THESE

Pour l'obtention du Grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITE DE POITIERS

(Faculté des Sciences Fondamentales et Appliquées)
(Diplôme National - Arrêté du 25 mai 2016)

Ecole Doctorale : Sciences et Ingénierie en Matériaux, Mécanique, Energétique et Aéronautique

Secteur de Recherche : Milieux denses, Matériaux et Composants

Présentée par :

Aurélie JOSEPH

****

Microstructure et caractérisation mécanique multi-échelles des composites Al/ω-Al-Cu-Fe synthétisés par métallurgie des poudres

****

Directeurs de Thèse :

Anne Joulain
Véronique Gauthier-Brunet

****

Soutenue le 23 mai 2017 devant la Commission d'Examen

JURY

B. Viguier	Professeur, CIRIMAT, Toulouse	Rapporteur
J.-F. Silvain	Directeur de recherche au CNRS, ICMCB, Bordeaux	Rapporteur
P. Donnadieu	Directeur de recherche au CNRS, SIMaP, Grenoble	Examinateur
J.-P. Monchoux	Chargé de recherche au CNRS, CEMES, Toulouse	Examinateur
J. Bonneville	Professeur, Institut Pprime, Poitiers	Examinateur
A. Joulain	Professeur, Institut Pprime, Poitiers	Examinateur
V. Gauthier-Brunet	Maître de Conférences, Institut Pprime, Poitiers	Examinateur

Remerciements

Tout d'abord, je tiens à remercier Jean-François Silvain, directeur de recherche au CNRS à l'ICMCB à Bordeaux, et Bernard Viguier, professeur au CIRIMAT à Toulouse, pour avoir accepté de rapporter cette thèse ainsi que Patricia Donnadieu pour avoir assumé le rôle d'examinateur. Je remercie doublement Jean-Philippe Monchoux d'avoir accepté d'être examinateur ainsi que pour son entière implication lors de l'élaboration des échantillons, pour ses idées et ses conseils.

J'adresse mes plus sincères remerciements et mon entière gratitude à mes directrices de thèse, Anne Joulain et Véronique Gauthier-Brunet, sans qui ce travail de thèse n'aurait pas eu lieu. Je les remercie infiniment pour la bonne ambiance de travail, leur soutien, leurs encouragements, les discussions, leur disponibilité et toute l'attention qu'elles m'ont accordée. Merci à Joël Bonneville pour son aide précieuse concernant l'aspect propriétés mécaniques, ses remarques et ses idées. Cette partie n'aurait pas été complète sans les essais de nanoindentation réalisés par Christophe Tromas. Un très grand merci à toi pour le temps que tu y as passé, à la fois en « manip », en dépouillement et en réunion avec nous. Merci également à Sylvain Dubois pour sa participation à ce travail.

Ces remerciements n'auraient pas pu être aussi complet sans souligner l'implication de Dominique Eyidi, qui m'a formée au MEB et qui a toujours répondu présent en toutes occasions. Je le remercie également pour ses nombreuses allées et venues au MEB quand j'avais des petits problèmes ! Je remercie également Frédéric Pailloux pour les traitements thermiques *in situ* au MET et tout le temps qu'il y a consacré. Merci également à Julie Rousseau, qui a réalisé les observations MET et les analyses chimiques, à l'IC2MP, ainsi que à François Brisset pour les traitements thermiques *in situ* réalisés à ICMMO, à Orsay.

Je souhaite également remercier chaleureusement tout le personnel de l'équipe technique pour leur aide précieuse et les agréables discussions : Anne-Marie Archambaud, Claude Veillon, Patrick Tanguy, Fabrice Berneau, Frédéric Gacioch, Marie-Noëlle Branlé, Kévin Dessioux, Bruno Lamongie ainsi que André Baudet et Philippe Guérin.

Sachant que nous sommes tous dans le même bateau, un petit mot de remerciement pour tout le groupe de doctorant : Elodie, Bertrand, Julien (lequel ? Les deux bien sûr), Benjamin, Romuald, Florian, Maxime, Wilgens, Thierry, Senda, Shenan … Merci à Raphaëlle pour les pauses thé. Pour toutes les fois où j'ai occupé son bureau (et puis ce n'était pas que le sien), un petit coucou à notre doctorant poitevin/grenoblois Romain et surtout merci pour les bouteilles de Génépi, de Chartreuse et de vin de noix. Un petit clin d'œil à Guillaume pour les discussions (jamais de sciences d'ailleurs) durant le trajet en bus et devant la porte du FIB (oui, en même temps, tu ne m'as pas invitée à entrer !).

Ne t'inquiète donc pas, je ne t'ai pas oubliée … Je te remercie Fadella pour ces moments : pauses déjeuners, pauses, sorties, milkshakes menthe-citron (oui et pas mangue-citron !) et glaces vanille (simples ou doubles, à voir). Merci d'avoir été là durant les bons et les « mauvais » moments. Mais surtout, merci pour les cordes que tu m'as apportées durant ma rédaction de thèse et qui ont été fortes utiles !

Clarisse, pour ton sourire et tes joues de bébé (oui apparemment ça ne se dit pas, mais à mon avis, c'est un compliment car c'est tellement mignon !), ta présence, ton soutien, tes paroles, (en fait d'avoir été toi, tout simplement) dans les bons comme dans les moments difficiles (surtout !), je t'adresse en

ce sens mes remerciements les plus profonds et les plus sincères. Comme tu l'as souvent dit, la thèse est une aventure humaine (© Julien Nicolaï) comme nous avons bien pu le vérifier.

Merci à Dimitri pour son rire communicatif, sa barbe (tu comptes la tailler ?), ses taquineries sur les dinderies (oui oui, je n'ai pas oublié. Je me vengerai un jour. Peut-être …), ses vannes, l'animation lors des soirées (à base de Pineau et de Cognac, merci pour ça aussi !) où nous avons pu bien rigoler.

Un petit clin d'œil à mon alter égo féminin Camille (trouvé il n'y a pas si longtemps, mais quand même). Je souhaiterais te dire merci car nous sommes au moins deux sur terre (on se comprend …). Un grand merci pour cette ~~petite~~ grande touche de folie et de fantaisie. Tu seras toujours une des exceptions qui confirme ma règle !

Un grand (immense, gigantesque) merci, tout particulier, à Thomas ! Je t'adresse également toute ma reconnaissance et mon respect. Les mots me manquent ou ne seront jamais assez suffisants pour te remercier pour ta présence, ton soutien, les fous-rires, les pleurs, les discutions, les conseils, …. En fait, pour tout ! Ces trois ans de thèse n'auraient pas été les mêmes sans toi. Et puis comme tu le sais : A nou mem ké nou mem !

Pour finir, je dédicace ma thèse à Kristina, Anthony, à ma mère (à qui je dois tout ! Potomitan an-mwen) ainsi qu'à mon petit rayon de soleil, Poupoussounou ! Nous avons surmonté toutes les épreuves qui se plaçaient sur nos chemins et nous continuerons ensemble.

Table des matières

Introduction générale 1

I. Etude bibliographique 3

I.1. Phase ω 3

I.1.1. Structure 3

I.1.2. Synthèse de la phase ω-Al-Cu-Fe 4

I.1.2.1. La phase ω-Al-Cu-Fe précurseur de i-Al-Cu-Fe 4

I.1.2.1.1. Films minces 4

I.1.2.1.2. Métallurgie des poudres 6

I.1.2.2. Formation de la phase ω-Al-Cu-Fe 7

I.1.2.2.1. Coulée conventionnelle 7

I.1.2.2.1. Métallurgie des poudres : frittage sous pression 8

I.1.3. Comparaison des propriétés mécaniques des phases ω-Al-Cu-Fe et i-Al-Cu-Fe 9

I.2. Composites à matrice métallique 13

I.2.1. Procédés d'élaboration et microstructures associées 14

I.2.2. Mécanismes de renforcement d'une matrice métallique 19

I.2.2.1. Durcissement par les dislocations 19

I.2.2.2. Durcissement lié à la taille des grains 20

I.2.2.3. Durcissement par précipitation des alliages d'aluminium 20

I.2.2.4. Interaction dislocations-solutés mobiles 24

I.3. Composites Al/Al-Cu-Fe 30

I.3.1. Synthèse et microstructure 30

I.3.2. Propriétés mécaniques 33

II. Techniques expérimentales 43

II.1. Synthèse 43

II.1.1. Lingot i-Al-Cu-Fe 43

II.1.2. Poudres 43

II.1.3. Frittage flash (SPS – Spark Plasma Sintering) 44

II.2. Caractérisations microstructurales 46

II.2.1. Mesure de la densité apparente 46

II.2.2. Mesure de la taille de grain 47

II.2.3. Diffraction des rayons X (DRX) 47

II.2.4. Microscopie électronique à balayage (MEB) et analyse chimique 49

II.2.4.1. Mode d'imagerie électronique 49
II.2.4.2. Spectrométrie dispersive en énergie 50
II.2.4.3. MEB-FEG avec platine chauffante 51
II.2.4.4. Préparation des échantillons 52
II.2.5. Microscopie électronique en transmission (MET) 53
II.2.5.1. Contraste de diffraction 53
II.2.5.2. Spectrométrie en énergie 53
II.2.5.3. MET in-situ 53
II.2.5.4. Préparation des lames 54
II.3. Essais mécaniques 55
II.3.1. Essais de compression à vitesse imposée 55
II.3.2. Essais de nanoindentation 56
II.3.2.1. Dispositif expérimental 56
II.3.2.2. Description de l'essai de nanoindentation 57
II.3.2.3. Préparation des échantillons 59
III. Elaboration 61
III.1. Poudres initiales 61
III.2. Composites Al/Al-Cu-Fe 64
III.2.1. Paramètres de synthèse 64
III.2.2. Optimisation des composites 73
III.3. Matériaux à interface plane Al/Al-Cu-Fe 75
IV. Transformation de phase i-Al-Cu-Fe en ω-Al-Cu-Fe 83
IV.1. Echantillons modèles à interface plane Al/i-Al-Cu-Fe 83
IV.1.1. Echantillons modèles synthétisés à partir de poudre 84
IV.1.1.1. Caractérisation des couches d'aluminium (région 1) 86
IV.1.1.2. Caractérisation des couches de i-Al-Cu-Fe (région 3) 86
IV.1.1.3. Microstructure de la zone interfaciale (région 2) 87
IV.1.2. Echantillons modèles formés à partir de massifs 92
IV.1.2.1. Echantillon modèle synthétisé à partir du lingot 1 92
IV.1.2.2. Echantillon modèle synthétisé à partir de i-Al-Cu-Fe densifié par SPS 95
IV.1.3. Echantillons modèles : bilan 98
IV.2. Composite Al/i-Al-Cu-Fe partiellement transformé 99
IV.2.1. Microstructures 99
IV.2.2. MEB in-situ : observations et analyses 105

IV.2.2.1. Traitement thermique au MEB in-situ 105
IV.2.2.1.1. Etape de chauffage 105
IV.2.2.1.2. Refroidissement 108
IV.2.2.2. Analyses post-mortem 109
IV.3. Discussion 113
IV.4. Conclusion 119
V. Propriétés mécaniques multi-échelles et microstructures associées 121
V.1. Propriétés mécaniques macroscopiques – essais de compression 121
V.1.1. Essais de compression 121
V.1.1.1. Courbes contrainte-déformation en température 121
V.1.1.2. Evolution de la contrainte d'écoulement $\sigma_{0,2\%}$ en fonction de la température 124
V.1.2. Microstructures 125
V.1.3. Traitement thermique in-situ 130
V.1.4. Discussion 135
V.1. Propriétés mécaniques à l'échelle submicrométrique – nanoindentation 141
V.1.1. Courbes force-déplacement 141
V.1.2. Corrélation dureté et composition chimique 143
V.1.3. Analyses des sauts de force 146
V.1.4. Discussion 149
V.1.5. Conclusion 154
Conclusion générale 155
Annexe 1 : Propriétés physico-chimiques de l'aluminium et des phases i-Al-Cu-Fe et ω-Al-Cu-Fe 159
Annexe 2 : Diagramme de phase du système binaire Al-Cu 160
Références 161

Introduction générale

Selon le type d'application visée, il s'avère nécessaire de combiner des propriétés qui ne peuvent pas être obtenues en utilisant une seule classe de matériaux. Les matériaux composites permettent de répondre à ce besoin, par la combinaison d'au moins deux constituants non-miscibles, dont chacun apporte une ou des propriétés souhaitées pour le matériau final. De manière plus spécifique, pour les applications structurales, les propriétés visées sont un module d'Young, une contrainte d'écoulement et une résistance à l'usure élevés.

Les composites à matrice métallique combinent les propriétés d'une matrice (par exemple Mg, Cu ou Al) légère et ductile, et de particules de renfort (des céramiques en général) dures. L'inconvénient est la fragilité de ce type de composite à cause des phases de renforts dures. En raison des propriétés mécaniques et tribologiques de l'alliage intermétallique i-Al-Cu-Fe de structure icosaédrique (dureté, module élastique et contrainte d'écoulement élevés), les particules i-Al-Cu-Fe apparaissent comme de bons candidats pour le renforcement d'une matrice métallique. Contrairement aux céramiques, l'élaboration de l'alliage i-Al-Cu-Fe par coulée conventionnelle facilite sa production. De plus, les interfaces métal/métal dans ce type de composite devraient réduire les problèmes de décohésion entre la matrice et le renfort, et ainsi améliorer ses propriétés mécaniques.

De nombreuses études ont été menées sur l'élaboration, par métallurgie des poudres, de composites Al/Al-Cu-Fe ainsi que sur leurs propriétés mécaniques. Tsai et al. [1] ont été les premiers à synthétiser des composites Al/Al-Cu-Fe. Ils ont montré qu'après frittage réactif à 673 K, la phase i-Al-Cu-Fe est conservée et qu'à T = 873 K, elle est transformée en une phase ω-Al-Cu-Fe, de structure quadratique.

Plusieurs auteurs ont élaboré des composites Al/Al-Cu-Fe par compaction à chaud sous pression (Kaloshkin et al. [2]), par compaction isostatique à froid suivie d'un frittage (Kenzari et al. [3]) ou encore par compression isostatique à chaud CIC (El Kabir et al. [4] et Laplanche et al. [5]). Ils ont réalisé des essais de compression à température ambiante, et plus récemment en température, afin de caractériser les propriétés mécaniques des composites Al/i-Al-Cu-Fe et Al/ω-Al-Cu-Fe. Ils ont montré que les composites Al/ω-Al-Cu-Fe présentent une contrainte d'écoulement supérieure à celle de Al/i-Al-Cu-Fe. De plus, Laplanche et al. [6] ont comparé les propriétés mécaniques des phases i-Al-Cu-Fe et ω-Al-Cu-Fe et montré qu'elles sont similaires (module d'Young, dureté, …). La différence des propriétés mécaniques des composites Al/i-Al-Cu-Fe et Al/ω-Al-Cu-Fe ne provient donc pas des propriétés mécaniques intrinsèques des phases de renfort mais de l'impact de la transformation de phase i-Al-Cu-Fe en ω-Al-Cu-Fe sur les mécanismes de renforcement.

Cette thèse s'inscrit dans un projet financé par l'agence nationale de la recherche (ANR), regroupant deux laboratoires : l'Institut Pprime et le CEMES (Centre d'Elaboration de Matériaux et d'Etudes Structurales, Toulouse). Le projet ANR FutureAlCo (13-BS09-005-01) vise, dans un premier temps, à synthétiser des composites Al/Al-Cu-Fe à microstructure optimisée, par frittage flash (SPS). Cette technique permet d'envisager la production d'échantillons de plus grande dimension que celle obtenue par CIC. Dans un deuxième temps, l'objectif est d'étudier les propriétés mécaniques des composites Al/ω-Al-Cu-Fe, de l'échelle macroscopique à submicrométrique (essais en compression, nanoindentation), en relation avec leur microstructure.

Ce manuscrit s'articule en cinq parties. Tout d'abord, le chapitre I résume les connaissances actuelles sur l'élaboration et les propriétés mécaniques de la phase ω-Al-Cu-Fe comparativement à la phase i-Al-Cu-Fe. De façon non-exhaustive, les méthodes d'élaboration de composites à matrice métallique ainsi que les mécanismes de renforcement sont présentés. La dernière partie de ce chapitre est consacrée à une revue sur l'élaboration et aux propriétés mécaniques des composites Al/ωAl-Cu-Fe.
Le chapitre II porte sur les différentes techniques expérimentales d'élaboration, de caractérisations microstructurale et mécanique utilisées durant cette étude.
L'élaboration des échantillons a fait l'objet d'un chapitre à part entière. Dans un premier temps, le chapitre III traite de la détermination des paramètres expérimentaux permettant l'obtention d'un composite Al/ω-Al-Cu-Fe dense par SPS. Les paramètres « procédés » tels que la température, la pression et le temps de maintien ont été définis afin d'obtenir une transformation de phase i-Al-Cu-Fe vers ω-Al-Cu-Fe totale, par frittage flash SPS. Ensuite, les paramètres « poudres » ont été ajustés afin d'optimiser la densité et la distribution du renfort pour les composites Al/ω-Al-Cu-Fe. Enfin, ce chapitre présente les méthodes d'élaboration d'échantillons modèles à interface plane.
Le chapitre IV porte sur l'étude de la transformation de phase i-Al-Cu-Fe vers ω-Al-Cu-Fe en SPS. C'est la première étude qui est réalisée en ce sens. Elle est basée sur la comparaison de la microstructure des échantillons modèles à interface plane avec celle de composites Al/ω-Al-Cu-Fe partiellement transformés.
Finalement, le chapitre V est consacré à l'étude des propriétés mécaniques à différentes échelles (essais de compression en température et essais de nanoindentation à l'ambiante) des composites Al/ω-Al-Cu-Fe. Les propriétés mécaniques des composites SPS sont comparées à celles obtenues pour les composites CIC.
Les éléments essentiels de ce travail de recherche sont synthétisés dans la conclusion, et un certain nombre de perspectives est proposé.

I. Etude bibliographique

I.1. Phase ω

I.1.1. Structure

Faudot [7] a établi le diagramme d'équilibre de phases du système Al-Cu-Fe avec une concentration atomique de Cu/Fe = 2 (Cf. Figure I-1). D'après ces travaux, la formation de la phase ω-Al-Cu-Fe résulte d'une réaction péritectique à 750°C, telle que L + λ-$Al_{13}Fe_4$ → ω-$Al_{68\text{-}72}Cu_{19\text{-}21}Fe_{9\text{-}11}$.

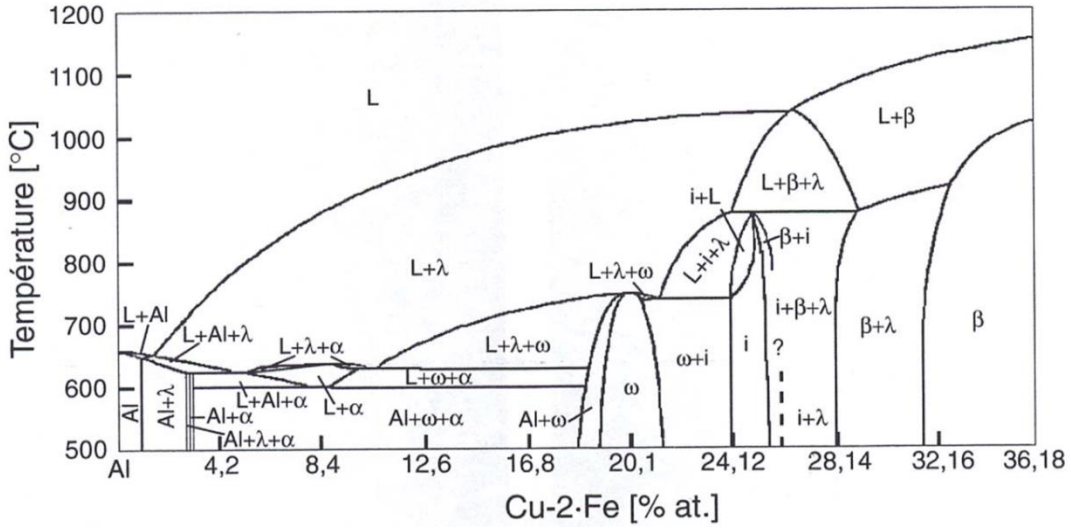


Figure I-1 : Diagramme d'équilibre de phases du système Al-Cu-Fe correspondant à une concentration atomique de Cu/Fe = 2 [7].

La structure cristalline de ω-Al_7Cu_2Fe a été déterminée par Westgren et publiée par Phragmen en 1950 [8]. La phase ω-Al_7Cu_2Fe possède une structure cristalline quadratique dont la maille élémentaire fait partie du groupe d'espace P4/mnc. La maille est constituée de quatre unités de Al_7Cu_2Fe, et donc, de 40 atomes par maille. Le schéma d'une demi-maille est présenté Figure I-2.
Bown et Brown [9] ont déterminé les paramètres de maille par diffraction des rayons X à partir d'un échantillon $Al_{6,7}Cu_{1,9}Fe_{1,4}$. Leurs résultats sont en accord avec ceux présentés par Phragmen et al. [8] :

- a = 0,6336 ± 0,0001 nm
- c = 1,4870 ± 0,0002 nm

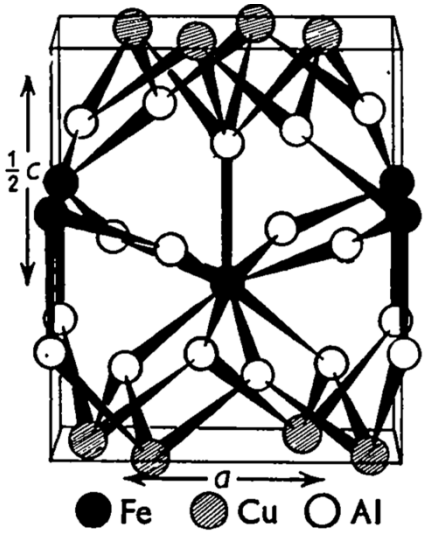


Figure I-2 : Schéma d'une demi-maille élémentaire de ω-Al_7Cu_2Fe [9].

La masse volumique calculée de la phase ω-Al_7Cu_2Fe vaut ρ_{cal} = 4,14 g.cm^{-3}.

I.1.2. Synthèse de la phase ω-Al-Cu-Fe

La formation de la phase ω-Al-Cu-Fe n'a été que très peu étudiée. Celle-ci peut être observée comme précurseur de la phase i-Al-Cu-Fe ou comme phase finale.

I.1.2.1. La phase ω-Al-Cu-Fe précurseur de i-Al-Cu-Fe

La première partie des études a porté sur la formation de la phase i-Al-Cu-Fe par croissance de films minces ou par métallurgie des poudres.

I.1.2.1.1. Films minces

Grenet et al. [10] ont effectué un dépôt séquentiel de Al/Cu/Fe/Cu/Al (Al = 2100 Å, Cu = 600 Å et Fe = 300 Å) sur un substrat de saphir, sous vide et à température ambiante, par dépôt physique en phase vapeur (évaporation). Un traitement thermique, sous vide, est effectué de $T_{ambiante}$ à 1073 K. Des essais de diffraction in-situ menés au cours du traitement thermique ont permis d'identifier les différentes séquences de formation des phases (Cf. Figure I-3). Les premières phases intermédiaires formées sont des phases du système binaire Al-Cu (Cf. Annexe 2) : $AlCu_3$, θ-Al_2Cu puis AlCu. La diffusion de Fe étant très lente par rapport à Cu et à Al, elle n'intervient qu'après la formation des phases binaires Al-Cu, à 623 K et conduit à la formation des phases ternaires ω-Al-Cu-Fe, β-$Al_{50}Cu_{50-x}Fe_x$ et i-Al-Cu-Fe.

Pour des températures supérieures à 873 K, seuls les pics de la phase i-Al-Cu-Fe sont détectés.

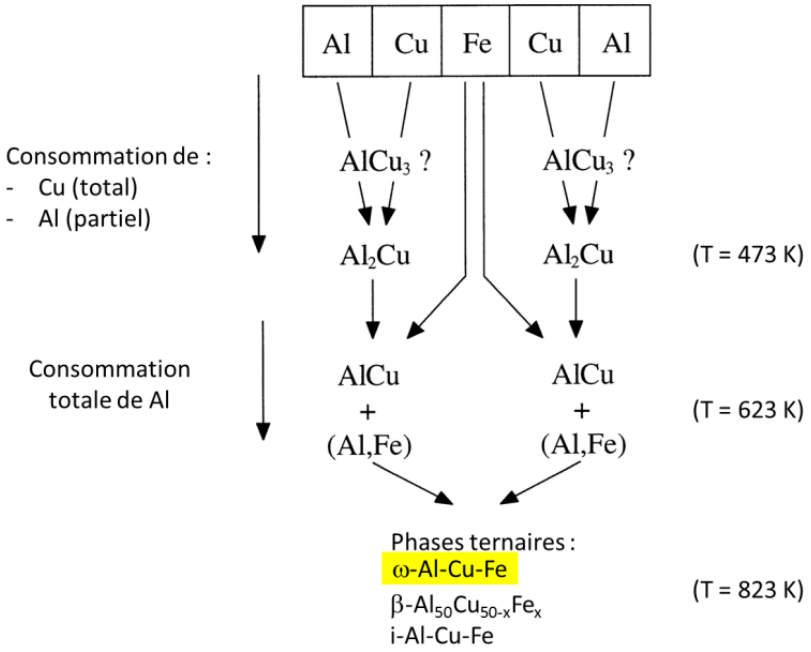


Figure I-3 : Séquence de formation des phases détectées par DRX in-situ lors du traitement thermique de films minces Al/Cu/Fe/Cu/Al, d'après Grenet et al. [10].

Haidara et al. **[11]** ont étudié la formation de la phase i-Al-Cu-Fe dans un système de films minces comportant deux séquences d'empilement (Al/Cu/Fe et Al/Fe/Cu), à partir d'analyses DRX in-situ entre 423 K à 893 K. Les films minces sont élaborés par pulvérisation. Le fer, le cuivre et l'aluminium sont déposés à température ambiante sur un wafer de silicium oxydé (épaisseur du film mince : 200 nm). La séquence de formation des phases au sein du film mince est présentée Figure I-4. L'ordre d'apparition des phases est le même quel que soit le type d'empilement, seules les températures de formation des phases diffèrent légèrement. Les phases θ-Al_2Cu et Al_4Cu_9 se forment à T < 623 K. A T = 623 K, il y a formation de AlCu et le fer commence à diffuser pour former Al_6Fe. Dès 653 K, Haidara et al. ont observé que la phase ω-Al-Cu-Fe se forme à partir de la séquence Al_6Fe, AlCu et Al_xCu. Les films minces finaux sont composés des phases i-$Al_{62,5}Cu_{25}Fe_{12,5}$ et de β-$Al_{50}Cu_{50-x}Fe_x$. Les résultats obtenus par Haidara et al. **[11]** sont cohérents avec ceux de Grenet et al. **[10]**. La présence de nouvelles phases (Al_6Fe, Al_4Cu_9 et Al_xCu), par rapport à l'étude effectuée par **[10]**, peut être expliquée par les différences de conditions expérimentales. D'après Haidara et al., Al_xCu et Al_6Fe sont des phases métastables et Al_4Cu_9 n'existe que dans un domaine de composition réduit.

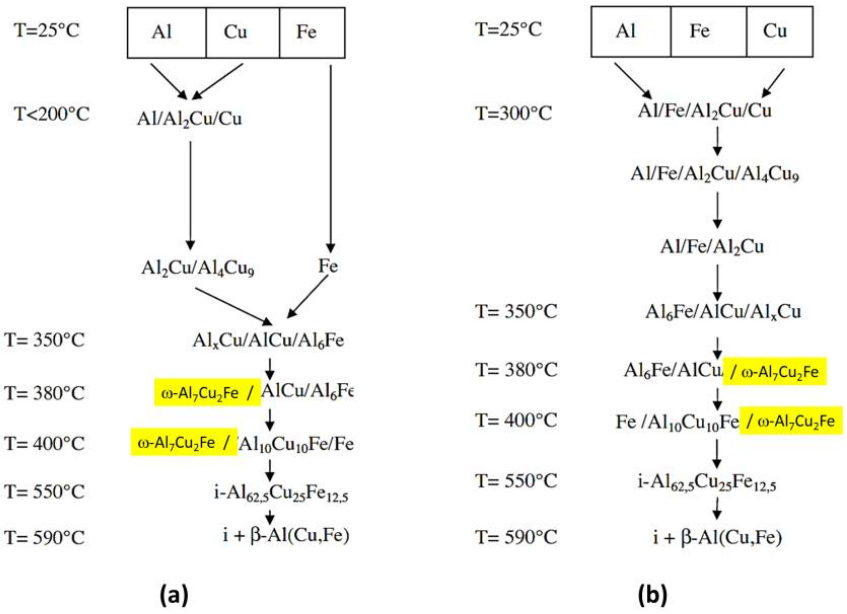


Figure I-4 : Schéma de la séquence de formation de phases lors d'un traitement thermique dans un système de films minces comportant deux séquences d'empilement différentes (a) Al/Cu/Fe et (b) Al/Fe/Cu, d'après Haidara et al. [11].

I.1.2.1.2. Métallurgie des poudres

Dans les deux études présentées ci-dessous, Barua et al. [12] et Schurack et al. [13] ont pour objectif la formation de la phase i-Al-Cu-Fe par broyage puis traitement thermique. Pour cela, Barua et al. [12] et Schurack et al. [13] ont utilisé deux mélanges de poudres de compositions nominales correspondant à la phase i-Al-Cu-Fe (0,63 Al + 0,25 Cu + 0,12 Fe) et à la phase ω-Al-Cu-Fe (0,7 Al + 0,2 Cu + 0,1 Fe).

Après 30h de broyage d'un mélange de poudres de composition nominale 0,63 Al + 0,25 Cu + 0,12 Fe suivi d'un traitement thermique de 4h à 873 K, Barua et al. [12] n'ont pas obtenu la phase i-Al-Cu-Fe. Cependant, à partir d'un mélange de poudres de composition nominale 0,7 Al + 0,2 Cu + 0,1 Fe et pour des durées de broyage comprises entre 10 et 30 h, suivies d'un traitement thermique de 4h à 873 K, il y a formation des phases i-Al-Cu-Fe et de ω-Al-Cu-Fe.

Contrairement à Barua et al. [12], Schurack et al. [13] ont réussi à synthétiser la phase i-Al-Cu-Fe à partir d'un mélange de composition nominale 0,63 Al + 0,25 Cu + 0,12 Fe, en réalisant un broyage de 100 h suivi d'un traitement thermique à 1023 K pendant 3h. De plus, en partant d'un mélange de composition nominale 0,7 Al + 0,2 Cu + 0,1 Fe, Schurack et al. [13] ont montré, qu'après broyage de 100 h, le mélange est composé des phases i-Al-Cu-Fe et θ-Al_2Cu. Après un traitement thermique à 673 K, ils observent la formation de la phase ω-Al-Cu-Fe.

