3)$$

Pour donner un ordre de grandeur, l'énergie associée à une densité de dislocation de 10^{15} m^{-2} , est de $14,4 \text{ J/mol}$. C'est effectivement l'ordre de grandeur de l'énergie stockée donnée par calorimétrie dans plusieurs travaux expérimentaux, par exemple, dans les polycristaux de cuivre déformés en compression par White et al. [132] et en laminage par Mandal et al. [133], dans les monocristaux et polycristaux de cuivre déformés en traction par Rönnpagel et al. [134] et même dans les polycristaux de nickel déformés par laminage [135].

8.3. Contribution des contraintes internes

Dans le chapitre 6, nous avons évalué les contraintes internes à longue portée par la décomposition des profils asymétriques selon le modèle composite de Mughrabi. Les valeurs de $\Delta\sigma_p$ trouvées sont comprises entre 80 et 100 MPa avec une fraction volumique moyenne

associée aux parois d'environ 15 %. Ceci conduit à des valeurs de $\Delta\sigma_c$ comprises entre 10 et 20 MPa. Nous pouvons alors estimer l'énergie stockée par unité de volume selon la formule :

$$E_{st} = \frac{1}{2E} \left[0,15 \Delta\sigma_p^2 + 0,85 \Delta\sigma_c^2 \right]. \quad (8-4)$$

L'énergie maximale associée aux valeurs de $\Delta\sigma_c$ et $\Delta\sigma_p$ maximales, est d'environ 7.1 kJ/m³. Cette valeur correspond à 0.35 % de l'énergie associée aux dislocations. Ceci nous permet de confirmer la conclusion du chapitre 1 : *l'énergie stockée associée aux contraintes internes à longue portée est largement négligeable devant celle associée aux dislocations.*

8.4. Anisotropie de la déformation plastique par laminage

La figure 6-8 du chapitre précédent ouvre la voie à un autre niveau d'exploitation de l'élargissement de profils de diffraction. La précision de cette technique est, en effet, suffisante pour détecter l'anisotropie de la déformation plastique associée au laminage. Nous pouvons ici rappeler que cette anisotropie a été constatée également par Müller et al. [128] dans les polycristaux de cuivre déformés par laminage.

Du point de vue théorique et dans les conditions idéales de laminage, la compression dans la direction DN est complètement compensée par l'allongement dans la direction DL. Autrement dit, la composante des vecteurs de Burgers des dislocations dans la direction DT n'est pas « utile » à la déformation plastique. Par conséquent, nous pouvons penser que la population des dislocations présentes après une déformation par laminage n'est pas isotrope par rapport aux directions principales de laminage.

Ceci est précisément la conclusion que l'on peut tirer de la figure 6-8. Le fait que les densités de dislocations apparentes sur la face ST sont largement inférieures à celles des faces SN et SL, montre que les dislocations n'ont pas le même contraste dans la direction DT que dans les directions DN et DL. Conclusion : *dans le cas du laminage, les facteurs de contrastes moyens C_m ne semblent pas appropriés pour l'évaluation de la densité de dislocations réelle.*

« Heureusement », ceci ne remet pas en question les conclusions précédentes sur l'énergie stockée associée aux dislocations. Deux raisons nous permettent de continuer à caractériser la population des dislocations par les contrastes C_m :

1) dans tous les grains, pour les profils obtenus à partir de la surface SN (voir chapitre 6), les points $\rho_i = f(C_m)$ sont effectivement alignés sur une droite passant par le centre. Par conséquent, les dislocations semblent être distribuées d'une façon isotrope (indépendamment de l'orientation du vecteur de diffraction) quand celui-ci reste proche de DN. C'est pourquoi, les facteurs de contraste réels peuvent être considérés, d'une certaine façon, comme des **moyennes corrigées C_{mc}** .

2) L'évaluation de C_{mc} , compte tenu de la remarque précédente, peut être effectuée par une **correction proportionnelle**, c'est-à-dire qu'il suffit de considérer des **facteurs de correction** Γ_{DN} , Γ_{DT} et Γ_{DL} , pour les surfaces respectives SN, ST et SL. Ainsi, nous pouvons écrire :

- a) $C_{mc} = \Gamma_{DN} C_m$, pour les mesures effectuées sur la face SN,
- b) $C_{mc} = \Gamma_{DT} C_m$, pour les mesures effectuées sur la face ST et
- c) $C_{mc} = \Gamma_{DL} C_m$, pour les mesures effectuées sur la face SL.

Compte tenu de l'état de déformation associé au laminage (compression = allongement), nous pouvons prévoir que Γ_{DN} est égal à Γ_{DL} . Ceci est confirmée expérimentalement dans la figure 6-8, car les points correspondants aux profils mesurés sur SN et SL s'alignent sur la même droite. Par ailleurs, l'utilisation des facteurs de contraste corrigés C_{mc} à la place de C_m , ne provoque qu'un changement de la pente (valeur absolue de la densité de dislocation). Ce changement est inversement proportionnel au facteur de correction utilisé. **C'est pourquoi, cette correction ne change pas l'ordre des densités de dislocations établi avec les facteurs moyen C_m .**

L'évaluation des facteurs Γ_i nécessite la considération des systèmes de glissement les plus sollicités dans le laminage, ce qui peut constituer une perspective d'étude ultérieure.

Cependant, ici le point important qui nous a permis de poursuivre notre travail, est que les facteurs de correction sont caractéristiques du processus de laminage et de la face d'observation, et non pas de l'orientation du grain. Ceci permet de considérer ces facteurs comme constants pour tous les échantillons et nous autorise à continuer à utiliser C_m pour l'évaluation de la densité de dislocations.

8.5. Rotations cristallographiques induites par le laminage

Etant donné que le laminage conduit à un changement de forme des échantillons multicristallins (voir Figure 6-1), ce qui rend impossible le maintien d'un repère macroscopique fixe, il n'est pas facile d'évaluer la rotation cristallographique d'un grain donné. La comparaison entre l'orientation initiale (avant laminage) et l'orientation « moyenne » finale, est donc forcément approximative. Toutefois, cette comparaison nous fournit l'ordre de grandeur. Les résultats obtenus dans le cas du multicristal, révèlent une rotation cristallographique significative dans chaque grain. Elle varie entre 10° pour le grain n° 2 et 18° pour le grain n° 7. Aucune corrélation directe avec les densités de dislocations intragranulaires n'a pu être trouvée. Ceci n'est pas surprenant dans la mesure où de telles rotations macroscopiques sont essentiellement reliées à la quantité et à la direction du glissement sur chaque système. Même dans le cas où cette rotation est influencée par l'effet du voisinage et que ceci génère des dislocations d'accommodation géométrique [136], ces dislocations se concentrent aux zones de fortes incompatibilités de déformation, associées par plusieurs auteurs aux zones intergranulaires [136].

8.6. Ecrouissage intergranulaire

A l'échelle mésoscopique, nous pouvons considérer la variation de la densité de dislocations au voisinage des joints de grains. Nos mesures effectuées à l'ESRF (Synchrotron de Grenoble) et montrées dans le chapitre précédent, révèlent une variation significative de la densité de dislocations auprès des joints de grains (Tableau 6-6). La densité intergranulaire,

égale de part et d'autre du joint, est proche de la moyenne des densités de dislocations dans les deux grains adjacents. Ainsi, le grain le moins écroui se durcit et le grain le plus écroui s'adoucit au voisinage du joint. Il est certain que nous ne pouvons pas généraliser ce résultat sur le comportement intergranulaire révélé dans un cas spécifique d'un bicristal laminé à 35 % à l'ensemble de tous les joints. Mais, ce résultat montre que les joints de grains ne constituent pas systématiquement des zones à fort niveau d'écrouissage. Ceci peut nous informer que les deux grains adjacents n'accommodent pas de la même façon le manque de compatibilité qui résulte de la déformation plastique [136].

8.7. Hétérogénéité dans l'épaisseur de l'échantillon

La figure 6-10, montre que l'état déformé après laminage ne semble pas conduire au même élargissement dans le cas des profils obtenus en transmission qu'en réflexion. Etant donnée que ceci a été constaté d'une façon générale (quel que soit le grain et quelle que soit la réflexion choisie), nous ne pouvons pas attribuer cela seulement à la nature ou à la distribution des dislocations, c'est-à-dire à un effet de contraste. Nous pouvons imaginer deux raisons possibles :

1) mécanismes de la déformation plastique. L'état des contraintes engendré par le processus du laminage est loin d'être simple et une importante hétérogénéité dans l'épaisseur est théoriquement prévisible[137] et expérimentalement prouvée[138,139]. Si cette hypothèse est confirmée, la figure 6-10 implique que *le laminage conduit à un écrouissage largement plus élevé au cœur de l'échantillon que dans la zone proche de la surface.*

2) comportement caractéristique de la surface libre. La couche concernée par la diffraction des rayons X en réflexion dans le cuivre ne dépasse pas quelques microns [140,141]. De nombreuses études et travaux (voir par exemple [142,143]) ont montré que la couche de la surface à quelques centaines de microns de profondeur peut avoir des caractéristiques différentes de celles du cœur de l'échantillon. Par conséquent, l'élargissement des profils de diffraction en réflexion peut ne pas être représentatif de l'écrouissage réel loin de la surface. En revanche, en transmission, cette couche ne joue qu'un rôle mineur compte tenu de sa faible fraction volumique par rapport au volume diffractant. Ceci peut expliquer également l'écart entre les résultats en réflexion et en transmission. Si cette hypothèse est proche de la réalité, *la « vraie » densité de dislocations serait donnée par les analyses des profils de diffraction obtenus en transmission et non pas en réflexion.*

Du point de vue expérimental, il est difficile de trancher entre ces deux hypothèses. Par exemple, pour mettre en évidence l'éventuelle relaxation des structures de dislocations près de la surface (hypothèse 2), il faudrait pouvoir bloquer cette relaxation afin d'obtenir un état de référence. Nous pouvons également étudier l'influence de la surface en faisant varier la profondeur de pénétration des rayons X, par exemple en changeant la longueur d'onde utilisée.

Le point important à signaler est que les densités de dislocations apparentes obtenues en réflexion et en transmission semblent proportionnelles. Autrement dit, les deux techniques, à un facteur près, donnent la même description de la densité de dislocations, et chacune est représentative de l'écrouissage du matériau.

8.8. Conclusion

Nous pouvons considérer dans nos échantillons que la densité de dislocations, évaluée avec les facteurs de contraste moyens C_m à partir des profils mesurés sur la surface de laminage, est proportionnelle à l'énergie stockée. Le facteur de proportionnalité, dans une première approximation, est indépendant de l'orientation et du voisinage du grain. Il est fonction des paramètres suivants : les variables de l'équation 7-1, un facteur lié à l'anisotropie de la déformation macroscopique (laminage) et un facteur corrélé à la technique de diffraction utilisée.

En considérant seulement l'équation 7-1, les valeurs de l'énergie stockée calculées à partir de nos résultats expérimentaux sont du même ordre de grandeur que les valeurs rencontrées dans la littérature. Ceci montre que les facteurs de correction mentionnés ci-dessus ne changent que légèrement la valeur de l'énergie stockée donnée par la formule $E_{st} = 2 \cdot 10^{-9} \times \rho$.

La description de l'état d'écrouissage présentée dans ce chapitre nous permet de passer à l'étape suivante de ce travail : les expériences de recristallisation, dont les résultats font l'objet du chapitre suivant.

9. Effet de l'énergie stockée sur la recristallisation

9.1. Introduction

Dans le chapitre 7, nous avons présenté une description de l'état d'écroutissage dans nos échantillons de cuivre laminés à 33 %. Nous avons montré que cet état déformé est caractérisé par une anisotropie propre au laminage et par une hétérogénéité mésoscopique dans l'épaisseur des échantillons. Mais le résultat le plus important est que nous pouvons associer à chaque grain étudié, une énergie stockée intragranulaire.

Etant donné que tous les échantillons ont été déformés dans les mêmes conditions et en l'absence de fortes localisations de déformation, la différence du comportement en recristallisation d'un grain à l'autre est interprétée par la différence de l'énergie stockée. Ainsi, nous verrons dans ce chapitre comment cette dernière influence d'une part la température critique de recristallisation intragranulaire, et d'autre part la germination intergranulaire (au voisinage de joints de grains).

Nous discuterons également la génération de nouvelles orientations et les éventuelles relations d'orientation entre les nouveaux grains et la matrice déformée.

9.2. Recristallisation intragranulaire - monocristaux

9.2.1. Température critique de recristallisation

Dans le chapitre 4, nous avons décrit le but et la nature des recuits de recristallisation adoptés dans nos expériences. D'abord, l'échantillon est découpé en plusieurs tranches perpendiculaires à l'axe du laminage. Ensuite, chaque tranche est plongée dans un bain de sel fondu à une température donnée pendant 15 minutes, puis trempée dans l'eau à température ambiante. Le but étant de repérer la température à partir de laquelle, nous observons la germination des nouveaux grains, et de considérer qu'elle correspond à *la température « critique » de recristallisation T_c* .

