

N° d'ordre: 11 / 2005 / M / PH

**UNIVERSITE DES SCIENCES ET DE LA TECHNOLOGIE
HOUARI BOUMEDIENE USTHB / ALGER
FACULTE DE PHYSIQUE**



MEMOIRE

Présenté pour l'obtention du diplôme de:

Magister en Physique

Spécialité: Matériaux et composants

Par: ***TOUATI Ahmed***

SUJET

**ETUDE DE LA PRECIPITATION , PRE-PRECIPITATION
ET DE LA RECRISTALLISATION D'UN ALLIAGE
BINAIRE Al-20%Ag EN MASSE**

Soutenu publiquement le 08 / 05 / 2005 Devant le Jury composé de:

M. KADI HANIFI	Professeur, (USTHB)Président
H. YOUSFI	Chargé de cours, (ENP).....Directeur de thèse
N. MESRATI	Professeur, (ENP)..... Examineur
M. AZZAZ	Professeur, (USTHB).....Examineur
M. DERBAL	Chargé de cours, (U. Blida).....Examineur

Remerciements

*Ce travail à été effectué au laboratoire des solutions solides de la faculté de physique de l' USTHB, sous la direction du professeur **KADI HANIFI** que je remercie de m' avoir fait confiance, d' avoir été patient avec moi et de m' avoir fait l' honneur de présider le jury.*

*Mes plus vifs et profonds remerciements s' adressent à Monsieur **AZZAZ. MOHAMED**, professeur à l'USTHB, Monsieur **MESRATI. NADIR**, professeur à l'ENP et Monsieur **DERBAL. MOURAD**, charge de cours à l' université de **BLIDA** pour m' avoir fait l' honneur d' accepter d' être examinateurs de ce mémoire et membres du jury.*

*Ma reconnaissance va aussi à Monsieur **YOUSFI. HAMID**, mon directeur de thèse, pour sa patience, sa confiance et sa disponibilité, qui ont fortement contribué à bien mener mon travail.*

Je remercie aussi l' équipe du laboratoire de cristallographie de la faculté de chimie (USTHB) et l' équipe de métallurgie du centre de recherche (CSC) de Cheragua, pour leurs aides appréciables.

*Sans oublier de remercier **A. Raho, Z. Ouchiha, S. Chaibi**, qui ont notamment mené une lutte féroce aux fautes d' orthographe.*

Je remercie profondément ma famille, mes amis, mes collègues et surtout l' ensemble des chercheurs du laboratoire mécanique des fluides qui, sans le savoir ont contribué à l' aboutissement de ce présent travail.

Merci enfin à tous ceux que j' ai peut être oublié en espérant qu' ils ne m' en tiendront pas rigueur.

SOMMAIRE

Introduction

Chapitre I

I. Considérations théoriques sur les alliages métalliques.....	1
I.1 Généralités sur les métaux et alliages.....	1
I.1.a Composés intermétalliques.....	1
I.1.b Solutions solides.....	1
I.1.b.1 Solution solide de substitution.....	1
I. 1. b. 2 Solution solide d'insertion	2
I. 2 Diagrammes d'équilibre	2
I. 3 Transformations de phases à l'état solide	3
I. 3. 1 Diffusion dans les solides.....	3
I. 4. Phénomènes de durcissement dans les alliages	5
I. 4. 1 Durcissement par réduction de la taille des grains.....	6
I. 4. 2 Durcissement structural.....	7
I. 4. 2. 1 Mécanisme de durcissement	7
I. 4. 2. 2 Mécanisme de précipitation	10
I. 4. 2. 3 Thermodynamique des transformations des phases : Germination et croi	12
I. 4. 2. 4 Séquences de précipitation.....	16
I. 4. 2. 5 Types de précipitation.....	17
I. 4. 2. 5. a Pré-précipitation et zones de Guinier-Preston (zones GP) :	17
I. 4. 2. 6. b. Précipitation continue	17
I. 4. 2. 6. c. Précipitation discontinue.....	17
I. 4. 3 Durcissement par déformation plastique (écrouissage).....	19
I. 4. 3. 1 L'écrouissage	19
I. 4. 3. 2 Déformation plastique à froid (laminage à froid)	21
I. 4. 3. 3 Interaction des dislocations.....	21
I. 4. 3. 4 Traitement de recuit	24
I. 4. 3. 4. a Traitement de restauration	24

I. 4. 3. 4. b	Traitement de recristallisation primaire.....	26
I. 4. 3. 4. c	Traitement de grossissement des grains.....	28

chapitre II

II. Système Al-Ag	31
II. 1 Pré-précipitation et Zones GP	31
II. 2 Précipité métastable γ'	33
II. 3 Précipité d'équilibre γ	34

Chapitre III

III. Techniques expérimentales	36
III. 1 Elaboration.....	36
III. 2 Traitements thermiques.....	36
III. 2. 1 Traitement d'homogénéisation	36
III. 2. 2 Traitements de revenu	38
III. 3 Caractérisation par diffraction des Rayons-X.....	39
III. 4 Traitements mécaniques.....	41
III. 5 Essais de microdureté :	42
III. 6 Microscopie optique et mesure de la taille des grains	43

Chapitre IV

IV. Résultats et interprétations	46
IV. 1 Microstructures des échantillons avant et après homogénéisation	46
IV. 2 Caractérisation des échantillons par diffraction des rayons -X	47
IV. 3 Courbes isothermes et isochrones de dureté.....	50
IV. 3. 1 Courbes isothermes de dureté.....	50
IV. 3. 2 Courbes isochrones de dureté.....	52
IV. 4 Traitements mécaniques	53
IV. 5 Effet de l'écrouissage (faible taux de laminage) sur la précipitation	56
IV. 6 Courbes de recristallisation.....	59

IV. 6. 1	Zone de restauration :	59
IV. 6. 2	Zones de recristallisation :	59
IV. 6. 3	Zone de grossissement des grains :	62
III. 6. 4	Détermination de l'énergie d'activation de la recristallisation	63
IV. 7	Effet de la taille des grains et vérification de la loi de Hall-petch :	65

Conclusion et perspective

Introduction

Les propriétés mécaniques des alliages peuvent être améliorées par des traitements thermiques ou thermomécaniques.

En effet, un alliage mis en solution à haute température puis trempé à l'eau, se trouve à l'état de solution solide sursaturée. Celle-ci évolue vers l'équilibre caractérisé par la précipitation d'une phase d'équilibre en passant par une succession d'états métastables caractérisés par la précipitation des phases métastables cohérentes ou semi-cohérentes avec la matrice.

Ces précipités entravent le mouvement des dislocations et sont responsables du durcissement de l'alliage. La précipitation des phases régie par la diffusion d'atomes de soluté au sein de la matrice, peut être accélérée par des traitements thermiques de revenus.

Par ailleurs, une solution solide sursaturée ayant subi des traitements mécaniques tel que le laminage, est le siège d'un durcissement plus important. En effet, un laminage augmente la densité de dislocations au sein de la solution solide et le durcissement résulte de l'entrave au mouvement de dislocations par les précipités et de l'interaction mutuelle des dislocations. A des taux de laminage relativement faibles la précipitation est accélérée du fait du court-circuit de diffusions dû à la présence d'une grande densité de dislocations et des sites de germinations. A l'issue des traitements mécaniques à des taux de laminage relativement élevés, il est possible de restaurer les propriétés physiques des solutions solides par des traitements de recuit. La restauration et la recristallisation sont d'autant plus rapides que les températures de recuits sont élevées.

Toutefois, la taille des grains, qui dépend des traitements thermomécaniques, détermine les propriétés mécaniques. Contrôler la recristallisation permet d'obtenir des grains de tailles réduites.

Dans notre travail, nous nous proposons de mettre en évidence la précipitation des phases métastables dans l'alliage **Al-Ag**. La solution solide sursaturée **Al-Ag**, caractérisée par diffraction des rayons X, évolue vers l'équilibre selon la séquence :

Solution solide sursaturée $\longrightarrow$ Zones **GP** $\longrightarrow$ Précipité métastable $\longrightarrow$ Précipité d'équilibre
 $(\alpha) \quad \longrightarrow \quad (Z\ GP) \quad \longrightarrow \quad (\gamma') \quad \longrightarrow \quad (\gamma)$

La précipitation des différentes phases est mise en évidence par des mesures de microdureté.

Des déformations plastiques par laminage à différents taux sont effectuées afin d'étudier l'effet de celles-ci sur la précipitation et sur la recristallisation. En effet, un taux de laminage

relativement faible peut accélérer la précipitation et modifie la séquence de celle-ci. Cependant la restauration et la recristallisation, obtenues après laminage à un taux relativement élevé et traitement de recuit, sont d'autant plus rapides que les températures de traitement sont élevées. A l'issue de ces traitements, la microscopie optique et les mesures de microdureté nous ont permis de suivre l'évolution de la microdureté avec la taille des grains et de vérifier la loi de Hall-Petch.

I. Considérations théoriques sur les alliages métalliques

I.1 Généralités sur les métaux et alliages

Souvent les métaux purs ne possèdent pas les critères des propriétés d'usage, que réclame leur utilisation pratique (propriétés mécaniques et électriques, résistance à la corrosion, etc....).

La combinaison des métaux entre eux donne naissance à des alliages adaptés à leur utilisation et leur mise en forme. Dans le cas où l'alliage est constitué de deux métaux on parle de l'alliage binaire **A B** où les atomes peuvent s'arranger de plusieurs façons.

Il existe certaines règles **[1]** qui tiennent compte des rayons atomiques, de la différence d'électronégativité ainsi que de valences et qui indiquent les conditions de solubilité des atomes de soluté dans le solvant. Ainsi la structure cristalline des alliages obtenus dépend d'abord : de la différence de taille des atomes de l'alliage :

Plus cette différence est grande, moins le domaine de composition est étendu pour les solutions solides.

Si les atomes sont de taille voisine, c'est alors la différence d'électronégativité qui conditionne les structures. Une forte différence d'électronégativité, par exemple, entraîne l'apparition de composés ordonnés.

Enfin, si les deux premiers facteurs sont sensiblement identiques, le nombre moyen d'électrons par atome détermine le type d'alliage obtenu.

En effet, du point de vue cristallographique les alliages se classent en deux catégories, les composés intermétalliques et les solutions solides **[2,3]**.

I.1.a Composés intermétalliques

Les composés intermétalliques sont des composés stables de stœchiométrie bien définie **A_x B_y**, dans un domaine de concentration étroit, de structure ordonnée et généralement différente de leurs constituants.

I.1.b Solutions solides

D'après les règles citées antérieurement on distingue deux types de solutions solides :

I.1.b.1 Solution solide de substitution

C'est le cas où les atomes de soluté **B** se substituent aux atomes de solvant **A** sans modification de la structure cristalline, mais avec distorsion du réseau cristallin, il en découle une faible

variation du paramètre de maille en fonction de la concentration en soluté, on obtient ainsi une solution solide désordonnée de substitution.

I. 1. b. 2 Solution solide d'insertion

Dans ce type de solution, les atomes de soluté occupent les sites interstitiels du réseau de la matrice. On obtient ainsi une solution solide d'insertion.

I. 2 Diagrammes d'équilibre

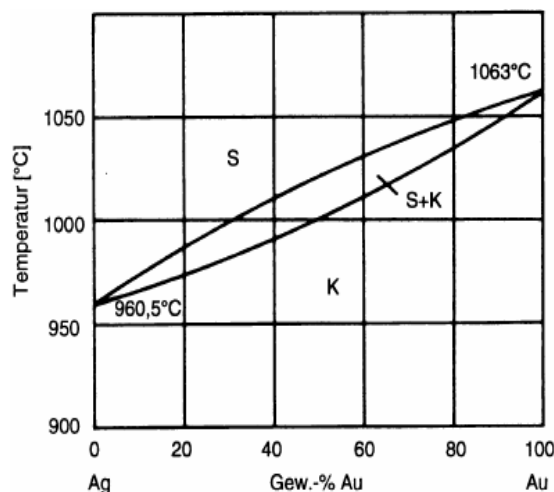
L'état d'équilibre thermodynamique des alliages métalliques, est étudié par l'intermédiaire des diagrammes de phases, en fonction de la concentration et de la température. Ces diagrammes constituent des cartes de références importantes, parce qu'ils représentent l'état vers lequel le système a tendance à évoluer [2, 4, 5]. Dans le cas des solutions solides binaires, on distingue deux catégories de diagramme de phases :

a) Diagramme de phases des solutions solides illimitées :

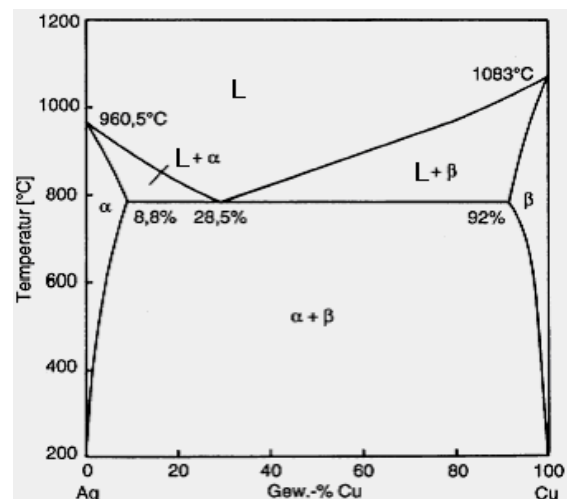
C'est le cas des constituants **A** et **B** miscibles en toute proportion. Exemple d'un diagramme de phases à fuseau { Or-Argent, **Au-Ag**, (figure. I.1.(a)) }.

b) Diagramme de phases des solutions solides limitées :

C'est le cas de constituants **A** et **B** partiellement miscibles. Exemple cas d'un diagramme qui représente une réaction eutectique { Cuivre-Argent **Cu-Ag**, (figure. I.1.(b)) }.



(a)



(b)

Figure.I.1 : a) : Diagramme d'équilibre à solution solide unique illimitée (Or-Argent).

b): Diagramme d'équilibre présentant une réaction eutectique, solution solide limitée (Cuivre-Argent)

Les diagrammes de phases peuvent être plus complexes, surtout lorsque les alliages peuvent donner naissance à plusieurs solutions solides limitées ou illimitées ou à des composés intermétalliques définis

I. 3 Transformations de phases à l'état solide

Tout changement de phase ou de la microstructure à l'état solide se fait par germination et croissance (transformation allotropique, précipitation, recuit et recristallisation,...), et implique un réarrangement des atomes qui aboutit à une modification de la structure cristalline [2, 4, 5].

Le tableau I.1 [5], montre à l'exception de la transformation martensitique, que toutes les transformations sont régies par les lois de la diffusion.

I. 3. 1 Diffusion dans les solides

On entend par diffusion le transport de matière dans le réseau cristallin, ce phénomène est thermiquement activé. En effet, l'agitation thermique permet aux atomes d'osciller, et leur amplitude de vibrations est d'autant plus importante que la température est plus élevée [4, 5].

Cependant, les mécanismes de diffusion peuvent être considérés selon différentes échelles.

A l'échelle microscopique, on peut distinguer plusieurs mécanismes de diffusion dont deux d'entre eux sont très probables. Le mécanisme lacunaire (*figure. I.2.(a) mécanisme (2)*), se produit lorsqu'un atome occupe la place d'une lacune, ainsi il crée une lacune à son tour qui servira à la reproduction du mécanisme. Il intervient dans toutes les solutions solides, et le mécanisme interstitiel (*figure. I.2.(a) mécanisme (3)*), intervient lorsqu'un atome occupant un site interstitiel migre vers un autre site voisin.

A l'échelle macroscopique, le mécanisme de diffusion est régi par l'action d'un gradient de concentration d'atomes étrangers. La différence de concentration, engendre un flux de ces atomes dans le solide, ce phénomène est décrit par les lois de Fick .

Pour que les atomes diffusent, ils doivent avoir une énergie d'activation Q_V pour vaincre une barrière d'énergie potentielle de hauteur $|\Delta H_D| = |Q_V|$. Le coefficient de diffusion D qui caractérise la vitesse de diffusion du soluté dans le métal de base, est donné par l'équation d'ARRHENIUS (équation 1. I).

$$D = D_o \exp\left(-\frac{Q_V}{RT}\right) \quad 1. I$$

où :

Do = facteur statistique fonction des constituants **A** et **B**, ainsi que de leur concentration.

Q_v = énergie d'activation fonction de **A** et **B**.

R = constante des gaz parfaits (1,985 cal/mole. K ou 8,31 J/mole. K).

T = température absolue (en Kelvin).

ΔH_D = l'enthalpie d'activation.

Cependant, il existe plusieurs facteurs qui influencent la diffusion. L'équation (1. I) donne les facteurs à caractères thermiques (Q_v , T) et physico-chimiques (Do). Par ailleurs, il existe d'autres facteurs à caractères microstructuraux. En effet, la diffusion peut être efficace et accélérée d'une façon hétérogène par la présence des défauts microstructuraux comme les dislocations, joints de grains et mêmes sous-joints de grains, qui constituent des courts-circuits de diffusion.

La diffusion est beaucoup plus rapide le long d'une ligne de dislocation (*figure.I.2. b*) [6] ou le long d'un joint de grain (accumulation des défauts de toutes sortes) que dans le reste du réseau. Ainsi, la vitesse de diffusion dans un métal écroui est nettement plus élevée que dans un métal recuit [3 - 8].

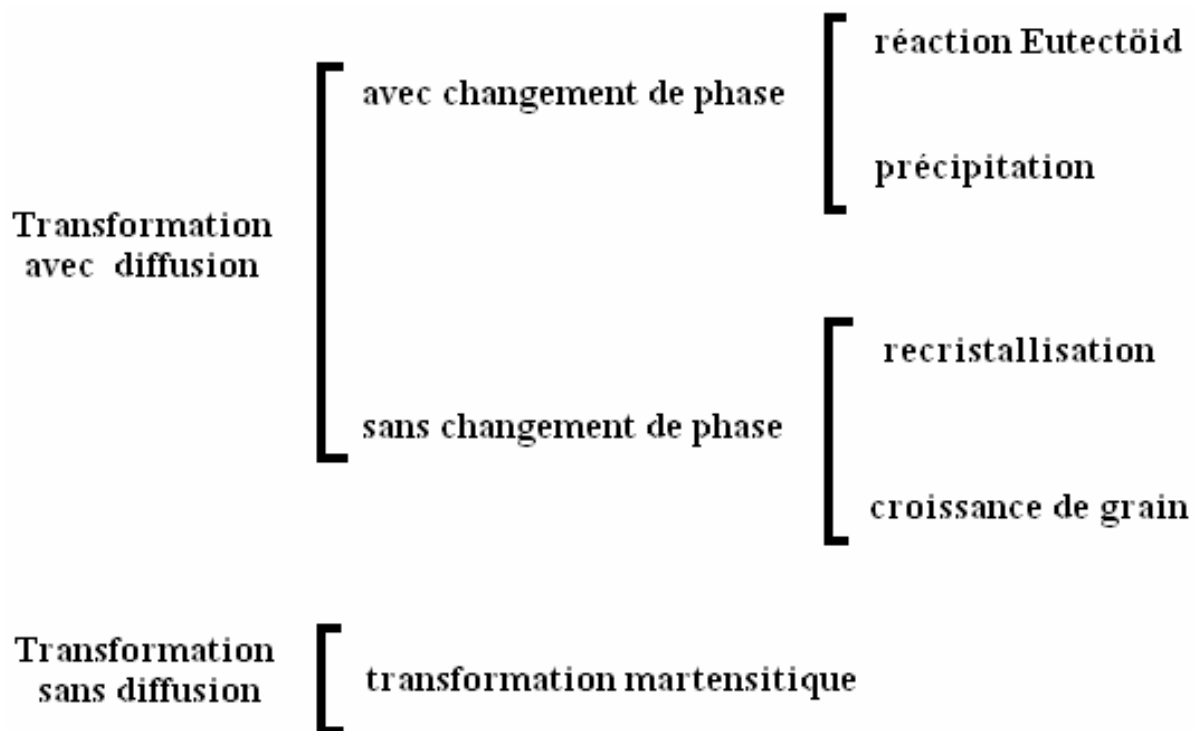


Tableau I.1 : Les différentes transformations à l'état solide

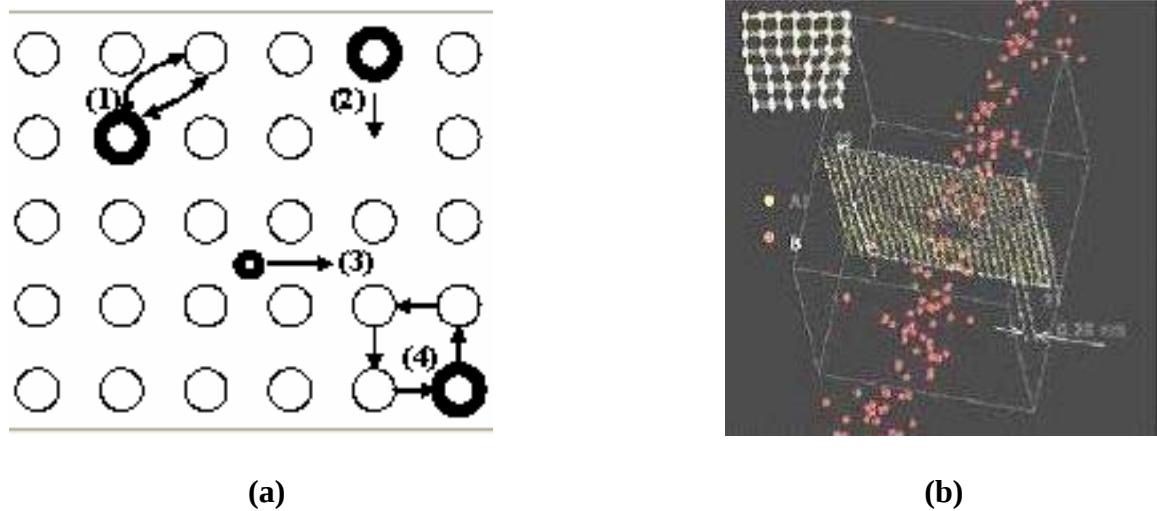


Figure.I.2 : (a) ; Représentation schématique des différents mécanismes de diffusion atomique.
 (b) ; Image du nuage d'impureté de bore autour d'une dislocation coin dans un alliage Al-Fe, obtenue par microscopie à émission de champ (d'après[6]).

I. 4. Phénomènes de durcissement dans les alliages

Les propriétés mécaniques d'un matériau, sont liées à sa microstructure et précisément au mouvement de déplacement facile ou difficile des dislocations [3,7,8]. En effet, pour améliorer les propriétés mécaniques d'un matériau, il faut créer des obstacles au mouvement des défauts dislocatifs.

C'est le type d'obstacle qui va définir le mécanisme de durcissement, dont on peut citer quelques-uns.

- Durcissement par irradiation.
- Durcissement par solution solide.
- Le renforcement par fibres (matériaux composites).
- Durcissement par précipitation (durcissement structural).
- Durcissement par réduction de la taille des grains.
- Durcissement par déformation plastique (écrouissage).

Dans notre travail nous nous sommes intéressés aux trois derniers mécanismes.

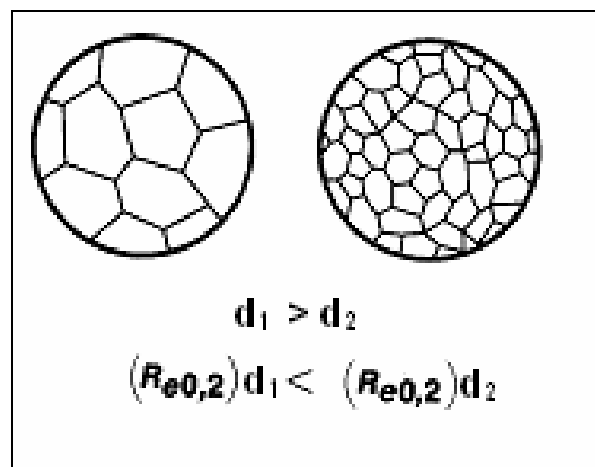
I. 4. 1 Durcissement par réduction de la taille des grains.

La taille des grains est gouvernée par plusieurs paramètres, comme la composition chimique du matériau, l'histoire thermique et mécanique subie par le matériau [3, 7, 8] (contraintes et déformations, chauffage / refroidissement,...).

Les joints de grains constituent des obstacles importants au mouvement des dislocations (figure.I.3.(a)). Ainsi, réduire la taille des grains revient à augmenter la densité des joints de grains, et ainsi améliorer les propriétés mécaniques [8,9] (figure. I. 3.(b)).



(a)



(b)

Figure I. 3 : (a) : Représentation schématique du mouvement d'une dislocation coin à l'encontre d'un joint de grain. Le désordre dans le joint de grain, entraîne une discontinuité du plan de glissement d'un grain à l'autre qui a une orientation différente.

(b) : Représentation schématique de deux microstructures différentes. **d₁** taille moyenne de la microstructure à gros grains **d₂** taille moyenne de la microstructure à grains fins

La loi de Hall-Petch [10,11] (équation. I. 2), décrit bien la variation des paramètres macroscopiques (propriétés mécaniques) en fonction des paramètres microstructuraux (taille des grains).

$$\sigma = \sigma_0 + k \frac{1}{d^{1/2}}$$

I. 2

Il existe une relation proposée par TABOR (1975) (équations I. 3, I. 4), reliant la contrainte d'écoulement σ à la microdureté H_v [12]:

$$\sigma = 3 H_v \quad \text{I. 3}$$

$$H_v = H_0 + k' \frac{1}{d^{1/2}} \quad \text{I. 4}$$

Où σ , représente la limite d'élasticité du matériau, H_0 , k et k' ; sont des constantes intrinsèques du matériau, H_v microdureté Vickers et d la taille moyenne des grains.

