

République Algérienne Démocratique et Populaire
Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique
Université des Sciences et de la Technologie Houari Boumediene

Faculté de physique



THÈSE

Présentée pour l'obtention du grade de DOCTORAT

EN : PHYSIQUE

Spécialité : Matériaux & Composants

par : Mr ABOUHILOU Fadi

Intitulé de sujet :

**CONTRIBUTION A L'ÉTUDE DES
PROPRIÉTÉS PHYSICO-CHIMIQUES
D'ALLIAGES A BASE DE PLOMB**

Soutenu publiquement le 12 /12 / 2011, devant le Jury composé de :

Mr. BOUTKEDJIRT Tarek	Professeur, à L'USTHB	Président
Mr. BRADAI Djamel	Professeur, à L'USTHB	Directeur de thèse
Mr. ZEGHDAOUI Abdelhamid	Professeur, à L'ENS (KOUBA)	Examineur
Mr. BOUKHRIS Noureddine	Maître de conférences/A, à L'U. Annaba	Examineur
Mr. YOUSFI Hamid	Maître de conférences/A, à L'ENP- El Harrach	Examineur
Mr. HAINE Nasserddine	Maître de conférences/A, à L'USTHB	Examineur

Dédicaces

Je dédie cette thèse à :

- *Tous ceux qui représentent la PALESTINE, mon pays d'origine ;*
- *Mon deuxième pays l'ALGERIE, pays de ma naissance, et lieu de la déclaration de l'état de PALESTINE ;*
- *La JORDANIE où résident mes parents ;*
- *Ma très chère mère, et à mon très cher père, qui sont toujours pour moi une source de bonheur, d'affection, d'encouragement, d'amour et qui, sans eux je ne serais jamais ce que je suis aujourd'hui ;*
- *Mes frères et sœurs : FATEN, ABDELRAHMANE, SHADI, ALAA et DALAL; qui m'ont soutenu jusqu'à la fin,*
- *Tous mes amis, en particulier : NOUNOU, LYES, FOUAD, MOUNIR,*
- *A toute la famille Tighiouart, en particulier : ABDELKRIM, RAZIKA, ABDELLAH, et MERIEM.*
- *A SOUMIA; qui m'a soutenu et encouragé ;*

A tous ceux qui me sont chers et à toute ma famille.

REMERCIEMENTS

REMERCIEMENTS

Tout d'abord, je remercie Dieu tout puissant qui m'a guidé vers le bon chemin.

Mes remerciements particuliers s'adressent A monsieur **Djamel Bradai**, Professeur à l'Université des Sciences et de la Technologie Houari Boumediene (USTHB) pour m'avoir accueilli au sein de son équipe "Microstructure, Texture, Transformations de phase", de m'avoir proposé ce sujet. Je tiens à remercier pour avoir été à coté de moi particulièrement dans les moments difficiles.

Je souhaite lui exprimer ma profonde reconnaissance pour m'avoir tellement apporté scientifiquement dans notre spécialité et humainement à travers ses conseils judicieux et pertinents.

Je suis très sensible à l'honneur que m'a fait Monsieur **Tarek BOUTKEJIRT**, Professeur à L'USTHB, en acceptant de présider le jury de thèse. Je le remercie sincèrement de m'avoir consacré de son précieux temps.

Je remercie aussi Messieurs:

Abdelhamid ZEGHDAOUI, Professeur à l'école normale supérieure de Kouba (ENS, Alger),

Noureddine BOUKHRIS, Maître de conférences A à l'Université de Annaba,

Hamid YOUSFI, Maître de conférences A à l'ENP (Alger),

Nasserddine HAINE, Maître de Conférences A à l'USTHB (Alger), d'avoir accepté de juger ce travail.

Je tiens à rendre un grand hommage à notre regretté collègue feu **M'hamed SAFI**, initiateur de l'activité XRDLPA au sein de l'équipe « Transformations de Phases, Microstructure Texture », qui a été pour moi un véritable deuxième promoteur. Je le remercie de m'avoir permis d'approfondir les notions pratiques et théoriques de notre sujet et des accueils renouvelés à Laghouat.

Je remercie ardemment les professeurs **Michel VILASI** et **Alain JEACQUES** de l'UHP, Nancy France pour nous avoir fourni les lingots d'alliages de plomb et pour les expériences de Microscopie électronique en Transmission.

Nous remercions aussi MM. **Marc WARY** et **Réda BERRAHMOUNE** de l'ENSAM, Metz, France pour les expériences de texture.

Je remercie infiniment **Dr. Ibrahim ODEH** Professeur Associé à l'université de YARMOUK, IRBID, JORDANIE pour les discussions et son aide de réaliser des expériences de DRX, MEB, MET et de son accueil au sein de leur laboratoire.

Je tiens aussi à remercier Monsieur **Mohamed TRARI**, Professeur a la Faculté de Chimie, USTHB pour son aide lors des expériences de mesure du pouvoir thermoélectrique (PTE).

Je remercie le **Dr BOUAOUADJAH**, Professeur à l'Université FERHAT ABBAS, SETIF pour son aide lors des essais de traction pour la mesure du coefficient de Lankford.

Je tiens à remercier Melle **Baya Alili**, Maître de Conférences A à l'USTHB (Alger), pour ces encouragements, sa gentillesse, et pour sa précieuse aide matérielle et morale tout au long de ce travail.

Je remercie mes collègues de l'équipe Transformation de Phases, Microstructure et Texture :

Melle Hiba AZZEDDINE, Mr Fayçal HADJ LARBI, Mr Yazid KHERREDDINE,

Mr Ibrahim MAHDI, Mr Lyacine REBAHI, Mr Kamel TERSATINE,

Mr Abdelghani SAM, Mr Nouredine ZIBOUCHE, Melle Samia THIGHIOUART,

Mme Saadia BOUDEKHANI, Mme Djazia ELFIAD, Mme Fairouz GUERZA et

Melle Khadidja ABIB.

Table de Matières

Introduction générale.....	2
----------------------------	---

Chapitre I : Etude bibliographique

Partie A : Généralités sur les propriétés du plomb et ses alliages

Introduction.....	7
I.A - Généralités sur le plomb et ses alliages.....	7
I.A-1- Origine de l'accumulateur au plomb	8
I.A-2 : Evolution de l'alliage de la grille.....	9
I.A-2-1 : Alliages Plomb-Antimoine (Pb-Sb).....	10
I.A-2-2 : Alliages de Plomb-Calcium (Pb-Ca)	10
I.A-2-3 : Alliages Plomb-Calcium-Etain.....	11
I.A-3 : Diagrammes de phases.....	11
I.A-3-1: Système Pb-Sn.....	11
I.A-3-2 : Système Pb-Ca.....	12
I.A-3-3 : Système Ca-Sn.....	13
I.A-4 : Différents types d'accumulateurs au plomb.....	16
I.A-5: Véhicule électrique	16
I.A-5.1 : Nécessité écologique	16
I.A-5.2 : Enjeux économiques	17
I.A-6 : Durcissement des alliages de plomb	17
I.A-6.1 : Généralités sur les mécanismes de durcissement	18
I.A-6.1.1 : Diminution de la taille des grains (loi de Hall-Petch).....	18
I.A-6.1.2 : Ecrouissage par déformation plastique (laminage).....	18
I.A-6.1.3 : Addition d'un élément d'alliage en solution solide	18
I.A-6.1.4 : Apparition d'une seconde phase dispersée.....	19
I.A-6.1.5 : Durcissement structural.....	19
I.A-6.2 : Durcissement des alliages de plomb	20
I.A-6.2.1 : Evolution structurale dans les alliages de plomb.....	20
I.A-6.2.1.a-Vieillessement	21

I.A-6.2.1.b-Pré-précipitation.....	21
I.A-6.2.1.c-Précipitation continue ou généralisée.....	21
I.A-6.2.1.d-Précipitation discontinue	21
I.A-6.2.1.e : Survieillissement	22

Partie B : Déformation plastique des métaux et alliages c.f.c et l'anisotropie de déformation

Introduction.....	24
I-B-I : Déformation plastique des métaux et alliages.....	24
I-B-I-1 : Anisotropie de déformation dans les alliages métalliques.....	24
I-B-I-2 Détermination du coefficient de Lankford	25
I-B-I-2.1 : Détermination expérimentale directe	25
I-B-I-2-2 : Détermination indirecte (à partir des FDOC) par le Modèle de TAYLOR.....	26

Partie C : Considérations théoriques et généralités sur les phénomènes de recristallisation et restauration

Introduction.....	30
I-C-I : Phénomènes de restauration et de recristallisation.....	30
I-C-I-1 : Généralités	30
I-C-I-2: Phénomènes de restauration.....	31
I-C-I-3 : Phénomènes de recristallisation	32
I-C-I-3-1 : Recristallisation des alliages biphasés.....	33
I-C-I-3-2 : Recristallisation de solutions solides sursaturées	33
I-C-I-3-3 Lois de la recristallisation.....	33
I-C-I-3-4 : Concurrence de précipitation et recristallisation dans les alliages	34
I-C-I-3-5 : Ordre d'apparition de la précipitation et de la recristallisation	35

Partie D : Notions sur la texture cristallographiques des métaux et alliages de structure cfc

Introduction.....	38
I-D-I : Description de la texture dans les matériaux polycristallins	38
I-D-I-1 : Représentation par les indices de Miller	39

I-D-I-2 : Utilisation des angles d'Euler	39
I-D-I-3 : Fonction de Distribution des Orientations Cristallines (FDOC)	41
I-D-I-4-1 : Figures de pôles	43
I-D-I-4-2 : Principe de la mesure des textures par diffraction des rayons X.....	44
I-D-I-4-2-1 : Diffraction des rayons X.....	44
I-D-II : Texture dans les alliages métalliques cubiques à faces centrées(c.f.c.)	46
D-II-1 : Texture de déformation	46
I-D-II-2 : Texture de recristallisation	47
I-D-II-2.1 : Germination orientée	48
I-D-II-2.2 : Croissance orientée	48
I-D-II-3 : Méthodes d'analyse de la texture	49
I-D-II-3.1 : Méthodes harmoniques	49
I-D-II-3.2 : Méthodes discrètes.....	50
I-D-II-4 : Simulation de la texture de déformation : modèles et méthodes.....	50
I-D-II-4.1 : Simulation de la texture de déformation	50
I-D-II-4.2 : Modèles de la simulation de la texture de déformation	51
I-D-II-4.2-a : Modèle de Sachs	51
I-D-II-4.2-b : Modèle de Taylor.....	52
I-D-II-4.2-c : Modèles de Taylor relaxés	52
I-D-II-4.2-d : Modèle RC multi grains.....	53
Références bibliographiques du chapitre I	56

Chapitre II : Techniques expérimentales

Introduction.....	62
II-1: Matériau utilisé.....	62
II-2 : Préparation des échantillons	63
II-2-1: Refusion.....	63
II-2-2 : Traitement d'homogénéisation	63
II-2-3 : Traitements thermomécaniques	63

II-2-4 : Déformation plastique par laminage à froid	63
II-2-5 : Traitement de recristallisation.....	64
II-3 : Analyses quantitative et métallographique des échantillons	64
II-3-1: Analyse par EDAX (Energy Dispersive X-ray Analysis)	65
II-3-2 : Préparation des échantillons pour métallographie optique (MO), Microscopie Electronique à Balayage (MEB) et Transmission (MET)	65
II-4 : Techniques d'analyses des transformations de phase et principe des mesures	66
II-4-1: Mesure de la microdureté Vickers	66
II-4-2 : Mesure de résistivité.....	67
II-4-3 : Détermination expérimentale du coefficient d'anisotropie (coefficient de Lankford)	69
II-4-4 : Pouvoir thermoélectrique	72
II-5 : Caractérisation par diffraction des rayons X	73
II-5-1: Analyses des profils des raies de diffraction des rayons X	73
II-5-2 : Détermination de la texture par diffraction des rayons X	74
Références bibliographiques du Chapitre II	76

Chapitre III : Résultats et interprétations

Introduction.....	78
III-1 Présentation des échantillons.....	78
III-2 Caractérisation des échantillons par analyse physico-chimique semi-quantitative EDAX (Energie dispersive Analysis X-Ray).....	79
III-3 : Microstructure de l'alliage Pb-0.08Ca-2Sn (% en poids) déformé à froid par laminage et recristallisé.....	81
III-4 Caractérisation des solutions solides par diffraction des rayons X (DRX) des alliages en état de solutions solides et après déformation plastique à froid.....	84
III-4-1 : Caractérisation des solutions solides par diffraction des rayons X	84
III-4-2 : Caractérisation par diffraction des rayons X (DRX) des alliages après déformation plastique à froid par laminage.....	86
III-4-2-1 : Détermination des paramètres microstructuraux de l'état déformé et vieilli.....	89
III-4-2-1-a : Choix de la méthode et du programme.....	89
III-4-2-1-b : Analyse par la méthode de Rietveld.....	89
III-4-2-1-c : Résultats de l'analyse Rietveld pour l'alliage Pb-0.08Ca-2Sn déformé et vieilli	91

III-4-3 : Évaluation des profils de diffraction des rayons X.....	94
III-4-4 : Taille et distribution du diamètre des cristallites.....	94
III-4-5 : Microstructure et paramètre de distorsion.....	94
III-5 : Cinétique de recristallisation dans l'alliage Pb-0.08Ca-2Sn (% en poids).....	97
III-5-1 : Essai de microdureté.....	97
III-5-2 : Caractérisation des solutions solides Pb-0.08Ca-2Sn (% en poids) par mesure de résistivité électrique.....	98
III-5-3 : Pouvoir thermoélectrique (PTE).....	103
III-5-3.1 : Evolution du pouvoir thermoélectrique de l'alliage Pb-Ca-Sn	103
III-5-3.2 : Etude de la cinétique des transformations de phases	104
III-6 : Etude de l'anisotropie de déformation de l'alliage PbCaSn et détermination du coefficient de Lankford.....	107
III-6-1 : Détermination expérimentale du coefficient de Lankford	107
III-6-2 : Détermination théorique du coefficient de Lankford à partir des Fonctions de Distribution des Orientations Cristallines (FDOC)	111
III-7 : Etude de la texture de l'alliage PbCaSn	112
III-7-1 : Etude de la texture de l'alliage PbCaSn dans les différents états déformés et recristallisés par la méthode ADC.....	112
III-7-1-a : Etude de la texture de déformation de l'alliage PbCaSn.....	112
III-7-1-b : Etude de la texture de recristallisation de l'alliage PbCaSn	114
III-7-1-c : Etude de la texture de recristallisation-précipitation de l'alliage PbCaSn.....	115
III-7-2 : Etude de la texture calculée par les 3 méthodes : Harmonique, WIMV et ADC.....	116
III-8 : Simulation de la texture de l'alliage PbCaSn calculée par les 3 méthodes suivantes : Taylor, VPSC et GIA	118
III-8-1 : Simulation de la texture de l'alliage PbCaSn calculée par la méthode Taylor	122
III-8-2 : Simulation de la texture de déformation l'alliage PbCaSncalculée par la méthode VPSC	124
III-8-3 : Simulation de la texture de l'alliage PbCaSn calculée par la méthode GIA.....	127
Références bibliographiques du Chapitre III.....	131
Conclusion générale	135
Annexes.....	138

Introduction générale

Durant les dernières décennies, le développement des batteries de démarrage automobile dites “batteries sans entretien” a été rendu possible grâce à l’émergence d’une nouvelle nuance d’alliage à base de plomb qui sont les alliages du système Pb-Ca-Sn. Ces alliages présentent de meilleures propriétés mécaniques et électrochimiques et ont progressivement remplacé les alliages du système Pb-Sb [1-3]. Les différents processus de fabrication des grilles de batteries (moulage par gravité, moulage continu, expansion par laminage et expansion coulée) [4] génèrent dans la microstructure des niveaux de déformation plastique. Le niveau de ces déformations est le facteur principal déterminant l’évolution de la microstructure de restauration et de recristallisation d’un point de vue cinétique et morphologique [5].

L’état de recristallisation dépend d’une part, des paramètres liés à l’état initial d’écrouissage comme la nature des défauts plans et linéaires tels que les dislocations, leur type, densité, rayon de coupure, etc., et d’autre part, des traitements thermiques ultérieurs. Dans les cas des alliages destinés aux grilles de batteries, ces traitements thermiques consistent en des cyclages entre la température ambiante et la température en fonctionnement de la batterie qui se situe entre 80 et 90°C.

Au cours de la dernière décade, de nombreux travaux ont été consacrés aux études extensives des morphologies et des cinétiques des processus de précipitation lors du vieillissement et du survieillissement des alliages à base de plomb et surtout du système Pb-Ca-Sn [6-12], ces travaux ont porté sur des alliages coulés et traités thermiquement sans aucune déformation préalable. Beaucoup d’aspects liés à la recristallisation et à sa compétition avec la précipitation continue de la phase ordonnée d’équilibre L_{12} (Pb,Sn)₃Ca, à l’instar d’autres systèmes métalliques tels que les alliages à base de Cu [13], restent indéterminés.

C’est dans le but de pallier à ce manque que, dans cette étude, nous nous sommes intéressés à la caractérisation de quelques aspects liés à la morphologie de l’état déformé et recristallisé dans l’alliage Pb-0.08Ca-2Sn (% en poids).

C’est dans ce cadre que s’inscrit ce travail synergique qui montre l’interdisciplinarité de l’étude; il s’agit de caractériser les propriétés physico-chimiques, métallurgiques et mécaniques d’éléments de grilles de batterie d’accumulateurs pour zones rurales et grand sud internationales.

Du point de vue fondamental, nous nous intéressons à l'influence de l'anisotropie structurale, morphologique et cristallographique, sur les mécanismes contrôlant l'aptitude à la déformation, avec un accent particulier sur l'effet de la présence d'une hétérogénéité micro-structurale, sur l'évolution de propriétés mécaniques macro-structurales. Nous avons considéré l'évolution, dans le plan de la tôle, des caractéristiques microstructurales et mécaniques (forme, taille, distribution géographique des grains, texture et contraintes internes) et leur influence sur le comportement mécaniques des tôles.

Ce travail est présenté dans les trois chapitres constituant ce manuscrit:

- Ø Dans le premier chapitre réparti en quatre parties sur les données bibliographiques relatives aux caractéristiques générales de plomb et ces alliages, nous traiterons ensuite la déformation plastique des métaux et des alliages de structure c.f.c. ainsi que l'anisotropie de déformation. La suite sera consacrée aux considérations théoriques et généralités sur les phénomènes de recristallisation et restauration. La dernière partie de ce chapitre fera l'objet de notions sur la texture cristallographique des alliages c.f.c.
- Ø Dans le second chapitre, nous présentons les différents protocoles de préparation et de caractérisation des échantillons d'alliages par un grand panel de techniques rapides et lourdes.
- Ø Le troisième chapitre, est consacré à la présentation des principaux résultats expérimentaux que nous avons obtenus et nous les discuterons à la lumière des données bibliographiques existantes.

Références bibliographiques

- [1] M.Safi, Thèse de Magister, USTHB(2002) Alger.
- [2] F. Abouhilou, Thèse de Magister, USTHB (2004) Alger.
- [3] F. Abouhilou, M.Safi, B. Alili & D. Bradai, Abhath El Yarmouk, (2005)
- [4] J.P. Hilger, « Matériaux et Techniques », N° 6-7 (1993) 33.
- [5] J.P. Hilger, Journal de Physique, Collection C3 Vol. 5, (1995) C3-39.
- [6] P. Chatterjee, S.P. Sen Gupta, J. Appl. Cryst., 69 (1999) 3173.
- [7] P. Chatterjee, P.S. Bhattacharya, S.P. Sen Gupta, J. Alloys & Comp., Cryst., 284 (1999) 160.
- [8] S. N. Dey, P. Chatterjee, S.P. Sen Gupta, Acta Mat., 51 (2003) 4669.
- [9] L. Bouirden, Thèse de Doctorat d'Etat, Université de Nancy I (1990) France.
- [10] M. Dehmas, A. Maître, J.B. Richir and P. Archambault, J. Power Sources, 159 (2006) 721.
- [11] A. Maître, G. Bourguignon, G. Medjahdi, E. McRae and M. H. Mathon, Scripta Mater, 50(2004) 685.
- [12] A. Maître, G. Bourguignon, J. M. Fiorani, J. Ghanbaja and J. Steinmetz, Mater. Sci. Eng. A, 358 (2003) 233.
- [13] W. Kim and G. Gottstein, Proc. of ICOTOM 8, Ed. By J.S. Kallend and G. Gottstein The Metallurgical Society, (1988) 649.

Chapitre I

Etude bibliographique

Ce chapitre présente les éléments théoriques nécessaires à la compréhension des résultats obtenus au cours du travail expérimental de la thèse. La partie A décrit les propriétés du plomb et de ses alliages. La partie B porte sur la déformation plastique des métaux et alliages c.f.c. et l'anisotropie de déformation. La partie C est consacrée aux phénomènes de restauration et de recristallisation. La section D aborde les notions de texture cristallographique des alliages c.f.c.

Partie A

Généralités sur les propriétés du plomb et ses alliages

Introduction

Cette partie a pour objectif de faire le point sur l'état actuel des connaissances concernant d'une part, les propriétés métallurgiques, physico-chimiques et mécaniques des alliages de plomb utilisés dans les grilles et électrodes de batteries acides et, d'autre part, les transformations de phases qui apparaissent lors des traitements thermomécaniques.

Le plomb reste pour le moment incontournable dans le domaine du stockage de l'énergie, en particulier dans les batteries plomb-acide employées, par exemple, dans les automobiles. Ainsi, les bornes positives sont généralement constituées d'alliages PbCaSn et les bornes négatives de PbSb ou, maintenant, de PbCa dont l'emploi se révèle moins dangereux.

I.A - Généralités sur le plomb et ses alliages

Le plomb et ses alliages comptent parmi les matériaux métalliques les plus anciennement connus et utilisés. En effet, si le plomb ne se rencontre pas à l'état natif, il est extrait de minerais tels que la galène (PbS). Facile à mettre en forme, notamment par fusion et coulée, il était déjà employé il y a plusieurs millénaires comme matériau de sarcophage ou encore pour la réalisation d'armatures métalliques pour vitraux de cathédrale.

Les principales propriétés physico-chimiques de cet élément sont résumées dans le Tableau I.A-1. Sa faible température de fusion lui confère une facilité de mise en forme qui permet d'envisager son utilisation comme canalisation (même si ces alliages sont amenés à disparaître pour des raisons de toxicité) ou caractères d'imprimerie, les alliages binaires avec de nombreux éléments (Tableau I.A-2) sont très souvent utilisés comme alliages de soudure à bas point de fusion, alliages pour les « fusibles » des circuits électriques (Pb, Bi, Sn). Enfin, la forte masse atomique et son nombre atomique élevé permettent d'utiliser le plomb pour ses propriétés d'absorption des rayons X dans le cadre de la protection contre les radiations.

L'application principale des alliages de plomb demeure la batterie plomb-acide destinée au stockage électrique, au démarrage automobile et à la traction de véhicules électriques. L'accumulateur au plomb est employé dans des domaines très variés tels que les télécommunications, l'énergie ou encore la défense avec son utilisation dans le blindage des circuits des sous-marins nucléaires.

Tableau I.A-1 : Principales propriétés physico-chimiques du plomb.

Aspect	Gris bleuté
Structure cristalline	Cubique à faces centrées
Paramètre cristallin	a=0,49502nm
Masse atomique	207,2 g.mol ⁻¹
Nombre atomique	82
Température de fusion	T=327,42°C
Température d'ébullition	T=1740°C
Coefficient de dilatation linéique (0 à 100°C)	29,3*10 ⁻⁶ K ⁻¹
Masse volumique	11,35g.cm ⁻¹

Tableau I.A-2 : Exemples d'alliages de plomb à fusion eutectique.

Élément d'addition	Teneur de l'élément à la température eutectique (100%)	Température de l'eutectique (°C)
Ag	2,5	304
As	2,6	290
Bi	55,5	124
Cd	17,5	248
Cu	0,06	326
Mg	2,5	250
Sb	11,1	252
Sn	61,9	183
Te	0,025	327
Zn	0,577	317.8

I-A-1- Origine de l'accumulateur au plomb

La batterie électrique qui nous est désormais si familière, a pourtant subi depuis plus d'un siècle de nombreuses transformations au gré de découvertes scientifiques.

Tout débute en 1799 lorsque Volta empile successivement une lame de zinc, une lame de feutre imbibé d'eau vinaigrée et une lame de cuivre, constituant ainsi la première pile électrique. Le premier accumulateur électrique est dû aux travaux de Ritter en 1801, qui teste le plomb parmi d'autres systèmes en milieu chlorure.

Il faut ensuite attendre 1854 pour que Sinsteden découvre la capacité de stockage de l'électricité conférée par le système plomb-acide. La batterie qu'il développa avait cependant une énergie spécifique inférieure à 0,1Wh/kg.

Ce sont les recherches de Gaston Planté en 1859 qui aboutirent finalement à la découverte de l'accumulateur au plomb, qui devait être le premier accumulateur industriel. Sa batterie était constituée de deux feuilles de plomb enroulées en spirale, séparées l'une de l'autre par une toile grossière et plongée dans un bac d'une solution d'acide sulfurique.

L'accumulateur devait alors être formé, mais le procédé était long et coûteux.

En 1880, Camille Faure a eu l'idée d'appliquer directement sur les lames de plomb une pâte à base d'oxydes de plomb, puis de la maintenir en l'enroulant d'un feutre. A titre de comparaison, ce procédé permet de former l'accumulateur en 150 heures, alors que la technique employée par Planter avait demandé deux ans.

D'immenses efforts de recherche furent alors déployés, puisqu'en l'espace de dix ans (1881-1890), rien qu'en Allemagne, pas moins de 151 brevets concernant l'accumulateur au plomb furent déposés.

En 1880, Fabraký et Stenek proposèrent une grille à segments circulaires qui servait de soutien à la matière active. Deux ans plus tard, les propriétés mécaniques de la grille sont encore améliorées par l'emploi d'un alliage plomb-antimoine mis au point par Sellon tandis que Neving introduisit les alliages plomb-étain en 1890 [1,2].

I.A-2 : Evolution de l'alliage de la grille

Même si depuis plus d'un siècle, le fonctionnement de la batterie repose sur l'utilisation de deux plaques conductrices chargées en matière active et plongées dans un électrolyte, l'accumulateur au plomb va bien sûr profiter de nombreuses améliorations notamment au niveau de l'alliage de la grille [3-5].

Bagshaw définit la grille « idéale » comme un matériau susceptible de réunir les conditions suivantes:

- Résistance mécanique,
- Résistance au fluage,
- Tenue à la corrosion,
- Bonne conductivité,
- Compatibilité avec la matière active,
- Importante surtension par rapport à l'hydrogène et à l'oxygène,
- Faible coût.

L'utilisation du plomb pur, bien que très bon marché, ne peut cependant pas être envisagée à cause de ses très faibles propriétés mécaniques. Il a donc été nécessaire d'ajouter au plomb pur certains éléments capables d'augmenter ses propriétés mécaniques [6].

I.A-2-1 : Alliages Plomb-Antimoine (Pb-Sb)

Les alliages plomb-antimoine sont probablement les plus utilisés dans les fabrications des grilles pour batterie. Grâce à leur bas point de fusion, l'alliage eutectique à 11% en masse d'antimoine fut initialement adopté. Cependant, dès 1950 le phénomène « d'empoisonnement par l'antimoine » des plaques négatives est clairement mis en cause. Il consiste en la libération dans l'électrolyte des ions antimonyles SbO^+ par corrosion de l'anode. Ceux-ci vont ensuite migrer jusqu'à l'électrode négative, s'y réduire et y abaisser la surtension de l'hydrogène. Un important dégagement gazeux apparaît alors conduisant à une consommation d'eau ainsi qu'à une autodécharge prononcée. La teneur en antimoine fut alors abaissée à 6-9% puis à 2-3%. De nouveaux éléments d'alliages furent donc ajoutés (étain, sélénium, arsenic, etc.) afin d'améliorer les caractéristiques mécaniques (réduction de la taille des grains par exemple) et la coulabilité du matériau.

L'addition de cadmium a également été tentée, formant ainsi un alliage de bonnes propriétés mécaniques [7] et électrochimiques, mais dont l'essor n'a pu aboutir du fait de la haute toxicité du cadmium.

La tendance étant actuellement aux batteries sans ou à peu d'entretien, la consommation d'eau doit donc être supprimée [8]. Dans cette optique, un alliage à 1% d'antimoine a été développé, il ne contient plus d'eutectiques aux joints de grains et la présence d'antimoine à la plaque négative est insignifiante.

I.A-2-2 : Alliages de Plomb-Calcium (Pb-Ca)

L'addition de calcium est le plus souvent de 0.1% et l'intérêt de ce système réside dans l'augmentation de la dureté des matériaux par durcissement structural suite à la précipitation du composé Pb_3Ca .

Toutefois des propriétés en fluage trop faibles, ainsi qu'une mauvaise adhérence de la matière active positive sur cet alliage interdisent son utilisation comme plaque positive de batterie de traction. Par contre, ces alliages sont communément utilisés en téléphonie, pour le stockage d'énergie des sous-marins nucléaires ou sous forme de grilles négatives.

En outre, le problème posé par le maintien du calcium très oxydable a été résolu grâce à l'ajout d'aluminium qui isole le bain de plomb en fusion de l'atmosphère oxydante par la formation d'une fine couche d'alumine.

I.A-2-3 : Alliages Plomb-Calcium-Etain

De nombreuses additions à l'alliage plomb-calcium ont été testées afin notamment d'améliorer sa résistance au fluage. Le meilleur résultat fut obtenu avec l'étain qui apporte, en plus, une bonne tenue à la corrosion ainsi qu'une coulabilité plus satisfaisante. Toutefois, la formation d'une couche passivante à l'interface grille/matière active positive pose encore problème.

Ces alliages gardent leurs propriétés mécaniques après laminage à froid [9] tout en ne produisant pas de consommation d'électrolyte. Ces avantages expliquent que ce type d'alliages équipe une forte proportion des batteries qualifiées « sans entretien ».

I.A-3: Diagrammes de phases

I.A-3-1: Système Pb-Sn

Les eutectiques possèdent fréquemment une forme de lamelles alternées. Dans les alliages binaires simples, par exemple Pb-Sn, la composition des lamelles de phases α et β est fonction de la solubilité des éléments d'alliages. La Figure I.A-1 présente le diagramme d'équilibre de cet alliage. Le point A est situé à la composition des lamelles de phase α avec Pb-18%Sn et le point C représente la composition des lamelles de phase β avec Pb-97,5%Sn. Les alliages Pb-Sn, du fait de leur faible température de fusion, sont très utilisés comme matériaux de soudure.

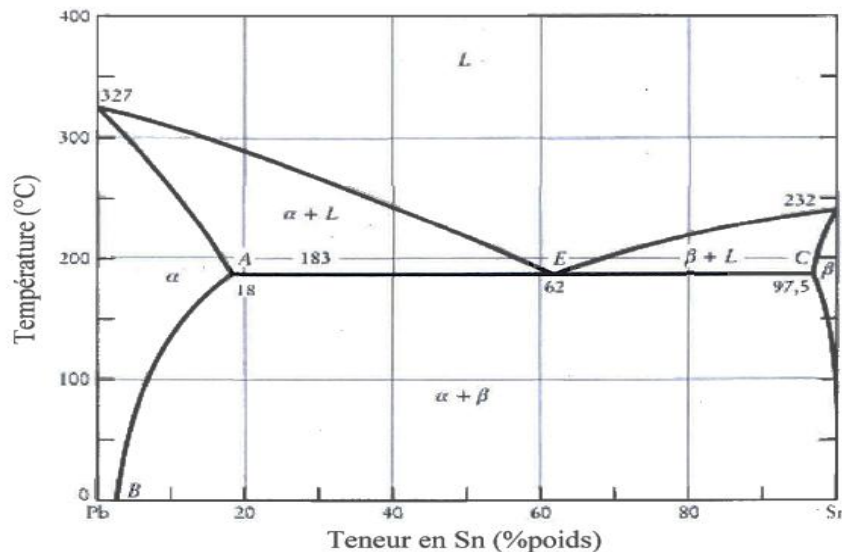


Figure I.A-1 : Diagramme de phases du système Pb-Sn [10].

Tableau I.A-3 : Données cristallographiques des phases du système Pb-Sn.

Phase	Composition en % masse Sn	Symbole Pearson	Groupe d'espace
Pb	0 à 18.3	cF4	Fm $\bar{3}$ m
β_{Sn}	97.8 à 100	tI4	I4 ₁ /amd
α_{Sn}	100	cF8	Fa $\bar{3}$ m
Phases à haute pression			
ε	52 à 74	hP1	P6/mmm
ε'	52	hP2	P6/mmc

I.A-3-2: Système Pb-Ca

Le diagramme de phases (Ca-Pb) représenté en Figure I.2 a été étudié par Massalski [11], il comporte quatre composés intermétalliques :

- ∅ Ca_2Pb qui présente une transformation eutectique avec le Calcium β à 1023K pour $X_{\text{Pb}}=9,5\%$ et fond à 1473K.
- ∅ Ca_5Pb_3 présente une décomposition péritectique à 1400 K.
- ∅ CaPb forme un péritectique avec le composé Ca_5Pb_3 à 1236K d'une part, et un eutectique avec le composé CaPb_3 à 900 K pour $X_{\text{Pb}}=63.5\%$ d'autre part.
- ∅ CaPb_3 qui fond à 938K forme un eutectique avec le Plomb à 599,2 K.

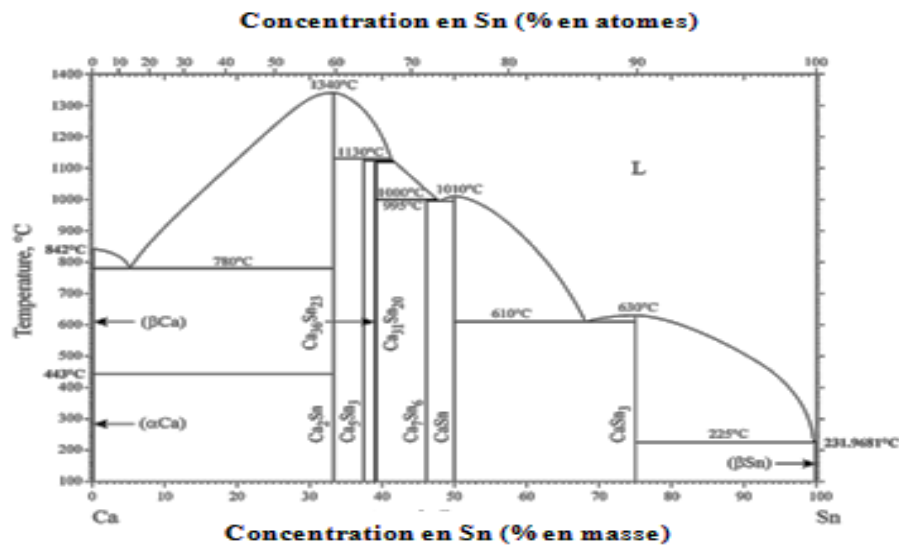


Figure I.A-2 : Diagramme de phases du système Ca-Pb.

Tableau I.A-4 : Données cristallographiques des phases du système Ca-Pb.

Phase	Composition (% en masse)	Symbole Pearson	Groupe d'espace
(α_{Ca})	0	cF4	Fm $\bar{3}m$
(β_{Ca})	0	cI2	Im $\bar{3}m$
Ca ₂ Pb	72,1	oP12	Pnma

I.A-3-3 : Système Ca-Sn

Le diagramme de phases (Ca-Sn) représenté en Figure I.A-3 est déterminé par [12] en utilisant l'analyse thermique différentielle, la diffraction des rayons X de monocristal et l'analyse métallographique. Le tableau (I.A-4) montre l'existence de quatre phases : Ca₂Sn, Ca₃₁Sn₂₀, CaSn, et CaSn₃, dans le système Ca-Sn principalement sur la base du travail de [13, 14]. Les bornes de liquidus sont la plupart du temps spéculatives, en particulier, le liquidus de Ca₂Sn est exceptionnellement asymétrique [15]. Trois phases supplémentaires ont été trouvées dans ce système : Ca₅Sn₃, Ca₇Sn₆ et Ca₃₆Sn₂₃.

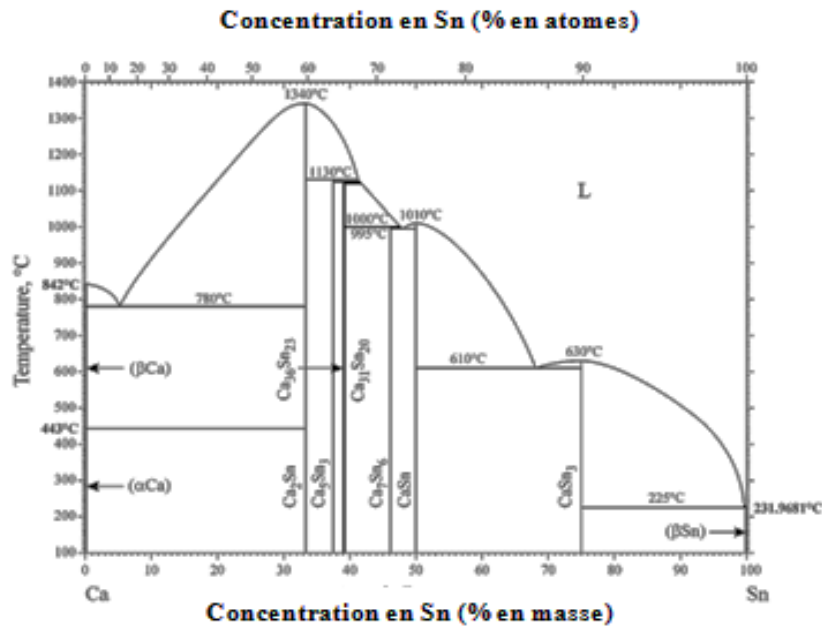


Figure I.A-3 : Diagramme de phases du système Ca-Sn[16].

Tableau I.A-4 : Données cristallographiques des phases du système Ca-Sn.

Phase	Concentration (% en atomes)	Symbole Pearson	Grouped'espace
(β Ca)	0	cI2	Im$\bar{3}$m
(α Ca)	0	cF4	Fm$\bar{3}$m
Ca ₂ Sn	33,3	oP12	Pnma
Ca ₅ Sn ₃	37,5	tI32	I4/mcm
Ca ₃₆ Sn ₂₃	39,0	P118	P4/mbm
Ca ₃₁ Sn ₂₀	39,2	tI204	I4/mcm
Ca ₇ Sn ₆	46,2	oP52	Pnma
CaSn	50	oC8	Cmcm
CaSn ₃	75	cP4	Pm$\bar{3}$m
(β Sn)	100	tI4	4 /amd

La coupe isotherme calculée à la température ambiante est représentée sur la figure I.A-4, de manière à indiquer la nature des différents composés binaires du système dressé sur un tableau ci-après avec les annotations.

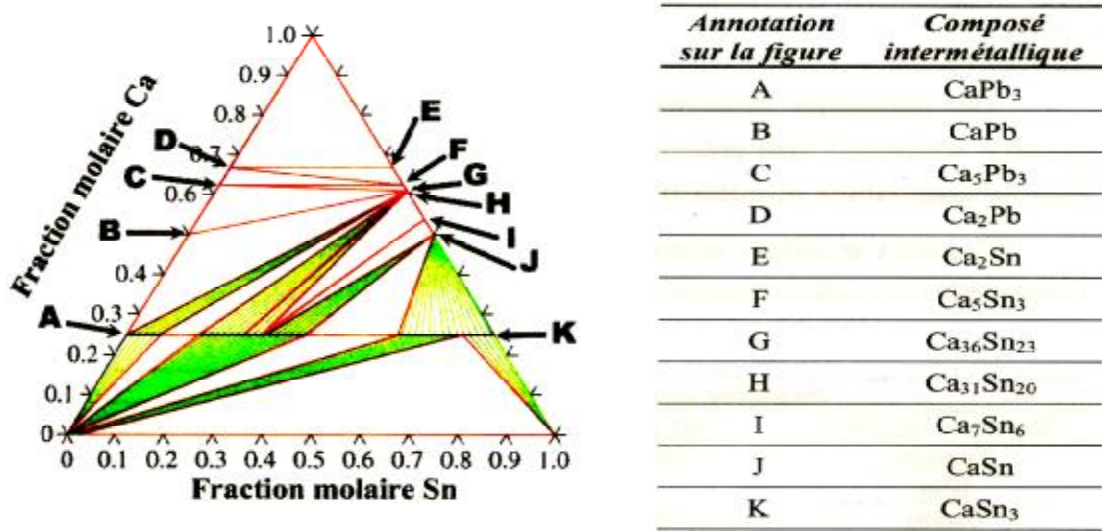


Figure I.A-4: Coupe isotherme ternaires calculées à la température ambiante [17].

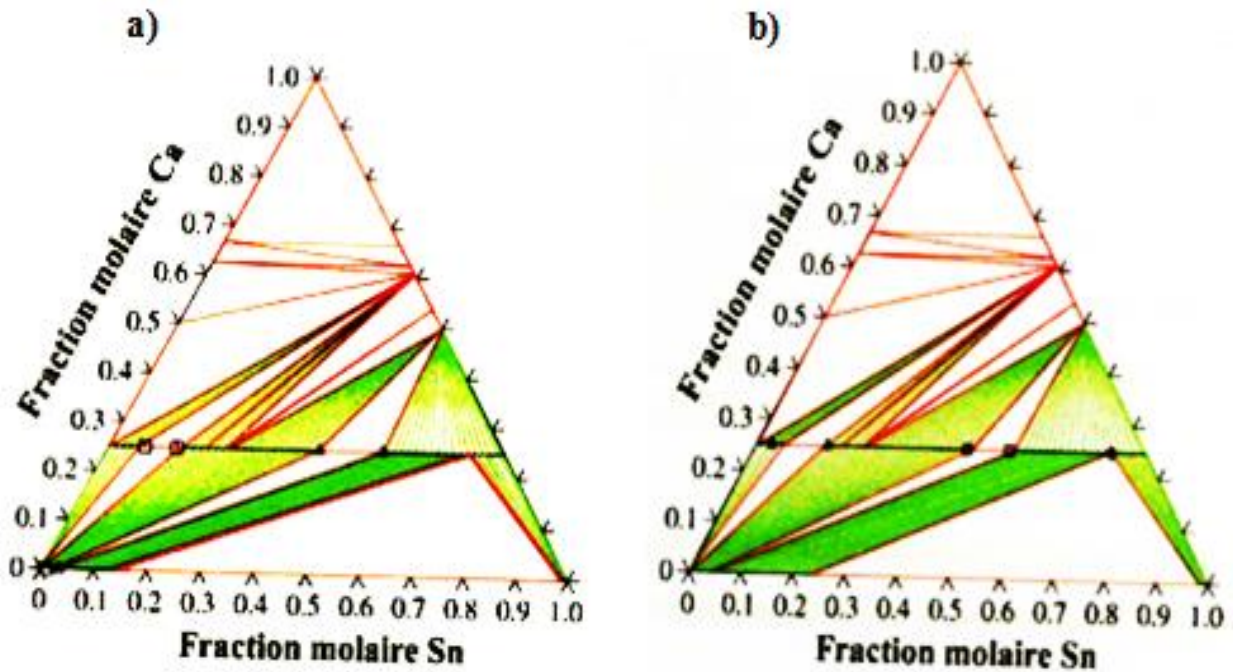


Figure I.A-5: Coupes isothermes ternaires calculées à :
a) 120°C (438.15 K) [18]. b) 165°C (593.15 K) [17].

I.A-4: Différents types d'accumulateurs au plomb

La batterie au plomb est de nos jours le moyen de stockage d'énergie le plus largement employé. Ses applications varient de la batterie scellée d'utilisation courante, de capacité égale à quelques Watts-heures, aux batteries de plusieurs méga Watts-heures pour sous-marins.

D'une manière générale, on dénombre trois catégories de batterie :

- de démarrage (SLI : Starting, démarrage ; Lighting, éclairage ; Ignition, allumage) sert à démarrer le véhicule, mais aussi à permettre au système de secours de fonctionner lorsque le moteur est éteint,
- stationnaire : elle a pour but de suppléer le réseau électrique en cas de panne, ses applications concernent le domaine des télécommunications, des alimentations anti-coupure pour ordinateurs, de l'éclairage d'urgence, des onduleurs, etc.,
- de traction : elle sert de source d'énergie au système utilisateur, c'est le cas particulier pour le véhicule électrique et la grille de cet accumulateur peut être plane ou tubulaire.

