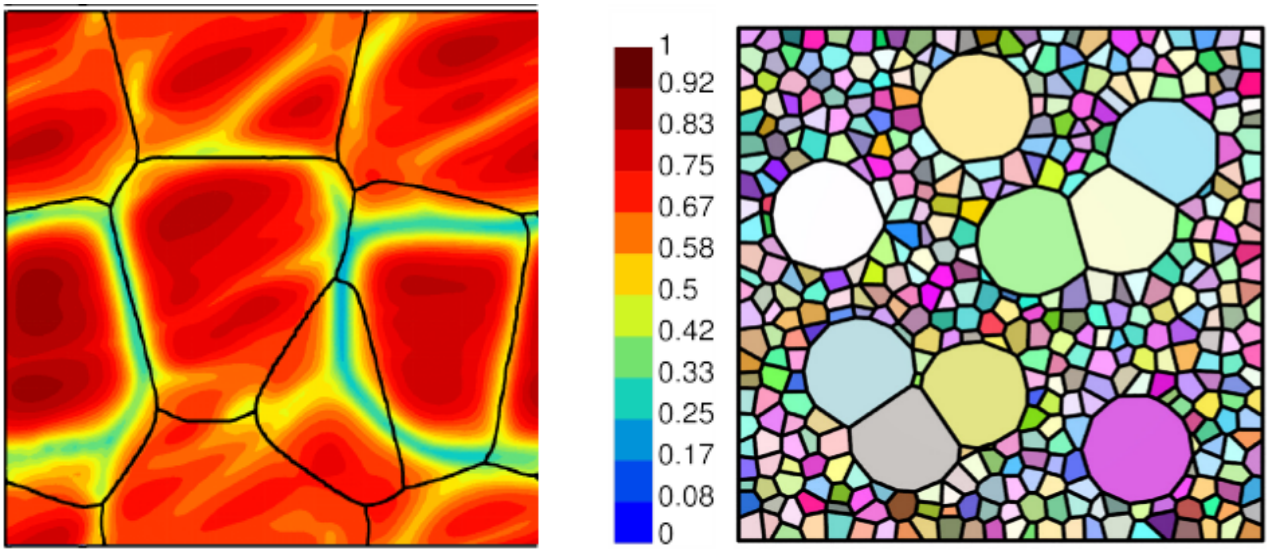
Sujet de thèse Mines ParisTech CNRS
Design de microstructures harmoniques par une approche multiéchelles
2020-2023

Lieu : Centre des Matériaux Mines ParisTech, CNRS UMR 7633, PSL university
Financement : Contrat doctoral CNRS
Directeurs de thèse : Samuel Forest (Mines ParisTech) et Benoit Appolaire (Université de Lorraine)
Co-encadrants : Anna Ask (ONERA) et Kais Ammar (Mines ParisTech)
Ecole doctorale : ED n° 621 Ingénierie des Systèmes, Matériaux, Mécanique, Energétique - ISMME
Compétences requises : Mécanique des milieux continus, Mécanique numérique, Mécanique des matériaux
Contact : *samuel.forest@mines-paristech.fr*



Champ de phase dont les valeurs minimales sont atteintes dans les joints de grains (à gauche) à l'aide du modèles de Cosserat-champ de phase (les traits noirs indiquent les joints de grains initiatux) après déformation par cisaillement du polycristal périodique. Microstructure synthétique de polycristal bimodal (à droite, utilisée par (Flipon et al. 2019) pour étudier le comportement mécanique).