Nous avons vérifié la précision sur la mesure de cette température dans quelques échantillons. Nous avons constaté que quand la température de recuit dépasse T_c de plus de 20° la tranche recuite est complètement recristallisée, c'est-à-dire les nouveaux grains ont envahi tout le volume. En revanche, quand le recuit est réalisé à 20° en dessous de T_c , aucun grain n'a pu être observé. *Ces résultats prouvent que l'erreur expérimentale sur la mesure de T_c ne dépasse pas une valeur maximale de 20°.*

En ce qui concerne la reproductibilité de la mesure de T_c , les recuits effectués des tranches appartenant au même échantillon à température égale révèlent un état final très proche avec une fraction volumique recristallisée voisine.

Par conséquent, nous pouvons considérer que la température de recristallisation critique est effectivement caractéristique de l'état du grain étudié.

9.2.2. Relation avec l'énergie stockée

Les résultats de recuits des tranches obtenues à partir des monocristaux et de bicristaux (tranches découpées loin des joints), ont montré une variation importante de la température de recristallisation critique en fonction de la densité de dislocations (Figure 9-1). Ainsi, T_c chute de 490° C pour le monocristal MONO-D dont la densité de dislocations est d'environ $7,5 \cdot 10^{14} \text{ m}^{-2}$, à moins de 280° C pour le grain 1 du bicristal BI-C dont $\rho = 11 \cdot 10^{14} \text{ m}^{-2}$.

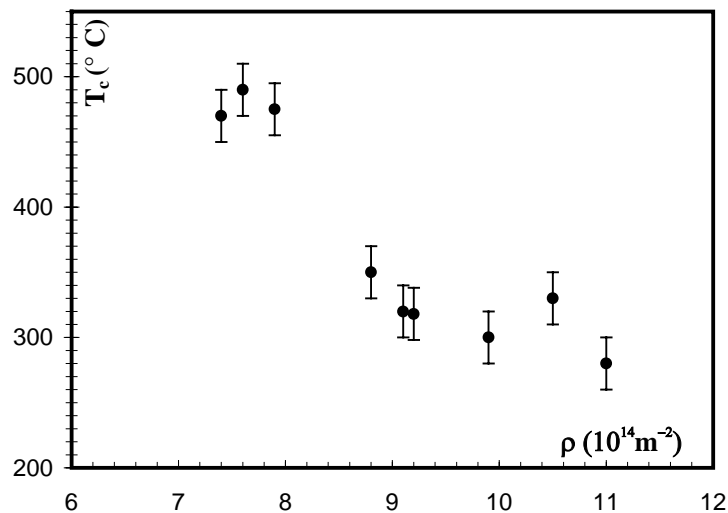


Figure 9-1. Variation de la température critique de recristallisation en fonction de l'énergie stockée.

Cette figure indique qu'une variation de 47 % de la densité de dislocations entraîne une chute de la température critique de recristallisation de 210°.

9.2.3. Orientations des grains recristallisés

Les nouveaux grains recristallisés ont été observés au MEB en électrons rétrodiffusés, ce qui permet de distinguer quelques grains par contraste cristallin. Cette technique est purement qualitative ; elle ne permet pas de distinguer les orientations proches.

Nous avons mesuré les orientations des nouveaux grains par EBSP dans le monocristal Mono-B après un recuit à 470° C pendant 15 minutes. La figure de pôles {111} correspondante ne révèle aucune texture particulière (Figure 9-2).

Ensuite, nous avons calculé les matrices de désorientation entre les nouvelles orientations et la matrice déformée. Elles sont déterminées selon le schéma montré dans la Figure 9-3. Parmi les 24 cas possibles de la matrice $\mathbf{M}_{\text{dés}}$ (à cause de la symétrie cubique), nous avons choisi celle qui fournit la désorientation minimale.

A part le cas spécial du maillage ($\Sigma 3$), aucune relation particulière avec les joints spéciaux (bas Σ) n'a pu être mise en évidence.

Par ailleurs, les grains recristallisés sont marqués par un maillage très fréquent (Figure 9-4). Dans cette figure, nous constatons la présence d'au moins quatre générations de macles.

Dans la Figure 9-5, nous présentons la figure de pôles correspondant aux matrices de désorientations (le repère de la figure de pôle coïncide avec le repère cristallin de la matrice déformée). Grâce à cette figure nous pouvons constater l'absence de relation directe entre les orientations des nouveaux grains et l'orientation de la matrice déformée.

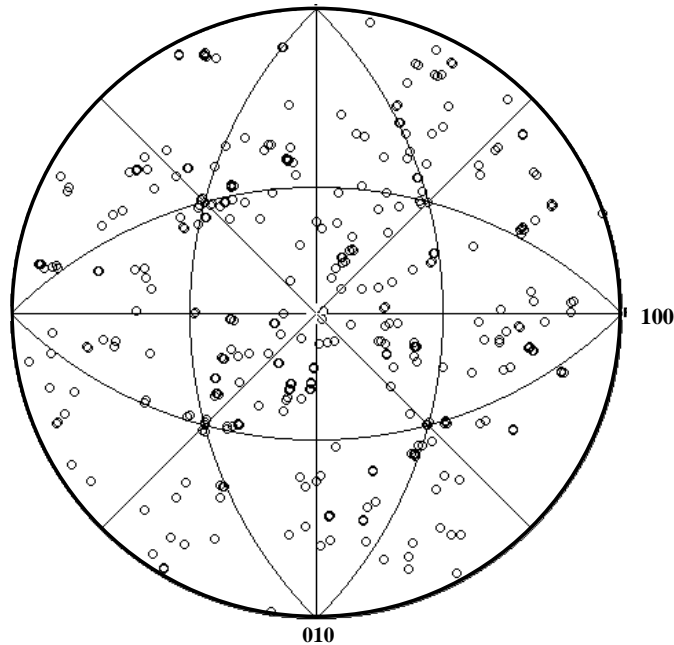


Figure 9-5. Figure de pôles $\{111\}$ des matrices de désorientation

La concentration relativement élevée de la désorientation cube, c'est-à-dire la désorientation correspondant à $\{100\} \langle 001 \rangle$, est simplement due aux plusieurs mesures effectuées dans la matrice déformée. Une étude plus détaillée a été effectuée sur un nombre limité de zones recristallisées, montre la présence d'une désorientation proche de $\Sigma 7$ ($38^\circ \langle 111 \rangle$) dans chaque zone, cette désorientation est connue comme celle ayant la plus grande vitesse de croissance dans le cuivre [146] (cité par [147]). Souvent, les autres orientations résultent de celle-ci par maillage multiple. Mais cette constatation reste à confirmer par une investigation fiable statistiquement.

9.2.4. Discussion

9.2.4.1. Influence de l'énergie stockée sur la recristallisation

Nous avons montré dans la Figure 9-1, une nette variation de la température critique de recristallisation avec la densité de dislocations. Comme nous avons montré que cette dernière est proportionnelle à l'énergie stockée (voir chapitre précédent), nous pouvons confirmer, dans le cas de nos échantillons de cuivre multicristallins laminés à 33 %, que cette énergie

joue un rôle déterminant dans la cinétique de la recristallisation statique. Une variation de l'énergie stockée de 50 %, semble suffire pour faire chuter T_c de plus de 200°. Cette dépendance de T_c avec l'énergie stockée a été signalée fréquemment dans la littérature [148,149,150]. Mais le point important ici est que, d'une part, la variation de l'énergie stockée ici est d'origine intragranulaire, et d'autre part, la chute de la température de recristallisation en fonction de la densité de dislocations est très importante.

Dans la mesure où la déformation ne peut être imposée à l'échelle du grain dans les polycristaux, cette hétérogénéité ne peut que s'accroître dans ces matériaux. Par exemple, le suivi de la déformation des polycristaux d'acier en traction [151], a montré que la déformation reste très hétérogène à l'échelle des grains et qu'il existe des grains « durs » qui n'ont pas subi de déformation même après une déformation macroscopique de 20 %.

Parallèlement, il a été constaté, dans les polycristaux de cuivre laminés à 93 %, que l'énergie stockée restant après une recristallisation partielle n'est pas proportionnelle à la fraction non recristallisée [152], mais subit une forte diminution dans le début de la recristallisation. Ceci implique que les zones les plus écrouies recristallisent les premières.

9.2.4.2. Orientations des grains recristallisés

Nos résultats montrent que les orientations des grains recristallisés dans les monocristaux et dans les bicristaux (loin des joints), sont aléatoires (Figure 9-2). Cette figure indique l'absence de la texture de recristallisation caractéristique du cuivre laminé (texture cube : $\{100\}\langle 001\rangle$). Ceci n'est pas surprenant, car cette texture a été observée dans l'état recristallisé du cuivre polycristallin fortement laminé. Dans notre cas, aucune de ces deux conditions n'est vérifiée. D'une part la déformation effectuée par laminage n'est pas élevée ($\varepsilon = 0,45$), d'autre part, nous pouvons considérer que les échantillons restent toujours mono ou multicristallins, et par conséquent, il n'y a pas de texture de déformation induite par laminage.

En revanche, la comparaison entre les nouvelles orientations et celle de la matrice déformée peut contribuer à la compréhension des mécanismes de recristallisation. Mais la Figure 9-5 ne semble pas apporter plus de réponses à cette question. Dans cette figure, on peut constater l'absence d'une relation d'orientation directe entre les grains recristallisés et l'orientation initiale.

En ce qui concerne la recristallisation des monocristaux, la littérature reste confuse et les mécanismes de génération de nouvelles orientations, qui y sont proposés, ne font pas l'unanimité parmi les scientifiques. D'une part, Baudin et al. [153], qui ont travaillé sur la recristallisation d'un monocristal d'orientation $\{112\}\langle 111\rangle$, confirment le caractère aléatoire des nouvelles orientations, ce qui conforte nos résultats. D'autre part, Klement et al. [154] ont montré que la texture finale, bien qu'elle soit dépendante de la progression de la recristallisation, peut être décrite par un ensemble de quelques relations d'orientation avec la matrice déformée.

Par ailleurs, Haasen [155] (voir aussi la synthèse faite par Berger et al. [156]) a proposé un mécanisme de génération de nouvelles orientations basé sur des travaux sur des monocristaux d'aluminium et de cuivre. Les recuits de ces échantillons déformés en traction, montrent que les premiers germes (observés à l'échelle microscopique par la microscopie électronique à

haute tension) ont des orientations proches de celle de la matrice déformée, en accord avec le modèle de germination présenté par Berger [157]. La génération de nouvelles orientations est exclusivement provoquée par le mécanisme du *maclage multiple*, même dans les matériaux à haute énergie de faute d'empilement comme l'aluminium. Mais ce mécanisme, toujours selon Berger [157], n'opère pas de façon aléatoire même si les critères de sélection ne sont pas bien connus.

Dans les germes recristallisés dans la zone intragranulaire, nous avons constaté la présence de la désorientation $\Sigma 7$ ($38 \langle 111 \rangle$). Comme a été démontré par Gottstein [158], cette orientation ne peut pas être engendrée par le maclage multiple, et par conséquent, nous pouvons considérer qu'elle existait au départ dans le germe recristallisé. Ainsi, nous aurions pu postuler que cette orientation est préférée par les nouveaux germes, mais, la désorientation $\Sigma 7$ est caractérisée par une probabilité de présence très élevée dans la population aléatoire d'orientations [147]. Ceci nous incite à faire davantage de mesures afin de prouver que la fréquence d'apparition de cette relation d'orientation est significativement prouvée.

9.3. Recristallisation intergranulaire

9.3.1. Cinétique de recristallisation dans les bicristaux

Cette étude a été réalisée sur les bicristaux décrits dans le chapitre 6. Nous avons pu constater deux types de comportement vraisemblablement dus à la différence entre les densités de dislocations intragranulaires dans les deux grains du bicristal. L'évolution de l'état recristallisé fera l'objet d'un film qui sera diffusé lors de la soutenance.

Cas où les densités de dislocations sont égales dans les deux grains

C'est le cas du bicristal BI-A. Les valeurs de T_c mesurées pour les deux grains sont pratiquement identiques (320°C). Les observations en fonction de la température ont révélé l'évolution suivante :

1) germination de nouveaux grains sur le joint initial à partir d'environ 280°C (germination hétérogène intergranulaire) ;

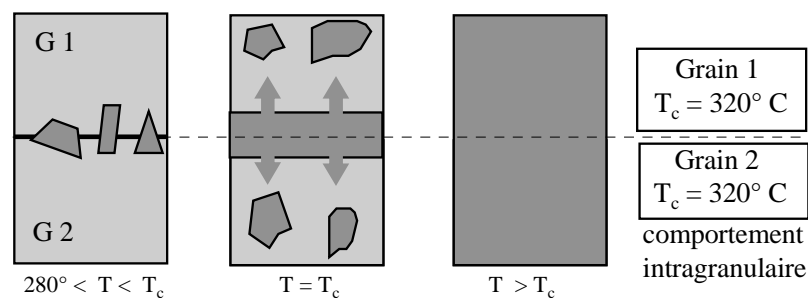


Figure 9-6. Cinétique de recristallisation dans le bicristal Bi-A

- 2) à la même température, après un certain temps, la zone d'environ 1 mm de largeur autour du joint est envahi par les nouveaux grains, puis l'état observé cesse d'évoluer ;
- 3) à partir d'environ 320°, on observe, en même temps, le retour à la croissance des anciens grains recrystallisés et une germination intragranulaire similaire à celle observée dans le paragraphe précédent ;
- 4) l'état précédent semble stagner pendant relativement longtemps. La fraction des grains recrystallisés semble être contrôlée par la température et non pas par le temps. Nous avons été amenés à élever la température en dessus de 340° C afin d'obtenir une recrystallisation complète de l'échantillon.