Quelle que soit l'utilisation ultérieure de la batterie, les améliorations récentes concernent surtout la réduction, voire la suppression, de l'entretien de l'accumulateur. Dans cette optique, l'utilisation des alliages à faible teneur en antimoine et des alliages plomb-calcium-étain a permis de faire diminuer nettement le phénomène d'électrolyse de l'eau.

De plus, la technologie actuelle a permis de supprimer l'émission des gaz, par recombinaison de ceux-ci à l'intérieur même de la batterie. L'électrolyte de ces accumulateurs est immobilisé sous forme de gel, ou retenu dans un séparateur en fibres de verre à haut pouvoir capillaire (A.G.M. : Absorptive Glass Matériel), les microfissures du gel, ou les fibres, représentent des chemins privilégiés de migration de l'oxygène de la plaque positive jusqu'à la plaque négative où l'eau se reforme. On peut disposer ainsi d'un accumulateur hermétiquement fermé, ne disposant que d'une soupape de sécurité en cas de surpression accidentelle [19].

I.A-5: Véhicule électrique

I.A-5.1 : Nécessité écologique

Dans les années 1970, avec l'augmentation du prix des combustibles due aux deux chocs pétroliers, le véhicule électrique s'est affirmé comme une alternative au moteur à

combustion, d'autant plus que certains experts prévoyaient l'épuisement des réserves de pétrole pour le début du XXI^{ème} siècle. A l'issue de la crise, le véhicule électrique ne vit pas le jour, mais un débat s'instaura toutefois sur un nouveau concept de véhicule plus petit et économique. Durant le milieu des années 1980, l'opinion publique devint de plus en plus sensible aux problèmes d'environnement d'autant que des catastrophes comme celles de TCHERNOBYL, la déforestation des forêts primaires, la pollution des océans lui ont fait prendre conscience de l'impact que l'homme pouvait avoir sur son écosystème. La pollution atmosphérique, et urbaine en particulier, peut atteindre une ampleur telle que certaines villes, comme Milan, Athènes, et récemment Paris, ont été forcées d'interdire toute circulation pendant des périodes de canicule.

C'est dans ce contexte qu'en 1990, le gouvernement de Californie fait paraître une loi, imposant pour 1998 la vente dans tout l'Etat de 2% de véhicules sans émissions de polluants, ce pourcentage devant passer à 10% pour 2003 [20].

I.A-5.2 : Enjeux économiques

Quelques chiffres sont nécessaires pour se rendre compte de l'étendue de ce nouveau marché potentiel. La politique adoptée en Californie a été suivie ultérieurement par neuf autres états des Etats-Unis. Les ventes de véhicules électriques peuvent ainsi être évaluées à 5% du marché à l'horizon 2001, soit 850 000 voitures. En Europe, l'intérêt est grand puisque 39 grandes villes ont souscrit à l'association Clitelec [21] et entreprennent des essais à grande échelle. Les ventes de véhicules pour l'an 2000 sont évaluées à 600 000 en Europe, 100 000 au Japon. Ceci représente un marché considérable lorsque l'on sait que chaque véhicule sera muni d'une masse de 270kg de batteries alors qu'un véhicule à moteur thermique actuel ne possède que sa batterie de démarrage, soit 9 kg. Ainsi, dans l'hypothèse où la batterie au plomb équiperait 70% des véhicules électriques, le marché de la batterie pour le véhicule électrique s'élèverait, pour 2001, à plusieurs millions d'euros [22].

I.A-6 : Durcissement des alliages de plomb

Les alliages de plomb doivent présenter de bonnes propriétés mécaniques, et en particulier une résistance au fluage suffisante à la température ambiante puisque cette température est égale à environ la moitié de la température de fusion des alliages de plomb. A ce sujet, on recense dans la littérature un certain nombre de travaux dédiés à l'amélioration de la tenue mécanique et, en conséquence, à l'étude des mécanismes de durcissement des alliages de plomb. On rappellera brièvement ci-après, les principaux modes de renforcement mécanique d'un métal ainsi que les principales étapes du durcissement structural des alliages PbCaSn.

I.A-6.1 : Généralités sur les mécanismes de durcissement

La déformation plastique d'un métal s'interprète par un mouvement de défauts linéaires appelés *dislocations* qui se déplacent parallèlement aux plans cristallographiques denses. Pour améliorer les propriétés mécaniques d'un métal pur, le métallurgiste dispose de plusieurs méthodes qui, toutes, consistent à créer des obstacles à l'intérieur du métal qui s'opposent à la création de nouvelles dislocations ou au déplacement des dislocations existantes.

I.A-6.1.1: Diminution de la taille des grains (loi de Hall-Petch)

Les métaux à petite taille de grains ont une limite d'élasticité plus élevée que les monocristaux ; cet effet est convenablement décrit par la loi empirique de Hall-Petch :

$$\sigma_e = \sigma_0 + \frac{K}{\sqrt{d}} \quad (\text{I.A.1})$$

Où σ_e est la contrainte élastique limite, σ_0 est le terme de friction, d est la taille des grains et K est la pente de Hall-Petch.

Cette loi indique que la contrainte augmente lorsque la taille des grains diminue, et donc qu'un matériau polycristallin à grains fins est plus dur qu'un matériau polycristallin à gros grains.

Les joints de grains constituent en effet des obstacles à la déformation plastique et leur action est d'autant plus efficace que l'orientation des plans cristallins diffère d'un grain à l'autre.

I.A-6.1.2: Ecroûissage par déformation plastique (laminage)

Le durcissement par écroûissage apparaît lorsque le matériau subit une déformation plastique permanente suite à l'application de fortes contraintes mécaniques telles que le laminage, la torsion, le tréfilage, etc. Au cours de la déformation plastique, les dislocations se déplacent et se densifient pour permettre au matériau de se déformer à mesure que la contrainte augmente. Le durcissement est le résultat d'une interaction considérable entre dislocations, interaction qui rend leur mouvement difficile.

I.A-6.1.3: Addition d'un élément d'alliage en solution solide

Les atomes en solution solide, qu'ils soient en position d'insertion ou en position de substitution, créent des distorsions élastiques qui engendrent un champ de contraintes dû à la différence de taille entre les atomes du soluté et les atomes du solvant. Il y a interaction entre ce champ de contraintes et le champ associé aux dislocations, et la contrainte requise pour déplacer les dislocations augmente. Cet effet est plus ou moins marqué selon l'ampleur des contraintes dues aux différences de taille des atomes.

I.A-6.1.4:Apparition d'une seconde phase dispersée

Lorsque l'alliage refroidit en passant par une succession d'états d'équilibre, la solution solide évolue en suivant la courbe du solvus et en précipitant une seconde phase β minoritaire.

Les particules de seconde phase font alors obstacle au mouvement des dislocations dans le réseau de phase α . Le mouvement des dislocations est retenu difficilement, ce qui accroît la résistance à la déformation plastique, c'est-à-dire la dureté.

I.A-6.1.5:Durcissement structural

Le durcissement structural est le résultat de la précipitation d'un élément insoluble à basse température. Les conditions à remplir pour obtenir une précipitation de phases durcissantes à partir d'une solution solide B dans A (B soluté et A solvant) sont :

- une diminution de la solubilité de B dans A avec la température. La solubilité est faible à température ambiante,
- une solubilisation des éléments d'addition dans la solution solide à haute température.

Une trempe est nécessaire depuis les températures supérieures du domaine de solubilité pour obtenir une solution sursaturée en B. Ainsi à température ambiante, on dispose d'une solution solide ($\hat{\alpha}$) contenant B dans des proportions nettement supérieures à sa limite de solubilité en condition d'équilibre stable.

L'évolution de la solution solide sursaturée ($\hat{\alpha}$) vers un état stable est réalisée au travers d'une précipitation fine et dispersée de β grâce à la diffusion, facilitée à partir de $0.4-0.5T_f$.

L'efficacité du durcissement structural dépend non seulement de la dispersion des précipités et de leur taille, mais aussi de la cohérence entre leur interface et celle de la matrice. En effet, la cohérence entraîne des distorsions élastiques et des contraintes supplémentaires dues à la différence relative des distances inter réticulaires des différentes phases (matrice et précipité). Par ailleurs, les précipités provoquent localement un champ de déformation qui a pour conséquence de freiner et de déformer les dislocations lors de leur passage (loi d'Orowan). Ainsi, plus la dispersion des précipités est fine, plus les contraintes seront importantes.

Dans les premiers stades de transformation, les interfaces sont souvent cohérentes, mais au cours de l'évolution du matériau (croissance des précipités), les liens de cohérence matrice/précipité se modifient et influencent le durcissement. Généralement, le durcissement progresse pendant la précipitation de phases cohérentes avec la matrice, atteint un maximum puis décroît. Ces deux étapes sont communément nommées respectivement *vieillissement* et *survieillissement* de l'alliage. Cette diminution des propriétés mécaniques est souvent associée

à la perte de cohérence matrice/précipité, car l'énergie nécessaire au cisaillement d'un précipité incohérent par une dislocation est plus faible que celle requise pour cisailer un précipité cohérent. Habituellement, la perte de cohérence est la conséquence de la coalescence des précipités (diminution de l'énergie de surface).

I.A-6.2 : Durcissement des alliages de plomb

Dans le cas des alliages de plomb, le durcissement par diminution de la taille des grains est inefficace pour deux raisons :

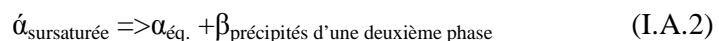
- le déplacement des dislocations est aisé, car la structure c.f.c. du plomb possède un grand nombre de systèmes de glissement,
- le bas point de fusion des alliages de plomb permet aux phénomènes de diffusion d'opérer et les défauts, les atomes de solutés ou les dislocations, peuvent diffuser dans la matrice même à température ambiante. Le bas point de fusion est aussi à l'origine de l'inefficacité du durcissement par écrouissage, car les phénomènes de restauration et recristallisation sont aisés à température ambiante.
- La mise en solution solide du soluté ne procure pas non plus un durcissement suffisant puisque les limites de solubilité de la plupart des éléments dans le plomb sont souvent très faibles. De toutes les techniques précédemment citées, la seule qui apporte un durcissement satisfaisant dans le cas des alliages de plomb est **le durcissement structural**. De plus, le bas point de fusion des alliages de plomb peut conduire à ce durcissement à partir de la température ambiante.

I.A-6.2.1 : Evolution structurale dans les alliages de plomb

Un grand nombre de systèmes répond au critère nécessaire à la réalisation d'un durcissement par précipitation de phases durcissantes. On citera, par exemple, le cas des binaires PbSn, PbSb, PbCa, PbSr, PbBa, etc. Les alliages de plomb sont le siège à température ambiante de transformations microstructurales que l'on décompose en deux phases : le vieillissement et le survieillissement.

I.A-6.2.1.a-Vieillissement

Suite à la trempe, la matrice α sursaturée en élément d'addition se trouve dans un état métastable. Son retour à l'équilibre se fait par une précipitation fine et dispersée d'une deuxième phase dans la matrice par diffusion à température ambiante :



Ce retour à l'équilibre s'opère grâce à différents mécanismes passant par des états transitoires plus ou moins nombreux selon la composition de l'alliage. Trois types de transformations de phases peuvent se présenter :

I.A-6.2.1.b-Pré-précipitation

Elle caractérise les premiers stades de précipitation en engendrant des phases transitoires et métastables, cohérentes avec la matrice. Elle peut provenir également de la formation initiale d'amas (zone de Guinier-Preston) ou de régions à fluctuation de concentration. Il demeure que ces états sont difficiles à mettre en évidence.

I.A-6.2.1.c-Précipitation continue ou généralisée

Pendant cette transformation, la concentration en soluté de la phase mère décroît dans tout le volume du grain jusqu'à sa valeur d'équilibre lors de la précipitation de la phase β . C'est dans ce retour à l'équilibre que réside la force motrice de la réaction, il dépend du degré de sursaturation de la phase initiale et de la possibilité de diffusion des atomes de soluté (fonction de la température).

I.A-6.2.1.d-Précipitation discontinue

La précipitation discontinue est caractérisée par l'association d'une précipitation au joint de grain et de la migration de ce dernier. La réaction progresse par le déplacement d'un front de transformation séparant une zone de réaction complète d'une zone non transformée (matrice sursaturée). Cette transformation s'initie à partir des joints de grains ou de sous-joints dendritiques ce qui implique une division du grain en deux parties : une transformée, l'autre sursaturée, d'où l'utilisation du terme « discontinue » pour évoquer ce genre de transformation (figure I.A-6). A la traversée de l'interface, on observe une chute brutale de la composition de la phase mère. La phase précipitée est souvent sous la forme de lamelles cohérentes avec la matrice et l'intervalle interlamellaire est lié à la vitesse de déplacement du front réactionnel. La force motrice de la réaction est liée à la sursaturation de la matrice en élément allié.

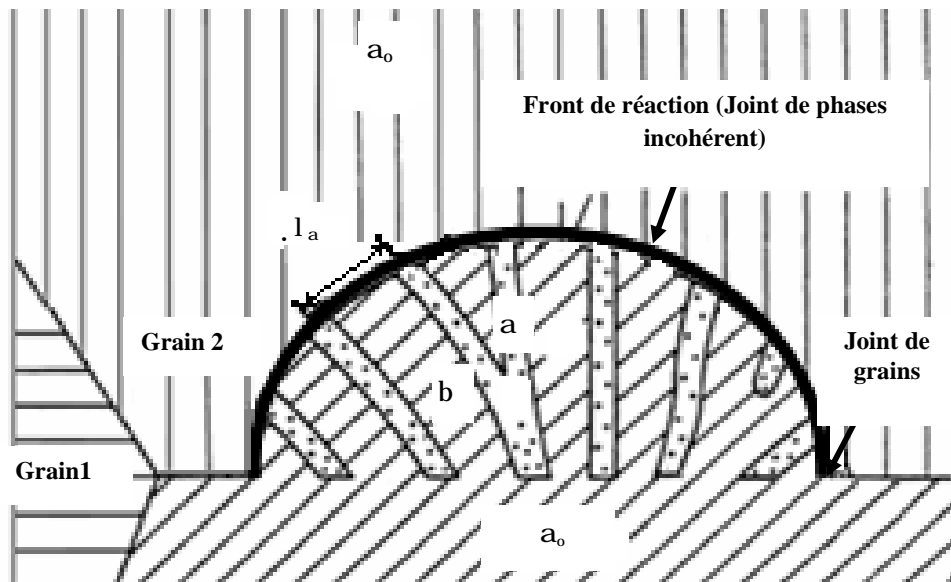
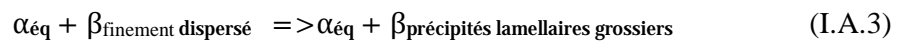


Figure I.A-6: Représentation schématique de la précipitation discontinue[23].

I.A-6.2.1.e : Surveillissement

L'ultime transformation rencontrée dans les alliages de plomb est le surveillissement. Cette étape fait intervenir un mécanisme discontinu et peut être amorcée avant la fin des étapes de précipitation (continue ou discontinue) qui conduisent à un durcissement (vieillissement). Une compétition entre vieillissement et surveillissement s'installe. La force motrice de cette dernière transformation réside dans la diminution de l'énergie interfaciale des précipités. Cette dernière transformation est caractérisée par une phase de coalescence et de reprécipitation grossière qui se traduit par la chute des propriétés mécaniques de l'alliage (adoucissement) :



Partie B

Déformation plastique des métaux

et alliages c.f.c et anisotropie de déformation

Introduction

Après déformation plastique, le métal se trouve dans un état thermodynamique instable puisque les défauts créés au cours de cette déformation ont pour effet d'augmenter l'énergie du système [24]. De plus, la microstructure et diverses propriétés du matériau sont modifiées. Un traitement thermique permet de revenir à un état plus stable. En effet, l'élévation de température permet d'activer divers processus rassemblés sous les termes de *restauration* et de *recristallisation*, qui conduisent à des changements microstructuraux et à la restitution des propriétés initiales [25].

I-B-I: Déformation plastique des métaux et alliages

La déformation plastique des polycristaux métalliques résulte de plusieurs mécanismes dépendants de la température et des caractéristiques du matériau ; glissement cristallographique, maclage, transformation de phases, glissement aux joints des grains, etc.

Notons bien qu'à froid, le glissement cristallographique est le mécanisme prédominant (en l'absence de maclage). Il est dû aux défauts linéaires dans les cristaux (multiplication et déplacement des dislocations).

I-B-I-1 : Anisotropie de déformation dans les alliages métalliques

Le problème qui se pose aux industriels travaillant sur des tôles minces destinées à la mise en forme est la caractérisation des paramètres qui contrôlent cette opération. La connaissance de ces types de paramètres permet de les ajuster ou de les modifier en fonction des besoins, dans le but d'améliorer la mise en forme de ces matériaux.

Lors d'un essai d'emboutissage en rétreint, Swift [26] a défini un rapport limite d'emboutissage (LDR). L'analyse théorique de cet essai a montré une étroite relation entre ce rapport et le coefficient d'anisotropie moyen R . Le coefficient d'anisotropie R étant le rapport des incréments de déformations transversales dans un essai de traction simple ($R = \frac{d\epsilon_2}{d\epsilon_3}$). Le rapport de limite d'emboutissage augmente avec le coefficient R . Un coefficient R élevé traduit une bonne capacité rétreint du matériau.

Le deuxième essai d'emboutissage qui est également souvent pratiqué est l'essai Jovignot (PARNIERE P. SANZ G). L'analyse théorique de cette essai a montré que la profondeur de l'embouti est directement liée au coefficient d'écrouissage n . Plus n est grand, plus l'embouti est profond. Le coefficient d'anisotropie R et le coefficient d'écrouissage n sont donc deux paramètres métallurgiques qui caractérisent le degré d'emboutissabilité d'un matériau. Ils peuvent être déterminés à partir d'essais de traction simple. Dans les matériaux

Partie B: Déformation plastique des métaux et alliages c.f.c et anisotropie de déformation

anisotropes, ces deux paramètres n'ont pas les mêmes valeurs dans toutes les directions dans le plan de la tôle. Ces variations peuvent être attribuées à la présence de texture cristallographique ou morphologique.

- **Effet de la vitesse de déformation (strain rate)**

C'est le taux auquel la tension est appliquée à un spécimen pour avoir une influence importante sur le fluage.

La vitesse de déformation est définie par :

$$\dot{\epsilon} = \frac{d\epsilon}{dt} \quad (\text{I.B.1})$$

L'unité de cette vitesse est exprimée conventionnellement par s^{-1} .

On donne le spectre des vitesses de déformation disponible dans le tableau I.B-1[27].

Tableau I.B-1 : Spectre de la vitesse de déformation.

Gamme de vitesse de déformation (s^{-1})	Condition ou le type de tests
10^{-8} à 10^{-5}	Des tests à charge constante
10^{-5} à 10^{-1}	Test à tension statique (machines hydrauliques ou par vis)
10^{-1} à 10^2	Tension dynamique ou test de compression
10^2 à 10^4	Test à grande vitesse utilisant des barres d'impact (effets de propagation d'onde).
10^4 à 10^8	Hyper vitesse utilisant armes à feu (propagation d'onde-choc).

I-B-I-2 Détermination du coefficient de Lankford

I-B-I-2.1 : Détermination expérimentale directe

Le coefficient d'anisotropie est un paramètre qui caractérise l'emboutissabilité des matériaux. Le phénomène souvent observé en emboutissage est l'apparition de cornes. Ce sont des variations de hauteur de la paroi du godet. Leur formation est liée aux variations (ΔR) de R dans le plan de la tôle mince [28]. Les variations de R est de ΔR traduisent l'aptitude du matériau à l'emboutissage et à la formation de cornes d'emboutissage. L'emboutissage est optimum si la valeur de ΔR est faible, voire proche de zéro, et R le plus élevé possible.

Le coefficient de Lankford, tout comme n'importe quelle propriété anisotrope est étroitement lié aux textures cristallographiques.

I-B-I-2-2 : Détermination indirecte (à partir des FDOC)

Lors des opérations de mise en forme par emboutissage, les industriels sont souvent confrontés au problème de la formation de cornes d'emboutissage, à des variations de hauteur de la paroi de l'embouti. Leur formation est liée aux variations du coefficient de Lankford R dans le plan de la tôle mince [28]. Il a été montré que, plus R moyen était grand, plus l'embouti pouvait être profond.

Les premières études [28-29] sur le comportement plastique ont montré que la texture cristallographique était l'un des facteurs les plus importants responsable de l'anisotropie de la déformation plastique. L'intérêt est donc de rechercher les textures cristallographiques qui donnent les meilleurs emboutis.

Plusieurs auteurs ont essayé de corréliser le coefficient R à la texture dans le cadre de modèle de Taylor, soit à partir des figures de pôle inverses [30], soit à partir d'un certain nombre d'orientations idéales [31]. Toutefois, ces études ne pouvaient prévoir qu'une valeur moyenne de R, dans le plan de la tôle, puisque la prise en compte de la texture était imprécise et incomplète. Bunge et Roberts [32] ont été les premiers à utiliser la description quantitative des textures cristallographiques pour calculer les variations de R dans le plan de la tôle. Depuis, cette méthode a été souvent utilisée au laboratoire; citons par les travaux des références [33-37].

I-B-I-2-2.a : Modèle de TAYLOR

Nous nous intéressons ici au calcul du facteur de Taylor dans un matériau possédant une texture cristallographique. Dans le cas d'un essai de traction sur des éprouvettes plates, sous l'effet d'une contrainte uniaxiale Σ_1 dans la direction numéro 1, faisant un angle α avec la direction de laminage (figure I-1), le tenseur macroscopique de déformation dans le repère échantillon (DL, DT, DN) s'écrit :

$$[\mathbf{E}] = \mathbf{E}_1 \begin{vmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & \frac{-R}{1+R} & 0 \\ 0 & 0 & \frac{-1}{1+R} \end{vmatrix} \quad (\text{I.B.2})$$

Où \mathbf{E}_1 est la déformation dans la direction de sollicitation et R est le coefficient de Lankford, défini par :

$$R = \frac{E_2}{E_3} \quad (\text{I.B.3})$$

Partie B: Déformation plastique des métaux et alliages c.f.c et anisotropie de déformation

Nous pouvons utiliser aussi le rapport q , appelé le facteur de contraction de l'éprouvette qui est lié à R par une fonction homographique :

$$q = \frac{R}{1+R} \quad (\text{I.B.4})$$

Lorsque q varie de 0 à 1, R varie de 0 à l'infini, pour un matériau isotrope $E_2=E_3$ et donc $R=1$ et ($q=0.5$).

Soit un référentiel lié au cristal et défini par les axes du cube $[100]$, $[010]$ et $[001]$.

Le tenseur de déformation microscopique lié aux cristaux d'orientation g exprimé dans ce référentiel est :

$$D\varepsilon_{ij}(\mathbf{R}, \mathbf{g}, \alpha) = R_{ijkl}(\Psi, \theta, \varphi) dl(\mathbf{R}, \alpha) \quad (\text{I.B.5})$$

Où $R_{ijkl}(\Psi, \theta, \varphi) = R_{ik} R_{jl}$ est la matrice de rotation qui fait le passage du référentiel de l'échantillon au référentiel du cristal.

Le travail fourni par les cristaux ayant l'orientation g est :

$$dW = \sum_{ij} \sigma_{ij} d\varepsilon_{ij}(\mathbf{R}, \mathbf{g}) \quad (\text{I.B.6})$$

Où les états de contraintes σ_{ij} sont donnés par les sommets de la surface d'écoulement plastique correspondants aux systèmes de glissements considérés.

Dans le cas d'un glissement multiple dans un monocristal, on peut définir le facteur de Taylor comme une généralisation de l'inverse du facteur de Schmid :

$$M = \frac{dW_{\max}}{\tau_c d\varepsilon_1} \quad (\text{I.B.7})$$

Où τ_c est la cission critique pour le système de glissement $\{110\} \langle 111 \rangle$.

Le facteur de Taylor représente la résistance mécanique d'un cristal d'orientation donnée vis-à-vis d'une certaine déformation. Par conséquent, ce facteur dépend de la direction de sollicitation. Hosford et Backofen [31] ont défini le facteur de Taylor, pour une sollicitation dans la direction de laminage, d'un polycristal ayant une texture cristallographique, comme étant la moyenne des facteurs des différentes orientations g pondérée par la fraction volumique de cristaux possédant cette orientation. Cette hypothèse peut être étendue à toutes les directions de sollicitation situées à un angle α de la direction de laminage. On peut écrire :

$$M(\mathbf{R}, \alpha) = \frac{1}{K} \int M(\mathbf{R}, \mathbf{g}, \alpha) F(\mathbf{g}) d\mathbf{g} \quad (\text{I.B.8})$$

Partie B: Déformation plastique des métaux et alliages c.f.c et anisotropie de déformation

Où R est une constante de normalisation.

Pour chaque valeur de l'angle α considéré, la valeur de R du polycristal retenue est celle qui minimise le facteur de Taylor $M(R, \alpha)$. On peut minimiser le facteur de Taylor par rapport à q puis déduire R par :

$$\mathbf{R}(\alpha) = \frac{q_m}{(1-q_m)} \quad (\text{I.B.9})$$

Tel que q_m : le facteur de contraction de l'éprouvette.

Partie C

Considérations théoriques et généralités sur les phénomènes de recristallisation et restauration

Introduction

Les propriétés mécaniques des matériaux métalliques sont étroitement liées à la microstructure. Par conséquent, le contrôle de l'évolution de la microstructure pendant l'utilisation joue un rôle important dans l'optimisation des propriétés mécaniques des matériaux traités. Le traitement thermique est un des outils les plus importants pour améliorer l'aptitude à la mise en forme et contrôler la microstructure. Le traitement thermique des matériaux déformés regroupe des processus de relaxation de la microstructure, la restauration et plus particulièrement *la recristallisation*.

I-C-I:Phénomènes de restauration et de recristallisation

I-C-I-1 : Généralités

L'énergie emmagasinée dans un matériau augmente durant la déformation plastique à cause de l'introduction de nombreux défauts cristallins. Le matériau se retrouve dans un état thermodynamiquement instable. Lors d'un recuit, il a tendance à retourner dans un état plus stable grâce à l'activation de phénomènes tels que la restauration et la recristallisation. Comme son nom l'indique la recristallisation se traduit par la formation de nouveaux grains au dépend de la structure écrouie, alors la restauration permet un adoucissement du matériau par le réarrangement et l'annihilation, en général, partielle, des défauts cristallins (Figure I.C-1).

On distingue encore :

La croissance normale des grains, continuation du processus de recristallisation primaire lorsque tout le métal écroui a été consommé, conduisant à un accroissement continu de la croissance anormale des grains.

Partie C : Considérations théoriques et généralités sur les phénomènes de recristallisation et de restauration

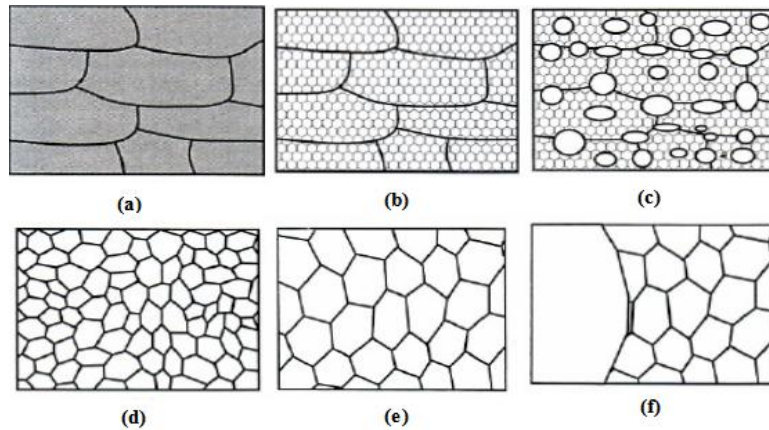


Figure I.C-1 : Représentation schématique de:

- a) L'état déformé,**
- b) L'état restauré,**
- c) L'état partiellement recristallisé,**
- d) L'état complètement recristallisé,**
- e) Lacroissance normale des grains,**
- f) La croissance anormale des grains [38].**

Cette croissance anormale ou recristallisation secondaire, au cours de laquelle un petit nombre de grains croissent aux dépens des autres (déjà recristallisés) (Figure I.C-1). On doit noter que les phénomènes de restauration et recristallisation sont statiques lorsqu'ils se produisent durant le recuit d'un matériau déformé. Si la déformation a lieu à une température suffisamment élevée, les processus de restauration opèrent simultanément à la déformation et sont appelés restauration dynamique et recristallisation dynamique.

I-C-I-2: Phénomènes de restauration

La restauration est définie comme étant un processus thermique qui se produit dans le matériau déformé, sans migration des joints à grand angle. Au cours de cette étape, on n'a pas de création de nouveaux grains, mais seulement une réduction du nombre de défauts atomiques, lacunes et dislocations et réarrangements de celles-ci en nouvelles configurations plus stables. La restauration permet un rétablissement partiel des propriétés physiques ou mécaniques du matériau écroui. La restauration se déroule en plusieurs étapes (Figure I.C-2). Dans un premier temps les dislocations se regroupent et se condensent dans les parois délimitant des cellules dans les quelles la densité de dislocations est plus faible. Dans un second temps, il y a réduction du nombre de dislocations de signes opposés dans les parois par annihilation et réorganisation de ces dislocations en réseaux bidimensionnels formant des sous joints, c'est l'étape de polyгонisation [24]. Enfin certains de ces sous-grains évoluent par les

Partie C : Considérations théoriques et généralités sur les phénomènes de recristallisation et de restauration

mouvements des sous-joints pour atteindre une structure minimisant l'énergie stockée. Chaque grain présente donc une sous-structure constituée de cellules ou de sous-grains désorientés de quelques degrés par rapport à l'orientation initiale du grain. Cette restauration peut être influencée par le taux de déformation, la température de recuit et les caractéristiques du matériau (énergie de défauts d'empilement, éléments en solution solide et précipités). La restauration est d'autant plus rapide et se fait à température d'autant plus basse que l'énergie stockée est plus élevée. La texture développée pendant la déformation ne change pas de manière appréciable pendant la restauration.

I-C-I-3 : Phénomènes de recristallisation

D'après un panel d'experts à ICOTOM 8 (International Conférence of texture on Materials) [39], la recristallisation d'un matériau est définie comme "les processus impliqués dans la formation et la migration de joints de grains à forte désorientation, sous l'influence de la force motrice dérivée de l'énergie stockée de déformation". Le processus de recristallisation des métaux et alliages déformés plastiquement permet de restaurer la ductilité et de contrôler la structure granulaire des matériaux métalliques. La recristallisation est habituellement divisée en deux stades : la germination et la croissance des germes dans la matrice écrouie.

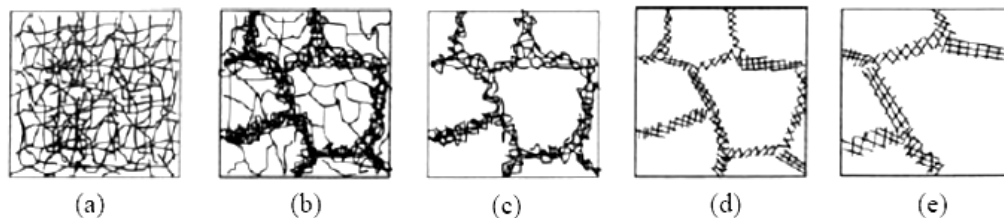


Figure I.C-2 : Différents stades de restauration d'un matériau déformé dans le domaine plastique :

- a) **Enchevêtrement de dislocations,**
- b) **Formation de cellules,**
- c) **Annihilation des dislocations dans les cellules,**
- d) **Formation des sous-grains,**
- e) **Croissance de sous-grains[38].**

I-C-I-3-1 : Recristallisation des alliages biphasés

La plupart des alliages commerciaux, comme les aciers, ceux à base d'Al et Cu, ne sont pas des solutions solides homogènes et stables. Ils sont plutôt constitués de plusieurs phases qui ne sont pas souvent à l'équilibre thermodynamique [39]. Un intérêt particulier s'est

Partie C : Considérations théoriques et généralités sur les phénomènes de recristallisation et de restauration

manifesté récemment pour la recristallisation des solutions solides sursaturées et alliages biphasés, une recristallisation totalement différente de celle des métaux purs et des solutions solides stables et homogènes [41-46]. Les effets des particules et des précipités sur la recristallisation semblent être d'une grande complexité. Les particules peuvent soit accélérer, retarder ou inhiber la recristallisation. Ces phénomènes sont cependant compris car ils sont utilisés pour l'élaboration et la mise en forme des matériaux avec des microstructures et texture appropriées.

I-C-I-3-2 : Recristallisation de solutions solides sursaturées

Dans un alliage sursaturé et contenant des défauts, les particules de la seconde phase peuvent précipiter aux mêmes domaines de températures où peut avoir lieu la recristallisation.

La précipitation et la recristallisation exercent une mutuelle influence l'une sur l'autre. Les particules précipitées exercent une obstruction aussi bien sur le réarrangement des dislocations pour former des fronts de recristallisation que sur leur migration. Les défauts présents dans le cristal accélèrent fortement la germination des particules de phases qui elles-mêmes vont affecter le réarrangement des dislocations et la migration des joints de grains. La précipitation discontinue, au contraire, augmente la vitesse du front de recristallisation. C'est seulement quand la recristallisation est complète avant le début de la précipitation que les deux réactions ont lieu indépendamment.

I-C-I -3-3 Lois de la recristallisation

Les lois de recristallisation d'après [47] peuvent être résumées comme suit :

- a) La recristallisation ne se produit qu'après une certaine déformation minimale, dite *écrouissage critique*.
- b) Plus la déformation est faible, plus la température de recristallisation est élevée :
La température de recristallisation est la température minimale à laquelle le métal doit être recuit pour que la recristallisation se produise en un temps donné.
- c) La température de recristallisation est d'autant plus basse que le temps de recuit est plus long (pour une même déformation).
- d) La taille des grains après recristallisation décroît lorsque le taux de déformation augmente ou lorsque la température de recuit décroît.
- e) Plus la dimension des grains initiaux est grande, plus élevée sera la déformation requise pour produire la recristallisation, dans des conditions de température et de temps données.

Partie C : Considérations théoriques et généralités sur les phénomènes de recristallisation et de restauration

- f) Les nouveaux grains ne croissent pas aux dépens de grains déformés d'orientation voisine.
- g) A une température donnée, la vitesse de recristallisation (volume recristallisé par unité de temps) part d'une valeur nulle, croît et passe par un maximum : d'où la forme caractéristique des courbes de cinétique de recristallisation, qui commencent par une "période d'incubation".
- h) La température de recristallisation est d'autant plus basse que la pureté du métal est plus élevée.

I-C-I-3-4 : Concurrence de précipitation et recristallisation dans les alliages

La précipitation et la recristallisation exercent une mutuelle influence l'une sur l'autre. Les effets des particules et des précipités sur la recristallisation semblent être d'une grande complexité les particules peuvent soit accélérer, retarder ou inhiber la recristallisation [48].

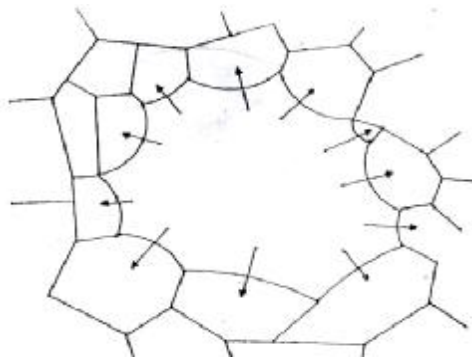


Figure I.C-3 : Croissance anormale du grain

Les particules précipitées exercent une obstruction aussi bien sur le réarrangement des dislocations pour former des fronts de recristallisation que sur leurs migrations. Les défauts présents dans le cristal accélèrent fortement la germination des particules de phases qui elles-mêmes vont affecter le réarrangement des dislocations et la migration des joints de grains. La précipitation discontinue, au contraire augmente la vitesse du front de recristallisation. C'est seulement quand la recristallisation est complète avant le début de la précipitation que les deux réactions ont lieu indépendamment [48].

I-C-I-3-5 : Ordre d'apparition de la précipitation et de la recristallisation

Afin d'établir une vue générale des conditions sous lesquelles l'influence mutuelle de la précipitation et de la recristallisation a lieu, considérons le diagramme de la dépendance du début des deux réactions en fonction du temps (diagramme TTT). Le début de la

Partie C : Considérations théoriques et généralités sur les phénomènes de recristallisation et de restauration

recristallisation, en supposant une taille constante des germes de recristallisation, obéit à cette équation :

$$t_R = t_{R0}(\rho) \exp \frac{Q_R(\rho)}{RT} \quad (\text{I.C.1})$$

Où t_{R0} est un facteur qui contient la force motrice de la réaction, un terme d'entropie et des facteurs géométriques. $Q_R(\rho)$ est l'énergie d'activation pour la formation du front de recristallisation et est de l'ordre de grandeur de l'énergie d'activation de l'autodiffusion. Elle décroît quand la densité de dislocations ρ augmente.

La période d'incubation pour la précipitation (pour une seule phase stable) est donnée par l'équation :

$$t_{RP} = t_{P0}(\rho) \exp \frac{Q_P(T,\rho) + Q_D}{RT} \quad (\text{I.C.2})$$

Où t_{P0} est un facteur qui contient un terme d'entropie des facteurs géométriques.

$Q_P(T, \rho)$ est l'énergie d'activation de la germination de la seconde phase. Elle dépend fortement du refroidissement rapide en dessous de la température d'équilibre et de la structure des défauts dans la matrice sursaturée [49].

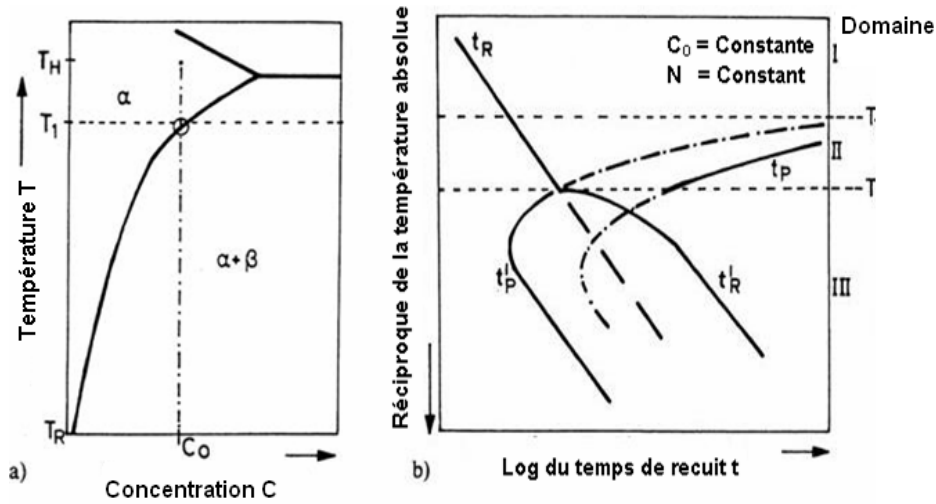


Figure I.C-4 : Apparition de la recristallisation et de la précipitation :

a) Diagramme de phases schématisant un alliage de concentration C_0 est homogénéisé à la température T_H , trempé à T_R puis déformé plastiquement à l'état sursaturé.

Partie C : Considérations théoriques et généralités sur les phénomènes de recristallisation et de restauration

b) Diagramme TTT du début de précipitation et de recristallisation, t_P est le début de la précipitation dans l'alliage non déformé, t'_P aux dislocations. t_R est le début de la recristallisation dans la solution solide, t'_R son début quand elle est influencée par les particules de précipité.

Aux faibles valeurs de T , c'est-à-dire pour un refroidissement rapide considérable, $Q_P(T, \rho)$ reste faible comparativement à l'énergie d'activation de la diffusion Q_D . Les deux évolutions sont présentées en Figure I.C-4. Trois domaines de température se dégagent sur la base de ce diagramme pour le comportement en recristallisation :

Domaine I : La recristallisation est influencée seulement par la ségrégation, aucune précipitation n'a lieu.

Domaine II : La recristallisation est influencée seulement par la ségrégation, la précipitation procède après la fin de la recristallisation.

Domaine III : Les particules précipitées influencent bien également le réarrangement des dislocations pour former les fronts de recristallisation et leur migration.

La transition de T_2 n'est pas brutale car une certaine période est nécessaire pour la terminaison de la recristallisation. Dans cette région de transition, les caractères comportementaux des domaines II et III ont lieu simultanément en différents sites de l'échantillon. La structure de déformation n'est pas homogène. Il existe des régions avec de très hautes densités de dislocations et des courbures locales du réseau dites : *bandes de déformations* ou *de transition*. Ces bandes sont des frontières entre les différentes parties du cristal qui ont subi différents degrés de rotation au cours de la déformation. La recristallisation et la précipitation débute dans ces bandes de transition et s'étendent vers les régions intermédiaires.

Partie D

Notions sur la texture cristallographique

Des métaux alliages c.f.c

Introduction

Un matériau polycristallin est formé d'un agrégat de grains d'orientations différentes. à l'échelle macroscopique, la statistique de distribution de ces orientations, désignée par texture cristallographique, a un effet important sur le comportement anisotrope d'un polycristal.

I-D-I : Description de la texture dans les matériaux polycristallins

La caractérisation de la texture consiste à définir l'orientation (g) des cristallites définie par rapport à un référentiel lié à l'échantillon. Ce dernier est déterminé en fonction de la géométrie et de l'historique mécanique de l'échantillon. Par convention, dans le cas d'une tôle laminée, il est défini par les trois directions suivantes indiquées sur (Figure I.D-1) et définies par :

- Ø DL est la direction de laminage parallèle à OX (sens de la longueur),
- Ø DT est la direction transverse parallèle à OY (sens de la largeur),
- Ø DN est la direction normale au plan de laminage (DL, DT) parallèle à OZ.

Le référentiel lié à la cristallite (Oxyz) est déterminé en fonction de la symétrie cristallographique. Pour une symétrie cubique, on associera à chaque cristallite le trièdre Oxyz tel que Ox//[100], Oy//[010] et Oz//[001]. L'orientation de la cristallite est définie alors par la rotation g qui permet d'amener en coïncidence, à une translation près, le référentiel Oxyz avec celui lié à l'échantillon.

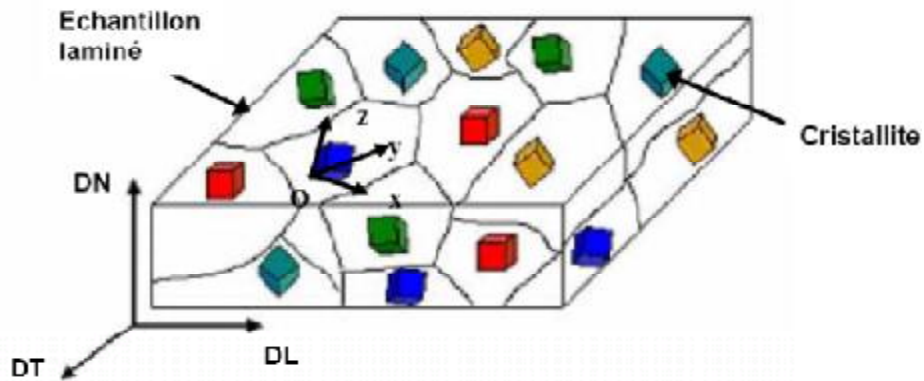


Figure I.D-1 : Représentation schématique d'un matériau polycristallin.

(Chaque couleur représente un grain différent, ainsi qu'une orientation différente).

Divers choix sont possibles pour caractériser l'orientation du réseau comme les représentations de Roe ou de Canova (voir Tableau I.D-1), mais la plus utilisée est celle de Bunge. Ces représentations sont toutes basées sur les angles d'Euler.

Tableau I.D-1 : Correspondances entre les différentes représentations usuelles des angles d'Euler.

