

Modélisation de l'effet de l'hydrogène sur le comportement super-élastique des AMF à base de NiTi

A. LACHIGUER ^a, C. BOUBY ^{b,c}, F.GAMAOUN ^d, T. BEN ZINEB ^{b,c}, T. BOURAOUI ^a

a. LGM, ENIM, Université de Monastir, Avenue Ibn El Jazzar, 5019 Monastir, Tunisie.

b. Université de Lorraine, LEMTA, UMR7563, 2 rue Jean Lamour, 54500, Vandœuvre-lès-Nancy, France.

c. CNRS, LEMTA, UMR7563, 54500, Vandœuvre-lès-Nancy, France.

d. LMS, ENISO, Université de Sousse, BP 264 Cité Erriadh 4023 Sousse, Tunisie.

Résumé :

En raison de leur biocompatibilité, les fils superélastiques en NiTi sont utilisés avec succès dans les traitements orthodontiques. Des résultats expérimentaux montrent une dégradation des propriétés mécaniques fonctionnelles en présence d'hydrogène. Nous proposons, dans cette étude, de prendre en compte cette fragilisation par hydrogène dans la modélisation du comportement des alliages à mémoire de forme (AMF) de type NiTi. Pour cela, des résultats expérimentaux obtenus pour différents temps de chargement par hydrogène à température ambiante sont utilisés. Les fils orthodontiques sont chargés, par voie cathodique en hydrogène, en utilisant une densité de courant constante 20A/m² de 6 à 72 heures dans une solution aqueuse de NaCl 0,9% à la température ambiante. Les courbes contrainte-déformation obtenues permettent en particulier d'étudier l'influence de l'hydrogène sur les contraintes critiques de transformation martensitique directe et inverse. A l'aide de la deuxième loi de Fick, les évolutions des températures de transformation directe et inverse en fonction de la concentration moyenne d'hydrogène absorbé sont alors déduites et intégrées dans une loi de comportement dédiée aux AMF NiTi. Celle-ci est ensuite implémentée dans le code éléments finis Abaqus et permet alors une comparaison avec les observations expérimentales.

Abstract:

Due to their biocompatibility, superelastic NiTi wires are successfully used in orthodontic treatment. Experimental results showed a functional degradation of mechanical properties in the presence of hydrogen. We propose, in this study, to take into account the hydrogen embrittlement in modeling NiTi behavior. To this end, experimental results for different loading times by hydrogen at room temperature are considered. The orthodontic wires are loaded, by cathodic hydrogen, using a constant current density of 20 A / m² for 6 to 72 hours in an aqueous solution of 0.9% NaCl at room temperature. The stress-strain curves obtained allow studying in particular the influence of hydrogen on the critical stresses of direct and reverse martensitic transformation. Using Fick's second law, the evolution of direct and inverse transformation temperatures as a function of the average hydrogen concentration are derived and incorporated into a constitutive law dedicated to NiTi Shape Memory Alloy (SMA). This law is then implemented in the finite element code Abaqus which allows carrying-out comparison between numerical simulations and experimental observations.

Mots clefs : Alliages NiTi, Fragilisation par hydrogène, Diffusion, Eléments finis.

1 Introduction

L'alliage à mémoire de forme à base (AMF) Nickel-Titane (NiTi) possède d'excellentes propriétés mécaniques et de biocompatibilité [1], ce qui lui permet d'être un matériau prometteur dans l'industrie biomédicale et en particulier dans le traitement orthodontique [2]. Cependant, son comportement superélastique est fortement affecté par la présence d'hydrogène [3-4]. Dans la littérature, l'étude des propriétés de dégradation des AMF NiTi par fragilisation par hydrogène est déterminée qualitativement pour différentes conditions de chargement d'hydrogène [5-7]. Mais cette dégradation n'est pas prise en compte lors

de la modélisation du comportement de ce type d'AMF. En particulier, l'évolution des propriétés matériaux en fonction de l'évolution du taux d'hydrogène présent dans l'alliage n'est à notre connaissance intégrée dans aucun modèle dédié aux alliages à mémoires de forme.

Dans ce travail, de manière à effectuer une première étude de l'effet de la fragilisation par hydrogène des AMF, nous nous proposons de déterminer expérimentalement l'évolution des paramètres matériaux tels que les températures de début transformation martensitique M_s , de fin de transformation austénitique A_f et la déformation de transformation maximale ε_{\max}^{tr} en fonction de la concentration d'hydrogène après chargement par voie cathodique. Nous intégrons ensuite l'évolution de ces paramètres du matériau dans un modèle de comportement thermodynamique dédié aux AMF NiTi [8] pour pouvoir simuler la dégradation du comportement mécanique due à l'absorption d'hydrogène.