Cependant, les moyens souvent utilisés pour réduire la taille des grains, sont les **DPS** (déformations plastiques sévères) par des traitements thermomécaniques [9,13,14].

En effet, l'augmentation des propriétés mécaniques lors d'une déformation plastique sévère est expliquée par l'évolution de la structure des dislocations (voir paragraphe I. 4. 3) :

- a) élévation de la densité des dislocations
- b) transition d'une structure cellulaire vers une structure granulaire
- c) une annihilation partielle des dislocations suivie par la formation de joints de grains de grands angles de désorientation.

Par ailleurs, plusieurs techniques dont le but est de réduire la taille des grains, ont été développées, sans changement apparent des dimensions de l'échantillon. Parmi ces techniques on peut citer :

- Extrusion par deux canaux angulaires égaux (**ECAP** ; equal-channel angular pressing) [13] .
- Roulement en bondage accumulatif (**ARB** ; accumulative Roll-Bonding) [14].

Ces techniques peuvent donner des nanostructures (jusqu'à $d = 50$ nm), et la loi de Hall-Petch est toujours vérifiée.

Enfin, l'avantage de la taille fine des grains est d'avoir de bonnes propriétés mécaniques tout en conservant les propriétés ductiles du matériau [7-9,13,14].

I. 4. 2 Durcissement structural

I. 4. 2. 1 Mécanisme de durcissement

Le comportement mécanique des matériaux à durcissement structural est principalement lié aux interactions dislocations / précipités. En effet, lorsqu'une dislocation rencontre un réseau

d'obstacles, elle doit prendre une certaine courbure pour accroître la force qu'elle exerce sur ceux-ci. (Figure I.4).

Pour franchir un réseau d'obstacles, une ligne de dislocation peut donc rester quasiment rectiligne (cas des obstacles faibles) en cisailant les précipités qu'elle rencontre (figure.I.5.a,b), créant ainsi deux nouvelles interfaces précipité / matrice supplémentaires, ceci contribue donc à freiner encore les dislocations [15, 16], ou se développer entre les précipités individuels (cas des obstacles durs). Si cette contrainte n'est pas suffisante pour cisailier l'obstacle, la dislocation prend alors une configuration semi-circulaire instable et progresse en se recombinaut derrière l'obstacle et en laissant une boucle de dislocation autour de celui-ci (figure. I.6.a et b). C'est le mécanisme d'Orowen [17]. Le mécanisme mis en jeu (cisaillement ou contournement) dépendra de la cohérence des précipités, de leur taille et de leur fraction volumique. P. Guyot (1971) [18] a étudié, dans le cas des précipités ordonnés, l'évolution de la contrainte critique d'écoulement en fonction de la taille des précipités pour différentes fractions volumiques.

Le contournement est activé à partir d'un rayon critique des précipités correspondant au maximum de durcissement (figure. I.7). Quand les précipités grossissent au cours d'un traitement thermique de revenu, on passe d'un mécanisme à l'autre

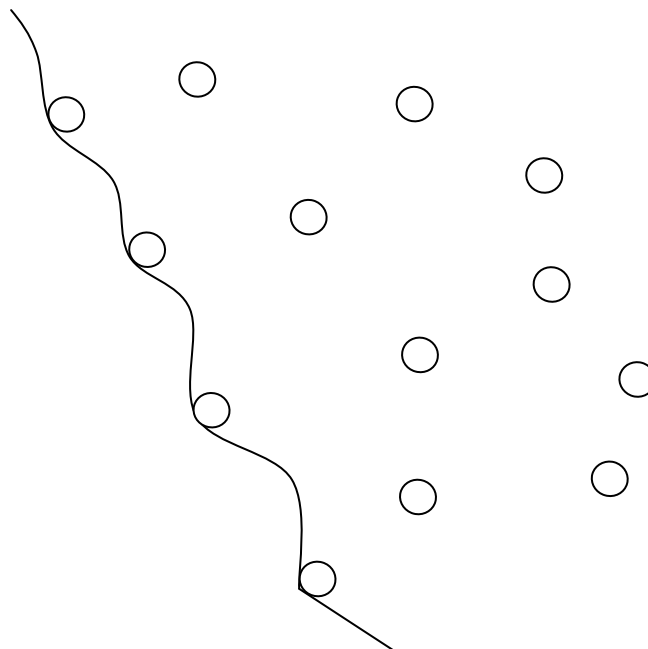


Figure. I.4 : Configuration d'ancrage d'une dislocation sur des précipités lors de son mouvement dans son plan de glissement.

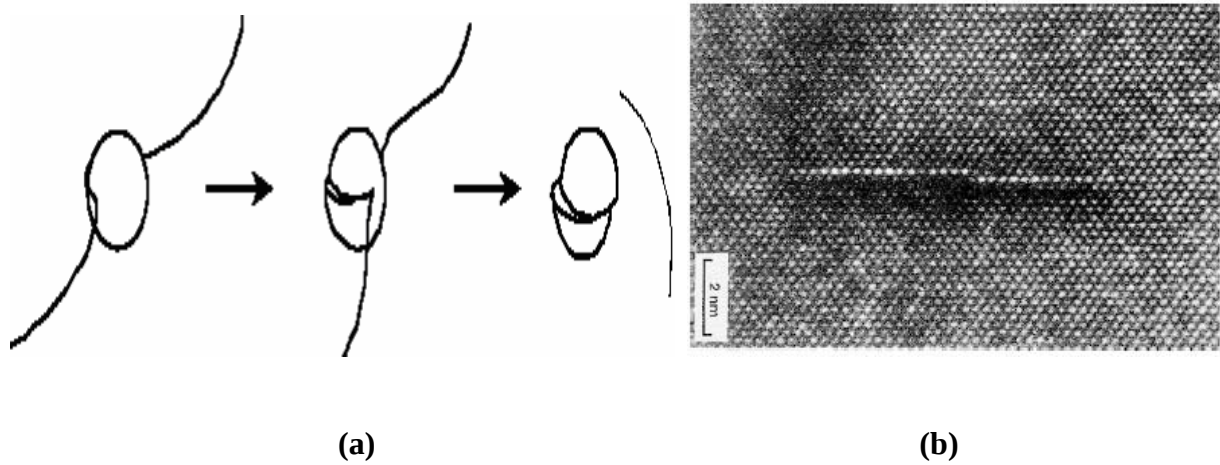


Figure.I.5 : a) ; Représentation schématique du mécanisme de cisaillement des précipités
 b); micrographie par MET à haute résolution, Zone **GP** dans
 Al-Cu cisailée par une dislocation coin d'après [16]

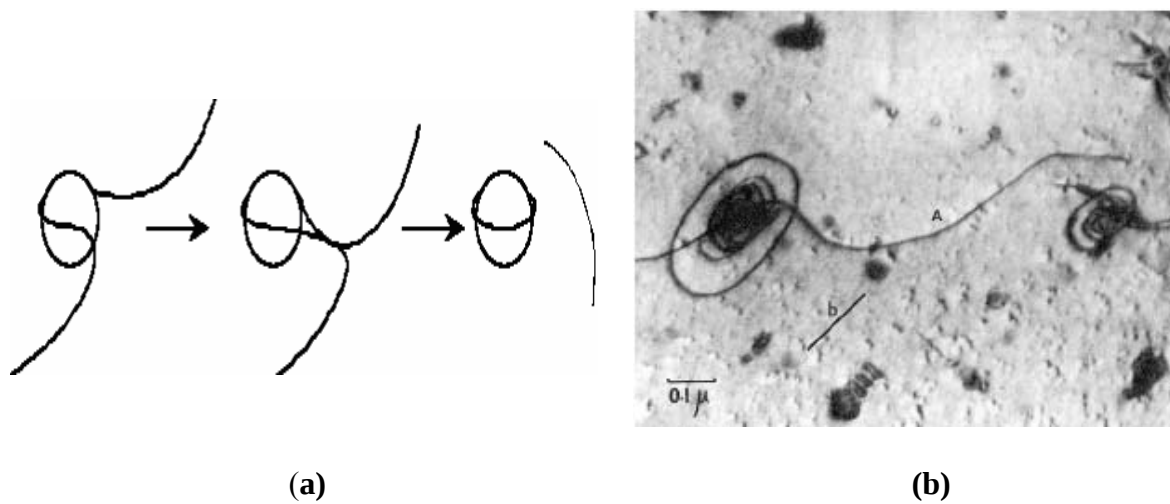


Figure.I.6 : a) ; Représentation schématique du mécanisme de contournement des précipités.
 b) ; Micrographie MET repérant une boucle d'Orowen d'après [17]

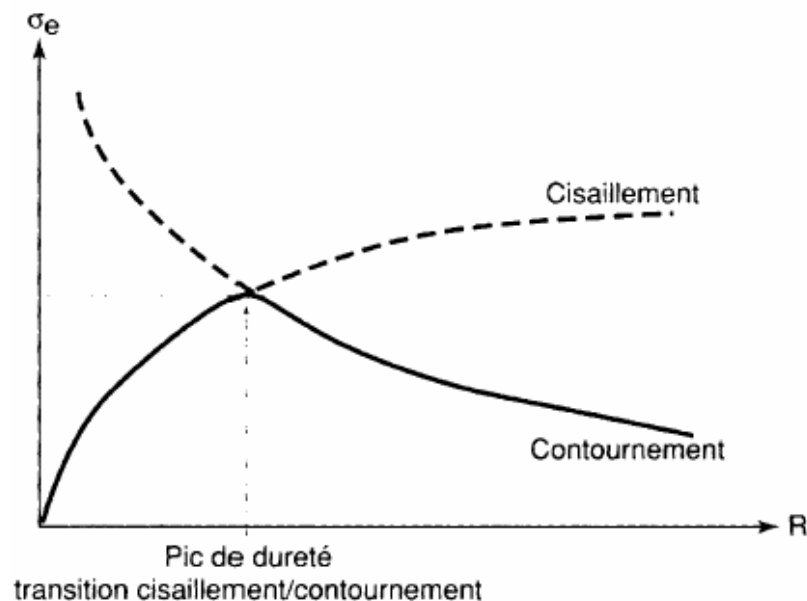


Figure. I. 7 : Evolution de la contrainte critique en fonction de la taille des précipités et les mécanismes mis en jeu (cisaillement /contournement ; d'après [18])

I. 4. 2. 2 Mécanisme de précipitation

On considère un alliage d'aluminium **Al-M** où **M** est un métal susceptible de former une solution solide avec la matrice d'Aluminium. On rappelle que la solubilité d'un métal **M** dans une matrice étrangère n'est possible que dans certaines conditions [1] (mentionnées au paragraphe I.1).

De manière générale, les alliages binaires **Al-M** présentant des propriétés de durcissement structural, ont une solubilité croissante avec la température de **M** dans la matrice [19]. Exemple : ligne de solvus d'un diagramme présentant une réaction eutectique (figure.I. 8) [19]. On porte l'alliage de concentration x_1 (inférieure à la limite de solubilité x_s), à la température T_1 supérieure à la température de solvus T_s pendant une durée suffisante pour obtenir un équilibre thermodynamique et provoquer ainsi la mise en solution totale des atomes de **M** dans la matrice.

Cette mise en solution doit être effectuée à température légèrement inférieure à T_E (température eutectique) afin d'éviter le phénomène de brûlure aux joints de grain. Si l'alliage est refroidi dans des conditions d'équilibre jusqu'à une température T_2 , l'évolution de la microstructure

suit alors le diagramme de phase et la solution solide se décompose en deux phases, solution solide appauvrie en **M** et la phase stable de composition **Al_xM_y**.

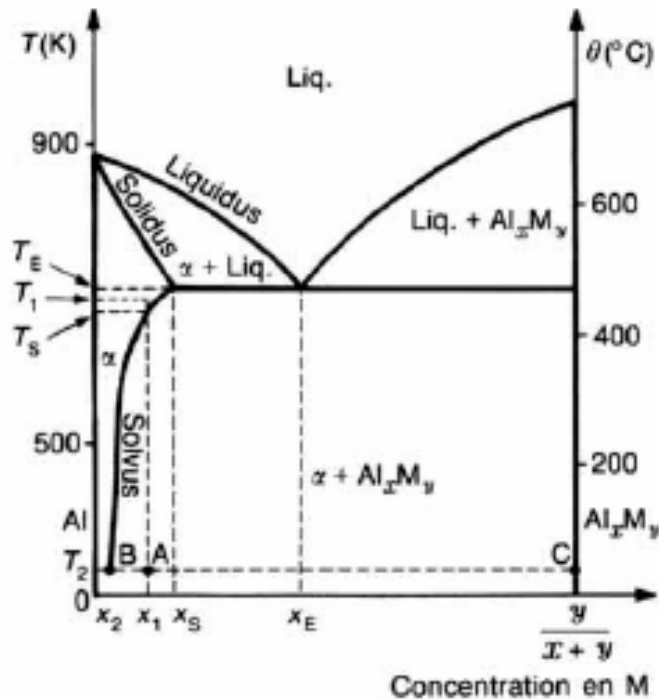


Figure .I. 8. : Diagramme d'équilibre d'un alliage binaire d'aluminium (Al-M), présentant une réaction eutectique.

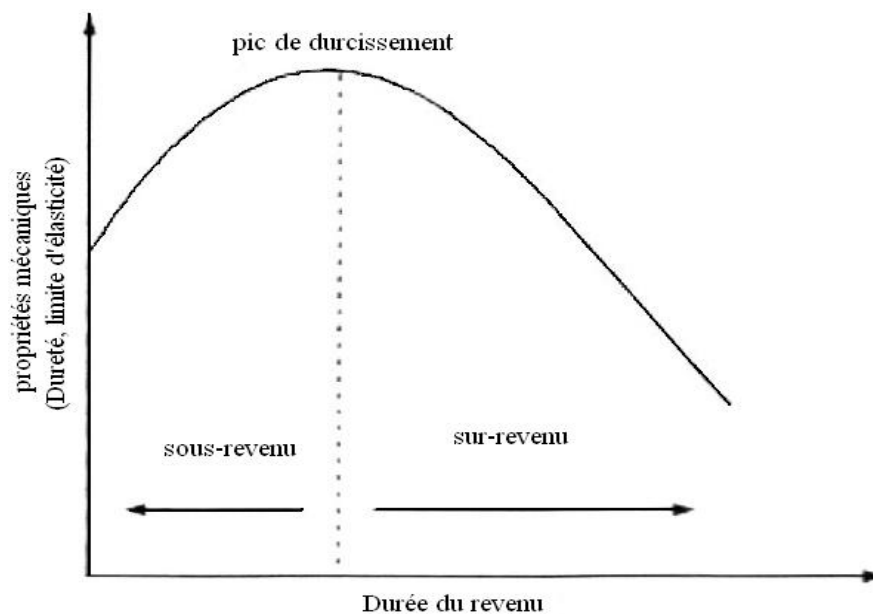


Figure.I. 9 : Représentation schématique des propriétés mécanique en fonction du temps de revenu

Cette phase précipite sous forme de particules plus ou moins grossières, elle est sans intérêt point de vue propriétés mécaniques. En revanche, lorsqu'on refroidit l'alliage brutalement (par trempe dans l'eau), on inhibe la formation de ces précipités et on obtient alors une solution solide métastable sursaturée en soluté et en lacunes. Cet état va alors évoluer par la décomposition de la solution solide et la formation de différentes phases métastables. La séquence de précipitation dépendra du traitement thermique (revenu) subi par l'alliage après la trempe. Schématiquement, un alliage à durcissement structural voit ses propriétés mécaniques évoluer avec le temps de revenu comme le décrit la figure.I.9. On parle de sur-revenu pour un traitement thermique plaçant l'alliage dans un état au-delà du pic de durcissement, de sous-revenu dans le cas contraire et de maturation pour un vieillissement à température ambiante.

I. 4. 2. 3 Thermodynamique des transformations des phases.

I. 4. 2. 4 Germination et croissance

Par considération des principes thermodynamiques, les mécanismes de transformation de phases à l'état solide, selon la théorie de **GIBBS**, sont la germination et la croissance des précipités, suivi par une coalescence de ces derniers.

La germination n'est possible après mise en solution et trempe que si elle s'accompagne d'une diminution de l'énergie libre globale du système. [2,4]

L'énergie libre comprend un terme d'ordre chimique, d'énergie libre molaire ou volumique de formation d'un germe, et des barrières thermodynamiques s'opposant à la formation de celui-ci. La figure. I. 10. [19], illustre les courbes d'énergie libre de formation molaire **G** des différentes phases en fonction de la concentration **x**, aux températures de revenu **T_H** et **T_B**, respectivement à haute température (légèrement inférieure à **T_{Solvus}**) et à basse température (inférieure à la température de réversion (**T_{Rév}**)). des zones **GP**.

La courbe **G(α)** donne la variation de l'énergie libre molaire de la solution solide **α** en fonction de la concentration **x**, ainsi que celle des zones **GP**, cette courbe présente une double concavité avec un premier minimum relatif proche de **x_S** (concentration en soluté à l'équilibre), et un deuxième minimum relatif proche de la concentration moyenne en soluté aux voisinage des zones **GP**. Les courbes **G(β')**, **G(β)** représentent les courbes d'énergie libre, de la phase métastable **β'** et de la phase d'équilibre **β**, respectivement en fonction de **x**.

Initialement la concentration x_0 de la solution solide homogène est inférieure à celle correspondante au premier point d'inflexion I_1 (à haute température), ou I_2 (à basse température),

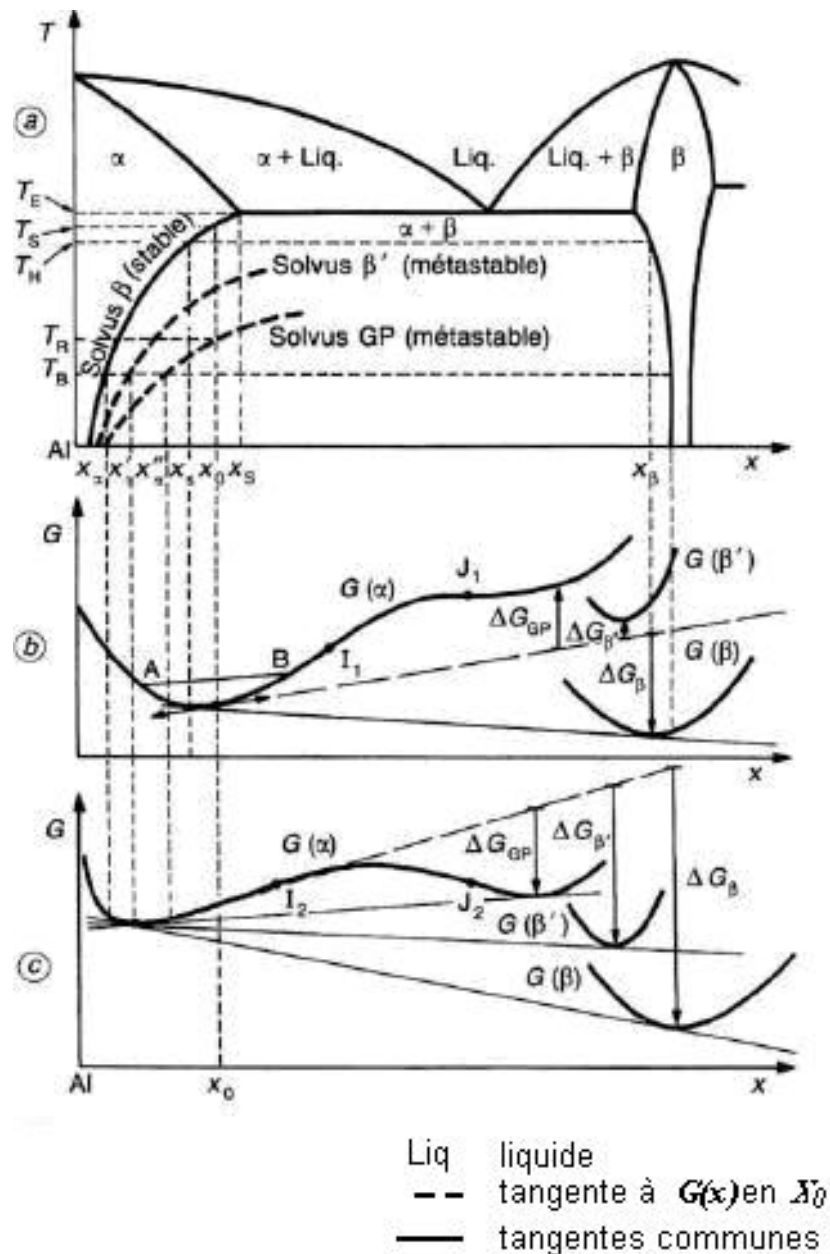


Figure. I.10 : Schématisation de la thermodynamique des transformations de phases au cours de la décomposition de la solution solide sursaturée.

(a) ; diagramme de phases d'équilibre et des phases métastables

(b) ; énergie libre molaire G à une température haute T_H

(c) ; énergie libre molaire G à une température basse T_B .

c'est-à-dire que $\mathbf{x}_0$ appartient au domaine de concentration où la courbe de l'énergie libre molaire est concave (courbure positive, (figures.I.10 (b) et (c))). Dans ce cas, tout mode de décomposition en deux phases représentées par **A** et **B** à ($\mathbf{T}_H$), est impossible (figure. I.10. (b)), car il conduirait à une augmentation de l'énergie libre du système en valeur algébrique (représentée par la différence entre l'ordonnée de $\mathbf{x}_0$ sur le segment **AB** et sur la courbe **G(α)**). Le seul mode de décomposition favorable du point de vue thermodynamique est celui d'une démixtion en une solution solide appauvrie en soluté, (proche de $\mathbf{x}_0$) et des amas riches en soluté. Ces derniers peuvent alors constituer des zones **GP** (de concentration située au delà du deuxième point d'inflexion $\mathbf{J}_1, \mathbf{J}_2$, sur la courbe **G(α)** , dans la partie à courbure positive), ou à fortiori, des précipités de phase métastable β' ou de phase stable β à énergie libre plus faible.

Les compositions de la solution solide et des zones **GP** ou précipités associés sont alors données par l'abscisse des points de contact de la tangente commune aux deux parties à courbures positives de la courbe **G(x)** (figures.I.10 (b), (c)). Dans ces conditions, on montre que la germination d'un amas ou d'un précipité de composition $\mathbf{x}_p$ est favorisée à toute température pour la quelle sa courbe d'énergie libre molaire est située au-dessous de la tangente à la courbe **G(α)** issue du point d'abscisse $\mathbf{x}_0$. En effet, son énergie libre molaire de formation $\Delta\mathbf{G}$ qui est égale à la différence algébrique entre l'énergie libre du précipité et l'ordonnée de la tangente en

$\mathbf{x}_0$ à la courbe **G(α)** pour $\mathbf{x} = \mathbf{x}_p$, est alors négative, c'est toujours le cas du précipité d'équilibre en particulier à $\mathbf{T}_H$ (figure.I.10 (b)) , mais c'est aussi le cas à $\mathbf{T}_B$, du précipité métastable β' et même des zones **GP** (figure.I.10 (c)).

Pour comprendre la germination des zones **GP** et des précipités métastables de la phase β' avant celle de la phase d'équilibre β à basse température (malgré l'énergie libre de formation la plus négative), il faut tenir compte des autres composantes de l'énergie libre de formation d'un germe (équation I. 4 (a)). Jusqu'ici nous n'avons tenu compte que de la contribution chimique de l'énergie libre du système (sa variation $\Delta\mathbf{G}_v$ sera négative et proportionnelle au volume du germe). Cependant, la création d'une nouvelle interface précipité/matrice fait augmenter l'énergie libre car elle met en jeu une énergie interfaciale γ_s toujours positive. La variation d'énergie $\Delta\mathbf{G}_s$ sera cette fois proportionnelle à la surface du germe. De plus, la création du germe induira des distorsions élastiques du réseau en raison de la différence de tailles existant entre atomes majoritaires, ce terme d'énergie élastique $\Delta\mathbf{G}_e$ tend à diminuer la force motrice de germination.

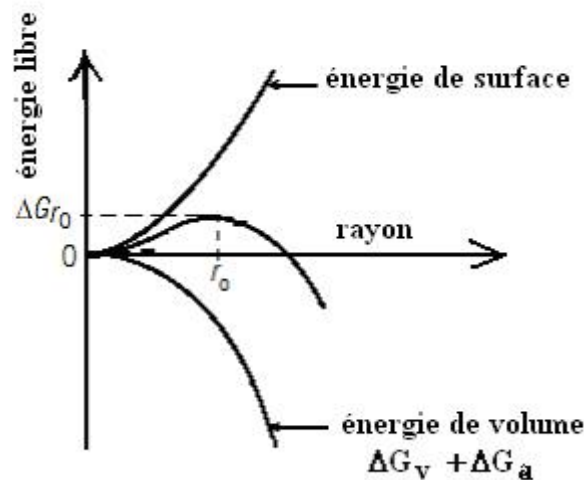


Figure. I.11 : Représentation schématique des énergies mises en jeu pour la formation d'un germe

$$\Delta G = \Delta G_v + \Delta G_a + \Delta G_s \quad (\text{I. 4. (a)})$$

ou,

$$\Delta G = (A_a + B_a) \frac{4\pi}{3} r^3 + 4\pi r^2 \gamma, \quad (\text{I. 4 (b)})$$

La variation d'énergie libre associée à la création d'un germe sphérique de rayon r est donnée par l'équation I.4 (b) [8, 19] .