Résumé : Le projet a pour objectif de développer les méthodologies multiéchelles les plus récentes issues de la métallurgie physique et de la mécanique des milieux continus afin de contribuer au design de microstructures bimodales, c'est-à-dire avec deux populations de tailles de grains distinctes, d'alliages métalliques possédant un fort écrouissage et une ductilité suffisante. Les mécanismes en jeu sont la croissance de grains et la recristallisation induite par l'énergie stockée dans les polycristaux du fait de la déformation plastique. L'approche proposée combine la mécanique des milieux de Cosserat appliquée à la plasticité cristalline avec la méthode de champs de phase adaptée à la modélisation des interfaces mobiles. La théorie à trois champs (déplacement, orientation cristalline, ordre cristallin) sera renseignée par des simulations atomiques des propriétés des joints de grains. Validée dans le cas de microstructures harmoniques disponibles au GPM de l'INSA de Rouen, l'approche sera étendue aux alliages hexagonaux pour tirer profit de leur forte anisotropie. Les simulations numériques seront réalisées en 2D et 3D grâce à la méthode des éléments finis nonlinéaires.

Mots-clefs : Polycristal, Plasticité cristalline, Recristallisation, Croissance, Milieux de Cosserat, Méthode des champs de phase, Microstructures bimodales, Joints de grains, Eléments finis

Etat de l'art : L'ingénierie des microstructures s'est considérablement développée dans les vingt dernières années en s'appuyant sur les procédés d'affinage de la taille de grains et en jouant sur leur morphologie : grains nanocristallins (Meyers et al., 2006) et structures lamellaires ou filaires (Thilly et al. 2002, Gu et al. 2019). Produites par métallurgie des poudres, déformations sévères ou hyper-déformation, ces matériaux atteignent des limites d'élasticité inédites mais souffrent généralement d'une faible ductilité. Plus récemment, des microstructures dites harmoniques, ont été conçues pour combiner durcissement et ductilité en associant deux populations de grains, en termes de taille et de répartition spatiale : une "matrice" de grains fins durcissant le matériau, et des grains grossiers améliorant la ductilité en supportant l'essentiel de la déformation plastique. Depuis les premiers travaux proposant ce type de matériaux (par exemple Jin et al. 2004, et Srinivasrao et al. 2008), la plupart des études ont porté sur les métaux et alliages de structure cubique (Guo et al. 2017). Ces matériaux sont généralement élaborés par métallurgie des poudres impliquant une étape de broyage avant le frittage (par ex. par SPS) ou par déformation plastique sévère (SPD). Dans les deux cas, les étapes de croissance de grains et de recristallisation sont essentielles pour la genèse de la microstructure bimodale. Enfin, il s'avère que le comportement est sensible aux orientations cristallines privilégiées des grains ainsi qu'à la répartition spatiale des gros grains au sein de la matrice de grains fins (Mompiou et al. 2018, Flipon et al., 2019). La compréhension des modes de déformations de ces polycristaux bimodaux passe par des calculs par éléments finis de leur déformation plastique en utilisant les lois de la plasticité cristalline, calculs réalisés récemment par (Wang et al. 2019, Flipon et al. 2019).
À l'échelle atomique, l'étude de la structure des joints de grains, de leurs propriétés statiques (énergie) et dynamiques (mobilité) a beaucoup avancé depuis les premiers travaux numériques de Sutton et al. (1983). Les potentiels interatomiques sont devenus plus fiables grâce à leur paramétrisation utilisant des résultats de DFT et des techniques d'apprentissage automatique (Zhang et al. 2015). Des codes de dynamique moléculaire masssivement parallèles permettent de réaliser des calculs sur de nombreuses configurations de joints de grains en balayant l'espace des paramètres géométriques (Frolov et al. 2013). Parallèlement, la dynamique moléculaire a été utilisée pour déterminer la mobilité des joints de grains pour un nombre de configurations plus restreint (Hoyt 2014). Ces études à l'échelle atomique concernent les métaux et alliages cubiques, à l'exception d'une étude sur des joints de flexion symétriques pour des matériaux hexagonaux (Wang et al. 2012).
La conception de nouvelles microstructures optimales passe par la modélisation de la croissance des grains et de la recristallisation hétérogène. La simulation en champs complets de ces phénomènes a beaucoup progressé d'abord au travers d'automates cellulaires ou de méthodes de vertex, puis grâce aux approches par lignes de niveau (Bernacki et al. 2009, Ilin et al. 2018) ou de champs de phases pour le suivi des joints de grains et des jonctions multiples. Ces dernières approches ont l'avantage de pouvoir être couplées au comportement mécanique mettant en compétition les énergies et la courbure des joints de grains et l'énergie stockée par les dislocations issues de la déformation (Abrivard et al. 2012, Kamashali et al., 2015). Les méthodes de champs de phase s'appuient sur une formulation thermodynamique et permettent donc d'intégrer les différentes contributions physiques consignées dans le potentiel énergie libre et le potentiel de dissipation. Parmi les modèles de champs de phase appliqués à la croissance et à la recristallisation, il faut distinguer les approches dites à multi-champs de phase, dues à I. Steinbach, attribuant un champ de phase par grain, et les approches à 2 champs, orientation cristalline et paramètre d'ordre cristallin (minimal dans les joints de grains) basée sur le modèle de Kobayashi-Warren-Carter (KWC). Ces dernières sont les seules capable de décrire les gradients d'orientation induits au sein des grains par la déformation et susceptible de se transformer en sous-joints de grains voire en germes de nouveaux grains. Elles ont été récemment couplées à la plasticité cristalline (Ask et al. 2018, 2019, Admal et al. 2018, 2019).
De telles méthodes n'ont pas aujourd'hui été appliquées au design de microstructures harmoniques.