Une description schématique de cette cinétique est présentée dans la Figure 9-6, où le joint est représenté par une droite horizontale et où la zone recrystallisée est peinte d'une couleur plus foncée.

Cas où les densités de dislocations sont différentes dans les deux grains

C'est le cas du bicristal Bi-B, pour lequel les températures critiques T_{c1} et T_{c2} sont, respectivement, 300° C et 350° C pour le grain 1 et 2. Lors du recuit de ce bicristal, nous avons observé les évolutions suivantes (Figure 9-7) :

- 1) la germination hétérogène intergranulaire commence à partir de 275° C : des germes ont tendance à se développer à partir du joint vers le grain 1 le plus écroui ;
- 2) après la recrystallisation complète de la zone entourant le joint, la progression de la recrystallisation subit un très net ralentissement ;
- 3) suite à une augmentation de la température à environ T_{c1} , un redémarrage du processus est observé avec, en même temps, la germination intragranulaire dans le grain 1 et la croissance de la zone déjà recrystallisée autour du joint ;
- 4) la recrystallisation est complète dans le grain 1 à 340° C, alors qu'aucune évolution n'a pu être observée dans le grain 2 ;
- 5) à T supérieure à 350° C, une nouvelle étape de recrystallisation est opérée dans le grain 2 : croissance de la zone intergranulaire déjà recrystallisée et germination intragranulaire.

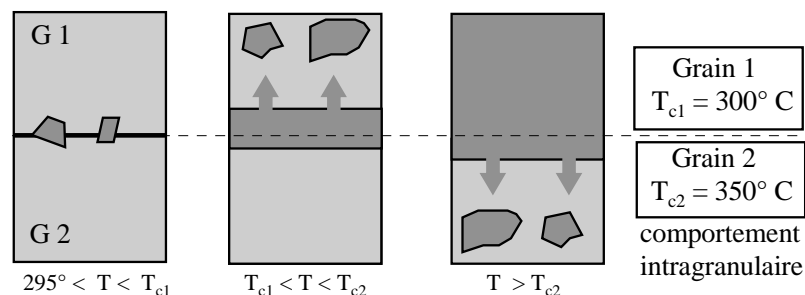


Figure 9-7. Cinétique de recrystallisation dans le bicristal Bi-B.

9.3.2. Cinétique de recristallisation dans le multicristal

Afin de pouvoir observer la cinétique de recristallisation dans le multicristal, nous avons procédé au recuit in situ dans le MEB. Ceci a nécessité le découpage de l'échantillon en petites tranches, comme le montre la Figure 9-8.

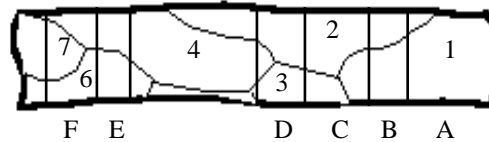


Figure 9-8. Le multicristal découpé en 7 tranches pour les recuit in situ.

Le recuit de chaque tranche a permis d'avoir des informations spécifiques par grain. Nous avons constaté que les températures critiques de recristallisation dans toutes les tranches ne suivaient pas la tendance illustrée dans la Figure 9-1. Nous présentons les résultats obtenus pour chaque tranche observée.

Tranche A

La température de recristallisation de cette tranche (grain 1) était de $T_c = 450^\circ \text{C}$. Cette température, comme toutes les températures de recristallisation des autres tranches, était largement au-dessus des températures prévues. En effet, la seule différence de préparation expérimentale concernant le multicristal est que les recuits ont été effectués deux ans et demi après l'avoir déformé ; alors que dans les autres cas, la durée entre la déformation et le recuit n'a pas dépassé un à deux mois.

Nous pouvons alors justifier le retard à la recristallisation par une lente étape de restauration à température ambiante. Les observations rencontrées dans la littérature sur la restauration/recristallisation du cuivre nous confortent dans notre supposition. D'une part, Clarebrough et al. ([159] cité par [160]) ont détecté un début de recristallisation vers 50° . Schamp et al. [161] ont confirmé la présence d'une recristallisation partielle dans les fils de cuivre pur extrudés à température ambiante, ce qui prouve que le cuivre pur restaure à la température ambiante. D'autre part, en l'absence de recristallisation, la restauration libère une partie de l'énergie stockée provoquant, quelquefois, un retard dans la recristallisation, comportement observé dans les alliages d'aluminium [162].

En supposant que cette restauration ne change pas l'ordre des densités de dislocations dans les grains, nous pouvons alors poursuivre nos expériences de recristallisation dans les différentes tranches. Dans la suite, nous décrivons les étapes d'évolution observées lors des recuits des tranches in situ dans le MEB.

Tranche B (grains 1 et 2)

$T = 450^\circ \text{C}$: recristallisation inter et intragranulaire dans le grain 1 (Figure 9-9), pas d'évolution dans le grain 2 (Figure 9-9).

Tranche C (grains 1, 2 et 3)

$T = 500^\circ \text{C}$: recristallisation complète des grains 1 et 2, pas d'évolution dans le grain 3.

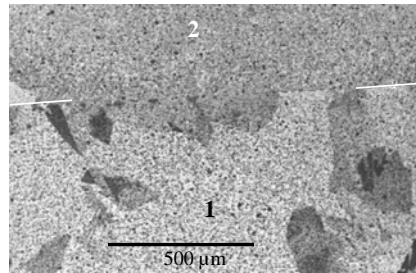


Figure 9-9. Tranche B à 450° C : la recristallisation démarre dans le grain 1.
Les traits blancs indiquent le joint de grain.

Tranche D (grains 2, 3 et 4)

- a) T = 470° C : germination inter et intragranulaire dans le grain 2, pas d'évolution dans les grains 3 et 4 ;
- b) T = 510° C : recristallisation complète dans le grain 2, germination inter et intragranulaire dans le grain 4, pas d'évolution dans le grain 4 (Figure 9-10) ;
- c) T = 530° C : germination intragranulaire dans le grain 4.

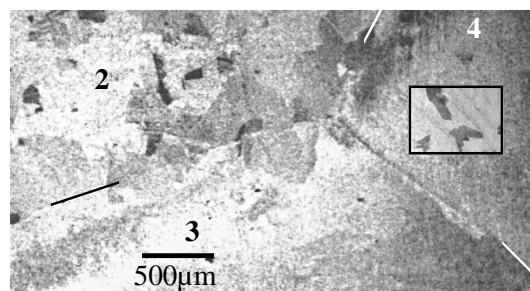


Figure 9-10. Tranche D à 510° C : recristallisation du grain 2, début de recristallisation dans le grain 4. Les trois joints sont indiqués par les traits et le carré correspond à un agrandissement 10 fois plus élevé que le reste de la micrographie.

Tranche E (grains 4 et 6)

T = 510° C : recristallisation inter et intragranulaire dans le grain 6.

Tranche F (grains 4, 6 et 7)

- a) T = 470° C : germination inter et intragranulaire dans le grain 7, pas d'évolution dans les grains 6 et 4 ;
- b) T = 510° C : recristallisation complète du grain 7 et germination inter et intragranulaire dans le grain 6, absence de germination dans le grain 4 (Figure 9-11).

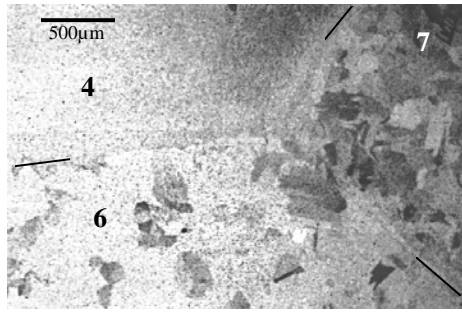


Figure 9-11. Tranche F : recristallisation complète dans le grain 7, partielle dans le grain 6.

Remarque

Compte tenu de quelques contraintes extérieures et afin de ne pas endommager le détecteur des électrons rétrodiffusés, les recuits mentionnés ci-dessus, ont été réalisés rapidement. Ainsi, nous n'avons pas pu respecter le temps de recuit qui a été retenu pour les recuits des mono- et bicristaux, et par conséquent, nous pensons qu'il y a une incertitude élevée concernant les températures de recristallisation critique dans le multicristal. Cependant, ceci ne change en rien l'ordre du développement de la recristallisation dans les différents grains, ce qui est le point important de notre travail. C'est pourquoi, en considérant les résultats ci-dessus, nous pouvons confirmer que la cinétique de recristallisation dans ce multicristal suit un ordre bien déterminée et qui est décrit ci-dessous.

Pour le groupe de grains (1, 2, 3 et 4), les températures critiques et les densités de dislocations (voir chapitre 7) sont classées selon l'ordre suivant :

$$T_c (\text{grain 1}) < T_c (\text{grain 2}) < T_c (\text{grain 4}) < T_c (\text{grain 3})$$

$$\rho (\text{grain 1}) > \rho (\text{grain 2}) > \rho (\text{grain 4}) > \rho (\text{grain 3})$$

Pour le groupe de grains (4, 6 et 7) :

$$T_c (\text{grain 7}) < T_c (\text{grain 6}) < T_c (\text{grain 4})$$

$$\rho (\text{grain 7}) > \rho (\text{grain 6}) \cong \rho (\text{grain 4})$$

Comme nous pouvons le constater dans les classements précédents, la recristallisation intragranulaire est intimement liée à l'énergie stockée. *Dans ce multicristal, les grains recristallisent selon leur énergie stockée ; les plus écrouis recristallisent les premiers.*

En revanche, en ce qui concerne les grains 4 et 6, les analyses de l'élargissement de profils de diffraction (voir figure 6-5) ne permettent pas de distinguer une éventuelle différence d'écrouissage, et par conséquent, de prévoir la recristallisation du grain 6 avant le grain 4. Nous pouvons alors conclure que, si les analyses de profils indiquent une différence d'écrouissage significative, la recristallisation a lieu d'abord dans le grain le plus écroui. En revanche, si ce n'est pas le cas, nous ne pouvons pas juger la cinétique de recristallisation dans les deux grains. Néanmoins, compte tenu de l'ensemble des résultats de recristallisation,

il est légitime de considérer que le grain 6 est plus écroui que le grain 4, mais la précision des analyses de l'élargissement de profils n'est apparemment pas suffisante pour détecter une telle différence. *Ce résultat montre la limite d'exploitation des analyses de profils de diffraction des rayons X.*

9.3.3. Nouvelles orientations

Nous présentons ici un exemple dont les résultats ont été confirmés dans 3 autres cas. Nous avons mesuré les orientations du premier germe qui est apparu au joint de grain lors du recuit du bicristal Bi-B. La Figure 9-12 montre une micrographie de ce grain sur lequel nous avons réalisé une cartographie automatique d'orientations par EBSD. Cette cartographie montre la présence, outre les deux grains 1 et 2 du bicristal, de trois autres orientations (3,4 et 5 sur la figure).

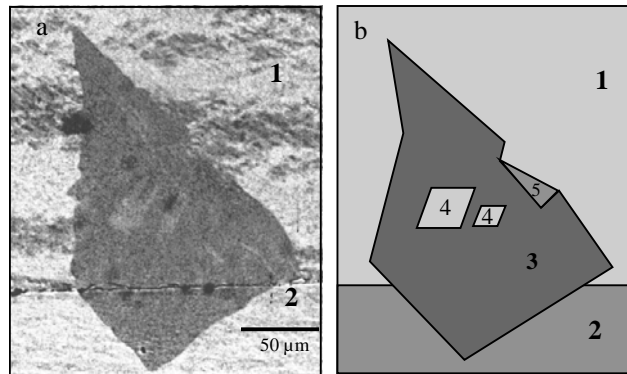


Figure 9-12. Germination intergranulaire dans le bicristal Bi-B, (a) micrographie par MEB, (b) cartographie d'orientations.

Nos calculs de désorientation prouvent l'existence des relations d'orientations suivantes : maillage ($\Sigma 3$) entre les orientations 3 et 4 et également entre celles 3 et 5, faible désorientation entre 4 et 2 (écart 9.5°) et un maillage de deuxième génération ($\Sigma 9$) entre 4 et 5.

Compte tenu de la cinétique de croissance observée lors du recuit in situ, nous pouvons proposer les étapes suivantes pour expliquer le développement de ces orientations :

- 1) d'abord, une zone d'orientation proche de celle de (4) dans le grain 2 commence à croître dans le grain 1 ;
- 2) cette zone en croissance subit un maillage pour donner l'orientation (3) ;
- 3) la macle envahit toute la zone en croissance sauf les deux parties d'orientation (4) présentes dans la Figure 9-12 (a) et continue à croître ;
- 4) la zone maillée (en croissance) subit un autre maillage (maillage multiple) pour créer l'orientation (5).