Pour croître continûment, il faut que les germes atteignent un rayon critique r_0 à partir duquel une augmentation de taille du germe correspond à une diminution de l'énergie libre globale (figure.I.11). Le terme élastique conditionnera la morphologie des précipités. Lorsque cette énergie élastique est faible (solutés et solvants de taille voisine), les particules ont tendance à occuper un grand volume pour minimiser leur surface. Elles approcheront donc une forme sphérique, c'est le cas des zones **GP** dans les alliages **Cu-Co**, **Al-Zn** ou **Al-Ag**. Lorsque cette énergie est importante, les particules précipiteront plutôt sous forme de plaquettes, c'est le cas par exemple des alliages **Al-Cu**.

I. 4. 2. 5 Séquences de précipitation

Les alliages d'aluminium à durcissement structural suivent de façon générale la séquence de précipitation décrite dans le tableau.I.2 où α représente la solution solide et β la phase précipitée [2,4].

Les énergies mises en jeu pour l'apparition des ces phases peuvent varier considérablement de l'une à l'autre. A une température de revenu donnée, la germination d'une phase peut être facilitée par la présence des défauts cristallins préexistants (amas de lacunes, dislocations, joints de grain...). On parle alors d'une germination hétérogène. Dans le cas contraire, la germination est homogène.

Dans un matériau non écroui les zones **GP** germent de façon homogène. En ce qui concerne les éventuelles autres phases métastables, le type de germination dépend de la température de revenu. Si, juste après la trempe, le revenu est effectué à une température supérieure à la température de réversion (température de dissolution des zones **GP**), la germination de la phase métastable sera homogène. Dans le cas contraire, la germination peut se faire à partir des zones **GP** non dissoutes donc de façon hétérogène. Selon [3, 15], les zones **GP** peuvent servir de sites de germination de la phase métastable β' , si elles atteignent une taille critique au-delà de laquelle elles ne sont pas dissoutes. Des traitements thermiques appropriés ont été même proposés afin d'abaisser cette taille critique et augmenter leurs densité [20, 21].

La phase stable précipite de façon hétérogène, sur la phase métastable déjà présente, ou sur les joints de grains.

état brute de trempe fraîche	→	maturation	→	sous-revenu	→	revenu	→	surrevenu
α	→	$\alpha_1 + \text{GP}$	→	$\alpha_2 + \beta'$	→	$\alpha_3 + \beta$		
S-S-S	→	zones GP	→	précipité métastable β'	→	précipité d'équilibre β		
structure C.F.C	→	amas cohérents	→	précipités cohérents ou semi-cohérents	→	précipités incohérents		

Tableau I. 2 : Séquences de précipitation lors d'un traitement de revenu d'un alliage à durcissement structural

I. 4. 2. 6 Types de précipitation

I. 4. 2. 6. a. Pré-précipitation et zones de Guinier-Preston (zones GP) :

Découverte en 1938 [22, 23], les zones **GP** constituent la phase de pré précipitation qui se forme durant le premier stade de la décomposition de la solution solide sursaturée [24]. Elles ont été le sujet de plusieurs recherches. La référence [25] rassemble les résultats de plus de 40 ans d'investigations depuis 1938. Ce stade est caractérisé par l'interaction des atomes de même espèce (interaction soluté--soluté) [26, 27]. En effet, les atomes de soluté se regroupent sous forme d'amas cohérents avec la matrice dotés d'une faible énergie interfaciale comparée à celle du précipité d'équilibre / matrice.

Maintenant, il est établi que la formation des zones **GP** est étroitement liée à la sursaturation locale en lacunes de trempe. Ces lacunes s'associent avec les atomes de soluté en solution solide, pour former de petits complexes [26, 27]. La liaison lacune – soluté étant faible à l'intérieur de la zone **GP**, le complexe se dissout au contact du précipité, les lacunes se libèrent, génèrent une sursaturation à l'interface et repartent en solution solide pour former un nouveau complexe. Ce mécanisme de « pompe à lacunes » maintient ainsi une concentration en lacunes constante pendant toute la période de maturation.

Enfin la formation des zones **GP** se caractérise par une faible énergie d'activation atomique, elle vaut environ **0,4 eV** pour le système **Al-Cu** [15], elle peut être accélérée par un apport thermique allant de l'ambiante à **160°C** pour les alliages d'aluminium.

I. 4. 2. 6. b. précipitation continue

Elle consiste en une précipitation d'une phase secondaire de façon simultanée en différents points du réseau de la matrice (*figure. I. 12*) [4, 5]. Du point de vue cristallographique, les précipités peuvent être cohérents ou semi-cohérents avec la matrice (*figure. I. 13. (a)*), comme les zones **GP** et précipités métastables.

I. 4. 2. 6. c. précipitation discontinue

Le phénomène de la précipitation discontinue, est caractérisé par une juxtaposition de régions de la matrice décomposées par précipitation et de régions non encore transformées (*figure. I. 12*), il se manifeste pour des traitements de revenu prolongé (sur-revenu) ou à des températures de revenus plus élevées.

Généralement la précipitation commence (germination) à partir du joint de grains et envahit progressivement le cristal par croissance contrôlée par diffusion thermoactivée [5, 28]. Ainsi, les précipités formés comme les précipités d'équilibre sont souvent incohérents avec la matrice (figure. I. 13. (b)).

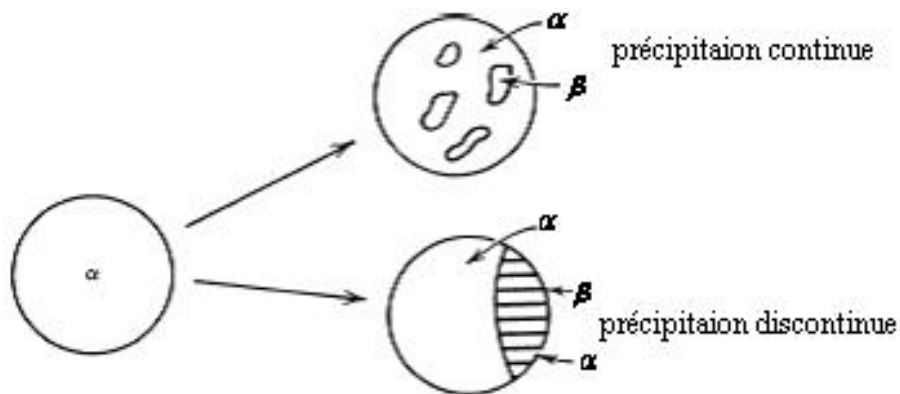


Figure. I. 12 : représentation schématique des deux types de précipitations

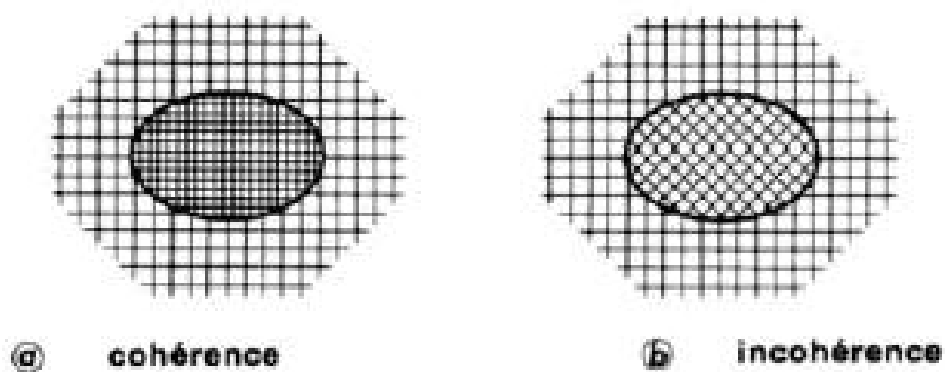


Figure. I. 13 : Représentation schématique des précipités cohérents et incohérents avec la matrice

I.4.3 Durcissement par déformation plastique (écrouissage)

Dans ce paragraphe nous nous sommes intéressés aux traitements thermomécaniques constitués par une déformation plastique à froid (écrouissage) suivie d'un traitement thermique de recuit.

I.4.3.1 L'écrouissage

D'une manière générale, l'écrouissage est défini par la modification structurale que subit un matériau lors d'une déformation plastique, entraînant des modifications des propriétés physiques [29, 30]. Les courbes contrainte / déformation issues des essais de traction permettent d'évaluer l'écrouissage du matériau (*figure. I.12*) [7, 29]. A cet effet nous rappellerons brièvement le comportement classique de l'écrouissage des monocristaux et les limitations à prendre en considération pour l'appliquer au cas des polycristaux.

Dans le cas des monocristaux, le comportement plastique se décompose classiquement en quatre stades dépendant de l'activation et de l'interaction des divers systèmes de glissements [29, 31, 32] (*figure. I.12*):

- *Stade I* : dit de glissement simple : un seul système de glissement est activé.
- *Stade II* : activation d'autres systèmes de glissement, qui par interaction avec le premier mène à l'écrouissage maximal. Augmentation des interactions entre dislocations et stockage de dislocations
- *Stade III* : activation du glissement dévié qui se traduit par un adoucissement progressif par annihilation des dislocations (phénomène de restauration dynamique).
- *Stade IV* : stabilisation de la valeur de l'écrouissage

Les polycristaux sont constitués d'un ensemble de grains, chacun pouvant être assimilé à un monocristal. Ce système est rendu complexe car chaque grain se comporte différemment suivant son orientation par rapport à l'axe principal de sollicitation et active plus ou moins tardivement ses propres systèmes de glissement [30, 32, 33] (*figure. I.13*). Les courbes contrainte/déformation obtenues ne présentent alors pas de *stade I*. La compatibilité entre les grains impose en effet l'activation simultanée de plusieurs systèmes de glissement dès le début de la déformation, avec une multiplication rapide des dislocations, produisant différents systèmes d'interactions entre elles (*interaction de la forêt de dislocations*) [30 - 32].

Parallèlement, le stade IV n'est observé que pour de très grandes déformations principalement obtenues pendant des essais de torsion ou de compression.

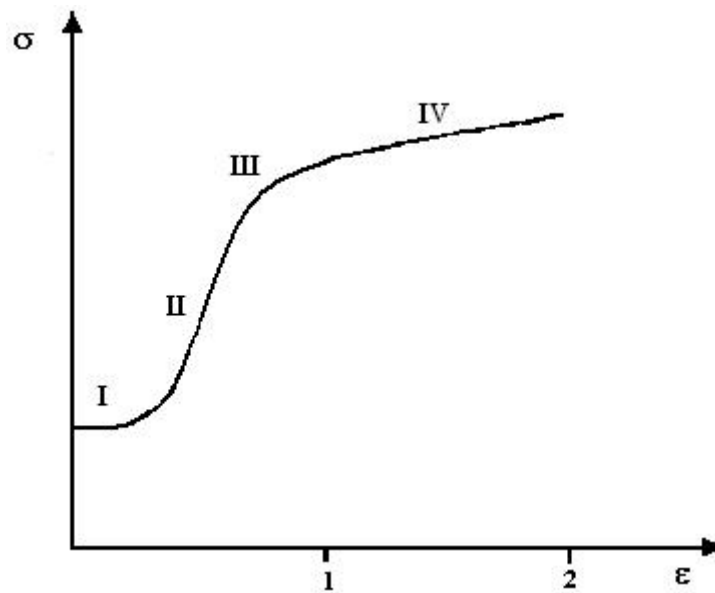


Figure .I. 12 : Définition des différents stades d'écrouissage sur les courbes contrainte / déformation pour un monocristal

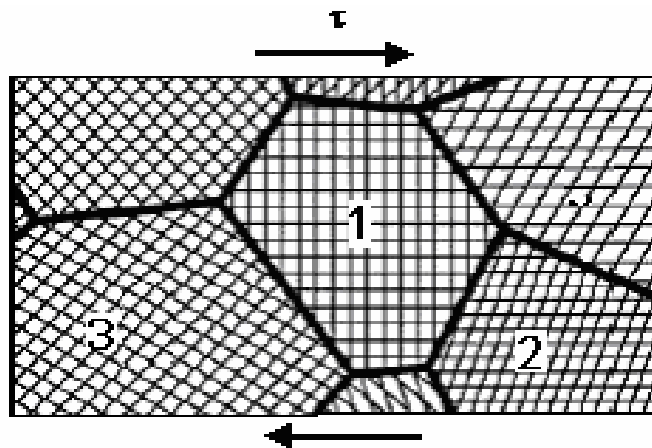


Figure. I. 13 :Le glissement commence dans des grains où sont présents les plans de glissement aussi parallèles que possible à l'axe τ (1), ensuite le glissement se propage dans les grains qui n'étaient pas orientés aussi favorablement (2), et enfin dans ceux qui n'étaient pas bien orientés, (3).

I. 4. 3.2 Déformation plastique à froid (laminage à froid)

La déformation plastique par laminage, peut être nécessaire pour la mise en forme de pièces, et peut être utile aussi pour optimiser la microstructure. Le laminage est caractérisé par ses directions et plans principaux (*figure. I. 14(a)*). Son effet essentiel se résume à : l'augmentation de la densité ρ des dislocations ainsi que leurs interactions [30, 32] (*figure. I.15*), la modification de la microstructure du matériau, donnant naissance à des grains allongés ou subdivisés accompagné par l'augmentation de leur surface (*figure. I. 14 (b)*), et même la disparition des joints de grains pour des taux de laminage élevés [33, 34]. Une grande partie de l'énergie mécanique ($\approx 95\%$) fournie lors de la déformation plastique, se transforme en chaleur, alors que ($\approx 5\%$) de cette énergie, s'accumule sous forme d'énergie potentielle élevée [7, 29, 35]. Cette accumulation de l'énergie est la source des transformations qui suivent.

En règle générale, la densité des défauts augmente après de grandes déformations plastiques. L'ensemble de ces évolutions de taille et de nature des microstructures, s'accompagne d'un durcissement progressif. Ces défauts peuvent disparaître en grande partie soit pendant la déformation (restauration dynamique) [8, 35, 36], soit lors d'un recuit ultérieur à basse température comme la restauration (*figure. I 22*) [8] .

I.4. 3. 3 Interaction des dislocations

Dès le début de la déformation, la multiplication rapide des dislocations (source de Franck et Reed, (*figure.16*)) et l'accumulation de celles-ci mènent le matériau à un état écroui qui est thermodynamiquement instable, le système a tendance à évoluer même à température ambiante en minimisant son énergie. En effet, les dislocations de signes opposés s'attirent et s'annihilent et celles de même signes se repoussent, quand elles se trouvent sur le même plan de glissement (*figure. I.17*). Quant aux plans de glissement parallèles, les dislocations tendent à s'aligner verticalement (*figure. I. 18*). Un apport thermique (traitement de restauration) peut faciliter le déplacement des dislocations d'un plan de glissement à un autre par diffusion en absorbant ou en émettent des lacunes. Un tel mouvement conduit à la formation de cellules de dislocations et de blocs de cellules (phénomène de polygonisation) [8, 29, 30, 36, 37].

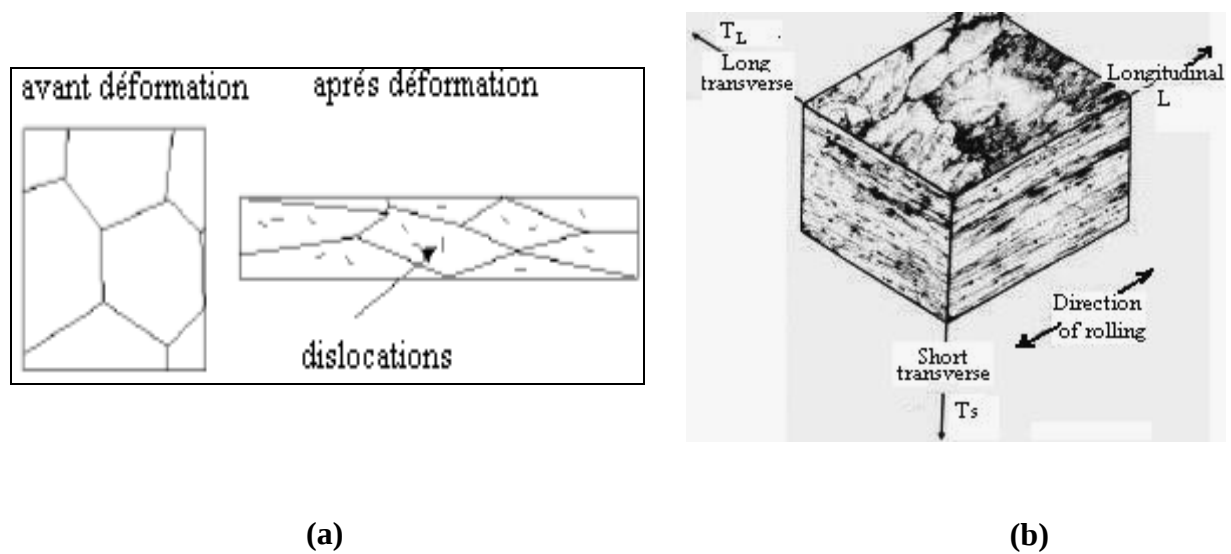


Figure. I.14 Représentation schématique de la microstructure :
(a) ; avant et après laminage. (b) ; les directions et plans principaux du laminage.

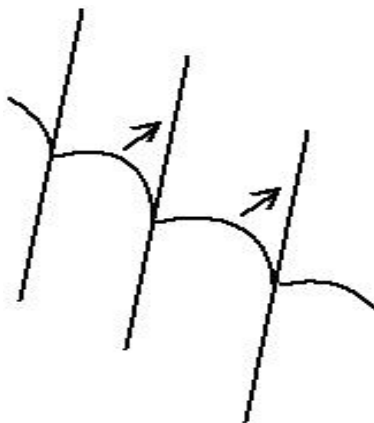


Figure.I.15 : Représentation schématique de l'interaction d'une dislocation
avec d'autres dislocations

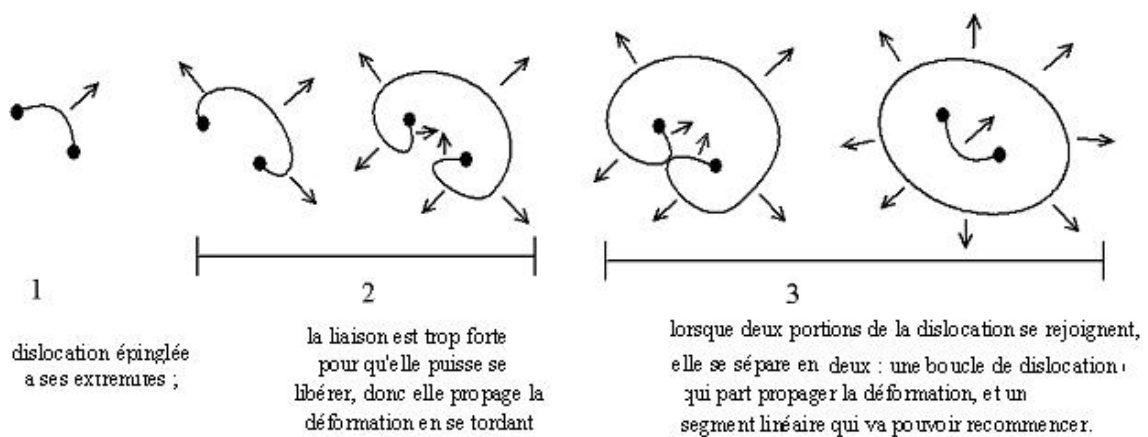


Figure. I. 16 : Représentation schématique d'une source de dislocation Frank et Reed

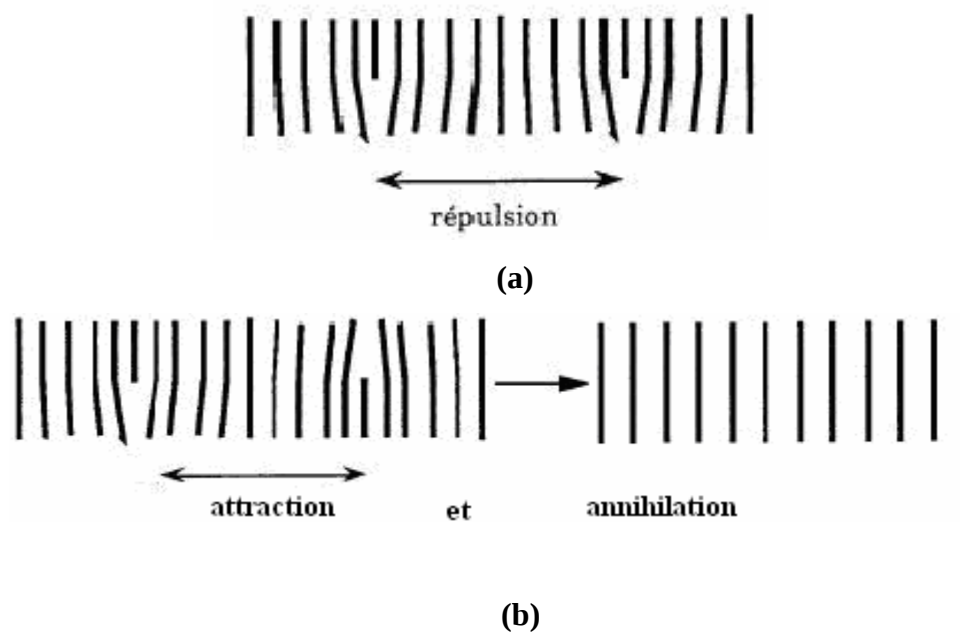


Figure. I. 17. Représentation des interactions des dislocations (coins)
(a) ; répulsion de deux dislocations. (b) ; attraction et annihilation de deux dislocations.

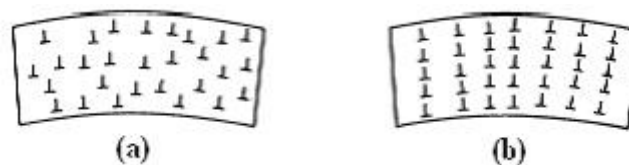


Figure. I. 18 : Représentation de la configuration des dislocations pendant la restauration ; les dislocations tendent à s'aligner (verticalement)

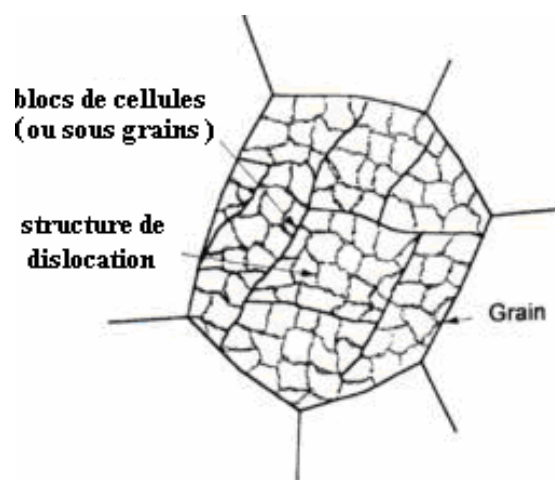


Figure. I. 19 : Représentation schématique de la sous-division d'un grain après déformation, en cellules de dislocations et blocs de cellules.

I. 4. 3. 4 Traitement de recuit

I. 4. 3. 4. a Traitement de restauration

C'est un traitement de recuit effectué à des températures relativement élevées (inférieures à $0,5 T_f$). Il permet de restaurer en partie les propriétés physiques et mécaniques sans modification apparente de la microstructure [8]. La restauration s'effectue en deux étapes ; La première, appelée détente (recuit de détente), a lieu au premier stade de la restauration, elle permet de diminuer la concentration des lacunes et la redistribution des dislocations sans qu'il se forme de nouvelles surfaces de séparation. La détente supprime également, en partie, les dislocations par annihilation [8]. La deuxième étape, appelée polygonisation, est une fragmentation des grains en blocs plus petits, légèrement désorientés les uns par rapport aux autres [8, 36, 37] (figure. I. 19).

Notons que la déformation plastique à l'intérieur des grains est rarement homogène. A titre d'exemple, les régions près des joints de grains développent des densités de dislocations plus élevées qu'au cœur des grains. D'autres formes d'hétérogénéité apparaissent comme :

- **Des bandes de cisaillement**

Typiquement à 30 ou 40° de la direction de sollicitation, elles sont bien apparentes dans les monocristaux, elles sont sous forme de longues bandes d'épaisseur 0,1 à 2 μm et de longueurs 10 à 100 μm [36, 37] (figure. I. 20).

- **Des bandes de transition (*transition bands*)**

Elles séparent des zones adjacentes fortement désorientées d'un même grain. Les bandes de transition apparaissent après les déformations des stades I et II. Elles sont souvent parallèles à la direction de déformation principale et accommodent des désorientations supérieures à 20° sur des épaisseurs de 1 à 2 μm [8, 29, 36]. (figure. I. 21).

- **Des bandes d'entortillement (*kink bands*)**

Elles sont définies comme une forme différente des bandes de transition et elles peuvent être décrites comme une paire de bandes de transition très proches les unes des autres. Si une orientation au travers d'une bande de transition change de A vers B alors, une bande d'entortillement aura un changement d'orientation identique (A vers B) puis revient à l'orientation A (figure. I. 21). D'habitude, après des déformations (stade II), on constate une microstructure de grains minces fortement alignés et décomposés plusieurs fois en blocs de cellules d'épaisseur de l'ordre de quelques μm , désorientés de quelques dizaines de degrés.

A ce stade, il devient difficile de déceler les grains originaux. La surface des joints de grains est considérablement accrue par rapport à l'état initial (avant déformation) [7, 28, 36].