Les verrous scientifiques : Deux verrous principaux ont été identifiés. Il s'agit d'abord de la représentation et de la détermination des énergies de joints et de l'anisotropie associée. Jusqu'ici des fonctions isotropes ont été utilisées par (Ask et al. 2019) ne rendant compte que des relations de type Read-Shockley. Une représentation à 5 variables (orientation relative entre les deux grains, normale au joint de grains) a été abordée par (Admal et al. 2019). Il reste à identifier une telle paramétrisation dans le cas de métaux dont l'anisotropie est marquée, tels que les hexagonaux. Les méthodes d'exploration de cet espace à 5 dimensions font aujourd'hui appel au krigeage ou aux algorithmes génétiques. Des difficultés similaires sont rencontrées concernant la mobilité des joints de grains et la quantification de l'énergie stockée.
Le second verrou est le dépassement du domaine d'utilisation actuel des modèles physiques de recristallisation de la classe KWC : petites rotations, faibles courbures, faibles populations de grains,

simulations bidimensionnelles, prise en compte insuffisante des textures cristallographiques, rôle de la température. Les résultats obtenus à ce jour sont d'ordre qualitatif et plutôt modestes en raison des fortes non-linéarités de cette classe de modèles et de la connaissance insuffisante des énergies en jeu.

L'objectif du projet est de proposer une formulation Cosserat-champ de phase capable de simuler la croissance de grains en fonction de fortes hétérogénéités de déformation au sein des grains et de grain à grain, et de l'anisotropie des énergies de joints de grains. Le modèle de Cosserat réconcilie l'approche KWC avec la mécanique (Ask et al. 2018) tandis que le champ de phase décrit un joint de grains diffus et mobile en fonction de la courbure du réseau et des densités de dislocations locales. Le tenseur des contraintes est non symétrique dans cette théorie et la partie non-symétrique est traitée comme la force motrice de la réorientation cristalline au sein du joint de grains diffus. Le *caractère interdisciplinaire* du projet réside dans cette combinaison des approches thermodynamique, métallurgique et mécanique les plus avancées, mêlant paramètres d'ordre, cristallographie et variables mécaniques du comportement élasto-visco-plastique. Le projet met en regard les préoccupations physiques aussi bien que les celles de l'ingénieur concerné par la mise en forme et la résistance des alliages industriels. La mise en commun durable des compétences en simulations physiques (champs de phases) et mécaniques (plasticité, rupture) est nécessaire aujourd'hui pour proposer un nouveau traitement, plus fondamental, des problèmes de l'ingénieur que sont la mise en forme ou l'allègement des structures, par exemple. La classe de modèles proposée est séduisante par le contenu physique clair des différentes variables en jeu mais n'a pas été appliquée à ce jour à des microstructures réalistes des matériaux de l'ingénieur (agrégats polycristallins 3D, taux de déformations importants). Le *caractère exploratoire* du projet consiste alors à évaluer la robustesse de l'approche vis-à-vis de l'accroissement du niveau d'exigence en terme de la physique représentée et du réalisme de la microstructure. C'est à ce prix que l'outil pourra être inséré dans une démarche d'optimisation des microstructures.