I.1.2.2. Formation de la phase ω-Al-Cu-Fe

Cette deuxième partie concerne les études dont l'objectif est la formation de ω-Al-Cu-Fe.

I.1.2.2.1. Coulée conventionnelle

Rosas et al. [14] ont élaboré, par coulée conventionnelle, des lingots de composition nominale 0,7 Al + 0,2 Cu + 0,1 Fe. Après solidification rapide, les matériaux subissent un traitement thermique. La Figure I-5a et la Figure I-5b montrent des micrographies MEB du lingot après un traitement thermique à 873 K pendant 25 h et 72h, respectivement. Selon les analyses DRX et EDX, le lingot est constitué des phases ω-Al-Cu-Fe, λ-$Al_{13}Fe_4$ et θ-Al_2Cu. Cependant, les auteurs observent une décroissance de la quantité de phases λ-$Al_{13}Fe_4$ et θ-Al_2Cu avec la durée du chauffage. Après traitement thermique à 973 K pendant 150 h, Rosas et al. [14] ont obtenu un lingot uniquement composé de la phase ω-Al-Cu-Fe (Cf. Figure I-5c).

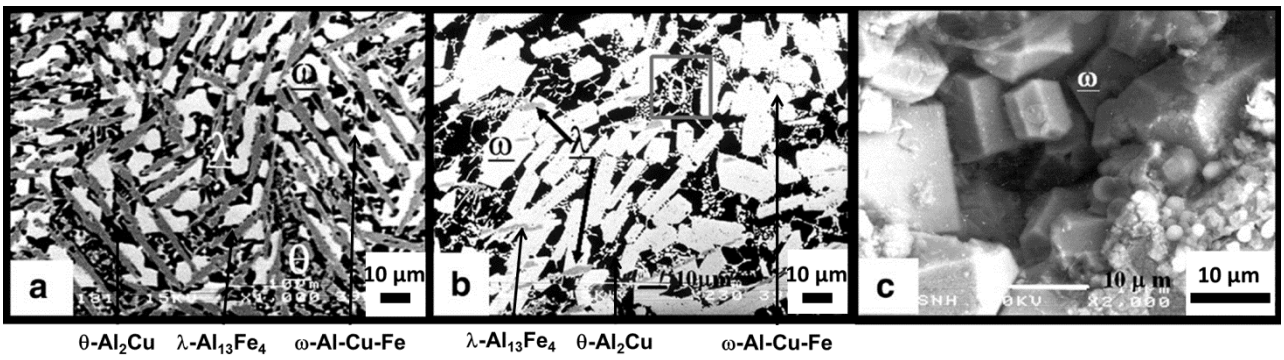


Figure I-5 : Micrographies MEB d'un alliage de composition nominale 0,7Al+0,2Cu+0,1Fe élaboré par coulée conventionnelle et ayant subi un traitement thermique à (a) 873 K pendant 25h, (b) 873 K pendant 72 h et (c) 973 K pendant 150 h, d'après Rosas et al. [14].

Suarez et al. [15] ont pour objectif la synthèse d'une mousse métallique Al-Cu-Fe. Les éléments Al, Cu, et Fe (99,9 %) sont placés dans un creuset en alumine et introduits dans un four à induction, sous argon. L'alliage fondu est refroidi lentement dans le four avec une vitesse de 0,05 $K.s^{-1}$. Le lingot brut de coulée est composé de i-Al-Cu-Fe, ω-Al-Cu-Fe, λ-$Al_{13}Fe_4$, β-$Al_{50}Cu_{50-x}Fe_x$, θ-Al_2Cu et AlCu.
La Figure I-6 montre la microstructure de l'échantillon après 10 minutes de traitement thermique à 1023 K. Les flèches mettent en évidence la formation de la phase ω-Al-Cu-Fe. Elle se situe autour des porosités et résulte de l'interaction entre les phases liquides et solides.

Les échantillons obtenus sont très poreux et présentent une microstructure finale complexe. La présence de liquide, provenant de la fusion des phases riches en cuivre telles que AlCu et θ-Al_2Cu, favorise la formation de la phase ω-Al-Cu-Fe ainsi que la formation de 60 % de porosités.

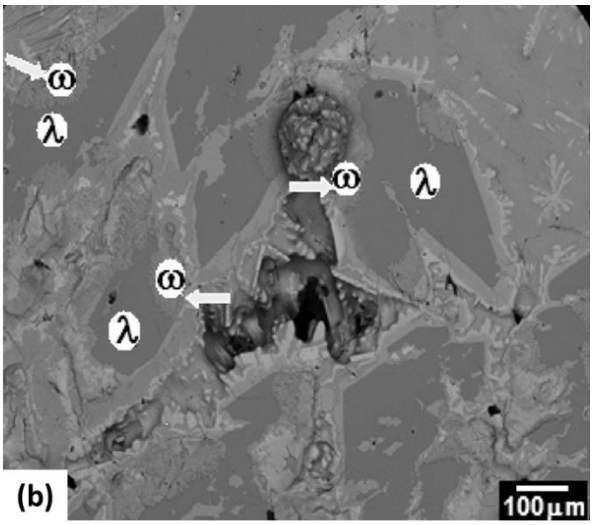


Figure I-6 : Micrographie MEB de l'échantillon après un traitement thermique à 1 023 K pendant 10 min, d'après Suarez et al. [15].

I.1.2.2.1. Métallurgie des poudres : frittage sous pression

Pour obtenir ω-Al-Cu-Fe dense, des techniques de frittage sous pression sont utilisées. Laplanche et al. ont synthétisé la phase ω-Al-Cu-Fe à partir de deux méthodes d'élaboration : la compression isostatique à chaud (CIC) [16] et le frittage flash (SPS) [17]. Dans les deux cas, de la poudre d'aluminium commerciale (< 80 µm, 99%) et des particules i-$Al_{63,5}Cu_{24}Fe_{12,5}$ (< 80 µm) ont été utilisées.

En considérant la réaction Al + i-Al-Cu-Fe ➔ ω-Al-Cu-Fe, Laplanche [18] a montré qu'en fonction du rapport Cu/Fe de la phase i-Al-Cu-Fe et de la fraction de Al, la composition de la phase ω-Al-Cu-Fe obtenue ne correspond pas forcément à la composition nominale. L'Equation I.1 est une des équations bilan utilisées par Laplanche pour synthétiser la phase ω-Al-Cu-Fe :

$$4Al_{6,35}Cu_{2,40}Fe_{1,25} + Al \rightarrow 5Al_{7,08}Cu_{1,92}Fe_{1,00}$$ **Équation I-1**

Concernant l'élaboration par CIC [16], Laplanche et al. ont mélangé 85,5 % massique de i-Al-Cu-Fe et 14,5 % massique d'aluminium. L'aluminium est introduit en excès afin de transformer toutes les particules i-Al-Cu-Fe en ω-Al-Cu-Fe. Le mélange, préalablement comprimé uni-axialement à froid sous 800 MPa, est introduit dans un creuset en acier inoxydable sous vide puis fritté à 873 K pendant

770 min sous 180 MPa d'argon. Les analyses DRX indiquent que la structure de l'échantillon correspond à la structure quadratique ω-Al_7Cu_2Fe. D'après les observations MEB et les analyses EDX, l'échantillon final est composé de ω-$Al_{7,07}Cu_{1,94}Fe_{0,99}$. Des traces de λ-$Al_{13}Fe_4$ et d'aluminium résiduelles (< 1%) sont également détectées.

La synthèse d'échantillons ω-Al-Cu-Fe par SPS [17] a été effectuée à 873K / 80 MPa / 15 min. Dans ce cas, un mélange constitué de 88% massique de particules i-$Al_{6,35}Cu_{2,4}Fe_{1,25}$ et de 12% massique d'aluminium est utilisé. Les analyses DRX indiquent une structure quadratique correspondant à ω-Al_7Cu_2Fe. Les analyses EDX de la ω-Al-Cu-Fe (ω-$Al_{6,9}Cu_{2,01}Fe_{1,06}$) confirment les résultats obtenus en DRX. Des traces de λ-$Al_{13}Fe_4$ et i-$Al_{6,4}Cu_{2,34}Fe_{1,26}$ résiduels (fraction surfacique = 4,3 ± 0,5 %) sont observées lorsque l'aluminium n'est pas introduit en excès.

I.1.3. Comparaison des propriétés mécaniques des phases ω-Al-Cu-Fe et i-Al-Cu-Fe

L'obtention d'échantillons denses a permis d'évaluer les propriétés mécaniques de la phase ω-Al-Cu-Fe et de les comparer à celles de la phase i-Al-Cu-Fe. Laplanche et al. [6] ont comparé les propriétés mécaniques (module d'Young, dureté, contrainte d'écoulement) de la phase ω-Al-Cu-Fe synthétisée par SPS et CIC [8,9,11] à celles de la phase i-Al-Cu-Fe élaborée par coulée conventionnelle et par métallurgie des poudres [20–23].

- Module d'Young et dureté

Plusieurs études portant sur la mesure du module d'Young E_ω de la phase ω-Al-Cu-Fe ont été menées. Tang et al. [24] ont déterminé E_ω à température ambiante par ultrasons, à partir d'un échantillon dense synthétisé par CIC. Laplanche et al. [17] ont mesuré E_ω par la technique de fréquence résonnante à une fréquence d'environ 15,5 kHz. Ces analyses ont été effectuées de $T_{ambiante}$ à 840 K ; les valeurs sont présentées Figure I-7. Cette figure met en évidence l'évolution du module d'Young E pour les phases ω-Al-Cu-Fe et i-Al-Cu-Fe en fonction de la température. Le comportement des deux matériaux est typique d'un métal. Le fait que des valeurs similaires de E, à température ambiante, soient mesurées pour les phases i-Al-Cu-Fe et ω-Al-Cu-Fe relève d'une coïncidence. Une dispersion des valeurs de E_ω à température ambiante est également observée.

A $T \leq 400$ K, le comportement de E est quasiment similaire pour les deux échantillons. Quand la température varie entre 400 et 1 000 K, un changement de pente est observé et les valeurs de E_ω

deviennent supérieures à celles de E_i. Cependant, les études menées par Tang et al. [24] indiquent que le module d'Young de i-Al-Cu-Fe est plus élevé que celui mesuré pour ω-Al-Cu-Fe. Or, d'après Laplanche [18], les échantillons i-Al-Cu-Fe élaborés par Tanaka et al. [21] contiennent un taux de porosités de l'ordre de 5 %, bien supérieur à celui de Tang et al. [24]. Il est alors possible que les mesures de fréquence résonnante réalisées par Tanaka et al. [21] sous-estiment les valeurs de E_i.
Le changement de pente brutal de la courbe des valeurs de E_ω, vers 900 K, est associé à la transformation péritectique (T = 1020 K) ω-Al-Cu-Fe ➔ L + λ-$Al_{13}Fe_4$.

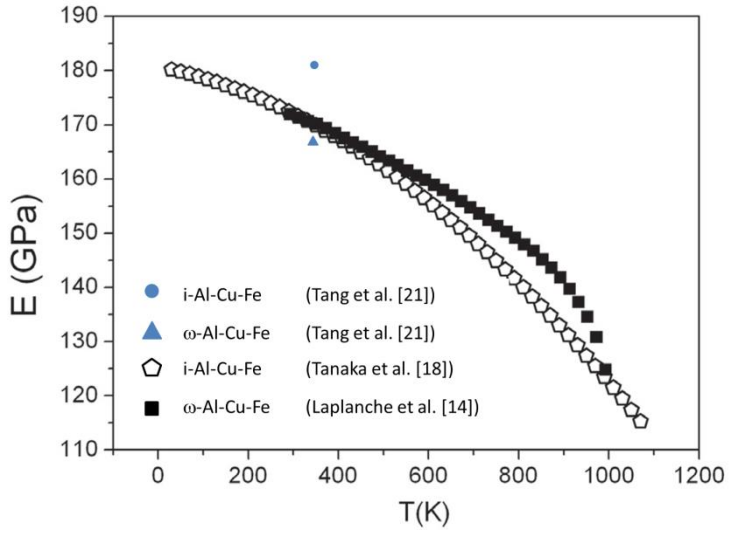


Figure I-7 : Variation du module d'Young en fonction de la température pour les phases ω-$Al_{69,3}Cu_{20,1}Fe_{10,6}$ et i-$Al_{65}Cu_{20}Fe_{15}$, déterminée par Laplanche et al. [17] et Tanaka et al. [21], par méthode de résonnance, depuis [6]. Les valeurs de E_ω et de E_i déterminée à température ambiante par Tang et al. [24] sont également présentées.

- Dureté

Laplanche et al. [16] ont effectué des tests de microindentation Vickers à chaud entre 293 K et 898 K, sur des échantillons ω-Al-Cu-Fe synthétisés par CIC. A température ambiante, ils ont mesuré la dureté de la phase ω-Al-Cu-Fe : $H_{0\omega}$ = 7 ± 1 GPa. La dureté Vickers de la phase i-Al-Cu-Fe, élaborée par coulée conventionnelle, a été mesurée par Giacometti et al. [20] par microindentation Vickers de 293 à 873 K (voir Figure I-8). La dureté de la phase i-Al-Cu-Fe, à température ambiante, est estimée à H_{0i} = 8 ± 1 GPa. La Figure I-8 montre la variation de la dureté H/H_0 (avec H_0 la dureté à température ambiante) en fonction du rapport de température $T_n = T/ T_p$ (T_p la température de transformation péritectique, avec T_p = 1 020 K pour ω-Al-Cu-Fe et T_p = 1 120 K pour i-Al-Cu-Fe).

Les phases ω-Al-Cu-Fe et i-Al-Cu-Fe présentent des comportements similaires, avec deux régimes de températures distincts. En effet, quand T_n est comprise entre 0,3 et 0,6, H/H_0 est constant alors que

pour $T_n > 0,6$, H/H_0 diminue quand la température augmente. De plus, pour $0,3 < T_n < 0,6$, la dureté normalisée de la phase ω-Al-Cu-Fe est identique à celle de i-Al-Cu-Fe. Alors que, quand $T_n > 0,6$, la dureté normalisée de la phase ω-Al-Cu-Fe devient supérieure à celle de i-Al-Cu-Fe.

A $T_n = 0,6$, les deux courbes présentent une rupture de pente qui est associée à la température de transition fragile/ductile.

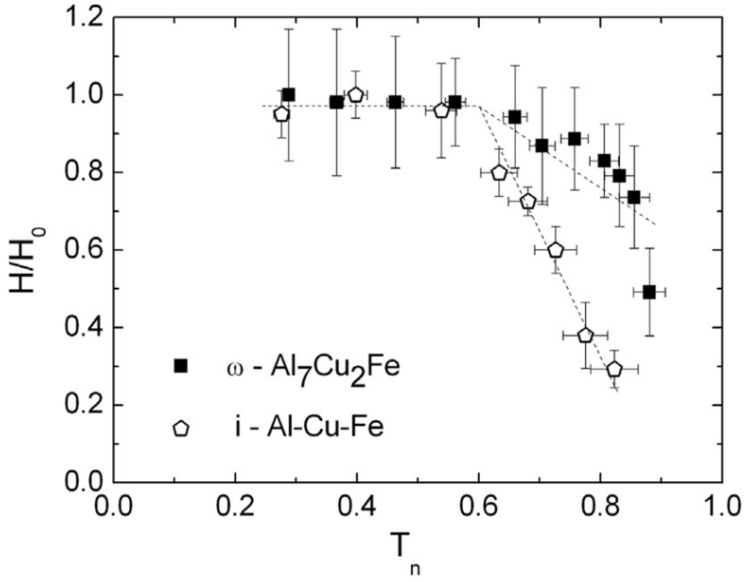


Figure I-8 : Duretés normalisées H/H_0 en fonction de $T_n=T/T_p$ pour les phases ω-Al-Cu-Fe et i-Al-Cu-Fe, d'après Laplanche et al. [6].

- Contraintes d'écoulement

Laplanche et al. ont également réalisé des essais de compression sur la phase ω-Al-Cu-Fe à une vitesse de déformation de 2.10^{-4} s^{-1} et obtenu les courbes contrainte-déformation à différentes températures [6,19] (Cf. Figure I-9). Ces courbes ont été comparées à celles obtenues par Giacometti et al. [22], pour la phase i-Al-Cu-Fe, à différentes températures et à une vitesse de déformation de 6.10^{-5} s^{-1}. Les courbes présentent des similarités.

Dans les deux cas, la transition fragile-ductile a lieu pour $T \sim 0,7\ T_p$. Quand la température est inférieure à la température de transition fragile-ductile, les phases i-Al-Cu-Fe et ω-Al-Cu-Fe ne se déforment pas plastiquement. Quand la température est supérieure à la température de transition fragile-ductile, les deux phases présentent des comportements similaires : un stade de déformation élastique suivie d'un premier stade de déformation plastique jusqu'à σ_{UYS} (limite d'élasticité supérieure) puis d'un durcissement nul ou d'un adoucissement. Dans le cas de la phase ω-Al-Cu-Fe, le crochet de compression est plus large que pour la phase i-Al-Cu-Fe. Selon Laplanche et al. [6], cet effet proviendrait de la taille de grains plus petite pour ω-Al-Cu-Fe ($d \sim 7$ µm) que pour i-Al-Cu-Fe ($d \sim 20$ µm).

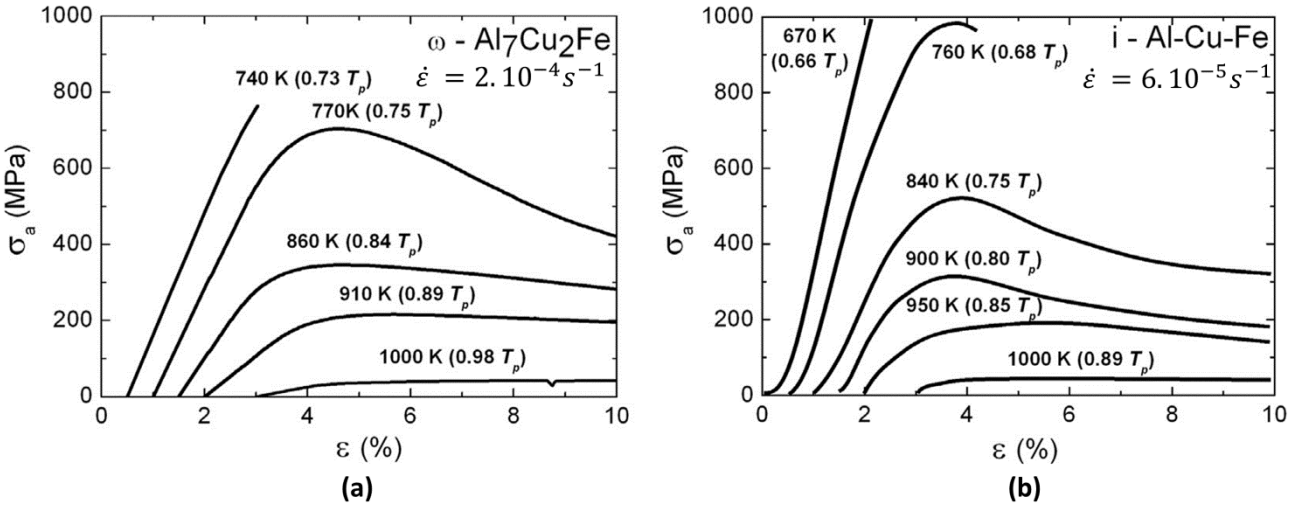


Figure I-9 : Courbes contrainte-déformation [6] obtenues pour les phases (a) ω-Al-Cu-Fe [19] et (b) i-Al-Cu-Fe [22] au cours des essais de compression, à différentes températures.

L'évolution de σ_{UYS}/E en fonction de la température T_n (Cf. Figure I-10), pour les phases ω-Al-Cu-Fe et i-Al-Cu-Fe, a été étudiée par Laplanche [18] et Giacometti [25] respectivement. Laplanche et al. [6] ont interpolé les résultats obtenus par Giacometti à 6.10^{-5} s^{-1}, pour une vitesse de déformation de 2.10^{-4} s^{-1}. Les valeurs de σ_{UYS}/E sont similaires, les points correspondant aux deux phases sont sur une courbe unique. Lorsque la température augmente, pour les deux échantillons, la contrainte d'écoulement à la limite d'élasticité supérieure σ_{UYS} diminue. Ce comportement suggère que les deux phases se déforment plastiquement selon les mêmes mécanismes de déformation thermiquement activés. La déformation plastique est, dans les deux cas, contrôlée par le mouvement des dislocations. Or, les deux phases ont un ordre à longue distance différent : la phase i-Al-Cu-Fe est quasi-périodique tandis que la phase ω-Al-Cu-Fe est périodique. Les auteurs suggèrent donc que le mouvement des dislocations est contrôlé par l'ordre local et non par l'ordre à longue distance.

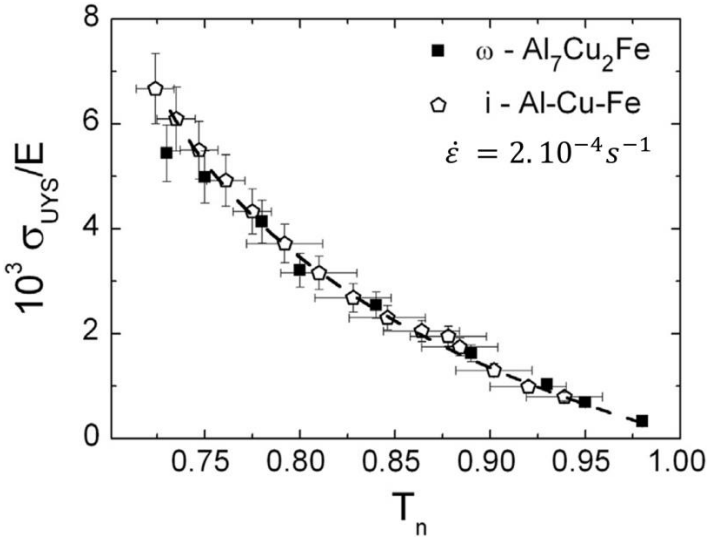


Figure I-10 : Variation de σ_{UYS}/E en fonction de T_n pour les phases ω-Al-Cu-Fe [18] et i-Al-Cu-Fe [25].

En résumé, les comparaisons de la dureté et des courbes de contraintes d'écoulement en fonction de la température montrent que les deux phases présentent des propriétés mécaniques similaires. Un récapitulatif des principales propriétés physico-chimiques de ces deux phases est présenté en Annexe 1.

I.2. Composites à matrice métallique

Les composites correspondent à l'association d'au minimum deux composants non miscibles : une matrice et un renfort dispersé dans la matrice. L'objectif est de combiner les propriétés des deux composants. Dans le cadre de cette étude, seuls les composites à matrice métallique seront abordés.
Les matrices métalliques les plus communément utilisées sont le cuivre, le magnésium, le titane ou encore l'aluminium (utilisé dans cette étude). Dans la plupart des cas, ce type de matrice présente une faible densité, une conduction thermique élevée, une bonne résistance à l'oxydation et de la ductilité. Le renfort, quant à lui, peut par exemple être choisi pour ses propriétés mécaniques. Le renfort utilisé est le plus souvent un oxyde, un carbure, un nitrure, du carbone ou un encore un composé intermétallique (comme dans cette étude). Le renfort peut être constitué de [26] :

- Fines particules dispersées, présentant une taille comprise entre 0,01 et 0,1 µm et une fraction volumique comprise entre 1 et 15 %.
- Fibres (Whisker ou petites fibres, des fibres continues ou des mono-filaments) présentant une longueur comprise entre 0,1 et 250 µm et une fraction volumique variant de quelques pourcents à 70 %.
- Particules dispersées présentant un diamètre supérieur à 1 µm et une fraction volumique comprise entre 5 et 40 %.

Les domaines d'application des composites à matrice métallique sont variés, en raison de l'amélioration des propriétés (mécaniques, thermiques, ...) par rapport à d'autres matériaux conventionnels et de l'adaptabilité de leurs propriétés :

- L'aérospatiale (satellites, …)
- L'aviation civile ou militaire (pales d'hélicoptère, élément du fuselage, …)
- Les composants automobiles et de transport (arbres de transmission, disques de frein, …)
- Les composants électroniques (microprocesseur, optoélectronique, …), etc.

I.2.1. Procédés d'élaboration et microstructures associées

Les procédés d'élaboration doivent permettre d'obtenir une distribution homogène de renforts au sein de la matrice. Il est possible de distinguer plusieurs méthodes d'élaboration [27–31] : les procédés de dépôt, les procédés à l'état liquide ou solide conduisant à l'élaboration de matériaux massifs. La microstructure des composites dépend du procédé d'élaboration utilisé. De manière générale, des hétérogénéités microstructurales peuvent être observées dans le cas de composites élaborés par coulée conventionnelle ou par les méthodes de dépôt [27,28] : les composites présentent une distribution de renfort non-homogène dans la matrice et des taux de porosité élevés.

- Les procédés de dépôts

Les procédés de dépôts incluent les dépôts chimiques (Chemical Vapour deposition, CVD, en anglais) et physiques (Physical Vapour Deposition, PVD, en anglais) en phase vapeur, le dépôt électrochimique, etc.

Prenons comme exemple, la technique de dépôt par pulvérisation : les atomes d'une cible sont pulvérisés à l'aide d'un faisceau d'ions, de manière à ce qu'ils se déposent sur un substrat. La cible à pulvériser peut être synthétisée à partir de poudres composites produites par atomisation. La matrice, sous forme d'un jet de métal fondu, est décomposée en gouttes à partir d'un procédé d'atomisation à l'eau ou par gaz inerte. Simultanément, les particules de renfort, injectées dans la chambre de dépôt, sont piégées par les gouttes de matrice fondue. La distribution des particules de renfort dans la matrice est l'un des points « délicats » dans le cas de l'atomisation. Quand l'atomisation de la matrice fondue est immédiatement suivie de l'injection du renfort au sein des gouttelettes, la distribution du renfort au sein de la matrice est homogène (Cf. Figure I-11a). Si le renfort est injecté lorsque les gouttelettes de matrice sont semi-solidifiées, le renfort se situera à la périphérie des particules de matrice (Cf. Figure I-11b).

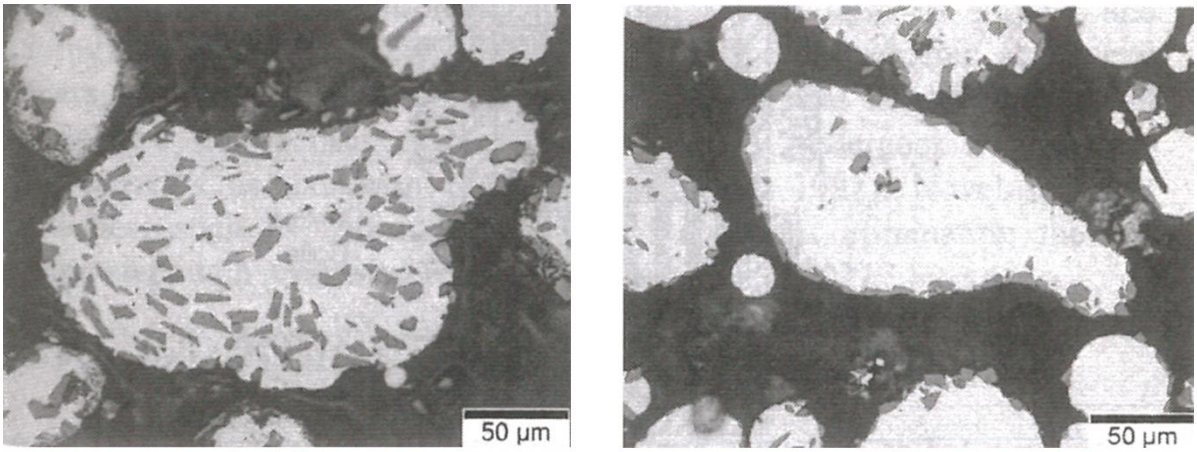


Figure I-11 : Microstructure de particules composites obtenues par dépôt mettant en évidence (a) la distribution homogène du renfort dans la particule de matrice lors de l'injection du renfort au sein de la matrice liquide et (b) le renfort à la périphérie de la particule composite suite à l'injection du renfort au sein de la matrice semi-solidifiée, d'après [28].

- Les procédés à l'état liquide

Les procédés à l'état liquide impliquent que la matrice soit, pour le moins, partiellement fondue. Cela favorise un contact intime entre les particules de renfort et la matrice, à condition que le mouillage soit satisfaisant. Les procédés les plus courants sont les suivants :

- **Le procédé de coulée conventionnelle** : les particules de renfort sont introduites dans la matrice fondue, qui est par la suite coulée dans un moule. Dans les cas de coulée conventionnelle, l'agglomération et la ségrégation des particules de renfort dans le métal fondu et le piégeage de bulles de gaz peuvent être observés. Ces phénomènes sont dus au mouvement des particules qui sont poussées par le front de solidification (les dendrites) du liquide. Dans le cas d'une vitesse de refroidissement plus faible, la taille des dendrites peut être plus grande que celle des particules, ce qui conduit à l'agglomération des particules en plusieurs zones (Cf. Figure I-12a). Pour des vitesses de refroidissement plus élevées, la distribution du renfort est plus homogène (Cf. Figure I-12b).

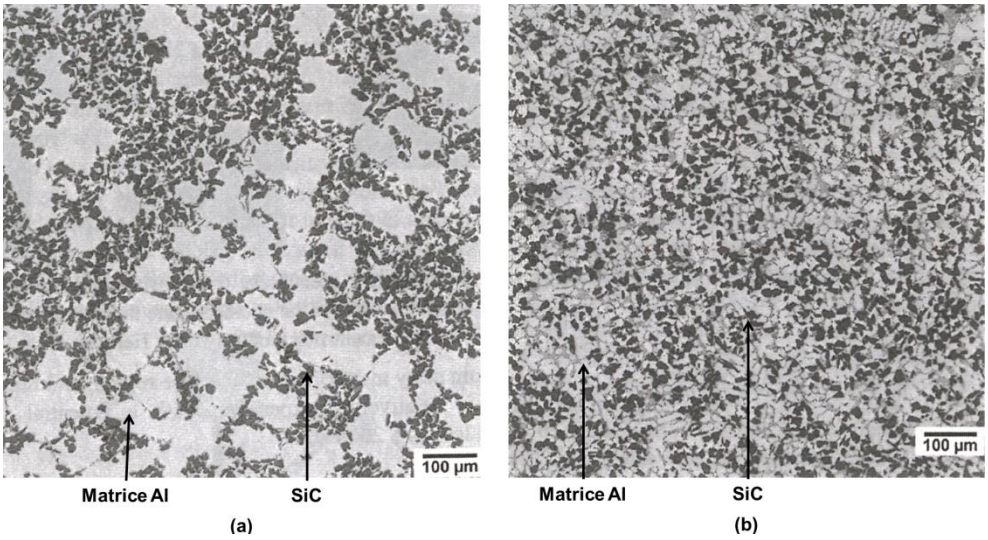


Figure I-12 : Microstructures de composites Al/SiC élaborés par coulée conventionnelle. Résultat (a) d'un refroidissement lent et (b) d'un refroidissement rapide, d'après [28].