Matthies	Roe	Bunge	Canova	Kocks
A	Ψ	$\varphi_1 = \alpha + \pi/2$	$\omega = \pi/2 - \alpha$	Ψ
B	Θ	Φ	Θ	Θ
Γ	Φ	$\varphi_2 = \gamma + 3\pi/2$	$\varphi = 3\pi/2 - \gamma$	$\Phi = \pi - \gamma$

Plusieurs méthodes de paramétrage de cette rotation sont utilisées : matrice de transformation des coordonnées, angles d'Euler, représentation par les indices de Miller etc.... Ces deux dernières représentations des orientations sont les plus couramment utilisées en métallurgie.

I-D-I-1: Représentation par les indices de Miller

La représentation de la texture par les indices de Miller est la plus courante. L'orientation cristallographique des cristallites est décrite par :

- la détermination du plan cristallographique {hkl} parallèle au plan de laminage (DL, DT),
- la donnée de la direction cristallographique <uvw> parallèle à la direction de laminage (DL).

Les orientations sont notées : $g=\{hkl\}\langle uvw\rangle$

Cette description des textures est qualitativement intéressante car elle indique de façon très claire les orientations principales du matériau mais elle reste insuffisante d'un point de vue statistique et quantitatif. En effet, elle ne fournit aucune information sur l'ensemble de la distribution statistique des composantes: fraction volumique, dispersion, etc.

I-D-I-2: Utilisation des angles d'Euler

L'orientation cristalline d'un grain peut être repérée dans le système d'axes lié à l'échantillon par trois angles d'Euler ($\varphi_1, \phi, \varphi_2$) qui décrivent les trois rotations successives qui amènent en coïncidence les deux repères.

Selon les conventions de Bunge, les angles $\varphi_1, \phi, \varphi_2 (0 \leq \varphi_1, \varphi_2 \leq 2\pi, 0 \leq \phi \leq \pi)$ correspondent à des rotations respectivement autour de Oz_1 (DN), Ox_2 et Oz_3 (Figure I.D-2).

L'orientation cristalline est alors décrite par ces trois rotations $g (\varphi_1, \phi, \varphi_2)$. Les 3 angles peuvent être représentés dans un système tridimensionnel de coordonnées cartésiennes ; l'espace ainsi défini est appelé : *espace d'Euler* (ou espace des orientations)

Partie D : Notions sur la texture cristallographique Des métaux alliés c.f.c

dans lequel chaque point représente une orientation cristalline g à laquelle est associée une densité d'orientation $F(g)$.

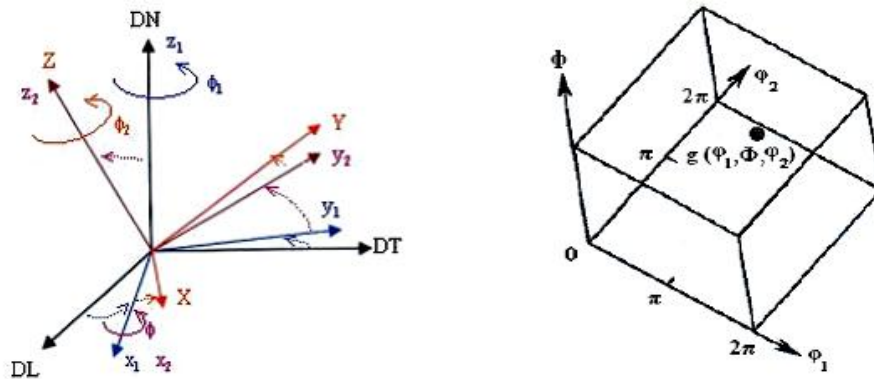


Figure I.D-2 : Définition des angles et de l'espace d'Euler.

On définit les angles d'Euler par :

1. Rotation d'un angle φ_1 ($0 \leq \varphi_1 \leq 2\pi$) autour de DN, ($O, DL, DT, DN \rightarrow Oxy_1z_1$), elle correspond à la transformation $\{s'\} = g(\varphi_1)\{s\}$, avec la matrice de rotation

$$g(\varphi_1) = \begin{vmatrix} \cos \varphi_1 & \sin \varphi_1 & 0 \\ -\sin \varphi_1 & \cos \varphi_1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{vmatrix} \quad (I.D.1)$$

2. Rotation d'un angle Φ ($0 \leq \Phi \leq \pi$) autour de l'axe Ox_1 ($Oxy_1z_1 \rightarrow Ox_2y_2z_2$), elle correspond à la transformation $\{s''\} = g(\Phi)\{s'\}$, avec la matrice de rotation

$$g(\Phi) = \begin{vmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & \cos \Phi & \sin \Phi \\ 0 & -\sin \Phi & \cos \Phi \end{vmatrix} \quad (I.D.2)$$

3. Rotation d'un angle φ_2 ($0 \leq \varphi_2 \leq 2\pi$) autour de l'axe Oz_2 ($Ox_2y_2z_2 \rightarrow Ox_3y_3z_3$), elle correspond à la transformation $\{c\} = g(\varphi_2)\{s''\}$, avec la matrice de rotation :

$$g(\varphi_2) = \begin{vmatrix} \cos \varphi_2 & \sin \varphi_2 & 0 \\ -\sin \varphi_2 & \cos \varphi_2 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{vmatrix} \quad (I.D.3)$$

L'ensemble de ces trois rotations est équivalent à la transformation suivante :

$$\{c\} = g(\varphi_1, \Phi, \varphi_2)\{s\} \quad (I.D.4)$$

Avec $g(\varphi_1, \Phi, \varphi_2)$ matrice de rotation résultante, qui est le produit des trois matrices, elle est définie par la matrice ci-dessous :

$$g(\varphi_1, \Phi, \varphi_2) = g(\varphi_1)g(\Phi)g(\varphi_2) \quad (\text{I.D.5})$$

d'où :

$$g(\varphi_1, \Phi, \varphi_2) = \begin{vmatrix} \cos \varphi_2 \cos \varphi_1 - \sin \varphi_2 \sin \varphi_1 \cos \Phi & \cos \varphi_2 \sin \varphi_1 + \sin \varphi_2 \cos \varphi_1 \cos \Phi & \sin \varphi_2 \sin \Phi \\ -\sin \varphi_2 \cos \varphi_1 - \cos \varphi_2 \sin \varphi_1 \cos \Phi & -\sin \varphi_2 \sin \varphi_1 + \cos \varphi_2 \cos \varphi_1 \cos \Phi & \cos \varphi_2 \sin \Phi \\ \sin \varphi_1 \sin \Phi & -\cos \varphi_1 \sin \Phi & \cos \Phi \end{vmatrix} \quad (\text{I.D.6})$$

Remarque

Dans le formalisme de Roe, les angles utilisés sont y, q et f , la deuxième rotation se fait autour de Oy_1 au lieu de Ox d'où la matrice de rotation $g(\theta)$ s'écrit sous la forme ci-dessous, et qui est différente de $g(\Phi)$:

$$g(\theta) = \begin{vmatrix} \cos \theta & 0 & -\sin \theta \\ 0 & 1 & 0 \\ \sin \theta & 0 & \cos \theta \end{vmatrix} \quad (\text{I.D.7})$$

Les relations d'équivalences qui existent entre les deux représentations sont mentionnées dans le tableau I.D-1.

I-D-I-3: Fonction de Distribution des Orientations Cristallines (FDOC)

La fonction de densité des orientations cristallines est définie par la fraction volumique :

$$\frac{dV(g)}{V} \quad (\text{I.D.8})$$

Des grains ayant une orientation g à dg près:

$$\frac{dV(g)}{V} = f(g) dg \quad (\text{I.D.9})$$

dg est le volume élémentaire dans l'espace d'Euler

$$dg = \frac{1}{8\pi^2} \sin \Phi d\Phi d\varphi_1 d\varphi_2 \quad (\text{I.D.10})$$

Cette fonction est positive et normée à 1. Pour des orientations cristallines aléatoires, à chaque orientation correspond une même fraction volumique; on a donc $f_{\text{aléatoire}}(g) = 1$. La fonction de densité est donc normalisée en multiples de la densité aléatoire et l'unité utilisée est alors le m.r.d. (multiples of the random density). La FDOC est donc une fonction tridimensionnelle représentée dans l'espace d'Euler par des surfaces d'isodensités construites à partir des densités $f(g)$ associées à chaque point ou orientation $g(\varphi_1, \varphi, \varphi_2)$. Cette fonction fournit une information statistique complète de la distribution des orientations cristallines.

Partie D : Notions sur la texture cristallographique Des métaux alliages c.f.c

Son exploitation permet de repérer les orientations préférentielles, les dispersions angulaires autour des orientations idéales, de visualiser les textures de fibres (ensemble continu, etc.) et de quantifier les fractions volumiques des composantes de texture.

Il est usuel de décomposer cette fonction tridimensionnelle en coupes bidimensionnelles (voir en section unidimensionnelle) telles que φ_1 ou φ_2 soit constant, le pas utilisé est généralement de 5° . La figure I.D-3 donne un exemple de FDOC. Les orientations cristallographiques préférentielles correspondent aux renforcements de la FDOC et sont désignées en utilisant la description métallurgique, les relations de passage étant:

$$h = n \sin\Phi \sin\varphi_2; k = n \sin\Phi \cos\varphi_2; l = n \cos\Phi; u = n' (\cos\varphi_1 \cos\varphi_2 - \sin\varphi_1 \sin\varphi_2 \cos\Phi);$$

$$v = n' (-\cos\varphi_1 \sin\varphi_2 - \sin\varphi_1 \cos\varphi_2 \cos\Phi); w = n' \sin\Phi \sin\varphi_1;$$

Où n et n' sont des facteurs pour obtenir des entiers.

La fonction FDOC ne peut pas être déterminée expérimentalement directement mais elle est calculée à partir des distributions des densités d'orientation bidimensionnelles que l'on peut mesurer, appelées *figures de pôles*.

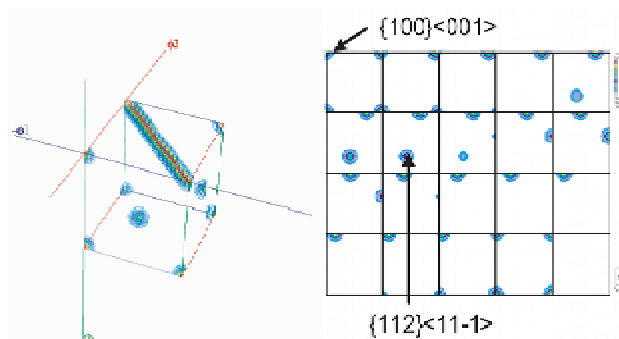


Figure I.D-3 : Fonction des distributions des orientations cristallines en représentation 3D et en coupes à φ_2 constant. Les renforcements observables correspondent aux orientations: $\{100\}\langle 001\rangle$ dite « cube » et $\{112\}\langle 11-1\rangle$ dite « cuivre ».

I-D-I-4-1 : Figures de pôles

Une figure de pôles directe (FDP) est la projection stéréographique sur le plan de l'échantillon, de la distribution des densités de pôles d'une famille de plans $\{hkl\}$ dans toutes les directions de l'échantillon. Celles-ci sont données par l'ensemble des couples (χ, φ) (χ et φ sont les angles repérant le plan cristallographique $\{hkl\}$ par rapport aux axes du référentiel échantillon : $\chi \in [0, 90^\circ]$, $\varphi \in [0, 360^\circ]$) (Figure I.D-4). Le principe de la projection est le suivant : pour un élément cristallin de volume unité donné, on suppose qu'il existe un plan cristallographique $\{hkl\}$ passant par le centre d'une sphère imaginaire (Σ) ; la normale au plan $\langle hkl \rangle$ perce la demi-sphère de référence en P_1 . Le point P_2 intersection de SP_1 avec le plan

Partie D : Notions sur la texture cristallographique Des métaux alliages c.f.c

π est le pôle du plan réticulaire étudié. Si l'on recommence avec tous les éléments de volume du matériau, on obtient la figure de pôles $\{hkl\}$ rapportée aux axes liés à l'échantillon. En particulier le plan π est, pour une tôle, le plan de laminage.

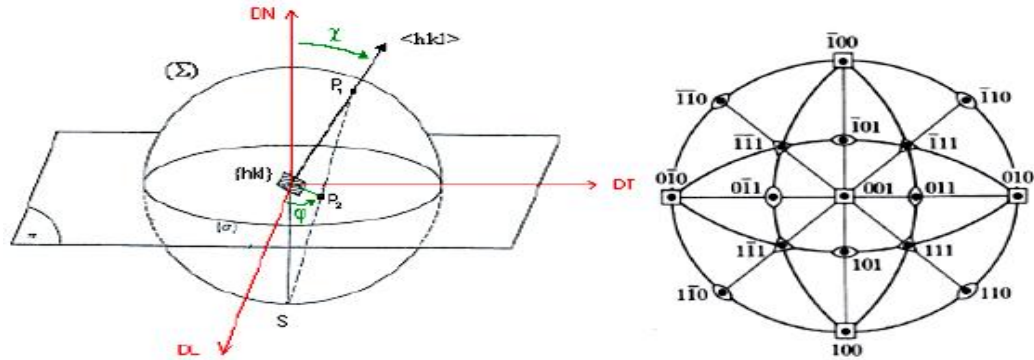


Figure I.D-4 : Projection stéréographique : principe et projection $\{100\}$ d'un cristal de structure cubique.

Sur la Figure I.D-5 est donné un exemple de projection stéréographique de type $\{100\}$. Elle est construite en supposant le cristal orienté tel que le plan $[001]$ est parallèle au plan π , les pôles reportés correspondent aux projections des plans des familles $\{100\}$, $\{110\}$ et $\{111\}$.

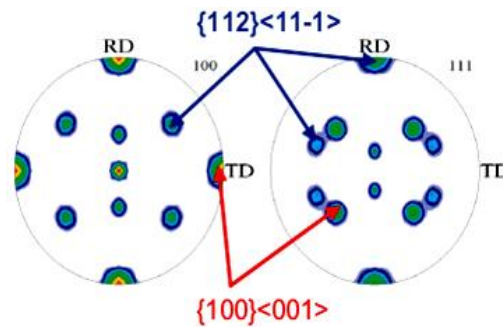


Figure I.D-5 : Figures de pôles $\{100\}$ et $\{111\}$ d'un matériau à symétrie cubique.

Chaque figure de pôles correspond en fait à une multitude d'orientations différentes obtenues par rotation δ autour de la direction $\langle hkl \rangle$. Ainsi, pour une famille de plan $\{hkl\}$, la densité de pôles en un point (χ, φ) est donnée par l'intégrale :

$$q_{hkl}(\chi, \varphi) = \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} f(g) d\gamma \quad (\text{I.D.11})$$

I-D-I-4-2: Principe de la mesure des textures par diffraction des rayons X

La description quantitative des textures nécessite de déterminer expérimentalement, pour plusieurs familles de plans $\{hkl\}$, la densité de pôles en chaque point (χ, φ) . La diffraction des rayons X ou des neutrons produit ces informations. La spécificité du rayonnement choisi a des incidences sur la technique de mesures ainsi que sur les applications.

I-D-I-4-2-1: Diffraction des rayons X

La technique des rayons X peut être employée pour déterminer l'orientation cristallographique grain par grain. L'utilisation la plus courante est la mesure globale par diffraction de poudre. Le principe repose sur le fait que l'intensité diffractée par un échantillon polycristallin dépend, entre autre, de la fraction volumique des cristallites en position de Bragg. En présence de texture, cette fraction volumique varie avec l'orientation de l'échantillon par rapport au faisceau incident. Pour mesurer une figure de pôles correspondante à la famille de plans $\{hkl\}$, l'échantillon généralement plan et le diffractomètre sont positionnés pour respecter les conditions de Bragg : le berceau fait un angle θ avec le faisceau incident et le détecteur est placé à un angle 2θ . Pour explorer la figure de pôles, l'échantillon est installé au centre d'un cercle d'Euler qui assure les rotations (χ, φ) . χ est une rotation polaire comprise entre 0 et 90°; φ est une rotation azimutale comprise entre 0 et 360° (Figure I.D-6).

L'échantillon est positionné initialement ($\chi=0, \varphi=0$) avec DT parallèle au faisceau incident, DN est parallèle à l'axe de rotation φ . L'intensité diffractée est mesurée pour différentes positions (χ, φ) obtenues par pas successifs $\Delta\chi$ et $\Delta\varphi$ d'environ 5° (les pas peuvent être resserrés pour des textures très accusées et peu dispersées). Le problème de ce montage est lié au phénomène de défocalisation qui correspond à la décroissance de l'intensité mesurée avec l'augmentation de l'inclinaison χ qui est due à une variation de géométrie du faisceau. Ce phénomène nécessite des corrections importantes des intensités mesurées mais surtout limite les mesures à $\chi=70^\circ$. Par conséquent, les figures de pôles obtenues avec ce montage sont toujours incomplètes (Figure I.D-6).

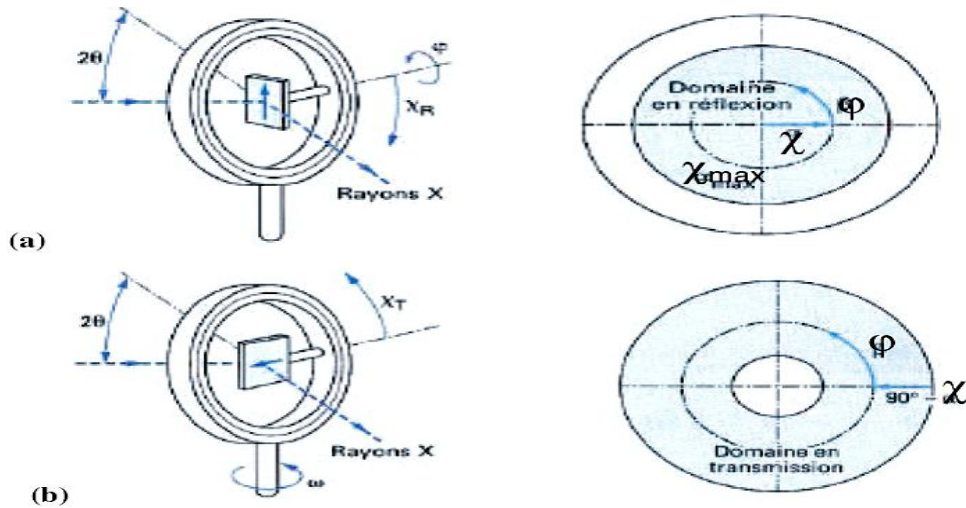


Figure I.D-6 : Montage et principe des rotations (χ , ϕ) pour l'obtention d'une figure de pôles par diffraction des rayons X en : (a) réflexion, (b) transmission.

(La flèche représente la direction de laminage du repère lié à l'échantillon et la représentation du domaine couvert sur la figure de pôles).

Le plus souvent, les figures entières peuvent être reconstruites lors du calcul de la FDOC à partir des mesures en réflexion. Si les périphéries sont importantes pour les interprétations, il faut utiliser alors un montage en transmission pour réaliser ces mesures. Le montage en transmission nécessite d'amincir suffisamment l'échantillon pour qu'une partie du faisceau diffracté soit transmise, compte tenu de l'absorption des rayons X. C'est alors le plan de l'échantillon qui est maintenu parallèle à l'axe ϕ , ϕ étant fixé à 0 pour que la direction normale reste parallèle à l'axe de la rotation χ (Figure I.D-6).

La figure de pôles est explorée en faisant varier les angles χ et $\omega(\theta)$. En transmission, la zone ainsi couverte est limitée à χ compris entre 60° et 90° , un recouvrement entre les deux techniques permet de raccorder les intensités relatives à chaque domaine. La méthode de diffraction des rayons X est la technique la plus courante pour caractériser les textures cristallographiques. Elle est rapide, assez simple à mettre en œuvre dans la majorité des cas si on se limite au domaine de la réflexion. Le temps de comptage pour une orientation (χ , ϕ) est de quelques secondes, ce qui amène le temps de mesure d'une figure de pôles de 1152 points (72 pas en $\phi \times 16$ valeurs de χ) à environ 3 heures. Si le diffractomètre est muni d'un multicompteur, toutes les figures de pôles sont mesurées simultanément. Néanmoins, les mesures doivent être corrigées de la défocalisation, du volume absorbant puis du bruit de fond (intensité mesurée en dehors d'un pic de Bragg). Ces corrections induisent des imprécisions

qui peuvent être importantes. La diffraction des neutrons apporte une meilleure résolution et des avantages supplémentaires.

D-II: Texture dans les alliages métalliques cubiques à faces centrées (c.f.c.)

D-II-1 : Texture de déformation

Lors d'un processus de déformation plastique d'un matériau polycristallin, des changements d'orientations se produisent. Les grains subissent des rotations qui modifient leurs orientations, chaque grain subit une déformation différente de celles de ses voisins. Ces rotations dépendent du mode de déformation imposé au matériau, ainsi que des systèmes de glissement activés dans chaque grain. Par conséquent, les grains acquièrent des orientations privilégiées, ou texture dite texture de déformation.

Dans le cas des matériaux c.f.c. ayant été déformés par laminage unidirectionnel, on rencontre deux types de textures : la texture de type Cuivre et la texture de type Laiton.

De même, il a été souligné l'existence d'une texture de transition (texture intermédiaire entre la texture type cuivre et la texture de type laiton) [50]. Cette texture est généralement corrélée à l'énergie de défaut d'empilement γ_{SFE} . En effet, la texture cuivre est observée dans les matériaux à forte valeur de γ_{SFE} contrairement à la texture laiton dans les matériaux à faible valeur de γ_{SFE} .

La texture de type laiton se développe principalement dans l'argent et dans les alliages comme le laiton (Cu-Zn) [51], Cu-Al, Cu-Ge, Ag-Al, Ag-Au. Elle est constituée par une fibre appelée α allant de l'orientation G (Goss) $\{1\ 1\ 0\}\langle 001\rangle$ en $\varphi_1=0^\circ$, $\Phi=45^\circ$, $\varphi_2=0^\circ$ ou 90° vers l'orientation laiton (B) $\{1\ 1\ 0\}\langle 112\rangle$ en $\varphi_1=35^\circ$, $\Phi=45^\circ$, $\varphi_2=0^\circ$ ou 90° .

La texture de type cuivre se développe dans presque tous les métaux c.f.c. purs (Cu, Al, Ni, Au) [52] après laminage à température ambiante (Laminage à Froid, LAF). Elle est constituée par trois orientations principales B $\{1\ 1\ 0\}\langle 112\rangle$ (orientation dite «Laiton», B pour « Brass »), S $\{123\}\langle 634\rangle$ et C $\{1\ 1\ 2\}\langle 111\rangle$ (orientation dite de « cuivre ») décrivant une fibre β .

La fibre β va de l'orientation B $\{1\ 1\ 0\}\langle 112\rangle$ en $\varphi_1=35^\circ$, $\Phi=45^\circ$, $\varphi_2=0^\circ$ ou 90° vers l'orientation C (cuivre) $\{1\ 1\ 2\}\langle 111\rangle$ en $\varphi_1=90^\circ$, $\Phi=35^\circ$, $\varphi_2=45^\circ$ en passant par l'orientation S $\{123\}\langle 634\rangle$ en $\varphi_1=59^\circ$, $\Phi=37^\circ$, $\varphi_2=63^\circ$ (Figure I.D-7).

Une texture de transition du type cuivre au type laiton est souvent observée, en ajoutant progressivement un élément d'alliage ou en baissant la température de laminage d'un même alliage [53,24] a observé dans le système nickel-cobalt, à la température de l'azote

Partie D : Notions sur la texture cristallographique Des métaux alliages c.f.c

liquide, une texture cuivre jusqu'à 15 % de cobalt et celle du laiton à partir de 35 %. Hu et Goodman (1963) ont observé des textures de transition entre les textures du cuivre laminé à -80° , -140° et -196°C et les textures des laitons à 3.6 et 10 % de zinc déformés à température ambiante.

Les textures de transition peuvent inclure l'ensemble des orientations appartenant aux fibres α et β , chacune de ces orientations ayant un poids variable au sein de la texture de déformation, en fonction de l'élément d'addition ainsi que son pourcentage dans l'alliage considéré.

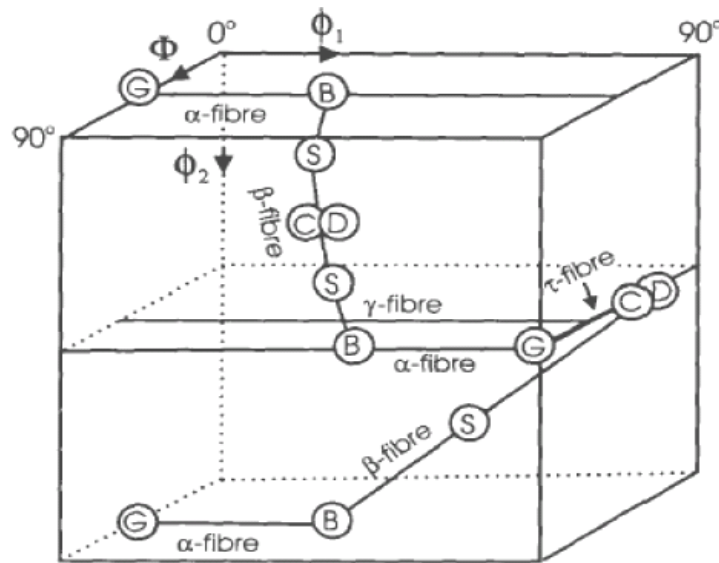


Figure I.D-7 : Position des fibres principales α et β de la texture de laminage des matériaux c.f.c dans l'espace des orientations [54].

I-D-II-2 : Texture de recristallisation

Les textures de recristallisation dans les métaux c.f.c. ont fait l'objet d'études très diverses, car plusieurs paramètres peuvent influencer leurs formations : compositions et état de précipitation, taux de déformation, température et condition de laminage etc., mais l'origine exacte du développement des textures de recristallisation est traduit dans la littérature [48] par deux mécanismes :

I-D-II-2.1 : Germination orientée [55]

Le développement de la texture de recristallisation est supposé provenir du caractère préférentiel de l'étape de germination. La théorie de la germination orientée suppose que la texture de recristallisation est due au développement préférentiel des germes potentiels

présents dans la structure déformée et qui ont subi une restauration et une polygonisation rapide par rapport aux cristallites d'autres orientations.

Dans le cas du cuivre pur fortement déformé, cette théorie explique le développement de germes orientés cube au travers de la haute fréquence de ces derniers à l'état déformé [56]. A l'origine, cette théorie prévoit des taux de croissance identiques pour l'ensemble des germes susceptibles de croître (ce qui fut par la suite considéré comme non réaliste physiquement). Les études expérimentales réalisées par Ridha [57] allèrent dans le sens de l'hypothèse de la germination orientée, puisqu'ils observèrent une germination rapide de l'orientation Cube proche des bandes de transition, lui permettant de dominer largement l'étape de croissance.

I-D-II-2.2 : Croissance orientée

La théorie de la croissance orientée est fondée sur la croissance des grains désorientés d'environ 40° autour d'un axe $\langle 111 \rangle$ par rapport au grain voisin. Cette valeur de 40° autour de l'axe $\langle 111 \rangle$, relation d'orientation fondamentale dans la théorie de la croissance orientée, assure une forte mobilité du grain en croissance dans une matrice déformée [39].

De nombreux travaux ont tenté d'expliquer la texture de recristallisation de type cube par ce mécanisme [38-39], les deux mécanismes doivent coexister, mais dans certains cas, l'un peut prédominer: la germination orientée explique simplement l'existence de textures de recristallisation identiques à la texture de déformation.

Dans les métaux et les alliages de structures c.f.c, on observe divers types de texture suivant l'énergie de défaut d'empilement du matériau et le mode de déformation. La texture de recristallisation des matériaux de forte et moyenne énergie de défaut d'empilement, fortement déformés par laminage, est de type cube (l'orientation dominante au sein de cette texture étant la composante cube $\{100\}\langle 001 \rangle$).

De même, dans les métaux de structure c.f.c. dont l'énergie de défaut d'empilement n'est pas très élevée (cuivre et ses alliages, acier inoxydable, austénite), il se forme au cours de la recristallisation et surtout lors de la croissance des composantes mineures correspondant aux orientations de mâcles de recuit. Le processus de maclage crée de nouvelles orientations qui n'étaient pas présentes dans la matrice. En conséquence, la texture de recristallisation devient de plus en plus aléatoire, surtout avec l'apparition de nouvelles générations de mâcles de recuit [59,60].

Tableau I.D-2 : Différentes composantes de texture des matériaux laminés c.f.c.

Composante de texture	{hkl} <uvw>	Angles d'Euler (°) ($\varphi_1, \varphi_2, \varphi_3$)
Brass	{011} <112>	(35, 45, 90)
Goss	{011} <100>	(0, 45, 0 ou 90), (90, 90, 45)
S	{231} <634>	(27, 64, 14)
Cu	{112} <111>	(90, 35, 45)
Cu maclée	{525} <1-51>	(90, 74, 45)
Cube	{100} <001>	(0, 0, 0), ($\varphi_1, 0, 90 - \varphi_1$)
Twin Cube	{122} <221>	(45, 71, 45)

La figure I-D.8 montre les positions idéales des composantes de la texture dans les systèmes c.f.c.

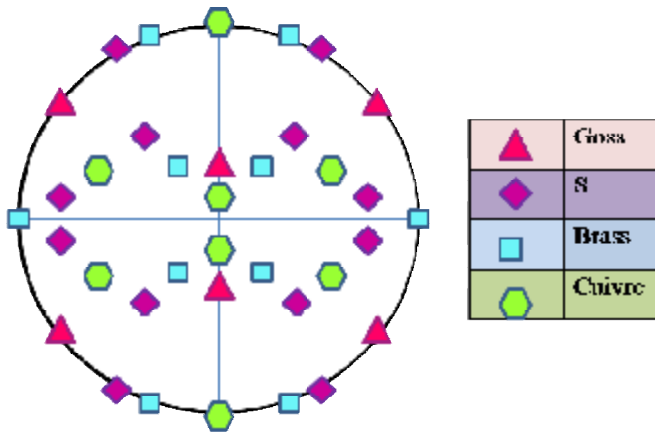


Figure I-D.8 : Représentation des composantes idéales dans une figure de pôles {111}.

I-D-II-3: Méthodes d'analyse de la texture

Ces méthodes sont basées sur des mathématiques très compliquées.

I-D-II-3.1: Méthodes harmoniques

La méthode harmonique consiste à décomposer les figures de pôles mesurés en séries de fonctions harmoniques sphériques symétrisées pour prendre en compte la symétrie du réseau cristallin. Elle a été proposée par Wiggin[61] dans les années 1960 et améliorée par Bunge et Roe[62, 63]. La FDOC peut alors être décomposée en chaque point ($\varphi_1, \varphi_2, \varphi_3$) dans l'espace d'Euler [64-65] en harmoniques sphériques généralisées :

$$f(g) = \sum_{l=0}^{\infty} \sum_{m=-l}^{+l} \sum_{n=-l}^{+l} C_l^{mn} T_l^{mn}(g) \quad (\text{I.D.12})$$

Où C_l^{mn} représente les coefficients de Fourier de la fonction $f(g)$ et $T_l^{mn}(g)$ représente les harmoniques sphériques généralisées.

Cette transformation mathématique peut entraîner des erreurs de troncature qui s'ajoutent aux erreurs expérimentales. C'est en partie pour cette raison que d'autres méthodes ont été proposées.

I-D-II-3.2: Méthodes discrètes

Une méthode discrète a été proposée par Williams [66], puis reprise par Ruer et Vadon [67-68]. Son principe repose sur une discrétisation des figures de pôles d'une part, et des orientations g d'autre part. Elle consiste à associer un point (ou un ensemble de points) de l'espace des pôles à un point de l'espace des orientations après avoir discrétiser ces deux espaces. Notons que le choix du mode de discrétisation des espaces a conduit au développement de différentes méthodes discrètes :

Ø ADC (Arbitrarily Defined Cells) [69].

Ø WIMV (Williams –Imhoff-Matthies-Vinell) [64].

L'avantage de cette méthode est qu'elle nécessite relativement peu de figures de pôles pour le calcul d'une FDOC. Cette dernière méthode donne de meilleurs résultats dans le cas de textures relativement accusées. Pour les textures très marquées, il vaut mieux utiliser la méthode de Helming [65] qui permet de décrire la texture par quelques composantes seulement. Les ajustements sont réalisés sur les figures de pôles en supposant pour chaque orientation idéale est une distribution de densité de forme gaussienne définie par son centre, sa largeur à mi-hauteur (dispersion autour de l'orientation idéale) ainsi que son poids.

I-D-II-4 : Simulation de la texture de déformation : modèles et méthodes

I-D-II-4.1 : Simulation de la texture de déformation

Pour l'industrie métallurgique, la maîtrise des caractéristiques mécaniques et géométriques des pièces réalisées, qui dépendent des procédés de mise en forme et des propriétés des matériaux utilisés, a une influence capitale sur la qualité de la production. Devant la complexité croissante des problèmes posés par les contraintes technologiques, le recours aux expériences et au calcul analytique est maintenant en grande partie supplanté par des simulations numériques qui, grâce à la puissance des ordinateurs, permettent l'utilisation de modèles physiques plus réalistes. Afin de prédire l'évolution de la texture cristallographique et l'anisotropie induite au cours de la simulation de procédés de mise en forme, il est souvent choisi un modèle de comportement fondé sur la plasticité cristalline.

Il y a eu de nombreuses tentatives pour prédire l'évolution des textures lors de la déformation, basée sur les théories de la plasticité polycristalline. Il s'agit d'un domaine de recherche très vaste que nous ne pouvons chercher à couvrir en détail, mais nous essayons de présenter brièvement quelques approches. Les principes de base sont bien expliqués par Reid

(1973), et les critiques de l'application de la théorie de la plasticité polycristalline du développement des textures sont données par [70-71].

Les premières théories de la plasticité polycristalline étaient fondées sur une approche macroscopique dont les grains dans un échantillon se déforment de manière indépendante de leurs voisins. Des modèles plus récents ont tenu compte des interactions entre les grains individuels. Les simulations du comportement de l'alliage déformé à base de cuivre ont permis de calculer l'évolution des textures de déformation plastique et donc la fonction de distribution des orientations cristallines ou FDOC dans l'espace d'Euler pour une déformation plastique.

I-D-II-4.2 : Modèles de la simulation de la texture de déformation

Dans cette partie, nous allons présenter les différents modèles développés pour prédire le comportement anisotrope des matériaux. Les premiers travaux réalisés sur la modélisation de la plasticité des polycristaux sont ceux de Sachs[72] et de Taylor [73].

I-D-II-4.2-a : Modèle de Sachs

Sachs est le premier auteur à avoir proposé un modèle sur le comportement plastique du polycristal. Son hypothèse est que chaque grain d'un agrégat polycristallin est soumis à la même contrainte et que celle-ci est égale à la contrainte macroscopique (contrainte uniforme dans l'agrégat). Ce modèle permet d'obtenir une borne inférieure de la contrainte macroscopique. Il suppose que la déformation se fait par glissement simple selon la loi de Schmid. Il considère que la cission résolue critique (Critical Resolved Shear Stress, CRSS) sur le système de glissement actif est constante dans tout le grain. Dans ce modèle, la compatibilité géométrique entre les différents grains n'est pas assurée, ce qui entraîne une discontinuité de la déformation au niveau du joint de grain. Ce modèle permet cependant des prédictions réalistes dans le cas des matériaux à faible symétrie cristalline (par exemple roches cristallines) possédant très peu de systèmes de glissement. Par conséquent, le modèle de Sachs n'est applicable que pour la déformation dans un monocristal.

I-D-II-4.2-b : Modèle de Taylor

Pour résoudre le problème de compatibilité de la déformation entre grains voisins, Taylor contrairement à Sachs, travaille sur les déformations plutôt que les contraintes. Il considère que tous les grains accommodent la même déformation plastique qui est égale à la déformation macroscopique imposée. Chaque grain se déforme de manière homogène et homothétique à l'éprouvette. Von Mises a montré que pour assurer cette compatibilité, il est nécessaire d'activer 5 systèmes de glissement dans chaque grain. Pour les structures cubiques avec 12 systèmes de glissement, il y a en effet $C_{12}^5=792$ combinaisons possibles de 5 systèmes.

Le problème qui se pose donc est de savoir comment choisir la combinaison des cinq systèmes de glissement actifs parmi toutes celles possibles. Taylor suggère que la combinaison de cinq systèmes de glissement actifs est celle pour laquelle le travail des forces intérieures est minimal, ce qui correspond aussi à une quantité de glissement minimale. L'hypothèse de ce modèle s'avère réaliste dans le cas des matériaux à grande symétrie cristalline (par exemple cubique) pour lesquels il existe un grand nombre de systèmes de glissement pouvant ainsi accommoder la déformation quelle que soit l'orientation initiale du grain. En fait le modèle de Taylor surestime les contraintes internes (ce modèle constitue une borne supérieure pour la contrainte macroscopique), car il est rare d'observer 5 systèmes de glissement actifs simultanément.

Dans ce cas, la compatibilité géométrique est assurée mais la condition d'équilibre des contraintes ne l'est pas, en plus, le modèle de Taylor initial ne tient pas compte de la forme du grain, ni de l'interaction entre les grains. Pour remédier à ce problème, différents modèles dérivés de l'hypothèse classique de Taylor dits « relaxés » sont apparus.

I-D-II-4.2-c : Modèles de Taylor relaxés

Avant de présenter brièvement les différents modèles dérivés de l'hypothèse de Taylor, nous notons que le modèle de Taylor dans sa forme générale est appelé « *Full Constraints* ». Il existe cependant un deuxième modèle de Taylor :

Le modèle « Relaxed Constraints » de Taylor (noté RC)

L'idée de ce type de modèle est en partie née de la constatation suivante: après une certaine quantité de déformations lors du laminage, les grains tendent à devenir plats et allongés. Cela signifie que, pour des raisons géométriques, une différence entre l_{13} (composante de cisaillement dans le plan (x_1, x_3) du gradient de vitesse local) et L_{13} (valeur macroscopique) est acceptable (Figure I.D-9). Une première idée est donc de ne pas prescrire cette composante du gradient de vitesse et d'imposer plutôt la condition $\sigma_{13} = 0$.

Un autre type de modèle consiste à omettre deux équations : celle concernant le gradient de vitesse l_{13} et celle concernant l_{23} . La résolution de ce problème se fait alors en imposant les contraintes :

$$\sigma'_{13} = 0 \quad \text{et} \quad \sigma'_{23} = 0 \quad (\text{I.D.13})$$

L'équilibre des contraintes est donc satisfait à la frontière des grains pour les composantes 13 et 23. Alors que le modèle *FC* permet de considérer n'importe quel mode de déformation, les modèles *RC* sont généralement restreints à certains modes de déformation. Ils ont principalement été développés pour les métaux à grains plats et allongés. Dans le cas

du laminage, ils permettent de mieux prédire la compatibilité des contraintes en comparaison avec la solution obtenue à l'aide du modèle *FC*.

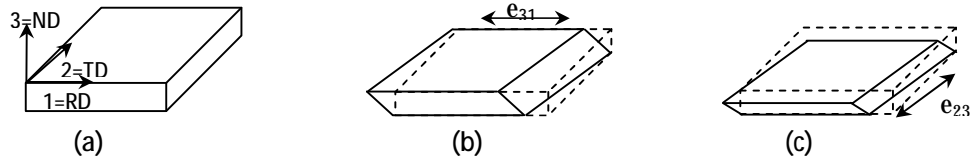


Figure I.D-9: Changement de la forme du grain déformé sous : (a) full constraints, (b) et (c) relaxed constraints avec les deux composantes ϵ_{13} et ϵ_{23} relâchés.

I-D-II-4.2-d : Modèle RC multi grains

Les prédictions de texture de déformation ne sont pas réellement meilleures avec les modèles *RC* qu'avec les modèles *FC* du point de vue de l'intensité des FDOC. La forme des FDOC (c'est-à-dire les composantes présentes) est quant à elle mieux prédite [74]. Pour pallier ce problème, de modèles « multi-grains » ou « N-sites » prenant en compte l'interaction entre grains ont vu le jour. Nous citons ici quelques modèles *RC* de type « multi-grains » :

1. Modèle LAMEL[75]

Le modèle LAMEL a été conçu pour les procédés de laminage et pour les matériaux avec des grains allongés et plats. Il considère des assemblages de deux grains. Si l'on considère les relaxations de type I et II représentées en Figure I.D-9, le modèle LAMEL permet de satisfaire les conditions de contrainte suivantes à l'interface entre les deux grains indexés par 1 et 2 :

$$\sigma'_{13} = \sigma'_{13}{}^2 \quad \text{et} \quad \sigma'_{23} = \sigma'_{23}{}^2 \quad (\text{I.D.14})$$

L'équilibre des contraintes est donc assuré sans pour autant imposer à ces contraintes de cisaillement qu'elles soient nulles comme dans la théorie *RC*. Les conditions de Taylor sont appliquées non plus sur chaque grain, mais sur l'ensemble des deux grains. La quantité de relaxation à appliquer sur chaque ensemble de 2 grains se calcule par un principe de minimisation d'énergie [76].

2. Modèle ALAMEL

Pour pallier la restriction du domaine de validité des modèles à contraintes relâchées (procédé de laminage, grains allongés et plats), Van Houtte et al[77] propose un autre modèle qui vérifie les hypothèses suivantes :

- Le tenseur gradient de déformation local n'est pas constant à l'intérieur d'un grain (Figure I.D-10), les taux de glissement non plus.
- Dans les régions proches des frontières des grains, les contraintes locales et les taux de déformation et de glissement cristallographique sont hautement affectés par l'interaction avec les grains voisins.
- L'ensemble des orientations cristallographiques qui se développent dans les régions proches des frontières des grains peut être vu comme la contribution du grain sur la déformation du polycristal entier.

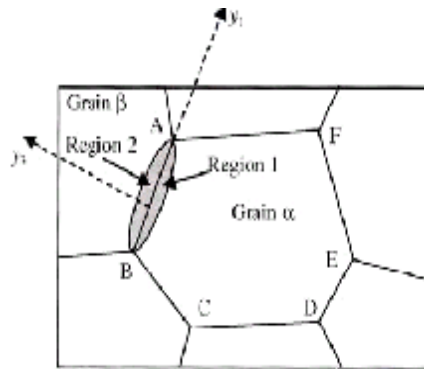


Figure I.D-10: Représentation schématique de la microstructure [77].

Nous ne précisons pas la formulation mathématique du problème qui est présentée dans [78]. Ce modèle permet de considérer tout mode de déformation, dans la mesure où la nature géométrique des relaxations n'est plus liée à la géométrie de la déformation prescrite comme dans le cas du modèle *RC* ou du modèle *LAMEL*.

3. Modèle *GIA* (Grain InterAction)

Le modèle *GIA* a été proposé par Crumbachet *al*[79]. Tout comme le modèle *LAMEL*, il prend en compte les interactions entre grains voisins, mais au lieu d'opérer sur un « cluster » contenant 2 grains, il utilise un « cluster » composé de 8 grains. L'hypothèse de Taylor est là encore vérifiée sur l'ensemble du cluster, cela permet un relâchement des contraintes sur chacun des grains à l'intérieur du cluster. Ces relaxations sont sanctionnées cette fois par un terme énergétique.

Ø Modèle auto-cohérent

Cette catégorie de modèles est utile lorsque l'uniformité de la déformation des grains n'est pas une hypothèse raisonnable ou lorsque l'on veut une meilleure solution que celle donnée par les modèles de Sachs et de Taylor. Lorsque le matériau possède plusieurs

systèmes de glissement avec des cissions critiques dissemblables (matériau à faible symétrie cristalline) ou lorsque les grains ont initialement une grande variété de tailles et/ou de formes, l'interaction de chaque grain avec son entourage devient très directionnelle, et l'anisotropie relative joue un rôle très important dans la répartition de la déformation plastique de part et d'autre.

Différentes stratégies ont été proposées dans la littérature. Elles se différencient principalement par le comportement supposé de chaque grain et du milieu homogène équivalent qui les entoure, ainsi que par la méthode utilisée pour approximer la solution de l'équation constitutive locale non linéaire.

Ø Modèles viscoplastiques

Hutchinson [80] a proposé une extension du schéma auto-cohérent de Hill dans le cas de déformations viscoplastiques. Molinari *et al* [81] ont ensuite développé une formulation non incrémentale, basée sur une approximation tangente de la relation non linéaire entre contrainte et taux de déformation pour la modélisation du comportement mécanique et des évolutions de textures en grandes déformations. Lebensohn et Tomé [82] ont amélioré ce schéma non incrémental pour simuler les grandes déformations plastiques pour les matériaux hexagonaux, trigonaux et orthorhombiques. Cette amélioration a été implémentée dans le code VPSC pour Visco-Plastique Self Consistent que nous avons utilisée dans ce travail.