Les méthodologies à mettre en place : Quatre étapes sont distinguées dans le projet dont certaines seront menées en parallèle :

1. Détermination des énergies de joints de grains pour des systèmes hexagonaux

Des calculs à l'échelle atomique seront réalisés associant DFT et potentiels atomiques empiriques pour les énergies de joints de grains dans le Ti, le Zn ou le Mg (suivant la difficulté). Ils seront réalisés à l'IJL, parallèlement aux calculs mésoscopiques pour commencer à constituer une banque d'énergies de joints de grains utilisables ensuite dans le modèle mésoscopique. Les potentiels interatomiques de la littérature les plus adaptés à l'étude des métaux hexagonaux seront sélectionnés en confrontant leurs prédictions des grandeurs les plus pertinentes pour l'étude des joints de grains à des calculs DFT sur quelques configurations judicieusement choisies (Tamura et al. 2017). Une technique d'apprentissage automatique sera utilisée pour balayer l'espace des cinq paramètres géométriques caractérisant les joints de grains. Après la construction du paysage d'énergie de joints de grains, la description des joints grains par leur structure atomique (Gomberg et al. 2017) sera reliée au paramètre d'ordre du champ de phase.

2. Plateforme numérique de simulation par Eléments Finis et FFT

Une formulation éléments finis du modèle de Cosserat est disponible dans le code Zset (http://www.zset-software.com) dans le cas des petites déformations, petites rotations et courbures, en 2D. L'extension au cas 3D et aux grandes déformations et désorientations finies est ambitieuse mais indispensable. La difficulté réside dans le traitement des rotations finies, problème délicat bien connu par exemple dans le calcul des coques. Afin d'assurer l'extensibilité de l'approche au cas de microstructures réalistes comportant un nombre suffisants de grains en 3D, une implémentation du milieu de Cosserat en FFT sera également réalisée.

3. Caractérisation numérique du concept d'écrouissage critique

Une clef dans l'obtention de microstructures bimodales est de pouvoir contrôler des niveaux d'énergie stockée permettant à certaines classes de grains de croître aux dépens des autres grains. Il faut pour cela maîtriser la notion élémentaire d'écrouissage critique à une température donnée c'est-à-dire un taux de déformation conduisant une croissance rapide dans des zones suffisamment déformées en fonction des paramètres de mobilité des joints de grains et des densités de dislocations. Des simulations de traction d'éprouvettes trapézoïdales seront réalisées pour déterminer, comme on le fait expérimentalement, le niveau d'écrouissage critique prévu par le modèle.

4. Lien entre localisation de la déformation plastique et germes de recristallisation

Lors de l'optimisation de microstructure, la recristallisation est le deuxième levier après la croissance. La germination de nouveaux grains est souvent considérée comme un processus aléatoire parfois mystérieux. Nous pensons que l'approche proposée est en mesure de prévoir la germination spontanée de nouveaux grains dans des zones de forte localisation de la déformation et de la courbure de réseau, par exemple à

l'intersection de bandes de cisaillement. Des situations élémentaires seront étudiées en grandes déformations dans des collections de grains en configuration de localisation de la déformation. Elles seront suivies d'un traitement thermique numérique pour observer la germination de nouveaux grains, lieux de restauration intense par balayage par des sous-joints formés localement par la localisation de la courbure. Des études de stabilité de certaines configurations élémentaires seront également réalisées de manière semi-analytique pour contrôler les mécanismes de germination dans l'approche complexe proposée.