9.3.4. Discussion

9.3.4.1. Cinétique de recristallisation intergranulaire

Dans le cas des bicristaux, nous avons constaté que, si un grain est plus écroui que l'autre, nous pouvons avoir une configuration, pour $T_{c1} < T < T_{c2}$, dans laquelle le grain le plus écroui est complètement recristallisé, alors qu'aucune germination n'est observée dans l'autre grain. Par ailleurs, il semble que, quelle que soit la température de recuit, la germination commence dans le grain le plus écroui. Ce fait illustre le résultat suivant : dans les bicristaux, *la recristallisation statique démarre et envahit d'abord le grain le plus écroui.*

Les résultats de recristallisation obtenus après les recuits des tranches découpées dans le multicristal, confirme cette conclusion.

Le mécanisme de la recristallisation intergranulaire semble suivre le mécanisme de migration de joints induite par la déformation (en anglais : *Strain Induced Boundary Migration* (SIBM)). Ce mécanisme décrit par Beck et Sperry [163](cité par Humphreys et al. [147]), contrôle, probablement, la germination intergranulaire dans les matériaux faiblement déformés (réduction inférieure à 40 %). Dans ce mécanisme, le joint de grain se déplace dans le grain le plus écroui en laissant une zone (un germe) de cristal parfait. Toutefois, dans nos observations par électrons rétrodiffusés dans le MEB, nous avons constaté que cette zone n'est pas caractérisée par un contraste unique et que des faibles désorientations peuvent y subsister. Ce qui nécessite la présence de dislocations qui n'ont pas été éliminées par la migration du joint. En effet, d'autres travaux dans la littérature, comme Bailey et al. [164] ont montré que cette zone peut continuer à « abriter » des dislocations avec une densité significative.

9.3.4.2. Nouvelles orientations

Nous avons présenté dans le paragraphe 9.3.3, un des trois exemples étudiés dans la zone intergranulaire. Nos observations semblent obéir au mécanisme de migration de joints induite par déformation (SIBM).

Ce mécanisme, tout seul, ne peut pas expliquer la génération de nouvelles orientations. Dans notre travail, comme le montre la Figure 9-12, les nouvelles orientations sont engendrées par le processus du maillage multiple. En effet, nous avons constaté dans plusieurs exemples (Figure 9-4), jusqu'à 4 générations de macles dans la même zone recristallisée.

Gottstein [158] a étudié la texture résultante de plusieurs générations de macles (jusqu'à 7 générations). Il a constaté que ce processus conduit à une diffusion de l'orientation initiale dans tout l'espace d'orientations, sans, toutefois, générer une texture complètement aléatoire. Ce processus a été largement observé dans les travaux de Berger et al. [156] sur les monocristaux de cuivre (et même d'aluminium !). Ceci nous laisse penser que ce mécanisme peut être à l'origine de l'apparition des orientations aléatoires observées dans la zone intragranulaire.

Il est évident que nous ne disposons pas d'un grand nombre d'essais qui autorise, du point de vue statistique, la généralisation des conclusions décrites ci-dessus. Toutefois, nous pouvons ajouter nos observations à un grand nombre de résultats analogues dans la littérature obtenus dans différentes conditions expérimentales. Par exemple, Theyssier [165] a observé le mécanisme SIBM dans les bi- et polycristaux d'aluminium en compression plane à chaud. Inoko et al. [166,167] ont signalé la présence de SIBM dans les bicristaux de cuivre déformés en traction et ont constaté que la migration du joint a lieu quand les dislocations, qui sont bloquées contre le joint, sont de caractère coin. Quant aux dislocations vis, toujours selon Inoko, elle contribuent à l'apparition des orientations obtenues par rotation autour de $\langle 111 \rangle$.

Ceci montre l'importance de l'aspect microscopique et indique que la compréhension de ce mécanisme nécessite une exploration très fine de la structure des dislocations. Nous disposons, au laboratoire, des moyens adéquates (MET, MEB, mesures automatique d'orientation), ce qui nous permet de poursuivre ce projet expérimentale.

9.4. Conclusion

1) Les résultats de recuits des mono-, bi- et multicristaux montrent invariablement que la recristallisation commence dans le grain le plus écroui de l'échantillon. Une petite augmentation de l'énergie stockée peut même entraîner une chute importante de la température de recristallisation.

2) Dans tous les échantillons, nous avons constaté qu'une germination hétérogène intergranulaire a lieu 30° à 40° degrés au dessous de la température de germination intragranulaire dans le grain le plus écroui. Cependant, cette recristallisation, qui envahit généralement le voisinage du joint, s'arrête spontanément quand le front de recristallisation arrive à une distance de quelques centaines de microns loin du joint. Ceci rejoint les résultats des analyses de profils de diffraction, qui ont montré que la zone perturbée (en terme de densité de dislocations) par le joint, est de 1 mm de largeur. Au-delà de cette bande jalonnant le joint, le grain semble « retrouver » son comportement de recristallisation intragranulaire défini par sa température de recristallisation critique.

3) Le mécanisme de la migration des joints induite par la déformation (SIBM) semble contrôler la germination intergranulaire.

4) Le processus du maillage multiple, observé dans toutes les zones recristallisées, semble être à l'origine de la génération des nouvelles orientations dans la région intergranulaire. Comme ce mécanisme conduit à une diffusion de l'orientation initiale, nous pouvons le considérer à l'origine des orientations aléatoires observées dans la zone intragranulaire.

10. Conclusions et perspectives

L'étude expérimentale présentée dans ce mémoire a permis de montrer l'effet des hétérogénéités inter- et intragranulaire, en terme d'énergie stockée, sur le comportement de recristallisation des échantillons multicristallins de cuivre pur laminés à 35 %. Afin de faciliter la lecture, nous pouvons diviser les résultats, ainsi obtenus, par thème.

Analyses de profils de diffraction

Le modèle de Groma-Ungar-Wilkens utilisé pour l'interprétation de l'élargissement des profils de diffraction, semble approprié pour les mesures de la densité de dislocations intragranulaire. Les analyses spectrales des profils par la transformée de Fourier présente, sans hypothèse quelconque sur la distribution des dislocations ou sur la forme des profils, un moyen efficace pour la détermination de la densité de dislocations apparente et du rayon d'écrantage (coupure) des dislocations. Quant à l'évaluation de la densité de dislocations réelle, il est indispensable de déterminer le contraste géométrique de ces dislocations, ce qui nécessite la prise en considération de quelques hypothèses sur leur distribution. Nous avons montré que ces hypothèses peuvent être vérifiées et validées en mesurant plusieurs profils sur le même grain. Le résultat général de nos expériences, prouve que seule l'hypothèse du glissement multiple (population de plusieurs systèmes de glissement) permet de rendre compte, dans notre cas de déformation par laminage à $\varepsilon = 0.45$, des résultats des analyses de profils. Cette prévision « microstructurale » a été confirmée par les observations en microscopie électronique à transmission, qui ont révélé une structure cellulaire de dislocations dans tous les échantillons explorés.

Mesures d'énergie stockée

Les analyses de l'élargissement des profils de diffraction montrent que la densité de dislocations réelle varie d'une façon significative (de 7 à 12 10^{14} m^{-2}) d'un grain à l'autre dans le même échantillon. Ceci autorise à penser que la technique d'analyse de l'élargissement des profils est un outil efficace pour l'évaluation de l'écrouissage intragranulaire.

D'autre part, ces analyses ont montré que la variation du rayon d'écrantage moyen R_e d'un grain à l'autre, est très faible. La valeur obtenue ($R_e = 0,15 \text{ } \mu\text{m}$) est inférieure à la taille des cellules de dislocations (environ 1 μm), mais reste largement supérieure à la distance moyenne entre les dislocations (0.02 - 0.03 μm). Puisque R_e est constant, nous pouvons conclure que dans nos échantillons, l'énergie stockée est proportionnelle à la densité de dislocations réelle. Les valeurs minimale et maximale mesurées sont de 10 et 17 J/mol.

L'énergie stockée dans la zone intergranulaire (voisinage des joints de grains) semble très proche de celle mesurée dans les zones intragranulaires. Ainsi, la région entourant les joints

n'est pas caractérisée par un haut niveau d'écrouissage et l'accommodation de la déformation plastique ne conduit pas forcément à une accumulation excessive des dislocations.

Autres caractéristiques de l'état déformé

En dehors des hétérogénéités de types inter- et intragranulaire décrites ci-dessus, nous avons mis en évidence deux autres caractéristiques de l'état déformé. La première résulte du processus de déformation utilisé. Compte tenu de la forte diminution du contraste géométrique des dislocations sur la surface transversale des échantillons, nous pouvons signaler une forte anisotropie concernant la distribution des dislocations. Cette anisotropie peut être la conséquence de deux tendances possibles : (i) parmi les vecteurs de Burgers disponibles, ceux proches ou parallèle à la direction transversale, sont peu présents dans l'échantillon ; (ii) les vecteurs lignes des dislocations sont plutôt parallèles à la direction transversale.

La deuxième caractéristique est une forme d'hétérogénéité qui a été mise en évidence par la comparaison entre les résultats des techniques de diffraction en transmission et en réflexion. Nous avons constaté que l'exploration en volume (en transmission) conduit à une densité de dislocations largement supérieure à celle obtenue par les mesures sur la surface (en réflexion).

L'interprétation de l'asymétrie des profils en termes de contraintes résiduelles à longue portée, a permis de mettre en évidence le rôle particulier des axes cristallographiques $\langle 100 \rangle$ sur l'état des contraintes internes. Ce dernier obéit en partie à la description composite de l'état déformé proposé par Mughrabi, mais l'aspect cristallographique de ces contraintes reste encore inexpliqué.

Effet sur la recristallisation

L'étude de la cinétique de recristallisation a révélé une forte dépendance entre la température critique de recristallisation et l'énergie stockée. Ainsi, cette température subit une chute de 500° C à 300 ° C, quand l'énergie stockée augmente de 10 à 15 J/mol. Ce résultat conduit à prévoir une hétérogénéité importante de la cinétique de recristallisation à l'échelle des polycristaux, qui se traduit par l'activation de la recristallisation, d'abord, dans les grains les plus écrouis.

Malgré le fait que la zone intergranulaire ne soit pas caractérisée par un écrouissage excessif, cette région semble présenter des sites de germination (hétérogène) privilégiés, car nous avons constaté que cette région recristallise toujours avant le reste de l'échantillon. L'étude des orientations des premiers germes montre que le mécanisme prépondérant de recristallisation dans cette zone peut être décrit par la migration des joints induite par la déformation. La dispersion de l'orientation initiale (apparition d'orientations aléatoires), est vraisemblablement dû au processus de maillage multiple fréquemment observé dans nos échantillons.

Perspectives

Compte tenu des résultats du travail présenté dans ce mémoire, nous proposons de poursuivre cette étude dans les directions suivantes :

- 1) mettre en place une stratégie de calcul du contraste géométrique des dislocations. Il s'agit de « raffiner » l'hypothèse qui consiste à considérer le peuplement des systèmes de glissement par les dislocations comme homogène, afin de prendre en compte l'anisotropie de la distribution des dislocations révélée dans le cas du laminage ;
- 2) proposer un projet au Synchrotron de Grenoble pour l'étude de la divergence des résultats des techniques de diffraction en transmission et en réflexion ;
- 3) proposer un mécanisme tenant compte des dislocations d'interface parois/cellules, pour donner une explication de la dépendance cristallographique des contraintes internes à longue portée ;
- 4) poursuivre le dépouillement des résultats des cartographies d'orientations automatiques réalisées juste avant la rédaction de ce mémoire. Le but est de comprendre les règles contrôlant le processus du maillage multiple qui semble très influent sur les mécanismes de la recristallisation statique dans le cuivre.

A plus long terme, nous pouvons envisager d'autres perspectives :

- 1) étendre l'application des analyses de profils au cas des polycristaux,
- 2) étudier l'effet du taux de déformation sur l'évolution des hétérogénéités intragranulaires, notamment l'écart entre les densités de dislocations dans les différents grains,
- 3) comprendre l'influence de la nature des structures de dislocations sur l'élargissement de profils de diffraction,
- 3) relier les résultats des analyses de l'élargissement de profils à ceux des simulations numériques.

Annexe 1 : Diffraction - Aspects fondamentaux

(Pour références générales, voir [†, ‡])

1.1. Loi de Bragg

Cette loi, qui est de forme très simple et qui relie trois variables, exprime la condition *nécessaire et non suffisante* pour obtenir un faisceau diffracté. Seulement deux variables restent indépendantes. Toutes les applications de diffraction sont nées en fixant une variable et en faisant varier l'autre.

Considérant un cristal parfait, c'est-à-dire une organisation périodique tridimensionnelle des atomes, éclairé par un faisceau parallèle monochromatique dont la longueur d'onde est λ (Figure 13).