- **La technique de « Stir Casting »** combine le brassage mécanique et la coulée conventionnelle. Les particules de renfort sont dispersées et mélangées, par brassage, à la matrice fondu. Le mélange permet de limiter la ségrégation des particules de renfort. Par la suite, le mélange est coulé dans un moule puis solidifié.

- **Le procédé d'infiltration** consiste en l'élaboration d'une préforme de renfort poreuse et en l'infiltration de métal fondu à travers les interstices afin de combler les pores. L'infiltration peut être réalisée en appliquant une pression (gaz, mécanique, …) sur la matrice fondue ou par effet de capillarité. La microstructure des composites dépend principalement des mécanismes de refroidissement et de solidification locale à l'intérieur de la préforme de renfort. La température de la préforme étant plus basse que celle de la matrice fondue, la solidification intervient lorsqu'il y a contact avec le renfort préformé. Le principal inconvénient de cette méthode réside dans la distribution en taille de grains de la matrice qui est contrôlée par la distribution locale de la température et la vitesse de refroidissement. La Figure I-13 présente des micrographies obtenues au microscope électronique à balayage (MEB) de composites à matrice métallique (Al-Mg et Al-Mg-Si) renforcés par des particules Al-Cu-Fe synthétisés par infiltration sous pression de gaz [32].

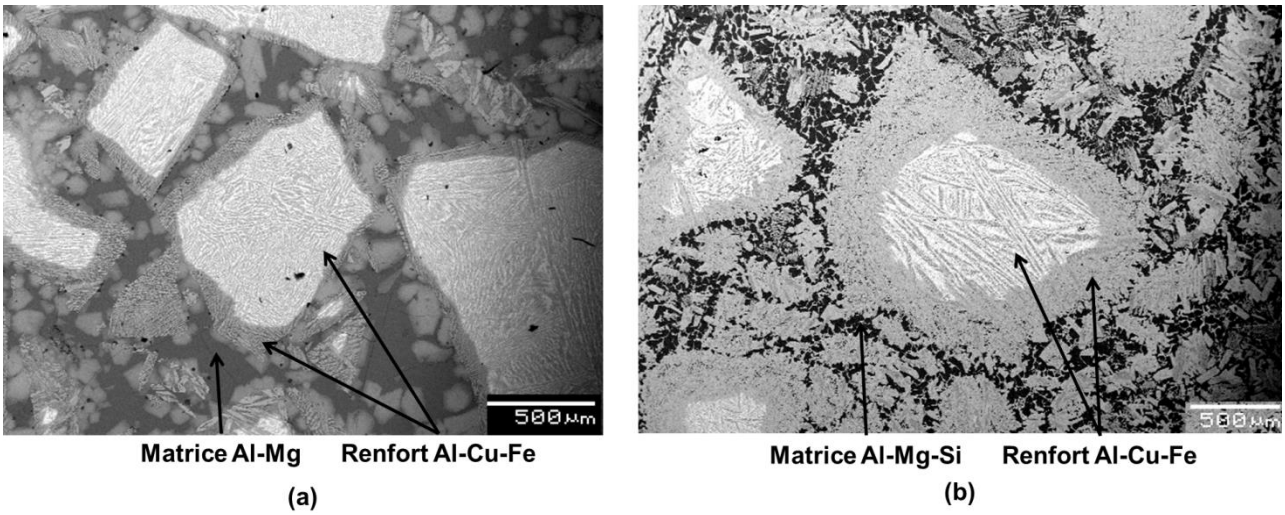


Figure I-13 : Micrographies MEB en électrons rétrodiffusés de composites (a) Al-Mg/Al-Cu-Fe et (b) Al-Mg-Si/Al-Cu-Fe synthétisés par infiltration sous pression de gaz, d'après El Kabir [32].

- Les procédés à l'état solide

Dans le cas des procédés à l'état solide, les réactions chimiques entre renfort et matrice sont limitées par rapport à celles intervenant dans les procédés à l'état liquide. Les procédés à l'état solide ont l'avantage de permettre un meilleur contrôle de la distribution du renfort dans la matrice et de la fraction volumique de renfort. L'approche classique est la métallurgie des poudres. Cette méthode consiste à mélanger des poudres « de matrice » et « de renfort » afin d'assurer une distribution homogène des particules de renfort par l'utilisation d'un mélangeur. Par ailleurs, l'utilisation de particules de renfort plus petites que celles de la matrice entraîne un comblement des interstices laissés par l'empilement des plus grosses particules et favorise ainsi une bonne densification. Par la suite, le mélange est compacté sous pression à température ambiante. Le compact est ensuite consolidé par frittage sous pression. Dans le domaine de la métallurgie des poudres, il est possible de recenser plusieurs méthodes de densification à chaud adaptées à la synthèse des matériaux composites :

- **L'extrusion** permet de densifier des pièces de grande longueur et présentant une section constante. Dans le cas de l'extrusion directe, la préforme est constituée de mélange de poudre et contrainte de traverser une matrice chauffée terminée par un orifice, au travers duquel on la force à s'écouler.

- Dans le cas du **compactage uniaxial à chaud**, le mélange de poudres est déversé dans une matrice de section généralement simple, chauffée par conduction à travers l'interface avec la

matrice et comprimé entre deux pistons sous vide ou sous atmosphère contrôlée pendant quelques heures.

- **La compression isostatique à chaud** est une méthode permettant la consolidation d'un mélange de poudre par l'application simultanée d'une pression isostatique de gaz et de température au moyen d'un four à résistance. Le cycle se compose habituellement d'une ou plusieurs phases de chauffage et mise en pression, d'un palier en température et en pression de quelques heures suivi d'un refroidissement avec une baisse de la pression.

- **Le frittage flash SPS** est similaire au pressage uniaxial à chaud conventionnel car le mélange de poudres est introduit dans une enceinte permettant d'appliquer une pression uniaxiale lors du frittage. La différence majeure réside dans le fait que la source de chaleur n'est pas externe mais qu'un courant électrique appliqué via des électrodes passe à travers l'enceinte de pressage conductrice. Cette technique sera présentée plus en détail au chapitre II.

Dans cette étude, seuls les composites dits « ex-situ » sont décrits. Cependant, il est possible de synthétiser des composites à matrice métallique dits « in-situ ». La formation du renfort implique une réaction chimique entre la matrice et les éléments précurseurs, ce qui résulte en la précipitation d'une phase de renfort de petite taille et thermodynamiquement stable. Différents types de matrice (aluminium, titane, cuivre, nickel et fer) et de renforts (borures, carbures, nitrures, oxydes et différents mélanges) peuvent être utilisés. Un exemple de composite in-situ Mg/γ-$Mg_{17}Al_{12}$, formé par solidification en creuset froid, est présenté Figure I-14 [33]. Ces composites sont constitués d'un mélange eutectique (Mg) + γ-$Mg_{17}Al_{12}$ et de dendrites Mg.

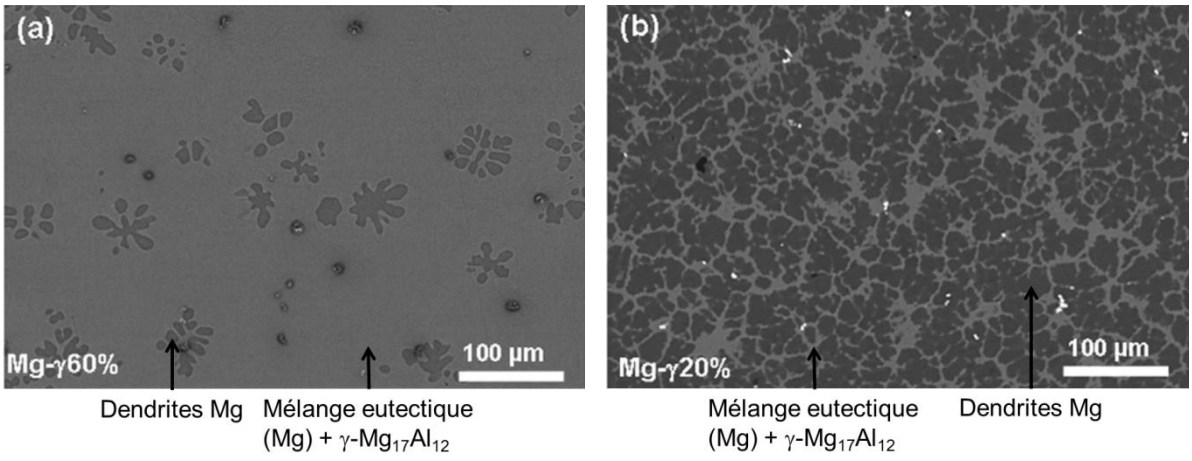


Figure I-14 : Micrographie MEB de composites Mg/γ-$Mg_{17}Al_{12}$ présentant une fraction volumique de Mg-γ (a) 60 % et (b) 20 % [33].

I.2.2. Mécanismes de renforcement d'une matrice métallique

Dans le cadre de cette partie, deux livres sont principalement utilisés : « An introduction to metal matrix composites » [27] et « Metal matrix composites » [28].

La dispersion de particules de renfort au sein d'une matrice métallique ductile permet une augmentation du module d'Young et de la contrainte d'écoulement du composite par rapport à un matériau non-renforcé. Il est possible de distinguer deux types de renforcement : direct et indirect. Lorsque le renforcement résulte du transfert de charge entre la matrice et le renfort, il y a renforcement direct : lorsque le composite est soumis à une application de charge, la matrice transfère la charge vers les particules de renfort à travers les interfaces matrice/renfort. Ce sont les renforts qui supportent une certaine proportion de la charge mécanique qui est appliquée. L' « optimisation » du transfert de charge dépend également de la fraction volumique, de la forme et de l'orientation des particules de renfort.

Dans le cas d'un renforcement indirect, ce qui est pris en compte, c'est la modification de la microstructure de la matrice par l'ajout de renfort lors de l'élaboration du composite. Comme en général, c'est la matrice qui se déforme, cela entraîne une modification de la déformation plastique. Le renforcement indirect peut provenir de plusieurs facteurs : durcissement par les dislocations, par les joints de grains, par une solution solide ou encore par des précipités. De manière simplifiée, tout ce qui entrave le mouvement des dislocations génère du durcissement. Lorsqu'il y a ces deux types de renforcement (direct et indirect) qui interviennent, il est difficile d'évaluer la contribution des deux.

I.2.2.1. Durcissement par les dislocations

La présence de dislocations génère des champs de contrainte interne. De plus, l'ajout des particules de renfort au sein de la matrice génère également un champ de contrainte interne à l'interface matrice/renfort, ce qui peut conduire à la formation de dislocations. Les dislocations peuvent être générées par la contrainte appliquée mais aussi lors de la relaxation des contraintes thermiques résiduelles. Arsenault et al. [34] ont montré que dans ce cas, le renforcement indirect provient de la relaxation des contraintes thermiques résiduelles par germination de dislocations aux interfaces. Ils ont également établi un modèle permettant de prévoir l'évolution du renforcement indirect en fonction de la fraction volumique et de la taille des particules de renfort (Cf. Figure I-15). La Figure I-15 met en évidence une augmentation de la contrainte lorsque la taille des particules diminue et/ou que la fraction volumique de renfort s'accroit.

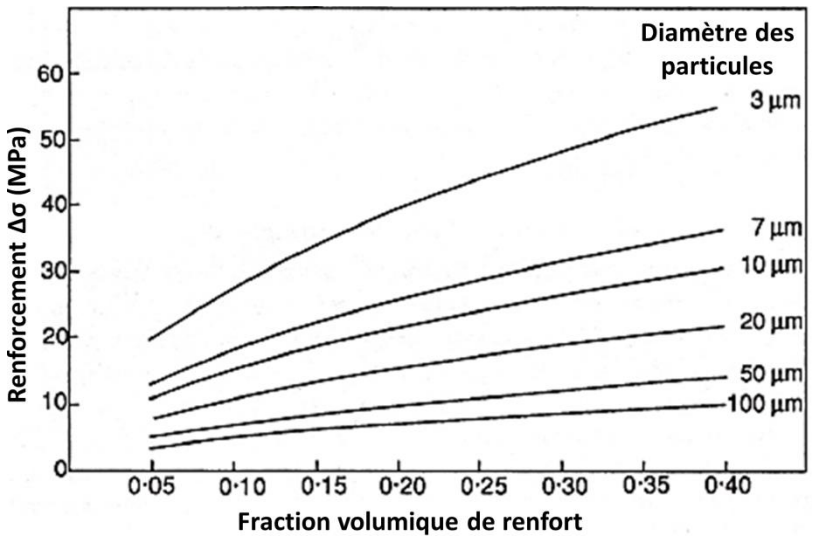


Figure I-15 : Renforcement en fonction de la fraction volumique et de la taille des particules de renfort, d'après [27].

I.2.2.2. Durcissement lié à la taille des grains

L'introduction de particules de renfort tend à limiter la croissance des grains de la matrice lors de l'étape d'élaboration. Les joints de grains sont des sources effectives de renforcement à des températures modérées. La contribution de l'affinement de la taille de grains sur la contrainte d'écoulement peut être estimée en utilisant la relation de Hall Petch [35]. Cette relation n'est valable que pour une certaine gamme de taille de grains ($d \geq 1$ µm) :

$$\boldsymbol{\sigma = \sigma_0 + kd^{-1/2}} \qquad \text{Equation I-2}$$

avec σ la limite d'élasticité, σ_0 une contrainte de « friction » ou celle du monocristal, k le coefficient de Petch qui dépend du matériau et d la taille moyenne des grains.

I.2.2.3. Durcissement par précipitation des alliages d'aluminium

Cette section est principalement basée sur les informations relevées dans [36], sauf indications contraires.

Selon la méthode d'élaboration ou les traitements thermiques appliqués, des précipités (phases secondaires ou zones de Guinier-Preston) peuvent se former dans les alliages d'aluminium. La présence de ces précipités va générer des champs de contrainte qui empêchent le mouvement des dislocations. Ce phénomène conduit au durcissement du matériau par interaction dislocations-précipités : c'est le durcissement structural.

Ce type de durcissement est lié à la décomposition de la solution solide obtenue par trempe.
Après la trempe, la solution solide est sursaturée et métastable. Selon le type de traitement thermique (maturation, revenu ou surrevenu) auquel est soumis l'alliage, différents stades de précipitation sont observés. Lors de l'étape de maturation, l'alliage est maintenu à basse température ou à température ambiante. La solution solide, qui est métastable, tend à se décomposer en petit amas d'atomes de solutés, ce sont les zones de Guinier-Preston (ou zones GP).
Lors du traitement de revenu, l'échantillon subit un chauffage ultérieur à température modérée (373 K à 473 K). La solution solide continue de se décomposer et les zones GP se dissolvent afin de précipiter en de nombreuses et fines particules (2 à 50 nm) sous forme de composés intermétalliques métastables.
L'étape du surrevenu est réalisée pour des températures supérieures à 433 K et conduit à l'obtention de d'un composé d'équilibre, par précipitation des composés intermétalliques stables.
Il est possible de distinguer ces précipités selon qu'ils sont cohérents (aucune distorsion du réseau cristallographique), semi-cohérents (distorsion élastique du réseau cristallographique) ou incohérents (aucune relation d'orientation cristallographique) (Cf. Figure I-16).

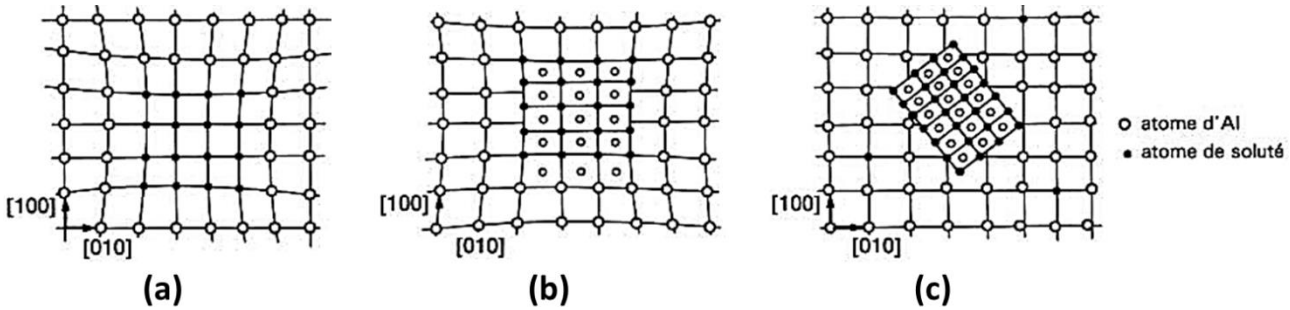


Figure I-16 : Représentations schématiques de la cohérence des précipités au sein d'une matrice avec des précipités (a) cohérents, (b) semi-cohérents et (c) incohérents, d'après [36]**.**

Dans un système aluminium – cuivre, la séquence de précipitation se décompose de la façon suivante :

$$\text{Zones de Guinier} - \text{Preston} \rightarrow \underset{\text{Cohérent}}{\theta''} \rightarrow \underset{\text{Semi} - \text{cohérent}}{\theta'} \rightarrow \underset{\text{Incohérent}}{\theta - Al_2Cu}$$

Cependant, la précipitation strictement séquentielle ne se produit pas dans tous les cas, il y a souvent co-précipitation de plusieurs types de phases. Les différentes phases présentent une structure quadratique dont les paramètres de maille sont les suivants :

- θ''-Al_2Cu : a = 0,405 nm et c = 0,763 nm
- θ'-Al_2Cu : a = 0,572 nm et c = 0,581 nm
- θ-Al_2Cu : a = 0,607 nm et c = 0,487 nm

La Figure I-17 présente des micrographies, obtenues au microscope électronique en transmission ainsi que les clichés de diffraction associés, d'un alliage Al-4%Cu ayant subi un traitement de revenu durant 24 h. Après un revenu à 373 K, les zones GP se sont formées parallèlement aux plans $\{100\}_{Al}$ (Cf. Figure I-17a). A 453 K et 523 K, il y a formation des phases θ''-Al_2Cu (Cf. Figure I-17b) et θ'-Al_2Cu (Cf. Figure I-17c), respectivement, sous forme de plaquettes parallèles aux plans $\{100\}_{Al}$. La taille des précipités augmente alors que le nombre de précipités diminue avec l'accroissement de la température et du temps de maintien [37].

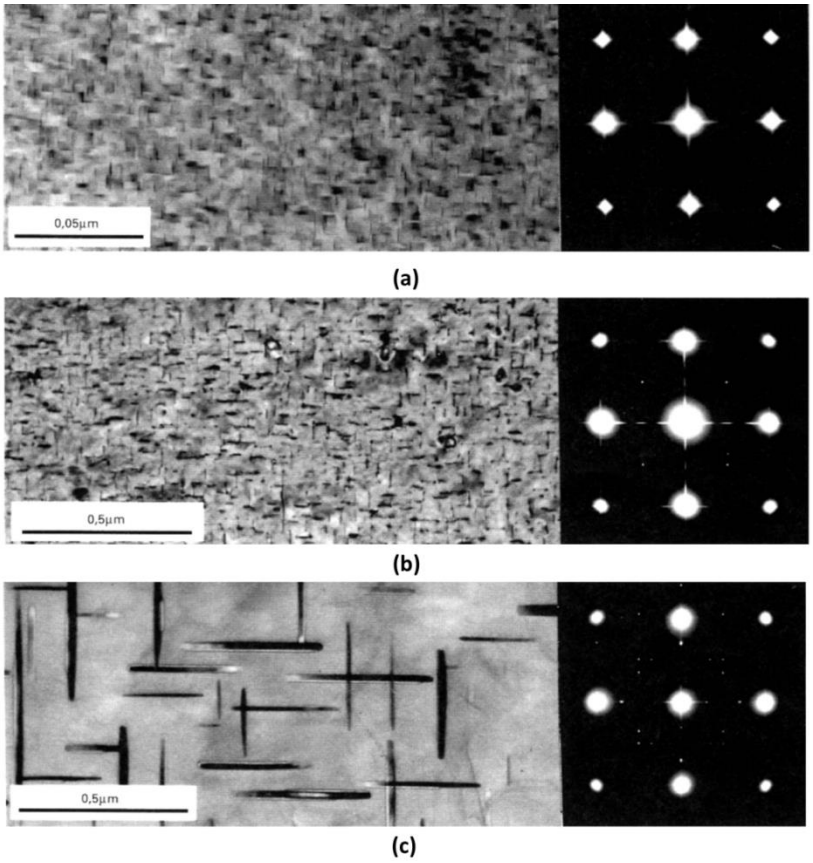


Figure I-17 : Précipitation structurale observée dans un alliage Al-4%Cu, ayant subi un revenu de 24 h, mettant en évidence la présence (a) de zones GP à 373 K, (b) de précipités θ''-Al_2Cu à 453 K et (c) des précipités θ'-Al_2Cu à 523 K, d'après [36].

La contrainte ou la dureté d'un matériau évolue en fonction de la nature des précipités présents dans l'aluminium (Cf. Figure I-18).

La contrainte ou la dureté d'un matériau évolue en fonction de la nature des précipités présents dans l'aluminium (Cf. Figure I-18). La présence des zones GP permet une augmentation de la contrainte (ou dureté) de l'aluminium mais le durcissement est plus élevé avec des précipités θ''-Al_2Cu et θ'-Al_2Cu. Les valeurs de contrainte diminuent avec la présence de précipités θ-Al_2Cu incohérents.

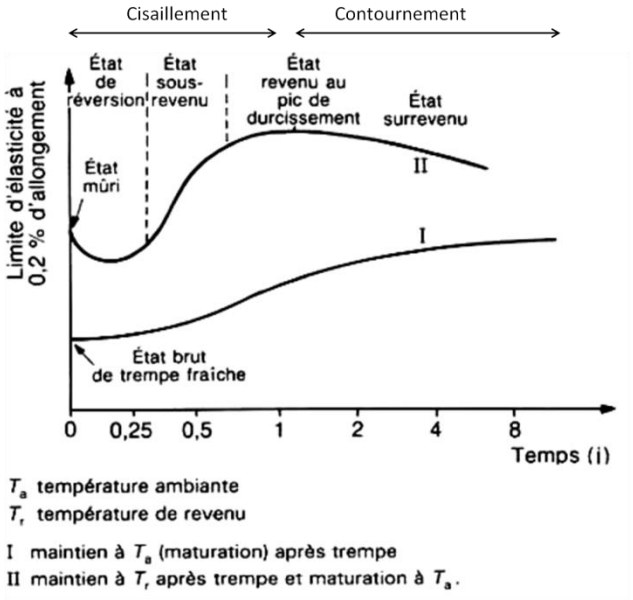


Figure I-18 : Evolution de la limite d'élasticité $\sigma_{0,2\%}$ fonction du temps, mettant en évidence les différentes étapes de précipitation, d'après [36].

Lorsque les précipités sont cohérents, à l'échelle microscopique, le durcissement structural est attribué principalement à deux mécanismes liés à des interactions dislocations/précipités : le cisaillement ou le contournement (Cf. Figure I-19). Ces mécanismes dépendent de la taille et de la cohérence des précipités. D'une manière générale, lorsque les précipités sont petits et cohérents, c'est le cisaillement qui prédomine. Dans le cas de précipités dont le rayon est supérieur à une valeur de rayon critique r_c, c'est le contournement qui intervient.

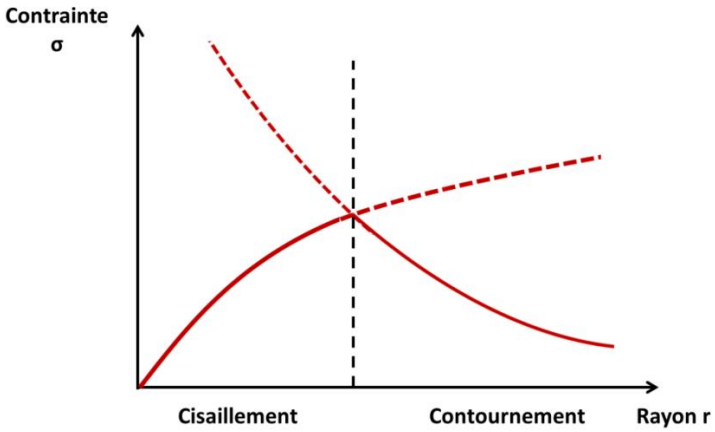
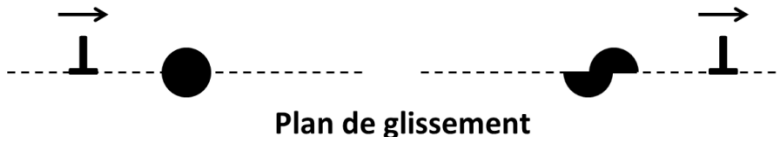
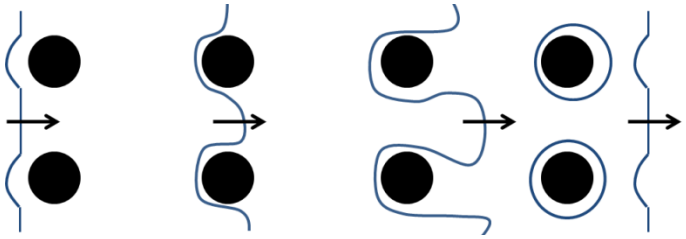


Figure I-19 : Transition des mécanismes de cisaillement et de contournement en fonction du rayon des précipités pour une fraction volumique donnée.

Le phénomène de contournement des dislocations intervient dans le cas de gros précipités ou de précipités incohérents : c'est le mécanisme d'Orowan (Cf. Figure I-20b). La dislocation contourne le précipité en laissant une boucle de dislocation résiduelle autour des précipités, ce qui constitue un obstacle supplémentaire lors du passage des autres dislocations.
Lors du contournement d'Orowan, à basse température, le mouvement des dislocations se fait dans leur plan de glissement. Lorsque la température augmente, le contournement des précipités par les dislocations peut s'effectuer par glissement dévié, voir par montée des dislocations, le mécanisme est thermiquement activé.



(a)



(b)

Figure I-20 : Schéma du (a) cisaillement des précipités et (b) du contournement des précipités par une dislocation, mécanisme d'Orowan.

I.2.2.4. Interaction dislocations-solutés mobiles

Il existe d'autres types d'interactions avec les atomes en solutés et les dislocations mobiles. Dans le cadre de cette partie, un livre est principalement utilisé comme référence : « Dislocations et déformation plastique – Yravals 1979 » [38].

Lors des essais de traction ou de compression à vitesse de déformation imposée et constante, la contrainte varie usuellement de façon monotone. Or dans certains alliages, des instabilités plastiques peuvent être observées sur les courbes contrainte-déformation par la présence de crochets et décrochements répétés. A l'échelle macroscopique, ces instabilités sont caractérisées par la présence de bandes de déformation au sein de l'échantillon. Ces décrochements répétés se manifestent par l'apparition de chutes brutales ou de paliers de contrainte selon le type d'essai. Ce type de

comportement a été observé dès 1909 par Le Chatelier, sur des aciers déformés entre 353 K et 523 K. Par la suite, Portevin et Le Chatelier, ont observé ces effets sur des duralumins Al-4,8%Cu déformés à température ambiante. Ce type d'instabilités de déformation plastique a été nommé par la suite « effet Portevin-Le Chatelier (PLC) ».

La Figure I-21 montre les comportements observés dans le cas d'une machine « dure » (vitesse de déformation imposée) et d'une machine « molle » (contrainte imposée), pour un alliage de fer présentant 1,5 % de Si, déformé à 300°C [39]. Lorsque la contrainte est imposée, les instabilités de déformation plastique sont caractérisées par des paliers de contrainte alors que pour une vitesse de déformation imposée, ce sont des chutes de contraintes qui sont observées. De plus, lorsque la vitesse de déformation est constante, les décrochements n'apparaissent qu'à partir d'une certaine valeur de déformation ε_p (déformation plastique totale).

Sachant que la déformation totale est la somme des déformations plastiques et élastiques ($\varepsilon_p + \varepsilon_e$), et donc que la vitesse de déformation totale $\dot{\varepsilon}$ correspond à la somme de la vitesse de ces déformations ($\dot{\varepsilon_p} + \dot{\varepsilon_e}$), Rodriguez [40] a montré que les décrochements de contrainte apparaissent lorsque la vitesse de déformation plastique $\dot{\varepsilon_p}$ dépasse la vitesse de déformation imposée.

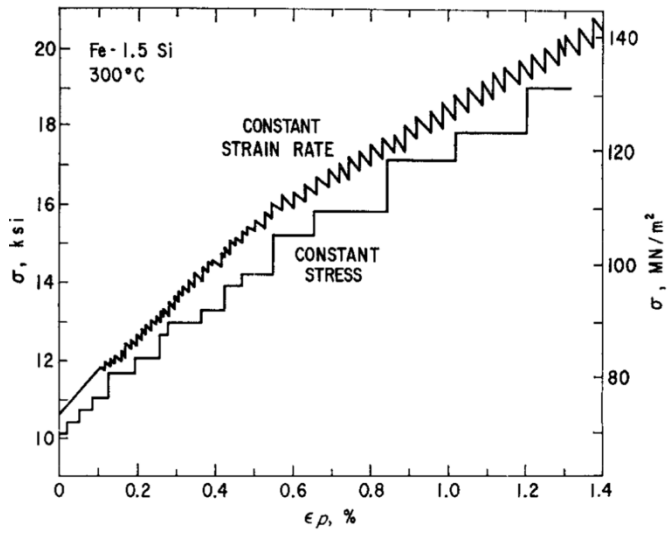


Figure I-21 : Comparaison des courbes contrainte-déformation obtenues dans le cas d'une vitesse de déformation constante (machine dure) et d'une contrainte constante (machine molle) pour un alliage Fe-1,5% Si déformé à 300°C, d'après Cuddy et Leslie [39].

Il a été montré que pour certains alliages, les instabilités de déformation plastique apparaissent pour une certaine gamme de températures et de vitesses de déformation. La Figure I-22 montre des courbes contrainte-déformation obtenues lors d'essais de traction, à différentes températures, pour un alliage Al-5% Mg [38,41]. Lorsque la température est comprise entre 32 et 93°C, des décrochements sont visibles sur les courbes.