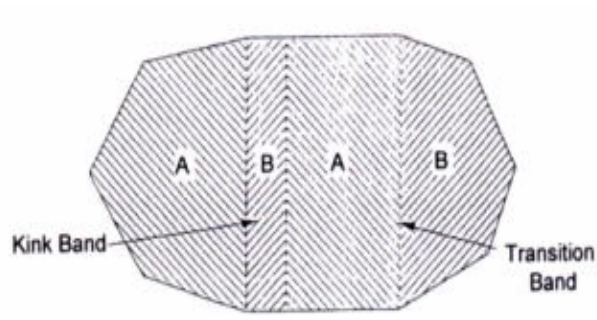


Figure.21 : Représentation schématique de l'orientation d'un grain contenant des bandes d'entortillement et de transition

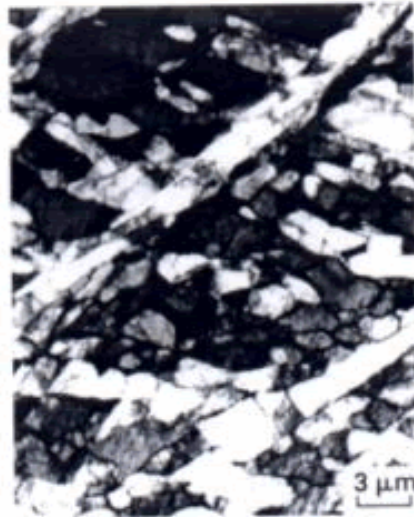


Figure. I. 20 : Microstructures de dislocations dans l'Aluminium déformé en compression plane (MET, sur coupes longitudinales) D'après [38]

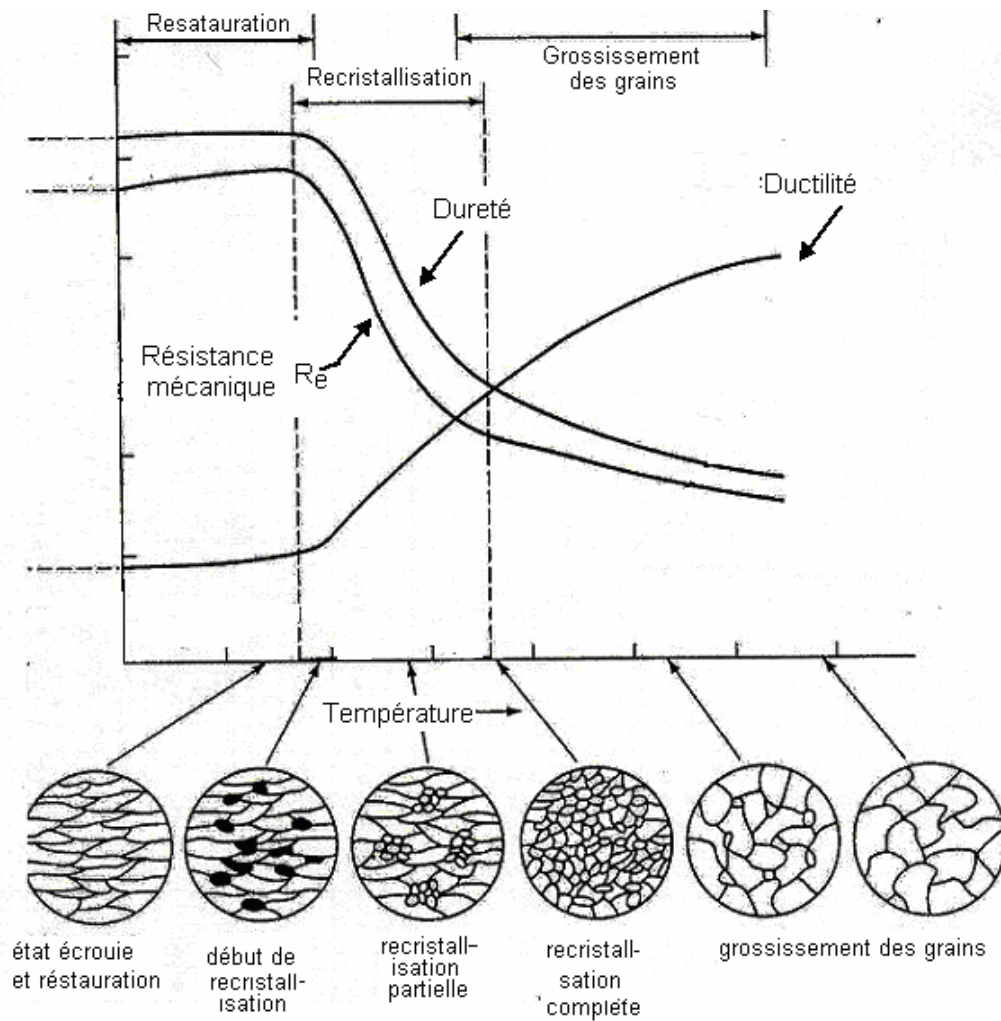


Figure. I. 22 : Représentation schématisant les variations des propriétés physiques et de la microstructure en fonction de la température de recuit.

I. 4. 3. 4. b Traitement de recristallisation primaire

C'est un traitement de recuit dans la zone de recristallisation, situé au-dessus d'une température qui dépend de la nuance du matériau et de son degré d'écrouissage (figure I. 22).

La recristallisation se manifeste par une transformation de germination et croissance de nouveaux grains. L'énergie stockée lors de la déformation est considérée comme étant le moteur principal du processus de recristallisation [8, 35]. Une étude récente menée par **EBSD*** et effectuée par une simulation Monté-Carlo [39], confirme que les sites de germination sont dans les zones à forte énergie stockée et dans les zones de forte désorientation.

* **EBSD** ; diffraction des électrons rétrodiffusés (electrons back scattering diffraction).

Cette transformation microstructurale entraîne une inversion des propriétés mécaniques, qui tendent à revenir à l'état initial. (figure. I.2.). Cependant, la température de recristallisation est définie comme étant, la température à laquelle, le matériau écroui est complètement recristallisé durant une heure de traitement. Il existe une relation de proportionnalité entre la température et le temps de maintien. Comme le montre la figure. I. 23. Des études expérimentales prouvent que le taux de recristallisation suit une loi d'Arrhenius (equ. I. 5), et qu'il est proportionnel à l'inverse du temps de recristallisation complète (équation. I. 6) [8] .

$$\text{taux}_{\text{rec}} = A e^{-Q_r/RT} \quad \text{I. 5}$$

$$\text{taux}_{\text{rec}} \propto 1/t_{\text{rec}} \quad \text{I. 6}$$

$$t_{\text{rec}} = A^{-1} e^{Q_r/RT} = B e^{Q_r/RT} \quad \text{I. 7}$$

l'équation I. 7 est déduite des deux équations (I. 5 et I. 6)

Le terme Q_r présent dans les deux équations (équations. I. 5 et I. 7) représente est l'énergie d'activation apparente de la recristallisation. Sa signification physique n'est pas bien connue jusqu'à présent, du au fait que le phénomène de recristallisation englobe plusieurs paramètres empiriques. Pour simplifier, on peut assimiler le processus comme étant l'énergie nécessaire pour qu'un atome franchisse une barrière d'énergie potentielle (figure. I. 24).

Notons qu'à partir de l'équation I. 7, on peut calculer expérimentalement Q_r , par le tracé de la fonction $\ln(t_{\text{rec}})$ en fonction de l'inverse de la température.

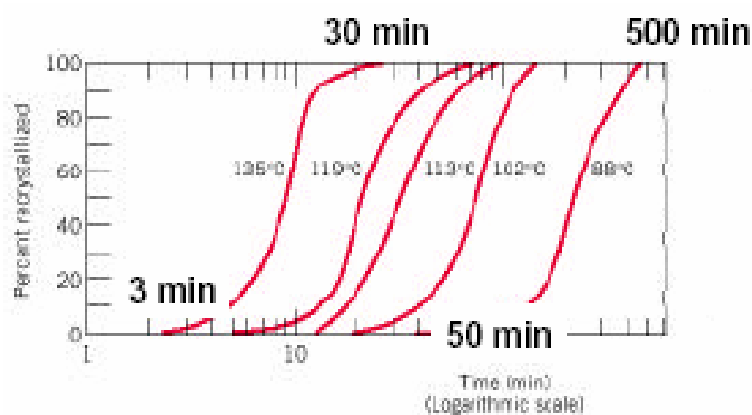


Figure.I. 2 : La fraction recristallisée en fonction du temps à différentes températures, du cuivre pur déformé à 98 %

Toute fois, la température de recristallisation ainsi que Q_r , décroît avec l'augmentation du taux de déformation [8].

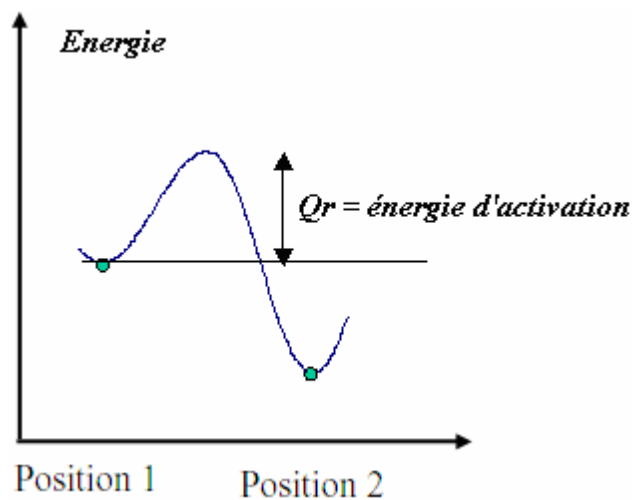


Figure. I. 24. Représentation simplifiée de l'énergie d'activation de la recristallisation

I. 4. 3. 4. c Traitement de grossissement des grains

La taille des grains, qui s'établit après la recristallisation primaire est fonction du taux de germination et de la vitesse de croissance. Cependant, ceux-ci dépendent du taux et de la texture de l'écrouissage et de la température et durée de recuit [8, 30, 40]. Par ailleurs ; les grains recristallisés sont caractérisés par une taille plus au moins fine ainsi qu'une texture morphologique désorientée [40], ce qui se traduit par une microstructure toujours dans un état thermodynamique métastable [41]. Ainsi, les grains auront tendance à grossir et à s'orienter vers des configurations plus stables tout en minimisant l'énergie interfaciale.

Le grossissement des grains qui mène à l'équilibre est un phénomène thermiquement activé contrôlé par diffusion. La croissance des gros grains au détriment des plus petits, et la coalescence sont les processus de ce phénomène (figures. I. 25 et I. 26).

Par ailleurs, la croissance de certains grains peut être anormal ou exagérée, A. Morawiec [42] explique ce phénomène, par la présence des joints de grains de forte énergie qui bordent le grain recristallisé et leur offrent un avantage pour la croissance anormale en raison de leurs mobilité, ces joints possèdent une désorientation supérieure à 20° avec le grain en question.

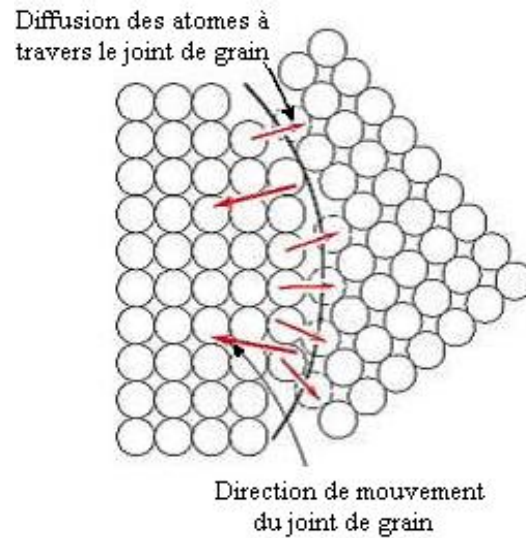


Figure I. 25 : Représentation schématique du mouvement d'un joint de grain lors de la croissance des grains.

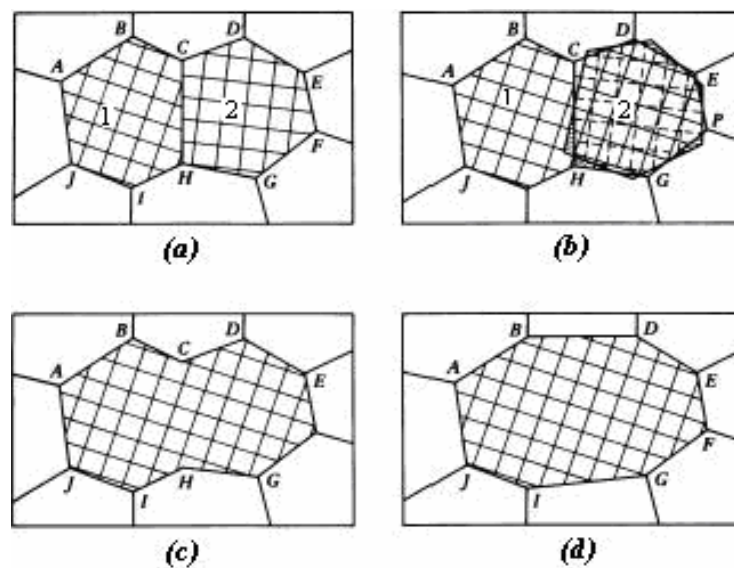


Figure. I. 26 : Représentations schématiques de la coalescence des grains par rotation:

(a) ; configuration initiale

(b) ; rotation du grain (2) pour coïncider son orientation avec celle du grain (1)

(c) ; disparition du joint de grain (CH) séparant les deux grains

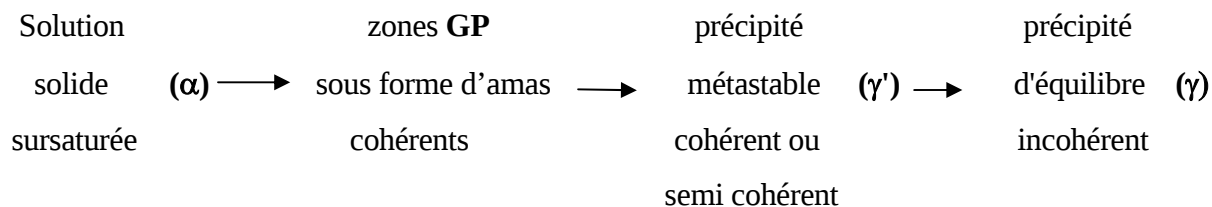
(d) ; configuration finale

II. Système Al-Ag

Le système **Al-Ag**, souvent considéré comme modèle pour les alliages, est intéressant à étudier concernant la germination et croissance aussi bien hétérogène que homogène, cela est essentiellement dû à:

- a) la faible différence de taille atomique entre les éléments constitutants (**Al** et **Ag**) de l'ordre de 0,5 %, a comme conséquence une énergie de contrainte minimale entre **Ag**-lacune, et **Ag**-dislocation [22, 23, 43, 44].
- b) une faible énergie entre lacune –soluté.
- c) la nature cristallographique de germination de γ' est facilement explicable par le changement d'une structure C.F.C $\rightarrow$ en une structure H.C [44].

Le diagramme d'équilibre (*figure. II. 1*) selon [45], présente une réaction eutectique à 567°C avec une limite de solubilité de **Ag** dans l'Aluminium de l'ordre de 23,5 atomes % à 567 °C. Plusieurs auteurs ont étudié le système **Al-Ag** et ses propriétés [22, 23, 44, 46 - 56]. La décomposition de la solution solide sursaturée durant un traitement de revenu, suit la séquence de précipitation suivante:



II. 1. Pré-précipitation et Zones GP

Après trempe de mise en solution et au premier stade du traitement de revenu, des amas riches en soluté se forment en premier lieu (*figure. II. 2*). Cela est assuré par la sursaturation en lacunes de trempe [22, 23, 43, 44, 46 - 48], et peut être attribué à l'existence d'un gap de miscibilité métastable de formation des zones **GP** [49].

Plusieurs recherches [49 - 52] utilisant différentes techniques expérimentales, concluent qu'il existe deux types de zones **GP**. Des zones **GP II**, ou η de structure ordonnée apparaissent pour des traitements de revenu inférieurs à 170°C, et se transforment en zones **GP I**, ou ε désordonnées à la fin du stade ou à des températures de revenu supérieures à 170°C, [51] caractérisent cette transformation ordre-désordre.

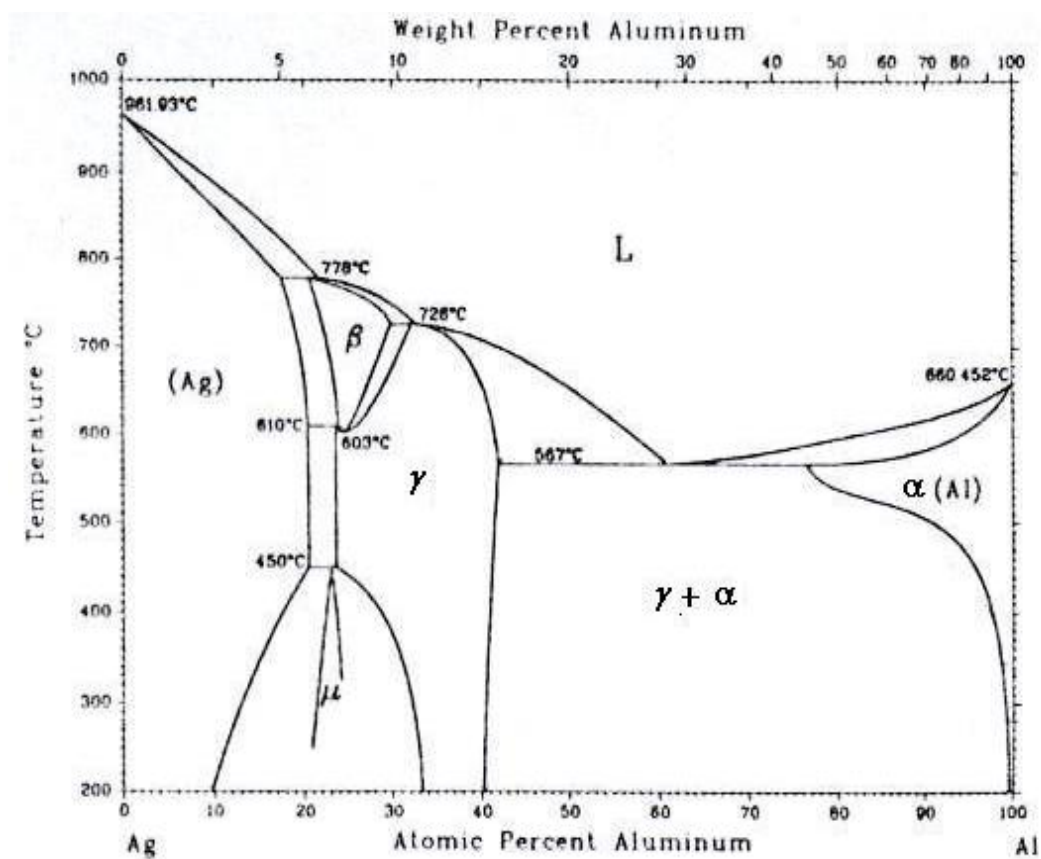


Figure. II. 1: Diagramme de phases du système Ag-Al d'après [45]

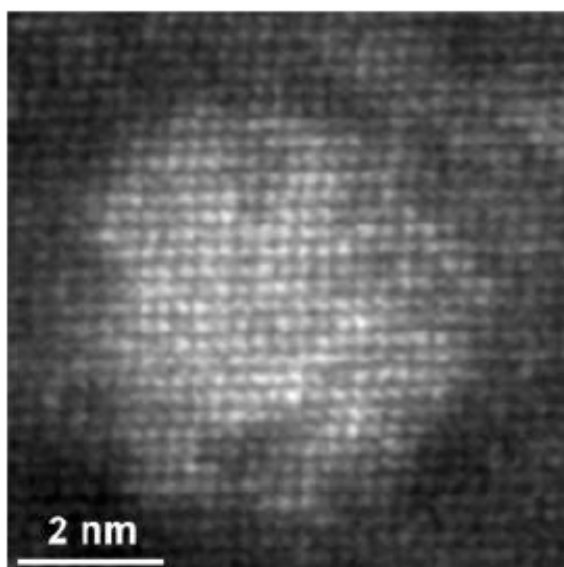


Figure. II. 2. Micrographie par HAADF STEM à haute résolution d'une zone de Guinier-Preston dans l'alliage Al-3 at.% Ag d'après [46]

La différence entre ces zones réside dans leur forme, taille et composition. Les deux types de zones ont une forme sphérique non parfaite. La concentration atomique de η peut atteindre jusqu'à 100 % de **Ag**. Par contre celle de ε est inférieure à 70 % de **Ag**. La taille est de l'ordre de 10 **nm** pour les zones de type η et de quelque **nm** pour celles de type ε .

Par ailleurs, on confirme [52] que les deux types des zones ont la même concentration et sont réparties dans la matrice d'une façon homogène. Par contre une étude récente confirme qu'il n'y a pas de différence entre zones **GP** [55]. Enfin, la forme des zones **GP** généralement acceptée est la forme sphérique non parfaite, avec une concentration de l'ordre de 70 % d'atomes d'Argent par amas et d'une taille allant de 2 à 15 **nm** (Figure. II. 2 [46]).

II. 2. Précipité métastable γ'

Le durcissement structural maximum de l'alliage **Al-Ag** est conditionné par les caractéristiques (fraction et taille) des précipités γ' . Ces derniers constituent une phase métastable, de composition **Ag₂Al**, qui apparaît sous forme de plaquettes cohérentes ou semi cohérentes sur les plans {111} de la matrice et de structure cristallographique hexagonale compacte, suivant la relation d'orientation

$$(0001)_{\gamma'} // (111)_{Al}$$

et,

$$[10\bar{1}0]_{\gamma'} // [110]_{Al}$$

avec $a = 0,284$ **nm** et $c = 0,460$ **nm** comme paramètres [46, 54].

La germination de γ' peut se produire d'une façon homogène, ou d'une façon hétérogène sur les boucles de dislocations, et sur les sources de dislocations (source de Frank et Reed) [44, 52, 55]. Sa croissance se fait grâce à la dissolution (réversion) des zones **GP** qui alimentent γ' en soluté.

H. Voss [56], a étudié l'influence de la déformation plastique sur les mécanismes de précipitation, il a conclu que le mécanisme de croissance ainsi que la structure cristallographique de γ' sont identiques (pour les échantillons déformés et non déformés). Par contre c'est la germination hétérogène de γ' qui est dominante dans les échantillons déformés et la taille des plaquettes (en longueur et en largeur) est beaucoup plus petite que celle des échantillons non déformés.

II. 3. Précipité d'équilibre γ

La phase thermodynamiquement stable γ qui apparaît sous un traitement de revenu poussé (surrevenu), comme particules grossières incohérentes avec la matrice, de composition théorique **Ag₂Al** est responsable de l'adoucissement de l'alliage. Des études concernant γ ont déterminés sa structure hexagonale compacte avec comme paramètres de maille **a = 0,288 nm** et **c = 0,457 nm**. Elle précipite d'une façon hétérogène sur les précipités γ' , les dislocations, les joints et sous-joints de grains [47 - 49].

III. Techniques expérimentales

III. 1 Elaboration

Les éléments utilisés pour l'élaboration de l'alliage **Al-20 % Ag** (en masse) sont d'une pureté de 99,99 %. Après pesée à l'aide d'une balance type **SARTORIUS** qui donne une précision de 10^{-4} gramme, et décapage des éléments purs, ces derniers sont placés dans un creuset en graphite et introduits dans un four électrique type **ADAMEL** qui peut atteindre 1500°C et qui est alimenté par une tension régulée selon le mode « tout ou rien ».

Pour éviter toute oxydation lors de l'élaboration le four est équipé par un système à vide composé de deux pompes à vide :

Une pompe primaire à **PALETTES**, montée en série avec une pompe secondaire à diffusion d'huile de type **ALCATEL**. La pression à l'intérieur de l'enceinte du four est maintenue à 10^{-4} **Torr**. L'ensemble (*figure. III.1*) est porté à la température $T=1000^{\circ}\text{C}$ supérieure à la température de fusion des deux constituants, on maintient l'ensemble à cette température pendant **8 heures**, ensuite on procède à un refroidissement lent de l'ensemble en arrêtant l'alimentation du four. Afin d'assurer une bonne miscibilité, on refait une deuxième « élaboration » (nouvelle fusion des éléments).

III. 2 Traitements thermiques

III. 2. 1 Traitement d'homogénéisation

Les traitements d'homogénéisation se font juste après l'élaboration, dans un four électrique tubulaire vertical **ADAMEL** qui est contrôlé par une régulation **CORESCI**.

Un creuset en graphite contenant l'échantillon est suspendu au milieu de l'enceinte du four à l'aide d'un fil de tungstène.

Afin d'éviter l'oxydation de l'échantillon, l'enceinte est balayée par un flux de gaz inerte (Argon), « traitement sous Argon ».

L'ensemble (*figure. III. 2*) est porté à la température 540°C (température déterminée sur le diagramme d'équilibre dans le domaine monophasé α) pendant une durée de **12 heures** pour assurer une mise en solution.