Références bibliographiques du chapitre I

- [1] J. Hladik, « les accumulateurs électriques », collection « Que sais-je ? », P.U.F, n°1679.
- [2] J. Garche, « The historical development of the lead /acid battery, especially in Europe », *Journal of Power Sources*, 31(1990) p.401.
- [3] N.E. Bagshaw, Lead alloys, Past, Present, Future, *Journal of Power Sources*, 53 (1995) 25.
- [4] R.D. Prengaman, *Battery International*, 13 (1992) p.24.
- [5] W.F. Gillian, “Lead alloys into 1990’s”, *Journal of Power Sources*, 31 (1990) p177.
- [6] N.E. Bagshaw, “Battery grid alloys-principles and practice, a review”, *Power Sources 12*, 16th international Power Sources Symposium commettes, Leatherhead, U.K. (1988) p113.
- [7] Ph. Steyer, J.P. Hilger, « Processus de durcissement des alliages plomb-antimoine-cadmium pour grilles de batteries », *La Revue de Métallurgie –CIT /Sciences et Génie des Matériaux*, 5, (1996), p.657.
- [8] N.E. Bagshaw, “Alloys for maintenance-free deep cycling batteries”, *Journal of power sources*, 33(1991) p.3.
- [9] R.D. Prengaman, “Wrought lead-calcium-tin alloys for tubular lead /acid battery grids” *Journal of Power Sources*, 53 (1995) p207.
- [10] Alloy Phase Diagrams of the ASM Handbook. ASM International Volume 3 (1992).
- [11] T.B. Massalski, Binary Alloy phase diagrams, ASM International, (1990).
- [12] A. Palenzona, P. Manfrinetti, and M.L. Fornasini: *J. Alloys Compounds*, (2000), 312, p. 165.
- [13] W. Hume-Rothery: *J. Inst. Met.*, (1926), vol. 35, pp.319-35.
- [14] M.L. Fornasini and E. Franceschi: *Acta Crystallogr.*, vol. B33, (1976),pp. 3476-79.
- [15] H. Okamoto and T.B. Massalski: *J. Phase Equilibria*, vol. 15 (5), (1994), pp. 500-21.
- [16] H. Okamoto, *J. Phase Equilibria*, 22 (2001) 589.
- [17] Y. CARTIGNY, Thèse de Doctorat, UHP-Nancy I, (2004) France.
- [18] A. Maitre, G. Bourguignon, J.M. Fiorani, J.Ghanbaja and J. Steinmetz, *Materials Science and Engineering A*, 358 (2003) 233-242.
- [19] T.L. Ngai, Y.A.Chang, *Calphad*, 5(1981)267-276.
- [20] I. Karakaya and W.T.Thomson, *Bull.Alloy Phase Diagram*, 9(1988)144.
- [21] H.J. Fecht, M.X. Zhang, Y.A. Chang, J.H. Perepezsko, *Metall.Trans A*, 20A(1989)785.
- [22] H. Otani, K. Okuda, K. Ishida, *J.Phase Equilibria*, 16(1992)317.

- [23] W. Gust. Investigation of the growth kinetics, thermodynamics and diffusion for the discontinuous precipitation reaction. Habilitation Thesis, University of Stuttgart, Germany (1980).
- [24] F. Haessner, “*Recrystallization of metallic materials*”, Dr. Riederer Verlag, Stuttgart (1978).
- [25] J. Philibert, A. Vignes, Y. Brechet, P. Combrade, «*Métallurgie du minerai au matériau*», Edition MASSON, Paris, (1998).
- [26] H.W. Swift, Sheet Metal Industry, (1954) ,819.
- [27] G.E. Dieter, Mechanical Metallurgy, 2nd Edition (1976) pp 348-349.
- [28] W.T. Lankford, S.C. Synder and J.A. Bauscher, Trans. ASM, 42, (1950), 1197.
- [29] R.L. Whiteley, Trans. ASM, 52 (1960) ,154.
- [30] J. Nagashima, H. Takechi et H. Kato, Proceedings of Symposium International Clausthal-Zellerfeld, 1968, Springer Verlag (1969), 444.
- [31] W.F. Hosford, W.A. Backofen, Proceeding of the sagamore Conference Syracuse University Press, (1964) ,259.
- [32] H.J Bunge et W. T Roberts, J. Appli. Cryst. ,2 (1969), 117.
- [33] J.P. Moussy, P. Dervin, M. Pernot et R. Penelle, Journées d’Automne de Métallurgie, Paris, Octobre (1974).
- [34] J.P. Moussy, Thèse de Doctorat Troisième Cycle, Université de Paris-Sud, (1977) France.
- [35] M. Pernot, Thèse de Doctorat d’Etat, Université de Paris-Sud, (1977) France.
- [36] P. Dervin, Thèse de Doctorat Ingénieur, Université de Paris-Sud, (1977) France.
- [37] F. Royer, Thèse de Doctorat Es-Sciences en Physique, Université de Metz, (1986) France.
- [38] F.J. Humphreys, M. Hatherly, “*Recrystallization and related annealing phenomena*”, Pergamon Press, Oxford (1995).
- [39] R.D. Doherty, G. Gottstein, J.R. Hirsch, W.B. Hutchinson, K. Lücke, E. Nes, P.J. Wilbrandt, *Report of panel discussion on recrystallization textures: mechanisms and experiments* , Proceedings of the 8th International Conference on Texture of Materials, Eds. J.S. Kallend and G. Gottstein, Warrendale, PA: The Metallurgical Society, 563-572 (1988).
- [40] K. Hornbogen and U. Köster, “*Recrystallisation of Metallic*” M Haessner, Dr. Riederer Verlag GmbH, Stuttgart (1978).
- [41] R. W. Cahn, in « *Recrystallization, Grain Growth, and Textures* » ed. H. Margoli ASM, Metals Park, Ohio (1966), p. 109.

- [42] E. Hornbogen and H. Kreye, in “Texturen in Forschung” Wassermann, Springer-Verlag, Berlin (1969), p.274.
- [43] U. Köter, Metal Science 8 (1974) p.151.
- [44] E. Hornbogen, in : « Fundamental Aspects of Structural Alloy Design », eds. R. I. Jaffee, Plenum, New York (1976), p.389.
- [45] N. Hansen, Mem. Sci. Rev. Met. 72 (1975) p.189.
- [46] P. Cottrell and P. R. Mould « Recrystallization and Grain Growth in Metals », Surrey University Press, Londres, (1976).
- [47] J. Benard, A. Michel, J. Philibert, J. Talbot, *Métallurgie générale*, Ed. Masson, 2ème édition, Paris (1991).
- [48] B. Alili, Thèse de Doctorat d’Etat, USTHB (2007) Alger.
- [49] E. Hornbogen, in : « Nucleation », ed. A. C. Zettlemoyer, Marcel Dekker New York, (1969), p. 309.
- [50] S. Jakani, Thèse de Doctorat, Orsay (2004) France.
- [51] K. H. Virnich, K. Lücke, Proceedings of the 5th International Conference on Textures of Materials, Eds. G. Gottstein and K. Lücke, Berlin, Springer-Verlag, p. 397 (1978).
- [52] J. Grewen, J. Huber, *Annealing Textures, In: Recrystallization of metallic materials*, Ed. F.Haessner, Dr.ReidererVerlag, Stuttgart (1978).
- [53] H. Hu, G.Goodman, Trans. AIME vol. 227 (1963) p.627.
- [54] J. Hirsch, K. Lücke, Acta Metallurgica, Vol. 36 (1988) p.2863.
- [55] D.Raabe & K.Lücke, Script. Metall. Mat., Vol.27, (1992), p.1533.
- [56] B.J. Duggan, K. Lücke, G. Köhlhoff, C.S. Lee, Acta Metall. Mater. 41,(1993).p.1921.
- [57] A. A. Ridha, W.B. Hutchinson, Acta Metall. 30(10), (1982), p.1929.
- [58] R.D. Doherty, I. Samajdar, C.T. Necker, H.E. Vatne, E. Nes, Proceedings of the Sixteenth Risø International Symposium on Material Science, Edited by N.Hansen, D.Juul Jensen, Y.L. Liu, B. Ralph, Roskilde, Denmark, (1995), p.1.
- [59] G. Gottstein, Acta Metallurgica, Vol. 32, N°7, (1984), p.1117.
- [60] T. Baudin, F.Julliard, R.Penelle, La revue métallurgie-CIT Science et génie des matériaux, (2003), p.193.
- [61] A. S. Wiglin, Sov. Phys. Solid State 1, p. 229-233 (1960).
- [62] H. J. Bunge, *Zur Darstellung allgemeiner Texturen*, Z. Metallkd. 56, p.827-874 (1965).
- [63] R. J. Roe, Appl. Phys. 36, p.2024-2031 (1965).
- [64] S.Matthies, and G.W.Vinel, Physical Status Solidi, p.112 (1982).
- [65] K. Helming, Mater. Sci. Forum 157-162, p.363-368 (1994).

- [66] R. O. Williams, J. Appl. Phys. 39, p.4329- 4335 (1968).
- [67] D. Ruer, and R. Baro, Adv. X-Ray Anal., Vol. 20, p. 187 (1977).
- [68] A. Vadon, Thèse de Doctorat, Université de Metz, (1981)France.
- [69] K. Pawlik, J. Pospiech, and K. Lücke, Eight International Conference on Textures of Materials(ICOTOM 8), Mexique, TMS W arrendale, (1988)p. 105.
- [70] J. Gil Sevillano, P. Van Houtte, E. Aernoudt, Prog. Mater. Science, 25, (1980)p.69.
- [71] U. F. Kocks, C. N. Tom e, and H.-R. Wenk. Texture and Anisotropy: Cambridge University Press, (1998).
- [72] G. Sachs, ZurAbleitungeinerFliessbedingung, Z. Ver. Deu. Ing. 72, (1928),pp.734-736.
- [73] G.I. Taylor, Plastic strain in metals, J. Inst. Metals 62,(1938), pp. 307-324.
- [74] P. Van Houtte, A. Van Bael, M. Seefeldt and L. Delannay, The application of multiscale modelling for the prediction of plastic anisotropy and deformation textures, Proceedings of the 14th International Conference on Textures of Materials, July 11th-15th, (2005), Leuven, Belgium.
- [75] P. Van Houtte, L. Delannay and I. Samajdar, Quantitative predictions of cold rolling textures in low-carbon steel by means of the LAMEL model, Textures et Microstructures 31, pp. 109-149, 1999.
- [76] P. Van Houtte, L. Delannay, S.R. Kalidindi, Comparison of two grain interaction models for polycrystal plasticity and deformation texture prediction, Int. J. Plasticity 18, (2002),p. 359.
- [77] P. Van Houtte, S. Li, L. Delannay and M. Seefeldt, Deformation texture prediction: from the Taylor model to the Advanced Lamel Model, Int. J. Plasticity, 21,(2005), pp. 589-624.
- [78] P. Van Houtte, S. Li and O. Engler, Taylor-Type Homogeneization Methods for Texture and Anisotropy, In: Continuum Scale Simulation of Engineering Materials, Eds D. Raabe, F. Roters, F. Barlat, L Chen,(2004), pp. 459-472.
- [79] M. Crumbach, G. Pomana, P. Wagner, G. Gottsein, A Taylor-type deformation texture model considering grain interaction and material properties, Part I : Fundamentals, In : G. Gottsein and D.A. Modolov (Eds.), Recrystallisation and Grain Growth, Proc. First Joint Conference, Springer, Berlin, (2001), pp. 1053-1060.
- [80] J.W. Hutchinson, Bounds and self-consistent estimates for creep of polycrystalline materials, Proc. R. Soc. A 348, (1976), pp. 101-127.
- [81] A. Molinari, G.R. Canova and S. Azhi, A self-consistent approach of the large deformation polycrystalviscoplasticity, Acta Metall. 35, (1987), p. 2983.

[82] R.A. Lebensohn and C.N. Tomé, a self-consistent anisotropic approach for the simulation of plastic deformation and texture development of polycrystals: application to zirconium alloys, Acta Metall. Mater. 41, (1993), p. 2611

Chapitre II

Techniques expérimentales

Ce chapitre est consacré à la présentation du matériau étudié et les techniques expérimentales utilisées. Quelques notions générales, sur les paramètres qui caractérisent l'anisotropie structurale du matériau, sont introduites.

Introduction

Nous présentons dans ce chapitre, les différentes techniques expérimentales que nous avons utilisées au cours de ce travail.

Les techniques d'analyse quantitative (EDAX) ont permis de déterminer les concentrations et la distribution des éléments chimiques contenus dans l'alliage Pb-Ca-Sn.

L'étude morphologique et microstructurale de cet alliage a fait l'objet d'une caractérisation faisant intervenir différentes techniques de microscopie :

§ Microscope Optique (MO).

§ Microscope Electronique à Balayage (MEB).

§ Microscope Electronique en Transmission (MET).

Des techniques permettant de mettre en œuvre la mesure de paramètres physiques (microdureté, résistivité électrique, PTE, etc.) sensibles aux modifications de la microstructure de l'alliage étudié et aux transformations de phase plus particulièrement, sont utilisées.

La caractérisation par diffraction des rayons X nous a permis d'analyser l'état de solution solide initiale et les phases présentes et d'évaluer certains paramètres microstructuraux (paramètres de maille, densité de dislocations, déformation quadratique moyenne).

La détermination par la diffraction des rayons X de la texture développée au cours du laminage et de la recristallisation.

II-1: Matériau utilisé

Le matériau, sur lequel notre étude a porté, est l'alliage Pb-0.08Ca-2Sn (% en poids) nous a été fourni par des collaborateurs de la Faculté des Sciences, Université Henri Poincaré (Nancy, France) sous forme de lingots.



Figure II-1 : Photographie de la tôle de l'alliage Pb-0.08Ca-2Sn(% en poids).

II-2 : Préparation des échantillons

II-2-1 : Refusion

Les matériaux utilisés servant à l'étude ont été obtenus par la refusion des éléments de grille de batterie coulés dans une coquille en acier. Le plomb et ses alliages ne nécessitant aucune protection particulière ; les refusions et coulées ont été réalisées à l'air libre [1].

II-2-2 : Traitement d'homogénéisation

Des échantillons d'alliage Pb-0.08 Ca- 2 Sn (% en poids) ont été coupés à partir d'un lingotin. Les échantillons ont subi alors un traitement d'homogénéisation et de mise en solution solide à 300° C pendant 3 heures, suivies d'une trempe à l'azote liquide.

II-2-3 : Traitements thermomécaniques

La plupart des matériaux sont susceptibles de subir des traitements thermiques, ainsi, on peut modifier leurs structures. Ce sont les matériaux métalliques, métaux et alliages qui offrent les plus grandes possibilités de traitements mécaniques ; on peut même dire que c'est grâce à eux que l'on peut tirer le plus grand profit. Les modifications structurales obtenues par traitement thermique permettent de conférer à un matériau des propriétés particulières adaptées à sa meilleure utilisation sous forme de pièce finie. Les échantillons sont d'abord mis en solution solide (homogénéisation), puis traités thermiquement de façon adéquate pour provoquer ces réactions. Il existe une grande variété de traitements thermiques.

L'association d'un traitement thermique simultanément à traitements mécaniques a conduit au développement récent des traitements thermomécaniques. Ces traitements permettent, au niveau structural, une amélioration des propriétés mécaniques par traitement thermique proprement dit et un affinement de la structure micrographique par la déformation plastique qui, en outre, favorise souvent les transformations de phases.

II-2-4 : Déformation plastique par laminage à froid

Les échantillons étudiés ont subi une déformation à froid par laminage. Ce dernier est effectué en plusieurs passes (afin d'éviter les échauffements), dans un laminoir constitué de deux rouleaux cylindriques symétriques tournant autour de leur axe en sens inverse, et dont l'écartement peut être réglé afin d'obtenir l'épaisseur (e_f) de l'échantillon souhaitée. Le frottement entre le métal et les cylindres est la seule force qui oblige le métal de passer entre les cylindres (figure II-2)[2].

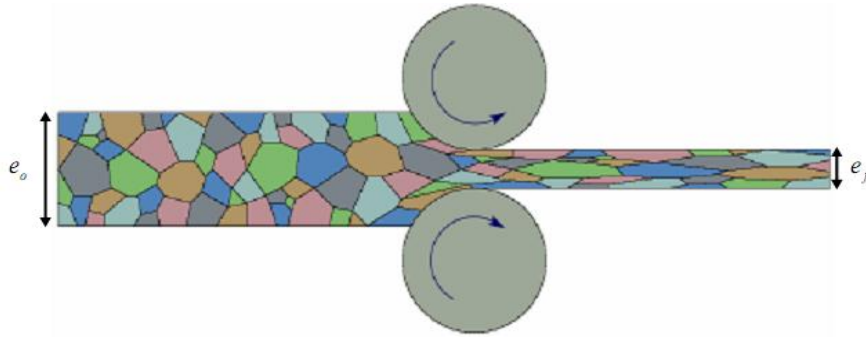


Figure II-2 : Schéma montrant l'opération de laminage.

Dans le cas des alliages à base de plomb et à cause de leur bas point de fusion, le laminage est nécessairement à froid ; nous l'avons donc réalisé à la température ambiante à l'aide d'un laminoir. Après un nombre déterminé de passages, le taux de laminage obtenu est défini par :

$$\varepsilon = \left(\frac{e_0 - e_f}{e_0} \right) \times 100 \quad (\text{II-1})$$

Où e_0 et e_f sont respectivement les épaisseurs initiale et finale de l'échantillon.

II-2-5 : Traitement de recristallisation

Le traitement de recristallisation est un recuit réalisé sur un métal ou alliage ayant subi une déformation plastique et conduisant à une nouvelle microstructure de taille et morphologie granulaire originale, et de texture cristallographique différente. La température nécessaire pour engendrer la recristallisation est généralement comprise entre le tiers et la moitié de la température de fusion absolue d'un métal ou d'un alliage, elle varie en fonction de plusieurs facteurs, dont l'ampleur de l'écroutissage antérieur et la pureté de l'alliage.

II-3 : Analyses quantitative et métallographique des échantillons

Avant d'entamer l'étude des évolutions microstructurales de nos alliages au cours des traitements thermiques, il est important de caractériser nos échantillons par différentes techniques d'analyse. Des mesures quantitatives ont été effectuées afin de vérifier la composition nominale de l'alliage utilisé pour notre étude et la distribution des éléments chimiques.

II-3-1 : Analyse par EDAX (Energy Dispersive X-ray Analysis)

La composition chimique et l'homogénéisation des échantillons ont été déterminées par analyse EDAX sur un microscope électronique à balayage.

Cette technique sert à déterminer les éléments d'alliages (élément d'addition et traces). Un périphérique installé dans un Microscope Electronique à Balayage (MEB) permet d'identifier les éléments et leur concentration par dispersion des énergies des rayons X émis par les atomes des différentes espèces présentes. Nous avons préparé les échantillons massifs de l'alliage (homogénéisés et trempés), selon une préparation métallographique non fine, pour lesquels nous avons réalisé l'analyse EDAX au sein du laboratoire EDAX, Faculté science de la terre, YARMOUK UNIVERSITY, IRBID, JORDAN.

II-3-2 : Préparation métallographique des échantillons pour Microscopie optique (MO), Microscopie Electronique à Balayage (MEB) et Transmission (MET)

Les échantillons ont subi alors un traitement d'homogénéisation et de mise en solution solide à 300° C pendant 3 heures suivis d'une trempe à l'azote liquide. Ils ont ensuite subi une déformation plastique par laminage à des taux de réduction d'épaisseurs égales à 50 et 75 %. Ces taux de déformation ont été inférieurs à 80% afin d'éviter une rapide recristallisation ou une recristallisation dynamique [3]. Ils ont subi des traitements thermiques de revenu (vieillessement) à 100° C pendant des temps variant entre 15 minutes et 3 heures et ce pour certains échantillons avant laminage et pour d'autres, après.

II-3-2.1 : Microscopie optique

La caractérisation de la microstructure des alliages Pb-Ca-Sn a été réalisée à l'aide d'un microscope optique de type Olympus Vanox AHTM. Pour les observations optiques, les microstructures ont été révélées en deux étapes comme résumé ci-dessous :

- Ø Les échantillons sont immergés cinq fois pendant 30 secondes dans une solution d'acide acétique (80% en volume) et d'eau oxygénée (20%), entre deux immersions, les échantillons sont rincés dans une solution d'acide acétique concentré.
- Ø Puis les échantillons sont plongés pendant 10 s dans une solution aqueuse composée de 25% en volume d'acide citrique de 10% en volume de Molybdate d'ammonium.

II-3-2.2 : Microscope électronique à balayage (MEB)

La microscopie électronique à balayage est une technique basée sur le principe de l'interaction électrons-matière qui consiste en un faisceau d'électrons balayant la surface de l'échantillon à analyser qui, en réponse, réémet certaines particules.

L'évolution de la morphologie a été faite à l'aide d'un microscope électronique à balayage type (Jeol et Zeiss).

II-3-2.3 : Microscope électronique à transmission (MET)

Les échantillons ont été préparés pour les observations en microscopie électronique à transmission selon les protocoles décrits par [4-6]. Ils ont été analysés dans un microscope électronique à transmission de type Philips-CM20 opérant à 200 kV.

Ø Polissage électrochimique

L'électrolyte utilisé est un mélange de 36 ml d'acide perchlorique (70%) et de 564 ml d'alcool éthylique. L'EMF appliquée est 20 V. La densité de courant est entre 01-02 A/cm². L'échantillon est placé entre deux cathodes d'acier Inox qui peuvent être plates ou légèrement courbées. Elles sont placées séparées de 80 mm.

Ø Préparation de la lame mince

Les lames minces pour les observations en microscopie électronique en transmission ont été préparées en couplant la microtomie (Ultramicrotome Reichert) et l'amincissement ionique par l'argon (Appareil Gatan Model 691)

Au contraire des autres types de microscopies (microscope optique et MEB), l'échantillon dans le cas du MET est placé entre la source électronique et l'écran fluorescent sur lequel l'image est projetée. La lame mince est donc traversée par le faisceau d'électrons, ce qui lui impose une extrême finesse : 1000-2000Å.

II-4 : Techniques d'analyses des transformations de phase et principe des mesures

II-4-1 : Mesure de la microdureté Vickers

La dureté est définie comme la résistance qu'oppose un matériau à sa pénétration par un autre corps plus dur que lui. La préparation de la surface, pour des essais de microdureté Vickers, est réalisée par polissage mécanique doux suivi d'un polissage électrolytique, afin de diminuer les effets du polissage mécanique et éliminer la couche superficielle déformée plastiquement.

La mesure de microdureté Vickers traduit le comportement mécanique (à un temps et à une température de vieillissement donnés) de l'alliage, caractérisant de façon indirecte l'état microstructural du composé testé. En particulier, l'apparition de recristallisation ou du

survieillissement pour des alliages de plomb préalablement coulés se caractérise par un adoucissement de l'alliage [5].

Cette mesure se fait avec une pointe pyramidale normalisée en diamant de base carrée et d'angle au sommet entre faces égal à 136° . L'empreinte a donc la forme d'un carré. On mesure les deux diagonales d_1 et d_2 de ce carré à l'aide d'un appareil optique. On obtient la valeur de d , en effectuant la moyenne de d_1 et d_2 , qui sera utilisée pour le calcul de la dureté (figure II-3).

D'après [7], la dureté s'exprime comme suit :

$$H_v = \frac{1,854xP_{(kgf)}}{d^2_{(mm)}} \quad (\text{II-2})$$

Où : $d_{(mm)} = \frac{(d_1+d_2)}{2}$ et $P = 50 \text{ gf}$

Les essais de dureté sont effectués à l'aide d'un microduromètre SHIMADZU équipé d'un indenteur Vickers. Le suivi de la dureté en fonction du temps pour des échantillons a été mené à la température 80°C , 100°C et 120°C , sous une charge de 100 N. Chaque valeur de dureté déterminée est une moyenne de 5 mesures. L'erreur relative commise sur cette moyenne est évaluée à 5 %.

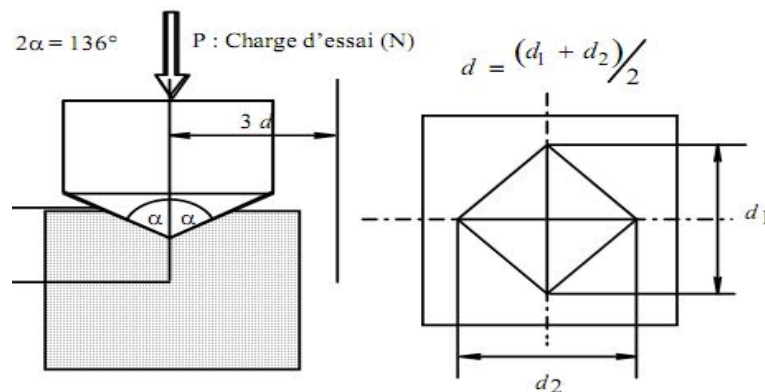


Figure II-3 : Principe de la mesure de microdureté Vickers.

II-4-2 : Mesure de résistivité

II-4-2-1 : Méthode de mesure

La résistivité électrique d'un alliage dépend de nombreux facteurs et notamment de la présence d'éléments en solution solide. En mesurant les variations de résistivité des alliages, il est alors possible de mettre en évidence les transformations caractérisées par une précipitation ou une réorganisation du soluté. L'analyse des chutes de résistivité, par rapport à la résistivité

initiale (état brut de trempe), permet, d'une part, de confirmer les séquences de transformations identifiées par microdureté, et d'autre part, de déterminer finement les temps de début et de fin des transformations microstructurales. Pour la mesure de la résistivité électrique, nous avons utilisé la méthode à quatre points dont le principe est décrit dans la figure II-4. Il consiste en un assemblage de quatre pointes de carbure de silicium réparties de manière équidistante qui sont positionnées sur l'échantillon à mesurer. La distance entre deux pointes est de 2 mm.

La méthode consiste à faire passer un courant à travers l'échantillon et à mesurer la tension entre deux points fixes de celui-ci. Cette méthode nous permet de mesurer la résistivité relative à la surface de mesure ρ_0 , qui est donnée par la formule suivante:

$$\rho_0 = \left(\frac{V}{I}\right) 2\pi s \quad (\text{II.3})$$

Avec :

V : le potentiel mesuré en microvolts (μV) ;

I : le courant qui traverse l'échantillon en milliampère (mA).

s : la distance entre les sondes en mm.

Pour déterminer la résistivité électrique ρ de l'échantillon de faible épaisseur que nous avons utilisé dans notre cas, il faut diviser la valeur obtenue de ρ_0 par un facteur de correction lié directement aux dimensions de l'échantillon utilisé, la formule est donnée par la relation suivante :

$$\rho = \frac{\rho_0}{G_7(w/s)} \quad (\text{II.4})$$

Où w est l'épaisseur de l'échantillon, et $G_7(w/s)$ est obtenu à partir de l'équation II-4 :

$$G_7(w/s) = 2\pi \left(\frac{s}{w}\right) \ln 2 \quad (\text{II.5})$$

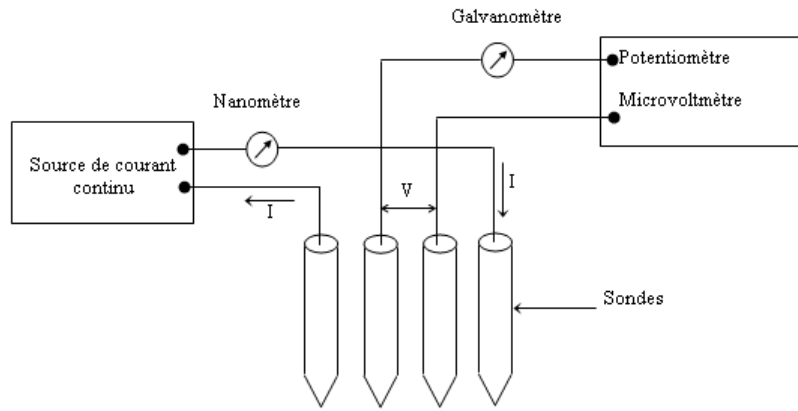


Figure II-4 : Schéma du dispositif expérimental de la mesure de résistivité à quatre pointes.

II-4-2-2: Dispositif expérimental

La figure II-5 montre le montage expérimental utilisé dans notre travail pour la mesure de résistivité électrique.



Figure II-5: Montage expérimental utilisé pour la mesure de résistivité.

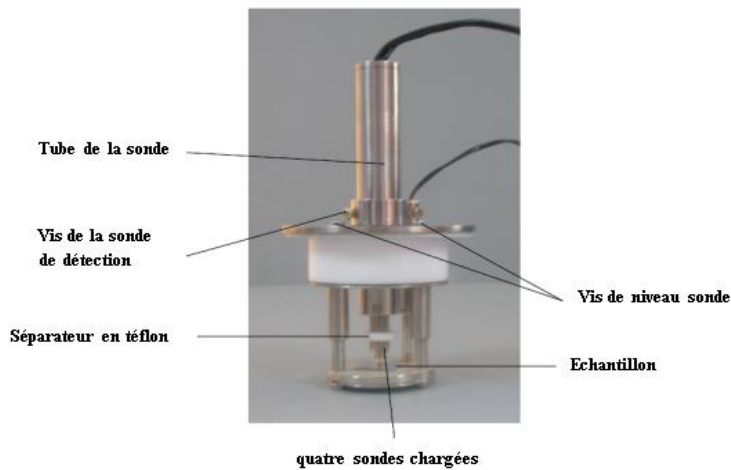


Figure II-6 : Sonde des quatre pointes.

II-4-3 : Détermination expérimentale du coefficient d'anisotropie (coefficient de Lankford)

Pour chaque matériau, nous avons fait varier deux paramètres, d'une part, α l'angle de la direction de traction avec la direction de laminage (DL) et d'autre part, le taux de déformation imposé (Figure II-7). Nous avons choisi un pas de 15°C pour étudier la variation de R dans le plan de la tôle et pour chaque angle 4 valeurs différentes de taux de déformation, variables suivant le domaine d'allongement uniforme du matériau considéré ; soit au total 28 éprouvettes et le positionnement de l'éprouvette prélevée sur la tôle est schématisé sur la figure II.8

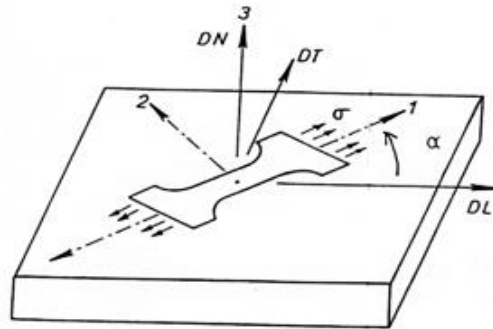


Figure II-7 : Epreuve de traction sollicitée dans la direction α .

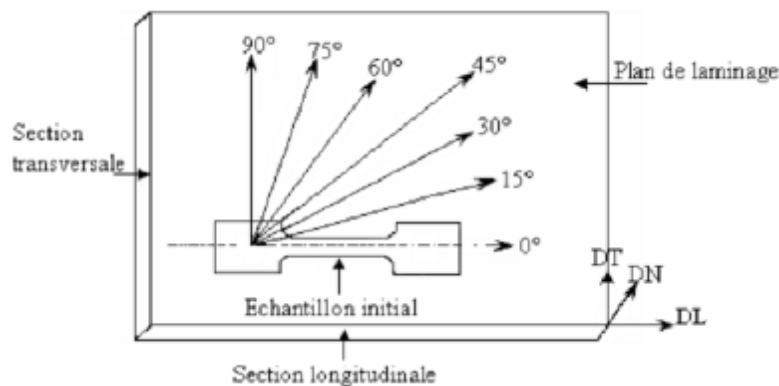


Figure II.8 : Positionnement de l'éprouvette de traction sollicitée dans une direction α

Pour mesurer les déformations et calculer R, nous avons utilisés des éprouvettes normalisées du type ISO 50 dont les dimensions sont données sur la figure II-9. L'épaisseur est celle de la tôle considérée. La longueur utile du Fut de l'éprouvette est d'environ 80mm. Des ébauches de 20 x 140mm ont d'abord été découpées. L'erreur maximum sur l'orientation de l'éprouvette est de l'ordre du degré.

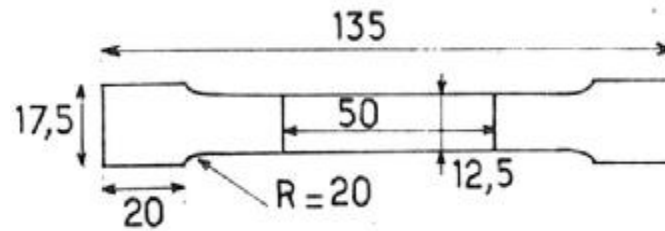


Figure II-9 : Schéma des éprouvettes de traction utilisées.

Nous avons ensuite mesuré la largeur de l'éprouvette en cinq points différents situés à l'intérieur des deux repères. Avec un pied à coulisse dont la précision est d'environ $10\ \mu\text{m}$. La distance initiale entre les deux repères est mesurée également en trois points différents.

Deux repères distants de 50mm symétriques par rapport au milieu de l'éprouvette sont tracés et la distance entre ces deux repères a été mesurée avant (L_0) et après (L) traction (figure II-10).

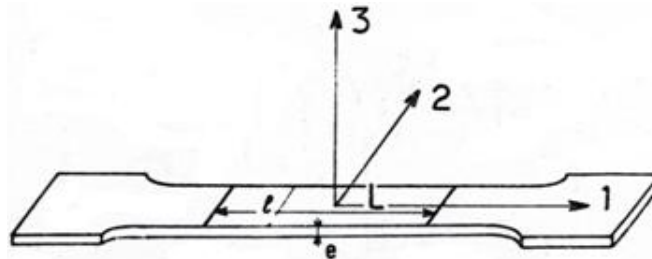


Figure II-10: Définition des repères lors d'un essai de traction,

La largeur a été mesurée en trois points différents situés entre les deux repères, à l'aide d'un palmer associé à un comparateur d'une précision de $5\ \mu\text{m}$. Les éprouvettes ont été déformées sur une machine de traction de type Zick Roell au sein du Laboratoire de Mécanique de Précision, Faculté des Sciences Fondamentales, Université Ferhat Abbes, SETIF (Figure II-11).



Figure II-11: Photographie de la machine de traction de type Zwick Roell au sein du laboratoire mécanique de précision Faculté des Sciences Fondamentales Université Ferhat Abbas, SETIF.

Avec une charge de 2,5kN et une vitesse de 2mm/mn soit $\dot{\epsilon}=4 \cdot 10^{-4} \text{s}^{-1}$, jusqu'à la valeur désirée, l'éprouvette est alignée avec l'axe de traction par une cale. Après traction la largeur et la distance entre les repères sont mesurées comme précédemment. Les résultats des mesures sont utilisés dans un programme qui calcule, pour chaque grandeur, la valeur moyenne des cinq mesures ainsi que leur dispersion, pour chaque éprouvette ϵ_1 et ϵ_2 puis :

$$R = \frac{-\epsilon_2}{\epsilon_1 + \epsilon_2} \quad (\text{II.6})$$

II-4-4 : Pouvoir thermoélectrique

Pour mesurer le pouvoir thermoélectrique (PTE), il convient d'appliquer un gradient de température sur l'échantillon. Lorsqu'on relie notre échantillon avec deux sondes en cuivre, l'une chaude et l'autre froide, la différence de température ΔT entre deux points de l'échantillon ainsi engendrée entraîne, par le biais de l'effet Seebeck, l'apparition d'une différence de potentiel ΔV entre ces deux mêmes points. La chute de température est évaluée au moyen de deux thermocouples connectés à l'échantillon. La différence de tension est quant à elle évaluée par le biais des deux fils de même nature des thermocouples (figure II-12). Le pouvoir thermoélectrique (PTE) est défini comme :

$$S = \frac{\Delta V}{\Delta T} \quad (\text{II.7})$$

S est exprimé en $\mu\text{V K}^{-1}$.

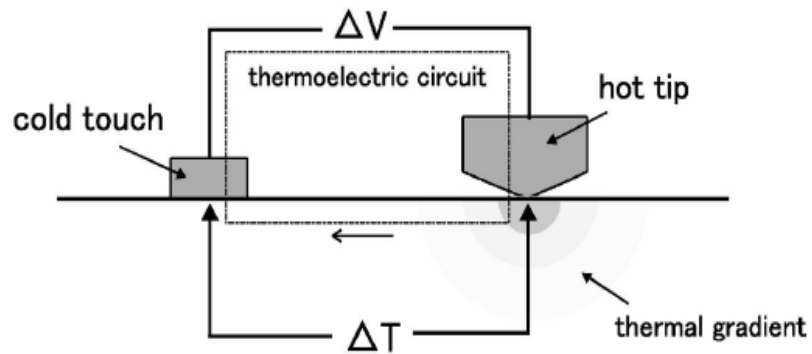


Figure II-12: Principe de mesure du pouvoir thermoélectrique.

Ce mesure a été réalisé au sein du Laboratoire Cellules Solaires, Faculté de chimie, Université des Sciences et de la technologie Houari Boumediene, Bab-Ezzouar (USTHB) (voir figure II-13).



Figure II-13 : Banc de mesure du pouvoir thermoélectrique.

II-5 : Caractérisation par diffraction des rayons X

Afin d'identifier les différentes phases dans l'alliage traité, on a utilisé la diffraction des rayons X. Cette méthode nous permet surtout de déterminer les paramètres de maille de la

matrice et des précipités. Le faisceau incident est diffracté sur les seuls plans atomiques d'indices (hkl) vérifiant la relation de Bragg suivante :

$$2d_{hkl} \sin \theta_{hkl} = n\lambda \quad (\text{II.7})$$

Où :

d_{hkl} : la distance entre les plans (hkl) du réseau cristallin

θ_{hkl} : l'angle entre le faisceau de rayon X incident et la normale des plans (hkl),

n : l'ordre de la réflexion,

λ : la longueur d'onde.

II-5-1 : Analyses des profils des raies de diffraction des rayons X

La diffraction des rayons X a connu un développement considérable tant sur le plan instrumental que sur les moyens d'affinement des diffractogrammes. De nombreux programmes basés sur la méthode de Rietveld ont été mis aux points tels que : MAUD (Lutterotti, 2000), PM2K utilisé dans le cas de ce travail. Les analyses des profils des raies de diffraction des rayons X pour chaque échantillon ont été réalisées sur des surfaces planes ayant subi une préparation fine par polissage et finissage. L'appareil utilisé est de type XPERT-PRO PW 3040 (Phillips) X-ray en utilisant la radiation Cu K α radiation et en opérant à 40 kV et 20 mA. Les angles de Bragg 2θ varient entre 25 et 110°. Le pas de mesure était 0.02° et le temps de comptage par pas est de 4 s. Pour la correction de l'erreur instrumentale (élargissement instrumental), nous avons préparé un standard instrumental à partir d'un alliage Pb-Ca-Sn non déformé et homogénéisé suffisamment (10 heures à 300°C) de façon à assurer un minimum de défauts dans le matériau. Le choix d'un tel standard est justifié par [9]. La largeur à mi-hauteur (FWHM) et la largeur intégrale (Integral Breadth) des profils physiques des raies de diffraction ont été obtenus à partir de la méthode Langford qui est basée sur les propriétés des fonctions de Voigt [10].

II-5-2 : Détermination de la texture par diffraction des rayons X

Le but de notre étude est de suivre l'évolution de la texture de déformation et de recristallisation-précipitation à partir de deux états structuraux différents ; un monophasé (solution solide sursaturée) et un biphasé (solution solide sursaturée et une phase précipitée).

Le principe de la caractérisation des textures par diffraction des rayons X repose sur le fait que l'intensité diffractée par un échantillon polycristallin dépend, entre autres, de la fraction volumique de cristallites en position de Bragg. En présence de texture, cette fraction varie avec l'orientation de l'échantillon par rapport au faisceau incident. En mesurant ainsi l'intensité diffractée par une famille de plans cristallographiques {hkl} donnée, dans toutes les directions de l'échantillon. Pour mesurer une figure de pôles correspondante à la famille de

plans $\{hkl\}$, des séries d'échantillons de l'alliage Pb (0.08%) Ca-(2%) Sn (% en poids) utilisés (1 cm^3) ont été préparés après laminage à froid (avec différents taux de réduction de 50 et 75% d'épaisseur) et différents temps et à températures de recuit (vieillis à 100°C pour différents temps de maintien) sont utilisées pour la caractérisation de la texture cristallographique par diffraction des rayons X. Le diffractomètre (Figure II-14) est positionné pour respecter les conditions de Bragg : le berceau fait un angle θ avec le faisceau incident et le détecteur est placé à un angle 2θ . Pour explorer la figure de pôles, l'échantillon auquel est associé un référentiel extérieur (DL, DT, DN) lié à son histoire thermomécanique, est installé au centre d'un cercle d'Euler qui assure les rotations (χ, ϕ). χ est une rotation polaire autour de DT; ϕ est une rotation polaire autour de DN comprise entre 0 et 360° . Généralement, un pas de 5° en χ et ϕ est utilisé, ce qui représente 1368 points par figure de pôles (lorsque $\chi \in [0-90^\circ]$). La texture a été déterminée dans l'état déformé et recristallisé en mesurant les figures de pôle ($5^\circ \leq \alpha \leq 75^\circ$) en mode de réflexion en utilisant le rayonnement Co-K α de longueur d'onde est $\lambda=2,101\text{\AA}$ sous voltage 40KV et le courant 24mA à partir d'un goniomètre de texture de rayon X à l'INSAM de Lyon, France.

A partir des figures de pôles complètes des raies $\{111\}$, $\{200\}$, $\{220\}$ et $\{311\}$ mesurées au moyen d'une grille $5^\circ \times 5^\circ$, les fonctions de distributions d'orientations cristallines (FDOC) sont calculées en utilisant le logiciel *LaboTex* qui permet la détermination des fractions volumiques (par la méthode d'intégration) des composantes de texture.

Plusieurs figures de pôles sont mesurées par échantillon dépendant notamment de la structure cristallographique et des raies accessibles sur le diffractomètre. Cependant, lors de la mesure des figures de pôle, l'intensité des rayons diffractés mesurée par le détecteur est altérée par différents phénomènes et doit être corrigée :

- du bruit de fond : c'est une correction effectuée par mesure de l'intensité d'une part, et d'autre part, de la raie considérée et ceci pour chaque valeur de χ et ϕ .
- de la défocalisation : la correction a pour but de corriger la détérioration de la focalisation lorsque χ augmente, détérioration conduisant à un élargissement du faisceau diffracté et par conséquent, une perturbation de l'intensité mesurée.

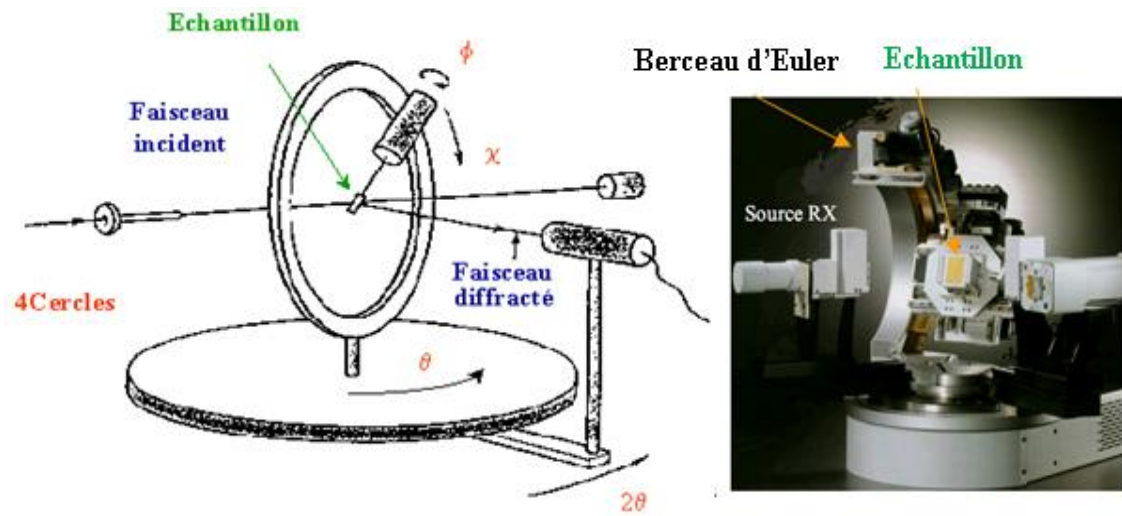


Figure II-14 : Principe d'un diffractomètre dit "4 Cercles" équipé d'un berceau d'Euler[11].