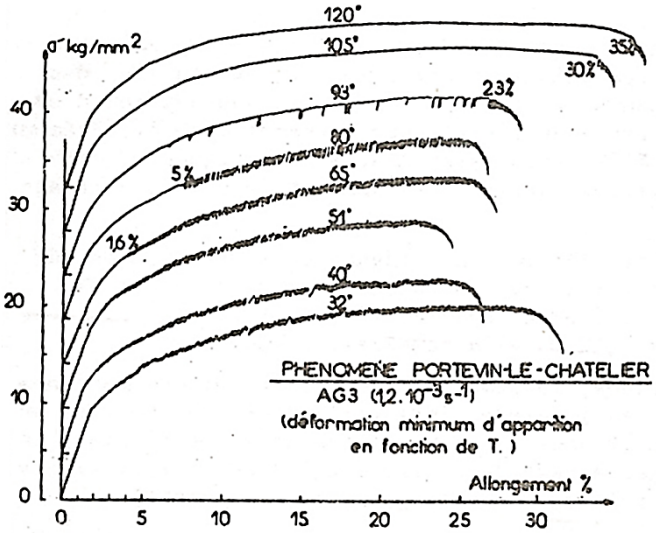


Figure I-22 : Courbes contrainte-déformation à vitesse de déformation imposée ($1{,}2.10^{-3}$ s^{-1}) et à plusieurs températures, d'un alliage Al-5% Mg, d'après Vergnol et al. [38,41].

Il existe plusieurs types d'effet PLC, notés A, B et C. Ils ont d'abord été étudiés par Brindley et al. [42], puis par Rodriguez [40] et Chihab et al. [43].

La Figure I-23 montre des courbes contrainte-déformation d'alliages Cu-In lors d'essais de traction à vitesse de déformation imposée ($8{,}3.10^{-4}$ s^{-1}) et à différentes températures. Ces courbes mettent en évidence la présence de plusieurs types d'effet PLC [38,42].

Le type A est caractérisé par une augmentation brutale de la contrainte suivie d'une chute avant de revenir à un niveau de contrainte moyenne. Une légère augmentation de la contrainte est observée entre chaque décrochement. Ce type d'effet PLC est périodique et de fréquence faible après leur apparition. Ces décrochements apparaissent à des températures basses et pour des vitesses de déformation élevées. A l'échelle macroscopique, l'effet PLC se traduit par des bandes de déformation à la surface de l'échantillon qui forment un front de déformation continu le long de l'éprouvette.

Le type B correspond à de courtes successions de décrochements, la contrainte augmente au-dessus du niveau moyen, puis une chute brutale est observée en-dessous de ce seuil. Le type B apparait pour des températures élevées et de faibles vitesses de déformation ou à partir des déformations induites par le type A, lorsque la déformation augmente.

Contrairement au type B, les décrochements de type C sont des chutes brutales de contrainte qui surviennent en dessous du niveau de contrainte moyenne de la courbe. La recharge de l'échantillon

peut être partiellement plastique. Ces sauts se produisent à plus hautes températures et pour de plus faibles vitesses de déformation que celles observées pour les types A et B.

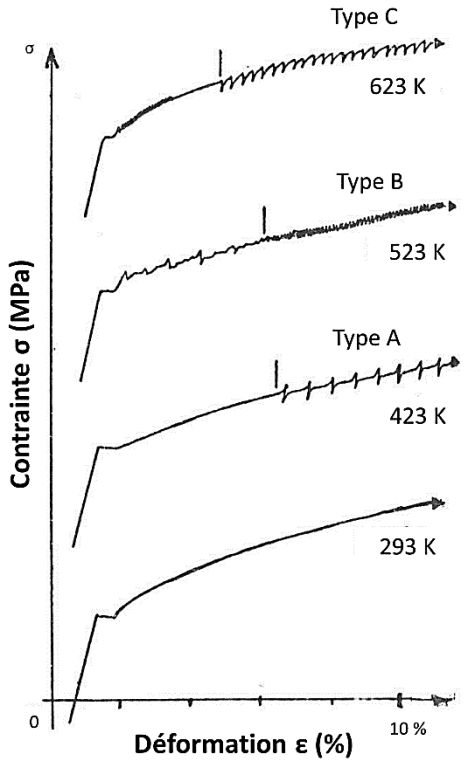


Figure I-23 : Courbes contrainte-déformation mettant en évidence les trois types d'effets PLC en fonction de la température et du taux de déformation dans un alliage Cu-In, d'après Brindley et al. [42] et [38].

A l'échelle microscopique, les effets PLC ont pour origine les interactions entre les dislocations mobiles et les atomes de soluté qui diffusent. Selon Kubin et al. [44], dans le domaine des effets PLC, la résistance au glissement diminue quand la vitesse de déformation augmente. L'équation ci-dessous permet d'établir un lien entre le comportement macroscopique (bandes PLC) et les mécanismes intervenant à l'échelle microscopique [44,45] :

$$\boldsymbol{\sigma = h\varepsilon + F(\dot{\varepsilon})} \qquad \textbf{Équation I-3}$$

avec h le taux d'écrouissage qui est considéré comme constant et la fonction $\boldsymbol{F(\dot{\varepsilon})}$ qui prend en considération l'interaction entre les dislocations mobiles et les obstacles locaux.

Penning [45] et Kubin et al. [44] ont défini la sensibilité de la contrainte d'écoulement, à la vitesse de déformation (SRS = Strain Rate Sensitivity en anglais), telle que présentée par l'Equation I-4. Ces auteurs ont montré que ces instabilités plastiques surviennent lorsque ce paramètre devient négatif, comme présenté sur la Figure I-24 avec $\dot{\varepsilon}_1 \leq \dot{\varepsilon} \leq \dot{\varepsilon}_2$.

$$S = \frac{d\sigma}{d \ln \dot{\varepsilon}} = \dot{\varepsilon} \left(\frac{dF}{d\dot{\varepsilon}}\right) \qquad \text{Équation I-4}$$

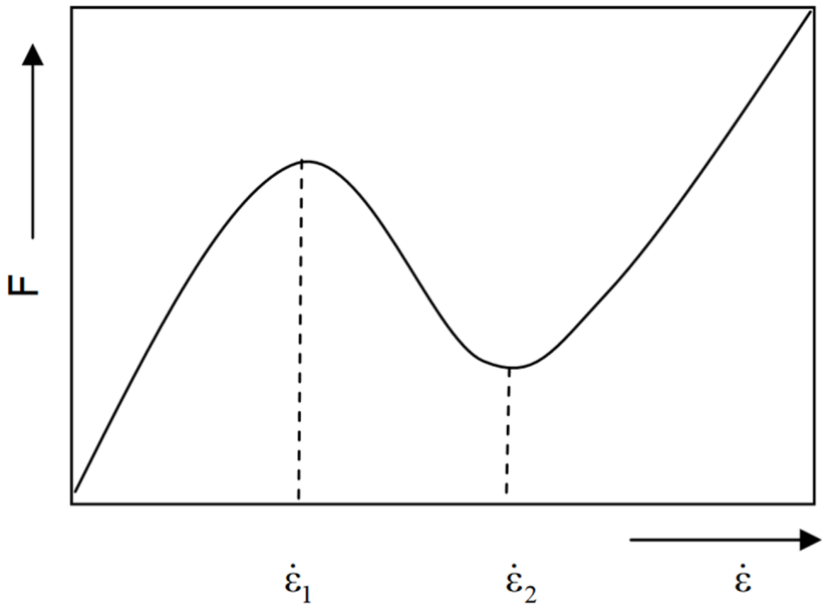


Figure I-24 : Evolution de la fonction $F(\dot{\varepsilon})$ à vitesse de déformation fixée, d'après [46].

Les observations expérimentales ont montré que les effets PLC n'apparaissent qu'à partir d'un certain taux de déformation critique ε_c qui décroit avec la température [38]. La description classique est repose sur l'interaction dynamique entre solutés et le champ de déformation dû aux dislocations : lors du déplacement des dislocations, il y a un chargement progressif de la ligne de dislocation en solutés. L'accumulation de ces atomes étrangers au cœur des dislocations génère « un nuage de Cottrell » qui freine le mouvement des dislocations. Selon les modèles, la formation du cortège d'atomes peut se faire pendant le mouvement et/ou pendant l'arrêt des dislocations.

Lorsque les dislocations s'arrêtent, entravées dans leur mouvement par le nuage de Cottrell, les dislocations sont dites « épinglées » (Cf. Figure I-25). Pour permettre aux dislocations d'avancer, la contrainte est nécessairement augmentée. Quand les dislocations se dégagent du nuage de Cottrell, la contrainte nécessaire à leur déplacement diminue. Elles se déplacent dans une zone « nettoyée » en atomes en soluté. Cependant, les atomes en solution diffusent à une vitesse suffisante pour rattraper et épingler à nouveau la dislocation. Il y a donc compétition entre vitesse de solutés et vitesse des dislocations. De plus, lors du mouvement des dislocations, celles-ci engendrent une perturbation des autres dislocations épinglées, il s'en suit un effet d'avalanche. L'effet PLC est donc caractérisé par des évènements d'épinglage ou de désépinglage successifs des dislocations par les atomes de soluté.

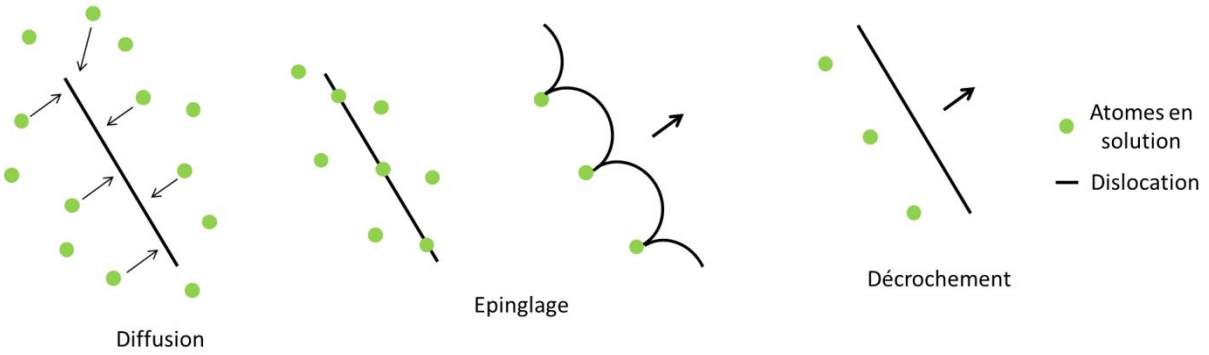


Figure I-25 : Schématisation de l'effet PLC, en température et à l'échelle microscopique avec une première étape de diffusion des atomes vers la dislocation en mouvement, suivie d'une étape d'épinglage par les atomes en solution et la libération brusque de la dislocation de son nuage de Cottrell.

Il existe d'autres types d'instabilités mécaniques. La Figure I-26 présente une courbe contrainte-déformation d'un acier doux. Lors du stade de déformation élastique, la contrainte atteint un sommet appelée « limite d'élasticité supérieure » puis chute brusquement jusqu'à un certain niveau et reste constante : c'est la « limite d'élasticité inférieure ». Celle-ci est caractérisée par un plateau de déformation dont l'étendue augmente aux basses températures et aux vitesses de traction élevées. Durant ce palier de déformation, l'échantillon est traversé par un ou plusieurs fronts de déformation : ce sont les bandes de Piobert-Lüders. Après le passage de ces bandes, la contrainte augmente et l'échantillon se déforme de manière homogène. Contrairement aux bandes PLC, les bandes de Piobert-Lüders ne traversent qu'une fois l'échantillon et la propagation de ces bandes se déroule à contrainte d'écoulement constante. De plus, le domaine d'existence et la vitesse de propagation des bandes de Piobert-Lüders ne dépendent pas de la température, la sensibilité à la vitesse de déformation est positive.

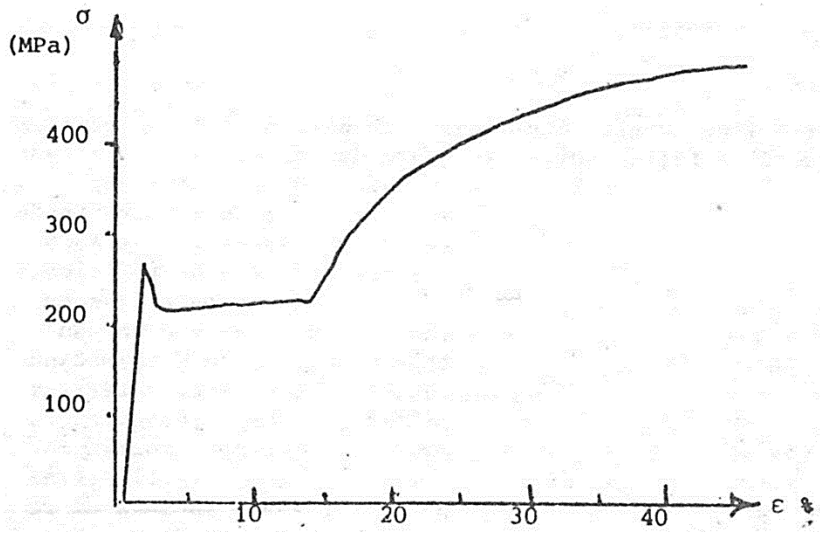


Figure I-26 : Courbe contrainte-déformation d'un acier doux mettant en évidence la présence de bandes de Lüders [38].

I.3. Composites Al/Al-Cu-Fe

I.3.1. Synthèse et microstructure

En 1993, Tsai et al. [1] sont les premiers à synthétiser, par compaction à chaud, des composites Al/25%vol Al-Cu-Fe. Ils ont utilisé des poudres d'aluminium commerciale (99.99%) et i-$Al_{64}Cu_{24}Fe_{12}$, présentant une taille de particules de 5 µm. En fonction des paramètres appliqués, deux types de composites ont été élaborés. Après frittage à 673 K - 260 MPa - 1h, le composite final est Al/i-Al-Cu-Fe. Après frittage réactif à 873 K - 60 MPa - 3h, Tsai et al. ont mis en évidence la transformation de phase de i-Al-Cu-Fe vers ω-Al-Cu-Fe, le composite final est Al/ω-Al-Cu-Fe.

Plus récemment, Ali et al. [47] ont étudié la transformation de phase i-Al-Cu-Fe vers ω-Al-Cu-Fe par diffraction des rayons X in-situ, durant l'élaboration. Pour cela, ils ont synthétisé des composites Al/Al-Cu-Fe par compression uni-axiale à chaud, à partir d'un mélange de poudres d'aluminium commerciale (99,5%) et de 40 % volumique de particules i-$Al_{62,5}Cu_{25}Fe_{12,5}$. A T > 755 K, les auteurs notent l'apparition de pics correspondant à la phase ω-Al-Cu-Fe. Entre 755 K et 925 K, ils ont observé une augmentation progressive de la quantité de phase ω-Al-Cu-Fe et une diminution de i-Al-Cu-Fe. A T = 925 K, le composite final est composé d'aluminium et de 53 % volumique de ω-Al-Cu-Fe. Aucune phase secondaire n'est observée. Seule la phase ω-Al-Cu-Fe est détectée.

El Kabir et al. [4] ont élaboré un composite Al/ω-Al-Cu-Fe par CIC à 823 K – 180 MPa – 120 min. Pour obtenir un composite final composé de 40 % volumique de ω-Al-Cu-Fe, de la poudre d'aluminium commerciale (< 60 µm, 99 %) a été mélangée à 30 % volumique de i-$Al_{63,5}Cu_{24}Fe_{12,5}$ (<60 µm). Le mélange a été préalablement compacté par compression uniaxiale à froid sous 860 MPa, puis il a subi un frittage réactif sous pression par CIC. Les analyses DRX et EDX ont confirmé qu'il y a eu transformation totale de i-Al-Cu-Fe vers ω-Al-Cu-Fe, sans présence de phase secondaire.

Laplanche et al. [5] ont poursuivi les travaux de El Kabir et al. [4] en densifiant un composite Al/i-Al-Cu-Fe par CIC. Pour cela, ils ont utilisé un mélange de poudres d'aluminium commerciale (< 60 µm, 99 %) et de particules i-Al-Cu-Fe (40 % volumique, < 60 µm) qui a été consolidé à 673 K - 180 MPa – 120 min. A titre de comparaison, des échantillons d'aluminium « pur » ont été densifiés à 823 K dans les mêmes conditions de pression et de durée que le composite.
La Figure I-27 présente des micrographies MEB en électrons rétrodiffusés de composites Al/i-Al-Cu-Fe [5] et Al/ω-Al-Cu-Fe [4] synthétisés par CIC à 673 et 873 K, respectivement. Les contrastes gris foncé et clair correspondent, respectivement, à la matrice Al et aux particules de renfort Al-Cu-Fe. A

faible grandissement (Figure I-27a et Figure I-27c), les particules de renfort semblent dispersées de manière homogène au sein de la matrice Al. Dans le cas de Al/i-Al-Cu-Fe, des traces de λ-$Al_{13}Fe_4$ sont également visibles à plus fort grandissement (Cf. Figure I-27b). Laplanche et al. [5] ont également montré qu'il y a diffusion du cuivre des particules de renfort, vers la matrice, avec une concentration atomique atteignant 1,1 % dans la matrice. Pour Al/ω-Al-Cu-Fe, Laplanche [18] a également détecté de faible taux de cuivre dans la matrice. Les observations réalisées au microscope électronique en transmission (MET) du composite Al/ω-Al-Cu-Fe ont mis en évidence la présence de précipités θ-Al_2Cu au sein de la matrice (Cf. Figure I-28). Cependant, l'observation de ces précipités dépend du type de grille (Mo ou Cu) utilisée et de sa capacité à évacuer la chaleur, mais également de l'étape de préparation des lames minces au PIPS. Ainsi, on peut supposer que la température de l'échantillon collé sur une grille Mo est plus élevée que celle de l'échantillon collé sur une grille Cu (le Mo a une conductivité thermique environ 3 fois supérieure à celle du Cu), ce qui pourrait expliquer la différence de microstructure observée pour la matrice en fonction de la nature de la grille MET.

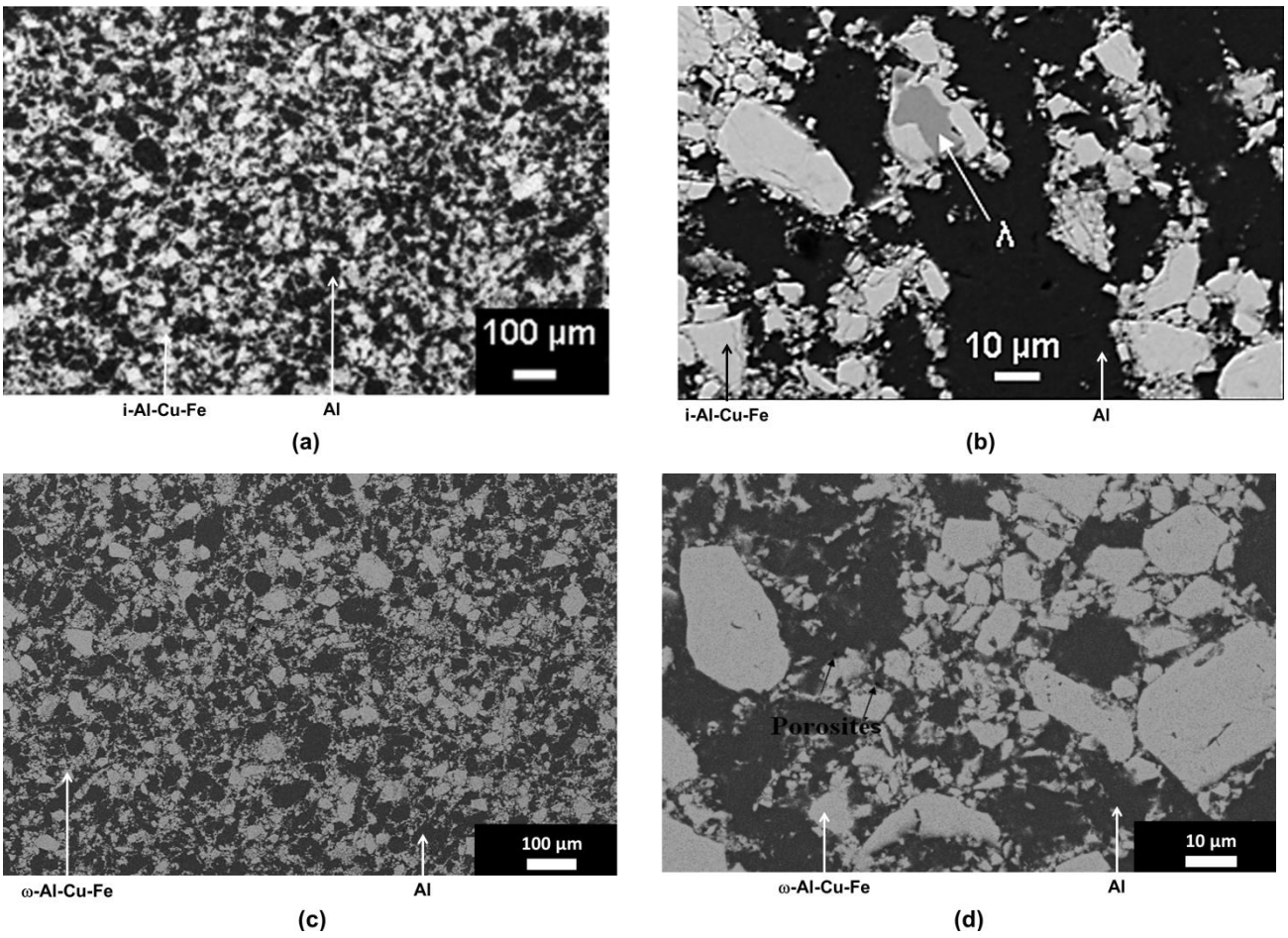


Figure I-27 : Micrographies MEB en électrons rétrodiffusés de composites (a, b) Al/i-Al-Cu-Fe et (c et d) Al/ω-Al-Cu-Fe synthétisés par CIC à 673 [5] et 873 K [4], respectivement.

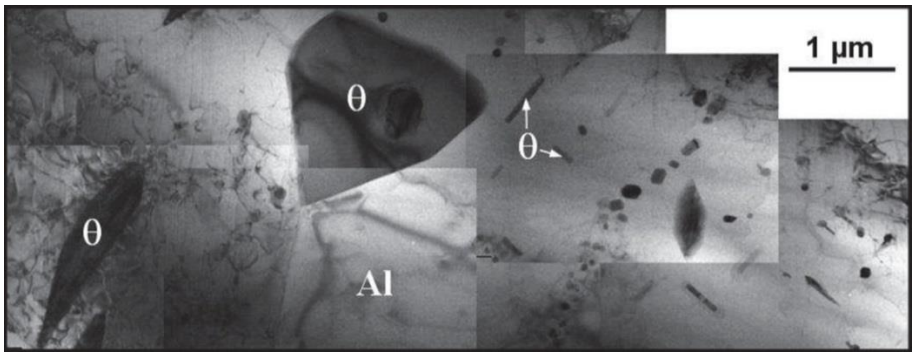


Figure I-28 : Micrographie MET en champ clair de la matrice aluminium, provenant d'un composite Al/ω-Al-Cu-Fe brut d'élaboration [18].

Lityńska-Dobrzyńska et al. [48] ont étudié la microstructure de composites Al/Al-Cu-Fe élaborés par compression uniaxiale à chaud à 673 K – 600 MPa – 10 min. Pour cela, un mélange de poudre d'aluminium (7 -15 µm, 99.5%) et de particules i-Al-Cu-Fe (< 32 µm), dont la fraction volumique varie de 15 à 50 %, a été utilisé. Les particules i-Al-Cu-Fe contiennent des traces de β-$Al_{50}Cu_{50-x}Fe_x$.
Les analyses DRX indiquent que les pics de i-Al-Cu-Fe ont quasiment disparu pour les échantillons présentant une fraction volumique initiale de renfort inférieure à 50 % et diminué en intensité pour l'échantillon contenant 50 % volumique de renfort. Les principaux pics détectés sont ceux de l'aluminium, de ω-Al-Cu-Fe et de θ-Al_2Cu. Les observations au MET et les analyses chimiques ont montré que la phase ω-$Al_{71,3}Cu_{19}Fe_{9,7}$ entoure la phase i-$Al_{61,3}Cu_{24,9}Fe_{13,8}$ et que la phase θ-Al_2Cu se situe à l'interface entre les particules de renfort ω-Al-Cu-Fe et la matrice Al. Contrairement à tous les auteurs préalablement cités, Lityńska-Dobrzyńska et al. ont observé la transformation de phase i-Al-Cu-Fe vers ω-Al-Cu-Fe dès 673 K. Selon eux, la phase β-$Al_{50}Cu_{50-x}Fe$ facilite la transformation de phase de i-Al-Cu-Fe en ω-Al-Cu-Fe.
La Figure I-29 montre, de manière identique aux observations de Laplanche [18], la présence de précipités θ-Al_2Cu dispersés au sein de la matrice aluminium, ce qui met en évidence la diffusion de cuivre dans la matrice.

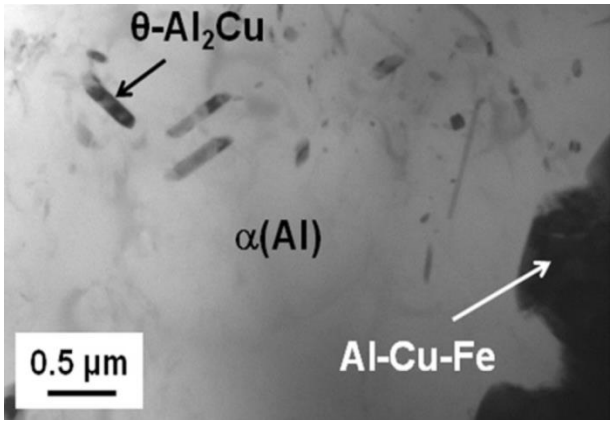


Figure I-29 : Micrographies MET de précipités θ-Al_2Cu au sein de la matrice [48].

I.3.2. Propriétés mécaniques

Les propriétés mécaniques des composites Al/Al-Cu-Fe ont été étudiées par plusieurs auteurs, que les composites soient Al/i-Al-Cu-Fe ou Al/ω-Al-Cu-Fe. Tsai et al. [1] ont mesuré la dureté des composites Al/i-Al-Cu-Fe et Al/ω-Al-Cu-Fe synthétisés par compaction à chaud, en fonction des différentes fractions volumiques de renfort (10 %, 15 %, 20 % et 25 %). L'accroissement de la fraction volumique de renfort conduit à l'augmentation de la dureté (Cf. Figure I-30). Pour une fraction volumique de renfort supérieure de 15 %, la dureté du composite renforcé par la phase i-Al-Cu-Fe devient supérieure à celle du composite renforcé Al/ω-Al-Cu-Fe.

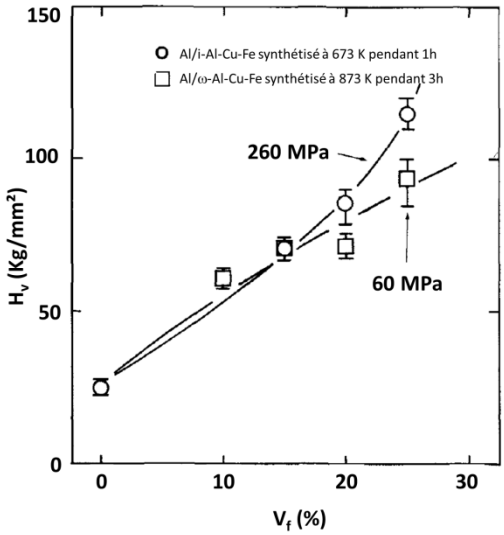


Figure I-30 : Variation de la dureté, en fonction de la fraction volumique de renfort, des composites Al/i-Al/Cu-Fe et Al/ω-Al-Cu-Fe, synthétisés par compaction à chaud respectivement à 673 K / 1h et 873 K / 3h [1].

Schurack et al. [13] ont principalement étudié les propriétés mécaniques de composites Al/i-Al-Cu-Fe synthétisés par métallurgie des poudres, en réalisant des essais de compression. Ils ont mélangé des poudres d'aluminium et de i-Al-Cu-Fe (78 µm), pour des fractions volumiques variant de 40 à 80 %. Les échantillons ont été consolidés par extrusion à 623 K. Les courbes contrainte-déformation, obtenues lors d'essais de compression à température ambiante, sont présentées Figure I-31. L'augmentation de la fraction volumique de renfort entraîne une augmentation de la contrainte mais une réduction de la ductilité du composite Al/i-Al-Cu-Fe. Schurack et al. ont déterminé, à partir des essais de compression, le module d'Young, la limite d'élasticité σ_{Yield}, la contrainte maximale σ_{UCS}, les valeurs de déformation à la rupture ε_f (Cf. Table I-1). Comme précisé ci-dessus, les valeurs de contrainte augmentent avec la fraction volumique de renfort alors que les taux de déformation ε_f diminuent. Le module d'Young E est anormalement similaire quel que soit le composite.

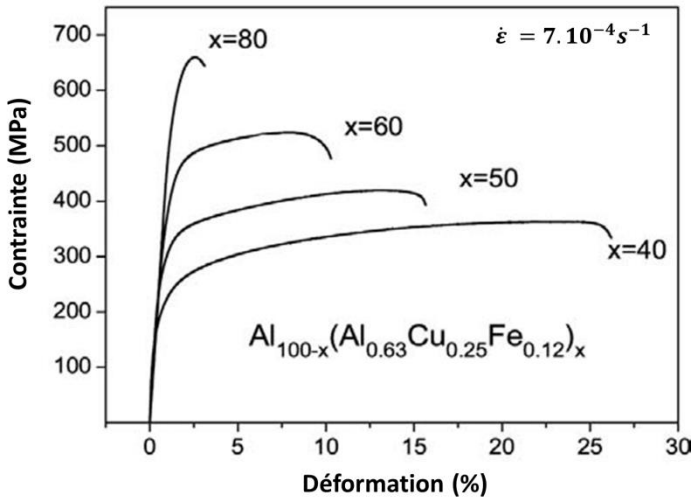


Figure I-31: Evolution de la contrainte d'écoulement en compression en fonction de la déformation pour des composites Al/i-Al-Cu-Fe contenant des fractions volumiques de renfort comprises entre 40 et 80 %, d'après [13].

Sample	E (GPa)	σ_{yield} (MPa)	σ_{UCS} (MPa)	ε_f (%)
$Al_{20}(Al_{0.63}Cu_{0.25}Fe_{0.12})_{80}$	72	567	660	3.1
$Al_{40}(Al_{0.63}Cu_{0.25}Fe_{0.12})_{60}$	68	394	524	10.3
$Al_{50}(Al_{0.63}Cu_{0.25}Fe_{0.12})_{50}$	70	284	419	15.6
$Al_{60}(Al_{0.63}Cu_{0.25}Fe_{0.12})_{40}$	68	167	363	26.2

Table I-1 : Module d'Young E, limite d'élasticité σ_{Yield}, contrainte maximale σ_{UCS}, déformation à la rupture ε_f, obtenus à partir des essais de compression, pour des composites Al/i-Al-Cu-Fe dont la fraction volumique de renfort varie de 40 à 80 % [13].