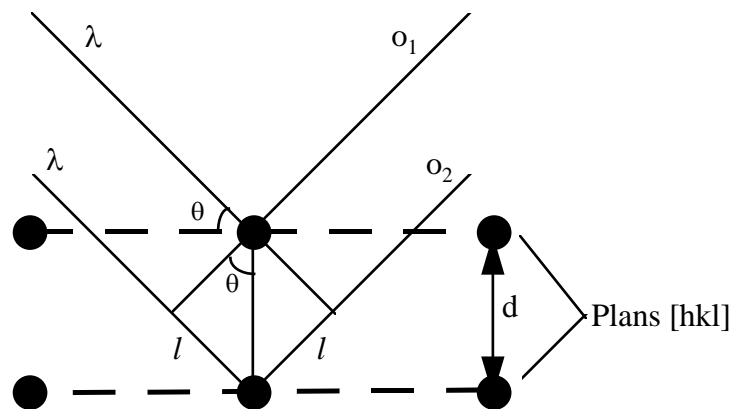


Figure 13. Diffraction des rayons X par un cristal.

Si les plans [hkl] sont parallèles à la surface et si le faisceau irradie l'échantillon sous un angle θ , le faisceau diffracté existe quand les atomes peuvent, dans une direction de l'espace, donner une radiation cohérente. Dans ce cas, l'interférence est constructive et crée un faisceau diffracté avec la même longueur d'onde λ . Cette condition est vérifiée quand les ondes émises sont en phase, c'est-à-dire une différence de chemin parcouru égale à un multiple de la longueur d'onde λ . Comme le montre la figure 1, la différence de chemin entre les ondes o_1 et o_2 , est égale à $2l$. Ce qui donne la loi de Bragg :

$$n\lambda = 2d \cos \theta$$

Le facteur n peut être omis si on considère, pour chaque famille de plan (hkl), des plans dont les indices de Miller sont des multiples de (hkl).

[†] A. Guinier, dans « Théorie et technique de la radiocristallographie », Dunod, Paris (1964).

[‡] B. E. Warren, dans « X-Ray Diffraction », Dover Publications, INC., New York (1969).

Remarque : La loi de Bragg ne prend pas en compte la symétrie tridimensionnelle du cristal. Celle-ci est prise en compte par *le facteur de structure* du matériau. La deuxième condition nécessaire pour la diffraction est que ce facteur $F(hkl)$ ne soit pas nul pour la famille de plan $\{hkl\}$ considérée. Le tableau 1 donne les solutions pour F différent de zéro pour les réseaux de Bravais : simple, cubique centré (cc) et cubique à face centré (cfc).

| Réseau de Bravais | Facteur de structure | $F = 0$ | $F \neq 0$ |
|--------------------------|---|-------------------|---------------------|
| Simple | f | <i>jamais</i> | <i>toujours</i> |
| Cubique centré | $f(1+e^{\pi i(h+k+l)})$ | $(h+k+l)$ impaire | $(h+k+l)$ paire |
| Cubique à faces centrées | $f(1+e^{\pi i(h+k)}+e^{\pi i(h+l)}+e^{\pi i(k+l)})$ | h, k, l , mixte | h, k, l non mixte |

Tableau 1. Réflexions possibles dans les différentes structures.

1.2. Diffraction par un petit cristal - Théorie classique

La compréhension de la diffraction des rayons X par un petit cristal passe inéluctablement par l'analyse de la diffraction par les électrons libres, puis par les atomes isolés. Néanmoins, dans cette annexe destinée à souligner les aspects fondamentaux de la diffraction, nous pouvons nous contenter de présenter et d'expliquer le résultat du traitement de la théorie classique.

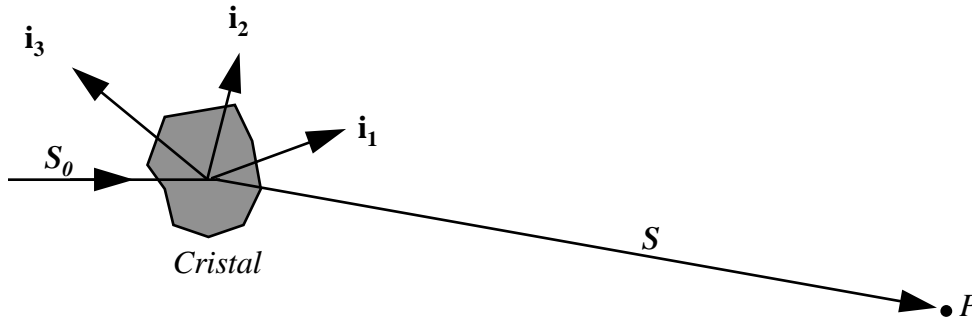


Figure 14. Schéma de la diffraction par un petit cristal. $\{i_1, i_2, i_3\}$ est le repère du cristal, S_0 et S sont les vecteurs de propagation des ondes incidente et diffractée, P est le point d'observation.

L'intensité obtenue au point d'observation P (Figure 14) est donnée par la relation :

$$I_P = I_e F^2 \prod_{j=1}^{j=3} \frac{\sin^2 \frac{\pi}{\lambda} (\vec{S} - \vec{S}_0) \cdot \vec{i}_j N_j}{\sin^2 \frac{\pi}{\lambda} (\vec{S} - \vec{S}_0) \cdot \vec{i}_j}, \quad (1)$$

où I_e , F , λ et N_j sont, respectivement, une constante liée à la polarisation du faisceau incident, le facteur de structure, la longueur d'onde et le nombre de mailles élémentaires dans la direction \vec{i}_j . La fonction $\sin^2(Nx)/\sin^2(x)$ est caractérisée par une forme typique (Figure 15). La valeur maximale de cette fonction est proportionnelle à N^2 et elle s'annule tous les $(k\pi/N)$. Pour I_p , en considérant un cristal cubique de N^3 cellules élémentaires, la valeur maximale sera proportionnelle à N^6 . Par conséquent, pour un cristal réel, la forme de la fonction I_p tend vers une fonction de Dirac (en négligeant l'aspect dynamique - voir Annexe 2). La tridimensionnalité parfaite d'un cristal se traduit donc par une distribution très étroite de

l'intensité diffractée autour de la position théorique de Bragg. Ceci nous informe que *tout élargissement de pics de diffraction est dû soit à la taille du cristal soit à la présence de défauts cristallins.*

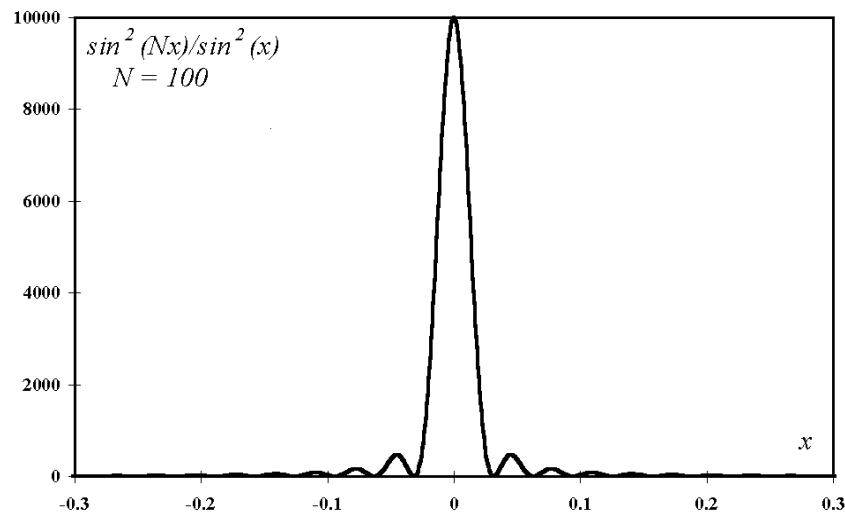


Figure 15. Présentation de la fonction $\sin^2(Nx)/\sin^2(x)$ pour $N = 100$.

1.3. Elargissement de taille - Equation de Scherrer

Le premier traitement de l'élargissement de taille a été proposé par Scherrer [§]. Considérons un matériau polycristallin de très faible taille de grain d_γ (une poudre). Pour une réflexion de Bragg donnée, θ_B , quelle que soit l'orientation de l'échantillon, une population de grains sera en position de diffraction. L'approximation de chaque rapport dans l'équation (1) par une fonction gaussienne : $N^2 \exp(-N^2 x^2/\pi)$, permet d'aboutir à l'Equation de Scherrer donnant la largeur à mi-hauteur ($L_{1/2}$) sur l'échelle 2θ (en radian) :

$$L_{1/2} = \frac{0.94\lambda}{d_\gamma \cos \theta_B}. \quad (2)$$

Les raies de diffraction sont d'autant plus larges que l'angle de Bragg est élevé ou la taille de grain est faible. Pour avoir une idée sur les ordres de grandeurs, il faut comparer cette largeur à celle d'un pic d'un matériau non déformé. Avec un diffractomètre à haute résolution (voir Annexe 2), la grandeur $L_{1/2} \cos \theta_B$ d'un pic diffracté, avec $\lambda = CuK_{\alpha 1} = 0,154$ nm, par un matériau non déformé est d'environ $5 \cdot 10^{-4}$ (voir Annexe 2). L'application de l'équation (2) peut fournir la taille maximale détectable par un tel diffractomètre, qui est d'environ $0.3 \mu\text{m}$. Explicitement, quand la taille de grains dépasse cette limite, l'élargissement résultant est de même ordre de grandeur que l'erreur expérimentale. D'où la conclusion : *pour la plupart des matériaux (avec une taille de grains supérieure à $0.3 \mu\text{m}$), l'élargissement de taille est négligeable.*

[§] P. Scherrer, Nachr. Göttinger Gesell., 98 (1918); Zsigmondy's Kolloidchemie, troisième édition, p. 394 (cité par [‡]).

Remarque : Il est important de signaler que les cellules de dislocations, souvent caractérisées par une faible désorientation, ne peuvent pas être considérées comme des cristaux indépendants ou des domaines cohérents (voir Chapitre 3). Par conséquent, au moins à température ambiante, **il n'y a pas d'élargissement de taille relié à l'organisation de dislocations en cellules.**

1.4. Élargissement de déformation

Nous avons vu que tout écart à la cristallinité parfaite d'un matériau provoque un élargissement des pics de diffraction. En effet, l'étude de l'effet de la déformation nécessite une formulation de l'intensité de diffraction prenant en compte la position spatiale de chaque atome dans le cristal [**]. Pour une réflexion donnée, l'intensité diffractée peut être exprimée par une somme utilisant la distance entre chaque paire d'atomes [‡] :

$$I = A \sum_{n,m} e^{i(\mathbf{k}-\mathbf{k}_0)(\mathbf{R}_m-\mathbf{R}_n)}, \quad (3)$$

où A est une constante pour la réflexion concernée ; \mathbf{k} , \mathbf{k}_0 sont, respectivement les vecteurs d'ondes des faisceaux diffracté et incident ; \mathbf{R}_m , \mathbf{R}_n sont les vecteurs de positions des atomes m et n dans le volume diffractant (Figure 16).

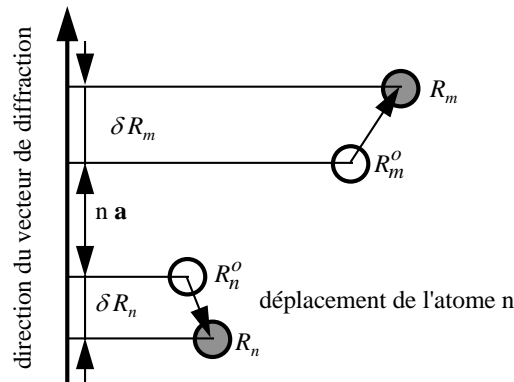


Figure 16. Projection des distances et des déplacements sur le vecteur de diffraction.

L'étude de l'élargissement de déformation revient à séparer la réponse du cristal parfait de celle provoquée par la déformation élastique. C'est pourquoi, on introduit deux variables : $\delta\mathbf{R} = \mathbf{R} - \mathbf{R}_0$ qui exprime le déplacement de l'atome en question par rapport à sa position initiale \mathbf{R}_0 dans le cristal parfait ; $\mathbf{s} = (\mathbf{k} - \mathbf{k}_0)/2\pi - \mathbf{g}$, une variable balayant le voisinage d'un vecteur (\mathbf{g}) du réseau réciproque ; \mathbf{s} est appelé la *variable de Bragg centrée*. Comme $|\mathbf{g}| = 2\sin\theta/\lambda$, \mathbf{s} peut être donné par la formule : $|\mathbf{s}| = d/|\mathbf{g}| = 2\Delta\theta \sin\theta_B/\lambda$. L'intensité diffractée dans l'espace réciproque est l'intensité exprimée en fonction de la variable de Bragg centrée ($I(\mathbf{s})$). L'introduction des variables ($\delta\mathbf{R}$, \mathbf{s}) dans l'équation (3) donne :

$$I = A \sum_{k,l} e^{2\pi i \mathbf{g}(\mathbf{R}_k^0 - \mathbf{R}_l^0)} e^{2\pi i \mathbf{s}(\mathbf{R}_k^0 - \mathbf{R}_l^0)} e^{2\pi i \mathbf{g}(\delta\mathbf{R}_k - \delta\mathbf{R}_l)} e^{2\pi i \mathbf{s}(\delta\mathbf{R}_k - \delta\mathbf{R}_l)}. \quad (4)$$

[**] M. A. Krivoglaz, dans « Theory of X-ray and Thermal Neutron Scattering by real Crystals », Plenum Press, N. Y. (1969).