2 Résultats expérimentaux

Les fils orthodontiques utilisés dans cette campagne expérimentale ont une composition nominale de 50,8% en masse de Ni et 49,2% en masse de Ti. Les échantillons sont des portions d'arcs orthodontiques de dimension $0,43 \times 0,63 \times 40 \text{ mm}^3$. Les échantillons ont été chargés par voie cathodique dans une solution aqueuse de NaCl 0,9%. La densité de courant de chargement est de 20 A/m^2 . Le chargement a été effectué à température ambiante pour laquelle l'AMF NiTi utilisé est à l'état austénitique. Les essais de traction ont été réalisés avec une vitesse de déformation constante de 10^{-4} s^{-1} .

2.1 Effet du temps d'immersion

On s'intéresse dans un premier temps à l'effet du temps d'immersion sur le comportement en traction. La figure 1 montre l'évolution de l'hystérésis de chargement en fonction de la durée d'immersion dans l'hydrogène. On constate tout d'abord que pour une durée de 72 heures de chargement il n'y a pas de rupture de l'éprouvette. Cette observation peut être justifiée d'une part, par la faible vitesse de chargement (10^{-4} s^{-1}) et d'autre part, par l'existence d'un traitement surfacique spécial pour ces arcs orthodontiques qui permet de limiter la pénétration de l'hydrogène dans l'éprouvette.

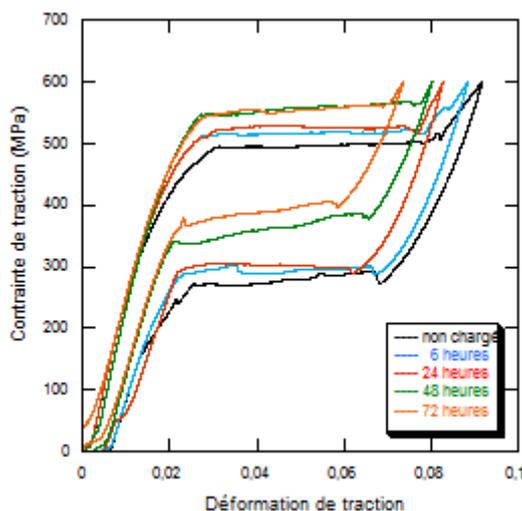


FIG. 1 – Courbes contrainte-déformation après chargement par hydrogène à une densité de courant 20 Am^{-2} et pour différents temps d'immersion 0, 6, 24, 48 et 72 heures.

Les résultats expérimentaux montrent donc une augmentation des contraintes critiques de transformation après le chargement d'hydrogène ce qui est en accord avec les résultats de Yokoyama et al dans [9].

2.2 Distribution de la concentration dans l'échantillon chargé par hydrogène

Dans un second temps, on s'intéresse à la distribution de la concentration dans l'échantillon. Dans l'objectif d'introduire une dépendance de certains paramètres matériaux à la concentration d'hydrogène mais sans prendre en compte en première approximation sa distribution en fonction de la profondeur, on introduit une

concentration normalisée d'hydrogène. Schmidt et al. [10] ont montré que la diffusivité de l'hydrogène est donnée par la loi d'Arrhénius:

$$D = 15,1 \exp\left(\frac{-124,9 \text{ kJ/mol}}{k_b T}\right) \text{ à } T=25^\circ\text{C} \quad (2.1)$$

Ainsi, on peut déterminer la distribution radiale de la concentration normalisée d'hydrogène par la résolution de la deuxième loi de Fick:

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C}{\partial r^2} \quad (2.2)$$

Où D est le coefficient de diffusion, C représente la concentration de l'hydrogène à un moment donné et à un point précis de l'échantillon, repéré par r, que nous supposons cylindrique et de diamètre 0,5 mm.

La deuxième loi de Fick permet alors d'écrire

$$\frac{C_x - C_0}{C_s - C_0} = 1 - \operatorname{erf}\left(\frac{x}{2\sqrt{Dt}}\right) \quad (2.3)$$

La figure 2 montre que l'hydrogène est concentré à la surface ce qui engendre la formation des hydrures fragiles, hydrures de titanes principalement. Ces derniers augmentent la probabilité de rupture des fils orthodontiques.