Références bibliographiques du Chapitre II

- [1] F. Abouhilou, Thèse de magister, USTHB (2004) Alger.
- [2] G.E. Dieter, « Mechanical Metallurgy », 2nd Ed., Mac-GRAW HILL Series, NEW YORK, (1976), p.608.
- [3] J. P. Hilger, J. Power Sources, 72 (1998)184.
- [4] J.P. Hilger, « Matériaux et Techniques », N° 6-7 (1993) 33.
- [5] J.P. Hilger, Journal de Physique, Collection C3 Vol. 5, (1995) C3-39.
- [6]M. Dehmas, A. Maître, J.B. Richirand, P. Archambault, J. Power Sources, 159 (2006) 721.
- [7] J. Barralis, G. Maeder, Précis de métallurgie : « Elaboration, Structure et normalisation », 4^{ème} édition, Nathan (1988).
- [8] B. Mehdi, Mémoire de Magister, USTHB (2010) Alger.
- [9] W.F. Hosford and W.A. Backofen “Fundamentals of Deformation Processing”, Proceeding of 9thSagamore Conference Syracuse University Press (1964) p.259.
- [10] H.J. Bunge and W.T.Roberts, J. Appl. Cryst., 2 (1969) 117.
- [11] S. Jakani, Thèse de Doctorat en Sciences, Université Paris XI (2004) France.

Chapitre III

Résultats et interprétations

Ce chapitre rassemble les résultats expérimentaux obtenus par les différentes caractérisations utilisées. Dans une première partie, sont présentées les données acquises au niveau microstructural par microscopie. La deuxième partie aborde les résultats de la détermination des paramètres microstructuraux de l'état déformé par diffraction des rayons X. La cinétique de recristallisation a été abordée par différentes techniques dans une troisième partie suivie par la mise en évidence de l'anisotropie de comportement plastique. En dernière partie, nous avons déterminé les textures expérimentales qui sont discutées en comparaison avec les textures simulées calculées ainsi que celles reportées dans la littérature.

Introduction

Avant d'entamer l'étude des évolutions microstructurales, mécaniques et texturales de nos alliages laminés et recristallisés, il est important de caractériser l'état métallurgique de nos alliages après trempe et mise en solution solide sursaturée. Pour cela, les caractérisations qualitative et quantitative ont été utilisées afin de vérifier la composition nominale et la bonne homogénéité des espèces chimiques présentes de notre alliage après avoir subi un traitement d'homogénéisation à la température 523°K , suivi d'une trempe à l'eau.

III-1 Présentation des échantillons

L'alliage Pb-0.08Ca-2Sn (% en poids), nous a été fourni par des collaborateurs de la Faculté des Sciences, Université Henri Poincaré (Nancy, France) sous forme de lingots. Nous présentons dans la figure III-1, la photographie d'un lingotin de l'alliage fondu dans un creuset cylindrique (découpé à partir du lingot initial) et de deux échantillons découpés du lingotin. Leurs dimensions cylindriques sont respectivement $60 \times 11 \text{ mm}^2$ et $3 \times 11 \text{ mm}^2$ avec un diamètre de 11mm.



Figure III-1 : Photographie d'un lingotin d'alliage Pb-0.08Ca-2Sn (% en poids) et de deux échantillons découpés du lingotin.

III-2 Caractérisation des échantillons par analyse physico-chimique semi-quantitative EDAX (Energie dispersive Analysis X-Ray)

La technique de caractérisation quantitative utilisée pour l'analyse physico-chimique semi-quantitative est le Microscope Electronique à Balayage (MEB, JSM 6000), équipé d'un détecteur permettant de déterminer la composition chimique par EDAX.

Après le traitement de mise en solution solide, effectué à une température de 523K pendant 30 mn, puis une trempe à l'eau, suivie d'une opération de polissage mécanique, nous avons procédé à l'analyse chimique des échantillons par spectroscopie des rayons X dispersés en énergie (EDAX) dans un MEB.

Nous montrons dans la figure III.2 une micrographie obtenue au MEB de l'alliage Pb-0.08Ca-2Sn (% en poids) après polissage mécanique et décapage chimique et mécanique.

La figure III-3 présente les résultats de l'analyse EDAX pour la solution solide sursaturée Pb-0.08Ca-2Sn (% en poids).

Sur le spectre EDAX, sont portées, en abscisse, les énergies dispersées par les différents atomes se trouvant sur la surface. En ordonnée, le nombre de coups reçus par le détecteur dans un certain intervalle de temps.

On remarque que les concentrations déterminées par analyse EDAX s'écartent un peu des valeurs nominales à cause d'une probable fluctuation des concentrations aux points analysés et d'une mauvaise calibration de l'appareil. Signalons enfin que l'EDAX est une analyse semi quantitative.

III-3 : Microstructure de l'alliage Pb-0.08Ca-2Sn (%en poids) déformé à froid par laminage et recristallisé

Les figures III-4-a-b montrent quelques aspects morphologiques de l'état déformé (à 75% de réduction d'épaisseur par laminage) de la solution solide sursaturée Pb-0.08 Ca-2Sn (% en poids) et présentent les éléments typiques de défauts dans l'alliage. La structure est typique de polycristaux déformés : réseau de dislocations sur les sous-joints de grains et les lignes de micro glissement. La densité de dislocations grossièrement évaluée à partir des micrographies MET, était autour $2-5 \cdot 10^{10}/\text{cm}^2$. Ces valeurs sont faibles par rapport à d'autres alliages de structure c.f.c. ils sont cependant en accord avec les valeurs énoncées dans la littérature pour des alliages proches [1]. L'effet de la déformation plastique introduit peu de défauts dans la microstructure comparativement aux autres systèmes.

Les figures III-5-a-b, présentent les micrographies par MEB et par Microscope Optique (MO), et montrent les caractéristiques de recristallisation de l'alliage Pb-0.08Ca-2Sn (% en poids) laminé à froid avec 75% réduction d'épaisseur et recuit à 100°C pendant 1 heure et 6 heures respectivement.

Dans la figure III-5-a, nous pouvons mettre en évidence des clusters de petits grains recristallisés avec la taille des grains moyenne de 2-10 μm éparpillés dans des grains de grande taille, probablement ceux de la microstructure initiale.

La figure III-5-b, montre une microstructure entièrement recristallisée consistant en des grains non équiaxes ayant des tailles moyennes comprises entre 100 et 200 μm . Le fait que les grains ne soient pas équiaxes, est le signe d'instabilités aux niveaux des joints de grains à cause de la présence de solutés très actifs chimiquement comme le Sn et le Ca. Ce type de joints de grains instables a déjà été observé dans des alliages similaires [2].

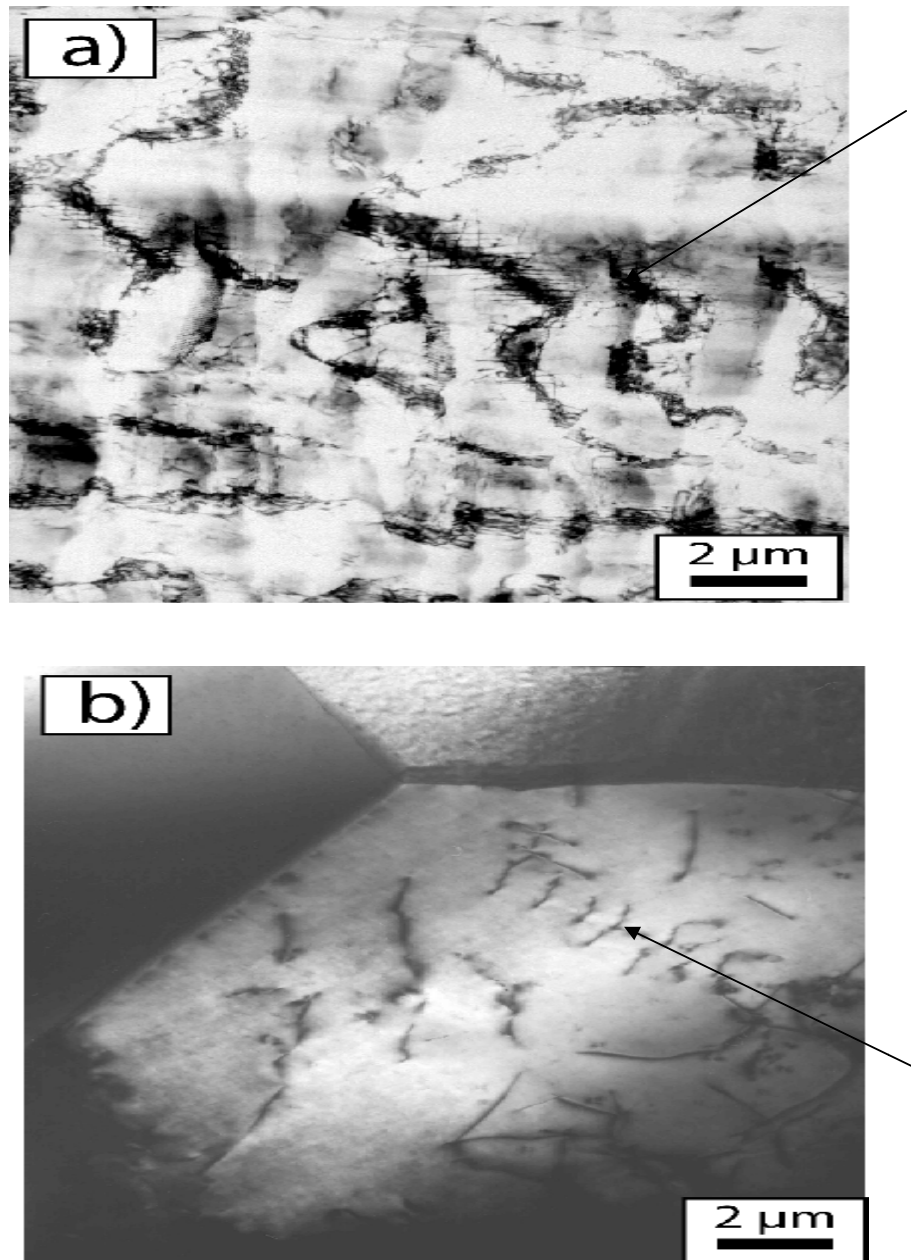


Figure III-4 : Micrographie MET montrant les éléments typiques des défauts dans l'alliage Pb-0.08Ca-2Sn (% en poids) laminé à 75% de réduction d'épaisseur :

- a) réseau de dislocation sur les sous joints de grains,
- b) les lignes de micro glissement.

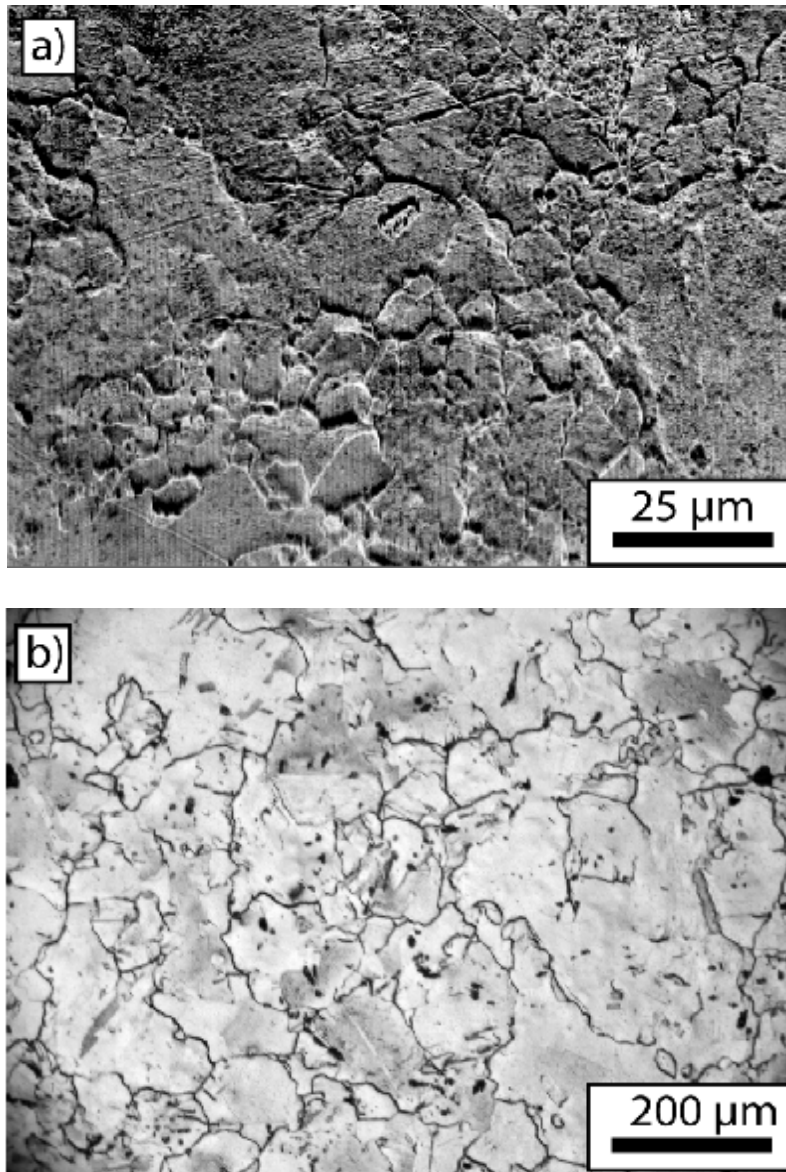


Figure III-5 : Micrographies MEB et MO montrant les caractéristiques morphologiques de la recristallisation de l'alliage Pb-0.08Ca-2Sn (% en poids) laminé à froid avec 75% réduction d'épaisseur et recuit à 100⁰C pendant :

- a) 1 heure,
- b) 6 heures.

III-4 Caractérisation des solutions solides par diffraction des rayons X (DRX) des alliages en état de solution solide et après déformation plastique à froid par laminage

III-4-1 : Caractérisation des solutions solides par diffraction des rayons X

Les figures (III-6-8), présentent les diffractogramme des rayons X de l'alliage Pb-0.08Ca-2Sn (% en poids) en état de solution solide sursaturée. Nous notons la présence de 6 raies de diffraction de rayons X suivantes : {111}, {200}, {220}, {311}, {222} et {400}, qui sont observées aux positions angulaires analogues à celles du Pb pur (la matrice) et correspondantes à la structure c.f.c. La raie non indexée en position angulaire ($2\theta = 33^\circ$) peut être due à une phase non soluble comme il a été montré par [2]. Comme il a déjà été mentionné dans la littérature, la déformation plastique à froid par laminage n'a pas un effet considérable sur la microstructure de l'alliage comme le montre le faible élargissement des raies de diffraction [1].

Le paramètre de maille de la matrice a été calculé et affiné, sa valeur moyenne vaut $4,950\text{\AA}$, cette valeur est proche des résultats expérimentaux tabulés dans la littérature [3-4] et celle calculée par les méthodes *ab initio* [5].

Le paramètre de maille de la solution solide est plus faible que celui de Pb pur, ce qui montre un effet de distorsion (contraction) de la matrice par effet de solution solide [6].

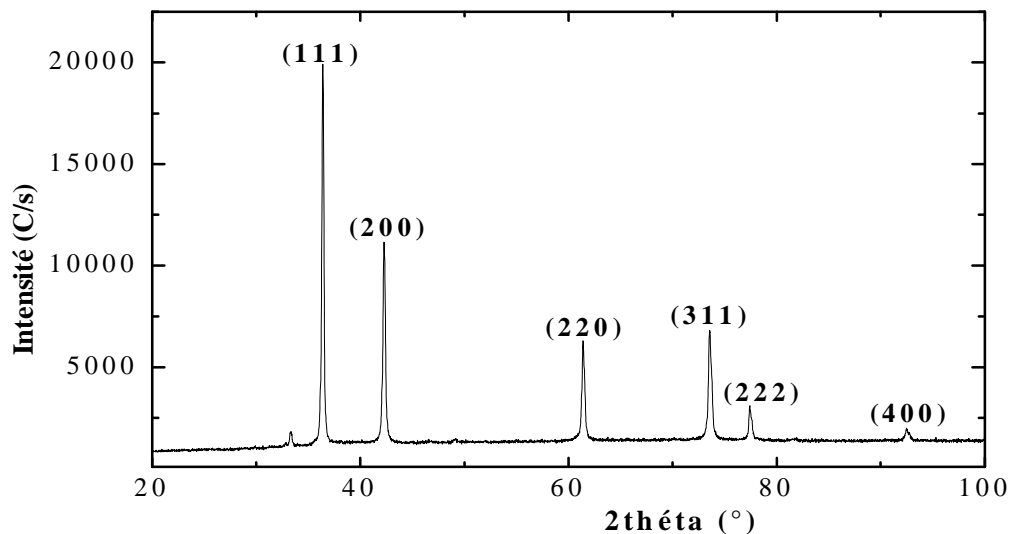


Figure III-6 : Diffractogramme des rayons X de l'alliage Pb-0.08Ca-2Sn (% en poids) en état de brut de coulée.

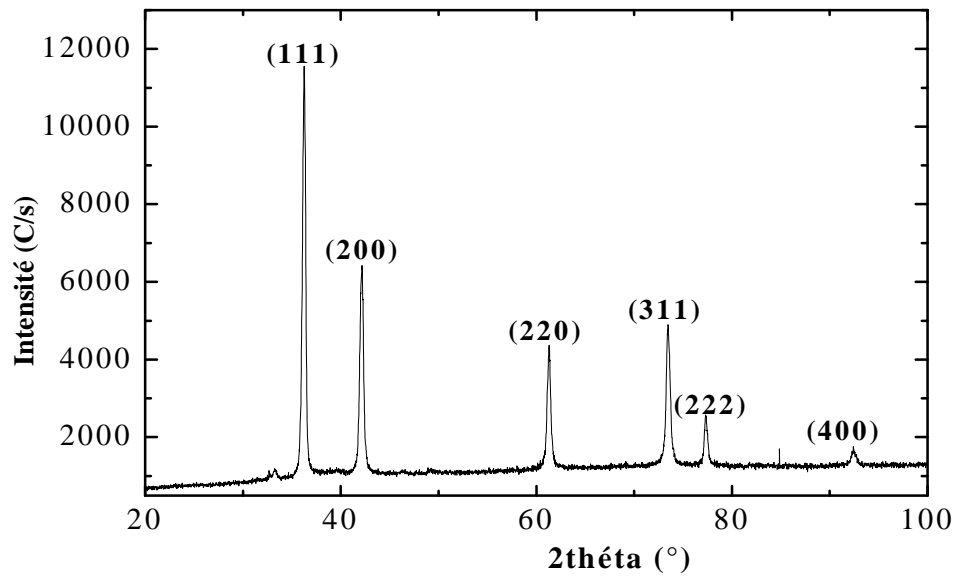


Figure III-7 : Diffractogramme des rayons X de l'alliage Pb-0.08Ca-2 Sn (% en poids) en état de solution solide sursaturée (homogénéisée).

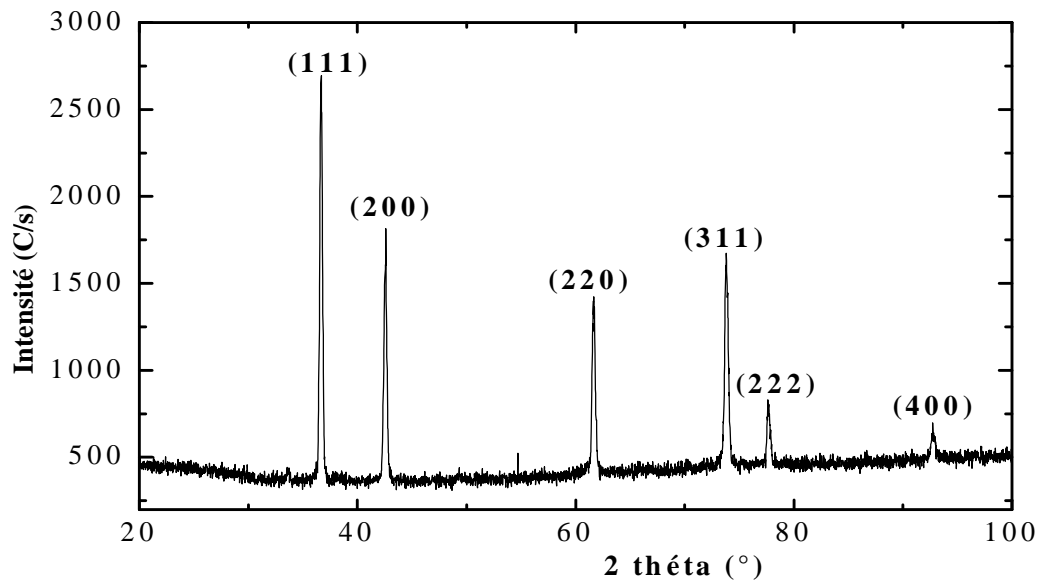


Figure III-8 : Diffractogramme des rayons X de l'alliage Pb-0.08 Ca-2Sn (% en poids) en état de solution solide sursaturée (sous forme de poudre).

III-4-2 : Caractérisation par diffraction des rayons X (DRX) des alliages après déformation plastique à froid par laminage

Les figures III-9-12 présentent les diffractogrammes des rayons X obtenus pour l'alliage Pb-0.08Ca-2Sn (% en poids) déformé à froid par laminage avec des taux de réduction d'épaisseurs respectives : 50% et 75 % et recristallisés pendant 5 heures à la température 160°C.

Nous notons que tous les diffractogrammes des rayons X présentent des raies globalement observées à des positions angulaires analogues à celles de la matrice Pb. Naturellement, aucune autre raie de diffraction des rayons X n'est présente, ce qui prouve l'absence de toute forme de précipitations ou d'autres phases telle que la phase Pb_3Ca , etc.

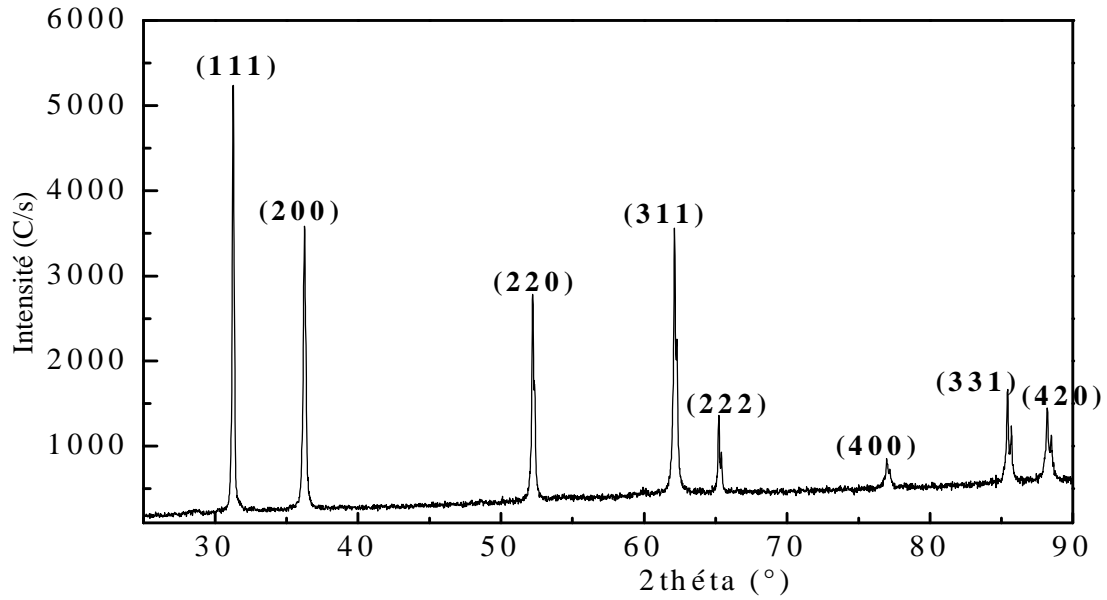


Figure III-9 : Diffractogramme des rayons X de l'alliage Pb-0.08 Ca-2Sn (% en poids) à l'état déformé par laminage à 50% de réduction d'épaisseur.

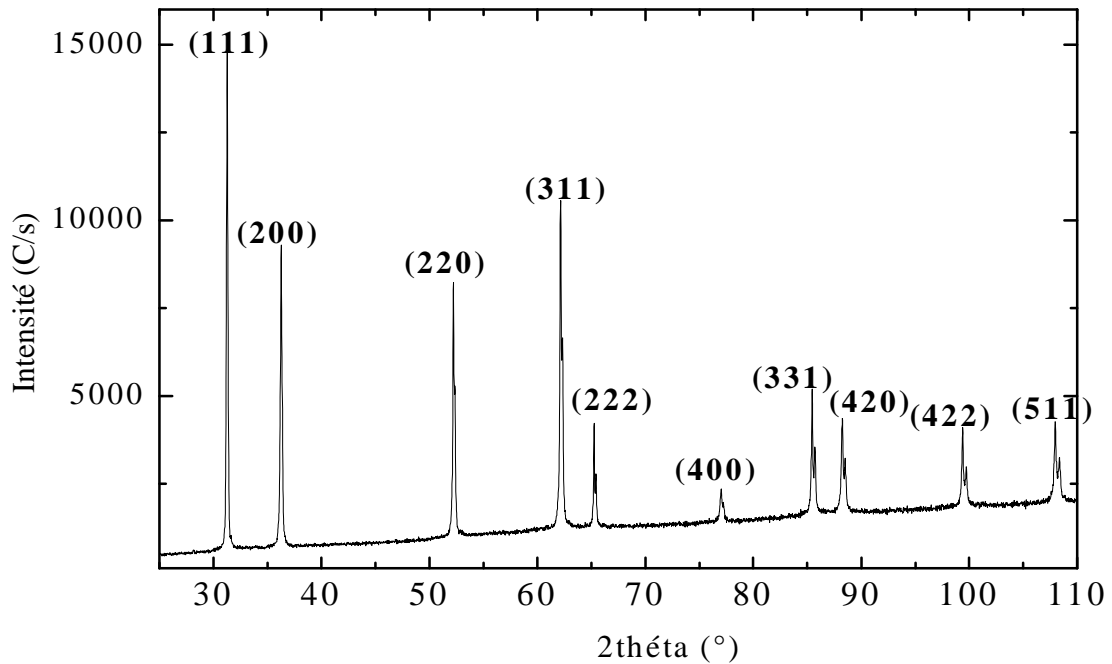


Figure III-10 : Diffractogramme des rayons X de l'alliage Pb-0.08Ca-2Sn (% en poids) à l'état déformé par laminage à 75% de réduction d'épaisseur.

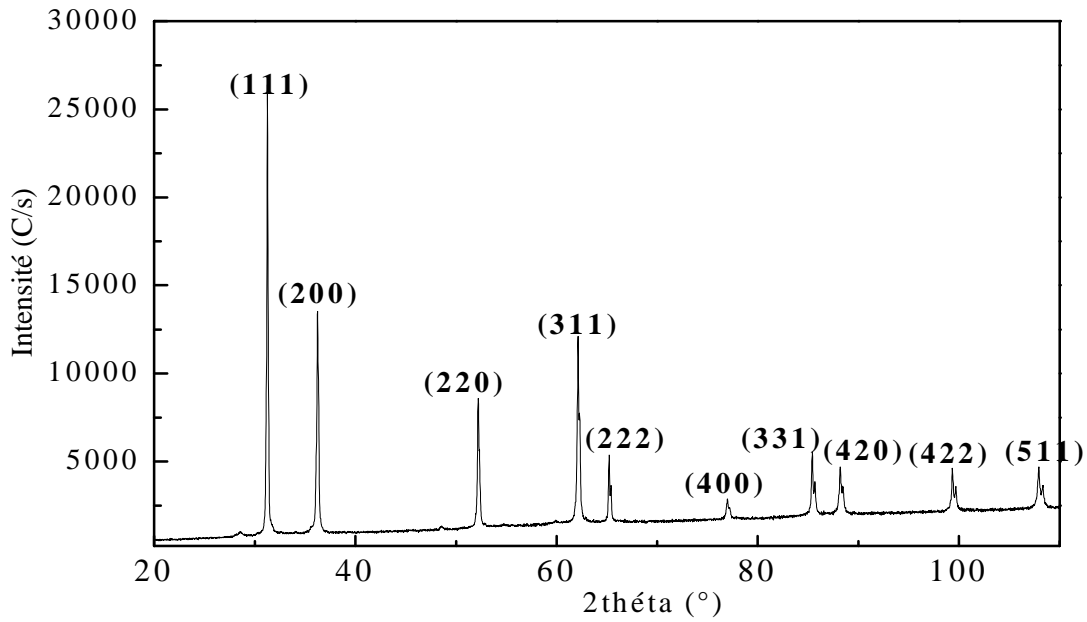


Figure III-11 : Diffractogramme des rayons X de l'alliage Pb-0.08Ca-2Sn (% en poids) en état déformé par laminage à 50% de réduction d'épaisseur et recristallisé pendant 5h à 160°C.

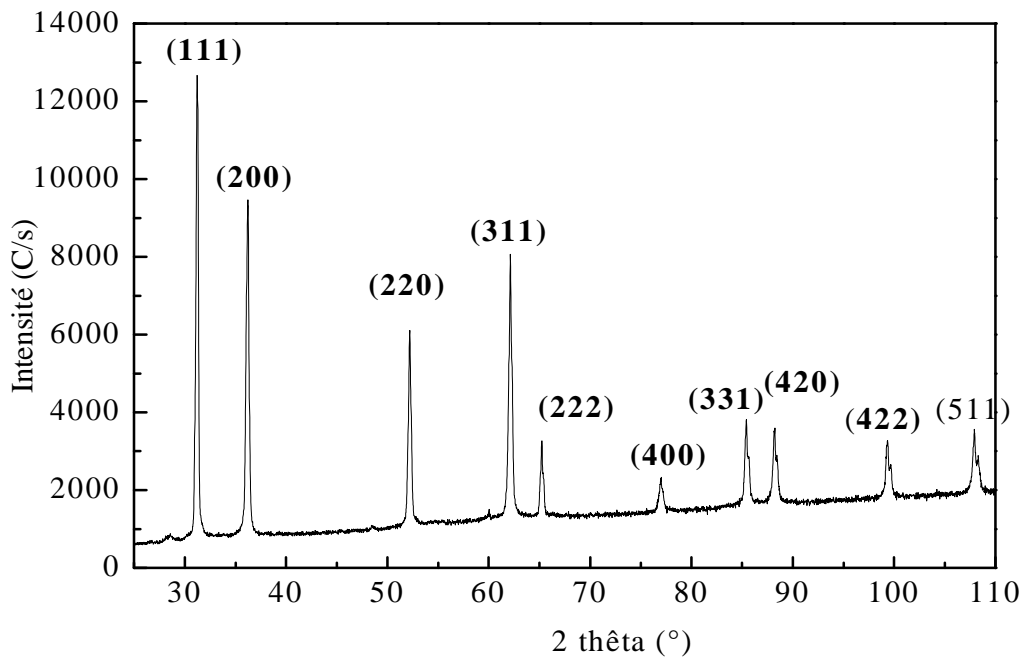


Figure III-12 : Diffractogramme des rayons X de l'alliage Pb-0.08 Ca- 2 Sn(% en poids) en état déformé par laminage à 75% de réduction d'épaisseur et recristallisé pendant 5h à 160°C.

III-4-2-1 : Détermination des paramètres microstructuraux de l'état déformé et vieilli**III-4-2-1-a : Choix de la méthode et du programme**

La méthode par l'analyse des profils des raies de diffraction X (XRDLPA) des échantillons massifs ou en poudre a montré que c'est une technique rapide, simple et très satisfaisante pour les résultats obtenus. La détermination de la taille des cristallites passe nécessairement par la déconvolution des deux contributions ; celle de l'effet de taille et celle des microcontraintes sur l'ensemble des pics. Notre choix s'est porté sur le programme PM2K (analyse des profils des raies de diffraction des rayons X), Ce programme développé par Lutterotti et Scardi [7] est basé sur la méthode de Warren-Averbach dite: *des séries de Fourier* et largeurs simplifiées en utilisant un affinement de la structure de type Rietveld [8-9]. Ce programme permet une caractérisation du matériau en donnant une moyenne des paramètres microstructuraux comme: la taille des cristallites et les micro-contraintes ainsi qu'une estimation du pourcentage de chaque phase. Ce programme prend en considération l'anisotropie de la forme et la texture du matériau.

Les diffractogrammes des rayons X obtenus dans les figures III-9, III-10, III-11, et III-12 sont discontinus, l'espace entre chaque point correspond au pas de mesure. L'interprétation de ces mesures est généralement faite en modélisant le signal mesuré par une fonction analytique dont les paramètres sont affinés de façon que le profil de cette fonction corresponde mieux au profil expérimental. Le principe d'affinement des diffractogrammes des rayons X, est d'obtenir un fit de qualité pour que les courbes expérimentales et théoriques soient confondues.

III-4-2-1-b: Analyse par la méthode de Rietveld

Les figures III.9-12 présentent les diffractogrammes des rayons X, obtenus pour l'alliage Pb-0.08Ca-2Sn (% en poids) déformé par laminage avec deux taux de déformation 50 et 75% de réduction d'épaisseur être cristallisé à 160°C pendant 5 heures, et affinés par la méthode de Rietveld implémentée dans le code PM2K.

La figure III-13 présente le diffractogramme des rayons X obtenu pour l'alliage Pb-0.08Ca-2Sn déformé par laminage à 50 % de réduction d'épaisseur. Nous notons que tous les diffractogrammes des rayons X présentent des raies globalement aux mêmes positions angulaires que celles de la matrice Pb. Le principe d'affinement des diffractogrammes des rayons X par la méthode de Rietveld est illustré par la figure III-14. La ligne noire qui se trouve au dessous du diffractogramme est la différence entre la courbe expérimentale et la courbe théorique. Cette ligne rend compte visuellement de la qualité du fit.

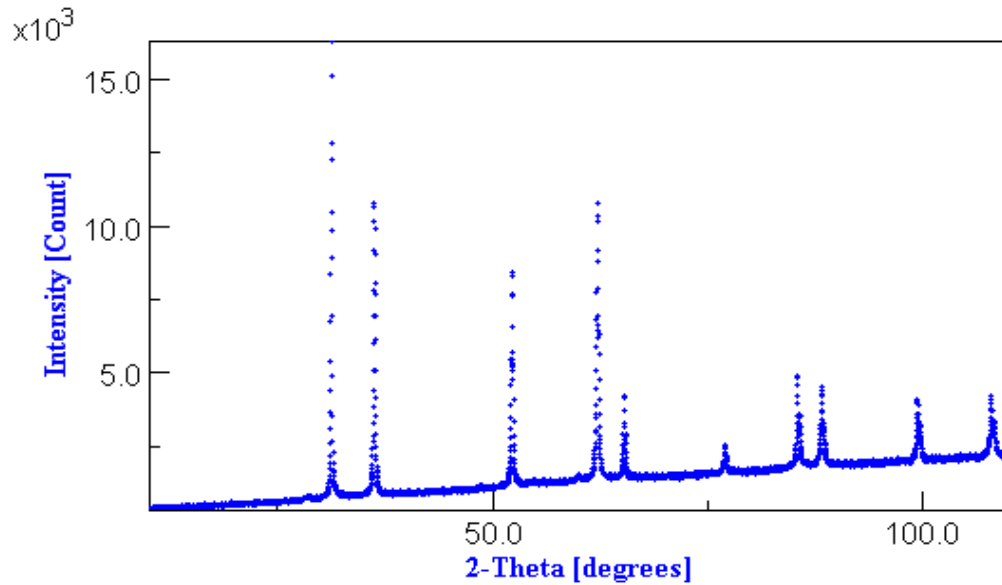


Figure III-13 : Diffractogramme des rayons X expérimental de l'alliage Pb-0.08Ca-2Sn (% en poids) à l'état déformé par laminage à 50% de réduction d'épaisseur.

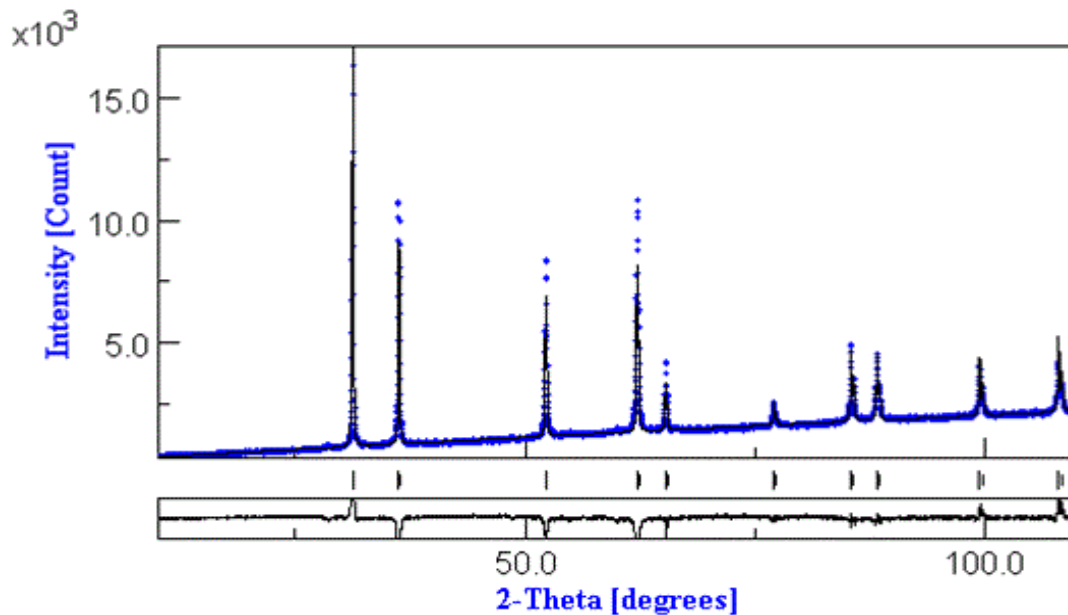


Figure III-14 : Affinement Rietveld du diffractogramme des rayons X avec le programme PM2K.

III-4-2-1-c : Résultats de l'analyse Rietveld pour l'alliage Pb-0.08Ca-2Sn déformé et vieilli

Les figures III-15 et III-16 présentent les diffractogrammes des rayons X obtenus pour l'alliage Pb-0.08Ca-2Sn (% en poids), déformé par laminage à des taux de déformation (50 et 75%) de réduction d'épaisseur. Chaque figure englobe les diffractogrammes des rayons X

obtenus après déformation et affinés par la méthode de Rietveld implémentée dans le code PM2K.

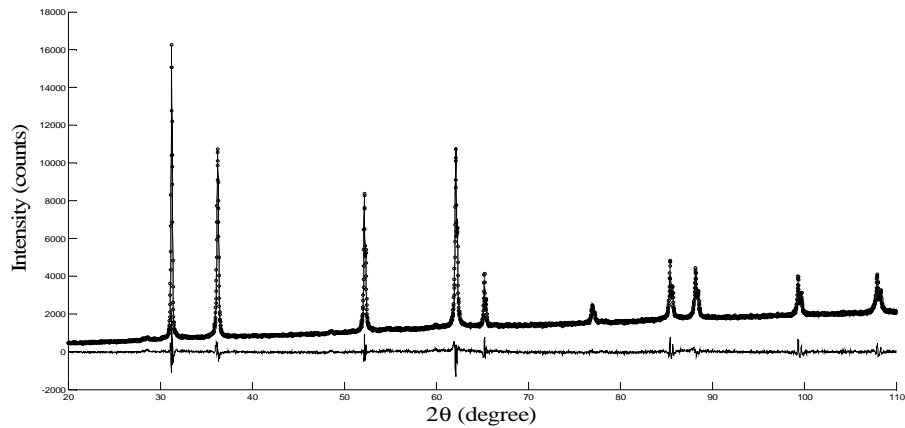


Figure III-15 : Diffractogrammes de rayons X obtenus pour l'alliage Pb-0.08Ca-2Sn (% en poids), déformé par laminage à 50%, englobe le spectre obtenu après déformation et celui affiné par la méthode de Rietveld.

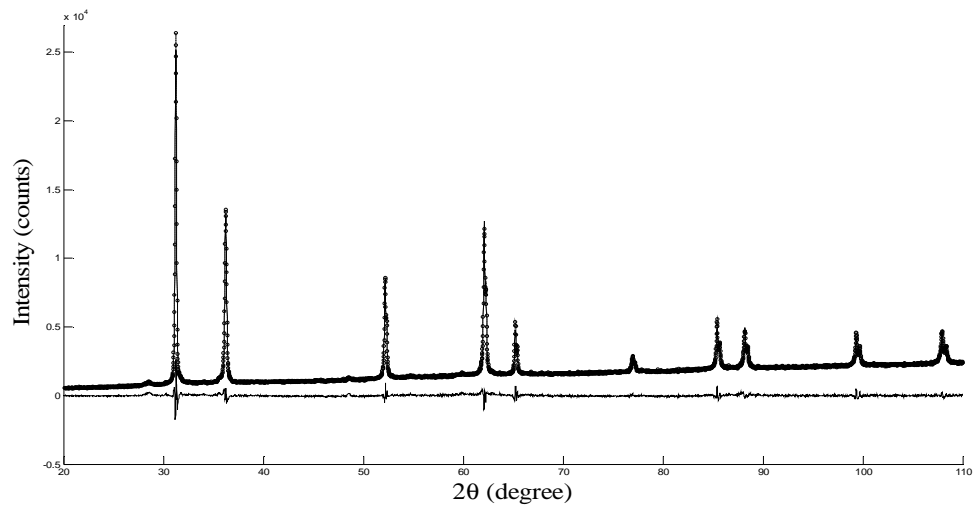


Figure III-16 : Diffractogrammes de rayons X obtenus pour l'alliage Pb-0.08Ca-2Sn (% en poids), déformé par laminage à 75%, englobe le spectre obtenu après déformation et celui affiné par la méthode de Rietveld.

Dans le tableau III-1, sont portés les résultats des paramètres microstructuraux obtenus par l'analyse Rietveld pour l'alliage Pb-0.08 Ca-2Sn (% en poids) déformé par laminage à 50 et 75% de réduction d'épaisseur et recristallisé à la température de 160°C pendant 5heures [10].

Tableau III-1: Paramètres microstructuraux obtenus par la méthode de Rietveld pour l'alliage Pb-0.08Ca-2 Sn (% en poids).

Pb-0.08Ca-2 Sn (% en poids)	Paramètre de maille $a_{\pm}(0,001-0,006)$ (Å)	Taille des cristallites D_V (Å)	Densité de dislocations $\rho(10^{15}m^{-2})$	Probabilité de fautes d'empilement (α , β)
Déformé à 50%	4,9605	550	0,61	(0, 0.0113)
Déformé à 75%	4,9584	350	0,62	(0, 0.064)
Déformé à 50% et recristalisé à 160°C pendant 5h	4,9584	450	0,35	(0, 0.011)
Déformé à 75% et recristalisé à 160°C pendant 5h	4,9626	200	0,005	(0, 0.066)

Les figures III-17 et III-18 présentent la distribution de la taille des grains pour l'alliage Pb-0.08Ca-2Sn (% en poids) déformé par laminage à 50 et 75% de réduction d'épaisseur d'un côté et de l'autre côté déformé par laminage à 50 et 75% de réduction d'épaisseur et recristallisé à 160° C pendant une durée de 5 heures.