Dans l'équation (4), la somme sur la première exponentielle est un entier et le terme de deuxième ordre, $\exp(2\pi i s(\delta\mathbf{R}_k - \delta\mathbf{R}_l))$, peut être négligeable. Ce qui donne l'équation importante suivante :

$$I(s) = A \sum_{k,l} e^{2\pi i s(\mathbf{R}_k^0 - \mathbf{R}_l^0)} e^{2\pi i \mathbf{g}(\delta\mathbf{R}_k - \delta\mathbf{R}_l)}. \quad (5)$$

La forme de l'équation (5) relève les points suivants :

- a) toute l'information sur la déformation est contenue dans le terme : $(\delta\mathbf{R}_k - \delta\mathbf{R}_l)$;
- b) seules les composantes des déplacements perpendiculaires aux plans diffractants jouent un rôle dans l'élargissement ;
- c) l'équation (5) peut être considérée comme la transformée de Fourier de l'intensité diffractée $I(s)$. Les termes $\exp(i\mathbf{g}(\delta\mathbf{R}_k - \delta\mathbf{R}_l))$, expriment les coefficients de cette transformée.

La variable centrée s est égale à $(\Delta(2\theta) \cos \theta_B)/\lambda$ et la différence $(\mathbf{R}_k^0 - \mathbf{R}_l^0)$ est un multiple du paramètre de maille, a , dans la direction perpendiculaire aux plans diffractants. Si n est le facteur de multiplication, $(\mathbf{R}_k^0 - \mathbf{R}_l^0) = n \mathbf{a}$, la différence $(\delta\mathbf{R}_k - \delta\mathbf{R}_l)$ est aussi une fonction de n . On peut donc écrire :

$$A(n) = \exp \{ 2\pi i \mathbf{g} (\delta\mathbf{R}_k - \delta\mathbf{R}_l) \}. \quad (6)$$

La modélisation de l'élargissement des pics de diffraction revient donc, à exprimer les coefficients $A(n)$ en fonction uniquement de (n) la projection de la distance entre les atomes, pris par paires, sur la normale des plans diffractants (Figure 16). Ceci implique que le calcul de $A(n)$ revient à faire une moyenne sur toutes les paires d'atomes caractérisées par la même distance projetée $n \times a$.

Annexe 2 : Diffraction - Aspects techniques

2.1. Introduction

L'histoire d'un faisceau de rayons X commence par la source (par exemple, un tube de rayon X), et finit par le détecteur, en passant par les fentes, le monochromateur, l'échantillon et le tube à vide. L'ensemble est appelé diffractomètre. Chaque élément dans ce groupe modifie impérativement un aspect du faisceau final. Cette annexe est consacrée à l'étude des caractéristiques importantes d'un faisceau afin de comprendre l'essentiel du travail présenté dans ce mémoire.

. Tubes Classiques de Rayons X

Un tube est caractérisé par son spectre d'émission. Sous des conditions de fonctionnement habituelles, le spectre émis contient des raies caractéristiques (Figure 17).

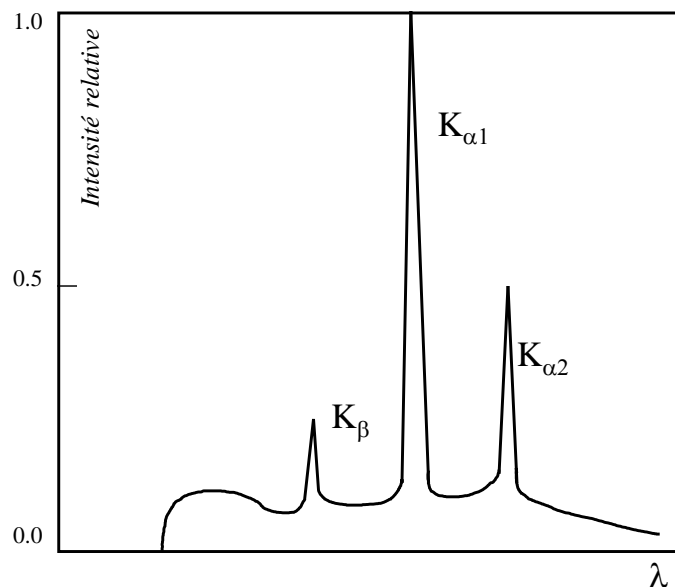


Figure 17. Représentation schématique du spectre d'un tube de rayons X.

Les raies K_i n'apparaissent que si la tension d'accélération est supérieure à un seuil critique [††]. Une première sélection de la nature de faisceau passe donc par le choix du courant du filament et la tension d'accélération. Les K_i sont les raies caractéristiques du tube et dépendent de la nature de l'anode (destination des électrons accélérés dans le tube). Rares sont les applications qui utilisent la totalité du spectre.

2.2. Fentes

Toute modification de la divergence angulaire du faisceau principalement dans le plan de diffraction entraîne un changement de la qualité du rayonnement final. Dans cette annexe,

[††] A. Guinier, dans « Théorie et technique de la radiocristallographie », Dunod, Paris (1964).

seule la description géométrique du faisceau dans le plan de diffraction sera traitée. La divergence angulaire d'un faisceau, si la source est considérée comme ponctuelle, est proportionnelle à la taille de la fente verticale δ_v (Figure 18) :

$$\Delta\theta = \delta_v / l, \quad (1)$$

où l est la distance entre la source et la fente.

2.3. Monochromateurs

Le monochromateur est un *monocrystal parfait sans défauts cristallins*. La loi de Bragg, appliquée au monochromateur, montre que l'angle d'incidence sélectionne l'onde diffractée dans le spectre incident par la relation : $\lambda = 2d_m \sin(\theta_m)$, où d_m et θ_m sont, respectivement, la distance réticulaire et l'angle de Bragg du monochromateur.

Par conséquent, une divergence angulaire $\Delta\theta$ (définie par l'équation (1)) produit une dispersion spectrale non nulle $\Delta\lambda$ selon l'équation :

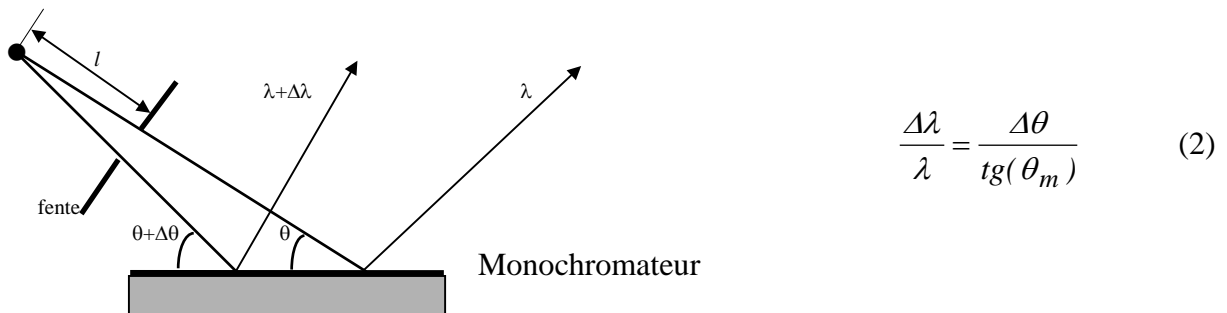


Figure 18. Equivalence entre la divergence angulaire et la dispersion spectrale.

La taille de la fente est choisie, tout en conservant une intensité raisonnable, en fonction de l'application souhaitée. Par exemple, pour un tube de cuivre avec $K_{\alpha 1} = 0,15405$, $K_{\alpha 2} = 0,15443$ et $K_{\beta} = 0,1392$ nm ; si le Germanium est utilisé comme monochromateur avec $\theta_m = 70,4^\circ$ (réflexion {444}), pour éliminer complètement la raie K_{β} , avec une fente centrée sur $K_{\alpha 1}$, la divergence relative ($\Delta\lambda/\lambda$) doit être inférieure à 0,1. Dans ce cas, $\Delta\theta$ ne doit pas dépasser 16° . Mais si l'on espère ne garder que la raie $K_{\alpha 1}$, $\Delta\lambda/\lambda$ devient de l'ordre de 0,0038 et $\Delta\theta$ devient inférieur à $0,6^\circ$. Ceci signifie que si la fente est à 10 cm de la source, sa taille doit être inférieure à 1 mm. Si, parfois, deux fentes sont utilisées avant et après le monochromateur (Figure 19), leurs effets s'accroissent réduisant ainsi la divergence spectrale du faisceau final.

La notion du « rayonnement monochromatique » est théoriquement liée à $\Delta\lambda$ nulle. Cette condition est impossible à remplir en pratique. Conventionnellement, ceci signifie une dispersion spectrale très faible, souvent prise autour de la raie $K_{\alpha 1}$, la plus utilisée grâce à son intensité très élevée.

2.4. Détecteurs

Le détecteur est un appareil sensible aux photons X et capable de produire un signal mesurable proportionnel au nombre de photons reçus en chaque point de mesure (canal). Pour les mesures de profils de pics de diffraction, les détecteurs linéaires sont souvent souhaités. Pour ces derniers, la résolution est fonction de deux paramètres :

- 1) la résolution physique du détecteur (Δc),
- 2) la distance entre le détecteur et l'échantillon (L),

ce qui permet d'obtenir la résolution en 2θ :

$$\Delta(2\theta) = \Delta c/L. \quad (3)$$

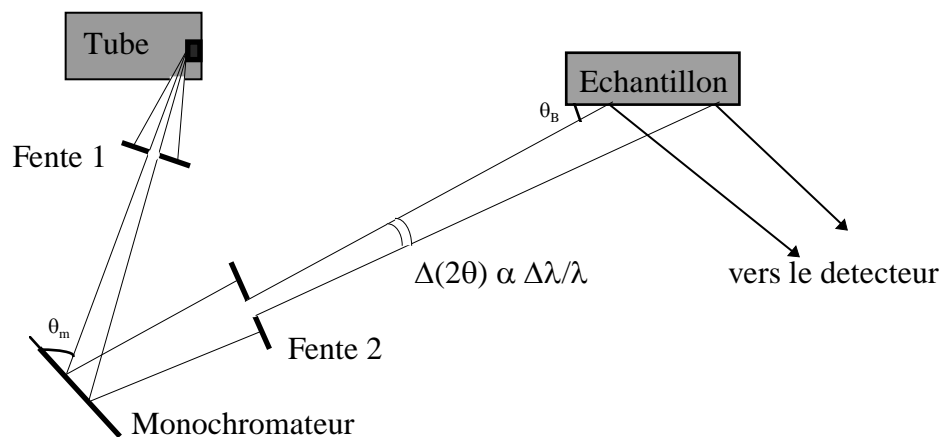


Figure 19. Représentation schématique d'un diffractomètre.

En outre, Wilkens [‡‡] a démontré que la distance (L) joue un autre rôle important. En effet, si la raie $K_{\alpha 1}$ est sélectionnée par l'intermédiaire des fentes, le faisceau n'est pas « monochromatique » parce que cette raie a une dispersion spectrale due à sa largeur. Un choix judicieux de la distance L permet de focaliser le faisceau et de compenser cette dispersion. Dans le cas du diffractomètre montré dans la Figure 19, il suffit de respecter la relation suivante :

$$L = \frac{tg(\theta_m)}{tg(\theta_m) - 2tg(\theta_B)} (l_1 + l_2), \quad (4)$$

où l_1 est la distance entre la source et le monochromateur, l_2 est la distance entre le monochromateur et l'échantillon, θ_B est l'angle de Bragg de l'échantillon. L'application stricte de cette équation permet de réduire $\Delta\lambda$ à une valeur très proche de la limite théorique, appelée « la largeur de Darwin [§§] ». Tout autre élargissement est dû soit aux défauts cristallins (élargissement de déformation) soit à la taille des domaines cohérents.

Par ailleurs, la résolution physique du diffractomètre n'est pas donnée par la seule résolution du détecteur (équation (3)). L'amélioration de la résolution propre au détecteur, en effet, ne

[‡‡] Wilkens, M. et Eckert, K., *Z. Naturf.*, **19** (1964), p. 459.

[§§] Battermann, B. W. et Cole, H., *Reviews of Modern Physics*, **36** (1964), p. 681.

change pas la « qualité » physique du rayonnement. La résolution réelle peut être « mesurée » par la largeur d'un pic d'un monocristal parfait. Cette largeur représente la « somme » de tous les défauts de rayonnement (dispersion spectrale, centricité, etc.) et caractérise la qualité de l'ensemble { tube (courant-tension), fentes, monochromateur, distance (échantillon-détecteur)}.