La concentration moyenne normalisée d'hydrogène pour une section donnée et pour un temps d'immersion donné est l'aire sous la courbe divisée par la surface de la section et est donnée par la relation

$$\left(\frac{C}{C_s}\right) = \frac{1}{\pi R^2} \int_0^{2\pi} \int_0^R r \frac{C(r)}{C_s} dr d\theta \quad (2.4)$$

La figure 3 montre que nous obtenons une relation linéaire entre la concentration d'hydrogène et le temps d'immersion dans la solution donnée par l'équation suivante

$$\left(\frac{C}{C_s}\right) = 1,15 \cdot 10^{-7} t \quad (2.5)$$

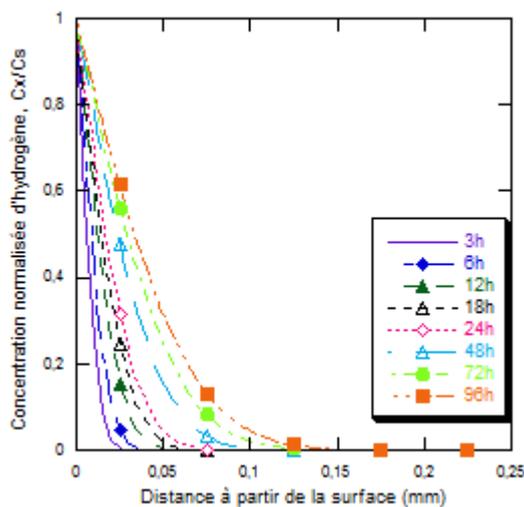


FIG. 2 – La distribution de la concentration de l'hydrogène à la température 25 ° C en fonction de la profondeur radiale pour différents temps d'immersion 3, 6, 12, 18, 24, 48, 72 et 96 heures.

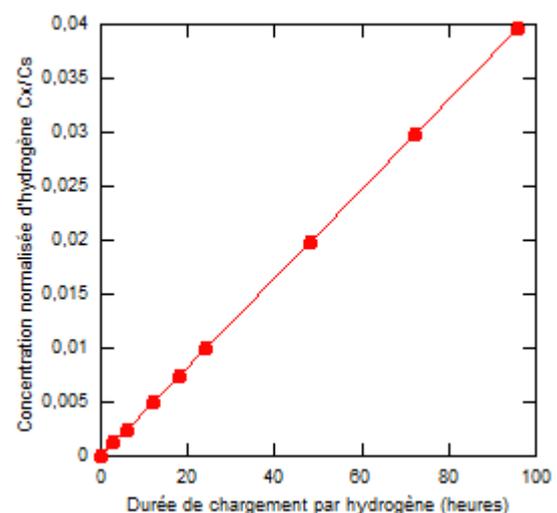


FIG. 3 – L'évolution de la concentration moyenne d'hydrogène normalisée en fonction du temps d'immersion.

Ces constatations nous permettent donc en première approximation, d'intégrer l'effet de l'hydrogène par l'intermédiaire d'une dépendance des paramètres matériaux à la concentration moyenne normalisée.

3 Introduction de l'effet de l'hydrogène dans un modèle thermodynamique du comportement des AMF NiTi

L'effet d'hydrogène est ensuite introduit dans un modèle dédié au comportement des alliages à mémoire de forme [8] et implémenté dans le logiciel élément fini ABAQUS. Dans ce modèle, le potentiel thermodynamique adopté est l'énergie libre de Gibbs et les mécanismes de déformation sont décrits à l'aide des quatre variables internes : la fraction volumique totale de martensite, la fraction volumique de variantes maclées de martensite, la déformation moyenne de transformation et la déformation moyenne d'accommodation du volume de martensite maclée. Pour une présentation plus détaillée de ce modèle, on pourra consulter la référence [8]. Il a été de plus implanté dans le code de calcul par éléments finis Abaqus via la subroutine UMAT. L'algorithme d'intégration de la loi de comportement est basé sur une méthode de type prédiction/correction et la solution est déterminée par la méthode de Newton-Raphson qui permet de résoudre le système d'équation sélectionné en fonction des comportements activés.