L'opération de trempe est assurée par simple chute libre de l'échantillon dans un bac rempli d'eau, situé au-dessous du four. Nous obtenons ainsi une solution solide sursaturée homogène, une partie de l'échantillon est réservée à la caractérisation aux Rayons-X et le reste aux

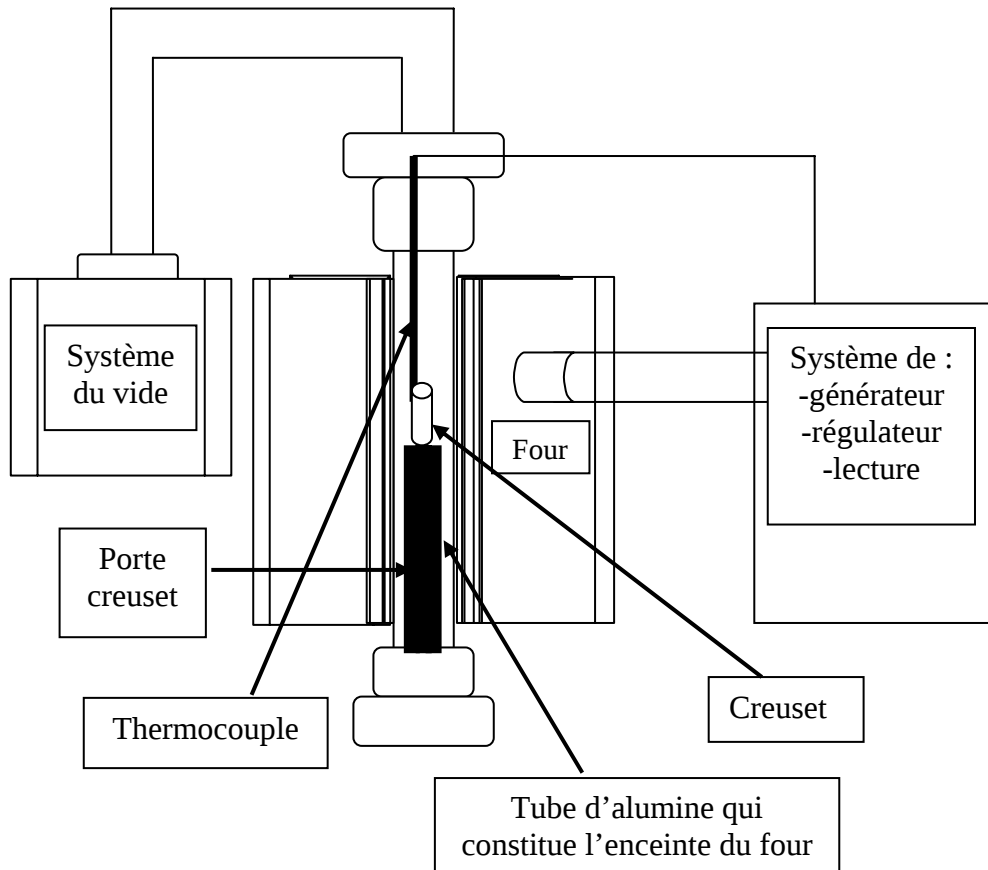


Figure. III.1 : Représentation schématique du dispositif d'élaboration

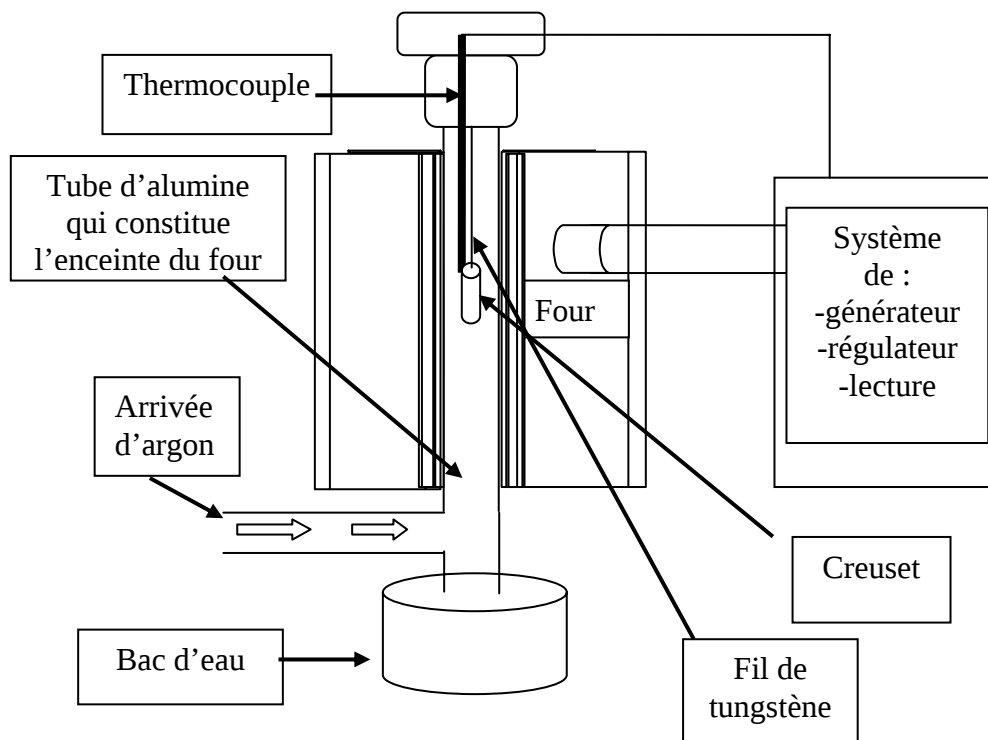


Figure. III. 2 : Représentation schématique du dispositif d'homogénéisation

traitements thermiques et thermomécaniques et aux observations micrographiques et mesures de microdureté.

III. 2. 2 Traitements de revenu

Après avoir découpé l'échantillon en petits morceaux de forme parallélépipédique, on procède à leur polissage fin avant de les réhomogénéiser à la température de 540°C pendant **2 heures**, et de les tremper à l'ambiante. Les échantillons se trouvent ainsi dans un état de solution solide sursaturée métastable, cet état peut évoluer au cours du temps par précipitation, l'évolution se produit soit lentement par simple maintien à la température ambiante (vieillessement naturel), ou elle peut être activée par un traitement thermique en portant l'échantillon aux températures désirées (inférieure à la température de solvus), ce traitement s'appelle traitement de revenu (vieillessement artificiel).

On a adopté le traitement de revenu représenté par le diagramme. III. 1. (a) pour l'échantillon non déformé (les traitements sont faits juste après la trempe d'homogénéisation), et le diagramme III. 1. b pour l'échantillon déformé (l'échantillon subit une déformation plastique avant d'être traité thermiquement). Pour ces traitements on a utilisé une étuve de température maximale 200°C, et un four à moufle **IVAL** de température maximale 800°C.

Pendant le traitement les échantillons sont mis dans un bain de sel ou d'huile pour les protéger de l'oxydation.

Ainsi, les mesures de microdureté et les micrographies sont effectuées sur des échantillons traités thermiquement et trempés à l'ambiante.

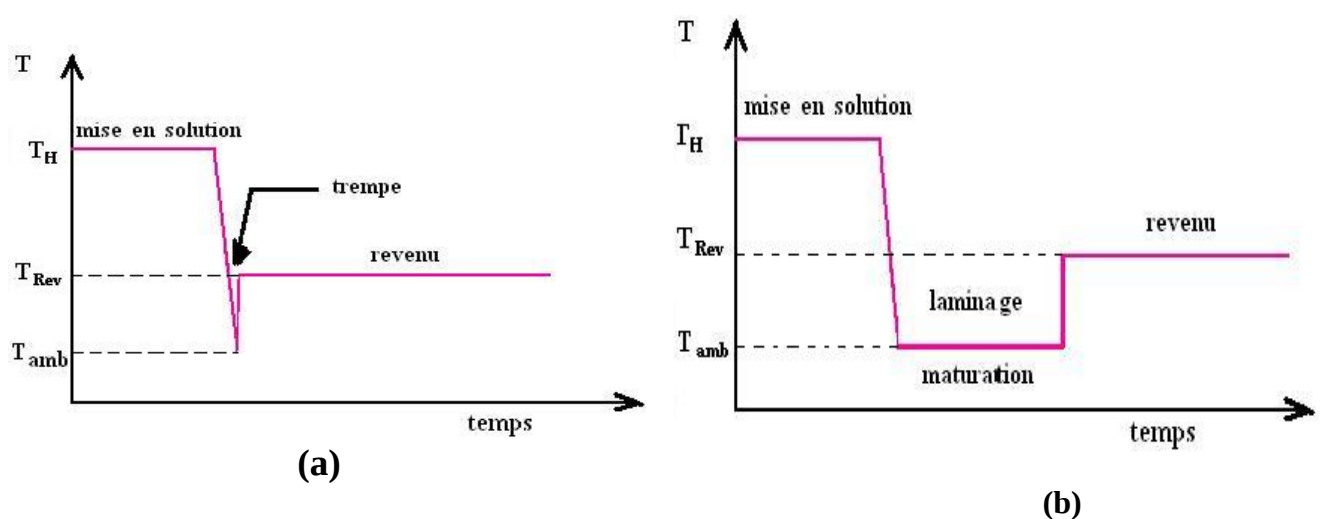


Diagramme III. 1 : Représentation des schémas adoptés pour les traitements thermiques.

(a) ; traitement de revenu juste après la trempe de mise en solution.

(b) ; traitement de revenu après déformation plastique pendant la maturation.

III.3 Caractérisation par diffraction des Rayons-X

La méthode la plus directe est la détermination de la structure cristallographique par diffraction des rayons X. Cette méthode consiste à soumettre l'échantillon à un faisceau de rayons X, certains plans de la structure atomique de l'échantillon diffractant celui-ci selon la relation de Bragg qui s'exprime par

$$2d_{hkl} \sin \theta = n\lambda \quad (\text{III. 1})$$

où d_{hkl} est la distance entre deux plans cristallins, propre à chaque structure cristalline

θ l'angle d'incidence du rayon X de longueur d'ondes λ

n un entier caractérisant l'ordre de diffraction

Les rayons X sont absorbés par les métaux et la diffraction demeure donc une méthode d'étude des couches superficielles des échantillons massifs. Pour augmenter la probabilité de présence de tous les plans cristallographiques sur la surface de l'échantillon, on a effectué une caractérisation sur poudres (échantillon sous forme de pastille) pour l'Aluminium pur et la solution solide sursaturée, et une caractérisation sur échantillon massif pour révéler la phases métastable γ' .

Le dispositif utilisé est un diffractomètre à 2-cercles (*figure. III. 3*), de type (**X PERT GRAPHICS & IDENTIFY**), du laboratoire des Sciences Fondamentales à l'Université de **LAGHOUAT**, fonctionnant avec la raie K_{α} du cobalt (Co) $\lambda_{K\alpha} = 1,789 \text{ \AA}$.

La caractérisation par diffraction des rayons-X intervient comme le montre le digramme III. 2, après le traitement d'homogénéisation et après les traitements de revenu pour faire apparaître la phase γ' .

La structure cristalline, les angles de diffraction, le rapport d'intensité des raies diffractées ainsi que les plans cristallographiques correspondants aux phases présentes ainsi que leur paramètre de maille sont donnés par le diffractomètre, qui est pourvu d'un logiciel d'exploitation et de traitement de spectres et d'une base de données cristallographique.

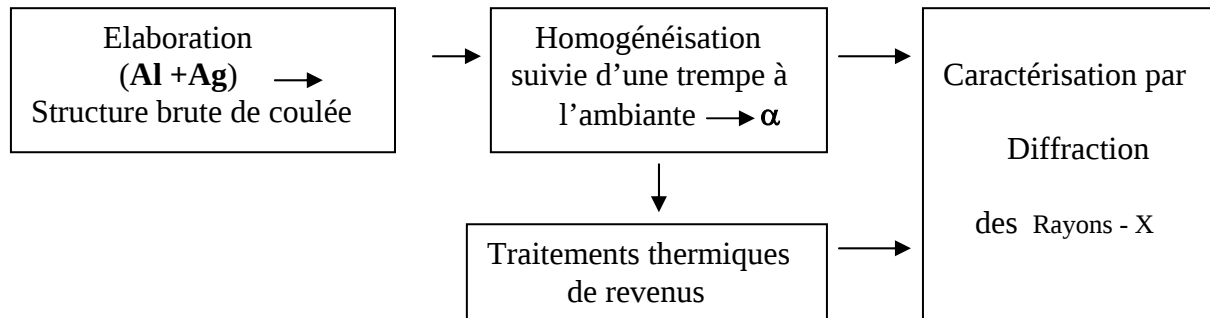


Diagramme. III. 2 : Représentation du schéma suivie pour la caractérisation par diffraction des rayons-X

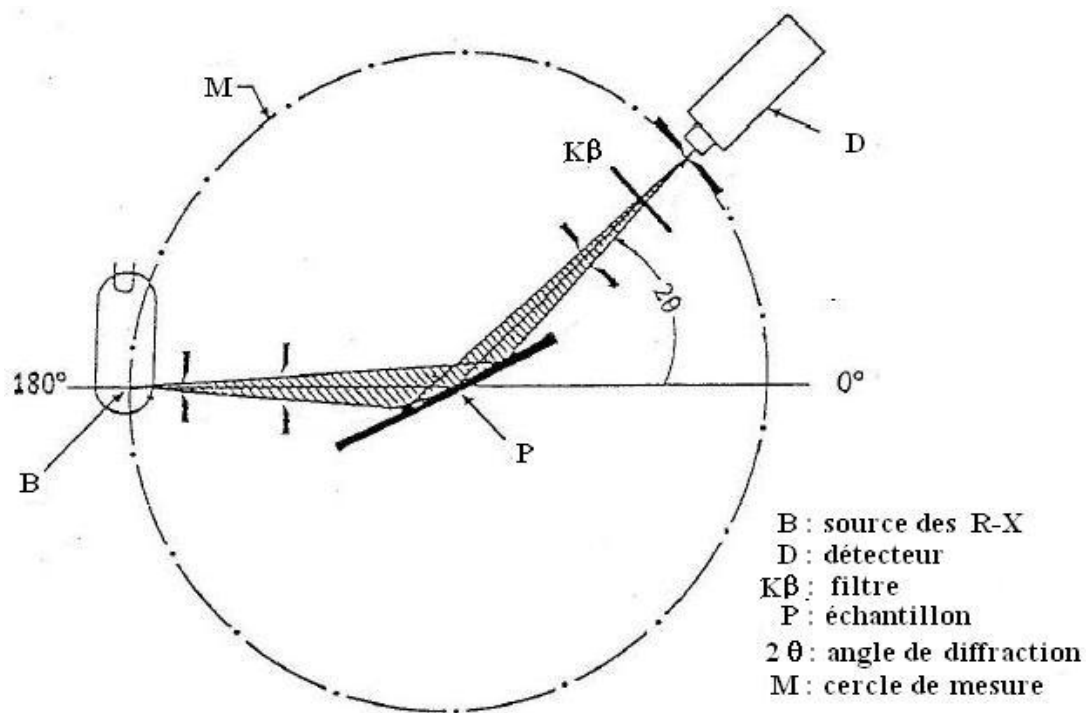


figure. III. 3 : représentation schématique d'un diffractomètre à deux - cercles

III. 4 Traitements mécaniques

Nous avons adopté pour les traitements mécaniques d'écrouissage la technique de mise en forme par laminage. C'est une opération destinée à la réduction de la section d'un matériau, en le faisant passer dans un système mécanique (laminoir, *figure. III. 4*), qui est constitué de deux cylindres axisymétriques tournant en sens inverse autour de leur axe. La déformation plastique est assurée par l'action des contraintes appliquées par les deux cylindres sur le matériau. Cependant, le laminage peut être réalisé à chaud ou à froid. Pour éviter la restauration ou la recristallisation dynamique, nous avons adopté le laminage à froid (température ambiante) sur des échantillons monophasés juste après trempe de mise en solution (*diagramme III. 1*).

Le taux de laminage est obtenu, après un nombre de passage de l'échantillon dans le laminoir, par l'équation III. 2.

$$cw = \left(\frac{e_0 - e}{e_0} \right) 100$$

III. 2

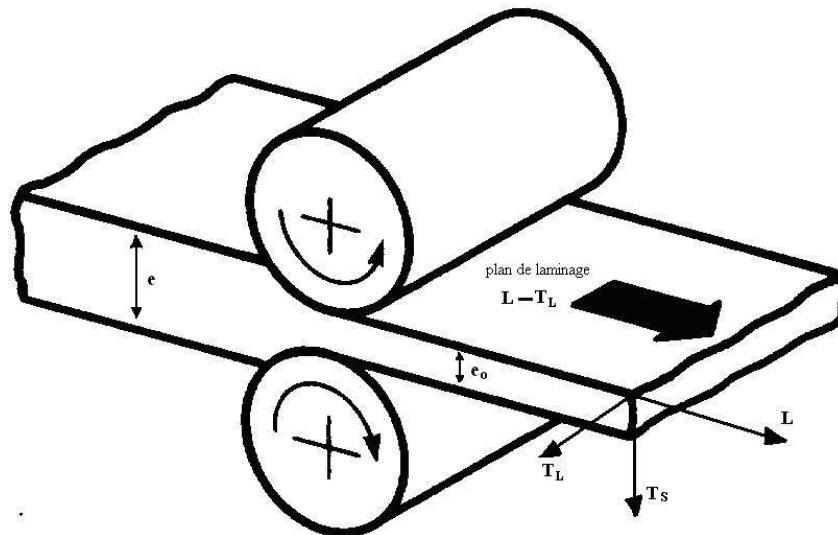


Figure. III. 4 : Représentation schématique du dispositif de laminage avec les directions et plans principaux

L : direction longitudinal

T_s : direction courte transverse (short transverse)

T_L : longue transverse, la grande flèche indique la direction de laminage.

III. 5 Essais de microdureté :

La dureté **H** est généralement définie comme étant la résistance à la déformation qu'un matériau oppose à la pénétration d'un corps plus dur, elle s'exprime par le rapport de la force appliquée par la charge sur la surface de l'empreinte.

$$H = \frac{F}{S} \quad (\text{III. 3})$$

La plupart des tests de dureté conventionnels impliquent l'utilisation d'un pénétrateur dur (par exemple, en diamant ou en acier ...) qui est pressé à la verticale sur la surface de l'échantillon. Cependant, la dureté dépend de la nature et de la forme du pénétrateur, c'est ainsi qu'on distingue divers types de dureté ; **BRINELL, ROCKWELL, VICKERS, KNOOP...**

Dans notre travail nous avons utilisé la dureté **VICKERS**, qui est une méthode communément utilisée dans les laboratoires de tests. Nous avons utilisé un microduremètre de type (**SHIMADZU**, *figure. III. 5*) dont le pénétrateur est un diamant pyramidal à base carrée comprenant des angles à facettes de **136°**. (*figure. III. 6*). L'avantage de la géométrie de ce pénétrateur est que la loi de la résistance proportionnelle prévaut.

La dureté **VICKERS** est reliée à la moyenne des diagonales de l'empreinte **d**, suivant la relation ;

$$H_v = 18544 \frac{F}{d^2} \quad (\text{III. 4})$$

cette relation est tirée de la relation (III. 3) en remplaçant la surface de l'empreinte **S** par :

$$S = \frac{d^2}{2 \sin(\alpha/2)} \quad (\text{III. 5})$$

Où **d** : La diagonale de l'empreinte en **μm**

α : Angle au sommet du pénétrateur **α=136°**.

Cette technique permet de comparer facilement et rapidement les propriétés mécaniques de différents états métallurgiques (trempe et/ou revenu ...), en terme de dureté **VICKERS**. Elle est donc particulièrement adaptée à notre étude et a permis de déterminer les cinétiques de recristallisation et de précipitation de notre alliage.

Pour effectuer ces mesures, les échantillons doivent être polis au papier abrasif puis avec une pâte diamantée $1\ \mu\text{m}$. Une masse de **50g** a été choisie pour maximiser les écarts de tailles d'empreintes, entre différents états.

Pour les échantillons laminés, les mesures ont été systématiquement effectuées dans le plan de laminage, **L-T_L**. Chaque point reporté sur la courbe est la moyenne d'un minimum de cinq essais de dureté. La déviation standard reste toujours de l'ordre de **3 Hv**. Le test s'est effectué pendant une durée de **20** secondes.



Figure. III. 5 : Photo du microduremètre type (SHIMADZU) utilisé

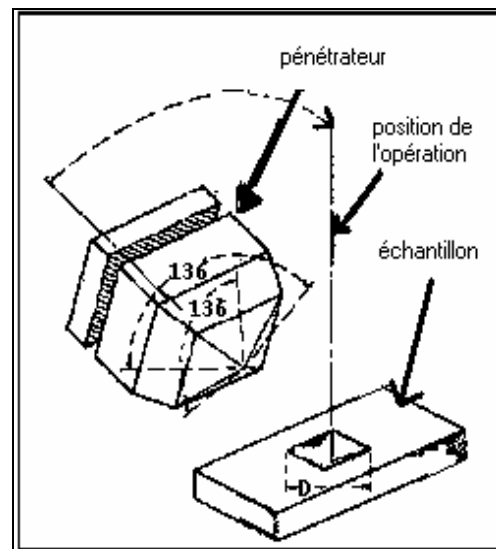


Figure. III. 6 : Représentation schématique du pénétrateur et de l'empreinte

Microscopie optique et mesure de la taille des grains

La métallographie par microscope optique de type (ZEISS IM 35) (figure. III. 7), a permis d'appréhender la morphologie des grains (forme et taille).

L'attaque chimique consiste à révéler la morphologie des grains grâce à l'utilisation d'une solution composée de (5 % HF, 8 % HCL, 12 % HNO₃, 75 % eau (pourcentage en volume)). Pour relier le grossissement utilisé du microscope avec les dimensions réelles de la microstructure, une règle micrographique transparente (figure. III. 8) est placée sur la facette de l'échantillon.

La méthode adoptée pour la mesure de la taille moyenne des grains est celle d'interception par une ligne (ou méthode de Hein). Elle consiste de tracer une ligne au hasard sur une photo métallographique (*figure. III. 9*) ou directement sur dispositif (microscope) et de compter le nombre d'intersections de la ligne avec les joints de grains. La taille moyenne des grains sera donc le rapport de la longueur de la ligne sur le nombre d'intersections.



Figure. III. 7 : Microscope optique de type (ZEISS IM 35) utilisé

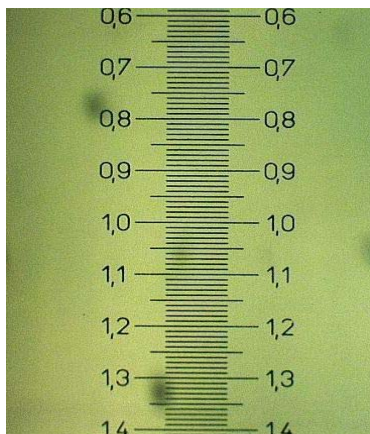


Figure. III. 8 : Réglette micrographique utilisée

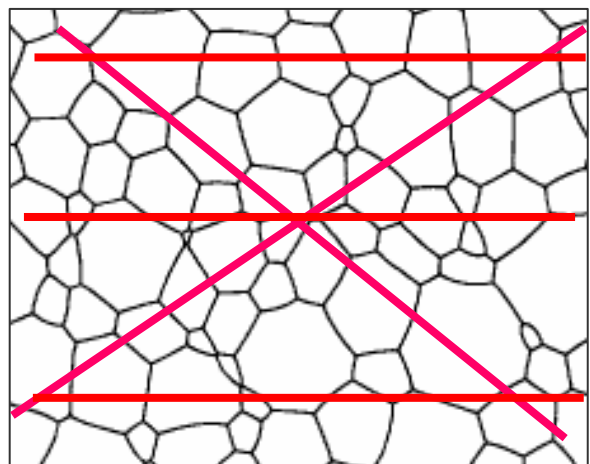


Figure. III. 9 : Représentations schématique de la méthode des lignes interceptées

IV. Résultats et interprétations

IV. 1 Microstructures des échantillons avant et après homogénéisation

Rappelons que l'échantillon élaboré est refroidi lentement jusqu'à l'ambiante. La microstructure révélée par microscope optique (*figure. IV. 1*) montre une structure brute de coulée ou une structure dendritique, les zones foncées (noir) sont les dernières à se solidifier. Cette structure résulte de l'écart aux conditions d'équilibre thermodynamiques conditionné par le processus de refroidissement adopté [3, 7, 8].

Les dendrites peuvent être éliminées par des traitements thermiques (homogénéisation) ou thermomécaniques. La figure. IV. 2, donne la micrographie du même échantillon qui a subi un traitement d'homogénéisation à 540°C pendant 12 heures, le changement d'une structure dendritique en une structure granulaire est assuré par la diffusion atomique[4,5,7,8].



Figure.IV. 1 : Micrographie d'un échantillon après élaboration, subissant un refroidissement lent jusqu'à l'ambiante (structure dendritique)

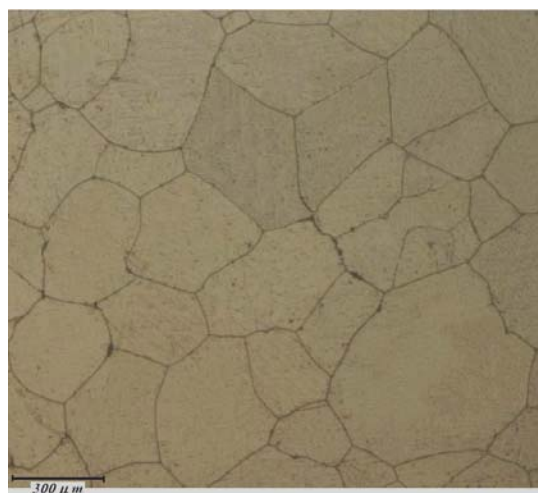


Figure. IV. 2 : Micrographie de l'échantillon homogénéisé à 540°C pendant 12 heures (structure granulaire monphasée)

IV. 2 Caractérisation des échantillons par diffraction des rayons -X

Le diffractomètre utilisé de type (**X PERT GRAPHICS & IDENTIFY**) équipé d'une banque de données et de code de calcul, donne automatiquement les raies diffractées avec les plans cristallographiques correspondants (*figures. IV. 3, 4, 5*), leurs rapports d'intensités rapportés à celle de la raie la plus intense (*tableau IV. 1*), la structure et les paramètres cristallographiques des phases présentes.

Les paramètres de maille de l'Aluminium pur et de la solution solide donnés par le dispositif sur la base des données des spectres de diffractions (*figures. IV.3, IV. 4*) sont :

$$a_{Al} = 0,406 \text{ nm}$$

$$a_{Al-Ag} = 0,405 \text{ nm}$$

Ces résultats sont en accord avec le fait que les diamètres atomiques des deux constituants sont voisins et confirme aussi que l'alliage est constitué à partir d'éléments purs.