2.5. Diffractomètre à Haute Résolution

Comme on l'a vu, la résolution d'un diffractomètre est définie expérimentalement par la largeur d'un pic d'un cristal parfait. Du point de vue de la théorie dynamique la diffraction, ce pic n'est pas un pic de Dirac. Cette théorie prévoit une certaine largeur de quelques dizaines de secondes d'arc, dépendant de plusieurs paramètres^[§§]. Par exemple, pour le pic [002] d'un cristal parfait de cuivre avec la raie $CuK_{\alpha 1}$, la largeur de Darwin a été évaluée par Wilkens et Eckert [‡‡] à 19 secondes d'arc. Un diffractomètre à haute résolution est celui pour lequel l'élargissement instrumental est *négligeable* par rapport à l'élargissement étudié. Dans ce cas, aucune correction instrumentale n'est nécessaire.

L'élargissement relatif de pics de diffraction dû à l'érouissage est faible et peut être de l'ordre de quelques 10^{-4} . Par conséquent, pour pouvoir étudier expérimentalement cet élargissement, $\Delta\lambda/\lambda$ doit être inférieur à 10^{-4} . Les travaux d'Ungar et al. [***] ont montré qu'une telle performance peut être expérimentalement atteinte en éliminant la raie $K_{\alpha 2}$ et en compensant la dispersion spectrale de $K_{\alpha 1}$. Dans ce cas, la résolution physique s'approche de la largeur de Darwin et le diffractomètre est dite à haute résolution. Si ces conditions ne sont pas vérifiées, l'élargissement instrumental devient comparable voire supérieur à celui créé par les dislocations. Ceci implique une étape de « correction » de chaque profil pour éliminer l'élargissement instrumental, ce qu'on appelle « déconvolution ». S'il s'agit de repérer le centre de gravité du pic, la déconvolution peut être effectuée relativement sans ambiguïté, à condition que le spectre expérimental soit parfaitement connu. En revanche, si le but est d'analyser le profil du pic, la déconvolution peut s'avérer « délicate ».

2.6. Rayonnement Synchrotron (ESRF)

Les rayons X peuvent être produits par le changement du vecteur vitesse des électrons accélérés par des champs électrique et magnétique (principe de fonctionnement des accélérateurs d'électrons). Au Synchrotron de Grenoble, une source de rayons X résulte de chaque déviation des électrons dans l'anneau d'accélération. Ainsi, 64 lignes (chacune constituée d'une salle avec une source de rayonnement blanc) sont ouvertes pour des projets scientifiques divers et variés. La ligne choisie pour les analyses de l'élargissement de profils est la ligne *ID15-A*. Un schéma descriptif de cette ligne est présenté dans la Figure 20. Le faisceau blanc initial est considéré comme parallèle. Par conséquent, la taille du spot sur l'échantillon est déterminée par les tailles des fentes verticale et horizontale fixées à 1 mm. Deux monocristaux de Silicium (réflexion (115)), ont été choisis comme monochromateur et analyseur. Cette ligne est conçue pour la technique de diffraction en transmission avec des rayons X de haute énergie ($\lambda < 0.1$ nm).

[***] Ungar, T., Toth, L. S., Illy, J. and Kovacs, I., *Acta Metall.*, **34** (1986), p. 1257.

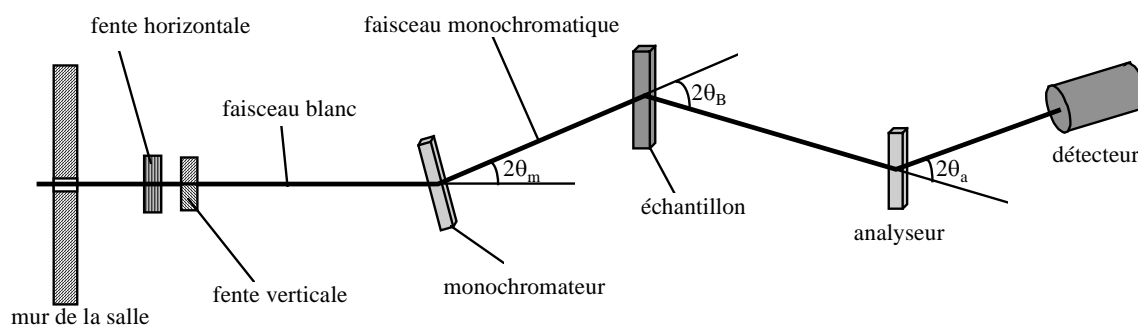


Figure 20. Schéma de la ligne ID15-A du Synchrotron de Grenoble. θ_m , θ_B et θ_a sont les angles de Bragg du monochromateur, de l'échantillon et de l'analyseur.

Pour notre projet, la longueur d'onde λ a été fixée à 0.0124 nm (rayonnement de 100 keV), ce qui implique $2\theta_m = 2\theta_a = 6.8^\circ$. Les profils de diffraction sont construits point par point grâce à la rotation de l'analyseur qui entraîne avec lui un déplacement du détecteur dans la direction souhaitée. La résolution d'un tel diffractomètre est fonction de plusieurs paramètres [†††, ‡‡‡]. La mesure d'un profil d'un monocristal de silicium, montre que cette résolution est largement suffisante pour les mesures des profils élargis par la déformation plastique ($\Delta\lambda/\lambda < 10^{-4}$).

[†††] H. B. Neumann, U. Rütt, J. R. Schneider et H. Nagasawa, *J. Appl. Cryst.*, **27** (1994), p. 1030.

[‡‡‡] U. Rütt, H.-B. Neumann, H. F. Poulsen et J. R. Schneider, *J. Appl. Cryst.*, **28** (1995), p. 729.

11. Bibliographie

- [1] P. W. Bridgman, *Rev. Mod. Phys.*, **22** (1950), p. 56.
- [2] A. P. Sotton et R.W. Balluffi, *Acta Met.*, **35** (1987), p. 2177.
- [3] F. J. Humphreys et M. Hatherly, dans « Recrystallization and Related Annealing Phenomena », Elsevier Science Ltd (1995).
- [4] H. B. Huntington et F. Seitz, *Phys. Rev.* **61** (1942), p. 315.
- [5] J. F. Nicolas, *Acta Met.*, **7** (1959), p. 544.
- [6] J. F. Nicolas, *Phil. Mag.*, **46** (1955), p. 87.
- [7] A. Welfenden, *Scripta Met.* **2** (1968), p. 621.
- [8] A. Kelly et G. W. Groves, dans « Crystallography & crystal defects », Longman Group Limited, London (1970).
- [9] R.W. K. Honeycombe, dans « The Plastic Deformation of Metals », Edward Arnold, LTD (1968).
- [10] F.R.N. Nabarro, dans « Dislocations in Solids », North-Holland Publishing Company (1979).
- [11] E. Smith, *Acta Met.*, **14** (1966), P. 991.
- [12] M. C. Theyssier, thèse de doctorat, Ecole de Mines de St-Etienne (1996).
- [13] A. S. Malin et M. Hatherly, *Met. Sci.*, **13** (1979), p. 463.
- [14] P. C. Cohlen, A. R. Rosenfield et G. T. Hahn, *J. Appl. Phys.*, **39** (1968), p. 5246.
- [15] U. F. Kocks and R. O. Scattergood, *Acta Met.*, **17** (1969), p. 1161.
- [16] D. Kuhlmann-Wilsdorf, *Mat. Sci. Eng.*, **A113** (1989), p. 1.
- [17] M. Wilkens, *Acta Met.*, **17** (1969), p. 1155.
- [18] M. Wilkens, *Acta Met.*, **15** (1967), p. 1412.
- [19] M. Wilkens, *Phys. Stat. Sol.*, **2** (1970), p. 359.

-
- [20] M. Wilkens, K. Herz et H. Mughrabi, *Z. Metallkunde*, **71** (1980), p. 376.
- [21] M. Verdier, I. Groma, L. Flandin, J. Lendvai, Y. Bréchet et P. Guyot, *Scrip. Mat.*, **37** (1997), p. 449.
- [22] N. Hansen et D. Kuhlmann-Wilsdorf, *Mat. Sci. Eng.*, **81** (1986), p. 141.
- [23] D. Kuhlmann-Wilsdorf, *Mat. Sci. Eng.*, **39** (1979), p. 231.
- [24] S. Straub, W. Blum, H. J. Maier, T. Ungar, A. Borbely and H. Renner, *Acta Mat.*, **44** (1996), p. 4337.
- [25] H. Mughrabi, *Acta Met.*, **31** (1983), p. 1367.
- [26] H. Mughrabi, *Mater. Sci. Eng.*, **85** (1987), p. 1.
- [27] O. B. Pedersen, L. M. Brown et W. M. Stobbs, *Acta Met.*, **29** (1981), p. 1843.
- [28] Y. Estrin, L. S. Toth, A. Molinari et Y. Bréchet, soumis à *Acta Mat.* (1998).
- [29] W. M. Baldwin, Tr., *Proc. ASTM*, 4a (1949), p. 539.
- [30] H.-A. Crostack, W. Reimers, Proceedings ICRS2, 1989.
- [31] R. Dupke et W. Reimers, *Z. Metallkd.*, **86** (1995), p. 665.
- [32] Argon, A. S. et Haasen, P., *Acta Metall. Mater.*, **41** (1993), p. 3289.
- [33] Ungar, T. et Zehetbauer, M., *Scripta Mater.*, **35** (1996), p. 1467.
- [34] P. H. Willems, *Scripta Met.*, **23** (1989), p. 543.
- [35] M. B. Bever, D. L. Holt et A.L. Titchener, *Progress in Materials Science* **7** (1973), p. 91.
- [36] G. Gottstein, J. Bewerunge, H. Mecking et H. Wollenberger, *Acta Met.* **33**(1975), p. 641.
- [37] A. Welfenden, *Acta Met.*, **19** (1971), p. 1373.
- [38] D. Rönnpagel et CH. Schwink, *Acta. Met.*, **26** (1978), p. 319.
- [39] L.M. Clarebrough, M.E. Hargreaves, D. Michell et G.W. West, *Proc. Roy. Soc.*, **A215** (1952), p. 507.
- [40] J.L. White et K. Koyama, *Rev. Sci. Instr.*, **34** (1963), p. 1104.
- [41] M. Verdier, I. Groma, L. Flandin, J. Lendvai, Y. Bréchet et P. Guyot, *Scrip. Mat.*, **37** (1997), p. 449.

-
- [42] M. A. Krivoglaz, dans « Theory of X-ray and Thermal Neutron Scattering by real Crystals », Plenum Press, N. Y. (1969).
- [43] M. Wilkens, *Phys. Stat. Sol.*, **2** (1970), p. 359.
- [44] C.G. Maier et C.T. Anderson, *J. Chem. Phys.*, **2** (1934), p. 513.
- [45] J.E. Sinclair, P.C. Gehlen, R.G. Hoagland et J.P. Hirth, *J. Appl. Phys.*, **49** (1978), p. 3890.
- [46] M. Verdier, thèse de doctorat, INPG, décembre (1996).
- [47] W. Pfeiler, M. Zehetbauer et J. Schrank, *Scrip. Met.*, **19** (1985), p. 505.
- [48] L.M. Clarebrough, M.E. Hargreaves et M.H. Loretto, *Acta Met.*, **8** (1960), p. 797.
- [49] W. Lugscheider et H. Wildhack, *Z. Metallk.*, **59**, (1968), 124.
- [50] A. Welfenden et A.S. Appleton, *Acta Met.*, **16** (1968) 915
- [51] A. Welfenden, *Acta Met.*, **16** (1968) 975..
- [52] I. Baker, L. Liu et D. Mandal, *Scrip. Met.*, **32** (1995), p. 167.
- [53] D. Mandal et I. Baker, *Mater. Sci. Forum*, **207-209** (1996), p. 521
- [54] L. Liu et I. Baker, *Scrip. Met.*, **28** (1993), p. 197.
- [55] H. Steffen, G. Gottstein et W. Wollenberger, *Acta Met.*, **21** (1973), p. 683.
- [56] Y. Nakada, *Phil. Mag.*, **11** (1965), p. 251.
- [57] K. Becker, *Z. Physik*, **42** (1927), p. 226.
- [58] P. Scherrer, *Nachr. Göttinger Gesell., Zsigmondy's Kolloidchemie*, troisième édition **98** (1918), p. 394.
- [59] G. B. Greenough, *Progress in Metal Physics*, Vol. 3, Pergamon Press (Londres 1952), p. 176.
- [60] M. A. Krivoglaz, dans « Theory of X-ray and Thermal Neutron Scattering by real Crystals », Plenum Press, N. Y. (1969).
- [61] T. Ungar, Ph. A. Dubey et G. Kostorz, *Acta Met. Mat.*, **38** (1990), p. 2583.
- [62] B. E. Warren et B. L. Averbach, *J. Appl. Phys.*, **21** (1950), p. 595.
- [63] A. R. Stokes, *Proc. Phys. Soc.*, **16** (1948), p. 382.