A l'aide des résultats expérimentaux présentés dans la section précédente, on extrait la variation des paramètres matériaux en fonction de la concentration moyenne normalisée d'hydrogène : la déformation de transformation maximale ε_{\max}^{tr} , les contraintes critiques de transformation σ_{Ms} , σ_{Mf} , σ_{As} et σ_{Af} (voir figures 4 et 5). Les évolutions des températures de début de transformation martensitique M_s et de fin de transformation austénitique A_f sont déduites à partir de celles des contraintes critiques de transformation. Pour cela, il suffit d'utiliser le pseudo-diagramme de phase qui permet de relier les contraintes critiques de transformation aux températures par l'intermédiaire des pentes de transformation directe et inverse.

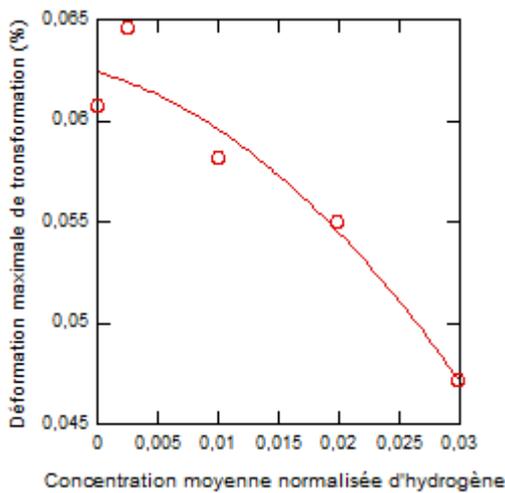


FIG. 4 – Variation de la déformation de transformation maximale ε_{\max}^{tr} en fonction de la concentration moyenne normalisée d'hydrogène.

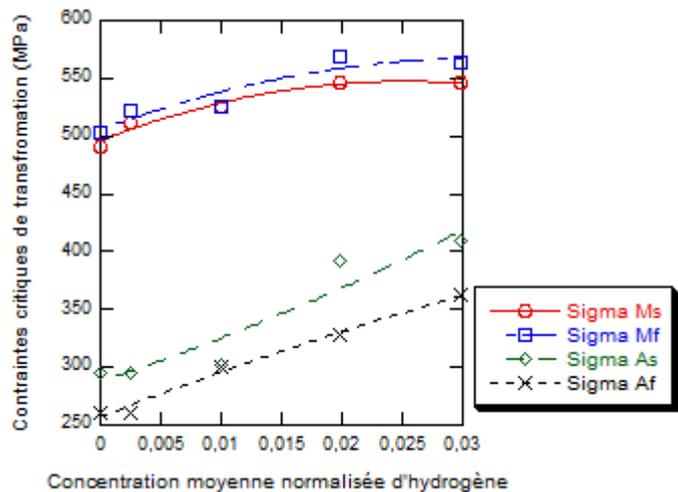


FIG. 5 – Variation des contraintes critiques de transformation σ_{Ms} , σ_{Mf} , σ_{As} et σ_{Af} en fonction de la concentration moyenne normalisée d'hydrogène.

L'introduction de l'influence de l'hydrogène sur le comportement est réalisée par l'intermédiaire de l'évolution des paramètres en fonction de la concentration d'hydrogène notée Cnh et qui varie de 0 à 0,03. Ici on considère la concentration d'hydrogène constante au cours de chaque essai de traction. Les paramètres M_s , A_f et ε_{\max}^{tr} sont ensuite calculés à partir de la valeur de Cnh par des fonctions polynomiales, identifiées en se basant sur les résultats expérimentaux. En particulier, les figures 4 et 5 permettent d'écrire en première approximation les évolutions suivantes pour la déformation de transformation maximale.

$$\varepsilon_{\max}^{tr} = a_0 + a_1 (Cnh) + a_2 (Cnh)^2 \quad (3.1)$$

Et de déduire des variations des contraintes critiques de transformation σ_{Ms} et σ_{Af} celles des températures de début de transformation martensitique et de fin de transformation austénitique :

$$M_s = T - \frac{b_0 + b_1 (Cnh) + b_2 (Cnh)^2}{b_{drac}} \quad (3.2)$$

$$A_f = T - \frac{c_0 + c_1 (Cnh) + c_2 (Cnh)^2}{b_{rtrac}} \quad (3.3)$$

Où T désigne la température d'essai de traction, b_{dtrac} et b_{rtrac} étant respectivement les pentes de transformation martensitique directe et inverse dans le diagramme contrainte-température.