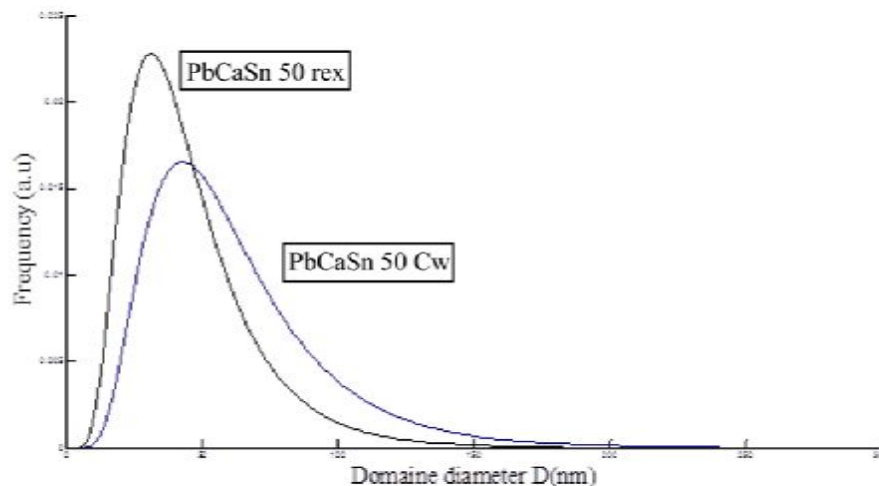


Figure III-17 : Distribution de la taille des grains pour l'alliage Pb-0.08Ca-2Sn (% en poids) déformé à 50% (en bleu) et l'autre déformé à 50% et recristallisé à 160°C pendant 5 h (en noir).

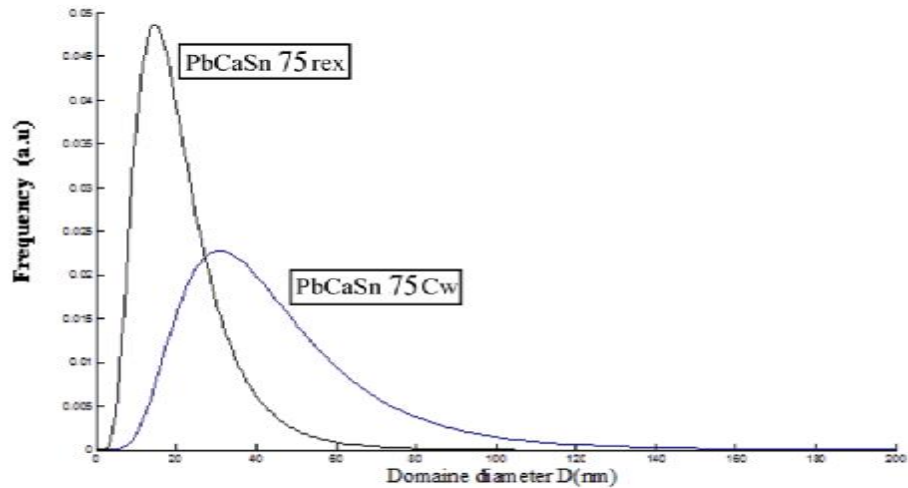


Figure III-18 : Distribution de la taille des grains pour l'alliage Pb-0.08Ca-2Sn (% en poids) déformé à 75% (en bleu) et l'autre déformé à 75% et recristallisé à 160°C pendant 5h (en noir).

III-4-3 : Évaluation des profils de diffraction des rayons X

Les résultats graphiques déterminés, par le programme PM2K implémenté dans le logiciel WPPM (**W**hole **P**owder **P**attern **M**odelling), sont représentés dans les figures III-15 et III-16 pour l'alliage Pb-0.08Ca-2Sn (% en poids) déformé par laminage à 50 % et 75 % de réduction d'épaisseur, puis recristallisé à 160°C pendant 5 heures. L'accord entre les résultats expérimentaux et modélisés, comme indiqué par le résiduel (la ligne inférieure, la différence entre des données expérimentales et modélisés), est tout à fait satisfaisant.

III-4-4 : Taille et distribution du diamètre des cristallites

Les figures III-17 et III-18 montrent la fonction de distribution de la taille des grains $g(D)$ correspondant au calcul des paramètres μ et de σ en utilisant le programme PM2K. Le désaccord de la distribution de la taille des grains a diminué avec le taux de déformation par laminage. On peut voir aussi que la distribution de la taille des grains devient moins large avec le grand taux de déformation à froid.

III-4-5 : Microstructure et paramètre de distorsion

L'effet de taille des grains a été modélisé en assumant une distribution normale de taille des grains sphériques. En principe, on peut utiliser n'importe quelle fonction de

distribution appropriée à l'étude spécifique, mais ce choix a été prouvé être effectif dans plusieurs cas étudiés par [11].

Une distribution lognormale est définie par [12] et s'écrit sous la forme suivante :

$$g(D) = \frac{1}{D\sigma\sqrt{2\pi}} \exp\left[-\frac{1}{2}\left(\frac{\ln D - \mu}{\sigma}\right)^2\right] \quad (\text{III.1})$$

Où σ^2 et μ sont les variances lognormale et lognormale moyenne, On donne la taille des grains moyenne de distribution selon l'expression suivante :

$$\langle D \rangle = \exp\left(\mu + \frac{\sigma^2}{2}\right) \quad (\text{III.2})$$

Le facteur de contraste moyen des dislocations est donné par la relation suivante :

$$\bar{C}_{hkl} = A + B.H \quad (\text{III.3})$$

Où :

$$H = \frac{(h^2k^2 + h^2l^2 + l^2h^2)}{(h^2 + k^2 + l^2)^2} \quad (\text{III.4})$$

Les constantes A et B peuvent être calculées pour un cristal à partir des constantes élastiques du matériau (plomb), connaissant son système de glissement.

Si nous avons la présence simultanée des dislocations coin et vis, l'effet contrasté correspondant peut être calculé comme la somme pondérée des deux composantes :

$$\bar{C}_{hkl} = f_e(A_e + B_e.H) + (1-f_e)(A_s + B_s.H) \quad (\text{III.5})$$

En plus de la densité de dislocations moyenne et le rayon effectif extérieur, la fraction relative de dislocations est affiné ($f_e=1$ pour la dislocation coin et $f_e= 0$ pour la dislocation vis).

Pour évaluer la dislocation, pour le système de glissement usuel $\{111\} \langle 110 \rangle$ des métaux CFC, le module de vecteur de Burgers s'écrit sous la forme suivante :

$$b = \frac{a_0}{\sqrt{2}} \quad (\text{III.6})$$

Où a_0 est le paramètre de maille considéré.

Le facteur contrasté pour ces dislocations a été calculé pour un monocristallin en utilisant les constantes élastiques du plomb ($C_{11} = 48,8$, $C_{12} = 41,4$, $C_{44} = 14,8$ GPA [13], tant pour la dislocation vis que pour la dislocation coin dans le système connu.

Les constantes élastiques du plomb sont remplacées dans les équations (III.1) et (III.2) qui ont permis de déduire les constantes suivantes :

$$A_s = 0.2616, B_s = -2.2123, A_e = 0.2517 \text{ et } B_e = -1.933 \text{ d'après [14].}$$

Une fois les constantes A_e , B_e , A_s et B_s déterminées, le logiciel WPPM a permis d'affiner la fraction relative aux dislocations coin et vis ($f_e = 1$ pour coin et $f_e = 0$ pour vis), en plus de la densité de dislocations moyenne et le rayon de coupure effectif.

Les valeurs de la densité de dislocations sont faibles et montrent une faible dépendance du taux de déformation. Comme indiqué par [15], leur faible valeur peut être due à un effet de restauration, cependant ces valeurs sont en bon accord avec les valeurs données par [1].

Les valeurs du paramètre d'arrangement de dislocations M , sans dimensions, sont portées dans le tableau III.2, d'après [16], il s'écrit sous la forme suivante :

$$M = R_e \sqrt{\rho} \quad (\text{III.7})$$

Où R_e est le rayon de coupure effectif des dislocations et ρ est la densité de dislocations moyenne de l'échantillon.

Le paramètre M caractérise la distribution et de l'écrantage du champ de contraintes et de déformation. Ses valeurs sont inférieures à l'unité, signifie que l'interaction entre les dislocations est faible.

La probabilité de fautes de déformation indique l'existence seulement des défauts dus aux dislocations. Sa valeur diminue avec le taux de déformation et est presque dans le même ordre des valeurs trouvées pour d'autres alliages à base de Pb [15,1]. De telles valeurs semblent justifier une absence complète de la probabilité de fautes extrinsèque et des fautes doubles dans l'alliage Pb-Ca-Sn déformé par laminage à froid avec leurs taux de déformation

(50 et 75 %), par conséquent, la probabilité des fautes de déformation est de nature intrinsèque.

Tableau III.2 : Paramètres microstructuraux obtenus par la méthode de Rietveld pour l'alliage

Pb-0.08Ca-2 Sn (% en poids) déformé à 50 % et 75 %.

PbCaSn	Déformé à 50%	Déformé à 75%
$\langle D \rangle$ (nm)	55	35
ρ (10^0 cm^2)	0,61	0,62
A (10^3)	1,5	6,4
a(nm)	4,9605	4,9584
M	0,085	0,075

III-5 : Cinétique de recristallisation dans l'alliage Pb-0.08Ca-2Sn (% en poids)

III-5-1 : Essai de microdureté

La figure III-19 présente la cinétique de recristallisation de l'alliage Pb-0.08Ca-2Sn (% en poids) en état de solide sursaturé, déformé par laminage à 75% par réduction d'épaisseur via l'évolution de la microdureté Vickers. L'évolution de la microdureté Vickers montre un adoucissement entre les temps de maintien compris entre 8000 et 20000 secondes. Cet adoucissement traduit une évolution de la microstructure qui est justement la réaction de recristallisation statique ou ordinaire. Les courbes aux trois températures montrent la présence d'un léger durcissement dans le faux plateau ($t \leq 2000$ s) qui serait dû à la précipitation de la phase L_{12} durcissante qui aurait pu interférer avec la recristallisation [4].

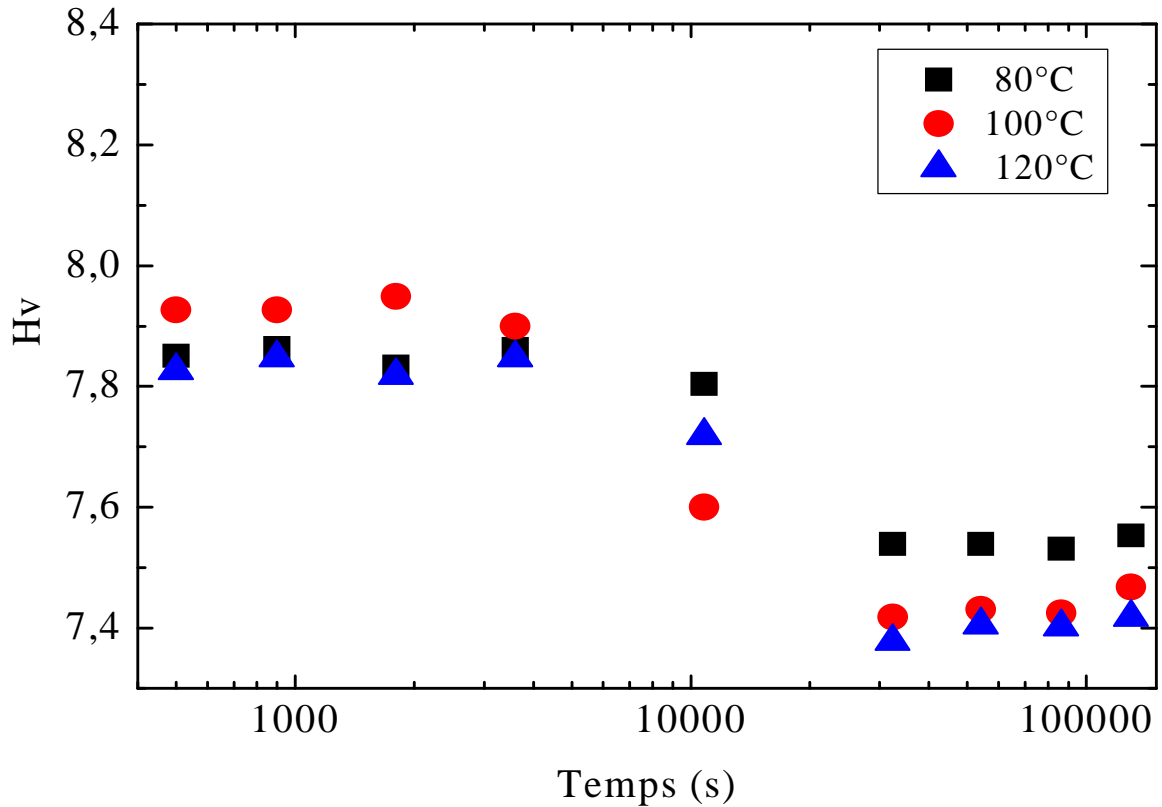


Figure III-19 : Cinétique de recristallisation de l'alliage Pb-0.08Ca-2Sn (% en poids) en état de solide sursaturé, déformé par laminage à 75% par réduction d'épaisseur avec un traitement de recristallisation pendant 2.5 heures (9000 secondes) à 100° C.

Dans la figure III-19, nous remarquons que la microdureté d'un alliage déformé et recristallisé a une évolution classique qui dépend plus ou moins du temps jusqu'à atteindre la recristallisation totale (l'adoucissement complet du matériau) ; ce temps est aussi mis en évidence par mesure de résistivité électrique après la précipitation totale qui est autour de $2-4 \cdot 10^4$ s.

Comme indiqué par [17-21], les alliages Pb-0.08Ca-2Sn (% en poids) peuvent subir plusieurs sortes de transformations de phases discontinues et continues en fonction du rapport de concentration d'Etain sur celle du Calcium (Sn/Ca). Lorsque ce rapport est élevé, comme c'est le cas de notre alliage (Sn/Ca=25), il a été mis en évidence la suppression de toutes les décompositions transitoires préliminaires et l'évolution d'une précipitation continue et ultérieure qui est le vieillissement. Comme exemple, un traitement thermique (pendant 1.5 h à 100°C) de l'alliage de Pb-0.08Ca-2Sn (% en poids) immédiatement après coulée et laminage de l'alliage, il a été montré une précipitation complète de la phase intermétallique $L1_2$ ordonnée qui gêne la restauration et la recristallisation [19-21].

L'ordre d'apparition de la précipitation et de la recristallisation avec l'influence de la sursaturation initiale et de la température ainsi que du temps de recuit a été discuté qualitativement par [22].

L'alliage Pb-Ca-Sn semble obéir au schéma proposé en Figure I.C-4 (voir Chapitre I) pour des températures de vieillissement s'étendant entre 80 et 120°C pour lesquelles les particules précipitées influencent le réarrangement des dislocations pour former le front de recristallisation et la migration de ce front. Le vieillissement aux températures 80 à 120°C incite une action combinée entre la précipitation continue et les réactions de recristallisation qui sont dissemblables à la deuxième partie du schéma proposé par [22], dans lequel la recristallisation est influencée seulement par la ségrégation et la précipitation apparaissent après l'achèvement de la recristallisation.

III-5-2 : Caractérisation des solutions solides Pb-0.08Ca-2Sn (% en poids) par mesure de résistivité électrique

La résistivité électrique est une propriété spécifique des matériaux et alliages. La mesure des variations de cette grandeur physique permet alors de suivre les transformations physiques ou chimiques liées aux changements de phases du matériau étudié. La résistivité est sensible à la présence d'éléments en solution et à la présence de phases multiples. On pourra ainsi admettre de façon générale qu'aussi bien les défauts ou toute perturbation de la périodicité du réseau cristallin conduiraient à limiter la mobilité des électrons de conduction et de ce fait à modifier de façon notable la résistivité. La précipitation d'une nouvelle phase, la variation du nombre de défauts ponctuels ou linéaires ainsi que la présence ou non d'éléments d'addition en position interstitielle, sont donc autant des phénomènes observables du point de vue de la résistivité électrique [23].

Notre travail a consisté à caractériser l'alliage Pb-0.08Ca-2Sn (% en poids) par mesure de la résistivité électrique en fonction du temps de maintien pour un vieillissement aux températures suivantes : 80°C, 100°C, 120°C, 140°C et 160°C.

Les figures III-20a-b montrent la variation de la résistivité électrique de l'alliage Pb-0.08Ca-2Sn (% en poids) en fonction du temps de vieillissement *in situ* aux températures comprises entre 80°C et 160°C par pas de 20°C. Les deux figures correspondent au taux de déformation 50 et 75 % de réduction d'épaisseur pour l'alliage Pb-0.08Ca-2Sn (% en poids) respectivement.

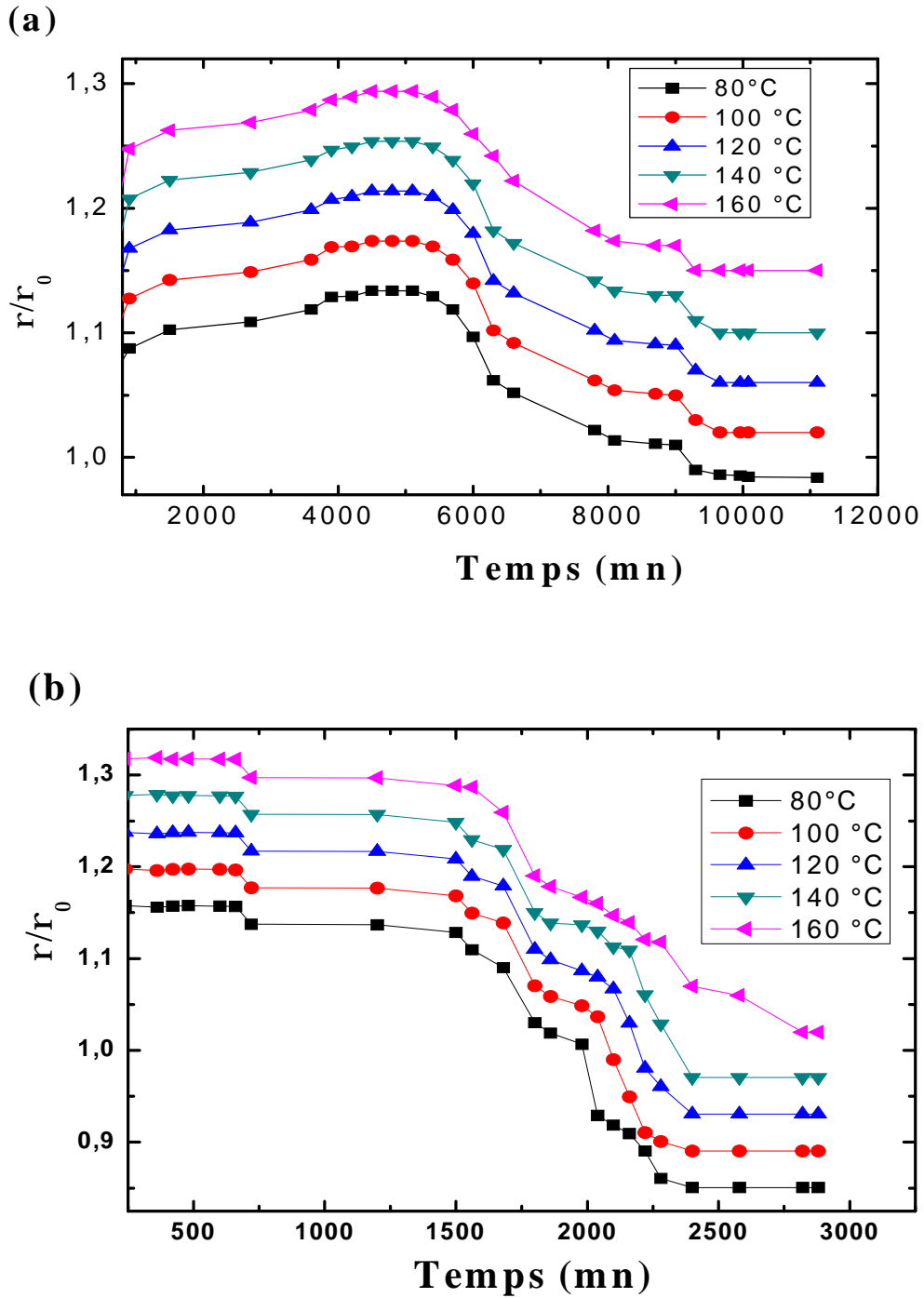


Figure III-20 : Variation de la résistivité électrique de l'alliage Pb-0.08Ca-2Sn (% en poids) en fonction du temps de vieillissement *in situ* aux différentes températures avec les taux de déformation par laminage suivants : **a)** 50%, **b)** 75%

La figure III-21 présente l'évolution de la résistivité électrique en fonction du temps de recuit isothermes *in situ* pour les deux taux de déformation par laminage (50% et 75%) de réduction d'épaisseur à 80°C en comparaison avec les résultats de la littérature.

Notons que globalement, la résistivité électrique décroît lorsque le temps de recuit augmente. La diminution monotone de la résistivité électrique a déjà été observée par des études précédentes pour l'alliage Pb-Ca-Sn non déformé et vieilli [24-25]. Ces auteurs ont expliqué la diminution monotone par la précipitation de l'intermétallique $(\text{Pb},\text{Sn})_3\text{Ca}$. La cinétique de précipitation de la présente étude lors du vieillissement à 80°C semble être en accord avec leurs résultats. L'évolution de la résistivité électrique ne peut donc pas être directement et évidemment corrélée à l'évolution de la microdureté Vickers en fonction du temps de vieillissement comme l'indique la figure III-20. Alors que la microdureté Vickers a mieux permis de mettre en évidence la recristallisation par son effet adoucissant tout étant quasi aveugle à la précipitation continue de la phase durcissant L1_2 , la mesure de la résistivité électrique a, par contre, mieux mis en évidence la précipitation et n'a pas permis de déceler la recristallisation.

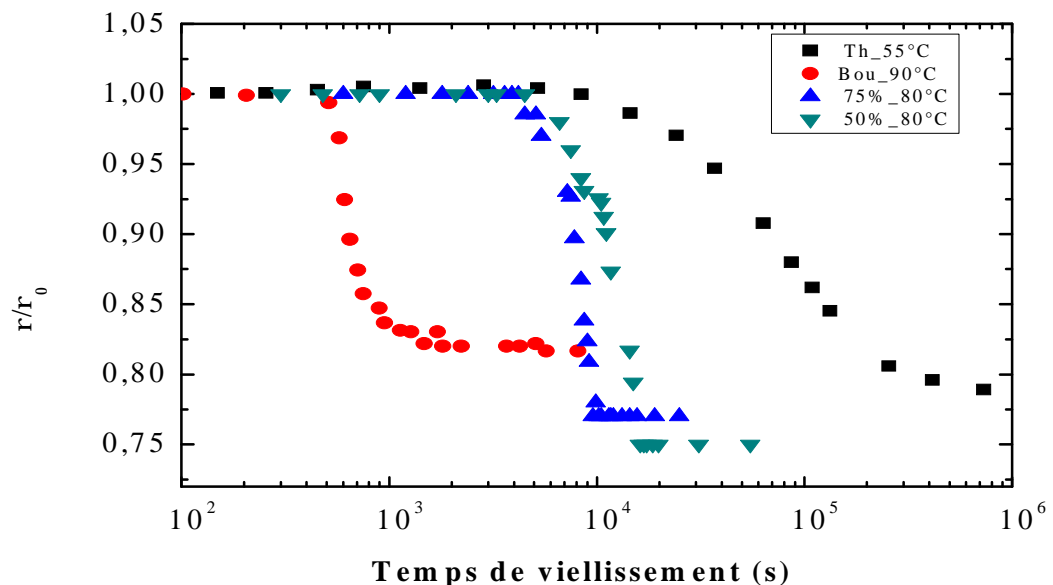


Figure III-21 : Evolution de la résistivité électrique en fonction du temps de recuit pour l'alliage Pb-0.08Ca-2Sn (% en poids) déformé par laminage (en comparaison avec les résultats de Bourguignon [24] et Tsubakino [25]).

La résistivimétrie est une technique utilisée pour suivre les cinétiques des transformations continues ou discontinues dans les alliages de plomb [27]. Ainsi, à l'aide de cette technique, Tsubakino *et al* [27-30] ont notamment étudié le vieillissement d'alliages Pb-

Mg, PbCa (0.04) ou encore l'effet de l'étain sur le durcissement structural des alliages binaires PbCa (0.08).

Comme il a été indiqué dans la littérature, la résistivité électrique d'un alliage est fonction de plusieurs contributions et d'après [31] on déduit la relation suivante :

$$\rho(T,t) = \rho_0(T,t) + \rho_{SS}(T,t) + \rho_P(T,t) \quad (\text{III.8})$$

Où :

∅ $\rho_0(T,t)$ est la résistivité électrique de la matrice de plomb (diffusion des électrons et des phonons) qui est une fonction linéaire de la température.

∅ $\rho_{SS}(T,t)$ est la contribution à la résistivité électrique des éléments en solution solide. Elle est décrite par la loi de Mathiessen qui suppose une relation de proportionnalité entre la concentration de l'élément en solution solide et sa contribution à la résistivité électrique de l'alliage d'après [32], on a l'expression suivante :

$$\rho_{SS}(T,t) = \sum \rho_i X_i \quad (\text{III.9})$$

Avec ρ_i la contribution spécifique de l'élément i , en $\mu\Omega.cm$ et X_i la fraction molaire de l'élément i , les valeurs de ρ_i pour chaque élément sont issues de la littérature [33].

∅ $\rho_P(T,t)$ est la contribution des précipités à la résistivité électrique. Dans le cas de précipités fins et cohérents avec la matrice (cas présent), la taille et la nature de l'interface peut modifier le parcours des électrons.

Certains auteurs [34] vont jusqu'à mentionner l'existence d'une anomalie de résistivité électrique lors de traitement de revenu, la résistivité électrique augmente avec le temps de revenu et passe par un maximum pour une taille et une fraction volumique de précipités, et diminue pour se rapprocher de l'évolution de la solution solide donnée par la loi de Mathiessen. Cette anomalie n'a pas été observée pour les échantillons étudiés et, par conséquent, les courbes de résistivité électrique ne représentent donc que l'appauvrissement de la solution solide de plomb en élément Ca et Sn à cause de la précipitation.

III-5-3 : Pouvoir thermoélectrique (PTE)

III-5-3.1 : Evolution du pouvoir thermoélectrique de l'alliage Pb-Ca-Sn

La figure III-22 montre la variation du pouvoir thermoélectrique (PTE) dans l'alliage Pb-0.08Ca-2Sn (% en poids) en fonction du temps de vieillissement à différentes températures suivantes : 80°C, 100°C, 120°C, 160°C et 200°C.

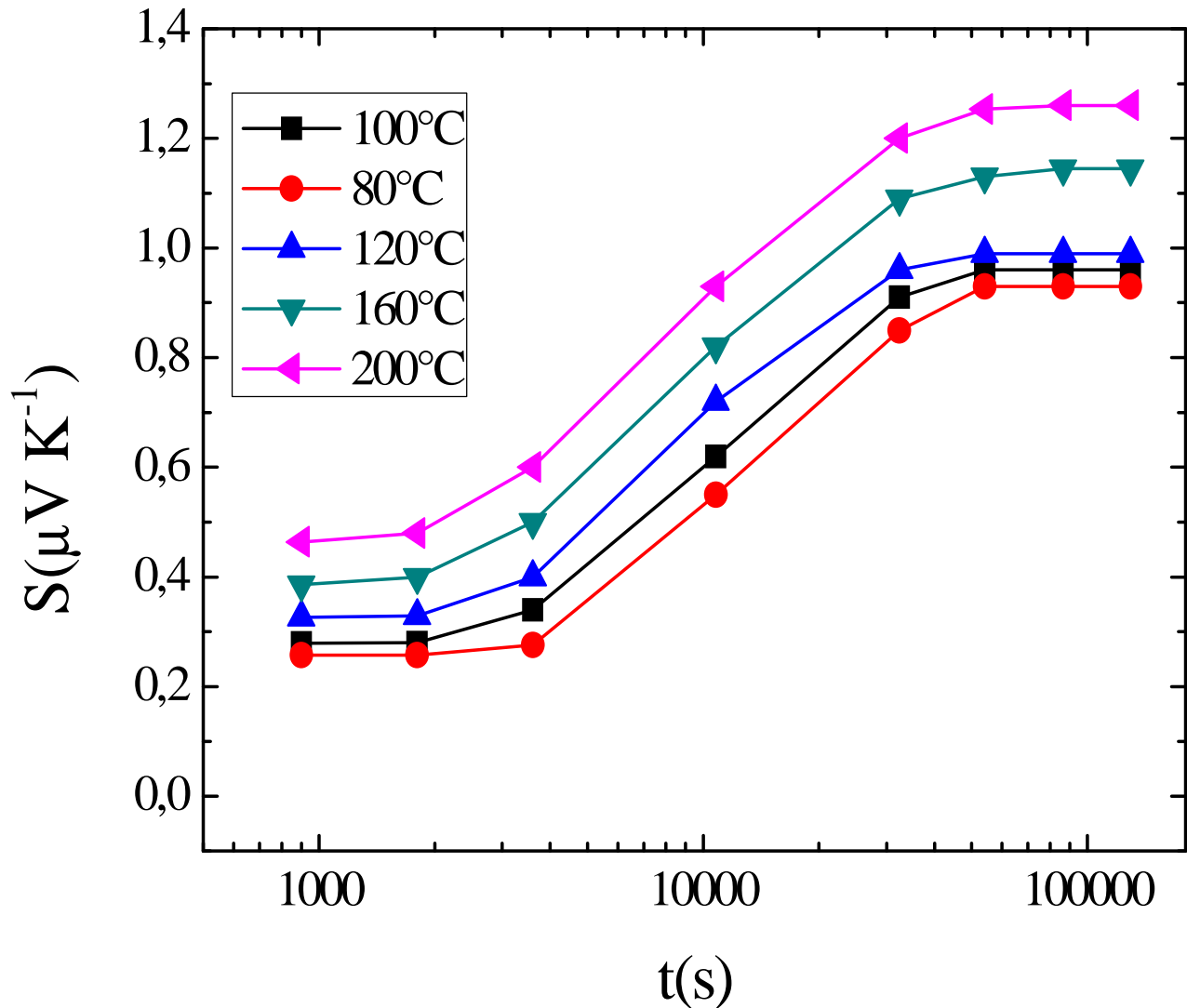


Figure III-22 : Variation du pouvoir thermoélectrique de l'alliage Pb-0.08Ca-2Sn (% en poids) en fonction du temps de vieillissement à différentes températures.

Des études précédentes ont montré que le pouvoir thermoélectrique est un excellent indicateur du vieillissement et que la mesure du pouvoir thermoélectrique (PTE) est la meilleure méthode pour l'évaluation de vieillissement thermique des matériaux et alliages

[35-37]. En outre, la mesure du pouvoir thermoélectrique PTE est utilisée dans plusieurs domaines comme en technologie (évaluation non destructive) [38-41].

III-5-3.2 : Etude de la cinétique des transformations de phases

L'évolution du pouvoir thermoélectrique (PTE) de l'alliage Pb-0.08Ca-2Sn (% en poids) au cours des isothermes indique clairement une seule cinétique. Cette dernière correspondant sans doute à un phénomène thermiquement activé. Ceci peut d'ailleurs être vu plus clairement sur les courbes obtenues de 80°C à 200°C sur la figure III-22. Nous avons analysé les courbes de PTE par la méthode de Johnson-Mehl-Avrami (J.M.A.) [42]. Cette loi empirique est fréquemment utilisée dans la littérature pour analyser les cinétiques isothermes dans les métaux. Elle a la forme générale suivante :

$$\frac{dy}{dt} = nk^n t^{n-1} (1-y) \quad (\text{III.10})$$

Où :

y représente la fraction transformée pendant un temps t.

n est un exposant sans dimension.

k est la constante de vitesse dépendant essentiellement de la température.

En supposant que k et n sont des constantes indépendantes de y et donc de t pour une température constante, l'intégration de l'équation (III.10) donne l'expression suivante :

$$\ln \frac{1}{1-y} = (kt)^n \quad (\text{III.11})$$

L'équation équivalente à (III.11) étant :

$$y = 1 - \exp \left[- (kt)^n \right] \quad (\text{III.12})$$

Pour notre étude, y est obtenu en normalisant les isothermes de la figure III.22 suivant la relation suivante :

$$y = \frac{(PTE_t - PTE_0)}{(PTE_f - PTE_0)} \quad \text{Tell que : } (Y \leq 1) \quad (\text{III.13})$$

Où :

PTE_0 est la valeur de PTE à l'état initial,

PTE_f est la valeur de PTE une fois la transformation est achevée,

PTE_t est la valeur de PTE en fonction du temps de vieillissement.

Le paramètre n est calculé à partir de la formule suivante déduite de l'équation (III-11) :

$$\ln \ln \left[\frac{1}{(1-y)} \right] = n \ln k + n \ln t \quad (\text{III.14})$$

Le résultat conforme à l'équation (III.14) est représenté sur la figure III-23. On obtient des droites, la valeur de n est calculée à partir de la pente et celle de k à l'aide du point de rencontre avec l'axe de $\ln(t)$. Tout ceci montre que la réaction obéit à l'équation de type Johnson-Mehl-Avrami.

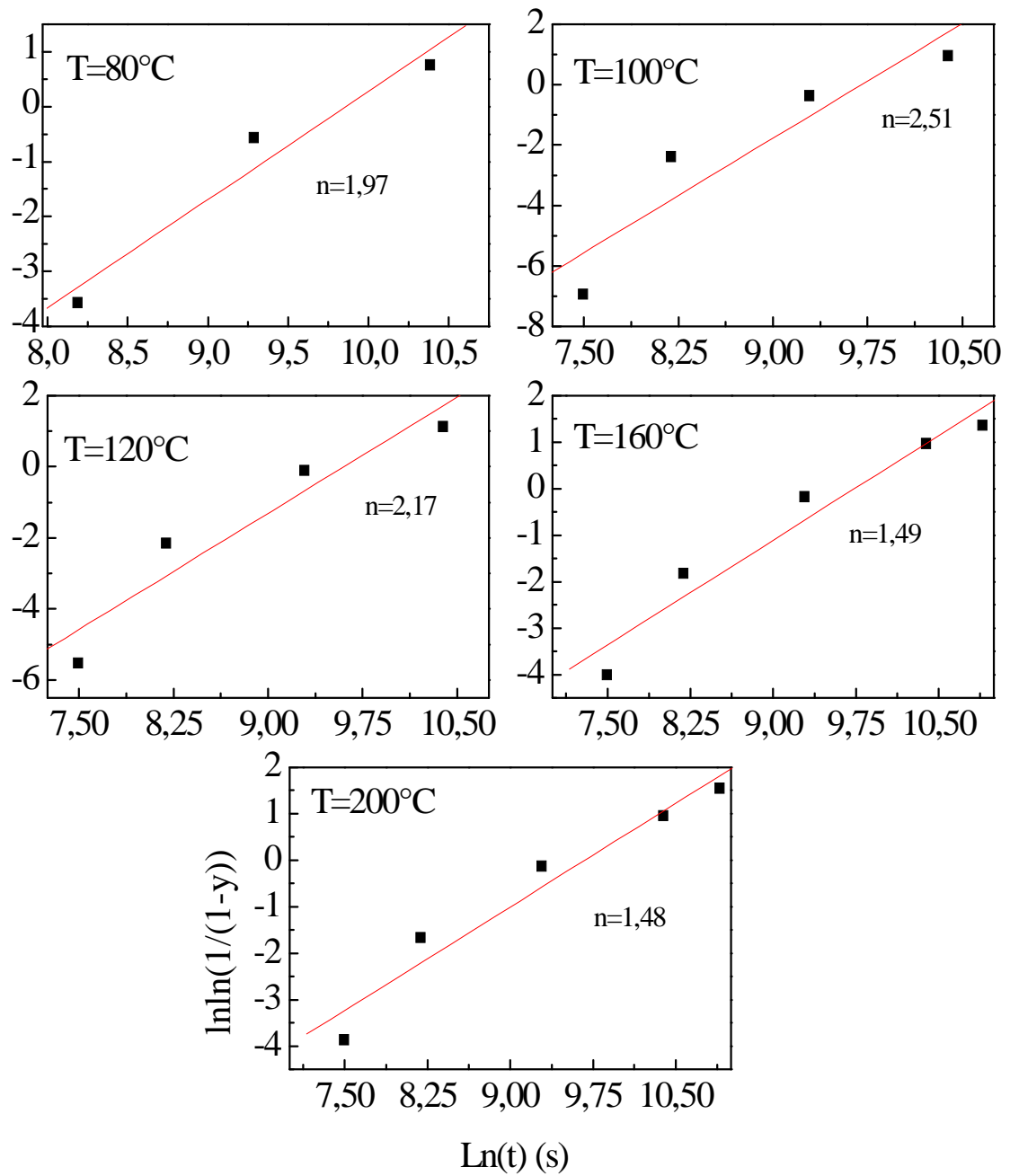


Figure III.23 : Variation de $\ln \ln \left[\frac{1}{1-y} \right]$ en fonction $\ln(t)$ et détermination du coefficient n .

Les valeurs du paramètre cinétique n varient entre 1,48 et 2,51 avec une moyenne de 1.94 ± 0.48 . Cette valeur indique selon Christian [43] un mécanisme de précipitation avec des

précipités dont toutes les formes croissent à partir des petites dimensions avec une vitesse de germination décroissante. En comparaison avec les travaux de [44], dans le système Al-Li où il y a précipitation continue de la phase ordonnée L_{12} du précipité Al_3Li ; [44] a abouti à une valeur de n aux alentours de $2/3$ qui indique plutôt un mécanisme de précipitation aux dislocations et aux premiers stades. Les mécanismes de précipitation sont donc radicalement différents d'un alliage à un autre.

III-6 : Etude de l'anisotropie de déformation de l'alliage PbCaSn et détermination du coefficient de Lankford

III-6-1 : Détermination expérimentale du coefficient de Lankford

La figure III-24 consigne les résultats des essais de traction les plus significatifs que nous avons réalisé à la température ambiante sur des éprouvettes de type ISO 50 de l'alliage Pb-0,08Ca-2Sn (% en poids) pour des vitesses de déformation de $2 \cdot 10^{-4} s^{-1}$. Chacune des courbes obtenues (contrainte/déformation) est caractérisée par :

- une partie rectiligne dite zone ou domaine d'élasticité pure ; domaine où la contrainte est directement proportionnelle à la déformation (loi de HOOKE).
- un domaine de déformation plastique pour lequel, toute décharge fera garder au matériau une déformation permanente.

La figure III-24 présente la courbe d'écrouissage $\sigma = f(\epsilon_{réelle})$, telle que $\epsilon_{réelle}$ est définie par la relation suivante :

$$\epsilon_{réelle} = \text{Ln} (1 - \epsilon_{ing}) \quad (\text{III.15})$$

$\epsilon_{réelle}$: la déformation réelle

ϵ_{ing} : la déformation donnée par l'expérience

Pour l'alliage Pb-0.08Ca-2Sn (% en poids) laminé à froid avec un taux de 75% de réduction d'épaisseur avec une vitesse de déformation de $2 \cdot 10^{-4} s^{-1}$, cette courbe donne un domaine élastique court. Dans le domaine plastique, nous avons choisi trois valeurs de la déformation réelle $\epsilon_{réelle} = (0,075, 0,125 \text{ et } 0,175)$ pour calculer les incréments de déformation (voir **annexe 1,2,3 et 4**) et le coefficient de Lankford donné par la relation suivante :

$$R = \frac{d\varepsilon_2}{d\varepsilon_3} \quad (\text{III.16})$$

Où $d\varepsilon_2$ et $d\varepsilon_3$ sont les incréments de déformation dans la direction transverse et normale respectivement.

A la fin de ses deux domaines ; il existe le domaine de striction (le point de rupture).

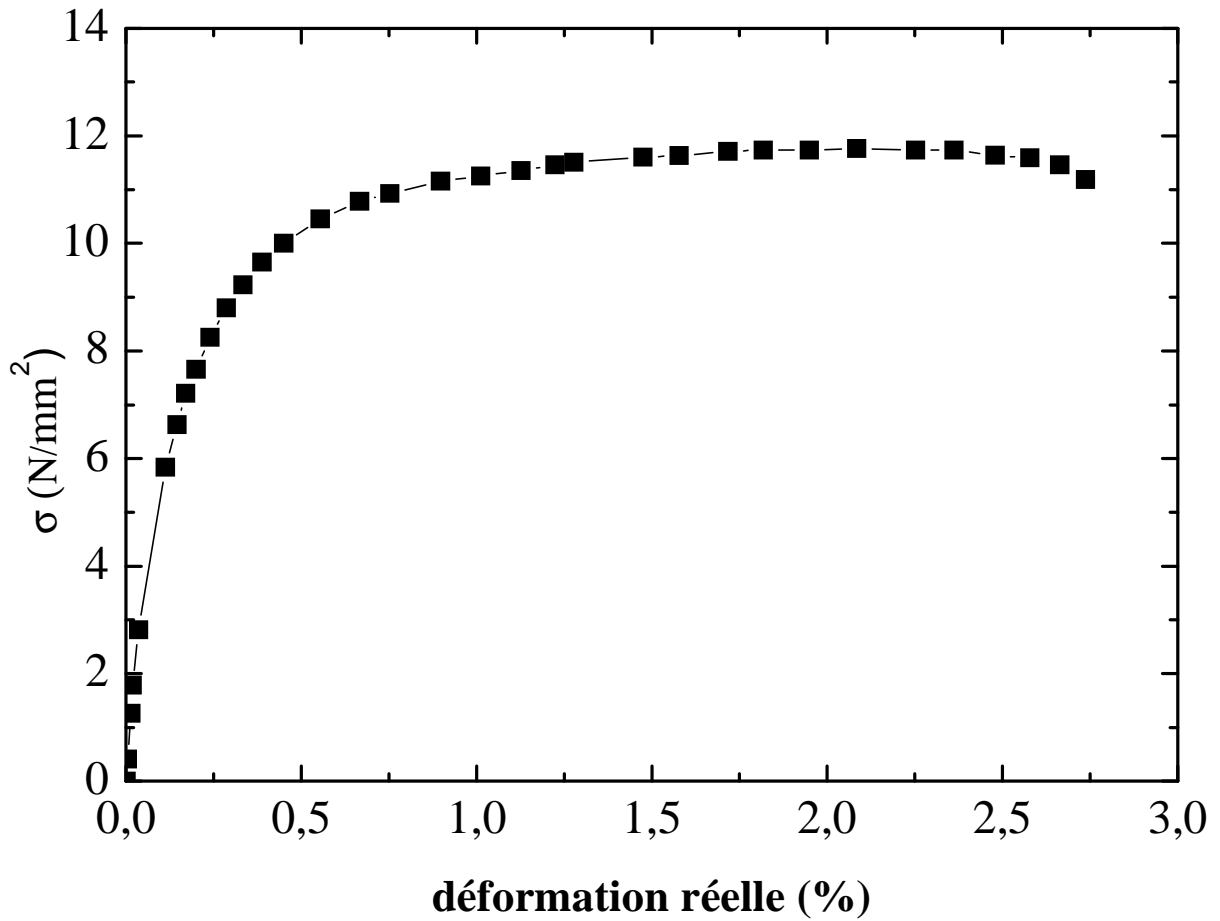


Figure III-24 : Courbe d'écrouissage $\sigma(\varepsilon)$ de l'alliage Pb-0,08Ca-2Sn (% en poids).

Les figures III-25.a-b ne montrent pas de variations significatives de R en fonction de la déformation. Il est donc possible de faire l'extrapolation de R à $\varepsilon_1=0$ par une droite horizontale (ε_1 est la déformation dans la direction de traction).

Par conséquent, la formule donnant R devient :

$$R = \frac{\varepsilon_2}{\varepsilon_3} \quad (\text{III.17})$$

La valeur de R retenue est égale à la valeur moyenne des valeurs données pour chaque taux de déformation (ϵ_1 , ϵ_2 et ϵ_3 sont exprimés en valeurs absolues).