Kaloshkin et al. [2] ont synthétisé des composites Al/Al-Cu-Fe contenant 10 % massique initial de renfort i-Al-Cu-Fe (< 20 µm) par compaction à chaud sous pression. Ils ont étudié l'évolution de la contrainte d'écoulement, lors d'essais de compression à température ambiante, en fonction de la température de consolidation des composites.

D'après les analyses DRX, lorsque les températures d'élaboration sont inférieures à 773 K, la phase i-Al-Cu-Fe est conservée alors que pour T ≥ 773 K, il y a transformation de phase de i-Al-Cu-Fe en ω-Al-Cu-Fe. La Figure I-32 montre l'évolution de la contrainte d'écoulement maximale à température ambiante en fonction de la température de consolidation des composites. La contrainte d'écoulement maximale est plus élevée pour les composites Al/ω-Al-Cu-Fe que pour les composites Al/i-Al-Cu-Fe.

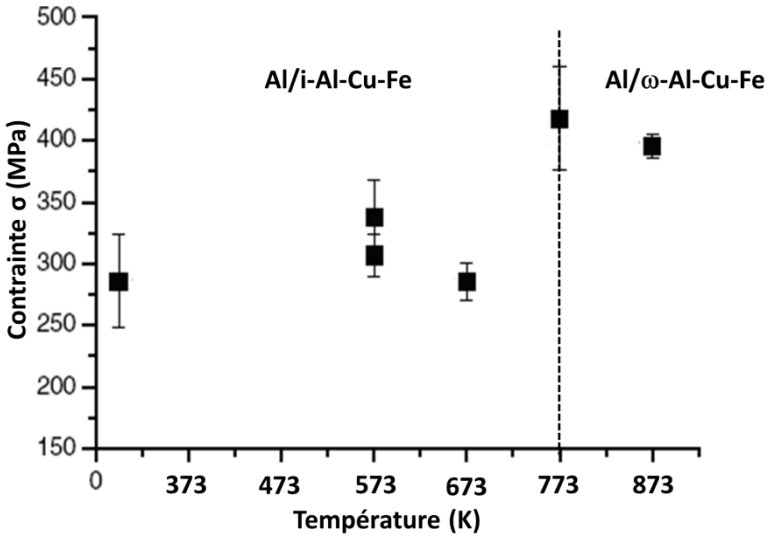


Figure I-32 : Evolution de la contrainte d'écoulement maximale à température ambiante en fonction de la température d'élaboration des composites Al/Al-Cu-Fe, d'après [2].

Tang et al. [24,49] ont étudié les propriétés mécaniques de composites Al/ω-Al-Cu-Fe synthétisés par forgeage et compaction à chaud sous vide (VHP). Ces échantillons ont été élaborés à partir de poudres d'aluminium et de i-Al-Cu-Fe (< 10 µm), dont la fraction volumique varie de 15 à 30 %. Tang et al. ont utilisé deux types de poudre Al et i-Al-Cu-Fe (notés par la suite AFF et GFF), afin d'étudier l'effet de l'oxydation sur le frittage ainsi que sur les propriétés mécaniques :

- AFF élaborée par atomisation sous gaz inerte de N_2 et de O_2. Dans ce cas, les poudres sont revêtues d'une couche d'oxyde.
- GFF élaborée par atomisation sous gaz inerte de N_2, ce qui permet de limiter la quantité d'oxyde formé.

Le procédé d'atomisation sous gaz inerte permet d'obtenir des poudres sphériques. Les Figure I-33a et Figure I-33b montrent les micrographies MEB des composites Al/30 %vol. ω-Al-Cu-Fe AFF et GFF, respectivement, synthétisés par compaction à chaud. Les particules de renfort sont distribuées de manière homogène dans la matrice et présentent des formes sphériques.

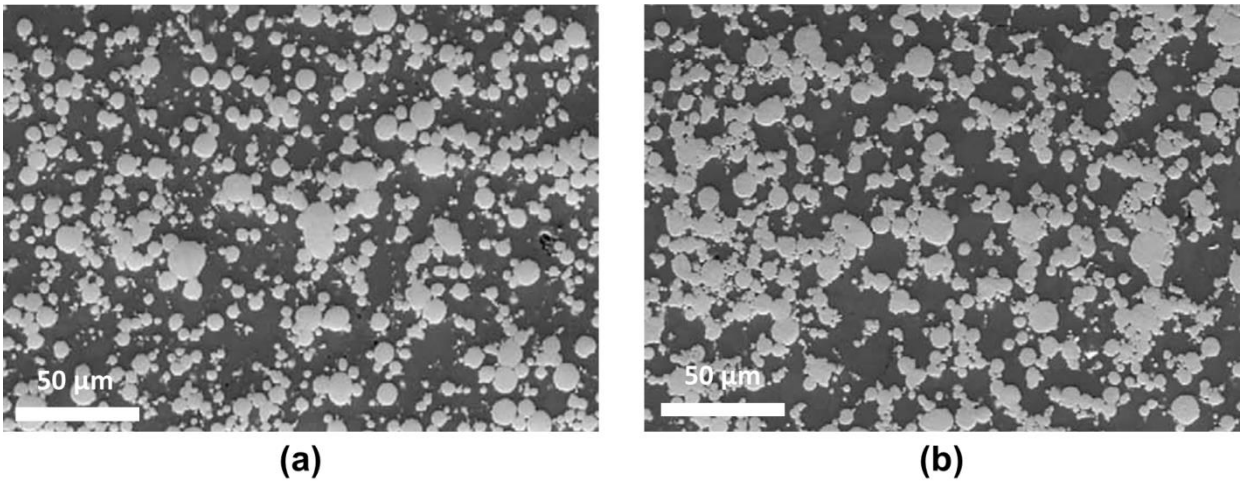


Figure I-33 : Micrographies MEB de composites Al/30 % vol. ω-Al-Cu-Fe (a) AFF et (b) GFF, synthétisés par compaction à chaud sous vide, d'après Tang et al. [24].

Des essais de traction ont été réalisés pour les composites Al/ω-Al-Cu-Fe. La Table I-2 reporte l'augmentation de la contrainte maximale UTS (ultimate tensile strength) et de la contrainte $\sigma_{0,2\%}$ des composites Al/30%vol. ω-Al-Cu-Fe, élaborés par forgeage (« forged ») ou compaction à chaud (« VHP »), par rapport à celles de l'aluminium non-renforcé.

Tout d'abord, tous les composites présentent une augmentation des propriétés mécaniques ($\sigma_{0,2\%}$ et σ_{UTS}) par rapport à celles mesurées pour l'aluminium non-renforcé. En considérant une même méthode d'élaboration, l'augmentation des contraintes σ_{UTS} et $\sigma_{0,2\%}$ par rapport à Al est supérieure pour des composites GFF. Les auteurs attribuent ce résultat au fait que dans le cas des particules plus faiblement oxydées (GFF), la liaison entre les particules de renfort et la matrice est améliorée.
De plus, l'augmentation des valeurs de contraintes des composites compactés à chaud (VHP) est plus faible que celles des composites forgés, bien que les poudres initiales utilisées soient les mêmes. A partir d'analyses de diffraction par neutrons, les auteurs ont assimilés ce comportement à la présence de contraintes résiduelles plus élevées au sein de la matrice Al, dans le cas des composites forgés.

Strength increase as compared with Al matrix	AFF forged	AFF VHP	GFF forged	GFF VHP
ΔUTS				
MPa	+163	+86	+209	+143
Percentage	111	59	220	151
ΔY.S.				
MPa	+177	+111	+174	+138
Percentage	201	126	328	260

Table I-2 : Comparaison de la contrainte maximale à la rupture et de la contrainte d'écoulement $\sigma_{0,2\%}$ (Y.S) des composites Al/30 % vol. ω-Al-Cu-Fe synthétisés par forgeage et compaction à chaud par rapport à de l'aluminium non-renforcé [49].

Kenzari et al. [3] ont préparé des composites à matrice aluminium renforcée par des particules i-$Al_{59}Cu_{25,5}Fe_{12,5}B_3$, par compaction isostatique à froid suivie d'une étape de frittage à l'état solide. Des particules i-Al-Cu-Fe-B ont été choisies plutôt que des particules i-Al-Cu-Fe en raison de leur plus faible coefficient de friction et de leur contrainte d'écoulement plus élevée. Après mélange des particules de renfort (25 µm, 0 à 60 % volumique) et de la poudre d'aluminium (25 µm), les échantillons sont frittés sous pression uni-axiale (32 MPa) à 773 K pendant 3,5 heures. Les analyses DRX indiquent que les échantillons sont constitués d'aluminium et de ω-Al-Cu-Fe uniquement.

Des essais de compression, à température ambiante, ont été réalisés pour de l'aluminium pur et des composites Al/ω-Al-Cu-Fe présentant différentes fractions volumiques de renfort (Cf. Figure I-34a). La Figure I-34b montre l'évolution des contraintes $\sigma_{0,2\%}$ et σ_{max} ainsi que celle du taux de déformation ε_r en fonction de la fraction volumique de renfort Al-Cu-Fe-B [50]. L'augmentation de la fraction volumique de renfort génère une augmentation des contraintes $\sigma_{0,2\%}$ et σ_{max} mais également une réduction de la ductilité du composite (Cf. Figure I-34b). L'effet de la fraction volumique sur les propriétés mécaniques des composites est en bon accord avec ce qui a été observé par Schurack et al. [13]. Cependant, pour Schurack et al. [13], les valeurs de contrainte sont inférieures (pour 50 % et 40 %) et la ductilité est plus élevée.

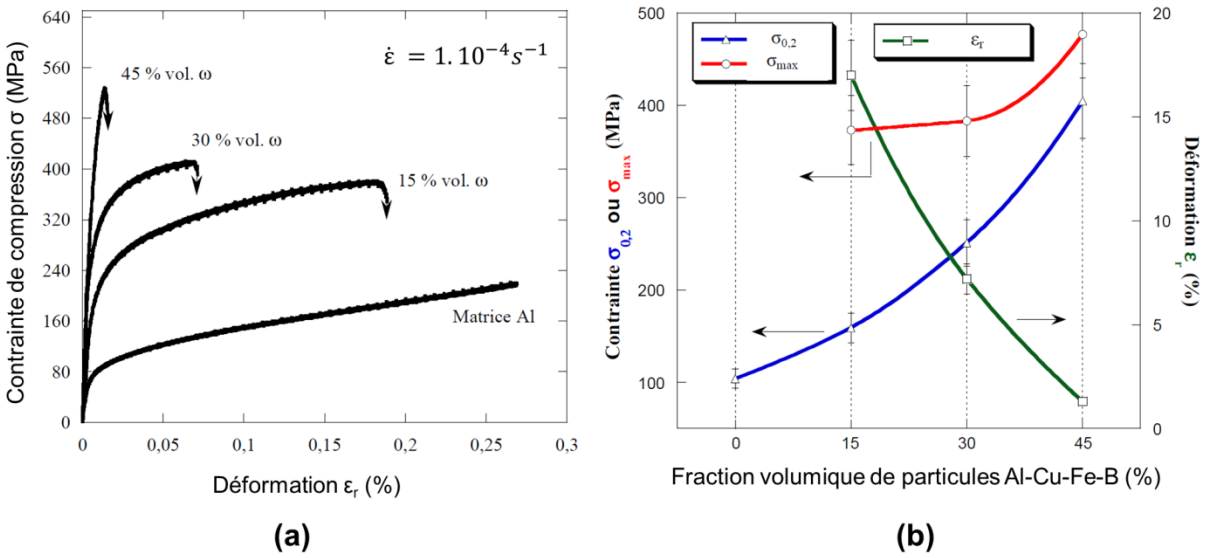


Figure I-34 : (a) Courbes contrainte-déformation obtenues en compression pour l'aluminium pur et des composites Al/ ω-Al-Cu-Fe présentant différentes fractions volumiques de renfort [3]. (b) Variation de la limite d'élasticité $\sigma_{0,2\%}$, de la contrainte maximale σ_{max} et de la déformation à la rupture ε_r en fonction de la fraction volumique des particules Al-Cu-Fe-B [50].

Kenzari et al. [3] ont également montré que l'oxydation des particules de renfort avant frittage permet de réduire la quantité de phase ω-Al-Cu-Fe formée au cours du frittage. Trois types de composites ont été synthétisés après frittage, à partir de 15 % volumique de renfort Al-Cu-Fe-B, ayant subi différents traitements d'oxydation :

- Après oxydation à l'air pendant 100 h : Al / i-Al-Cu-Fe-B
- Après oxydation à l'air pendant 10 h : Al / i-Al-Cu-Fe-B + ω-Al-Cu-Fe-B
- Aucun traitement d'oxydation : Al / ω-Al-Cu-Fe-B

Les courbes contrainte-déformation, obtenues à partir d'essais de compression à température ambiante, sont présentées Figure I-35 pour les trois types de composites. La formation de la phase ω-Al-Cu-Fe entraîne une augmentation de la contrainte d'écoulement et une augmentation du taux de déformation ε par rapport à celles des composites Al/i-Al-Cu-Fe non transformés ou partiellement transformés, ce qui est en accord avec les résultats obtenus par Kaloshkin et al. [2].

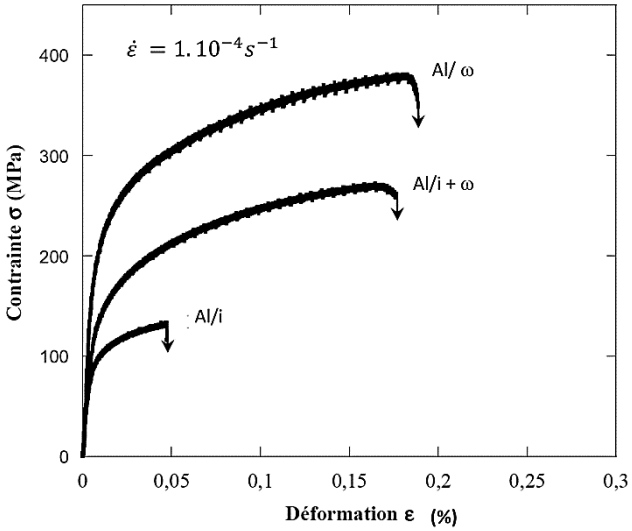


Figure I-35 : Courbes contrainte-déformation des composites Al/ 15 % vol. de i-Al-Cu-Fe, Al/i-Al-Cu-Fe-B + ω-Al-Cu-Fe-B et Al/ω-Al-Cu-Fe-B [3].

Bonneville et al. [51] et Laplanche et al. [5] ont comparé le comportement en compression en fonction de la température (293 K – 823 K) de l'aluminium et des composites Al/i-Al-Cu-Fe [5,32] et Al/ω-Al-Cu-Fe [4,18], synthétisés par compression isostatique à chaud (Cf. Figure I-36). Tous les échantillons contiennent 40 % volumique de renfort Al-Cu-Fe.

Les courbes contrainte-déformation à température ambiante, de l'aluminium pur et des composites Al/Al-Cu-Fe, sont présentées Figure I-36a. Les échantillons d'aluminium renforcés par des particules de renfort Al-Cu-Fe présentent des propriétés mécaniques supérieures à celles de l'aluminium pur. Les essais ont été volontairement interrompus avant rupture. Les trois courbes présentent une allure similaire : un stade d'élasticité et un stade de déformation plastique suivi d'un plateau correspondant à un durcissement nul, jusqu'à l'arrêt de l'essai. Les décrochements visibles sur les courbes correspondent aux essais de relaxations réalisées lors des essais de compression.

La Figure I-36b résume les résultats des travaux de El Kabir [32] et Laplanche [18]. Les échantillons peuvent être présentés en deux séries. La série « El Kabir » comprend les échantillons d'aluminium et les composites Al/i-Al-Cu-Fe et Al/ω-Al-Cu-Fe. Celle de « Laplanche » comprend uniquement un composite Al/ω-Al-Cu-Fe. Tout d'abord, les poudres utilisées pour élaborer les composites de la catégorie « El Kabir » ont été broyées à l'aide d'un broyeur planétaire. Dans la catégorie « Laplanche », les poudres ont été broyées à l'aide d'un broyeur vibratoire, plus énergétique.
Dans la série « Laplanche », le composite Al/ω (673 K) a été densifié à 673 K à partir d'un mélange de poudres Al et ω-Al-Cu-Fe. Dans ce cas, il n'y a pas eu de transformation de phase lors de la densification du composite.

La contrainte $\sigma_{0,2\%}$ en fonction de la température est présentée Figure I-36b pour l'aluminium pur et les composites Al/Al-Cu-Fe. Pour tous les échantillons, lorsque la température augmente, la contrainte d'écoulement $\sigma_{0,2\%}$ diminue. Cette dépendance en température met en évidence deux régimes de températures avec une température de transition à environ 550 K.
Quelle que soit la température, les échantillons d'aluminium renforcés présentent des contraintes supérieures à celles de l'aluminium pur. Une partie de ce renforcement est due au transfert de charge qui intervient entre la matrice et le renfort. Cependant, il existe des différences entre les composites qui sont attribuées à une modification de la microstructure de la matrice (renforcement indirecte). Pour les niveaux de contraintes et les températures considérés, la phase ω-Al-Cu-Fe se déforme uniquement élastiquement : la déformation plastique a lieu au sein de la matrice aluminium (Cf. Figure I-9).

Pour T > 550 K, la contrainte $\sigma_{0,2\%}$ des différents composites Al/Al-Cu-Fe diminue avec l'augmentation de la température. Laplanche et al. [5] ont émis l'hypothèse que les mécanismes de déformation sont similaires au sein de ces composites. Cette chute de contrainte est assimilée à un mécanisme de montée de dislocations et à des processus d'annihilation des dislocations dans la matrice Al. La pente $\sigma_{0,2\%}$ en fonction de la température de l'aluminium est différente de celle des composites, ce qui signifie que l'augmentation de la contrainte n'est pas due uniquement à du transfert de charge.

Lorsque T < 550 K, le composite Al/ω-Al-Cu-Fe (823 K) présente des valeurs de $\sigma_{0,2\%}$ supérieures à celles mesurées pour les composites Al/i-Al-Cu-Fe et Al/ω-Al-Cu-Fe (673 K). De plus, la contrainte $\sigma_{0,2\%}$ est identique pour les composites Al/i-Al-Cu-Fe et Al/ω-Al-Cu-Fe (673 K). Cela signifie que la différence de contrainte n'est pas due aux propriétés intrinsèques de la phase ω-Al-Cu-Fe mais provient de la modification de la microstructure de la matrice due à la transformation de phase.
En effet, selon El Kabir et al. [4] et Laplanche et al. [5], cet écart de contrainte est dû à la différence de localisation des nanoparticules de renfort. Dans le cas du composites Al/i-Al-Cu-Fe, ces nanoparticules sont situées aux joints de grains de la matrice Al. Lorsque l'échantillon est synthétisé à 823 K, la croissance des grains d'aluminium fait que ces nanoparticules se situent au sein des grains d'aluminium pour le composite Al/ω-Al-Cu-Fe (Cf. Figure I-37). La présence de ces nanoparticules dans les grains empêche le mouvement des dislocations et génère un durcissement plus élevé pour les composites Al/ω-Al-Cu-Fe. De plus, selon ces auteurs, la forte dépendance en température exclue les mécanismes athermiques de contournement d'Orowan et suggère que la diminution des valeurs de $\sigma_{0,2\%}$ est reliée à des mécanismes thermiquement activés : le contournement des nanoparticules par glissement dévié.

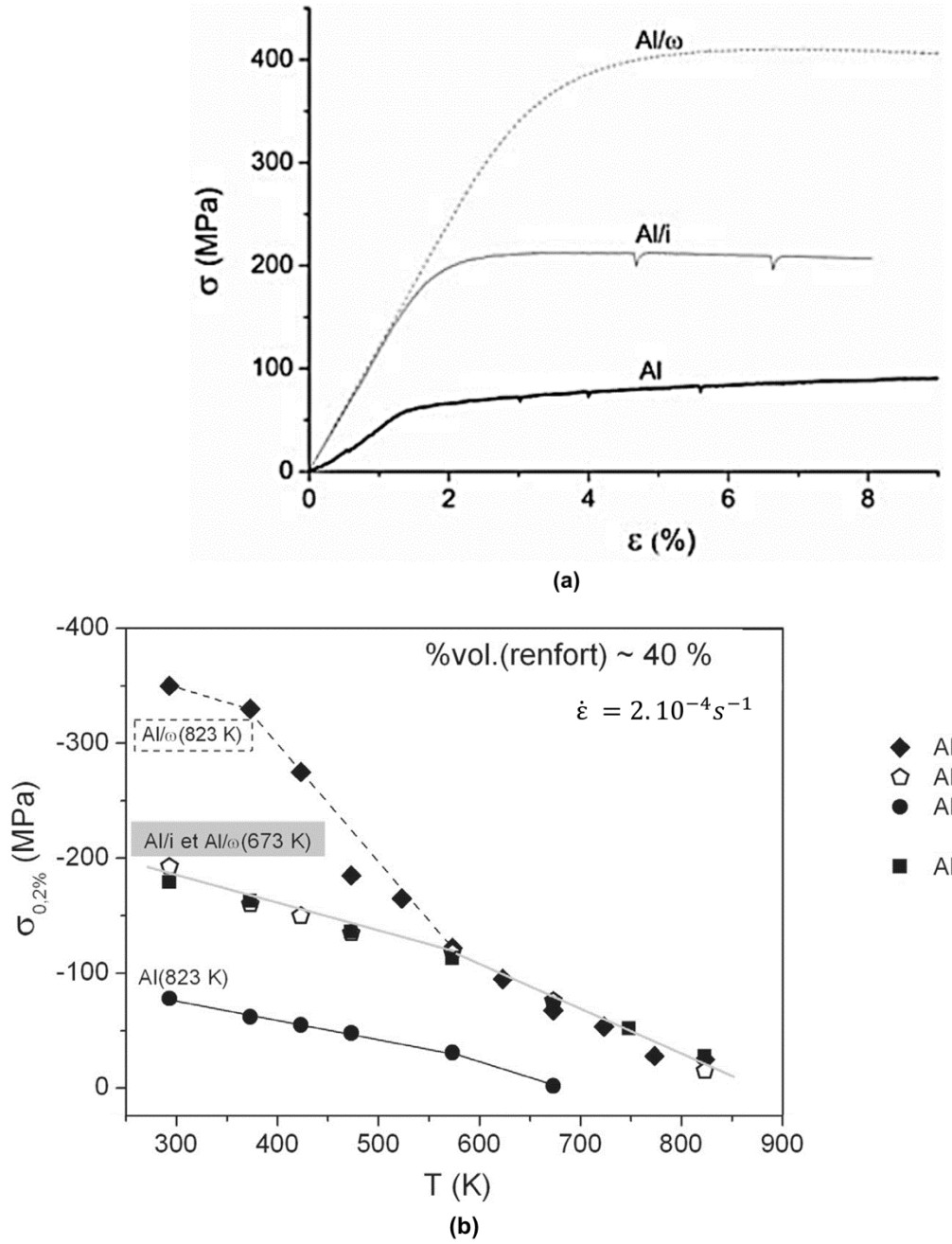


Figure I-36 : (a) Courbes contrainte-déformation en compression à température ambiante de l'aluminium pur et des composites Al/i-Al-Cu-Fe et Al/ω-Al-Cu-Fe [51], (b) variation de la contrainte d'écoulement $\sigma_{0,2\%}$ en fonction de la température pour l'aluminium pur et des composites Al/i-Al-Cu-Fe et Al/ω-Al-Cu-Fe [18].

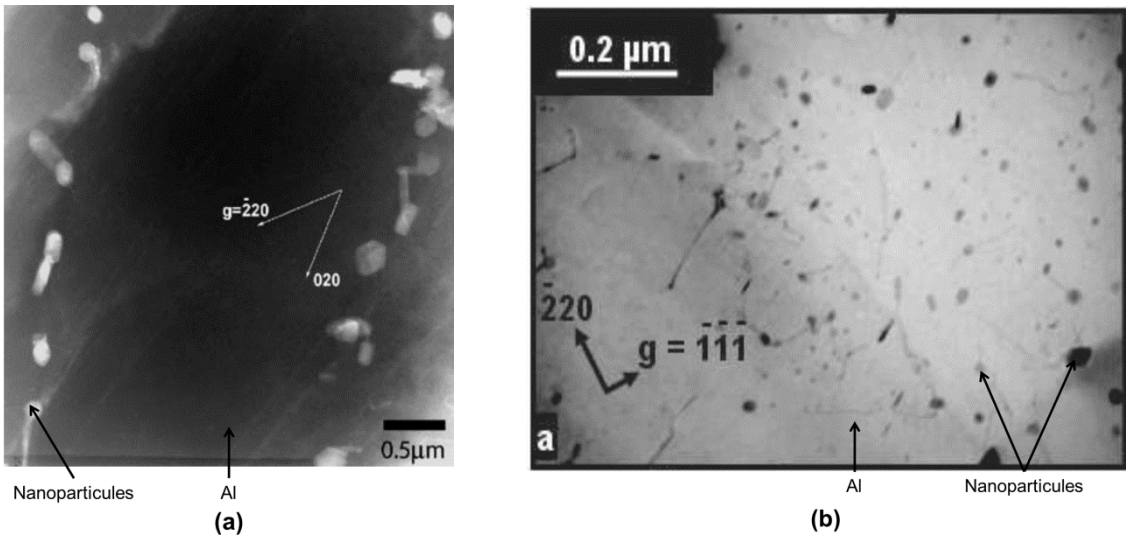


Figure I-37 : Localisation des nanoparticules de renfort au sein des composites (a) Al/i-Al-Cu-Fe [4] et (b) Al/ω-Al-Cu-Fe [18].

II. Techniques expérimentales

II.1. Synthèse

II.1.1. Lingot i-Al-Cu-Fe

Dans le cadre de cette étude, deux lingots de phase Al-Cu-Fe de structure icosaédrique (notée i-Al-Cu-Fe par la suite) différents ont été utilisés et sont dénommés de la façon suivante : lingot 1 et lingot 2.

Le premier lingot a été élaboré par Emmanuelle Giacometti à l'Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne en Suisse [25]. Afin de produire un lingot de phase i-Al-Cu-Fe, les différents éléments (Al, Cu et Fe), présentant une pureté supérieure à 99,99%, sont pesés pour obtenir une composition initiale de 0,64 Al + 0,24 Cu + 0,12 Fe. Ces derniers sont placés dans un creuset en alumine et chauffés dans un four à induction. L'alliage en fusion est versé dans un moule cylindrique en cuivre (20 mm de diamètre) refroidi par une circulation d'eau. Le lingot brut de coulée nécessite un traitement thermique afin d'augmenter la fraction volumique de la phase i-Al-Cu-Fe. Pour cela, le lingot est placé dans un four à canne sous atmosphère d'argon pendant 24h à 1088K.

Le lingot 2 a été synthétisé par Guillaume Laplanche à l'Institut des Matériaux de Bochum en Allemagne. Les éléments Al, Cu et Fe, présentant une pureté supérieure à 99,9 %, ont été utilisés afin d'élaborer un lingot avec une composition initiale $Al_{63,5}Cu_{24}Fe_{12,5}$.
La synthèse du lingot a été réalisée à l'aide d'un four à induction Leybold Heraeus sous atmosphère d'argon. Avant la fusion, les parois du moule ont été recouvertes de zircone afin d'éviter que le lingot ne colle aux parois du moule. Les éléments bruts ont été fondus et coulés dans un moule (40 mm de diamètre) non refroidi. Le lingot brut de coulée a été encapsulé dans un tube en quartz, sous atmosphère d'argon, afin de subir un traitement thermique pendant 24h à 1088K, de la même manière que le lingot 1.

II.1.2. Poudres

Les morceaux de lingot sont broyés à l'aide d'un broyeur planétaire Fritsch Pulverisette P5 afin de produire des poudres. Le broyage s'effectue au moyen de jarres et de billes en acier inoxydable pendant 20 minutes, avec une vitesse de rotation des jarres de 100 tours/min et un rapport masse de bille sur masse de poudre de 11.

II.1.3. Frittage flash (SPS – Spark Plasma Sintering)

La technique de frittage flash (Spark Plasma Sintering ou SPS en anglais) sous charge permet de fritter des échantillons de poudre par l'application d'une pression uni-axiale et d'impulsions de courant électrique intense (entre 750 – 1 200 A) de 3 ms impliquant une montée en température très rapide (de l'ordre de 100 $K.min^{-1}$). Les échantillons présentés dans les prochains chapitres ont été synthétisés par frittage flash, en collaboration avec J.P. Monchoux, au moyen du dispositif Dr. Sinter 2080 Syntex, situé au Centre Inter-universitaire de Recherche et d'Ingénierie des Matériaux (CIRIMAT) à Toulouse.

L'enceinte de réaction du SPS est constituée d'une matrice et de deux pistons cylindriques en graphite permettant de contenir l'échantillon à fritter, de deux électrodes et d'entretoises (Cf. Figure II-1). Les matrices utilisées dans le cadre de ce travail présentent un diamètre intérieur de 8 mm et une hauteur de 3 cm. Les impulsions de courant électrique, provenant des électrodes supérieures et inférieures, sont transmises à la matrice par les entretoises en graphite, à travers les pistons. Ce système permet d'augmenter la température de la matrice par effet Joule. Lors du frittage sous pression, la charge uni-axiale s'applique sur l'échantillon par l'intermédiaire du piston inférieur mobile grâce à l'action d'un groupe hydraulique.

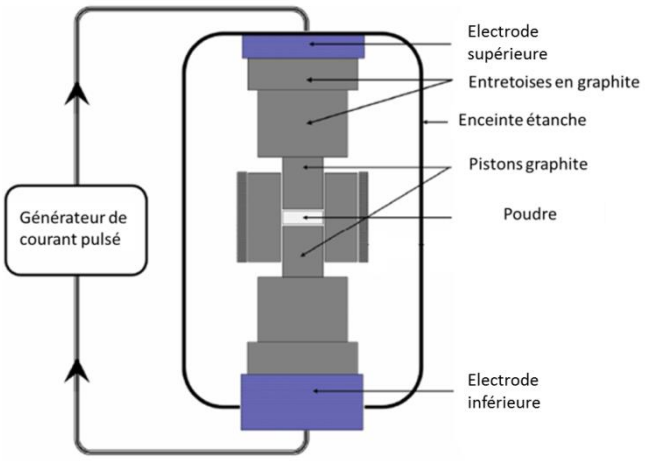


Figure II-1 : Montage expérimental du dispositif de frittage flash.

Les températures atteintes par les échantillons sont mesurées et contrôlées par des thermocouples insérés dans la matrice et par un pyromètre, pour les températures dépassant 843 K. La calibration de la température réelle de l'échantillon, différente de la température mesurée par le thermocouple au niveau de la matrice, a été effectuée en faisant fondre un échantillon témoin d'aluminium dont la température de fusion (933 K) est bien connue [4].

Il en résulte que la température réelle de l'échantillon est plus élevée de 22 K par rapport à celle mesurée par le thermocouple. Toutes les températures présentées dans cette étude correspondent à la température réelle de l'échantillon.