Les rapports d'intensités des cinq raies de diffraction {(111), (200), (220), (311) et (222)} (*Tableau IV. 1*) de la solution solide **Al-Ag** (*figure. IV.4*) ont des valeurs proches de celles de l'Aluminium pur (*figure. IV. 3*), ce qui permet de dire qu'il y a conservation du réseau cristallin de l'aluminium (matrice) et de l'état désordonné de la solution solide [43].

Le spectre de la *figure. IV. 5*, donne la caractérisation d'un échantillon qui a subi un traitement de revenu à 200°C pendant une durée de **20 heures** après mise en solution et trempe. Ce traitement, selon les courbes isothermes de dureté (*figure. IV. 6*) permet la précipitation totale de la phase durcissante γ' au sein de la matrice.

Les trois premières raies de la phase γ' , sont présentes, la structure cristallographique ainsi que les paramètres de maille sont donnés directement par le dispositif.

γ' est d'une structure hexagonale compacte **H.C** avec **a = 0,285 nm**, **c = 0,459 nm** comme paramètres qui sont bien comparables à ceux trouvés dans la littérature [46, 54, 55].

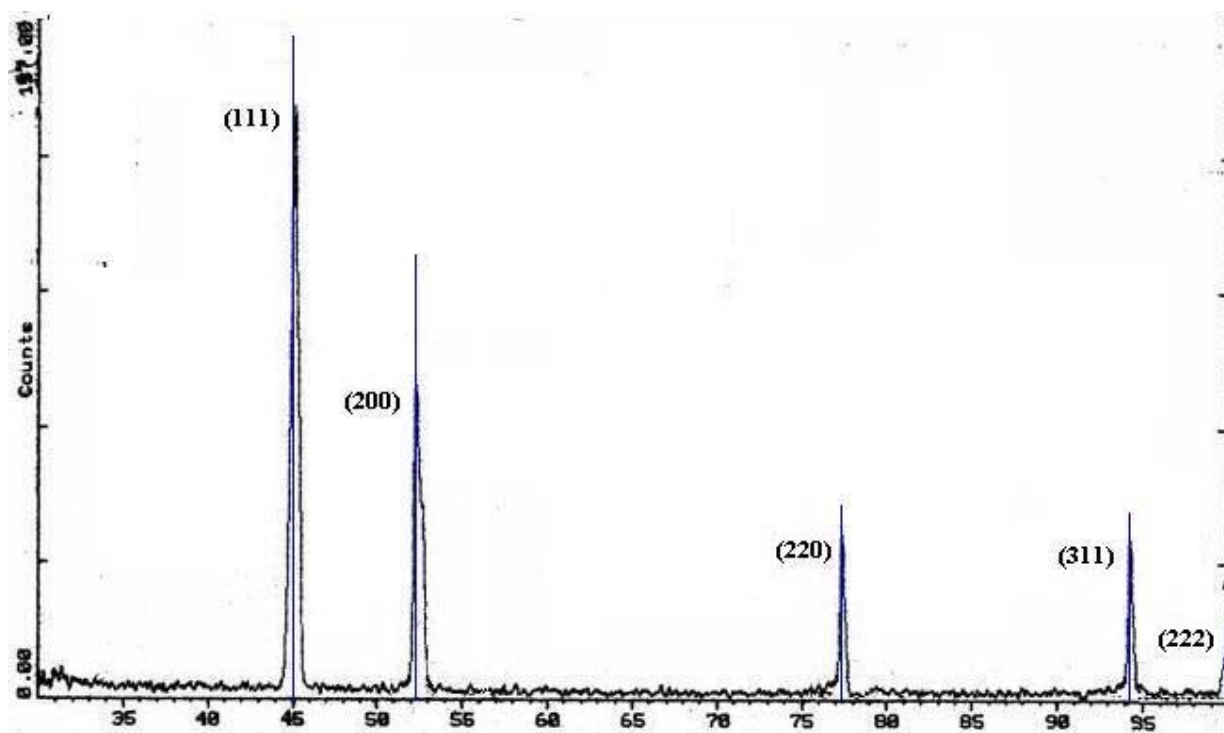


Figure. IV. 3 : Spectre de diffraction de l'Aluminium pur

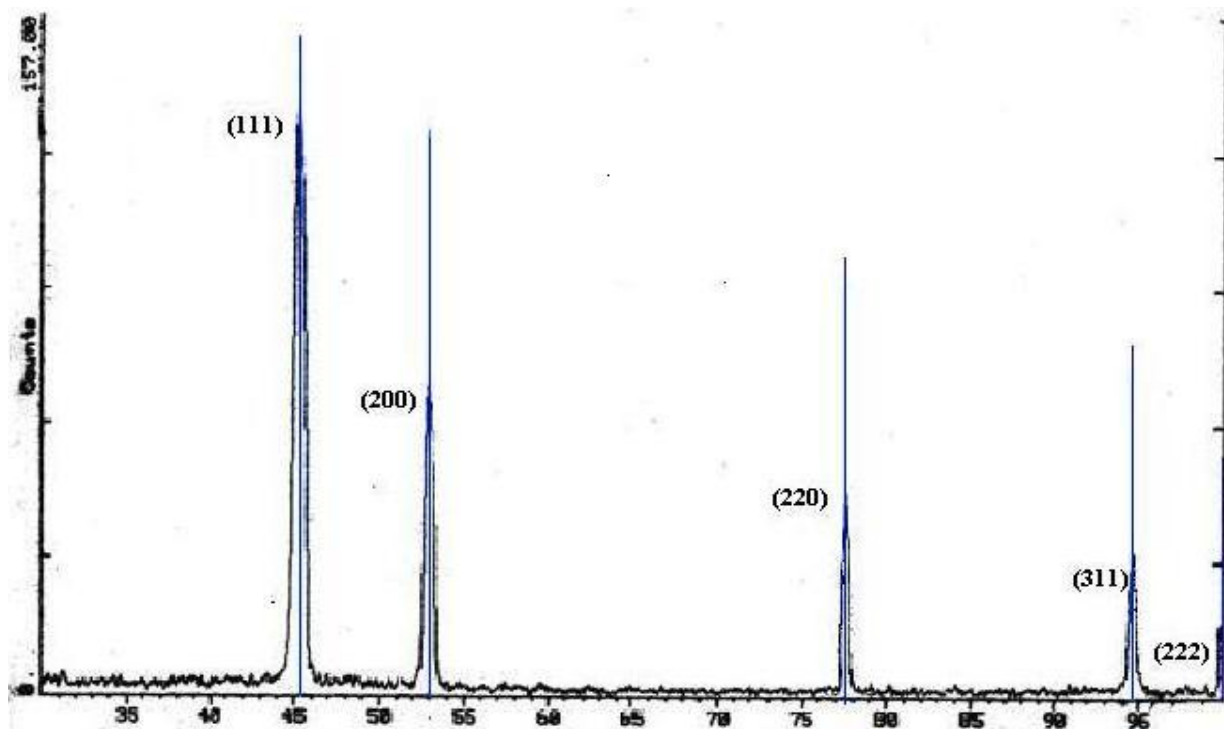


Figure. IV. 4 : Spectre de diffraction de la solution solide Al –20%Ag en masse homogénéisée à 540°C

Plans (hkl)	Aluminium Pur		Al - 20 % Ag en poids	
	θ_B	$(I_{hkl} / I_{111}) \times 100$	θ_B	$(I_{hkl} / I_{111}) \times 100$
(111)	22.5	100	22.7	100
(200)	26.1	51	26.5	49
(220)	38.6	28	38.8	29
(311)	47.1	25	47.4	24
(222)	49.9	8	50	7

Tableau. IV. 1 : Représente les positions des raies diffractées et les plans correspondants avec les rapports d'intensités de l'Aluminium pur et de la solution solide Al-20% Ag en masse

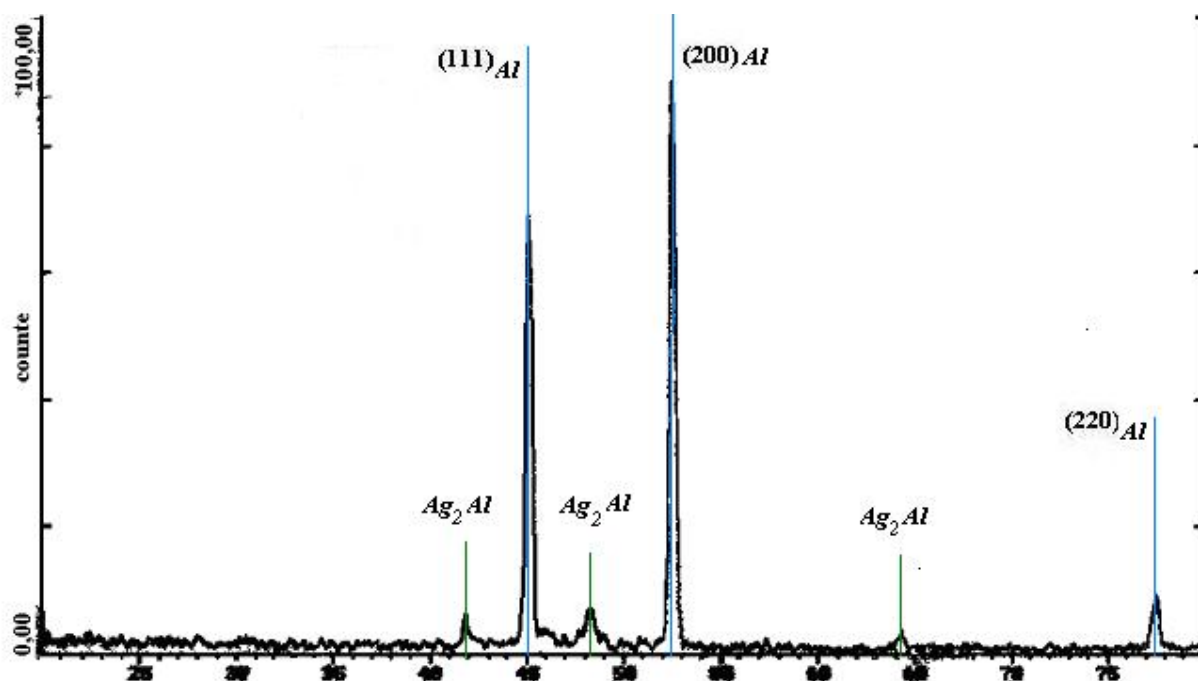


Figure III. 5 : Spectre de diffraction de l'alliages traité à 200°C pendant 20 heures (apparition de la phase métastable γ')

IV. 3 Courbes isothermes et isochrones de dureté

Les mesures de microdureté ont été faites juste après la trempe des traitements de revenus sur des échantillons préalablement homogénéisés à 540°C et trempés

IV. 3. 1 Courbes isothermes de dureté

A partir des courbes isothermes de dureté (*figure.IV.6,(a) et (b)*), on peut observer et conclure : A 100°C, l'augmentation de la dureté est due à la formation et à la croissance des zones **GP** [22, 23, 25, 46, 53].

Au maximum de formation des zones **GP** la dureté atteint une valeur constante, la faible cinétique de croissance des zones **GP** est expliquée par l'insuffisance de l'énergie thermique. En effet, toute transformation par germination et croissance est régie par diffusion [5, 19-21]. A 100°C, cette transformation est lente.

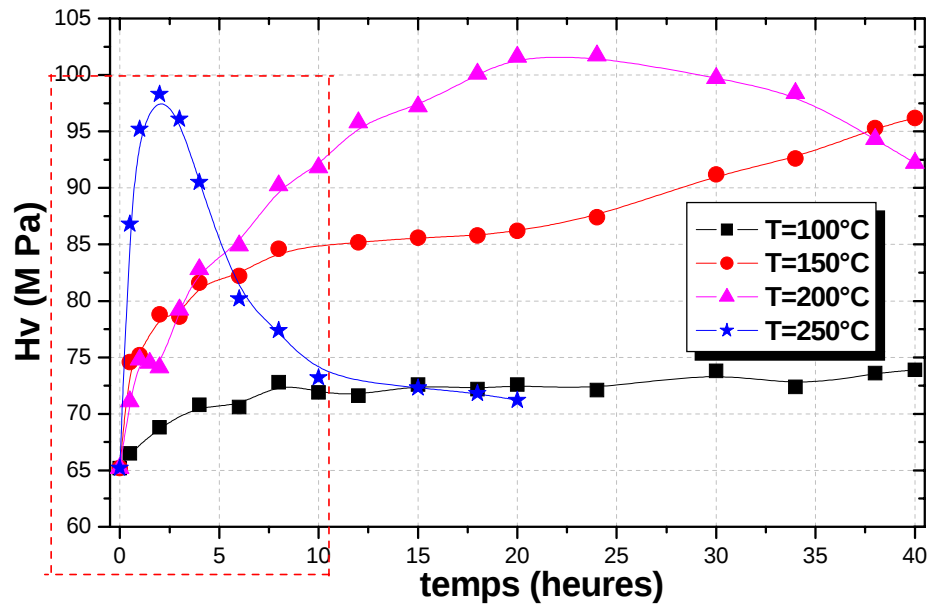
A 150°C, la courbe a pratiquement la même allure qu'à 100°C , à ceci près la cinétique de formation des zones **GP** est plus rapide et le maximum de leur formation est atteint pour **t=7 heures** représenté par le palier qui s'étale de **t = 7 heures** jusqu'à **t =19 heures** [46, 53].

A partir de **19 heures** de maintien, l'augmentation à nouveau de la dureté est due à l'apparition d'une nouvelle phase, les zones **GP** préalablement formées se dissolvent pour alimenter en atomes d'argent les germes de précipités métastables γ' cohérents avec la matrice [54 - 56].

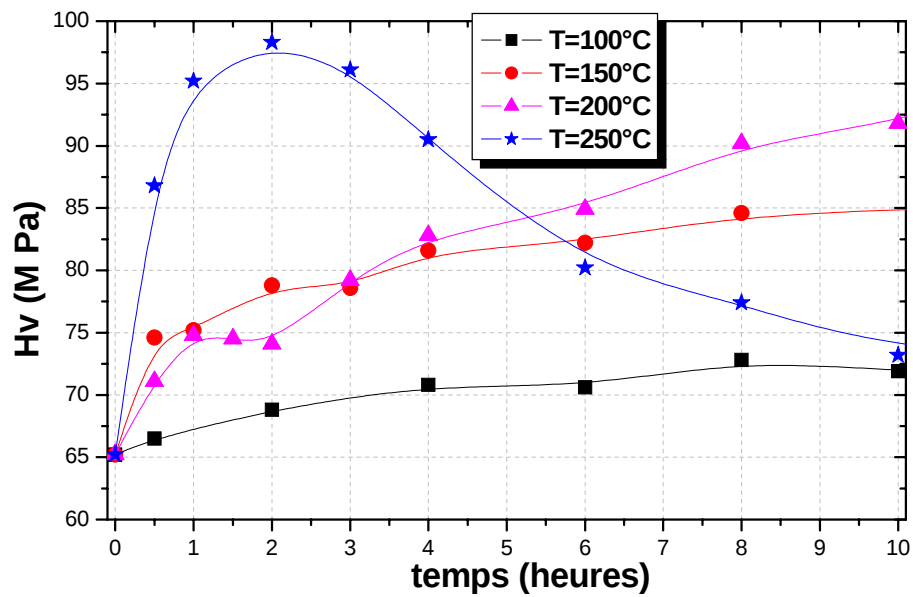
A 200°C, on observe le même phénomène qu'à 150°C, mais avec une cinétique de formation des zones **GP** beaucoup plus importante, le palier caractérisant le maximum de leur formation s'étale seulement de **t = 1 heure à t = 2 heures**. Par ailleurs le maximum de dureté indiquant la formation totale de la phase durcissante métastable γ' [54 - 56], est atteint **t = 20 heures**.

A partir de **t =26 heures**, la diminution de la dureté est due à la dissolution de la phase γ' , qui va servir à alimenter en atomes d'argent la phase d'équilibre γ incohérente avec la matrice qui est responsable de l'adoucissement de l'alliage [47- 49].

A 250°C, on peut voir directement la précipitation de la phase métastable γ' jusqu'au maximum de dureté à **t = 2 heures**. En effet, à 250 °C qui est une température relativement élevée, la germination de la phases métastable γ' est favorisée, sa précipitation diminuant l'énergie libre du système [19 - 21]. Après le pic de dureté le matériau subit un adoucissement qui est dû à la précipitation de la phase d'équilibre γ avec minimisation de l'énergie libre du système [43, 47 - 49].



(a)



(b)

Figure. IV. 6 : (a) ; Courbes isothermes de dureté .

(b) ; Agrandissement de la partie des courbes à l'intérieur du rectangle de la figure. IV. 6. (a).

Notons que l'élévation de la température favorise la diffusion des atomes d'argent et accélère la germination et la croissance des précipités [5, 19, 24, 43, 44].

IV. 3. 2 Courbes isochrones de dureté

De la figure. IV. 7, donnant les courbes isochrones de dureté, on peut déduire que :

L'augmentation de la dureté à basses températures jusqu'à 160°C , indique la formation et la croissance des zones GP [22, 23, 46, 53]. Au-delà de 160°C on observe une faible diminution de la dureté indiquant la réversion des zones GP, les zones GP se dissolvent pour alimenter en atomes d'argent les germes du précipité métastable γ' [46, 54 - 56]. A partir de 200°C la croissance des précipités de la phase γ' durcit encore l'alliage jusqu'à un maximum au delà duquel on observe un adoucissement due à la précipitation de la phase d'équilibre γ [47- 49].

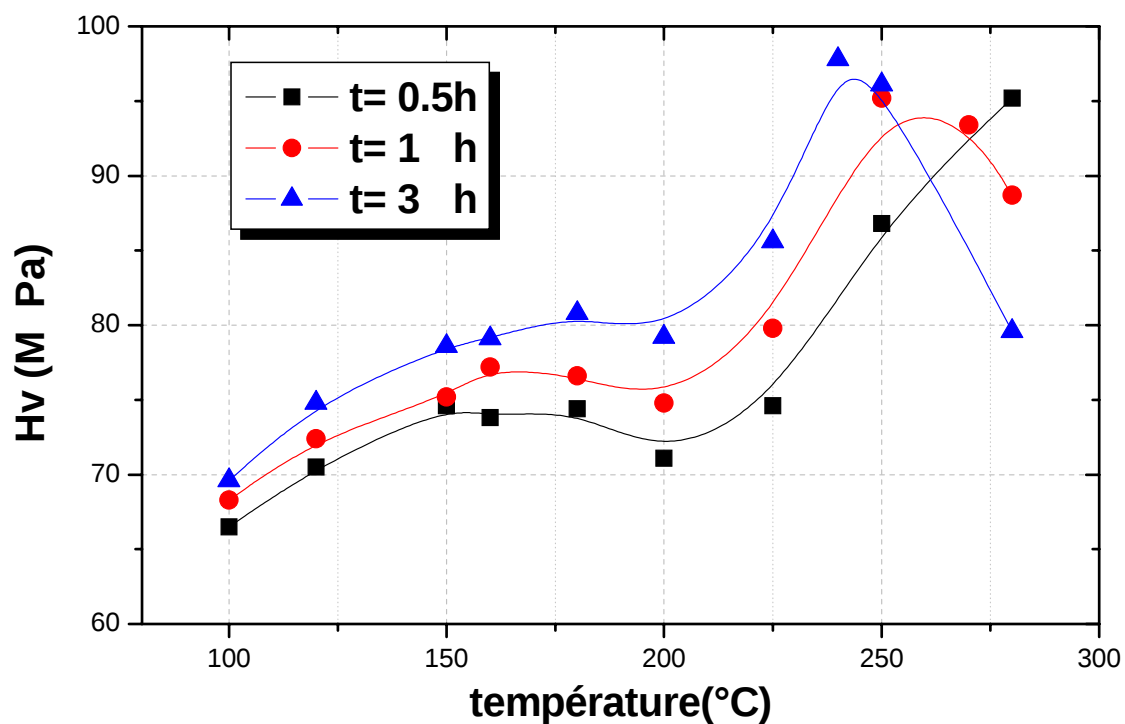


Figure .IV. 7 : Courbes isochrones de dureté

La déduction faite des courbes isothermes et isochrones (*figures. IV. 6. (a) et (b), IV. 7*) est :

L'augmentation initiale rapide de la microdureté est expliquée par la pré-précipitation et formation des zones **GP** formées d'amas riches en atomes de soluté [26, 27, 43, 44]. Les zones **GP** précipitent grâce aux lacunes obtenues à la trempe [25, 44, 47, 48], et le durcissement optimal est attribué à la précipitation de la phase métastable γ' [54 - 56].

En effet, la capacité de gêner le mouvement des dislocations par les précipités (zones **GP** et γ') est assurée par les mécanismes de cisaillement et de contournement [16-19].

La durée du maintien à la température de revenu et l'élévation de celle-ci, favorisent la précipitation et le durcissement de l'alliage.

IV. 4 Traitements mécaniques

La figure. IV. 8 donne l'évolution de la microdureté en fonction du taux de laminage. Rappelons que la déformation plastique par laminage est effectuée à froid sur des échantillons de l'alliage monophasé (solution solide sursaturée), donc il n'y a pas d'interaction entre la déformation et la précipitation.

La microdureté est d'autant plus importante que le taux de laminage est élevé ; elle passe d'environ **65 Hv à 120 Hv** pour un taux de laminage de **50 %**.

L'augmentation de la dureté est essentiellement due à l'écrouissage [29 - 33]. En effet, une structure écrouie est caractérisée par :

- une forte déformation orientée des grains (*figures.III. 9. a et b*) et même disparition des joints de grains (*figure. IV. 9. c*) pour des taux élevés de laminage, ce qui entraîne une désorientation des grains les uns par rapport aux autres et les dislocations auront de plus en plus des difficultés à franchir les interfaces (joints et sous joints de grains) [30,33,34].
- la présence d'une très forte densité de défauts en particulier les dislocations. La multiplication rapide de ces dernières, dès le début de la déformation et leur accumulation gênent leurs mouvements. Les dislocations seront elles-mêmes des obstacles à leur mouvement [29 - 32].

Les propriétés mécaniques sont d'autant plus importantes que ces caractéristiques sont plus élevées ou que la déformation est plus importante [7, 8, 30].

Notons que l'écrouissage fait augmenter les propriétés mécaniques mais fait diminuer la ductilité (fragilisation).

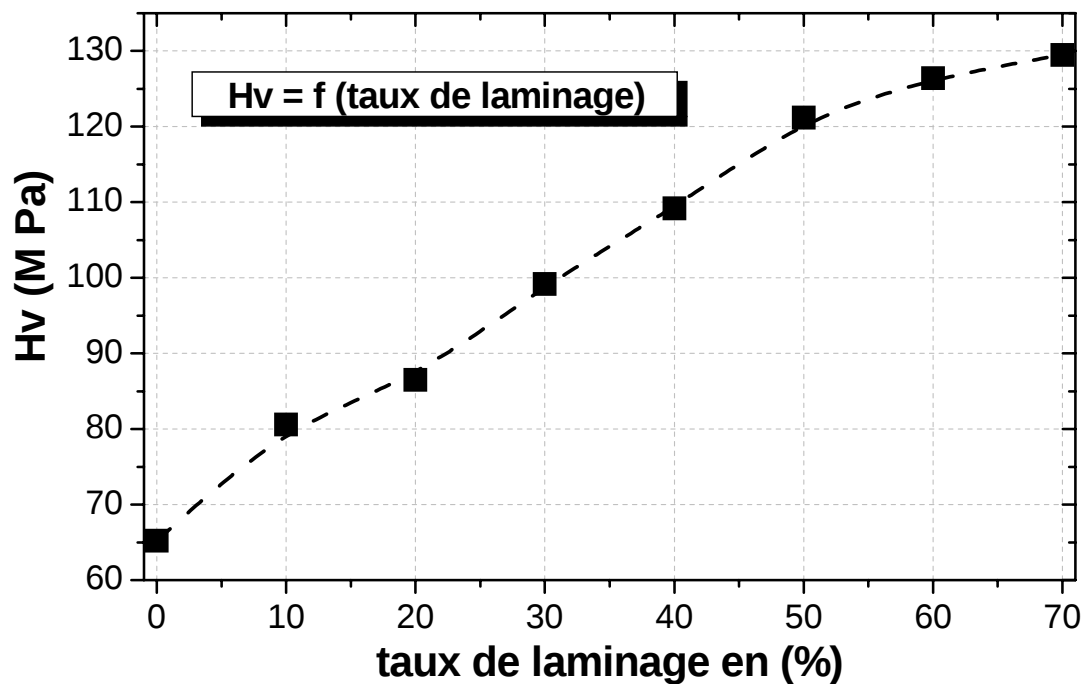
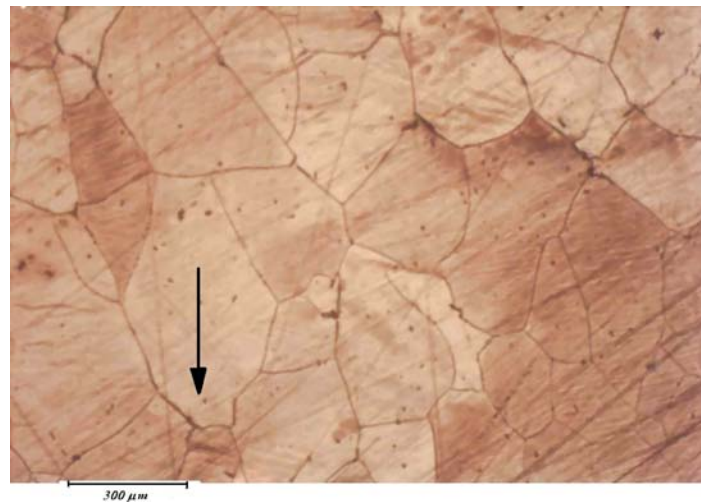
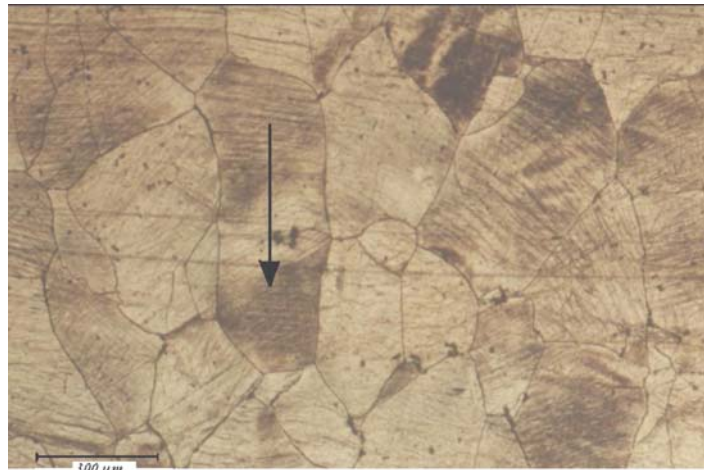


Figure.IV. 8 : Variation de H_v en fonction du taux de laminage (laminage à froid)

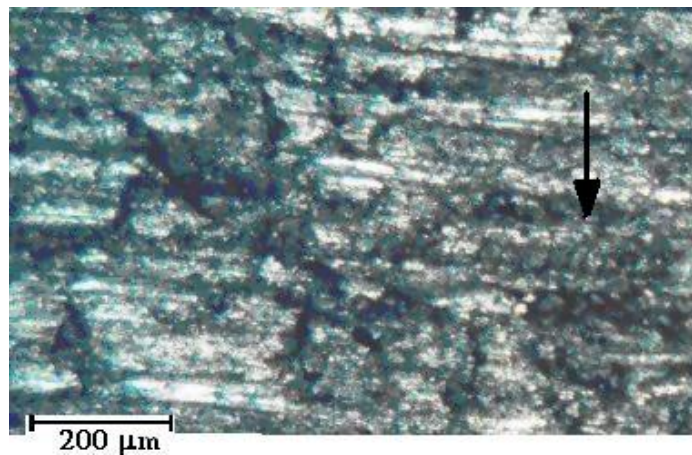
Les figures. IV. 9. (a) et (b), montrent la microstructure des échantillons homogénéisés subissant une déformation plastique par laminage pour des taux de laminage de **10** et **20** %. On observe une texture morphologique des grains allongés suivant la direction de laminage (indiquée par la flèche). Par contre, la figure. IV. 9. (c), représente la microstructure du même échantillon, mais avec un taux de laminage de **60** %. On ne peut distinguer ni les grains ni leurs frontières (joints de grains), la disparition des joints de grains indique l'état écroui du matériau et le taux élevé du laminage [33,34].