4 Résultats numériques et discussion

On étudie l'influence des dépendances des paramètres en fonction de la concentration en hydrogène uniquement sur le comportement local en un point matériel (l'effet global au niveau de la structure sera étudié ultérieurement par éléments finis en développant un élément spécial et multiphysique présentant comme degré de liberté supplémentaire la concentration en hydrogène). A partir de simulations pour une concentration d'hydrogène nulle, nous avons identifié les paramètres permettant de représenter le comportement observé expérimentalement. Les paramètres matériaux utilisés sont donnés dans le tableau 1.

Les simulations numériques permettent ensuite de tracer les courbes contrainte-déformation pour différentes concentrations d'hydrogène et de confronter les résultats numériques et expérimentaux. Ils sont présentés sur la figure 6.

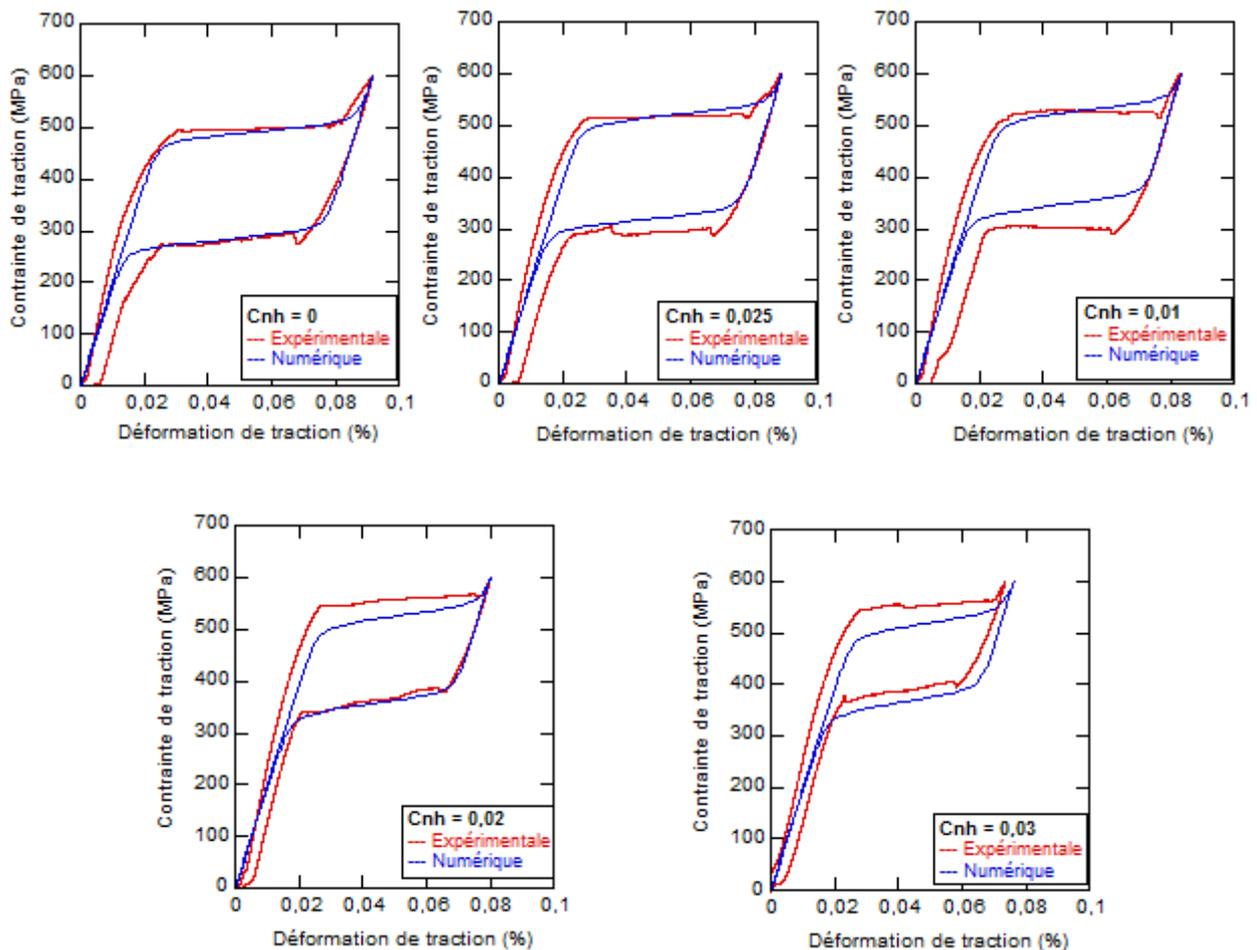


FIG. 6 – Comparaison entre les courbes expérimentales et les courbes numériques.