Pour l'élaboration des échantillons, les matrices en graphite sont préalablement tapissées de Papyex (feuille de graphite souple) et chaque base de piston est isolée de l'échantillon à fritter par des pastilles en Papyex. L'insertion de Papyex permet aux pistons de mieux « glisser » dans la matrice. Le Papyex a également pour rôle d'éviter les réactions entre les échantillons et la matrice en graphite lors du traitement thermique.
Une fois l'échantillon inséré dans la chambre SPS, une pré-charge de 0,5 kN est appliquée afin de mettre le piston supérieur en contact avec l'échantillon (constitué du mélange de poudres). Après cette étape, un vide primaire (5 Pa) est réalisé dans la chambre et une mise à zéro de la valeur de déplacement du piston est effectuée. L'échantillon est synthétisé, sous charge uni-axiale, par application d'impulsions de courant électrique de 3 ms.

Lors du frittage, le déplacement du piston, la force et la température sont mesurés et enregistrés. La Figure II-2 représente des courbes types obtenues lors de la synthèse d'un échantillon composite Al/Al-Cu-Fe. Les courbes noir, rouge et bleu représentent l'évolution de la température, de la pression et du déplacement du piston en fonction du temps, respectivement. La température augmente, à une vitesse de 85 $K.min^{-1}$ environ, jusqu'à atteindre la température de consigne (ici, $T_{consigne}$ atteinte au bout de 5 minutes). Dès le début de l'expérience, l'échantillon est mis sous charge et celle-ci augmente rapidement pour atteindre la valeur souhaitée (ici, P = 100 MPa atteinte au bout de 1min). Une fois la température atteinte et le système stabilisé sous charge, l'échantillon est maintenu pendant une durée définie : c'est le temps de maintien. La température est ensuite diminuée et la pression est abaissée brusquement.

Le déplacement du piston est représentatif du comportement de l'échantillon pulvérulent sous l'effet de la charge et de la température. Plusieurs étapes peuvent être distinguées sur ce graphique. Le premier mouvement rapide du piston, de 0 à 1,75 mm, qui correspond au réarrangement des particules, est dû à l'application de la pression. Cela conduit à une diminution du volume occupé par les particules dans la matrice en graphite. La deuxième étape, avec un mouvement relatif du piston de 1,75 à 2 mm, sur une durée plus importante (4 min), correspond à une déformation élasto-plastique des particules et une augmentation des contacts entre les particules. La troisième étape, correspondant à un mouvement brusque du piston, correspond ici à la transformation Al + 30% vol. i-Al-Cu-Fe ➔ Al + 40% vol. ω-Al-Cu-Fe et à la densification du composite formé, sous l'effet de la température et de la pression.

Le piston se stabilise à partir du moment où l'étape de densification est optimisée. Dans ce cas-ci, la pression et la température sont coupées à 8 min.

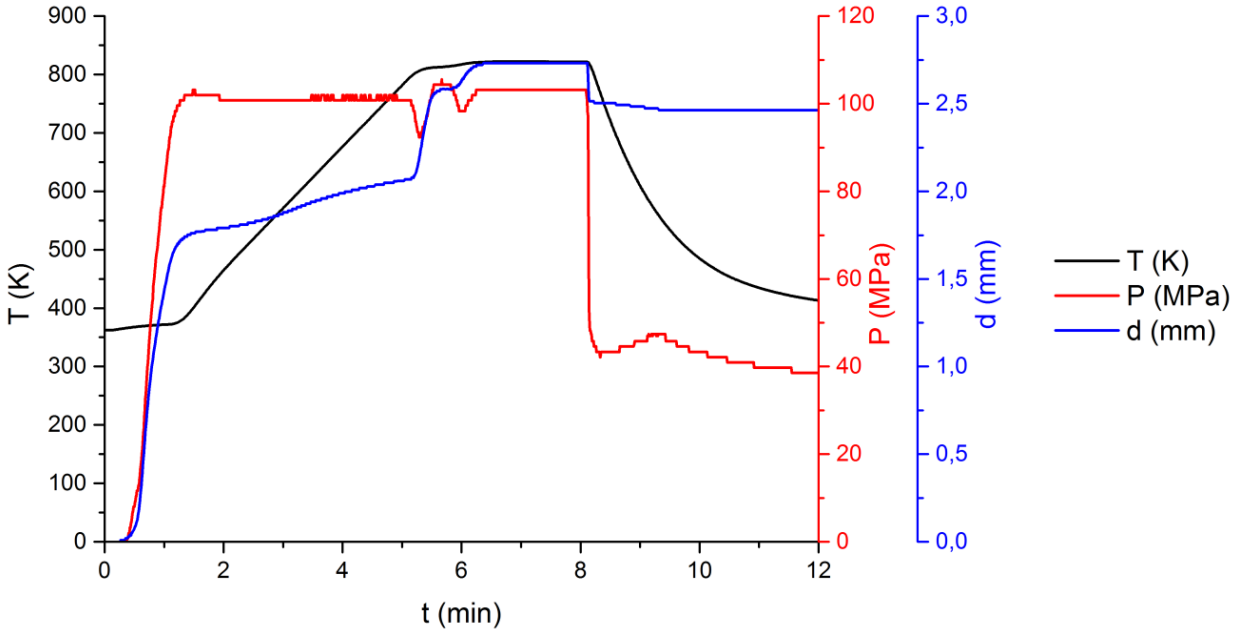


Figure II-2 : Courbes caractéristiques obtenues lors du frittage flash d'un échantillon composite Al/Al-Cu-Fe : pression, température et déplacement du piston en fonction du temps.

II.2. Caractérisations microstructurales

II.2.1. Mesure de la densité apparente

Lors de l'élaboration de matériaux par métallurgie des poudres, ceux-ci présentent généralement de la porosité résiduelle qui peut influencer les propriétés mécaniques. Le taux de porosités total peut être obtenu en calculant la masse volumique apparente. La masse volumique apparente correspond au rapport de la masse de l'échantillon sur le volume apparent. Celui-ci correspond au volume du solide auquel on ajoute le volume total des pores (ouverts + fermés).

La masse volumique apparente ρ_a a été déterminée expérimentalement à partir de la mesure du volume (pied à coulisse) et de la masse (balance) de l'échantillon composite. Les mesures de densité par la poussée d'Archimède n'ont pas été concluantes et ne seront pas présentées.

En considérant un composite Al/ω-Al-Cu-Fe contenant une fraction volumique v_{f_ω} de renfort ω, la masse volumique calculée du composite est définie par :

$$\boldsymbol{\rho_{Cal\ composite} = v_{f_\omega}\rho_\omega + \left(1 - v_{f_\omega}\right)\rho_{Al}} \qquad \text{Équation II-1}$$

où ρ_{Al} et ρ_{ω} sont les masses volumiques respectives de Al et de la phase ω-Al-Cu-Fe.

La masse volumique théorique ρ_{ω} de la phase ω-Al-Cu-Fe est calculée à partir de la masse et du volume de la maille élémentaire, de la façon suivante :

$$\rho_{\omega} = \frac{m_{me}}{V_{me}} = \frac{4\,(7\,M_{Al} + 2\,M_{Cu} + M_{Fe})}{N_a\,a\,c^2}$$

avec N_a le nombre d'Avogadro, a et c les paramètres de maille (voir chapitre I) et M_{Al}, M_{Cu}et M_{Fe} les masses molaire de l'aluminium, du cuivre et du fer.

La densité relative apparente correspond au rapport de la masse volumique apparente expérimentale ρ_a et de la masse volumique calculée $\rho_{Cal}\ composite$.

II.2.2. Mesure de la taille de grain

Afin de mesurer la taille des grains d'aluminium au sein des échantillons composite, un échantillon préalablement poli selon le protocole défini à la section II.2.4.4, a subi une attaque chimique. Pour ce faire, une solution contenant 3 gouttes d'acide fluorhydrique HF (préalablement dilué à 10 %) et 20 ml d'eau distillée a été préparée. Une goutte de cette solution a été déposée sur la surface de l'échantillon, à l'aide d'une pipette, pendant une dizaine de secondes. L'échantillon est ensuite rincé avec de l'eau distillée puis séché et la surface est observée par microscopie optique.
La mesure de la taille de grains a été réalisée, par analyse d'images, à l'aide du logiciel Avizo sur une surface de 1 mm². Les contours des grains ont été contrastés avec la fonction « sobel filter », puis l'image a été binarisée. Par la suite, le logiciel distingue et « labellise » chaque grain avec les fonctions « separate objects » et « labeling », respectivement. Une statistique en diamètre équivalent surfacique est réalisée, ce qui correspond au diamètre de la sphère ayant la même surface externe que la particule. Enfin, des histogrammes de fréquence relative et fréquence cumulée relatifs au diamètre équivalent surfacique des grains d'aluminium sont établis.

II.2.3. Diffraction des rayons X (DRX)

Dans un matériau cristallin, les éléments (atomes, molécules) sont répartis périodiquement sur des plans parallèles appelés plans inter-réticulaires (h, k, l). Lorsqu'un faisceau parallèle de rayons X monochromatique est projeté sur la surface de l'échantillon, les rayons sont diffusés par les atomes de

chaque plan (Cf. Figure II-3). Pour qu'il y ait diffraction, il faut que les différentes ondes diffusées interfèrent de manière constructive. Pour cela, la différence de marche de deux rayons doit être proportionnelle à la longueur d'onde λ. C'est ce qu'on appelle la loi de Bragg :

$$2d_{hkl}\sin\theta = n\lambda \qquad \textbf{Équation II-2}$$

avec θ l'angle d'incidence des rayons X, λ la longueur d'onde, n un entier, d_{hkl} la distance interréticulaire et $2d_{hkl}\sin\theta$ la différence de marche.

Par la loi de Bragg, chaque pic peut être associé à un plan réticulaire désigné par les indices de Miller (h, k, l). Les pics de diffraction sont donc caractéristiques de la structure cristallographique du matériau.

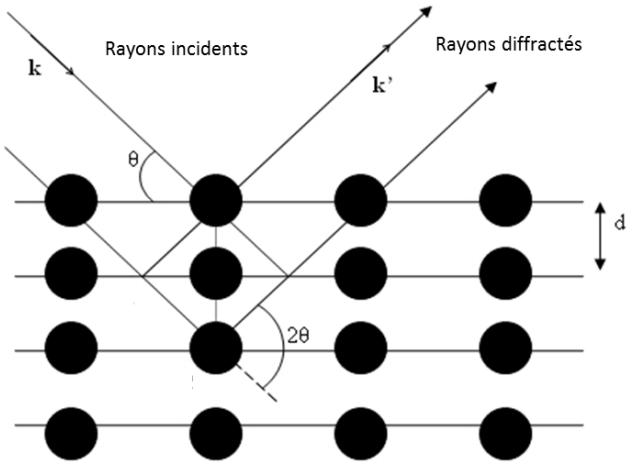


Figure II-3 : Schématisation de la diffraction des rayons X par les atomes de chaque plan.

La diffraction des rayons X nous a permis d'identifier la structure des différentes phases présentes dans le matériau analysé. Ces analyses ont été réalisées avec un diffractomètre Bruker D8 Advance équipé d'un tube à anticathode de cuivre produisant des rayons X de longueur d'onde λ = 1,54 Å et d'un détecteur de rayons X Lynxeye. L'analyse des diffractogrammes s'est faite au moyen du logiciel EVA.

Le montage utilisé est dit diffractomètre Bragg-Brentano avec une configuration θ-θ. L'échantillon est immobile et seule la source de rayons X et le détecteur sont en mouvement de manière symétrique autour de l'échantillon pour effectuer un balayage en angle θ, comme présenté sur la Figure II-4.

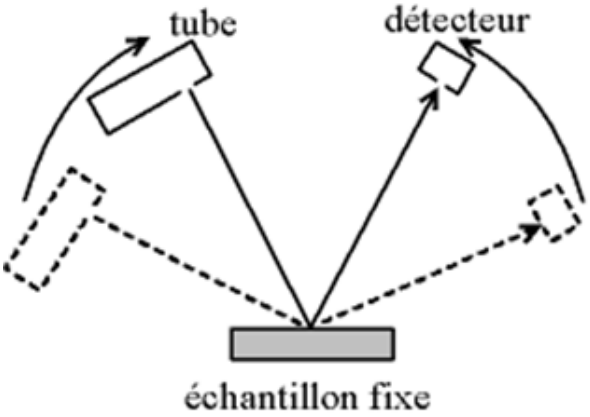


Figure II-4 : Montage θ-θ d'un diffractomètre Bragg-Brentano.

II.2.4. Microscopie électronique à balayage (MEB) et analyse chimique

II.2.4.1. Mode d'imagerie électronique

Le principe du microscope repose sur le balayage de la surface de l'échantillon et l'acquisition du signal émis par l'échantillon à partir des interactions électrons-matière. En fonction de la tension d'accélération appliquée et des différents éléments en présence, les interactions entre les électrons et la matière se confinent dans un volume défini comme étant la « poire d'interaction » (Cf. Figure II-5). Lorsque le faisceau d'électrons entre en collision avec l'échantillon, différents types d'émissions peuvent être distingués : les émissions électroniques (rétrodiffusés, secondaires ou Auger) et les émissions de photons X.

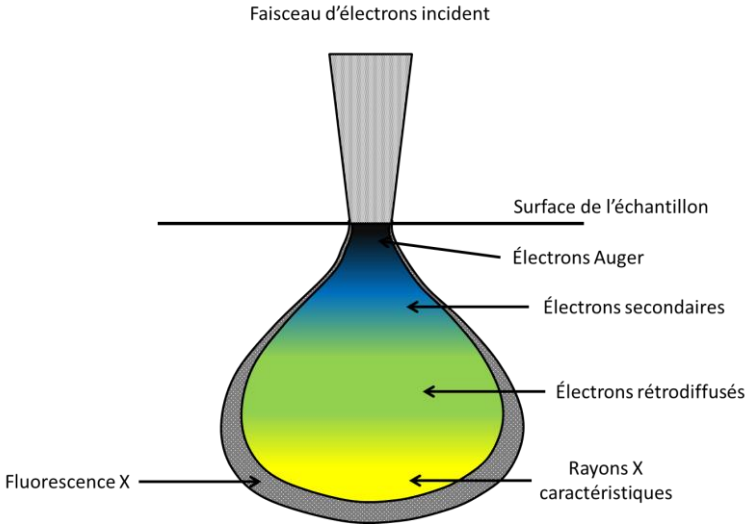


Figure II-5 : Schéma de la poire d'interaction produite sous l'impact d'un faisceau électronique.

Les principaux modes d'observation utilisés dans le cadre de cette étude résultent d'émissions électroniques secondaires ou rétrodiffusées. Les électrons secondaires permettent une observation de la surface avec un meilleur contraste topographique et une meilleure résolution spatiale latérale que les électrons rétrodiffusés. Ces derniers sont utilisés pour observer les contrastes chimiques.

Les observations microstructurales sont réalisées au moyen d'un Microscope Electronique à Balayage à effet de champ (MEB-FEG) analytique JEOL 7001-TTLS. Le microscope permet de travailler à des tensions d'accélération variant entre 0,1 et 30 kV et assure une résolution atteignant 1,2 nA à 30 kV. Dans le cadre de ce travail, les micrographies présentées seront majoritairement réalisées en mode rétrodiffusé, pour une tension d'accélération de 15 kV, choix qui sera argumenté dans la sous-partie suivante.
Par ailleurs, plusieurs micrographies de la surface des échantillons prises à faible grandissement ont permis de déterminer la proportion surfacique des différentes phases présentes, à l'aide du logiciel ImageJ.

II.2.4.2. Spectrométrie dispersive en énergie

La composition chimique des phases en présence dans les différents échantillons est mesurée par spectrométrie dispersive des rayons X en énergie (EDX pour Energy Dispersive X-ray spectroscopy en anglais), technique permettant une analyse qualitative et quantitative chimique locale ou globale des matériaux. Ces analyses sont effectuées au moyen du même MEB-FEG JEOL 7001-TTLS associé à un spectromètre de rayons X par dispersion d'énergie (Oxford Instruments), qui permet une détection sélective en énergie des photons X émis lors des interactions des électrons avec la matière. Les spectres obtenus, intensité en fonction de l'énergie en keV, sont dépendants des éléments analysés et renseignent sur la nature des éléments et la composition relative de l'échantillon.
Toutes les analyses sont faites pour une tension d'accélération de 15 kV, ce qui permet un compromis satisfaisant entre la profondeur de la poire d'interaction (~ 3 µm) et l'erreur à prendre en compte sur les mesures. En effet, à 15kV, les raies K_α, plus énergétiques, sont présentes pour l'aluminium, le cuivre et le fer, ce qui permet de réduire l'incertitude sur les mesures. Pour chacune des analyses, il faut considérer une incertitude expérimentale de 1 % atomique. De manière à obtenir une bonne statistique, les valeurs de composition des différentes phases présentées sont moyennées sur une dizaine de mesures.

II.2.4.3. MEB-FEG avec platine chauffante

L'observation de l'évolution de la microstructure des échantillons au cours d'un traitement thermique a été réalisée au moyen du MEB-FEG Zeiss Supra 55VP équipé d'une platine chauffante GATAN H1002D (inclinable à 70°) et d'un système d'analyse chimique à dispersion d'énergie EDAX, à l'Institut de Chimie Moléculaire et des Matériaux d'Orsay (ICMMO) en collaboration avec François Brisset. La réalisation de ces essais nécessite l'utilisation d'échantillons dont l'épaisseur ne dépasse pas 1 mm, afin d'assurer un chauffage homogène. La température est mesurée à l'aide d'un thermocouple Chromel/Alumel avec une précision de l'ordre de 3 K.

Les échantillons subissent un chauffage jusqu'à 833 K environ avec une vitesse de chauffe de l'ordre de 20 K/min. La température a été augmentée par pas de 100 K jusqu'à 573 K. Au-delà, des pas de 50 K puis 10 K ont été appliqués afin de suivre avec précision l'évolution de la microstructure lors de la transformation Al + i-Al-Cu-Fe → Al + ω-Al-Cu-Fe (Cf. Figure II-6). Les échantillons sont refroidis sur la platine et sous vide, chauffage coupé.

Lors du traitement thermique, les rayonnements induits par le chauffage ont perturbé les analyses chimiques in-situ, seules des micrographies en mode rétrodiffusé sont donc enregistrées à chaque étape du chauffage et du refroidissement. Les analyses chimiques ont été effectuées sur les échantillons post-mortem au moyen du MEB-FEG JEOL 7001-TTLS et les observations in-situ sont toutes réalisées pour une tension d'accélération de 15 kV.

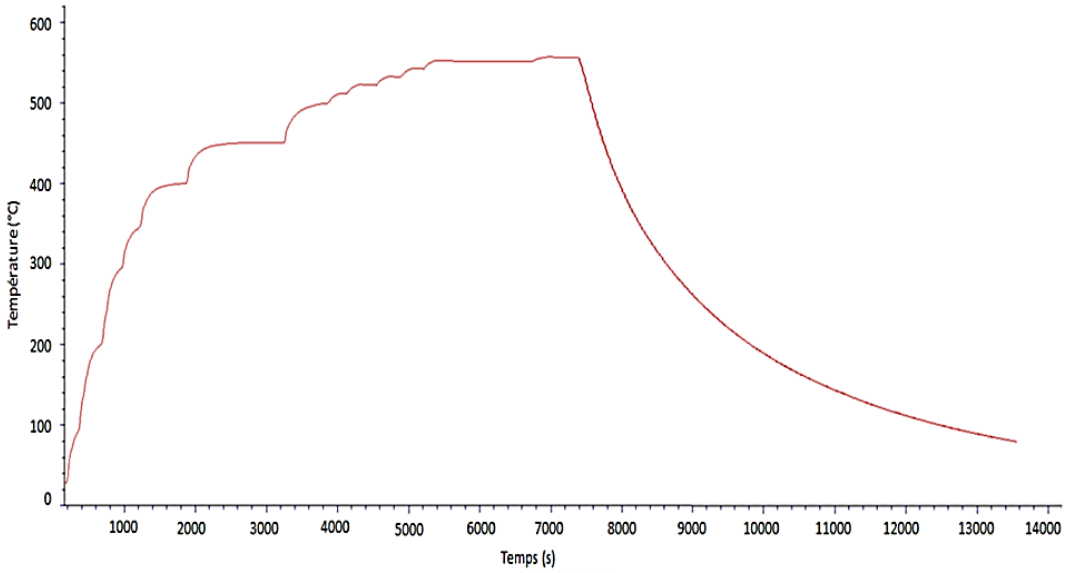


Figure II-6 : Traitement thermique appliqué via la platine chauffante du MEB sur un échantillon composite Al/i-Al-Cu-Fe.

II.2.4.4. Préparation des échantillons

Selon la géométrie et la taille des échantillons, ces derniers sont collés sur des supports de polissage ou enrobés. L'enrobage à chaud (453 K), sous l'application d'une pression de 5 bar, consiste à placer l'échantillon dans une résine phénolique thermodurcissable « PolyFast » à charge de carbone. Cette résine est conductrice ce qui permet l'observation au MEB.

Pour observer les échantillons, ceux-ci doivent présenter une surface propre, plane et polie miroir. Pour cela, un polissage mécanique est nécessaire. Les différentes étapes de polissage permettent de supprimer les déformations induites aux étapes précédentes. Pour se faire, des passages successifs sont effectués avec des particules abrasives de plus en plus fines. Il est possible de distinguer plusieurs étapes dans le processus de polissage : le pré-polissage, le polissage diamanté et le polissage aux oxydes. L'étape de pré-polissage permet d'obtenir une surface plane avec un taux d'enlèvement de matière important tout en supprimant les dommages et déformations existants en surface. Le polissage diamanté assure un enlèvement de matière élevé et rapide avec une meilleure planéité. Le polissage aux oxydes combine un polissage mécanique doux et chimique qui permet l'élimination de la dernière couche de déformation présente en surface (rayures, écrouissage).

Dans cette étude, deux types de séquence de polissage sont appliqués en fonction des observations à réaliser. La première séquence de polissage concerne les échantillons observés et analysés au MEB-FEG 7001-TTLS. Pour cela, les échantillons sont polis sous eau distillée, avec des disques SiC, dont la granulométrie diminue au fur et à mesure du polissage (disques 600 à 2400). Pour le polissage diamanté, des draps de polissage de type MD Dac et MD Nap associés à des suspensions diamantées 6 à 3 µm et 1 à ¼ µm, respectivement, ont permis un polissage plus fin de la surface. Le polissage final est effectué avec un disque MD Chem associé à une suspension de silice colloïdale avec une taille de grain de 40 nm. Le disque MD Chem présente un niveau de résistance chimique élevé et est idéal pour le polissage aux oxydes. Afin d'éliminer les résidus de particules d'oxydes présents sur la surface, un deuxième disque MD Chem est utilisé pour nettoyer l'échantillon avec de l'eau distillée.

Le polissage des échantillons dédiés aux traitements thermiques in-situ au MEB ont suivi les étapes de polissage décrites ci-dessus : pré-polissage avec des disques SiC, polissage diamanté et aux oxydes. Cependant, pour mieux observer les interactions entre l'aluminium et les particules de renfort lors du chauffage, il a fallu réduire le décalage de hauteur entre les deux phases. En effet, l'aluminium ductile, se polit plus rapidement que les particules de renfort, plus dures. Afin de limiter les effets de polissage préférentiel, les étapes du polissage avec les suspensions diamantées à 6 et ¼ µm sont supprimées.

II.2.5. Microscopie électronique en transmission (MET)

II.2.5.1. Contraste de diffraction

L'observation d'échantillons au Microscope Electronique en Transmission (MET) permet d'obtenir des informations sur la microstructure locale à l'échelle de quelques nanomètres, et plus précisément sur les défauts, précipités et déformations présents dans le matériau. Les observations sont réalisées avec un microscope Philips CM20, équipé d'un filament LaB_6 et fonctionnant sous une tension d'accélération de 200 kV avec un porte-objet double tilt.

Afin de réaliser des micrographies, l'échantillon est généralement placé en condition de deux ondes, en mode champ clair et champ sombre. Les dislocations ont été imagées avec la technique dite « faisceau faible » (Weak Beam en anglais).

De l'imagerie en mode STEM (champ clair) est également réalisée à l'aide d'un microscope JEOL 2100 UHR à l'Institut de Chimie des Milieux et Matériaux de Poitiers (IC2MP) en collaboration avec Julie Rousseau. Celui-ci est équipé d'un filament LaB_6 et travaille sous une tension d'accélération de 200 kV.

II.2.5.2. Spectrométrie en énergie

Les analyses chimiques ont été réalisées au moyen du même microscope électronique en transmission JEOL 2100 UHR équipé d'un filament LaB_6 et d'un spectromètre à dispersion d'énergie EDAX. Les analyses chimiques reposent sur le même principe que celles effectuées au MEB : les rayonnements X des atomes constituant le matériau sont étudiés.

Toutes les analyses sont faites pour une tension d'accélération de 200 kV sur des lames minces de composites Al/Al-Cu-Fe. Pour chacune des analyses, il faut considérer une incertitude expérimentale de 10 % atomique en raison d'un temps d'acquisition faible.

II.2.5.3. MET in-situ

Les traitements thermiques in-situ au MET ont porté sur l'observation de la microstructure, en particulier des précipités présents au sein de la matrice Al, sous l'effet de la température. Ils sont effectués à l'aide d'un microscope électronique en transmission JEOL 2200 FS qui possède une source FEG et travaille à une tension d'accélération de 200 kV. Ce microscope est également constitué d'un filtre en énergie « *in-column* » de type Oméga.

La lame mince est placée sur un porte-objet chauffant simple tilt Gatan modèle 628 dont la partie métallique est composée d'Inconel, un matériau avec un point de fusion élevé. Le porte-objet est chauffé à l'aide d'un fil résistif via le passage d'un courant électrique. La température est mesurée par un thermocouple qui est en contact avec l'élément chauffant. L'incertitude maximale entre la température réelle et la température imposée, estimée à 20 K, dépend de la nature chimique de l'échantillon, de sa position sur la grille et de l'élément utilisé pour le coller sur la grille.

Les échantillons subissent un chauffage jusqu'à 573 K environ. La température a été augmentée par pas de 100 K jusqu'à 573 K. La lame mince est refroidie, chauffage coupé. Des micrographies en champ clair sont prises à chaque étape du chauffage et du refroidissement.

II.2.5.4. Préparation des lames

Pour observer des échantillons au MET, il est nécessaire d'avoir des zones transparentes aux électrons. Dans cette étude, les lames minces sont obtenues à partir d'échantillons massifs qui sont amincis mécaniquement au moyen d'un tripode puis la transparence est obtenue par bombardement ionique [52].

L'amincissement mécanique a pour but l'obtention d'une lame mince d'épaisseur inférieure à 20 µm, présentant deux faces parallèles. Pour cela, des lames d'environ 300 µm d'épaisseur sont découpées dans des échantillons massifs à l'aide d'une scie à fil diamanté. Les lames sont collées sur un plot pyrex, dont la planéité a été vérifiée, puis fixées sur un tripode. Un tripode est un support maintenu sur trois pieds dont les hauteurs sont réglées à l'aide de trois vis micrométriques. Les deux faces de la lame sont polies, à l'eau distillée, à l'aide de disques de polissage (en polyester incrusté de grains de diamants), dont la granulométrie varie de 9 à 0,5 µm, jusqu'à l'obtention d'une lame d'épaisseur inférieure à 20 µm. Les lames sont ensuite collées sur des grilles en molybdène. Les échantillons étant en partie composés de cuivre, l'utilisation des grilles en Cu est exclue et celle en Mo ne faussera pas les analyses chimiques. De plus, avec un point de fusion élevé, le Molybdène permettra la réalisation de traitements thermiques in-situ (Cf. II.2.5.3).

L'amincissement par bombardement ionique est réalisé avec un amincisseur de précision (Precision Ion Polishing System (PIPS) en anglais) de chez Gatan. Cette étape consiste en l'abrasion et l'arrachement des atomes de la surface de l'échantillon par un faisceau d'ions argon accélérés. Cette technique permet d'obtenir une zone amincie jusqu'à transparence aux électrons. Pour cela, le faisceau d'ions bombarde les deux faces de l'échantillon avec de faibles angles d'incidence (< 10°).

Parallèlement, l'échantillon est mis en rotation afin d'optimiser le perçage de la surface et l'amincissement des bords du trou. Les deux faces de l'échantillon sont attaquées avec un faisceau d'ions positionné à ± 8°, avec une tension de 3 kV. Dans la phase finale de préparation, il est nécessaire de diminuer la tension et l'angle d'incidence du faisceau : une fois l'échantillon percé, l'angle du faisceau d'ions est abaissé à ± 3° et une tension de 2,5 kV est appliquée de manière à élargir la zone mince et à minimiser les dégâts d'irradiation sur la surface de l'échantillon (amorphisation).

II.3. Essais mécaniques

II.3.1. Essais de compression à vitesse imposée

L'objectif des essais de compression est l'obtention de courbes contrainte-déformation en température. Les essais sont effectués avec une machine de compression verticale Instron 1195 qui possède une cellule de force de charge nominale de 5 kN. La machine de compression est pilotée par un programme créé avec le logiciel LabVIEW. Durant les essais, la force et le déplacement de la traverse sont mesurés et enregistrés. Un capteur de déplacement Tesatronic TT20 permet de suivre l'avancement de la traverse, et donc, la variation de longueur de l'éprouvette. La résolution d'acquisition est de l'ordre du micron. Ces informations sont traitées par le programme, ce qui permet de calculer et de suivre l'évolution de la contrainte et de la déformation appliquées à l'échantillon. La vitesse de déplacement de la traverse est fixée à 50 µm/min et la vitesse de déformation au sein de l'échantillon est de $1{,}4.10^{-4}$ s^{-1}. Les différentes parties du montage sont présentées Figure II-7.
Les essais de compression se font sous argon et pour des températures comprises entre la température ambiante et 823 K. La chambre contenant les éprouvettes est chauffée à l'aide d'un four à lampe (ou four image) qui encercle le tube en quartz. En effet, les parois du four engendrent une réverbération et une concentration de la chaleur, provenant des lampes halogènes, au centre de la chambre. Ce type de four assure un chauffage rapide et une bonne régulation de la température. La température est augmentée manuellement par pas de 50 K. Les paliers entre chaque pas est de l'ordre d'une dizaine de minutes afin d'atteindre l'équilibre thermomécanique du montage. Lors de la montée en température, les échantillons sont maintenus en mode « charge contrôlée ».

Pour les essais de compression, les éprouvettes sont découpées dans des échantillons massifs à l'aide d'une scie à fil diamanté. Les éprouvettes se présentent sous forme d'un parallélépipède de dimension finale 2,5 x 2,5 x 6 mm^3. Les faces de compression sont polies mécaniquement avec des disques SiC 4000 afin d'assurer une bonne planéité. Les échantillons sont collés sur des plaquettes d'alumine, qui permettent d'éviter les possibles déformations et les réactions avec le montage. La tige supérieure

mobile est mise en contact avec l'échantillon et une charge de 10N est appliquée afin d'immobiliser et de limiter les vibrations au niveau de l'éprouvette, lors de l'insertion du tube en quartz.