-
- [64] H. I. West, W. E. Meyerhof et R. Hofstadter, *Phys. Rev.*, **81** (1950), p. 141.
- [65] B. E. Warren dans « X-RAY DIFFRACTION », Dover Publications, INC., New York (1969).
- [66] T. Ungar, H. Mughrabi, D. Rönnpagel et M. Wilkens, *Acta Met.*, **32** (1984), p. 333.
- [67] M. Wilkens, *J. Appl. Cryst.*, **12** (1979), p. 119.
- [68] M. Wilkens, dans « Microstructural Characterization of Materials by Non-Microscopical Techniques », Ed. H. H. Andersen et al., Riso National Laboratory, Roskilde 1984, p. 153.
- [69] M. Wilkens, *Phys. Stat. Sol.*, **3** (1963), p. 1718.
- [70] A. J. C. Wilson, *Nuovo Cimento*, **1** (1955), p. 277.
- [71] G. K. Williamson et R. E. Smallman, *Phil. Mag.*, **1** (1956), p. 34.
- [72] J. L. Lebrun et P. Sainfort, *J. Mat. Sci.*, **29** (1994), p. 1553.
- [73] D. Breuer, P. Klimanek, U. Mühle et U. Martin, *Z. Metallkd.*, **88** (1997), p. 9.
- [74] T. Ungar et A. Borbely, *Appl. Phys. Lett.*, **69** (1996), p. 3173.
- [75] J.G.M. van Berkum, A.C. Vermeulen, R. Delhez, Th.H. de Keijser et E.J. Mittemeijer, *Mater. Sci. Forum*, **133-136** (1993), p. 77.
- [76] M. A. Krivoglaz et K. P. Ryaboshapka, *Fizika Metall.*, **15** (1963), p. 18.
- [77] U. F. Kocks et R. O. Scattergood, *Acta Met.*, **17** (1969), p. 1161.
- [78] M. Wilkens, *Acta Met.*, **17** (1969), p. 1155.
- [79] M. Wilkens, *Phys. Stat. Sol.*, **2** (1970), p. 359.
- [80] T. Ungar, H. Mughrabi et M. Wilkens, *Acta Metall.*, **30** (1982), p. 1861.
- [81] M. Wilkens, K. Herz et H. Mughrabi, *Z. Metallk.*, **71** (1980), p. 376.
- [82] T. Ungar, L. S. Toth, J. Illy et I. Kovacs, *Acta Met.*, **34** (1986), p. 1257.
- [83] I. Groma, T. Ungar et M. Wilkens, *J. Appl. Cryst.*, **21** (1988), p. 47.
- [84] T. Ungar, I. Groma et M. Wilkens, *J. Appl. Cryst.*, **22** (1989), p. 26.
- [85] I. Gaal, dans Proc. 5th Riso Int. Symp. on Metallurgy and Material Science, Ed. N., 1984.

-
- [86] H. Mughrabi, *Acta Metall.*, **31** (1983), p. 1367.
- [87] A. Argon et P. Haasen, *Acta Met. Mat.*, **41** (1993), p. 3289.
- [88] E. Goettler, *Phil. Mag.*, **28** (1973), p. 1057.
- [89] C. Schwink et E. Goettler, *Acta Met.*, **24** (1976), p. 173.
- [90] I. Groma, *Phys. Rev. B*, **57**, n° **13** (1998), p. 1.
- [91] T. Ungar, dans « Advances in X-Ray diffraction », vol. **40** (Denver, Colorado 1996).
- [92] M. Wilkens, *Phys. Stat. Sol. (a)*, **104** (1987), p. K1.
- [93] P. Klimanek et R. Kuzel, *J. Appl. Cryst.*, **21** (1988), p. 59.
- [94] R. Kuzel et P. Klimanek, *J. Appl. Cryst.*, **21** (1988), p. 363.
- [95] R. Kuzel et P. Klimanek, *J. Appl. Cryst.*, **22** (1989), p. 299.
- [96] A. Borbèly and T. Ungar, soumise au *J. Appl. Cryst.*
- [97] T. Ungar et G. Tichy, soumise à *Phys. Stat. Sol.*
- [98] M.B. Bever, D.L. Holt et A.L. Titchner in « Progress in Materials Science : The Stored Energy of Cold Work », Pergamon Press Ltd., Headington Hill Hall, Oxford (1973).
- [99] M. Wilkens et K. Eckert, *Z. Naturf.*, **19a** (1964), p. 459.
- [100] T. Ungar, L. S. Toth, J. Illy et I. Kovacs, *Acta Metall.*, **34** (1986), p. 1257.
- [101] Mughrabi, H., *Acta Metall.*, **31** (1983), p. 1367.
- [102] Ungar, T., Mughrabi, H., Rönnpapel, D. and Wilkens, M., *Acta Metall.*, **32** (1984), p. 333.
- [103] L.M. Clarebrough, M.E. Hragreaves et G.W. West, *Proc. Roy. Soc.*, **A232** (1955), p. 252.
- [104] A. Van den Beukel, *Acta Met.*, **11** (1963), p. 97.
- [105] T. Ungar, L. S. Toth, J. Illy et I. Kovacs, *Acta Metall.*, **34** (1986), p. 1257.
- [106] T. Ungar, I. Groma et M. Wilkens, *J. Appl. Cryst.*, **22** (1989), p. 26.
- [107] M. A. Krivoglaz, dans « Theory of X-ray and Thermal Neutron Scattering by real Crystals », Plenum Press, N. Y. (1969).

-
- [108] M. Wilkens, *Phys. Stat. Sol.*, **3** (1963), p. 1718
- [109] H. Mughrabi, *Acta Met.*, **31** (1983), p. 1367.
- [110] H. Mughrabi, *Mat. Sci. Eng.*, **85** (1987), p. 15.
- [111] F. R. N. Nabarro, *Acta Met. Mat.*, **38** (1990), p. 637.
- [112] H. Mughrabi, T. Ungár, W. Kienle et M. Wilkens, *Phil. Mag., A*, **53** (1986), p. 793.
- [113] G. Mohamed, B. Bacroix, J.L. Lebrun, T. Chauveau et T. Ungar, soumis à *Mat. Sci. Eng.*
- [114] M. Muller, M. Zehedbaour, A. Borbely et T. Ungar, *Z. Metallkd.*, **86** (1995), p. 827.
- [115] H. Biermann, T. Ungar, T. Pfannenmüller, G. Hoffmann, A. Borbely and H. Mughrabi, *Acta Met. Mat.*, **41** (1993), p. 2743.
- [116] H. Mughrabi, H. Biermann et T. Ungar, dans « Superalloys »(1992), edited by S. D. Antolovich, R. W. Stusrud, R. A. MacKey, D. L. Anton, T. Khan, R. D. Kissenger, D. L. Klarstrom. The Mineral, Metals & Materials Society.
- [117] M. Wilkens, *Acta Met.*, **17** (1969), p. 1155.
- [118] U. F. Kocks and R. O. Scattergood, *Acta Met.*, **17** (1969), p. 1161.
- [119] B. E. Warren et B. L. Averbach, *J. Appl. Phys.*, **21** (1950), p. 595.
- [120] B. Bay, N. Hansen, D.A. Hughes et D. Kuhlmann-Wilsdorf, *Acta Met.*, **2** (1992), p. 205.
- [121] Z.S. Basinski, *Scripta Met.*, **8** (1974), p. 1301.
- [122] M. Wilkens, *Phys. Stat. Sol.*, **2** (1970), p. 359.
- [123] M. Wilkens, dans « Micristructural Caractérisation of Materials bu Non-Microscopical Techniques », Ed. H. H. Andersen et al., Riso National Laboratory, Roskilde 1984,p 153.
- [124] I. Groma, *Phys. Rev. B*, **57**, n° **13** (1998), p. 1.
- [125] S. Straub, W. Blum, H. J. Maier, T. Ungar, A. Borbely and H. Renner, *Acta Mat.*, **44** (1996), p. 4337.
- [126] D. Kuhlmann-Wilsdorf, *Mat. Sci. Eng.*, **A113** (1989) p. 1.
- [127] T. Ungar et A. Borbely, *Appl. Phys. Lett.* **69** (1996), p. 3173.
- [128] M. Müller, M. Zehetbauer, A. Borbely et T. Ungar, *Z. Metallkd.* **86** (1995), p. 12.
- [129] M. Verdier, I. Groma, L. Flandin, J. Lendvai, Y. Bréchet et P. Guyot, *Scrip. Mat.*, **37**

-
- (1997), p. 449.
- [130] S. J. Basinski et Z. S. Basinski, dans « Dislocations in Solids », Vol. 4, Ed. F.R.N. Nabarro, North-Holland Publishing Company (1979).
- [131] I.C. Noyan et J.B. Cohen, dans « Residual Stress », Springer-Verlag New York Inc. 1987.
- [132] J. L. White et K. Koyama, *Rev. Sci. Instr.*, **34** (1963), p. 1104.
- [133] D. Mandal et I. Baker, *Mater. Sci. Forum*, **207-209** (1996), p. 521.
- [134] D. Rönnpagel et CH. Schwink, *Acta Met.* **26** (1978), p. 319.
- [135] I. Baker, L. Liu et D. Mandal, *Scrip. Met.*, **32** (1995), p. 167.
- [136] M. F. Ashby, *Phil. Mag.*, **21** (1970), p. 399.
- [137] K.K. Mathur et P.R. Dawson, *International Journal of Plasticity*, **5** (1989), p. 67.
- [138] P. Blandford, J.A. Szpunar, D. Daniel et J.J. Jonas, *Texture and Microstructure*, **14-18** (1991), p. 525.
- [139] S. Mishra, C. Darmann et K. Lucke, *Acta. Met.*, **32** (1984), p. 2185.
- [140] C. Le Calvez, M. Belassel et P. Gergaud, dans « Gradients de contraintes - Détermination des contranites internes par diffraction des rayons X », LM3 - ENSAM PARIS (1995), p. 2.
- [141] A. Guinier, dans « Théorie et technique de la radiocristallographie », Dunod, Paris (1964).
- [142] J.T. Fourie, *Phil. Mag.*, **21** (1970), p. 977.
- [143] H. Mughrabi, *Phys. Stat. Sol.*, **39** (1970), p. 317.
- [144] W. Bollmann, dans « Crystal Defects and Crystal Interfaces », Spinger Verlag, Berlin (1970)
- [145] P.D. Bristowe, *J. de Physique Colloque* **C6-33** (1982), p. 43.
- [146] M.L. Kronberg et F.H. Wilson, *Trans. Metall. Soc. A.I.M.E.*, **185** (1949), p. 501.
- [147] F.J. Humphreys et M. Hatherly, dans « Recrystallization and Related Annealing Phenomena », Ed. Pergamon, Elsevier Science Ltd (1995).
- [148] L. Liu et I. Baker, *Scripta Met.* **28** (1993), p. 197.

-
- [149] F. Haessner, G. Hoschek, et G. Tolg, *Acta Met.* **27** (1979), p. 399.
- [150] L. Ryde, W. B. Hutchinson et S. Jonsson, dans « Recrystallization 90 » Ed. T. Chandre, The Minerals, Metals and Materials Society, 1990.
- [151] C. Lineau, C. Rey et P. Viaris de Lesegno, *Mat. Sci. Eng.*, A234-236 (1997), p. 853..
- [152] W. B. Hutchinson, S. Jonsson et L. Ryde, *Scripta Met.* **23** (1989), p. 671.
- [153] T. Baudin, Z. Jazienski, A. Piatkowski, J. Pospiech et R. Penelle, *La Revue de Métallurgie*, **septembre** (1997), p. 1057.
- [154] U. Klement et P.-J. Wilbrandt, in ICOTOM 8, Ed. J.S. Kamend and J. Gottstein, The Metallurgical Society (1988).
- [155] P. Haasen, *Metal. Trans.* **24A** (1993), p. 1001.
- [156] A. Berger, P.J.Wilbrandt, F. Ernst, U. Klement et P. Haasen, *Progress in Materials Science*, **32** (1988), p. 1.
- [157] A. Berger, P.J.Wilbrandt et P. Haasen, *Acta Met.* **31** (1983), p. 1433.
- [158] G. Gottstein, *Acta Met.* **32** (1984), p. 1117.
- [159] L.M. Clarebrough et M.E. Hargreaves, *J. Aust. Inst. Metals* **3** (1958), p. 31.
- [160] M. B. Bever, D. L. Holt et A.L. Titchener, *Progress in Materials Science* **7** (1973), p. 91.
- [161] J. Schamp, B. Verlinden et J. Van Humbeeck, *Scrip. Met.* **34** (1996), p. 1667.
- [162] M. Verdier, Thèse de doctorat de INPG (décembre 1996).
- [163] P. A. Beck et P.R. Sperry, *J. Appl. Phys.*, **21** (1950), p. 150.
- [164] J.E. Bailey et P.B. Hirsch, *Proc. R. Soc. Lond.*, **A266** (1962), p. 11.
- [165] M.C. Theyssier, thèse de doctorat en Science et Génie des Matériaux, INPG-ENSMSE (1996).
- [166] F. Inoko, M. Kobayashi, K. Tatsumi et M. Meshii, *J. Japan Inst. Metals*, **52** (1988), p. 1169.
- [167] F. Inoko et T. Yoshikawa, *Mater. Trans., JIM*, **34** (1993), p. 334.