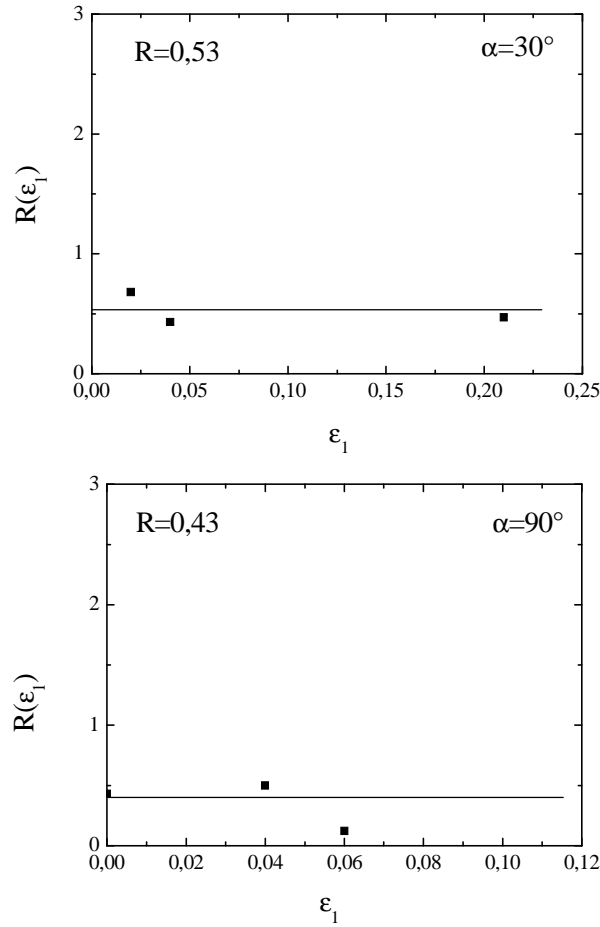


Figure III-25 : Variations de R (α) avec la déformation: **a)** $\alpha=30^\circ$ et **b)** $\alpha=90^\circ$.

Les valeurs du coefficient de Lankford R mesurées en fonction des autres valeurs de α sont données en annexe 5.

A partir de ces résultats, nous avons calculé la valeur moyenne de R et sa variation ΔR , d'après [45], sont définies par les relations suivantes :

$$\bar{R} = \frac{(R(0) + 2R(45) + R(90))}{4} \tag{III.18}$$

$$\Delta R = \frac{(R(0) - 2R(45) + R(90))}{2} \tag{III.19}$$

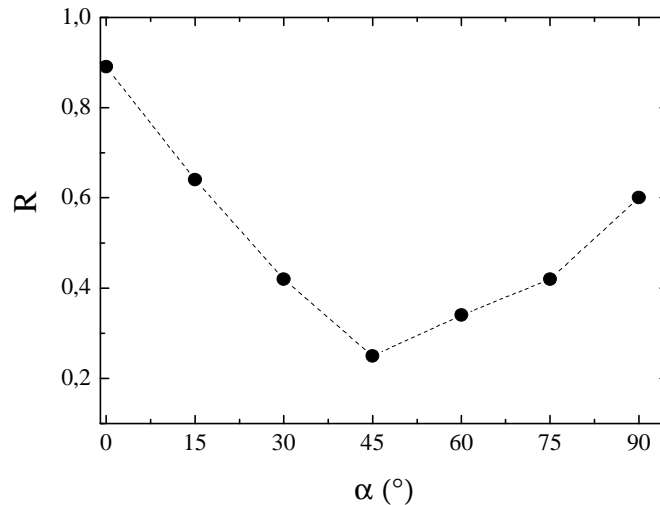


Figure III-26 : Evolution du coefficient de Lankford R en fonction de α (angle entre la direction de laminage et l'axe principal de l'éprouvette de traction ou direction de traction).

Les calculs de \bar{R} et ΔR donnent respectivement les valeurs suivantes : 0,425 et 0,356. Telles valeurs indiquent que nous avons de faibles aptitudes à la mise en forme par laminage des alliages Pb-Ca-Sn. La comparaison avec des résultats expérimentaux obtenus pour l'alliage à base de Fe où : $\bar{R} = 1,7$, $\Delta R = 0,68$ [46]. Les valeurs théoriques et calculées par Hutchinson et al[47] sont dans les gammes suivantes : $\bar{R} = 0,45-25,43$, $\Delta R = 0,88-49,38$, comme indiqué par [45], les valeurs de R caractérisant les métaux cubiques à faces centrées, sont en général considérablement faibles.

III-6-2 : Détermination théorique du coefficient de Lankford à partir des Fonctions de Distribution des Orientations Cristallines (FDOC)

Le calcul a été fait sur la base du modèle Hosford-Backofen implémenté dans le code popLA (<http://www.lanl.gov>) pour l'alliage Pb-Ca-Sn ayant deux textures initiales différentes correspondant aux états déformés avec les taux 50 et 75 % de réduction d'épaisseur. Pour le calcul du coefficient de Lankford, le code nécessite comme « Input » les figures de pôles expérimentales qui vont servir au calcul de la FDOC (Fonction de Distribution des Orientations Cristallines) ainsi que quelques données physico métallurgiques de l'alliage.

L'évolution de R en fonction de l'angle α est alors donnée en « Output » dans un fichier ASCII. L'évolution de R en fonction de l'angle α est représentée sur la figure III.27. Les valeurs de R calculées sont sensiblement inférieures à celles mesurées

expérimentalement. Comme indiqué par [48], l'écart, entre les valeurs expérimentales et calculées, peut être expliqué par l'évolution dynamique de la texture pendant les essais de traction. Les calculs de texture ont aussi tendance à aboutir à des valeurs surestimées par rapport à l'expérimental [45].

Coefficients de Lankford: PopLA, Harm. Sphér. de l'alliage Pb-0,06Ca-1,8Sn

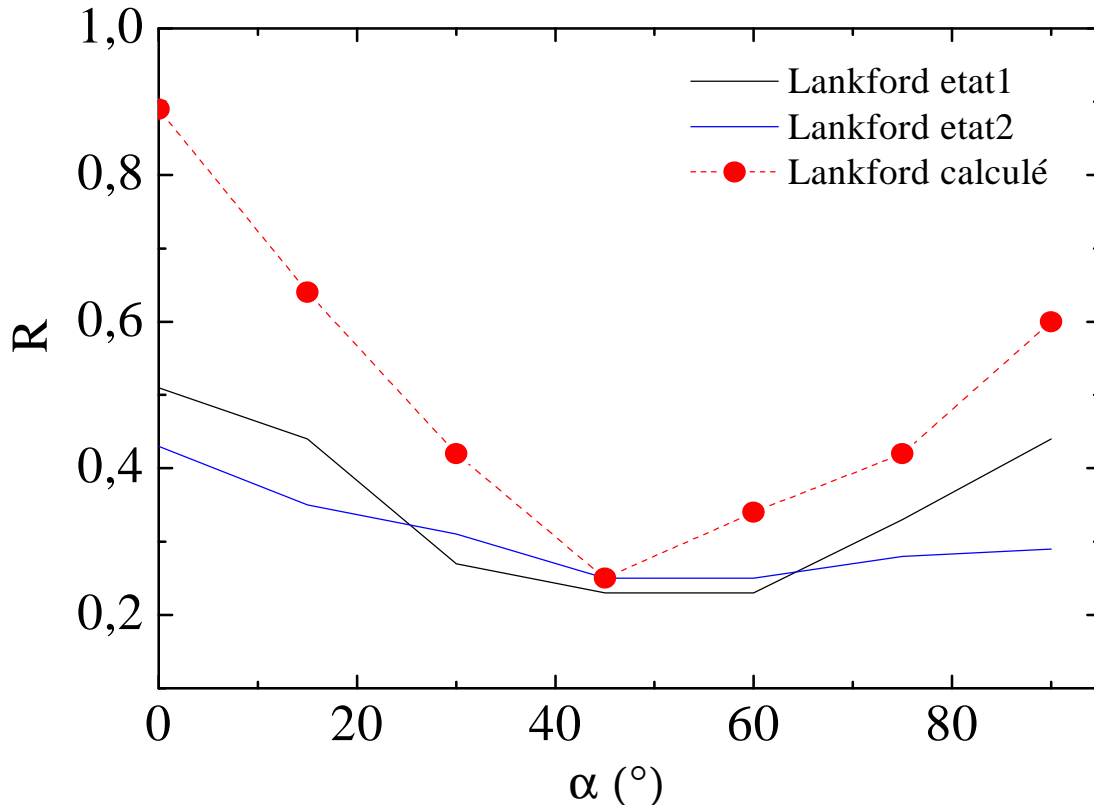


Figure III-27 : Comparaison de la courbe $R(\alpha)$ expérimentale avec les courbes calculées à partir du modèle de Taylor.

III-7 : Etude de la texture de l'alliage PbCaSn

III-7-1 : Etude de la texture de l'alliage PbCaSn dans les différents états déformés et recristallisés par la méthode ADC

III-7-1-a : Etude de la texture de déformation de l'alliage PbCaSn

Les figures III-28 (a) et (b) présentent (en niveaux d'iso intensités) les quadrants de figures de pôles $\{111\}$ calculées par la méthode ADC (Arbitrary Defined Cells) implémentée

dans le Logiciel LABOTEX pour l'alliage Pb-0.08Ca-2Sn (% en poids) déformé à froid par laminage avec une réduction d'épaisseur de 50 et 75%. Les figures de pôles semblent être typiques de celles des alliages CFC avec présence des composantes de texture de déformation suivantes : Brass (Laiton), S, Cuivre et R mais il y a la présence de la Cube et l'absence de la Brass $\{236\}\langle 385\rangle$ ces deux dernières étant celles de la recristallisation [49].

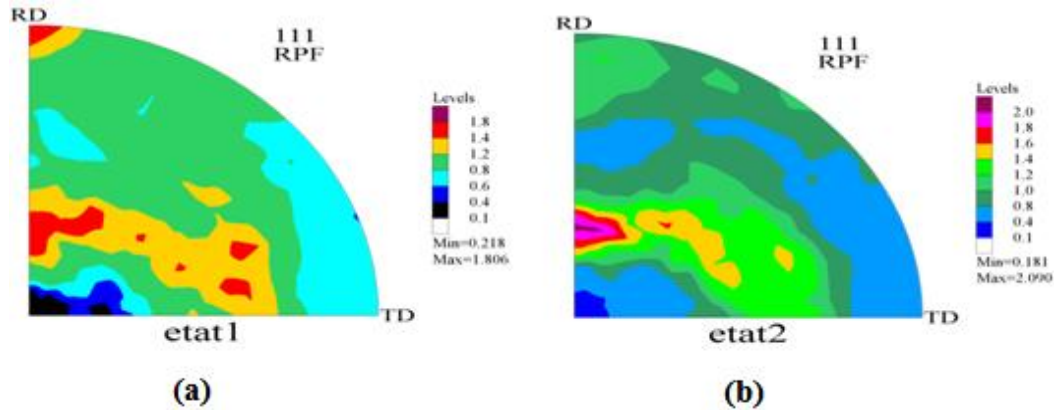


Figure III-28 : Quadrants de figures de pôles $\{111\}$ de l'alliage PbCaSn déformé à froid par laminage par réduction de : **a)** 50 et **b)** 75% de l'épaisseur.

Dans les figures III-28 (a) et (b) existent une texture faible ayant pour composantes multiples incluant essentiellement : Cuivre $\{011\}\langle 211\rangle$, S $\{123\}\langle 634\rangle$ et Goss $\{011\}\langle 100\rangle$ sont développées. Ces composantes appartiennent à la texture de déformation observées généralement dans les alliages CFC. Nos résultats sont en bon accord avec ceux de Wang et *al*, [50-51] qui ont montré aussi que la texture de l'alliage Pb-Ca-Sn laminé à froid appartient à la texture de déformation à froid généralement observée dans les alliages CFC.

Nous avons estimé la valeur de l'énergie de fautes d'empilement (γ_{SFE}) de l'alliage Pb-Ca-Sn à l'état déformé à partir des résultats de diffraction des rayons X en analysant les profils des raies de diffraction. Dans la littérature, γ_{SFE} est donnée, par la relation suivante :

$$g_{SFE} = \frac{\mu a_0^3 \rho}{24 \sqrt{3} \pi a} \quad (\text{III.20})$$

Où μ , a_0 et ρ et a sont respectivement, le module de cisaillement, le paramètre de maille, la densité de dislocations et la probabilité de fautes d'empilement. La valeur de la densité de dislocations a été évaluée en utilisant l'analyse des profils des raies de diffraction (XRDLPA) par la procédure appelée "Convolutional Multiple Whole Profile Fitting" [52-53].

La probabilité de fautes d'empilement a été déterminée à partir des déplacements relatifs des pics de diffraction des rayons X d'après [54].

Les valeurs de ρ et α ont été trouvées égales à $5.10^{10}/\text{cm}^2$ et 5.10^{-3} respectivement. La valeur déduite de γ_{SFE} , est autour de 20 mJ/m^2 et indique que l'alliage Pb-Ca-Sn a une valeur intermédiaire de γ_{SFE} (BOLLING et *al*). L'énergie de fautes d'empilement du plomb pur est égale à 25 mJ/m^2 [55], qui est de l'ordre de γ_{SFE} de l'argent et plus faible que celle de l'Aluminium.

III-7-1-b : Etude de la texture de recristallisation de l'alliage PbCaSn

Les figures III-29 (a) et (b) présentent les quadrants de figures de pôles {111} recalculées de l'alliage Pb-0.08Ca-2Sn (% en poids) déformé à froid par laminage avec une réduction d'épaisseur de 50 et 75% et recristallisé à 100°C pendant 2 heures et demie. Le choix de cette durée de maintien a été fait suite aux résultats relatifs à l'alliage ternaire et consignés dans les paragraphes précédents.

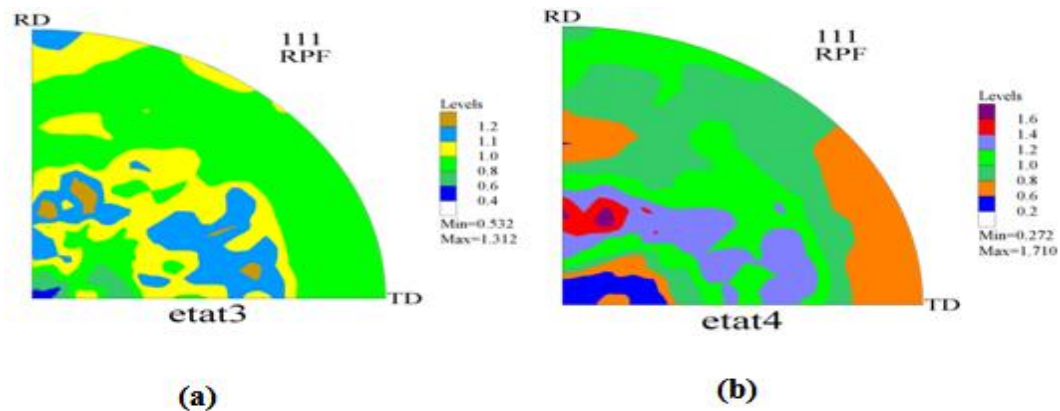


Figure III-29 : Quadrants de figures de pôles {111} de l'alliage PbCaSn déformé à froid par laminage par réduction de : **a)** 50% **et b)** 75%, de l'épaisseur et recuit à 100°C pendant 2 heures et demie.

Manifestement, les niveaux d'intensité maximum dans les figures de pôles sont plus faibles que ceux correspondant à l'alliage déformé. La texture n'est pas assez plate et quelques composantes peuvent être reconnues dans les quadrants de figures de pôles.

La texture de la recristallisation et de recuit à 120°C , est sans équivoque et pas très différente de la texture de déformation. Nous ne pouvons déceler aucune tendance relative

vers une randomisation suite à la recristallisation, mais quelques composantes, qui étaient déjà présentes dans la texture de déformation, existent toujours dans la texture de recristallisation.

Les composantes de cette texture sont : Cube {001} <100>, Cube maclé {122} <221>, Brass {011} <211>, S {123} <634> et Goss {011} <100>. Il existe aussi quelques autres composantes comme Sh1 {1-1-4} <1-31> et Sh2 {1-1-1} <-1-21> qui sont des composantes de cisaillement introduites par les cylindres du laminoir sur la surface des alliages. Nos résultats [56] sont légèrement différents de ceux de Wang et al [50] pour lesquels l'alliage était entièrement recristallisé. Ces auteurs ont mis en évidence la présence de la composante majoritaire Cube qui contraste avec nos présents résultats.

L'alliage laminé à froid et recuit à 120°C a semblé avoir une texture de déformation retenue, mais avec une composante Cube émergente. La différence peut être attribuée aux conditions de recristallisation. Dans leur travail, Wang et al [50], ont recristallisé leur alliage à 270°C, température de recristallisation pour laquelle on s'attend à ce qu'aucune précipitation ne se produise tandis que nous avons utilisé une température de recristallisation inférieure qui était dans le domaine de précipitation de la phase $L1_2$ (Pb, Sn)₃Ca qui gêne considérablement le processus de recristallisation.

III-7-1-c : Etude de la texture de recristallisation-précipitation de l'alliage PbCaSn

La figure III-30 présente un quadrant de la figure de pôles {111} recalculée de l'alliage Pb-0.08Ca-2Sn (% en poids) qui a subi un recuit de vieillissement à 100°C pendant 1 heure puis trempé à l'eau glacée, ensuite déformé à froid par laminage par réduction de 75% de l'épaisseur et recuit à 100°C pendant 2 heures et demie.

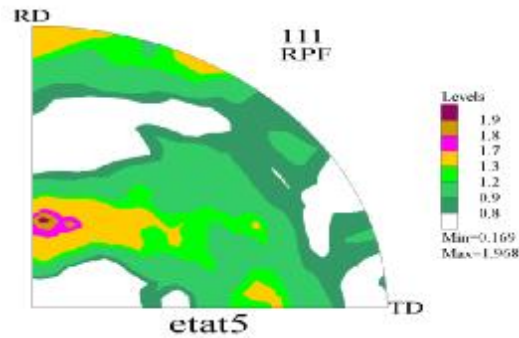


Figure III-30 : Quadrant de la figure de pôles {111} de l'alliage PbCaSn ayant subi un recuit de vieillissement à 100°C pendant 1 heure, puis trempé à l'eau glacée, ensuite déformé à froid par laminage par réduction de 75% de l'épaisseur et recuit à 100°C pendant 2 heures et demie.

La différence avec les alliages précédents réside dans le fait qu'un traitement thermique préalable de 1 heure à 100°C a pour but de faire précipiter une certaine fraction volumique de la phase L_{12} alors que les états précédents correspondaient à des états de solutions solides sursaturées déformées, et déformées et vieilles. Il a été montré dans la littérature, l'effet considérable des précipités avant la déformation plastique sur la texture car ces précipités modifient la mobilité des joints de grains donc leur mouvement et par là leur réorientation. Or, nous pouvons facilement observer que la figure de pôles présentée en figure III-31 est très similaire à celle représentée en figure III-29b, ceci, indique que la texture est similaire entre les états déformés et recuits avant déformation. Elle est le signe que les précipités n'ont aucun effet sur la texture comme indiqué dans la littérature. Ceci pourrait s'expliquer par la taille nanométrique des précipités L_{12} . Cette taille étant bien en dessous de la taille critique qui est décrite par Humphreys et *al* [57].

III-7-2 : Etude de la texture calculée par les 3 méthodes : Harmonique, WIMV et ADC

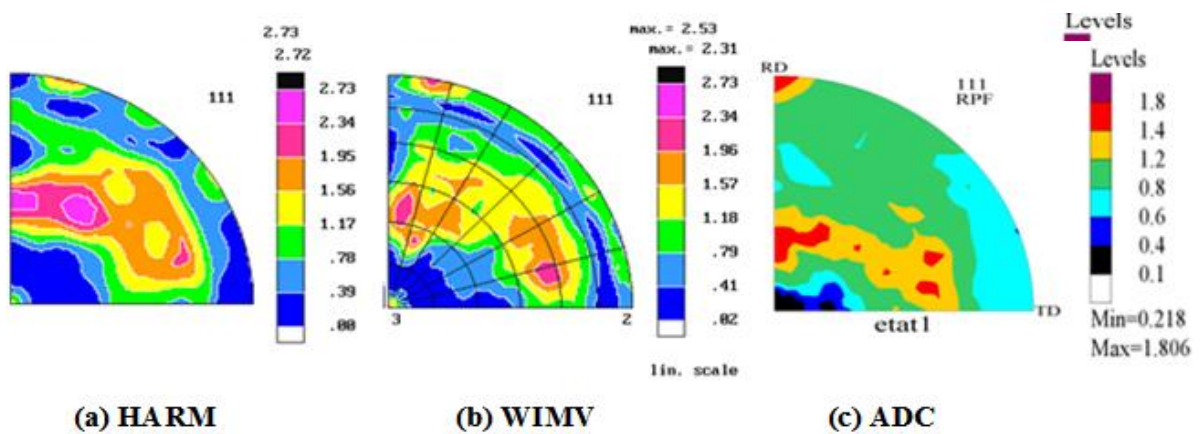
III-7-2-a : Etude de la texture de déformation et recristallisation calculée par les méthodes : Harmonique, WIMV et ADC

Les différentes figures de pôles directes {111} recalculées, obtenues par la méthode Harmonique et la méthode discrète (WIMV et ADC) pour l'alliage déformé Pb-0.08Ca-2Sn (% en poids) après réduction d'épaisseur de 50% et 75% sont représentées dans les figures III-31, III-32 (a), (b) et (c).

Figure III-31 : Quadrants de figures de pôles {111} de l’alliage PbCaSn déformé à froid par laminage par réduction de 50 % d’épaisseur calculées par : **a)** Harmonique, **b)** WIMV, **c)** ADC.

Figure III-32 : Quadrants de figures de pôles {111} de l’alliage PbCaSn, déformé à froid par laminage par réduction de 75 % d’épaisseur, calculées par : **a)** Harmonique), **b)** WIMV, **c)** ADC.

Les différentes figures de pôles directes {111} recalculées, obtenues par la méthode Harmonique et les méthodes discrètes (WIMV et ADC) pour l’alliage déformé Pb-0.08Ca-



2Sn (% en poids) après réduction de 50% et 75% d’épaisseur et revenu à 100°C pendant 2 heure et demie, sont représentées par dans les figures III-33(a), (b) et (c) et III-34 (a), (b) et (c).

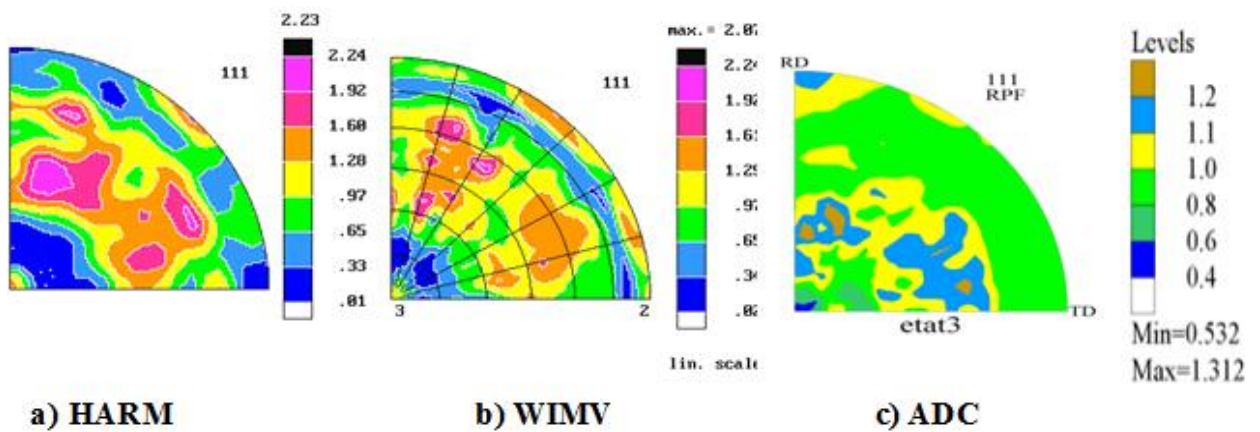


Figure III-33 : Quadrants de figures de pôles {111} de l’alliage PbCaSn, déformé à froid par laminage par réduction de 50 % d’épaisseur et recuit à 100°C pendant 2 heures et demie, calculées par : (a) harmonique), **b)** WIMV, **c)** ADC.

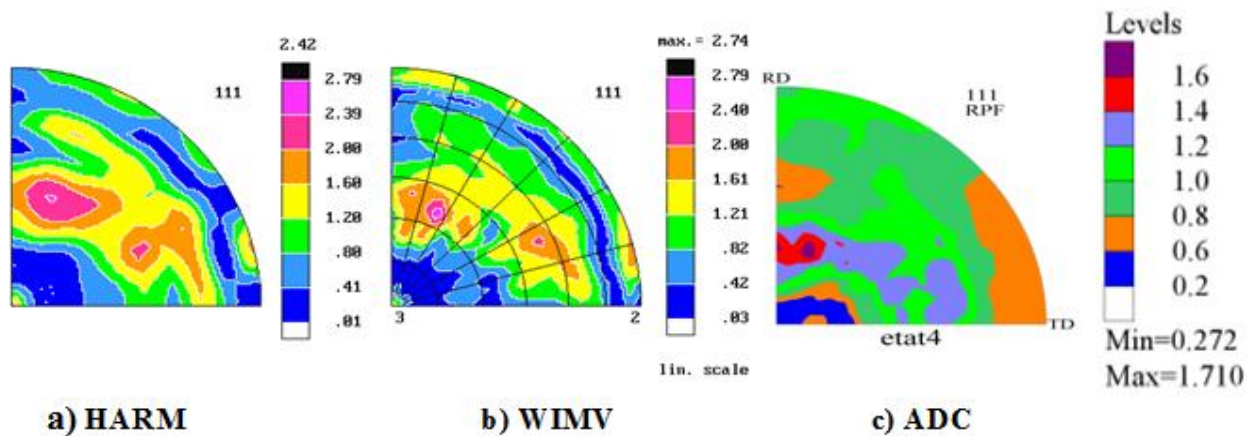


Figure III-34 : Quadrants de figures de pôles $\{111\}$ de l'alliage PbCaSn, déformé à froid par laminage par réduction de 75 % d'épaisseur et recuit à 100°C pendant 2 heures et demi, calculées par les méthodes : Harmonique, b) WIMV, c)ADC.

Les figures III.31-34 montrent la présence des composantes de texture discutées en paragraphes III-7.1-a et b. Globalement, les trois méthodes : Harmonique, WIMV et ADC aboutissent à des résultats plus ou moins similaires. La méthode ADC aboutit à des niveaux d'intensités légèrement inférieures à celles données par les niveaux des deux autres méthodes. Il existe cependant un léger désaccord en figures III-33.b et c dont nous ne connaissons pas l'origine.

III-8: Simulation de la texture de l'alliage PbCaSn par les 3 méthodes suivantes : Taylor, VPSC et GIA

III-8-1: Simulation de la texture de l'alliage PbCaSn calculée par la méthode de Taylor

Les simulations ont été réalisées en utilisant les modèles « Full Constraints » et « Relaxed Constraints » de l'approche de Taylor. Les figures III-35 et III-36 présentent les figures de pôles $\{111\}$ calculées par ces deux modèles.

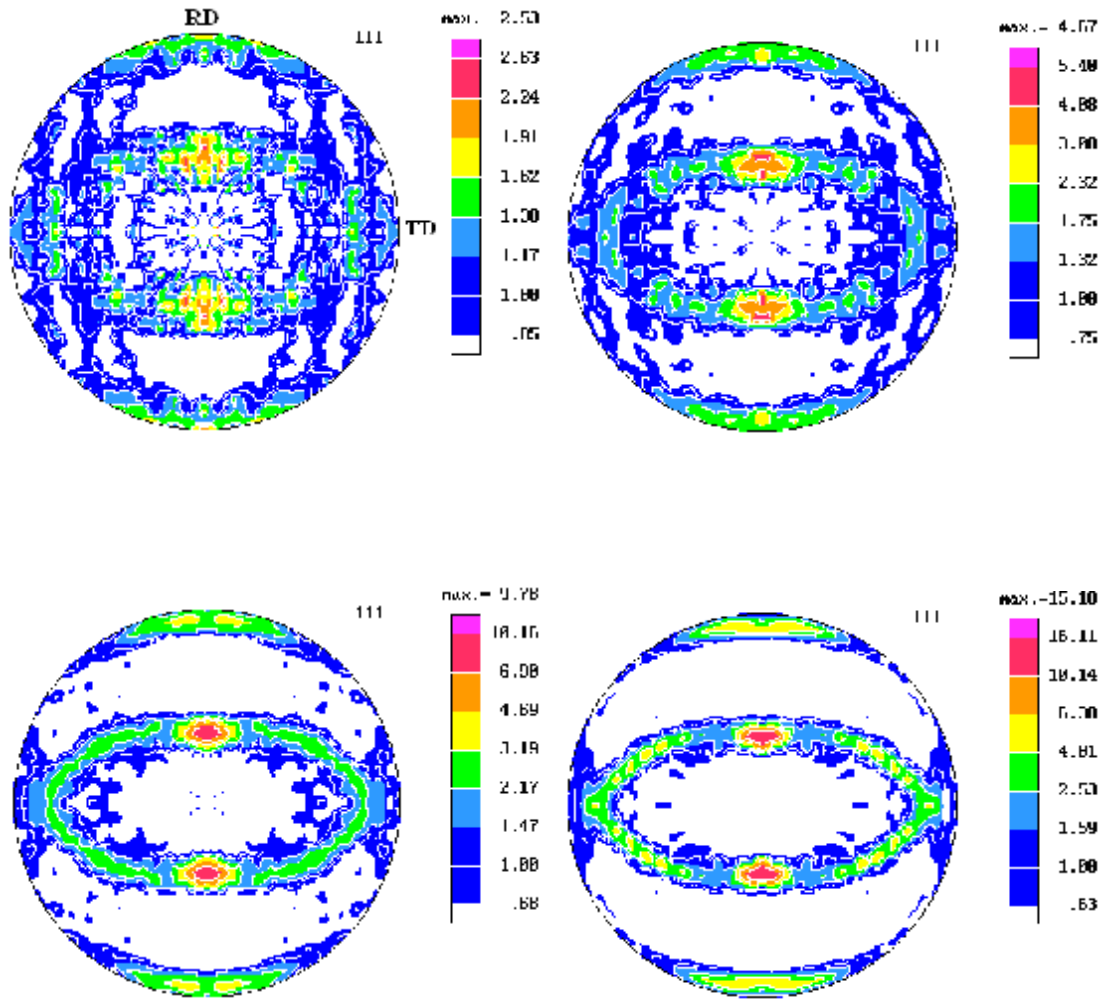


Figure III-35 : Figures de pôles {111} simulées par le modèle de Taylor « Full Constraint » pour les différents taux, de réduction d'épaisseur, suivants : (15, 30, 50 et 90%).

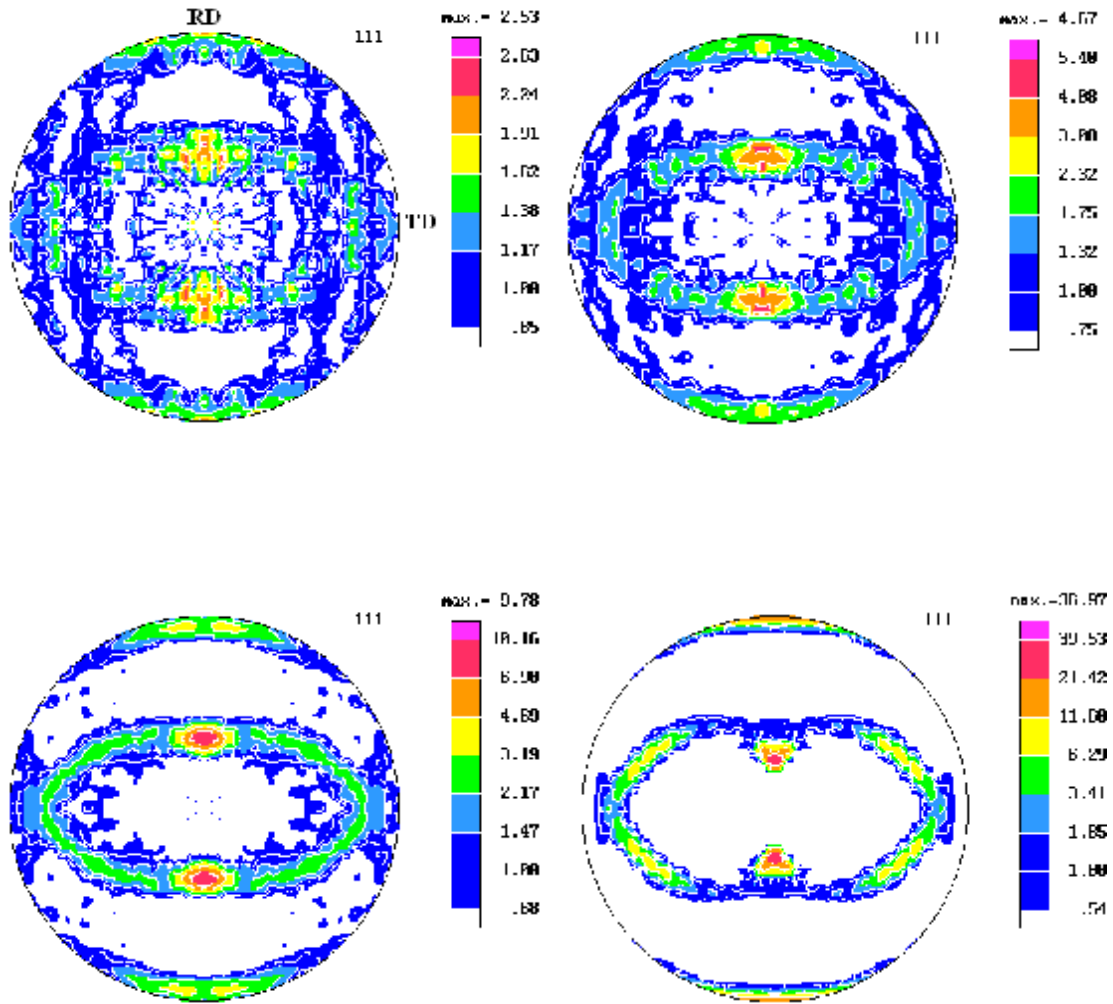


Figure III-36 : Figures de pôles {111} simulées par le modèle de Taylor « RC »

pour différents taux, de réduction d'épaisseur, suivants : (15, 30, 50 et 90%).

Les systèmes de glissement, les orientations cristallographiques (texture initiale) et leur poids, les conditions aux limites, le type de déformation (laminage), les composantes des déformations et contraintes, les valeurs des CRSS (contraintes critiques de cisaillement) sont données dans des fichiers d'entrées appropriées. Le code calcule la texture actuelle à l'étape i où i correspond à un incrément de déformation (50 pas entre une déformation initiale égale à 0 et finale égale à 99% de réduction). La première observation immédiate est que les intensités de la texture simulée sont nettement plus élevées, c'est-à-dire que la texture simulée (par les deux modèles) est surestimée par rapport à la texture déterminée expérimentalement (réelle) (de 10-16mrd (multiple d'une distribution aléatoire), à partir de 50% de taux de réduction d'épaisseur) contre 1,6-2,75 pour toutes les figures de pôles confondues). Cette surestimation a déjà été soulignée dans la littérature [58].

En comparant les figures de pôles simulées par les méthodes « Full Constraints » et « Relaxed Constraints », nous remarquons la similarité des résultats et nous notons que les deux modèles prédisent l'augmentation de l'intensité maximale en fonction du taux de laminage. Les figures de pôles montrent les mêmes composantes : Cuivre, S, Brass, Goss (voir figure III-39) avec des niveaux d'intensités proches sauf pour les très forts taux de déformation où il y a un écart sensible (max=15,18 pour FC alors que max=36,67 pour RC), le modèle de Taylor relaxé « Relaxed Constraints » prédit des intensités supérieures à celle du modèle de Taylor « Full Constraints ».

En comparant directement avec la texture déterminée expérimentalement, on remarque que les zones d'intensité maximale, lieu des composantes majoritaires évidentes : Cuivre, S, Brass, Goss (représentées par le continuum de la partie centrale dans les figures de pôles à partir de 50% de réduction d'épaisseur), sont plus étalées que celles simulées.

Les différences constatées ci-dessus concernant la comparaison des deux modèles de simulation entre elles et avec la texture expérimentale semblent être dues à diverses causes. Parmi ces causes, leur fondement théorique et le nombre de grains sur lequel a été faite la simulation, les lois de durcissement, les systèmes de déformation qui peuvent ne pas être conformes à la réalité physico-métallurgique. En plus, la simulation ne tient pas compte de l'effet d'alliage mais travaille sur la base d'une structure avec une certaine symétrie (CC, CFC, HC etc...) en considérant un élément chimique simple (Pb dans notre étude) alors qu'expérimentalement, il s'agit d'un alliage ternaire Pb-Ca-Sn et chacun des éléments d'addition peut modifier de manière substantielle la texture.

Nous avons ensuite calculé les fractions volumiques des composantes de la texture en utilisant uniquement le modèle Full Constraints.

La figure III-37 présente l'évolution des fractions volumiques des composantes de la texture de déformation en fonction du taux de laminage, simulées par le modèle de Taylor implémenté dans un code spécial popLA (<http://www.lanl.gov>). En comparant les résultats expérimentaux tirés d'une étude récente sur le cuivre (métal de structure cfc [59]) qui donnent un ordre S>Br>Cube>C>Goss avec ceux de la simulation qui donnent plutôt un ordre C>S>Brass>Goss>Cube, il découle un désaccord manifeste. Notons que la simulation a prédit que la composante S est toujours en deuxième position. Les résultats de simulation montrent que la composante C est dominant. Les résultats semblent être normaux du fait qu'elles sont basées sur un élément chimique de structure cfc avec des données physiques qui sont celles du Pb pur alors que les résultats expérimentaux correspondent à des alliages de Pb avec du Ca et du Sn qui tendent à changer les modes de déformation et donc la texture. Celle-ci tend à ressembler à celle dite Brass (Laiton), en référence au système CuZn dans lequel, elle a été mise en évidence. De plus, il a été démontré dans la littérature qu'il existe une texture dite de « Transition » qui fait passer du type Cuivre au type Brass [60].

De nombreuses études théoriques et expérimentales ont été consacrées à la transition de la texture de type C vers celle de type Bs (laiton). La plupart des métaux purs développent la texture C alors que les alliages (Cu-Al, Cu-Zn, Cu-Mn etc) développent la texture type Bs. La texture C (Cuivre) du cuivre pur consiste en un tube d'orientations préférentielles qui s'étendent de la composante $\{110\}\langle 112 \rangle$ Bs vers la composante $\{112\}\langle 111 \rangle$ C et $\{441\}\langle 11118 \rangle$ D (composante Dillamore).

La transition d'un type à un autre est corrélée à l'énergie de fautes d'empilement. De plus, la transition est un résultat d'un changement de mécanismes de déformation. En général, les résultats des différentes études sont proches mais il existe, cependant, quelques écarts dans les résultats quantitatifs qui influencent les conclusions de ces études et ce qui suscite davantage de recherches dans le futur.

Il existe plusieurs causes à un changement de la texture, ce sont la composition du matériau, la température de déformation et les conditions de déformation (vitesse et taux de déformation). Par exemple, une température de déformation élevée produit une texture de type C alors que les basses températures génèrent plutôt la texture type Bs.

Dans le travail de P. Gerber [61], des échantillons de cuivre pur OFE ont été déformés aux températures entre 160 et 340°C ont conduit à un ordre Cube>C>Bs>S>G et ce pour un taux de déformation égal à 75%. Dans les deux travaux expérimentaux cités ci-dessus, il n'est nullement indiqué la vitesse de déformation.

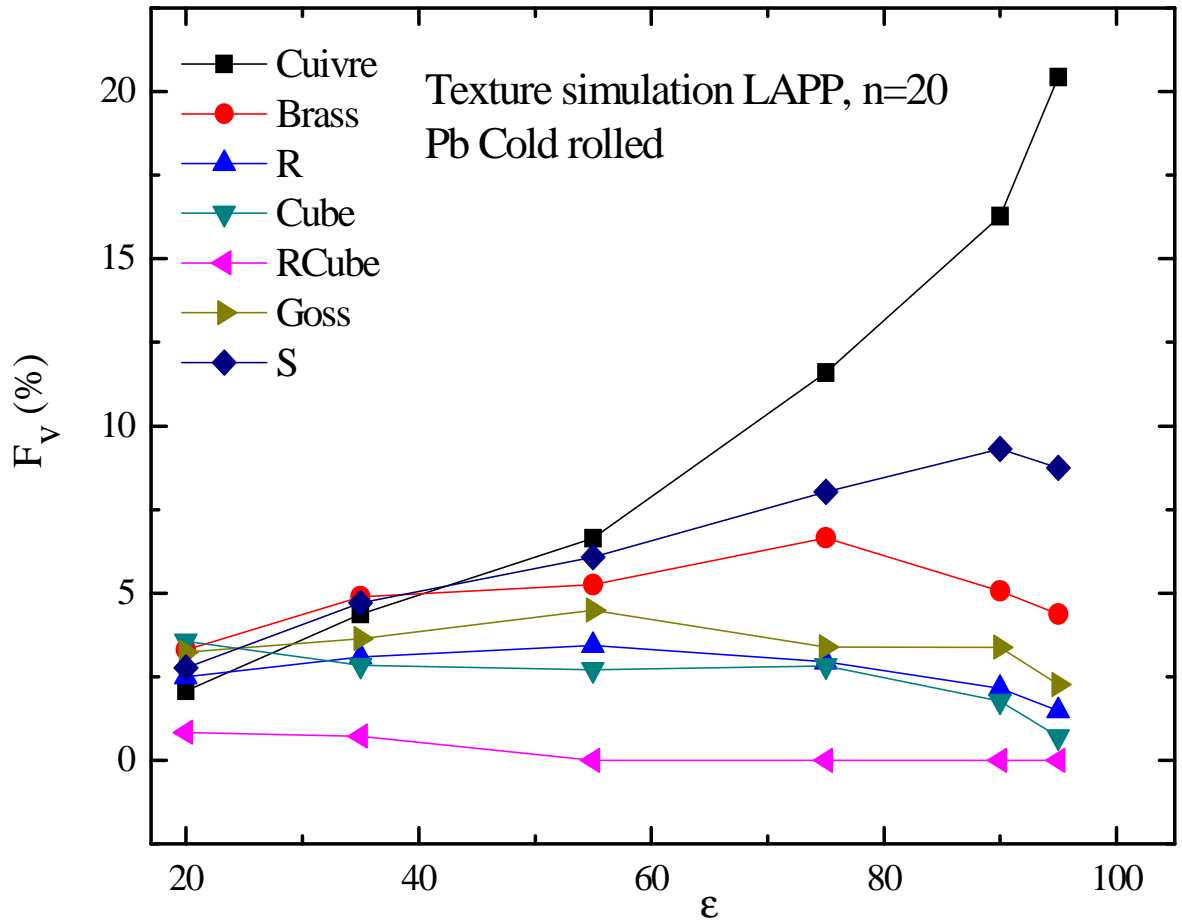


Figure III-37 : Evolution des fractions volumiques des composantes de la texture en fonction du taux de laminage simulés par le modèle de Taylor pour le système Pb-0.08Ca-2Sn (% en poids).

III-8-2 : Simulation de la texture de déformation l'alliage PbCaSn calculée par la méthode Visco plastique self consistante (VPSC)

Les figures III-38.a-d présentent les figures de pôles {111} de l'alliage Pb-0.08Ca-2Sn(% en poids) calculées par la méthode VPSC (Visco-Plastic Self Consistent) ou modèle visco-plastique auto cohérent et ce pour différents taux de déformation. Ces figures de pôles indiquent que cette méthode prédit une texture globalement similaire à celle produite par les deux méthodes précédentes (FC et RC). Les positions des composantes principales et les maximas d'intensité sont très similaires. L'évolution de la fraction volumique des composantes principales est représentée en Figure III-39. Là aussi la simulation par la méthode VPSC mène à un ordre C>S>Brass>Goss>Cube exactement comme les deux méthodes FC et RC. Sauf que pour les taux de déformation supérieurs à 90%, il y a divergence : alors que les deux méthodes FC et RC prédisent une augmentation très forte de la composante C (Cuivre), la méthode VPSC prédit que c'est la composante Bs (laiton) qui prédominera fortement.