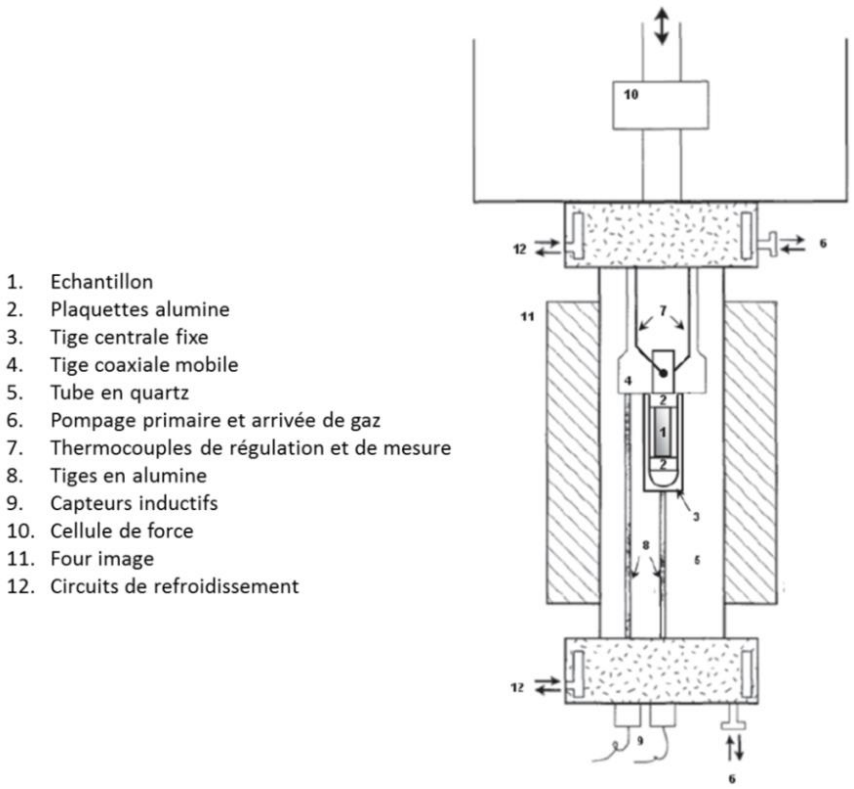


Figure II-7 : Montage expérimental de la machine de compression Instron 1195, à partir de Laplanche [18].

II.3.2. Essais de nanoindentation

II.3.2.1. Dispositif expérimental

Les essais de nanoindentation sont réalisés avec un nano-indenteur U-HNT Anton-Paar. La tête d'indentation est composée de deux colonnes d'indentation symétriques : une colonne d'indentation et une colonne de référence active et asservie (Cf. Figure II-8). Ces colonnes possèdent chacune leur propre cellule de charge composée d'un ressort (K_1 et K_2), comprimé par un actuateur piézoélectrique, et d'un capteur capacitif qui permet la mesure de la charge (C_1 et C_3). Le capteur capacitif C_2 permet une mesure capacitive du déplacement de l'indenteur et de la référence. Le déplacement de l'indenteur se fait par rapport à la référence active.

Dans le cas de cet indenteur, il y a une mesure indépendante de la force et du déplacement. Un seul des deux signaux est utilisé pour piloter l'indenteur en réalisant un asservissement avec les actuateurs

piézoélectriques. L'asservissement sur la référence active compense les vibrations et les dérives thermiques, ce qui apporte de la stabilité.

L'échantillon est collé sur un support normalisé puis fixé sur la table motorisée du nano-indenteur. Au début de l'essai, les deux colonnes sont mises en contact avec la surface de l'échantillon, par la présence de capteur capacitif différentiel. La colonne de référence effectue une mesure de la charge qu'elle applique, une boucle de rétroaction est faite afin de maintenir cette force. La pointe utilisée dans cet appareillage est une pointe Berkovich qui a une géométrie pyramidale à base triangulaire.

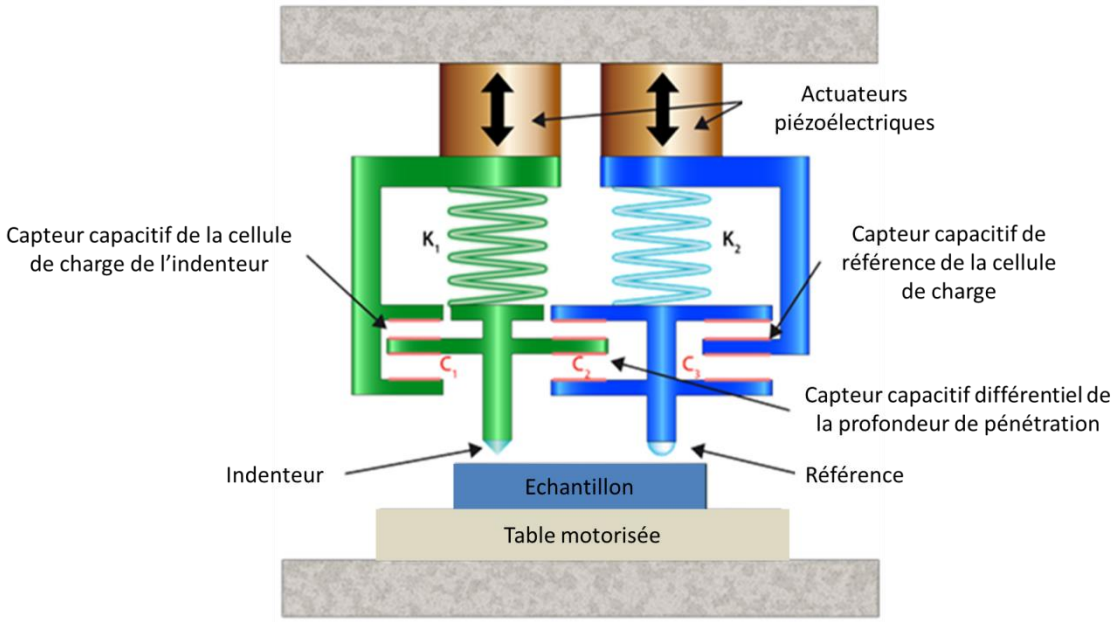


Figure II-8 : Schéma du montage de nanoindentation [53].

II.3.2.2. Description de l'essai de nanoindentation

Deux types d'asservissement sont disponibles : en force ou en déplacement. Dans le cas d'un asservissement en force, l'évolution de la force au cours du temps est imposée. Pour un asservissement en déplacement, c'est la profondeur de pénétration dans l'échantillon qui est imposée. Dans notre cas, les deux phases du composite étudié présentent un fort contraste de dureté. Pour se placer dans les mêmes conditions, c'est-à-dire des tailles d'empreintes similaires, le mode « déplacement contrôlé » sera privilégié.

Lors des essais de nanoindentation, la charge appliquée et le déplacement sont mesurés et enregistrés par un système d'acquisition, ce qui permet de tracer une courbe force-déplacement (Cf. Figure II-9). Les courbes obtenues sont constituées d'une partie de charge et d'une partie de décharge. C'est la partie décharge, supposée correspondre à un comportement élastique, qui est utilisée pour déterminer les différents paramètres permettant de calculer la dureté et le module d'Young du matériau.

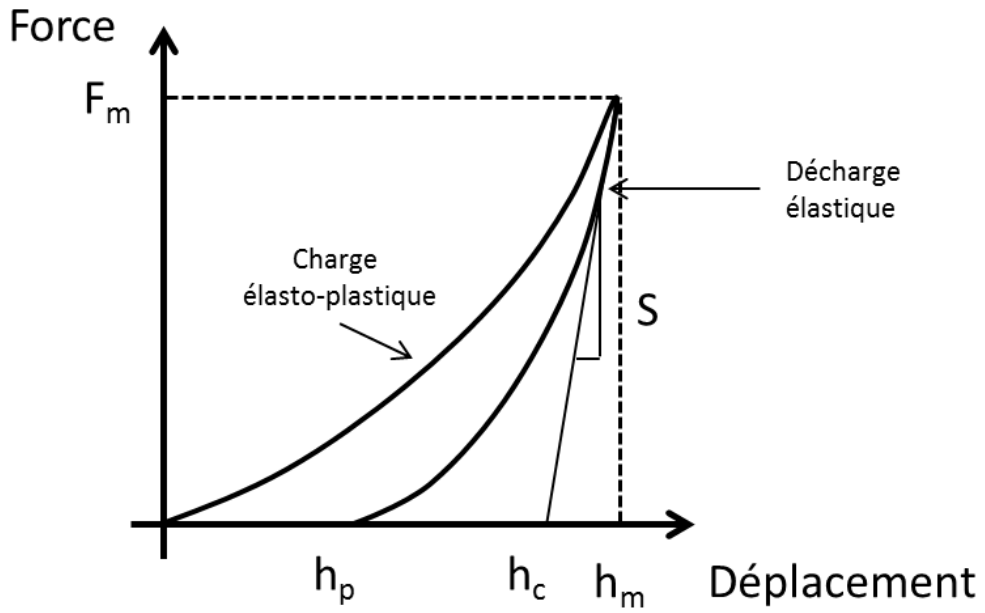


Figure II-9 : Courbe caractéristique d'un essai de nanoindentation représentant l'évolution de la charge en fonction du déplacement.

La dureté H se définit comme le rapport de la force maximale F_m atteinte lors de l'indentation et l'aire de contact projetée sous charge A_c. Elle est définie de la façon suivante :

$$\boldsymbol{H = \frac{F_m}{A_c}} \qquad \textbf{Équation II-3}$$

La valeur de A_c n'est pas accessible directement lors de l'essai. Celle-ci dépend de la forme du poinçon et de la profondeur de pénétration sous contact h_c (Cf. Figure II-10). La forme de l'indenteur est déterminée par le modèle de Woirgard et Dargenton [54] à partir de la courbe de décharge et de la profondeur de pénétration sous contact h_c, est définie de la façon suivante :

$$\boldsymbol{h_c = h_m - \varepsilon \frac{F_m}{S}} \qquad \textbf{Équation II-4}$$

avec h_m la profondeur de pénétration maximale, F_m la force maximale, S la pente de la courbe de décharge et ε un coefficient dépendant de l'indenteur et calculé à partir de la forme de la courbe. De

plus, sachant que la forme du poinçon évolue au cours du temps, celle-ci est systématiquement étalonnée avant et après la mesure.

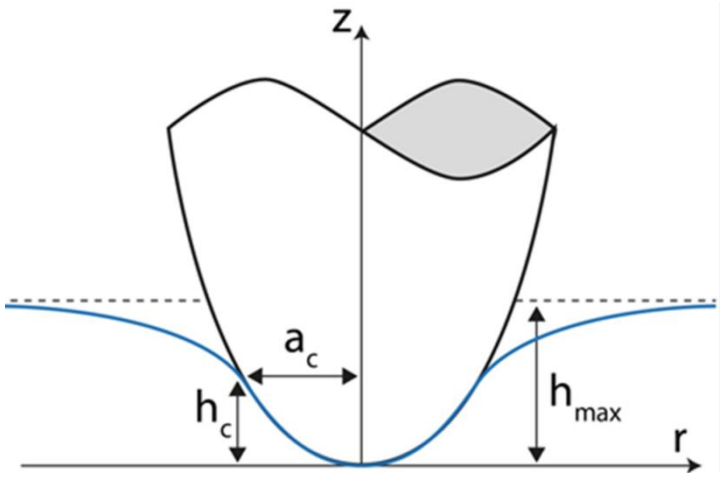


Figure II-10 : Schéma de l'enfoncement de l'indenteur au sein d'un matériau lors d'un essai de nanoindentation [53].

II.3.2.3. Préparation des échantillons

Lors des essais de nanoindentation, la planéité de la surface de l'échantillon à indenter est un élément essentiel à prendre en compte. La présence de rugosité importante (dépassant quelques pourcents de la profondeur de pénétration voulue) est source d'erreur lors des essais de nanoindentation. En effet, l'aire de contact de la pointe d'indentation est déterminée à partir de la profondeur de l'empreinte. Quand la surface est rugueuse ou inclinée, cela conduit à une fausse détermination de la profondeur et à une déformation de l'empreinte, il est donc nécessaire d'effectuer un polissage de la surface. Cependant, le polissage par rayure et abrasion peut écrouir et modifier les propriétés mécaniques de l'échantillon. C'est pour cela qu'un polissage mécano-chimique sera privilégié.

Les échantillons ont été polis avec une polisseuse automatique permettant de polir simultanément trois échantillons. Le polissage peut être divisé en deux séquences : le polissage mécanique conventionnel et le polissage mécano-chimique.

Concernant le polissage mécanique conventionnel, différents types de disques ont été utilisés suivant l'avancement et l'état de surface. Tout d'abord, la première étape concerne le pré-polissage fin à l'aide de disques MD Piano Struers (pellets diamants incrustés dans de la résine) et d'eau distillée. Ces disques sont particulièrement adaptés au polissage de matériaux durs ou tendres, ce qui, dans le cas des composites, permet d'assurer une planéité optimale de l'échantillon. De plus, l'indenteur impose que l'échantillon présente les deux faces parallèles.

La première face de l'échantillon a été polie avec un disque MD Piano 500 afin d'obtenir une surface parallèle. La deuxième face a subi toutes les étapes de polissage avec les disques MD Piano (500 à 4000). La suite du polissage s'est faite avec des draps de polissage MD Dac et MD Nap avec des

solutions diamantées allant de 6 à ¼ de µm. Le polissage final consiste en l'élimination de la couche de réaction et d'écrouissage à la surface de l'échantillon par l'utilisation d'une suspension de silice colloïdale fine amorphe. Cet abrasif mécano-chimique permet d'obtenir une rugosité très faible et une bonne finition. Deux paramètres ont été contrôlés pour toutes les étapes du polissage : une rotation de 150 tours/min et une charge de 5 N.

Pour obtenir une surface très propre, l'échantillon est nettoyé avec un liquide tensioactif non ionique et une éponge à base d'alcool polyvinylique (PVA), douce et hydrophile, qui ne raye pas l'échantillon. Un flux de neige carbonique est également utilisé : les petits cristaux de CO_2 se comportent comme des projectiles permettant d'éjecter de la surface de l'échantillon les particules encore présentes et d'éliminer la contamination organique.

L'indenteur est couplé à un microscope optique et à une table motorisée XY qui présente une précision de repositionnement de 1 µm. Ce type de configuration permet de programmer un large réseau d'empreintes afin de reconstruire une carte de dureté.

III. Elaboration

III.1. Poudres initiales

Les échantillons composites sont synthétisés à partir de poudre d'aluminium commerciale (Alfa Aesar, 45-420 µm, 99,8%) et de particules Al-Cu-Fe. Comme précisé dans le chapitre précédent, deux lingots de phase icosaédrique sont utilisés (lingot 1 et 2). Les deux lingots sont analysés par DRX afin de vérifier leur structure cristallographique. Le diffractogramme présenté Figure III-1 indique que le lingot 1 est majoritairement composé de la phase icosaédrique i-Al-Cu-Fe. Il contient également les phases λ-$Al_{13}Fe_4$ et β-Al-Cu-Fe. La phase λ-$Al_{13}Fe_4$ a été indexée à partir de la fiche JC-PDS 2-1213 et la phase i-Al-Cu-Fe, à partir des analyses menées par Ishimasa et al. [55,56].

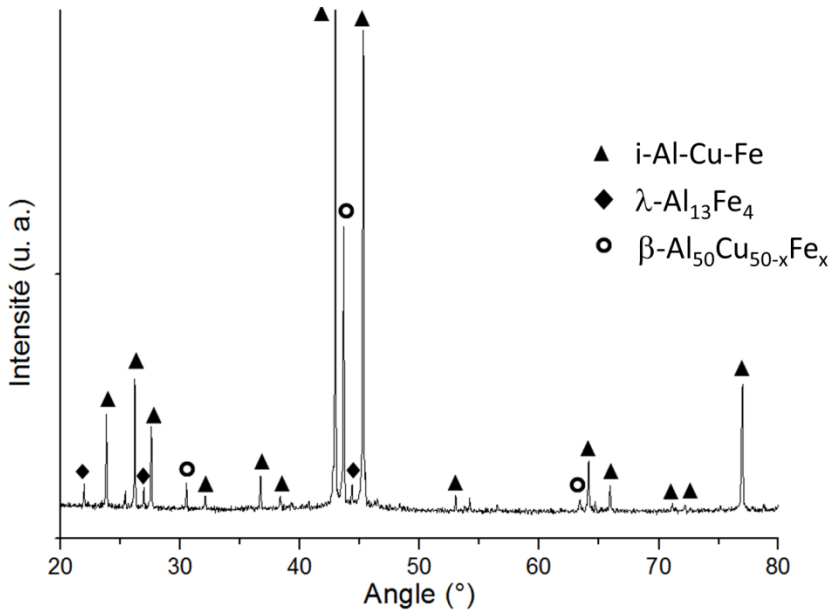


Figure III-1 : Diffratogramme relatif au lingot 1.

La présence de ces trois phases est confirmée par les analyses EDX couplées aux observations MEB effectuées sur le lingot 1. La micrographie MEB (Cf. Figure III-2) met en évidence la phase i-Al-Cu-Fe, ainsi que les phases λ et β minoritaires présentes principalement à proximité des porosités. La nature des phases indexées par DRX, les pics inconnus non indexés et la composition des différents composés sont reportés dans la Table III-1.

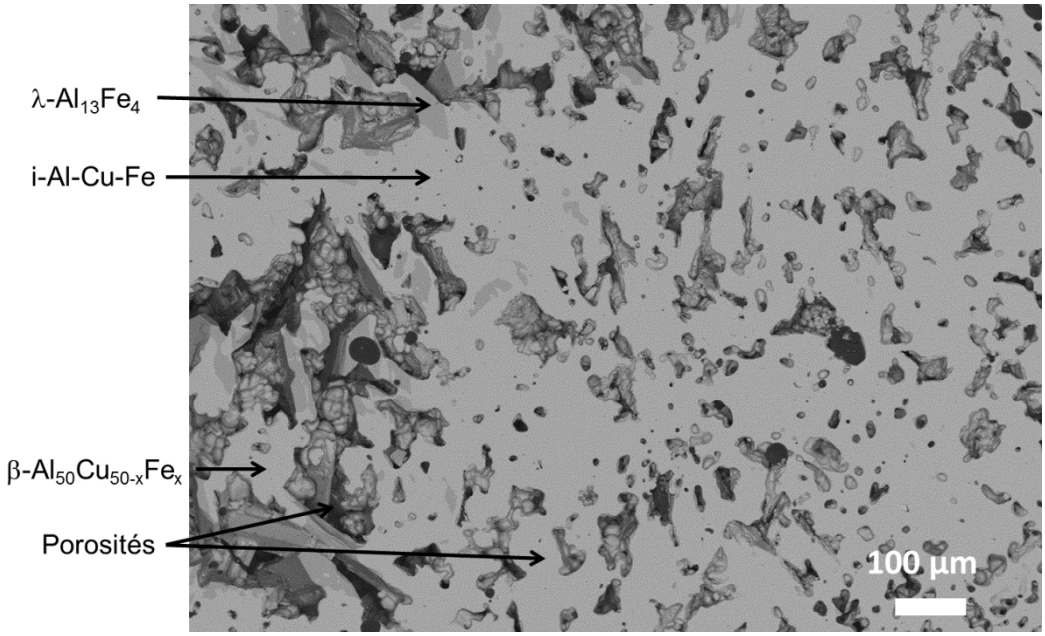


Figure III-2 : Image MEB en électrons rétrodiffusés de la surface du lingot 1.

Noms	DRX		EDX			
	Phases indexées	Pics non -indexés	Phases détectées	Al (%. at.)	Cu (%. at.)	Fe (%. at.)
Lingot 1	i-Al-Cu-Fe λ-$Al_{13}Fe_4$ β-$Al_{50}Cu_{50-x}Fe_x$	25,4° ; 54,1° ; 64,6° ; 79,2°	i-Al-Cu-Fe	58 - 61	25 - 28	12 - 14
			λ-$Al_{13}Fe_4$	70 - 73	6 - 8	21 - 23
			β-$Al_{50}Cu_{50-x}Fe_x$	48 - 50	30 - 41	10 - 13
Lingot 2	i-Al-Cu-Fe	/	i-Al-Cu-Fe	59 - 61	26 - 27	13 - 14
			?	50 - 61	37 - 44	2 - 6

Table III-1 : Résumé des analyses DRX et EDX réalisées sur les lingots 1 et 2

Le lingot 2 est analysé selon le même protocole que le lingot 1. Le diffractogramme obtenu pour le lingot 2 (Cf. Figure III-3) indique que seule la phase i-Al-Cu-Fe est détectée. L'image MEB (Cf. Figure III-4) et les analyses EDX confirment que le lingot est très majoritairement constitué de la phase i-Al-Cu-Fe. Des traces d'une phase minoritaire riche en cuivre et en aluminium sont également visibles sur la micrographie MEB. Les résultats des analyses DRX et EDX sont regroupés dans la Table III-1.

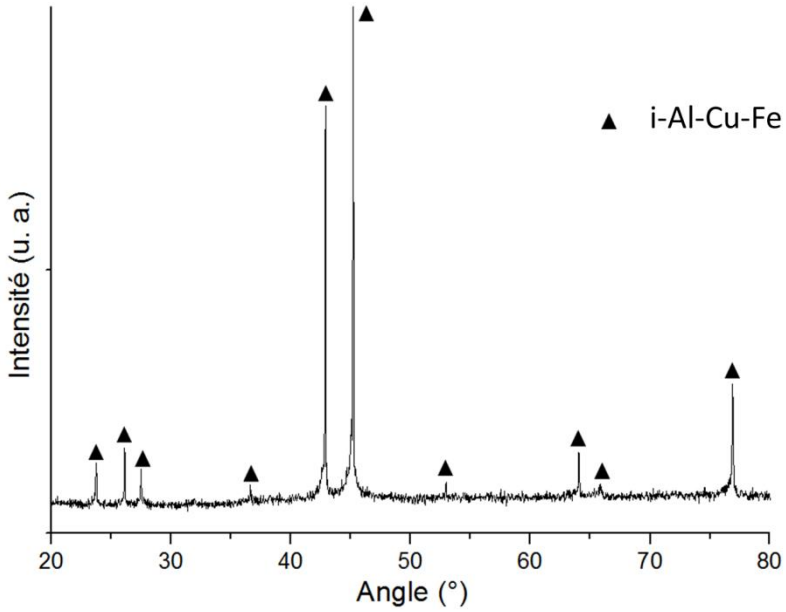


Figure III-3 : Diffratogramme obtenu pour le lingot 2.

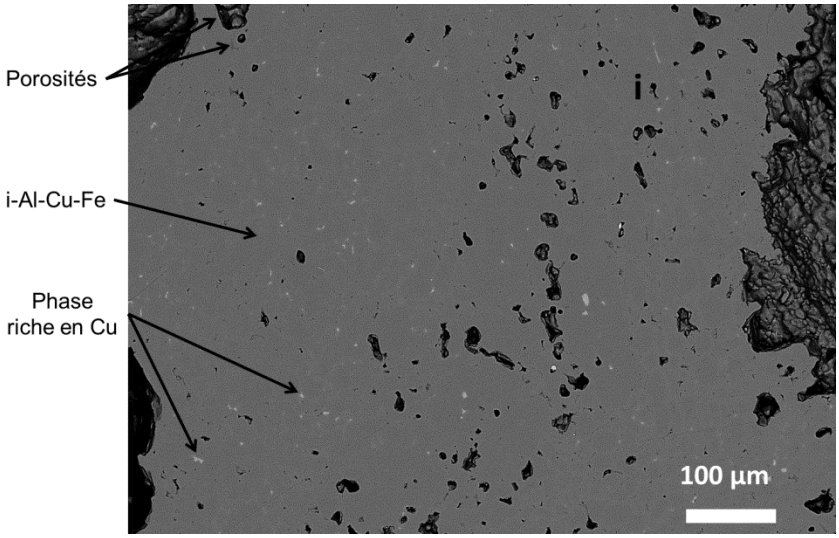


Figure III-4 : Image MEB en électrons rétrodiffusés de la surface du lingot 2.

La poudre obtenue après broyage des lingots (Cf. Chapitre II) est tamisée de manière à sélectionner deux populations de poudres : celle dont la granulométrie est inférieure à 63 µm et celle inférieure à 25 µm. Cette dernière sera utilisée pour les échantillons optimisés, une fois les conditions de synthèse déterminées.

La poudre d'aluminium commerciale est également tamisée afin de sélectionner les particules présentant une granulométrie inférieure à 63 µm.

Dans le cadre de cette étude, deux types d'échantillons sont élaborés par frittage flash : des composites Al/ω-Al-Cu-Fe et des échantillons modèles à interface plane Al/ω-Al-Cu-Fe/i-Al-Cu-Fe.

III.2. Composites Al/Al-Cu-Fe

III.2.1. Paramètres de synthèse

L'objectif est de synthétiser, par métallurgie des poudres, des composites Al/ω-Al-Cu-Fe à partir d'un mélange de poudre d'aluminium et de particules i-Al-Cu-Fe de granulométrie contrôlée. Le but, dans un premier temps, est de déterminer les conditions SPS (température, pression, temps de maintien, diamètre et hauteur des échantillons) permettant de transformer totalement la phase i-Al-Cu-Fe en phase ω-Al-Cu-Fe.

Au chapitre I, nous avons vu que Kenzari et al. [3] ont synthétisé un composite Al/ω-Al-Cu-Fe dès 773 K. C'est la température la plus basse observée pour l'élaboration de ce composite. D'autres travaux menés par El Kabir et al. [4] et Laplanche et al. [5] ont permis de montrer que la transformation de phase i-Al-Cu-Fe en ω-Al-Cu-Fe est totale à 873 K, lors de synthèse de composites Al/Al-Cu-Fe par Compression Isostatique à Chaud (CIC). C'est la température la plus haute observée, dans la littérature, pour de la synthèse d'un composite Al/ω-Al-Cu-Fe.

La première campagne d'élaboration réalisée par SPS a pour but de vérifier s'il est possible de synthétiser par ce procédé des composites Al/i-Al-Cu-Fe et Al/ω-Al-Cu-Fe. Des températures de synthèse sont fixées, respectivement, à 773 et 873 K pour l'obtention de composites Al/i-Al-Cu-Fe et Al/ω-Al-Cu-Fe.

Afin d'obtenir un composite 60 %vol. Al / 40 %vol. ω-Al-Cu-Fe, chaque échantillon est composé initialement de 70 % volumique de poudre d'aluminium et de 30 % volumique de particules de renfort i-Al-Cu-Fe, afin de prendre en compte l'augmentation du volume des particules lors de la transformation de phase [4]. Seules les particules du lingot 1 présentant un diamètre inférieur à 60 µm seront utilisées. Le diamètre et la hauteur des échantillons sont fixés respectivement à 8 et 10 mm. Les composites seront analysés par DRX et EDX et observés au MEB.

Le premier échantillon est élaboré à 773 K - 100 MPa - 2 min (noté 773-100-2 par la suite). A noter, que la matrice en graphite s'est brisée : la hauteur de 10 mm de l'échantillon semble trop élevée pour ce type de matrice, pour une pression de 100 MPa. Le diffractogramme, présenté Figure III-5, montre

la présence des phases suivantes : Al, i-Al-Cu-Fe, λ-$Al_{13}Fe_4$ et β-Al-Cu-Fe ; deux pics inconnus demeurent non-indexés. Au seuil de détection des DRX, ces analyses indiquent que la phase i-Al-Cu-Fe reste stable à cette température et qu'il n'y a pas formation de la phase ω-Al-Cu-Fe. Les phases λ et β sont déjà présentent au sein du lingot 1.

La Figure III-6 présente des micrographies obtenues au MEB, en contraste d'électrons rétrodiffusés, de l'échantillon 773-100-2. La micrographie de la Figure III-6b met en évidence la présence de porosités (contrastes noirs). Les particules de renfort ont un contraste plus clair que celui de la matrice d'aluminium et des tailles variables.

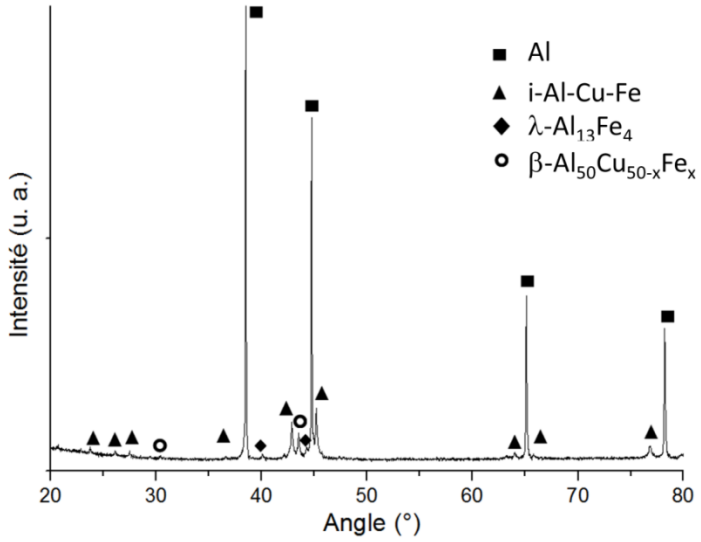


Figure III-5 : Diffractogramme obtenu pour l'échantillon composite 773-100-2.

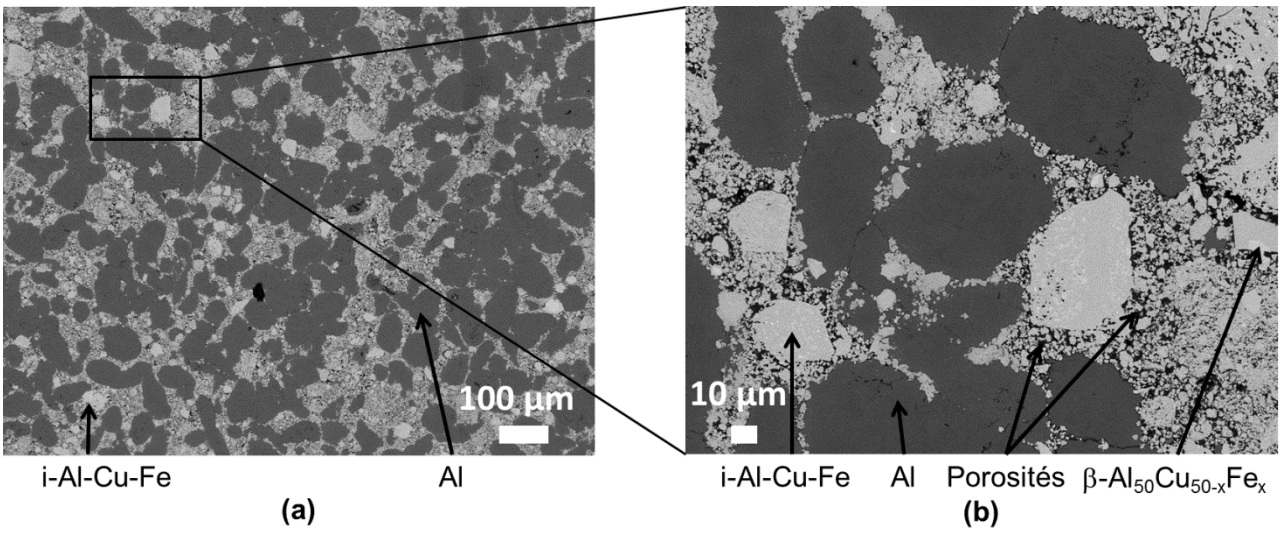


Figure III-6 : Images MEB en électrons rétrodiffusés de l'échantillon composite 773-100- 2, (a) à faible grandissement et (b) à plus fort grandissement mettant en évidence la présence de porosités entre les particules de renfort.