Résultats attendus : Le produit attendu est d'abord un modèle mésoscopique de croissance et recristallisation valable pour les tailles de grains des matériaux de l'ingénieur (de quelques microns au mm), renseigné sur les énergies de joints de grains et d'énergie stockée induite par la déformation. Il sera paramétré par la température pour prévoir un écrouissage critique local, fonction de la température, en vue d'une optimisation des traitements thermiques de recristallisation. C'est un pas important par rapport aux modélisation physiques actuelles encore rudimentaires.
Les résultats attendus comprennent d'abord des simulations de structures bimodales dans le cas cubique en s'appuyant sur les résultats expérimentaux et numériques disponibles à l'INSA de Rouen dans l'équipe de F. Barbe au sein du GPM. Les champs d'orientations disponibles avant et après traitements thermiques nous permettront de réaliser des premier calculs de croissance privilégiée de certains agrégats. Les comparaisons avec les expériences déjà réalisées concerneront la cinétique de croissance et les rapports de tailles de grains entre les deux modes. Les simulations seront d'abord bidimensionnelles puis tridimensionnelles.
Les résultats attendus concerneront ensuite des simulations similaires dans le cas de métaux ou alliages de structure hexagonale. L'anisotropie de croissance et de déformation constituera un degré de liberté plus fort permettant de jouer non seulement sur la taille des grains obtenus mais aussi sur leur morphologie : grains ellipsoïdaux voire lamellaires.
Un cadre d'optimisation de microstructures sera finalement formulé en termes de cartes de morphologies bimodales en fonction des densités de dislocations, énergies de joints de grains et température. Ces cartes serviront de base à une démarche d'optimisation pour laquelle un recours aux bases réduites ou à un méta-modèle sera nécessaire en raison du coût numérique des calculs individuels de microstructures.

L'implication des équipes :
Mines ParisTech : S. Forest et K. Ammar, en étroite coopération avec Anna Ask (ONERA), contribueront au développement de la théorie, à son implémentation dans le code par éléments finis Zset. Ils travailleront également à la paramétrisation du modèle grâce aux résultats obtenus à l'IJL et aux données de la littérature. Il contribueront à la mise en place et à la réalisation des simulations numériques qui seront menées sur le cluster de Mines ParisTech ainsi que celui de l'ONERA.
Université de Lorraine (IJL) : B. Appolaire et M. Cottura travailleront d'une part sur les calculs à l'échelle atomique pour la détermination des énergies de surface et, dans la mesure du possible, des mobilités d'interface, et, d'autre part, sur la formulation numérique FFT d'une version simplifiée du modèle dans le but d'augmenter l'efficacité des calculs pour les populations plus importantes de grains.
ONERA (DMAS) : Anna Ask, suite à son post-doc Marie Scklodowska-Curie au Centre des Matériaux, maîtrise et développe le modèle couplé Cosserat-champ de phase en étroite coopération avec Mines ParisTech et IJL. Elle est spécialiste en particulier de la paramétrisation du modèle actuel par rapport aux énergies de joints de grains. Le projet est structurant pour poursuivre efficacement cette coopération avec l'ONERA.
INSA Rouen Normandie (GPM) : F. Barbe a encadré la thèse de B. Flipon qui a travaillé sur l'élaboration d'aciers inoxydables 304 et 317 à distribution bimodale de tailles de grains, en coopération avec le CRISMAT, ainsi que sur la modélisation par éléments finis de leur comportement mécanique par ailleurs caractérisé par des essais mécaniques de traction. Il met à disposition du projet une riche base de données en termes de tailles de grains et de proportions de grains de même taille. Ces données comportent les caractérisations EBSD directement utilisables pour les simulations du projet. F. Barbe apportera au projet la connaissance de comportement de ces matériaux ainsi que les guides de choix des traitements adaptés à l'élaboration.