On peut constater que les résultats numériques sont en bon accord avec les résultats expérimentaux pour des faibles concentrations d'hydrogène. Toutefois, il existe un écart significatif au niveau des contraintes de transformation pour les concentrations 0,02 et 0,03 d'hydrogène. La difficulté ici réside dans l'identification d'un jeu de paramètres et dans la formulation d'une loi régissant l'effet de concentration de l'hydrogène sur l'évolution des paramètres de la transformation martensitique et par la suite sur le comportement mécanique de l'alliage NiTi.

E (MPa)	ν	$\varepsilon_{\max-trac}^{tr}$	$\varepsilon_{trac}^{tr FA}$	M_s ($^{\circ}C$)	A_f ($^{\circ}C$)	r_f
35000	0,3	0,055	0,04	0	30	0,6
b_{dtrac}	b_{rtrac}	F_{ε} (MPa)	H_f (MPa)	H_{ε^T} (MPa)	H_{twin} (MPa)	H_s (MPa)
5	5	120	2	2500	40000	10

Tableau 1 - Paramètres matériau.

5 Conclusion

Dans ce travail, nous avons traduit l'influence de la concentration d'hydrogène sur le comportement thermomécanique d'un alliage à mémoire de forme de type Nickel-Titane en traduisant l'évolution des paramètres matériaux M_s , M_f , A_s , A_f et ε_{\max}^{tr} en fonction de la concentration moyenne normalisée d'hydrogène obtenue expérimentalement. L'intégration de la variation des différents paramètres obtenus dans un modèle de comportement a permis de simuler le comportement thermomécanique d'un AMF en NiTi en présence d'hydrogène. Les résultats des simulations numériques montrent l'importance de prendre en compte la fragilisation par hydrogène et la nécessité de poursuivre pour améliorer dans un premier temps la prise en compte des évolutions des paramètres par des lois plus évoluées. Il sera ensuite nécessaire d'envisager l'introduction de la concentration d'hydrogène comme un degré de liberté du problème et donc de développer un élément fini spécifique adapté à cette formulation.

Références

- [1] Otsuka K., Kakeshita T., Science and Technology of Shape Memory Alloys: New Developments, MRS Bull, 27 (2), 91-100, 2002.
- [2] Silava T., Moura e Silva T., Carmezim M.J., Fernandes J.C.S., Nitinol- a new material for biomedical applications, Ciencia e tecnologia dos Materials, Vol 17, 34-37, 2005.
- [3] Kaneko K., Yokoyama K., Moriyama K., Asaoka K., Sakai J., Degradation in Performance of Orthodontic Wires Caused by Hydrogen Absorption During Short-Term Immersion in 2.0% Acidulated Phosphate Fluoride Solution, Angle Orthodontist, Vol 74, No 4, 487-495, 2004.
- [4] Yokoyama K., Tomita M., Sakai J., Hydrogen embrittlement behavior induced by dynamic martensite transformation of NiTi superelastic alloy, Acta Materialia, 57, 1875-1885, 2009.
- [5] Yokoyama K., Ogawa T., Asaoka K., Sakai J., Nagumo M., Degradation of tensile strength of NiTi superelastic alloy due to hydrogen absorption in methanol solution containing hydrochloric acid, Materials science & engineering, Elsevier A360,153-159, 2003.
- [6] Tomita M., Yokoyama K., Asaoka K. and Sakai J., Hydrogen thermal desorption behavior of NiTi superelastic alloy subjected to tensile deformation after hydrogen charging, Materials Science and Engineering A 476, 308-15, 2008.
- [7] Yokoyama K., Nagaoka A., Sakai J., Effects of the Hydrogen Absorption Conditions on the Hydrogen Embrittlement Behavior of NiTi Superelastic Alloy, ISIJ International, Vol. 52, No. 2, 255- 262, 2012.
- [8] Chemisky Y., Duval A., Patoor E., Ben Zineb T., Constitutive model for shape memory alloys including phase transformation, martensitic reorientation and twins accommodation, Mechanics of Materials, 43, 361-376, 2011.
- [9] Yokoyama K., Hamada K., Moriyama K., Asaoka K., Degradation and fracture of NiTi superelastic wire in an oral cavity, Biomaterials 22, 2257-2262, 2001.
- [10] Schmidt R., Schlereth M., Hydrogen solubility and diffusion in the shape memory alloy NiTi, Journal de la physique, 2473-2482, 1989.