(a)



(b)



(c)

Figure. IV. 9 : Série de micrographies prises sur le plan de laminage des échantillons homogénéisés à 540°C et laminés pour des taux de laminage ; (a) 10%, (b) 20%, (c) 60% la flèche indique la direction du laminage

IV. 5 Effet de l'écroissage (faible taux de laminage, CW = 10 et 20 %) sur la précipitation

A partir des courbes isothermes de dureté des échantillons déformés et de celles de l'échantillon non déformés (*figures. IV. 10 ,11.(a) et (b)*), nous pouvons déduire :

- La dureté est autant plus élevée que le taux de laminage est élevé.
- A **150°C**, et à partir d'environ **t = 8 heures**, les courbes se ressemblent et suivent presque la même cinétique (*figure. IV. 10*), légèrement accélérée pour l'échantillon laminé comparé à celui non laminé. La précipitation de la phase métastable γ' cohérente avec la matrice, commence à apparaître à partir de **16 heures** de revenu, pour l'échantillon laminé à **10%** et à partir de **14 heures** approximativement pour l'échantillon laminé à **20%**. Alors que pour l'échantillon non laminé elle ne précipite qu'à partir de **19 heures** de revenu.

Nous observons aussi qu'au début de la décomposition (**t < 8 heures**), l'échantillon déformé présente une lente cinétique de formation et croissance des zones **GP**.

-A **200°C**, pour les échantillons laminés, il y a formation et croissance de la phase métastable γ' sans formation préalable de zones **GP**, avec une cinétique légèrement accélérée comparée à l'échantillon non laminé. Le maximum de durcissement des trois échantillons est atteint approximativement pour **t = 20 heures**. La dissolution de γ' (ou la précipitation de γ) suit la même cinétique pour les échantillons déformés, et légèrement accélérée comparée à celle de l'échantillon non déformé.

Dans l'échantillon déformé ; l'augmentation de la densité des dislocations lors d'une déformation plastique a comme conséquences :

- Une amélioration des propriétés mécaniques, traduite par l'augmentation de la dureté. En effet, l'interaction des dislocations entre elles (forêt de dislocations) ralentit leur mouvement. Les dislocations elles-mêmes vont être des obstacles à leur mouvement [29-32].
- Une augmentation de la densité des amas riches en soluté. La diffusion hétérogène du soluté vers les amas le long d'une dislocation (court circuit de diffusion) est très favorisée et accélérée dans un tel matériau [6, 8].

Le faible taux de croissance des zones **GP** sur les courbes de dureté (*figure. IV. 10*) des échantillons déformés (**10, 20 %**) suggère de dire que la germination des ces amas a été accomplie durant la déformation. En effet, la densité élevée des dislocations avant le traitement de revenu, les favorise comme sites de germination. Par ailleurs la précipitation des zones **GP**

nécessite une faible énergie d'activation [15]. Ainsi l'énergie mécanique fournie lors de la déformation est dissipée sous forme de chaleur [7, 8] et favorise la germination des ces zones. Le taux de diffusion (diffusion hétérogène) est accéléré par la présence des dislocations qui facilitent l'écoulement du soluté [6, 8].

L'énergie libre du système diminue avec l'apparition des phases secondaires au sein de la matrice [8, 19 - 21]. Ainsi un traitement de revenu à 200°C (figure. IV. 11 (a) et (b)) avec la présence des sites de germination, favorise la précipitation de la phase métastable γ' qui est thermodynamiquement plus stable que les zones GP. Donc la déformation plastique fournit les conditions favorables pour cette réaction, par l'augmentation du taux de diffusion et du nombre des sites de germination [6, 21, 56].

On peut affirmer que l'application d'une déformation avant le traitement de revenu augmente la réaction dans l'état solide par précipitation tout en accélérant la réaction dans les échantillons déformés subissant le même traitement [3, 6, 56].

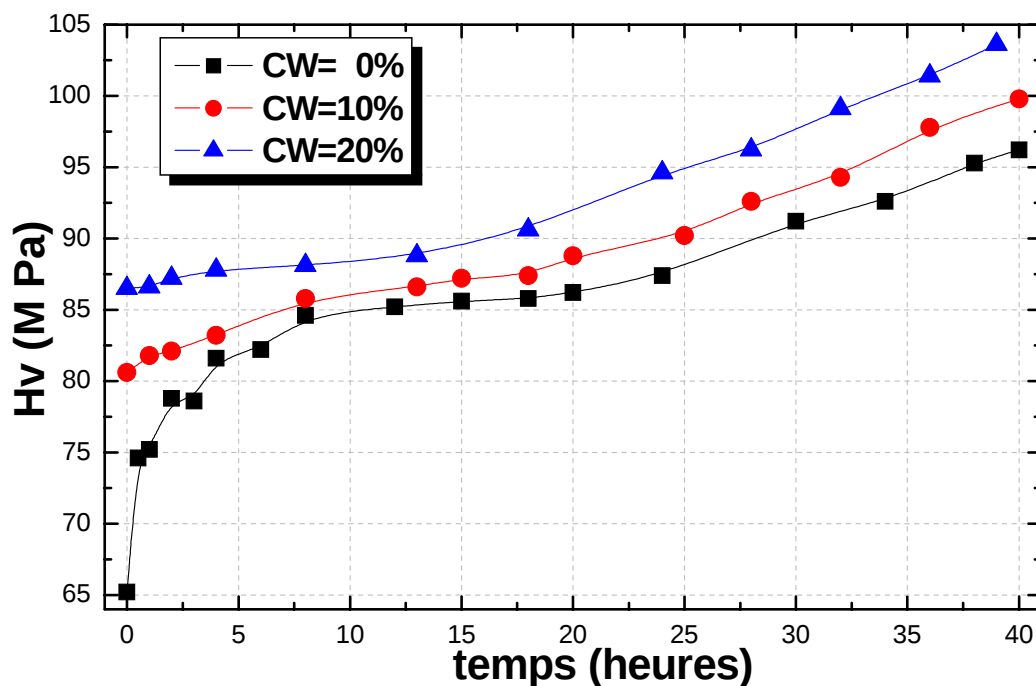
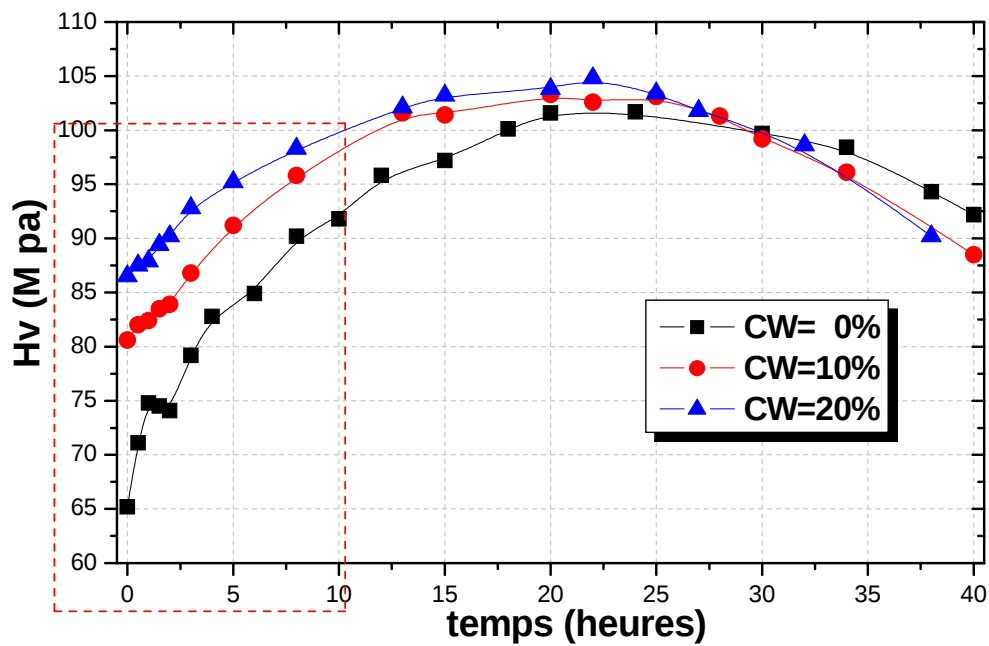
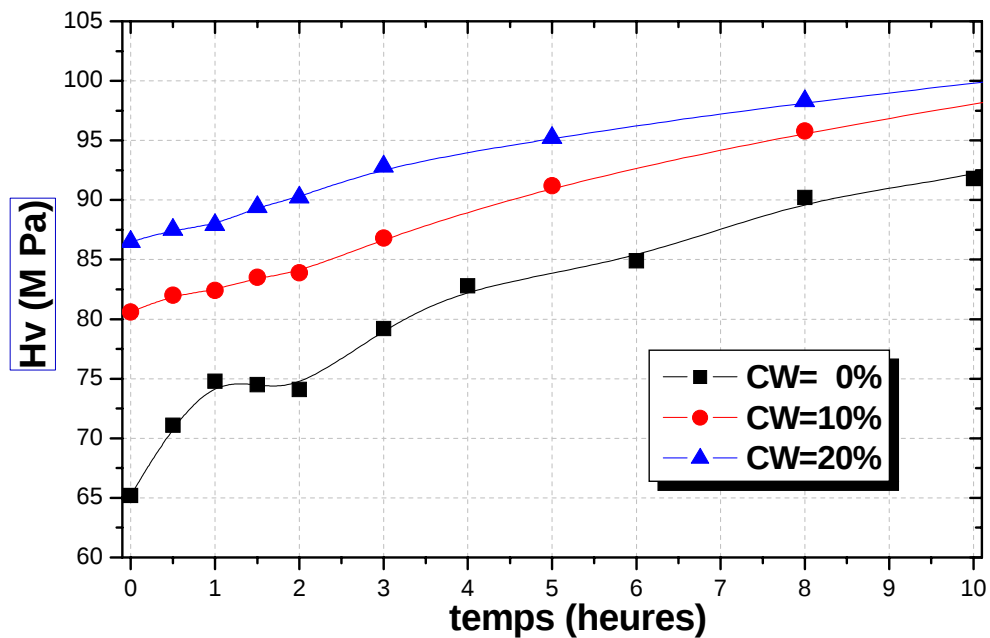


Figure. IV 10 : Comparaison entre les courbes isothermes à $T = 150^{\circ}\text{C}$, pour différents taux de laminage.



(a)



(b)

Figure. IV 11 : (a) ; Comparaison entre les courbes isothermes à $T = 200\text{ }^{\circ}\text{C}$, pour différents taux de laminage.

(b); Agrandissement de la partie des courbes à l'intérieur du rectangle de la figure. IV 11 .(a)

IV. 6 Courbes de recristallisation

Les courbes des figures. IV : 14, 15 et 16, représentent l'évolution de la microdureté en fonction du temps pour différentes températures d'un échantillon monophasé laminé avec un taux de **60%**. Elles ont l'allure classique des courbes de recristallisation. Sur chacune des courbes on distingue trois zones :

IV. 6. 1 Zone de restauration :

Cette zone est réduite au fur et à mesure que la température augmente; elle s'étale sur une période, de **0 à 2.1 heures** pour $T = 300^{\circ}\text{C}$, de **0 à 0,9 heures** pour $T = 350^{\circ}\text{C}$ et de **0 à 0,3 heures** pour $T = 400^{\circ}\text{C}$ (figures. IV : 14, 15 et 16).

Ce traitement permet de restaurer en partie les propriétés physiques sans modification de la microstructure apparente ou décelable par microscopie optique, et sert à l'annihilation partielle de certains défauts introduits lors de la déformation en particulier les dislocations [7, 8, 36, 37]. Ces dernières se réarrangent sous forme de parois de dislocation limitant des blocs cristallins faiblement désorientés (phénomène de polygonisation) [36, 37]. Ces modifications ne sont détectables qu'en microscopie électronique.

IV. 6. 2 Zones de recristallisation :

Cette zone est caractérisée par une chute de la microdureté, et s'étale sur une gamme de temps allant de **2,1 à 4,6 heures** pour $T = 300^{\circ}\text{C}$ (figure IV. 12), et de **0,9 à 2,2 heures** pour $T = 350^{\circ}\text{C}$ (figure. IV. 13), et de **0,3 à 0,98 heures** pour $T = 400^{\circ}\text{C}$ (figure IV. 14).

Cette diminution de **Hv** est le résultat d'un changement au niveau de la microstructure. En effet, l'état écroui ou restauré d'un matériau est toujours instable du point de vue thermodynamique. Un traitement dans cette zone permet le retour à l'équilibre, en dégageant l'énergie stockée préalablement lors de la déformation pour contribuer à une germination et croissance de nouveaux grains contrôlée par diffusion [7, 8, 35, 39, 41] (figure. IV. 16).

La diminution progressive de **Hv** en fonction du temps, indique que la germination ne se manifeste pas simultanément dans tout le matériau, ce qui confirme qu'elle commence d'abord dans les régions les plus déformées du matériau [35, 39 - 41], cela veut dire que la germination et la croissance des grains se fait en même temps à différents endroits de l'échantillon (la croissance des germes déjà formés se fait avant que d'autres sites de germination apparaissent).

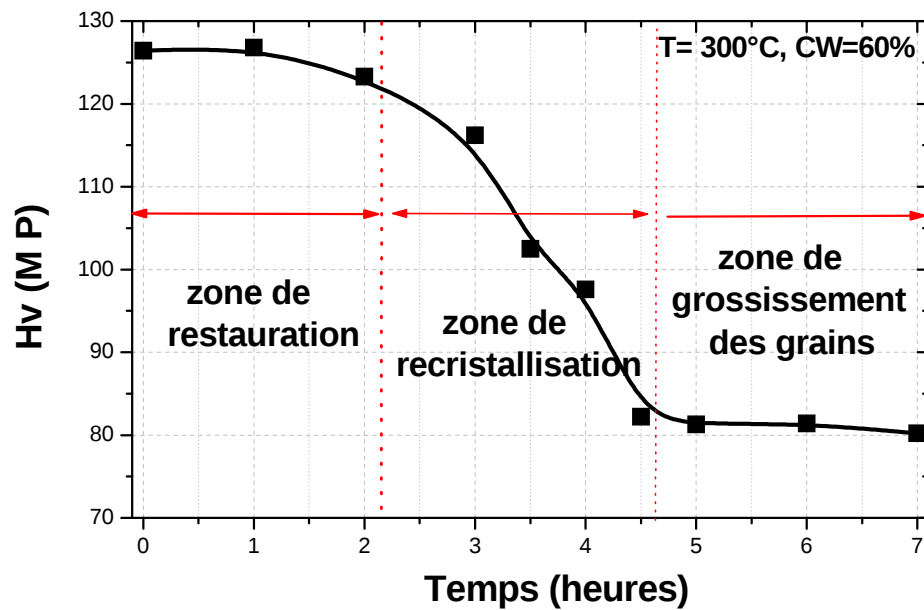


Figure. IV.12 : Courbe de recristallisation représentant l'évolution de la microdureté en fonction du temps pour un traitement de recuit de 300°C et un taux de laminage de 60%

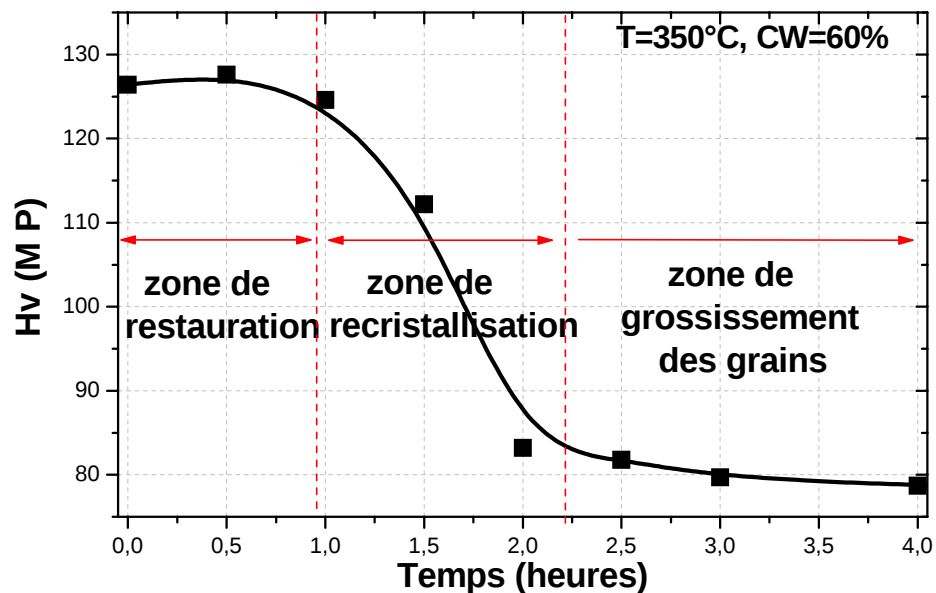


Figure. IV. 13 : Courbe de recristallisation représentant l'évolution de la microdureté en fonction du temps pour un traitement de recuit de 350°C et un taux de laminage de 60%

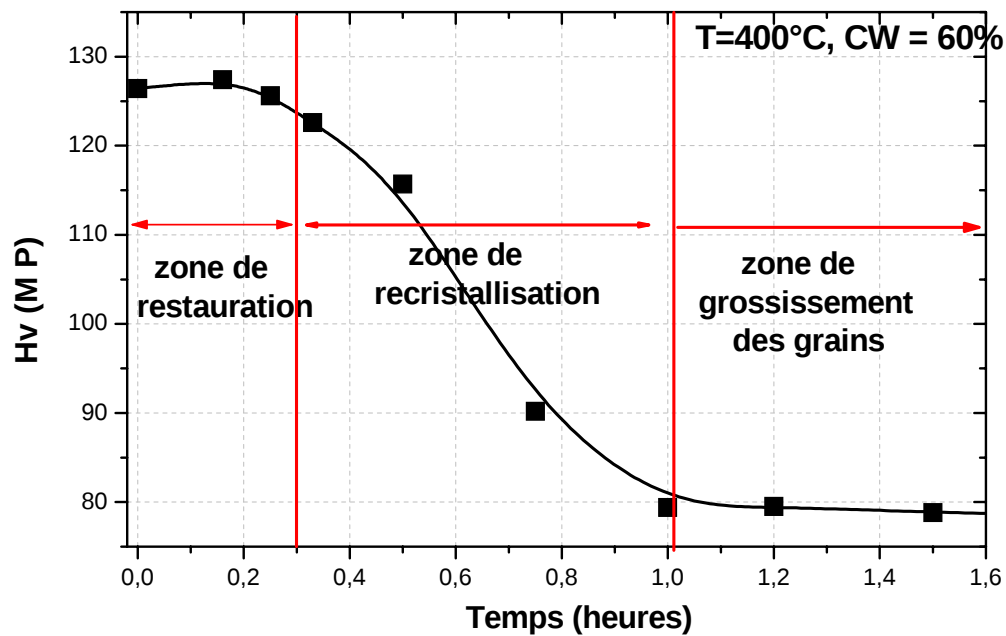


Figure. IV. 14 : Courbe de recristallisation représentant l'évolution de la microdureté en fonction du temps pour un traitement de recuit de 400°C et un taux de laminage de 60%

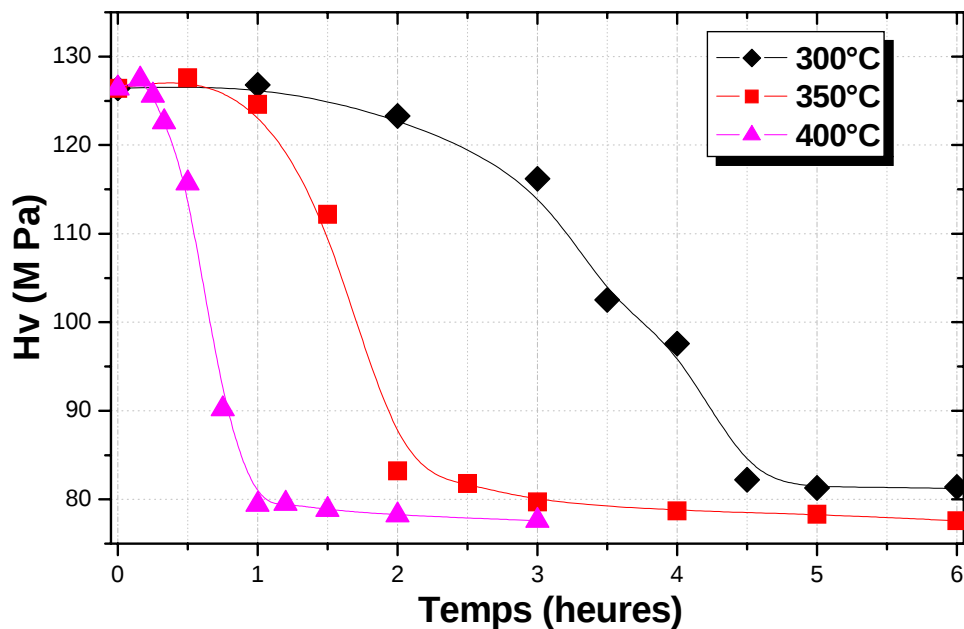


Figure. IV. 15 : Courbes de recristallisation représentant l'évolution de la microdureté en fonction du temps pour différentes températures de recuit et un taux de laminage de 60%

Il est à noter que nous n'avons pas pu suivre la microstructure par microscope optique lors de la recristallisation. Cela est probablement dû à la résolution du microscope ou à l'attaque chimique qui réagit surtout avec les défauts cristallins qui sont présents en grande quantité, avant ou lors de la recristallisation.

IV. 6. 3 Zone de grossissement des grains :

Cette zone est caractérisée par une lente cinétique et une légère stabilité des propriétés mécaniques, elle apparaît après la fin de la recristallisation.

Cependant, les grains recristallisés ont une texture et morphologie résultantes des traitements que le matériau a subi antérieurement [7, 8, 30, 40, 41]. La taille plus au moins fine des grains ainsi que la désorientation de ces derniers, fait en sorte que la microstructure se trouve dans un état thermodynamique métastable. Et les grains auront tendance ainsi à s'orienter vers une configuration stable et à minimiser leur énergie interfaciale (l'énergie du joint de grains) en augmentant leur volume par croissance et coalescence.

Le grossissement des grains, phénomène thermiquement activé et contrôlé par diffusion, il se manifeste à des températures élevées.