Mission du doctorant : Le rôle du doctorant est central pour le projet en raison du travail important et de la synthèse théorique et numérique à réaliser. S. Forest et B. Appolaire seront les codirecteurs de thèse, Anna Ask sera coencadrante officielle. Le rôle du doctorant consistera à :

1. *Développer un élément fini 3D en transformations finies pour un milieu de Cosserat couplé au champ de phase*. Il s'appuiera sur la théorie proposée par (Ask et al. 2019) et l'étendra pour intégrer

la dépendance en température des paramètres en jeu. Il mettra en place une concertation entre Mines-IJL-ONERA pour stabiliser une formulation robuste du modèle. En concertation avec l'IJL, il proposera des tests de validation en vue d'une comparaison avec le modèle numérique FFT développé à l'IJL. Il pourra, le cas échéant, réaliser des calculs avec cet outil de simulation.

2. Réaliser la jonction avec les résultats obtenus à l'IJL sur les énergies de joints de grains.
L'identification des énergies de joints de grains pour les CFC et les hexagonaux fera l'objet d'une étroite coopération avec l'IJL. Elle sera réalisée à partir de données multiéchelles de la littérature et des calculs atomiques réalisés à l'IJL.
3. *Montrer la capacité de la modélisation à rendre compte du concept d'écrouissage critique.*
Le doctorant examinera, à l'aide d'analyses théoriques et numériques, si le modèle en l'état est capable de rendre compte de cette notion-clef de la recristallisation. Le cas échéant, des lois de comportement adaptées seront développées.
4. Simuler le développement de microstructures bimodales dans le cas d'aciers inoxydables.
Le doctorant bénéficiera de la base de données d'aciers bimodaux élaborés pendant la thèse de B. Flipon et dont les textures et comportement mécanique ont été caractérisés. Il échangera avec F. Barbe de l'INSA Rouen.
5. Explorer l'approche proposée dans le cas de métaux hexagonaux.
Fort des outils mis en place, le doctorant pourra alors explorer un levier supplémentaire à savoir l'optimisation de la morphologie des grains en plus de leur taille. En jouant sur la forte anisotropie des métaux hexagonaux, une bimodalité de morphologie (grains sphériques vs grains ellipsoïdaux ou lamellaires) est attendue.

Références :