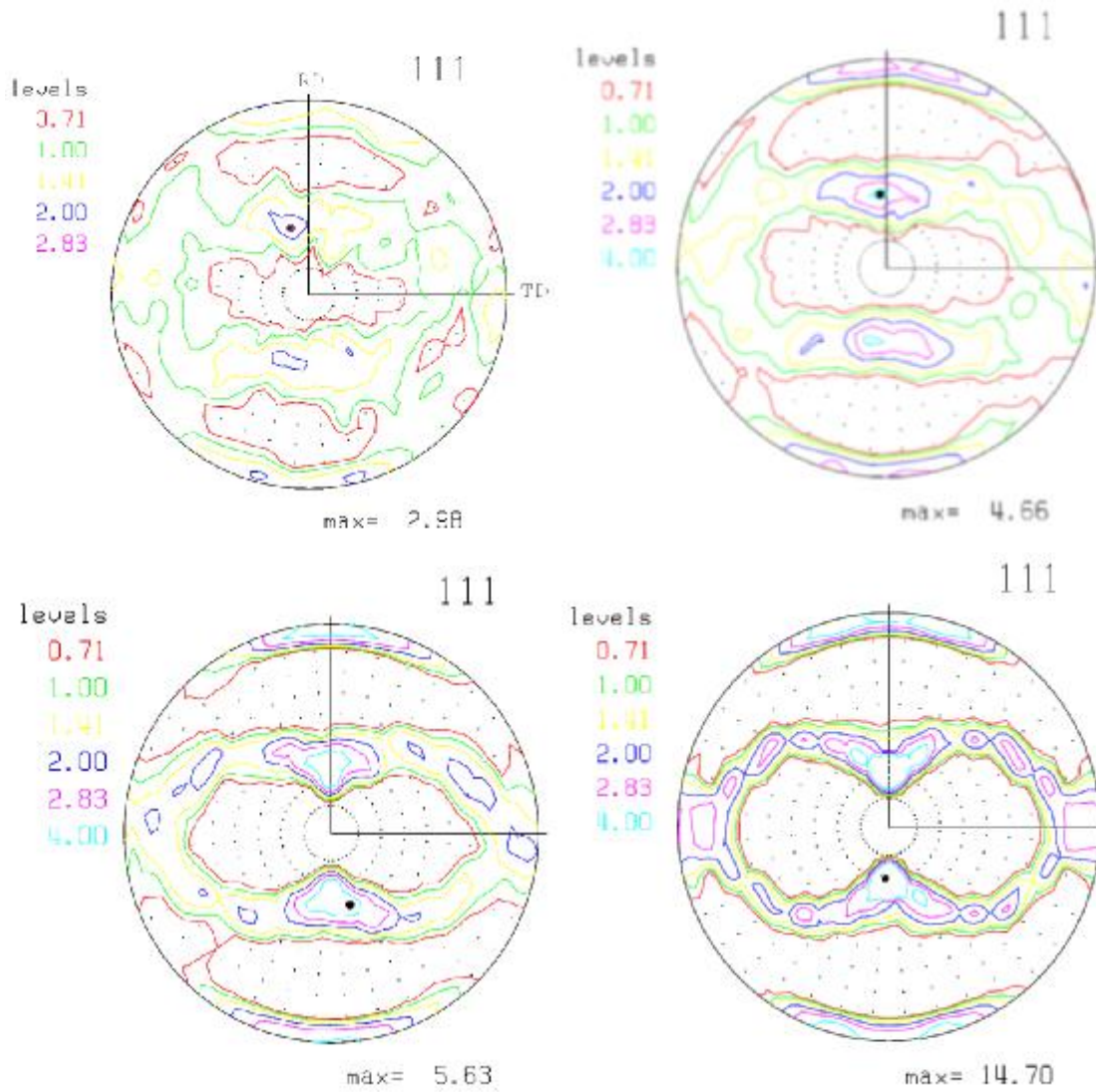


Figure III-38 : Figures de pôles {111} simulées par le modèle VPSC pour les taux de réduction suivants : (15, 30, 50 et 90%).

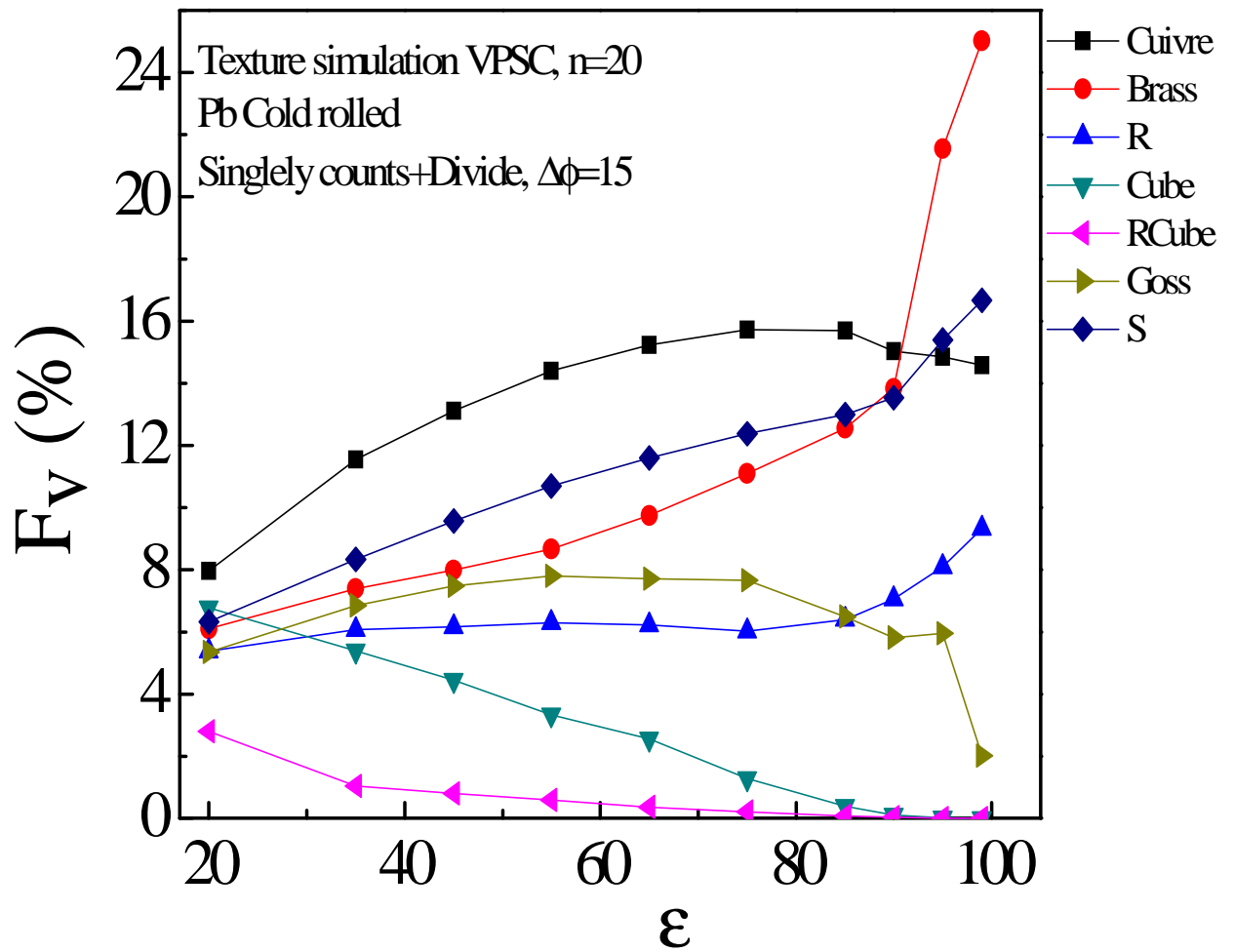


Figure III-39 : Evolution des fractions volumiques des composantes de la texture en fonction du taux de laminage simulés par le modèle VPSC pour le système Pb-0.08Ca-2Sn (% en poids.).

III-8-3: Simulation de la texture de l'alliage PbCaSn calculée par la méthode des Interactions entre grains (Grain Inter Action, GIA)

Les figures III-40a-d présentent les figures de pôles {111} de l'alliage Pb-0.08Ca-2Sn (% en poids) calculées par la méthode GIA (Grains Inter Actions) ou modèle à interaction entre grains voisins et pour différents taux de déformation, Ce modèle a été proposé par Crumbach *et al.*[62].

Ces figures indiquent aussi que cette méthode prédit une texture très proche de celles produites par les trois méthodes précédentes (FC, RC et VPSC). Les positions des composantes principales et les maximas d'intensité sont très similaires. L'évolution de la fraction volumique des composantes principales est montrée en Figure III-41 La simulation par la méthode GIA mène à un état qui dépend du taux de déformation ; pour un taux inférieur à 70%, l'ordre est S>Cube>Bs>Goss>C alors que pour plus de 70%, il est Bs>S>Cube>G>C exactement comme les deux méthodes FC et RC. Pour les taux de déformation supérieurs à 80%, la méthode GIA prédit une augmentation très forte de la composante Bs tout comme la méthode VPSC. Il est à noter manifestement un fort resserrement autour de cette position pour le taux de déformation égal à 90%. Il est à noter aussi la faiblesse des maxima des niveaux d'intensité relativement aux trois méthodes précédentes.

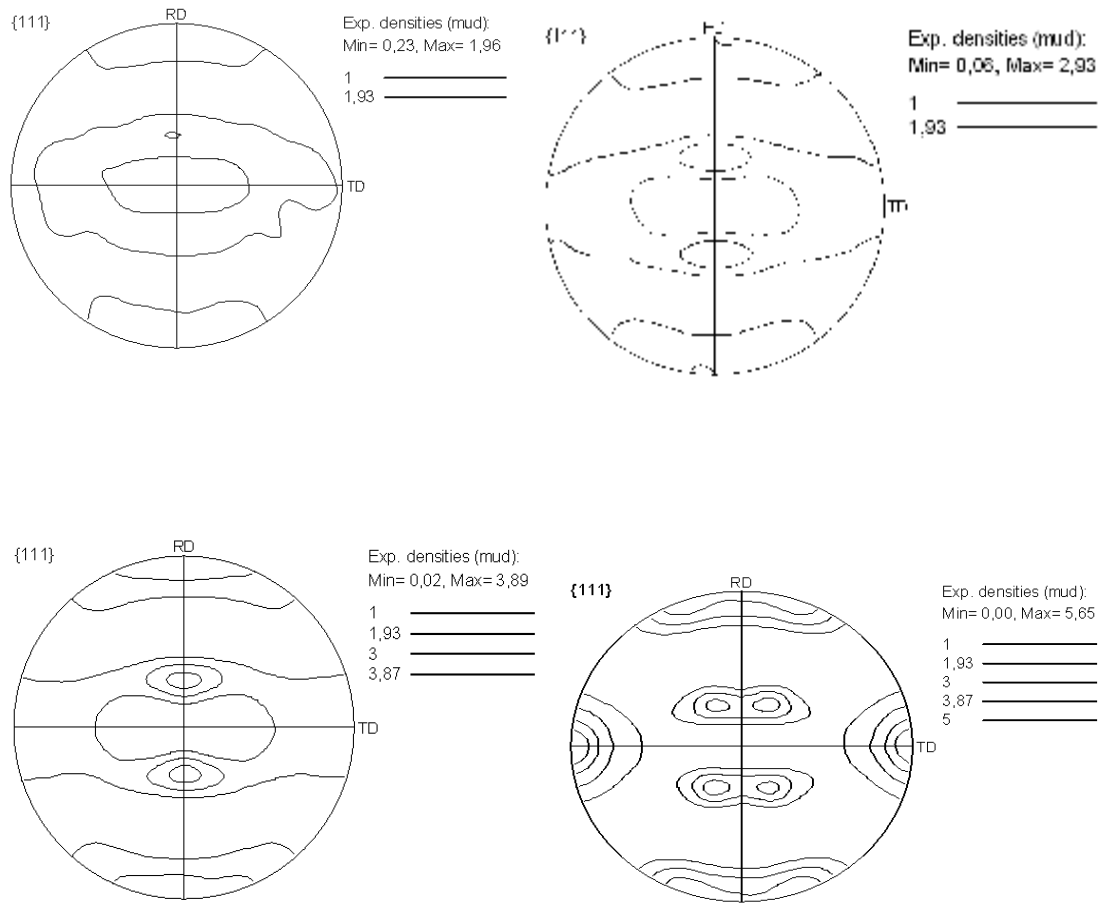


Figure III-40 : Figures de pôles {111} simulées par la méthode GIA pour un les différents taux de réduction d'épaisseur suivants : (15, 30, 50 et 90%).

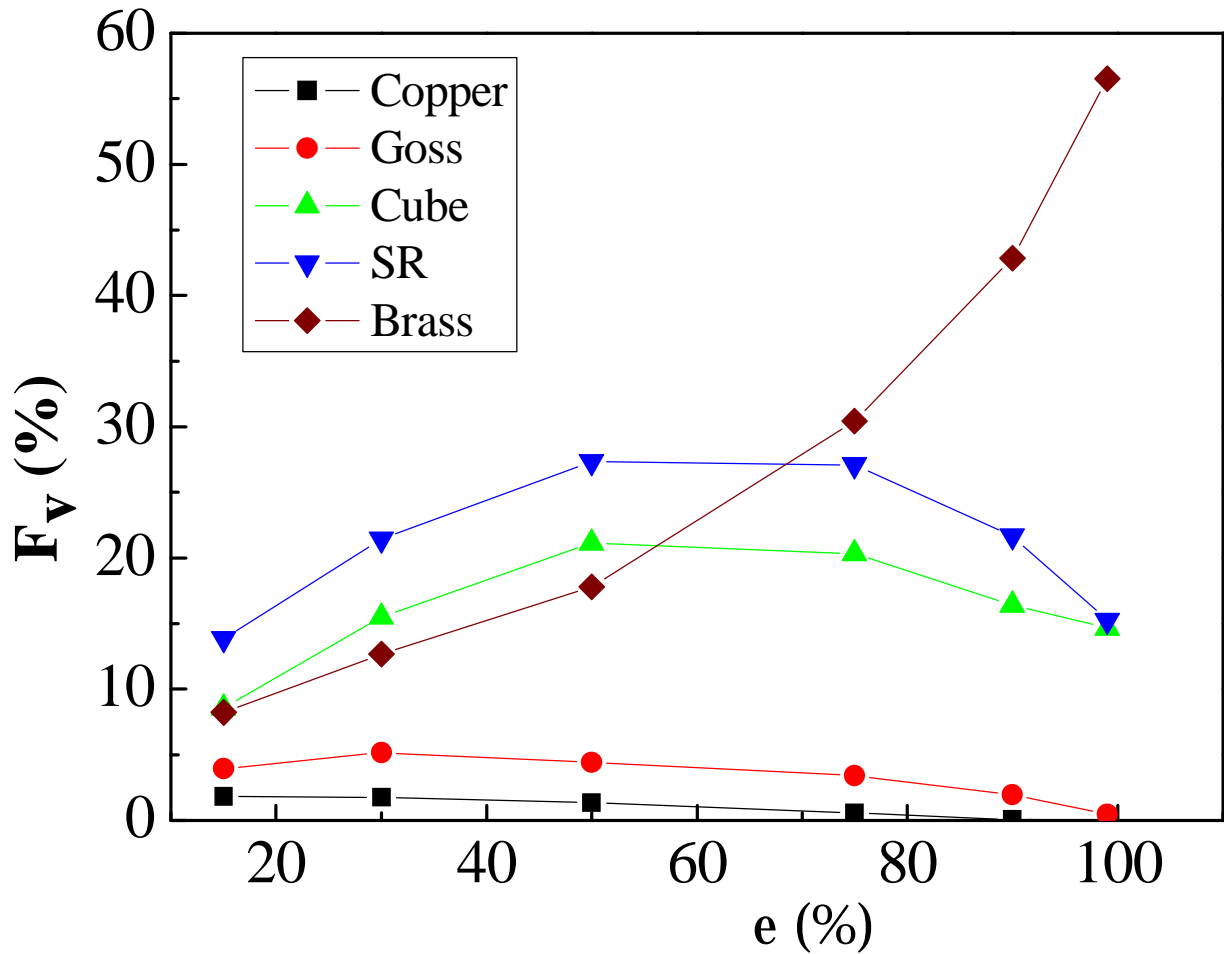


Figure III-41 : Evolution des fractions volumiques des composantes de la texture en fonction du taux de laminage simulés par la méthode GIA pour le système Pb-0.08Ca-2Sn (% en poids.).

Les différences dans les résultats des simulations par les 4 méthodes (FC, RC, VPSC et GIA) résident dans leur fondement même. Les discussions de ces derniers dépassent largement le cadre de ce travail et nous nous bornerons à indiquer quelques considérations essentielles.

Dans la littérature, il est bien établi que le modèle FC est une bonne première approximation de la formation de la texture de déformation, au moins pour les matériaux monophasés [63].

Le modèle RC a été introduit pour tenir compte des larges déformations. Le modèle de Taylor représente un couplage entre les grains individuels et la matrice qui constitue un continuum plastique qui est plus rigide que dans les matériaux réels. Même si dans le modèle élastique-plastique de Taylor, le couplage entre les grains est très rigide, d'autres modèles ont été développés et qui tiennent compte d'un couplage plus léger ; c'est le modèle des contraintes relaxées (RC). Dans les modèles auto cohérents, le couplage est adouci par une réduction formelle des constantes élastiques (par une multiplication par un facteur inférieur à l'unité). Malgré cet adoucissement du couplage entre les grains, le modèle VPSC présente quelques faiblesses. Une tentative d'outrepasser ces faiblesses a été entreprise, en effet, des modèles dits *multigrains* ont été proposés à l'instar du modèle GIA. Il est cependant à distinguer les modèles à éléments finis dans lesquels l'interaction entre les grains est décrite quantitativement et les modèles dits « intelligents » qui incluent dans leur procédure les caractéristiques essentielles et pas une description strictement quantitative.

Références bibliographiques du Chapitre III

- [1] S. N. Dey, P. Chatterjee, S P. Sen Gupta , *Acta Materialia*, 51(16): (2003), 4669-4677.
- [2] L. Bouirden, Thèse de Doctorat de l'Université Henri Poincaré, Nancy1 (1984) France.
- [3] M. Safi. Thèse de Magister, USTHB, (2002) Alger.
- [4] M. Safi, B. Alili, D. Bradai, *Revue Algérienne de Physique* 01 (2006) 53-56.
- [5] M. Oussadou, Mémoire de Magister, Faculté de Physique, USTHB, (2008) Alger.
- [6] M. Safi, F. Abouhilou, B. Alili, D. Bradai, *Phys. Chem. News*, 28 (2006) 122-127.
- [7] L. Lutterotti, P. Scardi *J. Appl. Cryst.*, **23**, (1990), 246-252.
- [8] H. M. Rietveld, *Acta Cryst.*, **22**, (1967) 151.
- [9] H. M. Rietveld, *J. Appl. Cryst.*, **2**, (1969), 65-71.
- [10] F. Abouhilou, A. Khereddine, B. Alili & D. Bradai, acceptée : *Trans. Nonferrous Met. Soc. China* xx (2011) xxxx-xxxx.
- [11] J.I. Langford, D.Louër, P. Scardi, *J Appl Cryst.*, 964, (2000), 33.
- [12] E. Lloyd, *Handbook of Applicable Mathematics, Statistics*. Chichester : Wiley, Vol.4. (1984).
- [13] E.A Brands and G.B. Brook: *Smithells metal reference book*, 7thedition, Oxford, Butterworth-Heinemann, (1992), 1089.
- [14] T. Ungar, I. Dragomir, A. Revesz, A. Borbely, *J Appl. Cryst.*, (1999), 992, 32.
- [15] P. Chatterjee, P.S. Bhattacharya, S.P.SEN Gupta : *J. Alloys& Comp. Cryst.*, (1999), 160, 284.
- [16] M.V. Wilkens, *Phys. Stat. Sol.A*, (1970), 359, 2.
- [17] J. P. Hilger, *J. Power Sources*, 53: (1995), 45-51.
- [18] J. P. Hilger, *Journal de Physique, Collection C3*, (1995), 5: C3-39.
- [19] M. Dehmas, A. Maître, J. B. Richir, P. Archambault, *J. Power Sources*, 159 (1), (2006), 721-727.
- [20] A. Maître, G. Bourguignon, G. Medjahdi, E. Mcrae, M. H. Mathon, *Scripta Mater.*, 50: (2004), 685-689.
- [21] A. Maître, G. Bourguignon, J. M. Fiorani, J. Ghanbaja, J. Steinmetz, *J. Mater. Sci. Eng. A*, 358(1-2) : (2003), 233-242.
- [20] A. Maître, G. Bourguignon, G. Medjahdi, E. Mcrae, M. H. Mathon, *Scripta Mater.*, 50: (2004), 685-689.
- [21] A. Maître, G. Bourguignon, J. M. Fiorani, J. Ghanbaja, J. Steinmetz, *J. Mater. Sci. Eng. A*, 358(1-2) : (2003), 233-242.

- [22] E. Hornbogen, U. Köster, F. Haesner ed, Riederer Verlag, Stuttgart, (1978), 159.
- [23] F. Prima, Thèse de Doctorat, INSA de Rennes, (2000) France.
- [24] G. Bourguignon, Thèse de Doctorat, Université Henri Poincaré, Nancy I, , (2003), France.
- [25] H. Tsubakino, M. Tagami, S. Ioku, A. Yamamoto, 27(A): (1996),1675-1682.
- [26] H. Borchers, H. Assman, Z. Metallkde, 81 (1990) 490.
- [27] H. Borchers, H. Tsubakino, Trans J.I.M, 10(1969) 91.
- [28] H. Tsubakino, R. Nozato, Y. Satoh, Z. Metallkde, 81 (1990) 490.
- [29] H. Tsubakino, R. Nozato, A.Yamamoto, ScriptaMetallurgica et Materiala, 26 (1992) 1681.
- [30] H. Tsubakino, M. Tagame, S.Loku, A. Yamamoto, Metallurgica and Materials Transactions A, 27, (1996), 1675.
- [31] A.J. Hillel et J.T. Edwards, Phil. Mag, 32, (1975), 189.
- [32] N. Luigi, J.P. Simon and P. Guyot, Acta Metall., 28, (1980), 1115.
- [33] D.R. Lide, «Handbook of Chemistry and Physics», 75th Edition (1995), 12-40.
- [34] A.J. Hillel and J.T. Edwards, Phil. Mag, 32, (1975), 189.
- [35] J.P. Massoud, J.F. Coste, J.M. Leborgne, Proc. 7th International Conference on Nuclear Engineering, (1999), ICONE 7243.
- [36] J.F. Coste, Y. Kawaguchi, Proc.8th International Conference on Nuclear Engineering, (2000), ICONE-8337.
- [37] Y. Kawaguchi, Y. Okano, Trans. Jpn. Soc. Mech. Eng. A 63 (2001) 462-469
- [38] W. Morgner, , The American Society for Non destructive Testing, (1991), 1081-1088.
- [39] C.M. Stuart, Int. Adv. Non destructive testing 9, (1983), 177-191.
- [40] P.G.H. Pistourius, G.T.VanRooyen, Measure. Sci. Technol., 2, (1991), 1220-1222.
- [41] C.M. Stuart, J. Testing Eval. 15, (1987), 224-230.
- [42] J. Burke ; La cinétique des changements de phase dans les métaux, Masson, Paris, (1968). 102-104.
- [43] J.W. Christian, “The Theory of Transformations in Metals and Alloys”, (1965) 542.
- [44] A. Raho, Thèse de Doctorat d’Etat, USTHB, (2006), Alger.
- [45] U. E. Kocks, Texture and anisotropy : Cambridge University Press, (1998), 427-130..
- [46] F.YALA, Thèse de Doctorat, Université Paris-Sud, Orsay, (1991), France.
- [47] W.B. Hutchinson & P. Bate, Private communication (1994).
- [48] W. Dabrowski, J. Karp, H. J. Bunge, Arch. Eisenhüttenwes, 53, (1982), 361-368.
- [49] B. Alili, Thèse de Doctorat d’Etat, USTHB, (2007), Alger.
- [50] W. Wang, H.Guo, Mat. Sci. Eng., A 445-446: (2007), 155-162.

- [51] W. Wang, F. Yin, H. Guo, H. Li, B. Zhou, *Mat. Sci. Eng., A* 491: (2008), 199-206.
- [52] G. Ribarik, J. Gubicza, T. Ungar, *Mat. Sci. Eng. A*, (2004), 343-347.
- [53] M. Safi, D. Bradai, G. Ribarik, unpublished work.
- [54] K. Kapoor, D. Lahiri, I. S. Batra, S. V. R. Rao, T. Sanyal, *Mat. Charact*, 54 (2): (2005), 131-140.
- [55] W. Hofmann, *Lead and Lead Alloys, Properties and Technology*, Springer Verlag Berlin, (1970), 181.
- [56] F. Abouhilou, H. Azzeddine, B. Mehdi, B. Alili, D. Bradai, *Trans. Nonferrous Met. Soc. China* 21 (2011) 1779-1784.
- [57] F.J. Humphreys, M. Hatherly, "*Recrystallization and related annealing phenomena*", Pergamon Press, Oxford (1995).
- [58] U. F. Kocks, C. N. Tomé, H. R. Wenk, *Preferred Orientation in polycrystals and their effect on Materials Properties*. CambridgeUniversityPress (1998).].
- [59] G. Benchaabane, Thèse de Doctorat, Université Mohamed Khider, (2009) Biskra.
- [60] S. Jakani, Thèse de Doctorat, Orsay Paris (2004) France.
- [61] P. Gerber, Thèse de Doctorat, Université Paris Nord, (2003), France.
- [62] M. Crumbach, G. Pomana, P. Wagner, G. Gottsein, A Taylor-type deformation texture model considering grain interaction and material properties, Part I : Fundamentals, In : G. Gottsein and D.A. Modolov (Eds.), *Recrystallisation and Grain Growth*, Proc. First Joint Conference, Springer, Berlin,, (2001), 1053-1060.
- [63] T. Leffers, D. Juul Jensen and N. Hansen, in 8th International Conference on Textures in Materials (ICOTOM8), edited by J. Kallend and G. Gottstein, The Metallurgical Society, Warrendale 1988) 265.

Conclusion générale

Conclusion générale

Le travail présenté dans cette thèse a pour objectif l'étude d'évolutions de microstructure et de texture cristallographique, dans l'alliage industriel Pb-0.08Ca-2Sn (% en poids) déformé par laminage.

Dans ce cadre, plusieurs techniques de caractérisations multi-échelles ont été utilisées : la microscopie optique, la microscopie électronique à transmission (MET), la diffraction de rayons X (diffractomètre de poudres, goniomètre de texture), la microdureté Vickers, la résistivité électrique, le pouvoir thermoélectrique.

La déformation à froid de l'alliage Pb-0.08Ca-2Sn (% en poids) par laminage à 50 et 75% n'induit pas une quantité appréciable de défauts. La densité de dislocations est approximativement de l'ordre de 10^{10} cm/cm³. La taille des cristallites (domaines cohérents de diffraction) est de l'ordre de 50 nm et diminue sensiblement avec le taux de déformation par laminage. Leur distribution devient moins large en fonction du taux de déformation à froid. Le calcul du paramètre R (coefficient d'anisotropie de Lankford) en fonction de l'angle de direction de laminage a montré la présence d'anisotropie plane et la faible emboutissabilité.

Après traitement thermique de recristallisation, l'alliage présente une microstructure entièrement recristallisée consistant en des grains non équiaxes ayant des tailles moyennes comprises entre 100 et 200 μm. Le fait que les grains ne soient pas équiaxes, est le signe d'instabilités au niveau des joints de grains à cause de la présence de solutés très actifs chimiquement comme le Sn et le Ca.

Le vieillissement aux températures 80 à 120°C incite une action combinée entre la précipitation continue et les réactions de recristallisation qui sont dissemblables à la partie proposée par la littérature, dans lequel la recristallisation est influencée seulement, par la ségrégation et la précipitation, apparaissent après l'achèvement de la recristallisation.

La microdureté Vickers a mieux permis de mettre en évidence la recristallisation par son effet adoucissant tout étant quasi aveugle à la précipitation continue de la phase durcissante L₁₂, la mesure de la résistivité électrique a, par contre, mieux mis en évidence la précipitation et n'a pas permis de déceler la recristallisation.

Par la suite, une caractérisation de la texture cristallographique des états laminés à 50% et à 75 %, a montré que la texture de déformation présente les composantes suivantes : Brass (Laiton), S, Cuivre et R, mais, il y a la présence de la Cube d'intensité très faible.

Conclusion générale

L'alliage laminé à froid et recuit à 120°C a semblé avoir une texture de déformation retenue, mais avec une composante Cube émergente.

L'étude détaillée de l'évolution de la texture de déformation et de recristallisation-vieillessement-revenu de la solution solide Pb-0.08Ca-2Sn (% en poids), au moyen de l'analyse extensive de la fonction de distribution des orientations (FDOC) en utilisant la diffraction des rayons X, a révélé qu'apparaissent, non seulement les composantes de la texture "Laiton" (Laiton, Goss et S) mais aussi d'autres composantes mineures. Globalement, le calcul de la texture par les trois méthodes : Harmonique, WIMV et ADC aboutissent à des résultats plus ou moins similaires. Les valeurs des FDOC et les fractions volumiques de chaque composante déterminées semblent être en accord qualitatif avec ceux de la littérature.

La simulation de la texture par la méthode de Taylor (« Full Constraints » et « Relaxed Constraints ») a abouti à des résultats similaires ; les deux modèles prédisent l'augmentation de l'intensité maximale en fonction du taux de laminage. Les figures de pôles montrent les mêmes composantes : Cuivre, S, Brass, Goss mais dont les intensités maximales semblent être élevées et moins étalées que celles simulées.

Annexes

Annexe 1 :

Résultats du calcul des incréments de déformation pour la détermination du coefficient d'anisotropie (Lankford).

N°	Echantillons	Longueur initiale (mm)	Longueur finale (mm)	ϵ_1	True ϵ_1
1	$\alpha=0^\circ \epsilon=5\%$	23,5	25	0,06	0,07
2	$a=0^\circ \epsilon=10\%$	26,5	29,5	0,11	0,12
3	$a=0^\circ \epsilon=15\%$	26	26	0,00	0,00
4	$a=0^\circ \epsilon=\text{rep}\%$	24,5	25	0,02	0,02
5	$a=15^\circ \epsilon=5\%$	24	25,5	0,06	0,06
6	$a=15^\circ \epsilon=10\%$	24,5	30	0,22	0,25
7	$a=15^\circ \epsilon=15\%$	23,5	27	0,15	0,16
8	$a=15^\circ \epsilon=\text{rep}\%$	25	25	0,00	0,00
9	$a=30^\circ \epsilon=5\%$	23,5	28	0,19	0,21
10	$a=30^\circ \epsilon=10\%$	25,5	26	0,02	0,02
11	$a=30^\circ \epsilon=15\%$	23,5	24,5	0,04	0,04
12	$a=30^\circ \epsilon=\text{rep}\%$	25,5	27	0,06	0,06
13	$a=45^\circ \epsilon=5\%$	24	24	0,00	0,00
14	$a=45^\circ \epsilon=10\%$	24	25	0,04	0,04
15	$a=45^\circ \epsilon=15\%$	23,5	25	0,06	0,07
16	$a=45^\circ \epsilon=\text{rep}\%$	23	29,5	0,28	0,33
17	$a=60^\circ \epsilon=5\%$	22,5	25,5	0,13	0,14
18	$a=60^\circ \epsilon=10\%$	23	26	0,13	0,14
19	$a=60^\circ \epsilon=15\%$	23,5	26	0,11	0,11
20	$a=60^\circ \epsilon=\text{rep}\%$	23,5	24,5	0,04	0,04
21	$a=75^\circ \epsilon=5\%$	23	25	0,09	0,09
22	$a=75^\circ \epsilon=10\%$	23,5	24	0,02	0,02
23	$a=75^\circ \epsilon=15\%$	23	24	0,04	0,04
24	$a=75^\circ \epsilon=\text{rep}\%$	23,5	25	0,06	0,07
25	$a=90^\circ \epsilon=5\%$	25	24	-0,04	-0,04
26	$a=90^\circ \epsilon=10\%$	23,5	23,5	0,00	0,00
27	$a=90^\circ \epsilon=15\%$	23	24	0,04	0,04
28	$a=90^\circ \epsilon=\text{rep}\%$	24,5	26	0,06	0,06

Annexe 2 :

N°	Echantillons	Largeur initiale (mm)	Largeur finale (mm)	True ε_2
1	$\alpha=0^\circ \varepsilon =5\%$	7,47	5,05	0,28
2	$a=0^\circ \varepsilon =10\%$	7,17	6,67	0,07
3	$a=0^\circ \varepsilon =15\%$	7,08	6,47	0,08
4	$a=0^\circ \varepsilon =rep\%$	7,95	6,8	0,14
5	$a=15^\circ \varepsilon =5\%$	7,37	7,17	0,03
6	$a=15^\circ \varepsilon =10\%$	7,98	7,85	0,02
7	$a=15^\circ \varepsilon =15\%$	7,63	6,92	0,09
8	$a=15^\circ \varepsilon =rep\%$	7,63	6,01	0,19
9	$a=30^\circ \varepsilon =5\%$	7,88	7,04	0,10
10	$a=30^\circ \varepsilon =10\%$	8,02	7,68	0,04
11	$a=30^\circ \varepsilon =15\%$	8,03	7,66	0,05
12	$a=30^\circ \varepsilon =rep\%$	7,44	7,32	0,02
13	$a=45^\circ \varepsilon =5\%$	7,87	7,08	0,10
14	$a=45^\circ \varepsilon =10\%$	7,53	7,31	0,03
15	$a=45^\circ \varepsilon =15\%$	7,07	6,54	0,07
16	$a=45^\circ \varepsilon =rep\%$	8	7,59	0,05
17	$a=60^\circ \varepsilon =5\%$	6,69	6,33	0,05
18	$a=60^\circ \varepsilon =10\%$	7,11	6,86	0,03
19	$a=60^\circ \varepsilon =15\%$	8,23	7,37	0,10
20	$a=60^\circ \varepsilon =rep\%$	7,57	6,15	0,17
21	$a=75^\circ \varepsilon =5\%$	7,46	7,18	0,04
22	$a=75^\circ \varepsilon =10\%$	7,69	6,94	0,09
23	$a=75^\circ \varepsilon =15\%$	6,72	6,21	0,07
24	$a=75^\circ \varepsilon =rep\%$	7,47	7,12	0,05
25	$a=90^\circ \varepsilon =5\%$	7,25	6,03	0,16
26	$a=90^\circ \varepsilon =10\%$	7,15	6,88	0,04
27	$a=90^\circ \varepsilon =15\%$	7,21	6,99	0,03
28	$a=90^\circ \varepsilon =rep\%$	6,86	6,75	0,02

Annexe 3 :

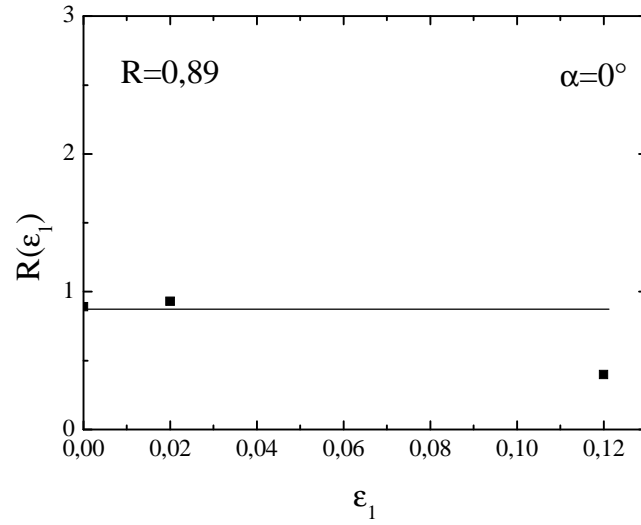
N°	Echantillons	Epaisseur initiale (mm)	Epaisseur finale (mm)	True ϵ_3
1	$\alpha=0^\circ \epsilon =5\%$	1,52	1,44	0,05
2	$a=0^\circ \epsilon =10\%$	1,63	1,33	0,17
3	$a=0^\circ \epsilon =15\%$	1,44	1,3	0,09
4	$a=0^\circ \epsilon =rep\%$	1,53	1,29	0,15
5	$a=15^\circ \epsilon =5\%$	1,43	1,06	0,23
6	$a=15^\circ \epsilon =10\%$	1,11	1,02	0,08
7	$a=15^\circ \epsilon =15\%$	1,19	0,96	0,18
8	$a=15^\circ \epsilon =rep\%$	1,16	1,28	-0,11
9	$a=30^\circ \epsilon =5\%$	1,41	1,07	0,22
10	$a=30^\circ \epsilon =10\%$	1,12	1,05	0,06
11	$a=30^\circ \epsilon =15\%$	1,17	1,04	0,11
12	$a=30^\circ \epsilon =rep\%$	1,13	1,23	-0,09
13	$a=45^\circ \epsilon =5\%$	1,47	0,75	0,40
14	$a=45^\circ \epsilon =10\%$	1,25	1,03	0,16
15	$a=45^\circ \epsilon =15\%$	1,18	1,06	0,10
16	$a=45^\circ \epsilon =rep\%$	1,08	1,3	-0,23
17	$a=60^\circ \epsilon =5\%$	1,45	0,98	0,28
18	$a=60^\circ \epsilon =10\%$	1,2	1,09	0,09
19	$a=60^\circ \epsilon =15\%$	1,17	0,93	0,19
20	$a=60^\circ \epsilon =rep\%$	1,15	1,3	-0,14
21	$a=75^\circ \epsilon =5\%$	1,36	1,01	0,23
22	$a=75^\circ \epsilon =10\%$	1,16	1,09	0,06
23	$a=75^\circ \epsilon =15\%$	1,08	0,96	0,11
24	$a=75^\circ \epsilon =rep\%$	1,09	1,2	-0,11
25	$a=90^\circ \epsilon =5\%$	1,39	1,36	0,02
26	$a=90^\circ \epsilon =10\%$	1,34	1,22	0,09
27	$a=90^\circ \epsilon =15\%$	1,45	1,36	0,06
28	$a=90^\circ \epsilon =rep\%$	1,47	1,26	0,13

Annexe 4 :

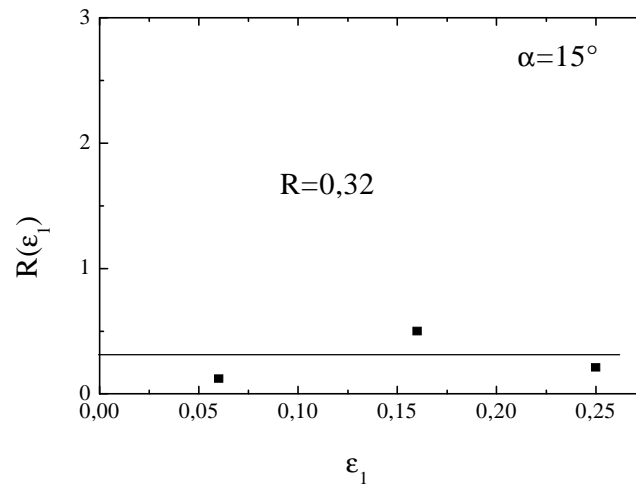
N	Echantillons	ε_1	ε_2	ε_3	Lankford
1	$\alpha=0^\circ \varepsilon =5\%$	0,06	-0,44	-0,05	0,12
2	$a=0^\circ \varepsilon =10\%$	0,11	-0,07	-0,18	2,64
3	$a=0^\circ \varepsilon =15\%$	0,00	-0,09	-0,10	1,13
4	$a=0^\circ \varepsilon =\text{rep}\%$	0,02	-0,14	-0,16	1,08
5	$a=15^\circ \varepsilon =5\%$	0,06	-0,03	-0,31	11,52
6	$a=15^\circ \varepsilon =10\%$	0,22	-0,05	-0,15	2,99
7	$a=15^\circ \varepsilon =15\%$	0,15	-0,10	-0,19	1,84
8	$a=15^\circ \varepsilon =\text{rep}\%$	0,00	-0,21	0,10	-0,49
9	$a=30^\circ \varepsilon =5\%$	0,19	-0,11	-0,28	2,59
10	$a=30^\circ \varepsilon =10\%$	0,02	-0,05	-0,06	1,35
11	$a=30^\circ \varepsilon =15\%$	0,04	-0,06	-0,11	1,81
12	$a=30^\circ \varepsilon =\text{rep}\%$	0,06	-0,02	0,09	-5,49
13	$a=45^\circ \varepsilon =5\%$	0,00	-0,10	-0,49	4,88
14	$a=45^\circ \varepsilon =10\%$	0,04	-0,03	-0,18	6,02
15	$a=45^\circ \varepsilon =15\%$	0,06	-0,07	-0,10	1,36
16	$a=45^\circ \varepsilon =\text{rep}\%$	0,28	-0,05	0,20	-3,97
17	$a=60^\circ \varepsilon =5\%$	0,13	-0,05	-0,32	6,02
18	$a=60^\circ \varepsilon =10\%$	0,00	-0,04	-0,09	2,61
19	$a=60^\circ \varepsilon =15\%$	0,11	-0,15	-0,21	1,40
20	$a=60^\circ \varepsilon =\text{rep}\%$	0,04	-0,19	0,13	-0,70
21	$a=75^\circ \varepsilon =5\%$	0,09	-0,04	-0,26	6,86
22	$a=75^\circ \varepsilon =10\%$	0,02	-0,10	-0,06	0,59
23	$a=75^\circ \varepsilon =15\%$	0,04	-0,08	-0,11	1,39
24	$a=75^\circ \varepsilon =\text{rep}\%$	0,04	-0,05	0,10	-2,15
25	$a=90^\circ \varepsilon =5\%$	-0,04	-0,17	-0,02	0,12
26	$a=90^\circ \varepsilon =10\%$	0,00	-0,04	-0,13	3,57
27	$a=90^\circ \varepsilon =15\%$	0,04	-0,03	-0,08	2,71
28	$a=90^\circ \varepsilon =\text{rep}\%$	0,13	-0,03	-0,15	4,89

Annexe 5 :

Variation de $R(\alpha)$ avec la déformation

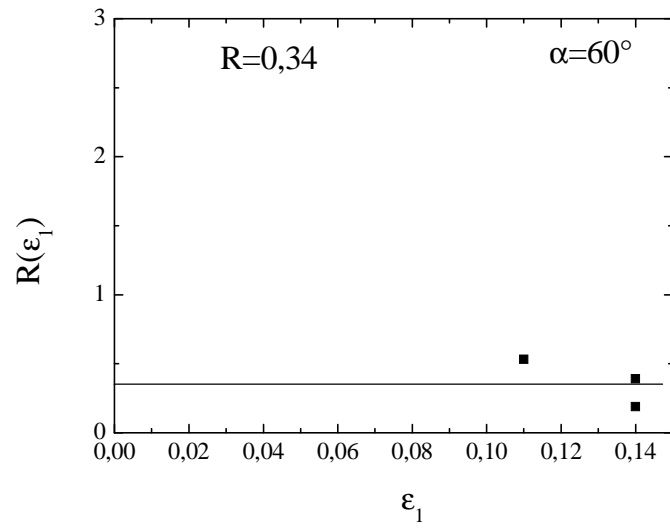


Variation de $R(\alpha)$ avec la déformation pour $\alpha = 0^\circ$

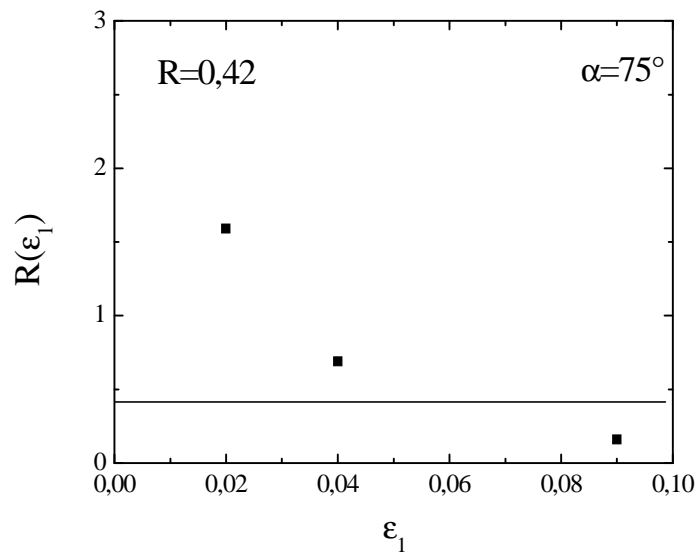


Variation de $R(\alpha)$ avec la déformation pour $\alpha = 15^\circ$

Annexes



Variation de $R(\alpha)$ avec la déformation pour $\alpha=60^\circ$



Variation de $R(\alpha)$ avec la déformation pour $\alpha=75^\circ$