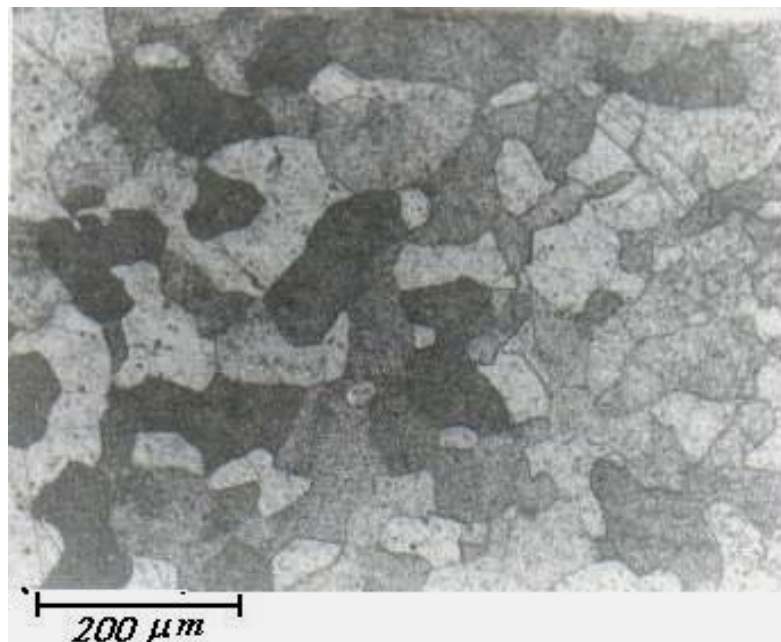
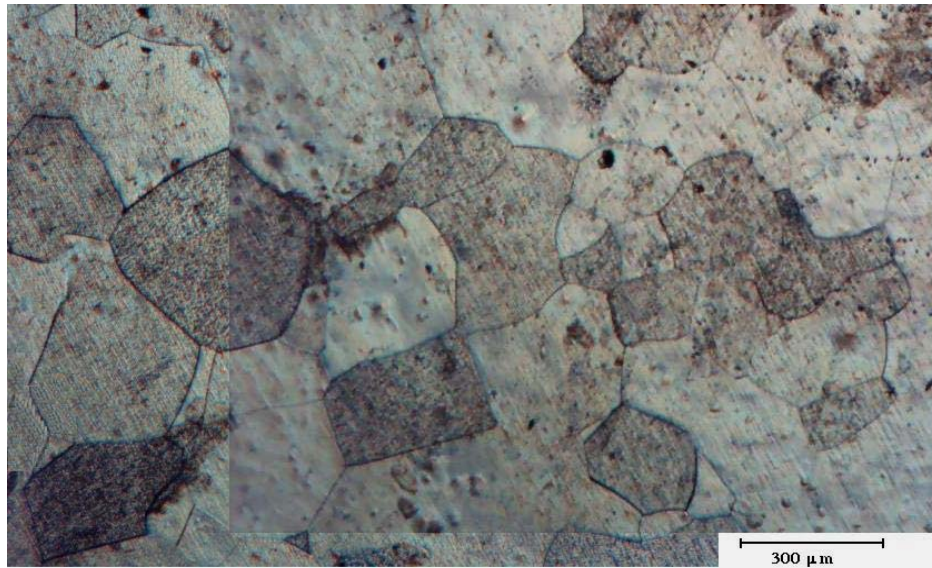


Figure. IV. 16 : Micrographie d'un échantillon laminé à 60 % et recuit à 350 °C pendant 2.5 heures



*Figure. IV. 17 : Micrographie d'un échantillon laminé à 60% et recuit à 350 °C
Pendant 10 heures*

La figure. IV. 16 représente la micrographie d'un échantillon laminé à 60% et recuit à 350°C pendant **2.5 heures**. Ce traitement situé juste après la zone de recristallisation (courbe de la figure. IV. 13), nous a permis de révéler la microstructure présentant une structure des grains recristallisés. Par ailleurs, un traitement prolongé dans la zone de grossissement des grains permet la croissance des cristaux et l'évolution de la microstructure vers un équilibre thermodynamique (figure. III. 17).

III. 6. 4 Détermination de l'énergie d'activation de la recristallisation

Pour mieux voir et comparer les courbes de recristallisation et mettre en évidence l'effet de la température, la figure. IV. 15 rassemble les trois courbes précédentes pour les trois températures (figures. IV. 12 ,13,14). Sur cette figure. (Figure .IV. 15) on peut distinguer l'effet de la température et du temps de maintien sur la cinétique de recristallisation ; réduire la durée de recuit à hautes températures est équivalent à prolonger le recuit à des températures plus basses.

De ces courbes (*figure. IV. 15*) on peut tirer la relation qui existe entre le taux de recristallisation et le temps nécessaire pour cette transformation en traçant le logarithme (**ln**) de temps de recristallisation en fonction de l'inverse de la température de recuit [7,8]

La courbe de la *figure. IV. 18* permet de déterminer expérimentalement l'énergie d'activation de la recristallisation : elle est de l'ordre de **50 KJ/mol**

Notons que cette énergie dépend du degré de l'écroutissage. Elle est d'autant plus importante que le taux de déformation est faible.

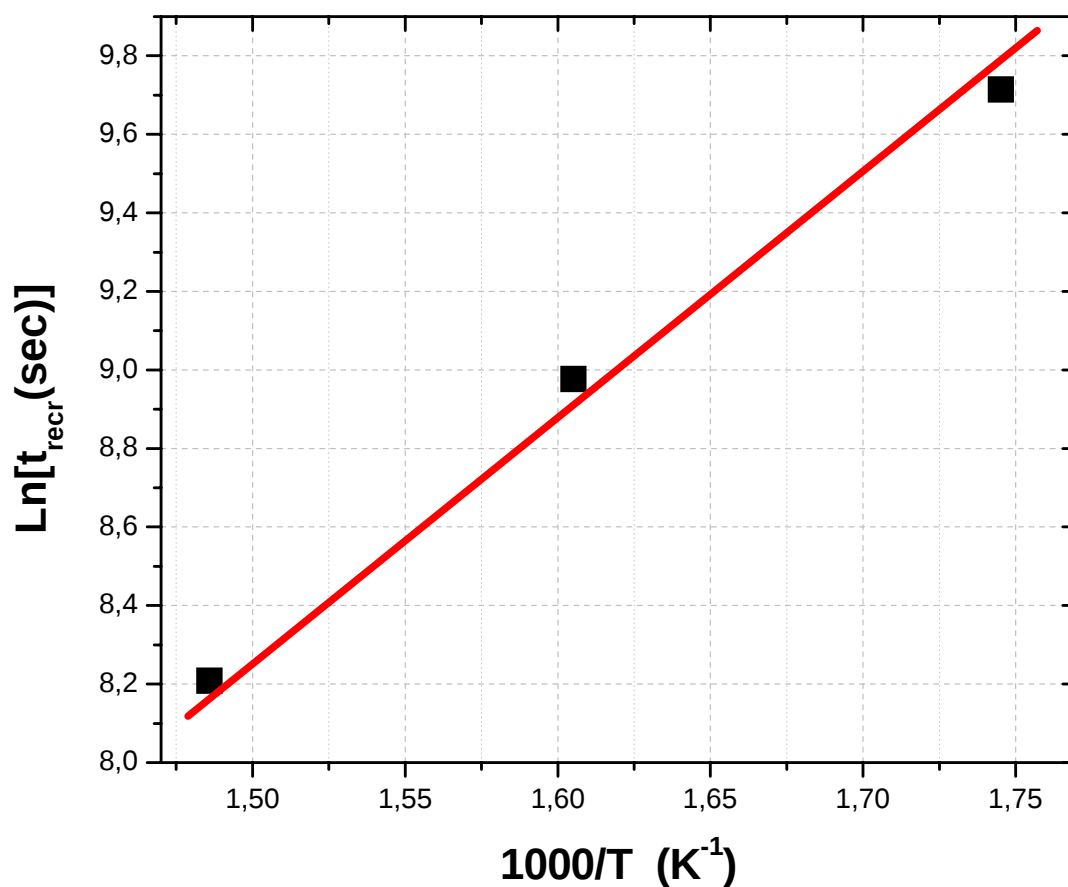


Figure .IV. 18 : A partir des trois courbes de recristallisation on peut tirer l'énergie d'activation de la recristallisation

IV. 7 Effet de la taille des grains et vérification de la loi de Hall-Petch :

Pour voir l'effet de la taille des grains sur les propriétés mécaniques, nous avons procédé au même traitement thermomécanique décrit auparavant, sauf que le traitement de recuit a été effectué à la température d'homogénéisation (**540°C**) dans l'état monophasé α . Cela a pour but d'éviter l'interaction de la précipitation des phases durcissantes ou adoucissantes qui peuvent être générés à des températures plus basses.

Nous n'avons pu suivre la cinétique de recristallisation ni par microscope optique ni par mesure de microdureté, Cela est dû à ce que la recristallisation est achevée rapidement. La figure. IV. 21, donnant la micrographie de la microstructure d'un échantillon recuit à **540°C** pendant **30 minutes**, indique que la recristallisation est achevée pour un temps inférieur à **30 minutes**. La taille plus au moins fine des grains et leur morphologie suggèrent que :

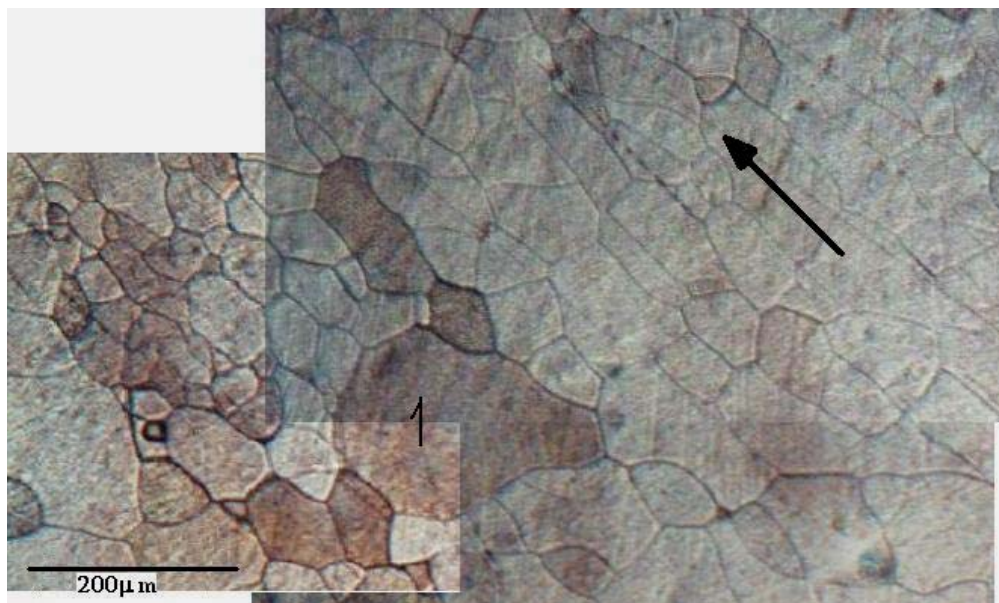


Figure. IV. 19 : métallographie d'un échantillon laminé à 60 % et recuit à 540 °C pendant 30 minutes. (la flèche indique la direction de laminage).

- la recristallisation ne s'est pas manifestée de la même façon en différents endroits du matériau, en comparant la partie à droite de la figure. IV. 19 avec celle de gauche [35, 39 - 41].
- La croissance des grains suit la direction du laminage [29, 40, 41]. Il est bien apparent à droite de la figure.
- La présence d'une croissance anormale des grains (grain 1) indique la présence de tous les phénomènes de croissance [42].

Nous avons suivi l'évolution de la microstructure pour des temps prolongés, jusqu'à ce que les grains atteignent une taille et morphologie comparables avec l'état initial (homogène) (figures. IV. 20, 21). Pendant cette évolution nous avons pu déterminer la taille moyenne des grains et tracer la courbe donnant la variation de la microdureté en fonction de l'inverse de la racine carrée de la taille moyenne des grains (figure. IV. 22) [10, 11]. La loi de Hall-Petch est bien vérifiée pour notre alliage, avec les coefficients H_0 et K , de l'ordre de **52 M Pa** et **215 M Pa . $\mu\text{m}^{1/2}$** respectivement

Par extrapolation de la courbe (figure. IV. 22) on peut atteindre une valeur de H_v de l'ordre de **150 M Pa** pour une taille moyenne des grains de l'ordre de quelques microns.

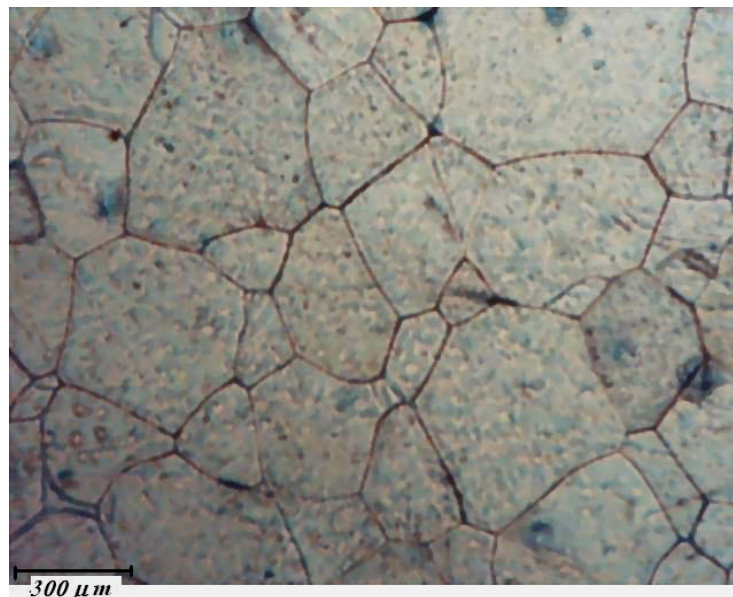


Figure. IV. 20: Micrographie d'un échantillon laminé à 60 % et recuit à 540°C pendant 4 heures

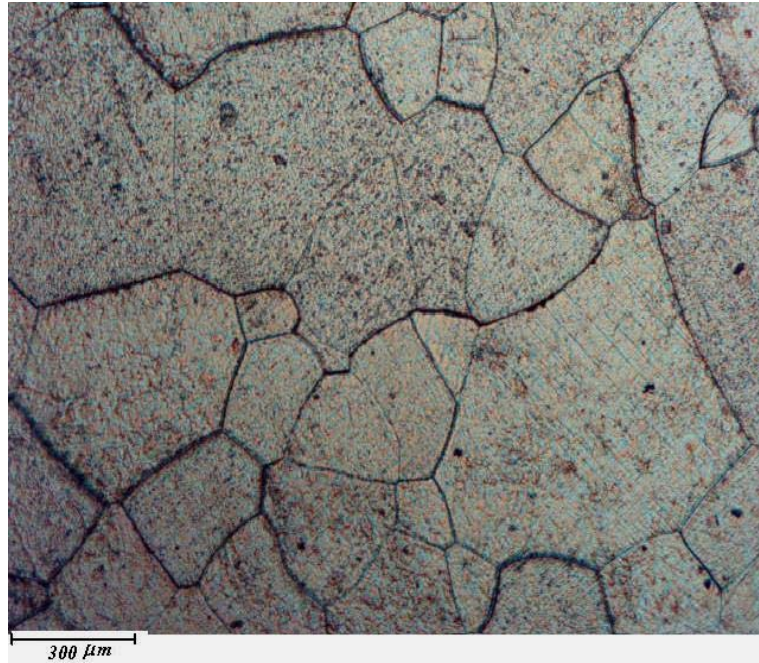


Figure. IV. 21 : Micrographie d'un échantillon laminé à 60 % et recuit à 540 °C pendant 7 heures

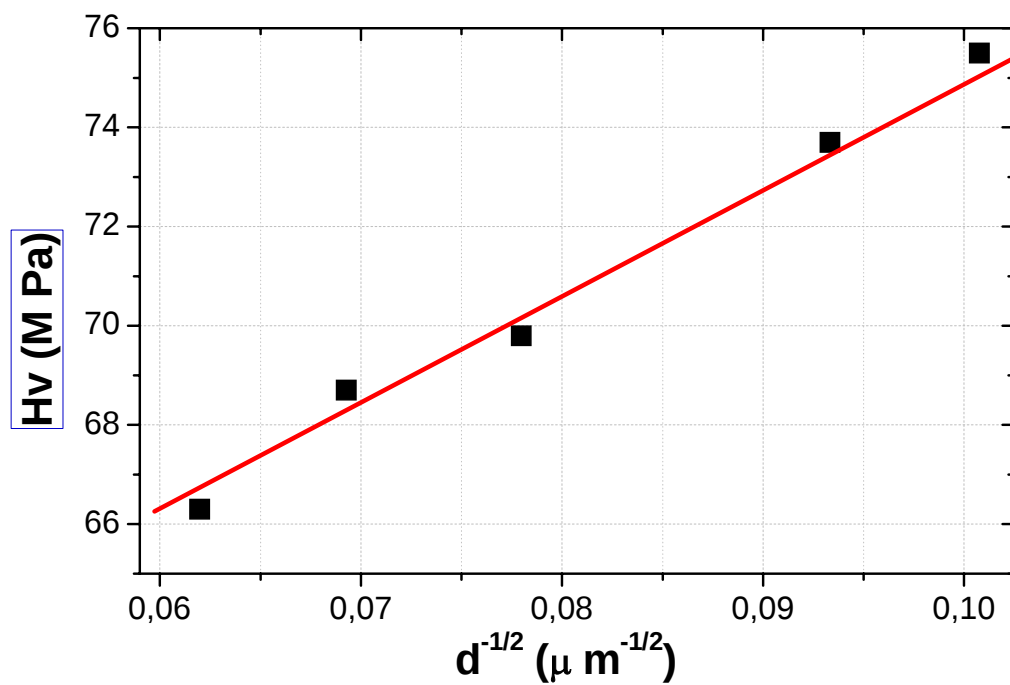


Figure. IV. 22 : Evolution de la microdureté en fonction de $(d)^{-1/2}$

Conclusion et perspective

Nous avons pu caractériser nos échantillons par diffraction des rayons-X. et mettre en évidence la précipitation de la phase γ' .

Les courbes isothermes de microdureté ont mis en évidence la précipitation des zones **GP**, la phase métastable γ' et la phase d'équilibre γ .

Le laminage confère à la solution solide un durcissement d'autant plus élevé que le taux de celui-ci est élevé. De plus, pour des faibles taux de laminage, du fait de la présence d'un grand nombre de sites de germination et des courts-circuits de diffusion dus à la densité élevée de dislocations et d'autres défauts, la déformation plastique joue un rôle important sur la séquence et cinétique de précipitation.

Les mesures de microdureté nous ont permis de suivre la cinétique de recristallisation pour différentes températures et de déterminer, les différentes zones des courbes de recristallisation, ainsi que la température de recristallisation

La métallographie optique et les mesures de microdureté nous ont permis de vérifier la loi de Hall-Petch

Un travail complémentaire et plus approfondi est envisagé pour étudier, l'interaction entre la recristallisation et la précipitation, l'effet de la déformation plastique en présence des précipités et la texture et morphologie des grains et leur relation avec les propriétés physiques (l'anisotropie).

Références

- [1] Hume-Rothery : « *Electrons, atomes, métaux et alliages* » (trad. Français) Dupon. Paris. (1959)
- [2] H. Cottrell: « *An Introduction to Metallurgy* », The Institute of Materials. A116, (1995)
- [3] R.W. K. Honeycombe and H. K. D. H. Bhadeshia, *Steels, «Microstructure & Properties* ». 2nd edition, Arnold, (1995)
- [4] A. Porter & K. E. Easterling, « *Phase Transformations in Metals and Alloys* », 2nd edition, Chapman & Hall, (1992).
- [5] Y. Adda, J. Philibert, J. M. Dupouy, Y. Quere, « *Elément de métallurgie physique* », vol 4 (1990)
- [6] la D. Blavette, E. Cadel, A. Fraczekiewicz and A. Menand. *Science. Dec*, 17, (1999), 2317
- [7] J. Barralis, G. Maeder. « *Précis de métallurgie, élaboration, structures-propriétés et normalisation* » 3eme édition. Nathan B Paris, (1986)
- [8] R. E. Reed-Hill, R. Abbaschian, « *Physical Metallurgy Principles*», PWS-Kent Publishing Company, Boston, (1992)
- [9] M. A. Meyers and E. Ashworth, *Phil. Mag.* A 46-5, (1982), 737
- [10] E.O.Hall, *Proc.phys.Soc.London.* b 64, (1951), 747
- [11] Petch, N. J., *J. Iron Steel Inst. London.* 25, (1953), 174
- [12] D.TABOR, *Academic press* New York. II, (1975)
- [13] Z. Horita, M. Furukawa, M. Nemoto & T. G. Langdon, *Mater. Sci. Tech.* 16, (2000), 1239
- [14] Y. Saito, H. Utsunomiya, N. Tsuji and T. Sakai , *acta. mater.* 47, (1999), 579
- [15] R. P. Nichoson, G. Thomas et J. Nutting , *Acta met* .8, (1963) 172
- [16] M. Karlik and B. Jouffrey . *Phys. III France.* 6, (1996), 825
- [17] www.enseeg.inpg.fr
- [18] P. Guyot, *Phil. Mag.* 24, (1971), 987
- [19] B.Dubost et P.Sain fort . « *Durcissement par précipitation des alliages d'Aluminium* », *Technique l'ingénieur, traité de Métallurgie*, Paris, M240
- [20] P. S. Chen, A. K. Kuruvilla, T. W. Malone et al . *Journal of Materials Engineering & Performance.* 7, (1998), 682.

- [21] L.B. Ber and V.G. Davydov, *Mater. Sci. Forum* 396-402, (2002), 983
- [22] A.Guinier, *Nature*. 142, (1938), 569
- [23] G.D. Preston , *Proc. R. Soc. A* 167, (1938), 526
- [24] T. Ungar, Ph. A. Dubey and G. Kostorz, *Acta metall. Mater.* 38, (1990), 2583
- [25] J.B. Cohen, *Solid. St. Phys.* 39, (1986), 131
- [26] S. P. Ringer* and K. Hono, *Materials Characterization* . 44, (2000), 101
- [27] Y. Nagai, M. Murayama, Z. Tang, T. Nonaka, K. Hono, M. Hasegawa, *Acta. Materialia*. 49 (5), (2001), 913
- [28] M. Frebel, B. Predel and K. Behler. *Materials Science and Engineering*. 22, (1976), 201
- [29] A. E. Romanov, V.I. Vladimirov. « In *Dislocations in solids*», ed. F.R.N. Nabarro, Vol. 9, (1999) Amsterdam: North-Holland.
- [30] N. Hansen, and D. Juul Jensen, *Phil Trans. R. Soc. Lond.* A357, (1999), 1447
- [31] J. A. Wert, Q. Liu, N. Hansen, *Acta metall. Mater.* 43 (11), (1995), 4153
- [32] S. V. Tsivinskii, *Physica. Status. Solidi*. 36 (1), (1976), 11
- [33] Q. Liu, D. Juul Jensen and N. Hansen, *Acta Mater.* 46 (16), (1998), 5819
- [34] T. Leffers, *Int. J. Plasticity*. 17, (2001), 469
- [35] B.Bacroix, Ph.Gerber, O.Castelnau, “Relation between stored energy and nucleation mechanisms “, *Proceedings of the first Joint International Conference ReX and GG , august 27-31 , 2002 , Gottstein- Molodov Edition , P . 767-7721*
- [36] B. D. Barts, and A. E. Carlsson, *Phil. Mag.* A 75, (1997), 541
- [37] C. S. Lee, and B. J. Duggan, *Acta Metall. Mater.* 42 (3), (1994), 857
- [38] B. CHENAL J. DRIVER, « Écrouissage d’alliages d’aluminium ». *techniques de l’ingénieur*. M230
- [39] J. Tarasiuk, Ph. Gerber, B. Bacroix, *acta. Met .Mat.* 50, (2002), 1467
- [40] O.K. Kolerov, *Met. Sci. & Heat Tr.* (3), (1997), 94
- [41] V.Y. Gertsman, J.S. Vetrano, C.H. Henager and S.M. « Bruemmer: EBSD Study of Microstructure Evolution in Model Aluminum Alloys During Annealing and High-Temperature Deformation », *Proc. First Joint International Conference on Recrystallization and Grain Growth*, Eds. G. Gottstein and D.A. Molodov, August 27-31, 2001, Aachen, Germany, Publ. by Springer Verlag. (2001), 837-842
- [42] A. Moraweic . *Scripta. Mater.* 43, (2000), 275
- [43] A. Guinier: *Acta. Crystallogr.* 5, (1952), 121

- [44] Ph. A. Dubey, B. Schönfeld, G.Kostorz. *Acta metall.* 39, (1991), 1161
- [45] A. J. Mc Alister “ *Bulletin of Alloy Phase Diagrams*”. 8 (6), (1987), 526
- [46] R. Erni, H. Heinrich, G. Kostorz , *Phil. Mag. Letters.* 83, (2003), 599
- [47] T. Kanadani, A. Umada. *Physica. State. Solidi. (A)* 151, (1995)
- [48] E. Abd El-Salam, M.A. Mahmoud, A.M Abd El-khalek, R.H. Nada, *Physica. B* 324, (2002), 110
- [49] H.I. Aaronson K.B. Alexander, F.K. LeGoues and D.E. Laughlin. *Scripta Mett.* 22, (1988), 1671
- [50] F. Langmayr P. Fratzl and G. Vogl. *Acta metall. Mater.* 40, (1992), 3381
- [51] J.B. Cohen, *Solid. St. Phys.* 39, (1986), 131
- [52] M. Asta and J. J. Hoyt, *Acta Materialia.* 48, (2000), 1089
- [53] G Bischof, V Gröger, G Krexner and R. M. Nieminen , *J. Phys. Condens. Matter.* 8, (1996),7523
- [54] A. Malik B. Schönfeld , G. Kostors, J.S. Pederson, *Acta. Mater.* 44, (1996), 4845
- [55] G.H. Deaf, S.B. Youssef, M.A. Mahmoud . *physica status solidi (a).* 168, (1998)
- [56] H. Voss . *Philosophical Magazine.* A 79, (1999), 423