G. Abrivard, E.P. Busso, S. Forest and B. Appolaire, Phase field modelling of grain boundary motion driven by curvature and stored energy gradients. Part I: theory and numerical implementation, *Philosophical Magazine* 92, 3618-3642. Part II: Application to recrystallisation, *Philosophical Magazine* 92, 3643-3664, 2012.
N.C. Admal, G. Po, and J. Marian, A unified framework for polycrystal plasticity with grain boundary evolution, *International Journal of Plasticity* 106, 1-30, 2018.
N.C. Admal, J. Segurado, J. Marian, A three-dimensional misorientation axis-and inclination-dependent Kobayashi–Warren–Carter grain boundary model, *Journal of the Mechanics and Physics of Solids* 128, 32-53, 2019.
A. Ask, S. Forest, B. Appolaire and K. Ammar, Cosserat crystal plasticity with dislocation driven grain boundary migration, *Journal of Micromechanics and Molecular Physics* 3, 1840009, 2018.
A. Ask, S. Forest, B. Appolaire and K. Ammar, A Cosserat-phase field theory of crystal plasticity and grain boundary migration at finite deformation, *Continuum Mechanics and Thermodynamics* 31, 1109-1141, 2019.
M. Bernacki, H. Resk, T. Coupez and R. Logé, Finite element model of primary recrystallization in polycrystalline aggregates using a level set framework, *Modeling and Simulation in Materials Science and Engineering* 17, 064006, 2009.
B. Flipon, C. Keller, R. Quey, F. Barbe, A full-field crystal-plasticity analysis of bimodal polycrystals, *International Journal of Solids and Structures*, in press, 2019. doi:10.1016/j.ijsolstr.2019.02.005.
T. Frolov, D.L. Olmsted, M. Asta, Y. Mishin, Structural phase transformations in metallic grain boundaries, *Nature Communications* 4:1899, 2013.
J.A. Gomberg, A.J. Medford, S.R. Kalidindi SR, Extracting knowledge from molecular mechanics simulations of grain boundaries using machine learning, *Acta Materialia* 133, 100-108, 2017.
T. Gu, J.-R. Medy, V. Klosek, O. Castelnau, S.Forest, E. Hervé-Luanco, F. Lecouturier-Dupouy, H.Proudhon, P.-O. Renault, L. Thilly, P. Villechaise, Multiscale modeling of the elasto-plastic behavior of architectured and nanostructured Cu-Nb composite wires and comparison with neutron diffraction experiments, *International Journal of Plasticity* 122, 1-30, 2019.
M.X. Guo, J. Zhu, Y. Zhang, G.J. Li, T. Lin, J.S. Zhang, L.Z. Zhuang, The formation of bimodal grain size distribution in Al-Mg-Si-Cu alloy and its effect on the formability, *Materials Characterization* 132, 248-259, 2017.
J.J. Hoyt, Atomistic simulations of grain and interphase boundary mobility, *Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering* 22:033001, 2014.
H. Jin, D.J. Lloyd, Effect of a duplex grain size on the tensile ductility of an ultra-fine grained Al-Mg alloy, AA5754, produced by asymmetric rolling and annealing, *Scr. Mater.* 50, 1319–1323, 2004.
D.N. Ilin, N. Bozzolo, T. Toulorge and M. Bernacki, Full field modeling of recrystallization: Effect of intragranular strain gradients on grain boundary shape and kinetics, *Computational Materials Science* 150, 149-161, 2018.
M.A. Meyers, A. Mishra, D.J. Benson, Mechanical properties of nanocrystalline materials, *Progress in Materials Science* 51, 427-556, 2006.

F. Mompiou, D. Tingaud, Y. Chang, B. Gault, G. Dirras, Conventional vs harmonic-structured β-Ti-25Nb-25Zr alloys: A comparative study of deformation mechanisms, *Acta Materialia*, 161, 420-430, 2018.
A.P. Sutton, V. Vitek, On the structure of tilt grain boundaries in cubic metals. III. Generalizations of the structural study and implications for the properties of grain boundaries, *Philosophical Transactions of the Royal Society A* 309, 55-68, 1983.
B. Srinivasrao, K. Ohishi, T. Ohkubo, T. Mukai, K. Hono, Synthesis of high-strength bimodally grained iron by mechanical alloying and spark plasma sintering, *Scr. Mater.* 58, 759–762, 2008.
T. Tamura, M. Karasuyama, R. Kobayashi, R. Arakawa, Y. Shihara, I. Takeuchi, Fast and scalable prediction of local energy at grain boundaries: machine-learning based modeling of first-principles calculations, *Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering* 25, 075003, 2017.
L. Thilly, F. Lecouturier, J. von Stebut, Size-induced enhanced mechanical properties of nanocomposite copper/niobium wires: nanoindentation study, *Acta Materialia* 50, 5049-5065, 2002.
J. Wang, I.J. Beyerlein, Atomic structures of symmetric tilt grain boundaries in hexagonal close packed (hcp) crystals, *Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering* 20, 024002, 2012.
X. Wang, F. Cazes, J. Li, A. Hocini, K. Ameyama, G. Dirras, A 3D crystal plasticity model of monotonic and cyclic simple shear deformation for commercial-purity polycrystalline Ti with a harmonic structure, *Mechanics of Materials* 128, 117-128, 2019.
P. Zhang, D.R. Trinkle, Database optimization for empirical interatomic potential models, *Modelling Simul. Mater. Sci. Eng.* 23, 065011, 2015.