Les analyses chimiques confirment les résultats obtenus en DRX, à savoir la présence majoritaire d'aluminium et de la phase i-Al-Cu-Fe. Les analyses EDX (Cf. Table III-2) révèlent également la présence de la phase β-$Al_{50}Cu_{50-x}Fe_x$ (phase résiduelle du lingot 1), tandis que la phase ω-Al-Cu-Fe n'est pas observée. Il faut également noter la diffusion de cuivre dans la matrice d'aluminium avec une teneur pouvant atteindre 6 % atomique. A partir de ces résultats, il apparaît donc que le composite Al/i-Al-Cu-Fe est stable à T=773K au cours du frittage flash SPS.

L'échantillon suivant est synthétisé et simultanément densifié par SPS pour une température «visée » de 873 K, une pression et un temps de maintien de 50 MPa et 2 min par SPS. Dans ce cas, la pression est abaissée afin de limiter les problèmes de fissuration de la matrice en graphite dus à la hauteur importante de l'échantillon.

Lors du frittage réactif de l'échantillon, il y a eu apparition de liquide : des gouttes se sont formées à l'interface entre les pistons et la matrice de graphite. On observe simultanément un déplacement très rapide du piston pour une température d'environ 803 K (Cf. Figure II-2). Ce phénomène s'accélère à 853 K et le liquide comprimé sous 50 MPa s'échappe de la matrice en graphite. La synthèse est arrêtée à 853 K pour ne pas endommager le montage. L'échantillon sera noté par la suite 853-50-2.

L'indexation du diffractogramme obtenu pour l'échantillon 853-50-2, présenté Figure III-7, met en évidence la présence d'aluminium et de ω-Al-Cu-Fe. Trois pics inconnus demeurent non-indexés (62,8°, 69,5°, 74,6°) différents de ceux énoncés précédemment. Aucuns pics de i-Al-Cu-Fe, β-$Al_{50}Cu_{50-x}Fe_x$ et λ-$Al_{13}Fe_4$ ne sont détectés.

Les observations MEB (Cf. Figure III-8) montrent une surface présentant peu de porosités : les particules de renfort semblent être bien frittées. Les analyses EDX confirment les résultats obtenus en DRX : seuls l'aluminium et la phase de renfort ω-Al-Cu-Fe sont observés. Comme précédemment, le cuivre des particules de renfort diffuse dans la matrice aluminium ; la teneur maximale est de 3 % atomique.

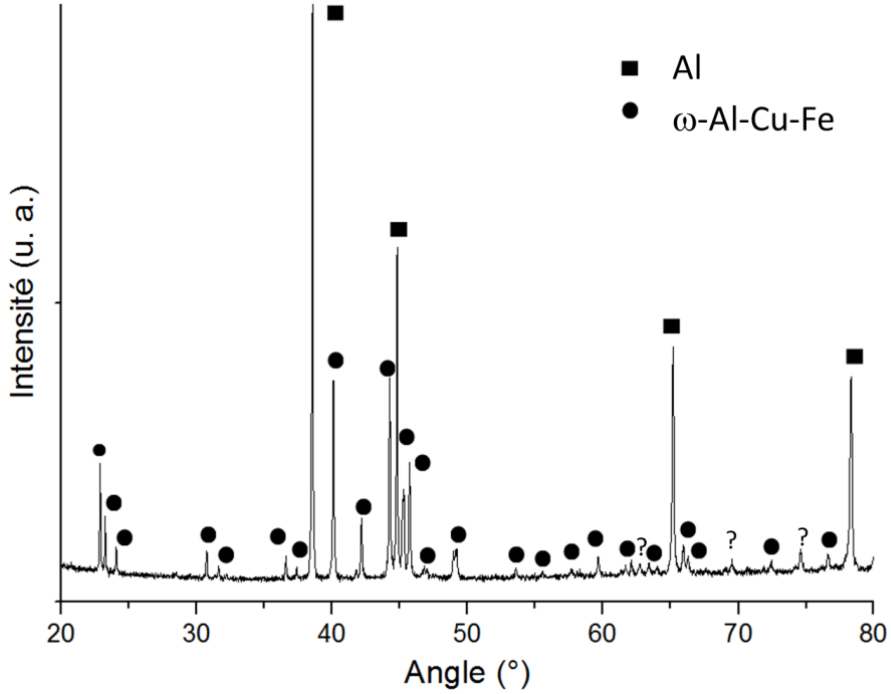


Figure III-7 : Diffractogramme obtenu pour l'échantillon composite 853-50-2.

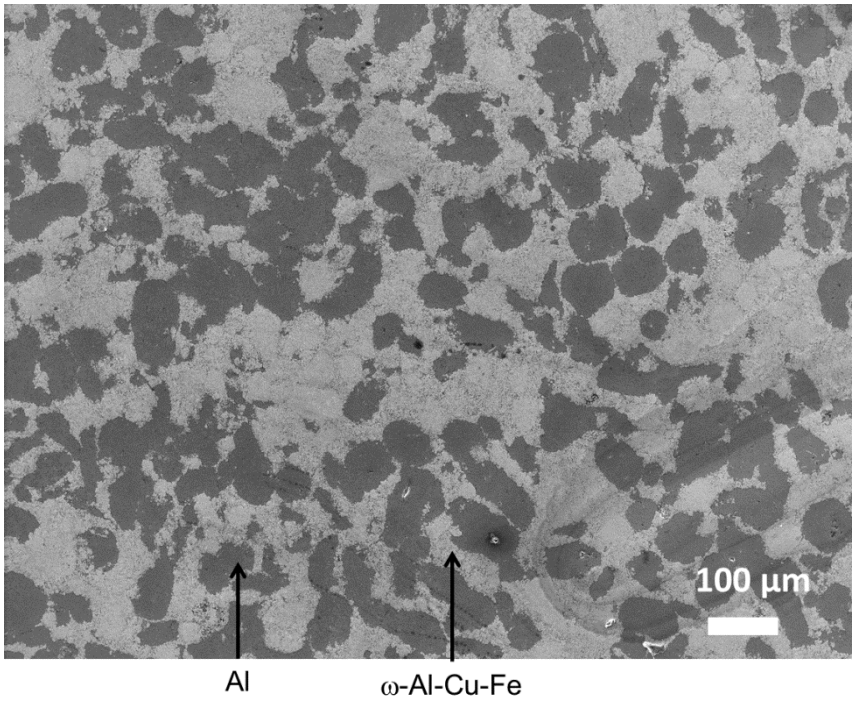


Figure III-8 : Image MEB en électrons rétrodiffusés de l'échantillon 853-50-2.

La Table III-2 reporte les analyses DRX et EDX des composites de la première campagne d'élaboration.

Echantillons	DRX	EDX				Observations
	Phases indexées	Phases détectées	Al (%. at.)	Cu (%. at.)	Fe (%. at.)	
773 - 100 - 2	Al i-Al-Cu-Fe λ-$Al_{13}Fe_4$ β-$Al_{50}Cu_{50-x}Fe_x$	α - Al	93 - 100	0 - 6	0 - 1	
		i-Al-Cu-Fe	59 - 62	26 - 28	11 - 14	
		β-$Al_{50}Cu_{50-x}Fe_x$	49 - 51	38 - 41	8 - 11	
853 - 50 - 2	Al ω-Al-Cu-Fe	α - Al	97 - 100	0 - 3	0 - 1	Apparition de liquide
		ω-Al-Cu-Fe	67 - 71	19 - 22	9 - 12	

Table III-2 : Conditions opératoires (température, pression et temps de maintien) pour la première campagne d'élaboration des composites Al/Al-Cu-Fe, les phases et les compositions déterminées par DRX et EDX sont reportées.

Au vu de ces résultats, il en ressort qu'au SPS, à T = 773 K, la phase i-Al-Cu-Fe ne subit pas de transformation de phase : il y a densification d'un composite Al/i-Al-Cu-Fe. A T=853K, les analyses DRX et EDX montrent qu'il y transformation totale de la phase i-Al-Cu-Fe en phase ω-Al-Cu-Fe. Parallèlement, on note la présence de liquide, ce qui est préjudiciable pour le montage expérimental.

Une nouvelle campagne d'élaboration est réalisée pour des températures comprises entre 773 et 853 K, afin de déterminer la température à laquelle il y a formation d'un composite Al/ω-Al-Cu-Fe en l'absence de liquide.

Afin d'augmenter la pression pour favoriser une bonne densification du composite, tout en limitant les problèmes de casse du dispositif en graphite, les échantillons suivants présenteront un rapport hauteur / diamètre < 1. Pour cela, la hauteur de l'échantillon est fixée à 4 mm, ce qui permet d'augmenter la pression à 100 MPa.
Enfin, de manière à optimiser la densification du composite, le temps de maintien est déterminé en suivant le déplacement du piston lors de la synthèse : la densification est stoppée dès que le piston est stabilisé. Le temps de maintien varie de 2 à 8 minutes.

L'échantillon présenté ci-dessous est élaboré pour une température, une pression et un temps de maintien fixés, respectivement, à 793 K, 100 MPa et 8 minutes. Celui-ci sera noté 793-100-8 par la suite. D'après les analyses DRX (Cf. Figure III-9), l'échantillon 793-100-8 est composé d'aluminium, de ω-Al-Cu-Fe ainsi que de θ-Al_2Cu ; aucun pic correspondant à i-Al-Cu-Fe n'est détecté.

Les observations MEB sont présentées Figure III-10. En dépit d'un temps de maintien plus long afin d'optimiser la densification du composite, des porosités sont visibles au sein du renfort. Par ailleurs, les analyses EDX sont en accord avec celles réalisées en DRX : l'aluminium, les phases ω-Al-Cu-Fe et θ-Al_2Cu sont détectées. Les analyses EDX révèlent également la présence de particules i-Al-Cu-Fe non-transformées, de β-$Al_{50}Cu_{50-x}Fe_x$ résiduel et AlCu. Il apparait donc que la transformation de i-Al-Cu-Fe en ω-Al-Cu-Fe n'est pas totale à T = 793K. Cette transformation partielle s'accompagne de la formation de phases secondaires θ-Al_2Cu et AlCu. Une fois encore, le cuivre des particules de renfort diffuse dans la matrice d'aluminium (3 % atomique maximum de Cu dans Al). La nature et la composition des différentes phases détectées par DRX et EDX sont reportées Table III-3.

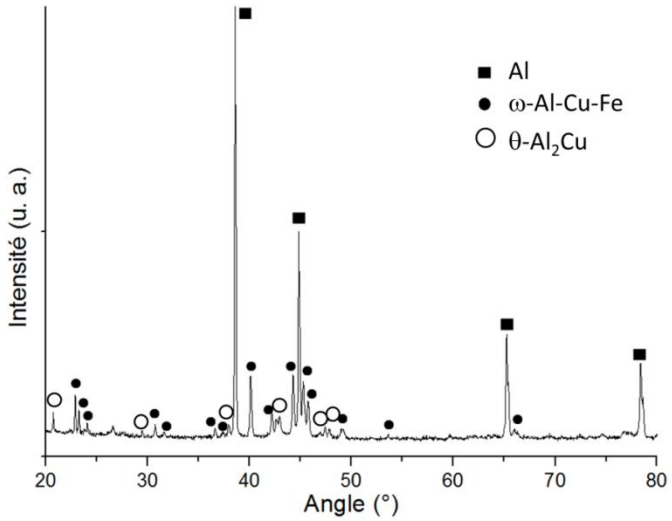


Figure III-9 : Diffractogramme correspondant à l'échantillon 793-100-8.

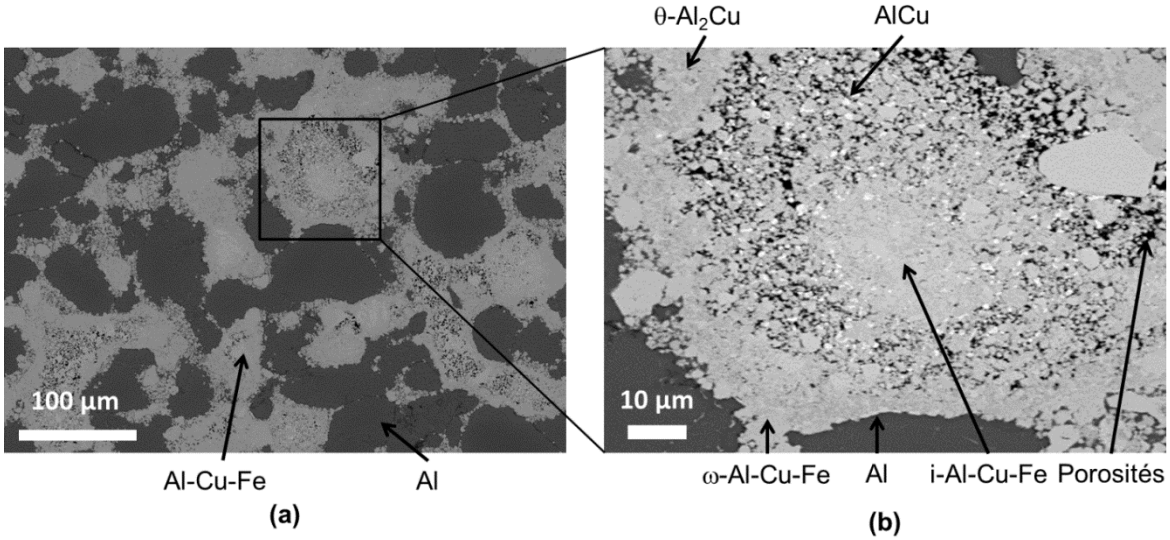


Figure III-10 : Micrographies MEB en électrons rétrodiffusés présentant (a) l'aspect général de l'échantillon 793-100-8, (b) les différents contrastes de phases et les porosités au sein du renfort.

Noms	DRX	EDX				Observations
	Phases indexées	Phases détectées	Al (%. at.)	Cu (%. at.)	Fe (%. at.)	
793 - 100 - 8	Al ω-Al-Cu-Fe θ - Al_2Cu	α - Al	97 - 100	0 - 3	0 - 1	
		i-Al-Cu-Fe	62 - 65	21 - 25	12 - 14	
		ω-Al-Cu-Fe	67 - 71	16 - 21	10 - 14	
		β-$Al_{50}Cu_{50-x}Fe_x$	51 - 58	30 - 43	5 - 18	
		θ - Al_2Cu	66 - 67	30 - 33	1 - 3	
		AlCu	49 - 51	46 - 49	1 - 4	
803 - 100 - 8	Al ω-Al-Cu-Fe θ - Al_2Cu	/	/	/	/	
813 - 100 - 8	Al ω-Al-Cu-Fe θ - Al_2Cu	/	/	/	/	
823 - 100 - 2	Al ω-Al-Cu-Fe	α - Al	96 - 100	0 - 4	0 - 2	
		ω-Al-Cu-Fe	68 - 71	18 - 22	10 - 12	
833 - 100 - 2	Al ω-Al-Cu-Fe	α - Al	95 - 100	0 - 4	0 - 4	Apparition de liquide
		ω-Al-Cu-Fe	68 - 72	17 - 21	9 - 12	
		λ-$Al_{13}Fe_4$	76 - 78	8 – 10	13 - 14	

Table III-3 : Nature et composition des différentes phases détectées au sein des composites synthétisés lors de la deuxième campagne d'élaboration.

La transformation n'étant pas totale à T = 793 K, la température de synthèse est augmentée par palier de 10 K, jusqu'à l'obtention d'un composite Al/ω-Al-Cu-Fe présentant une transformation i-Al-Cu-Fe + Al → ω-Al-Cu-Fe totale, en l'absence de liquide.

Les échantillons synthétisés respectivement à 803 et 813 K à 100 MPa et 8 minutes sont notés 803-100-8 et 813-100-8. Les diffractogrammes relatifs à ces deux échantillons, présentés Figure III-11, sont similaires et permettent d'identifier trois phases : l'aluminium, ω-Al-Cu-Fe et θ-Al_2Cu. Le carbone est détecté à cause du papyex présent autours de l'échantillon. Des pics non-indexés ((a) : 59,5° et 69,3° et (b) : 62,8° et 74,5°) ne correspondant pas aux phases présentées jusqu'ici ont été

détectés. Certains de ces pics ont déjà été observés (Cf. Figure III-7). La phase secondaire θ-Al_2Cu étant détectée, cet échantillon ne correspond pas à nos attentes.

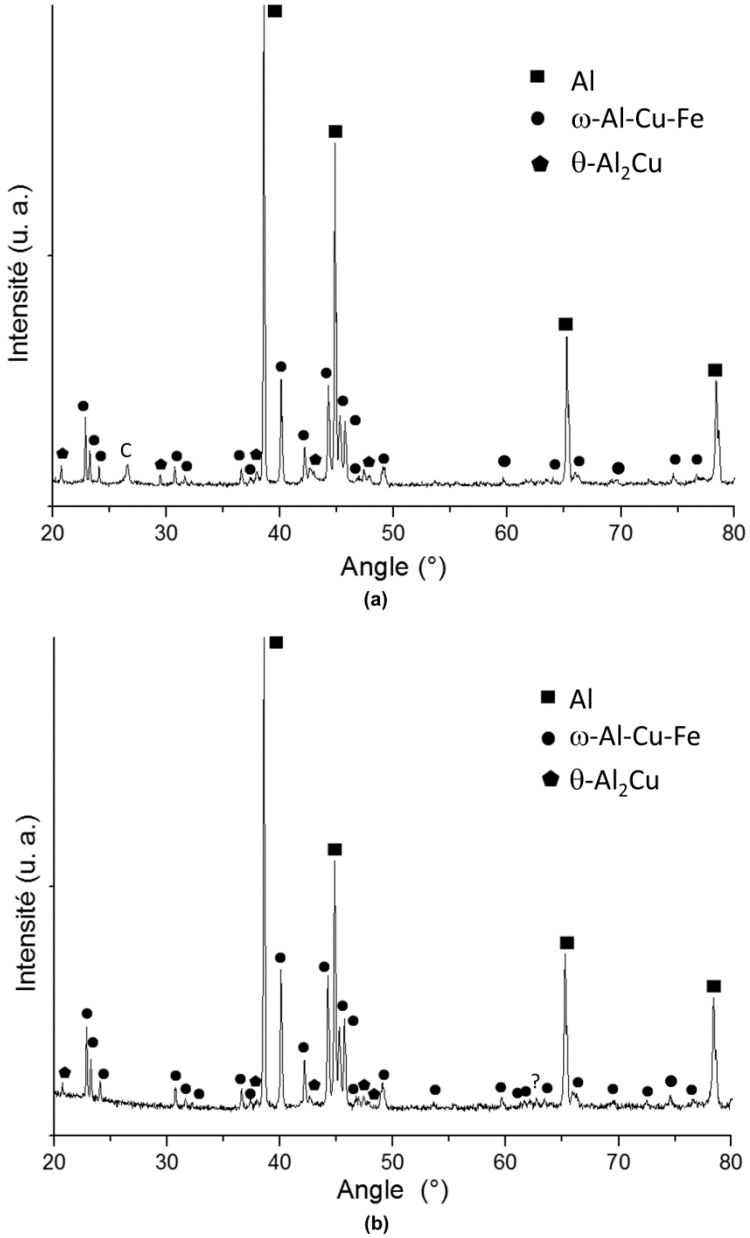


Figure III-11 : Diffractogrammes correspondants aux échantillons (a) 803-100-8 et (b) 813-100-8.

L'échantillon suivant est synthétisé à 823 K et 100 MPa pendant 2 minutes, le piston s'est stabilisé après deux minutes de temps de maintien. Le spectre DRX, présenté Figure III-12, indique la présence d'aluminium et de la phase ω-Al-Cu-Fe. Aucune phase secondaire n'est détectée. Seul un pic est non indexé (74,5°) et a été observé pour les échantillons précédemment. Le pic du carbone est assimilé à la présence de papyex. A la précision de la DRX, la transformation de phase semble totale à 823K. Les observations MEB de la surface de l'échantillon (Cf. Figure III-13) montrent peu de porosités.

Les contrastes noirs correspondent à de l'alumine. D'après les analyses EDX couplées aux observations MEB, 823-100-2 est un composite biphasé composé d'une matrice d'aluminium et de particules ω-Al-Cu-Fe. Nous pouvons donc en conclure qu'à 823 K, la transformation i-Al-Cu-Fe en ω-Al-Cu-Fe est totale et permet l'obtention d'un composite Al/ω-Al-Cu-Fe sans phases secondaires. Les mesures de densité apparente montrent que ce composite est dense à ~ 93 %, confirmant ainsi la présence de porosités.

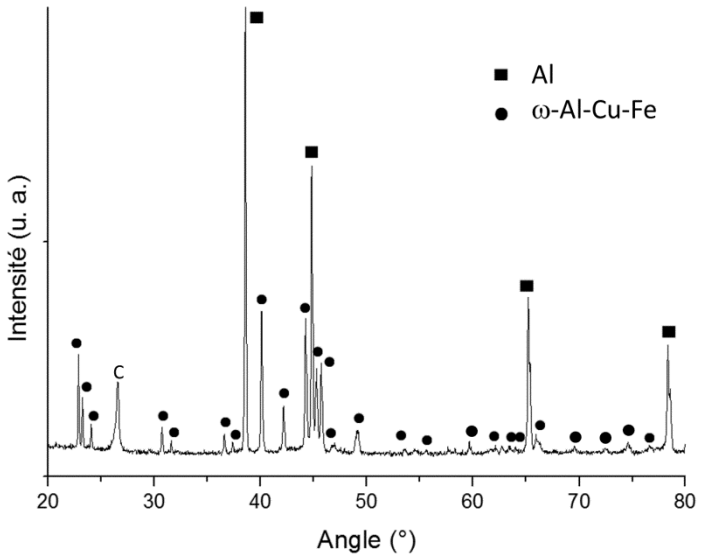


Figure III-12 : Diffractogramme correspondant à l'échantillon 823-100-2.

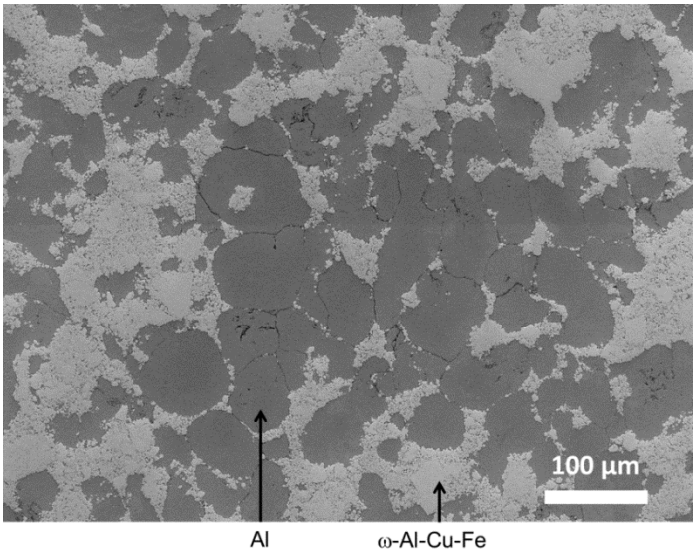


Figure III-13 : Image MEB en électrons rétrodiffusés de l'échantillon 823-100-2.

L'échantillon 833-100-2, présenté dans la Table III-3, ne sera pas décrit dans ce chapitre.

.

III.2.2. Optimisation des composites

Lors des précédentes campagnes de synthèse des composites, les poudres d'aluminium et de renfort (< 63 µm) ont été mélangées avec une cuillère en acier inoxydable : la répartition du renfort n'est pas homogène au sein de la matrice. Les composites élaborés par cette méthode seront notés par la suite « non-optimisés ».
Les conditions d'élaboration (T, P, t) des composites Al/i-Al-Cu-Fe et Al/ω-Al-Cu-Fe étant définies, l'objectif est maintenant d'obtenir un matériau composite dense et présentant une répartition uniforme des particules de renfort au sein de la matrice Al, en vue des essais mécaniques ultérieurs.

Afin d'obtenir des composites plus denses, la granulométrie est modifiée pour la nouvelle série de composites, appelés « optimisés ». Les particules de renfort présentent une granulométrie inférieure à 25 µm ; la distribution granulométrique des particules d'aluminium demeure inchangée. Réduire la taille des particules de renfort devrait, en effet, permettre un meilleur pouvoir de densification par réarrangement des particules : les plus petites particules comblent le volume poreux au sein de l'empilement formé par les plus grosses particules. De plus, les deux types de poudres sont désormais mélangés à l'aide d'un Turbula pendant 30 min. Ce dispositif conduit à une homogénéisation granulométrique et à une homogénéisation de composition au sein du mélange.

Les analyses DRX effectuées sur l'échantillon 823-100-2-optimisé (Cf. Figure III-14) indiquent la présence d'aluminium et de la phase ω-Al-Cu-Fe ; trois pics inconnus restent non-indexés (55,7°, 59,5°, 62,5° dont les deux derniers ont été observés sur les échantillons précédents). Les observations MEB (Cf. Figure III-15) montrent que les particules de renfort sont dispersées de manière homogène au sein de la matrice Al. L'échantillon semble présenter peu de porosités ouvertes. La présence des phases détectées en DRX pour l'échantillon optimisé est confirmée par les analyses EDX : seuls l'aluminium et la phase ω-Al-Cu-Fe sont observés ; des traces de λ-$Al_{13}Fe_4$, déjà présentes au sein du lingot 1, sont également détectées. La transformation de phase Al + i-Al-Cu-Fe → ω-Al-Cu-Fe est donc totale.

Des analyses surfaciques d'images sont effectuées afin de déterminer les proportions volumiques de chaque phase en considérant que l'échantillon est isotrope. Les analyses sont réalisées avec le logiciel ImageJ à partir d'une dizaine d'images à faible grandissement pour avoir une bonne statistique. Ces analyses indiquent une proportion volumique de renfort Al-Cu-Fe de 40 ± 2 %. De plus, les mesures de densité apparente ont montré que ces composites dits « optimisés » sont denses à ~ 99 %.

Le resserrement de la distribution en taille des particules et le mélange au Turbula permettent donc d'obtenir des composites plus denses et présentant une distribution homogène des particules de renfort dans la matrice Al. Tous les composites analysés dans la suite de cette étude (sauf mention contraire) seront préparés à partir de poudres Al et de particules i-Al-Cu-Fe, présentant une granulométrie inférieure à 63 et 25 µm respectivement, et mélangées au Turbula. Les composites Al/ω-Al-Cu-Fe seront synthétisés et simultanément densifiés par SPS à 823 K / 100 MPa / 2 min.

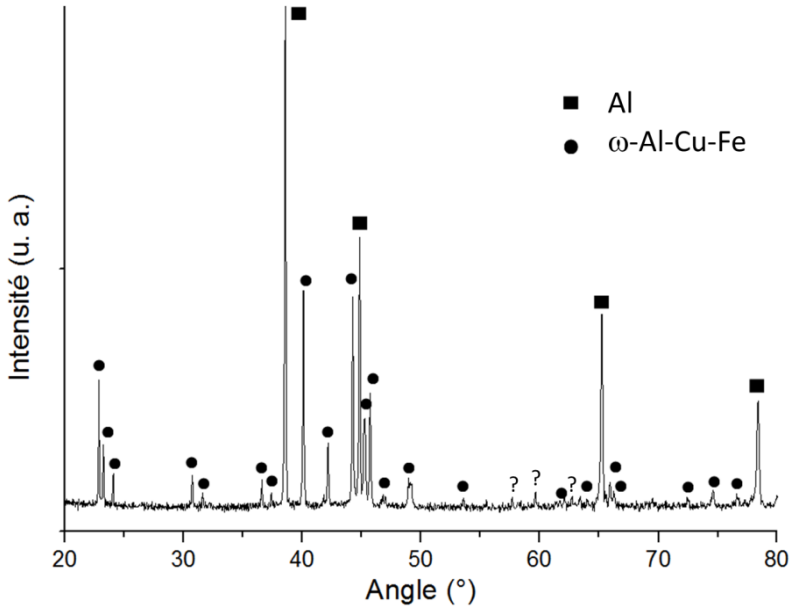


Figure III-14 : Diffractogramme obtenu pour l'échantillon 823-100-2-optimisé

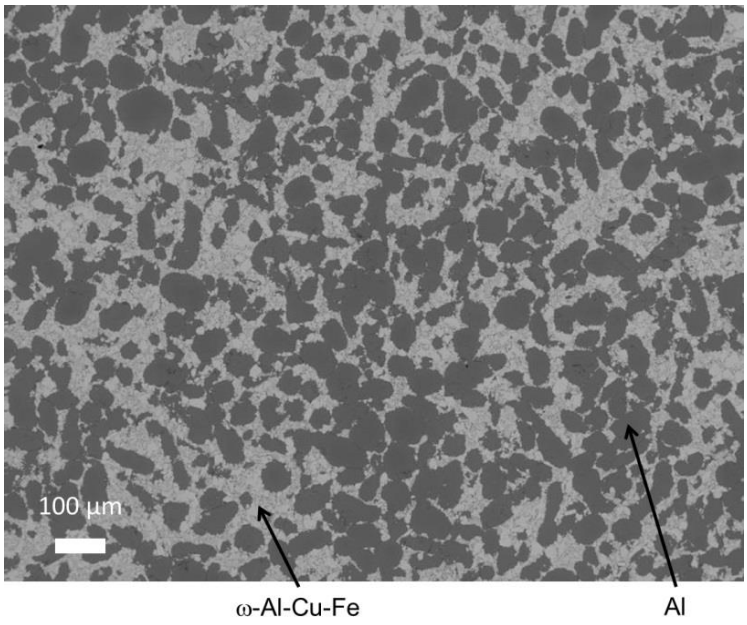


Figure III-15 : Image MEB du composite 823-100-2-optimisé.

La taille des grains d'aluminium a également été mesurée à partir de micrographies optiques au moyen du logiciel Avizo (voir chapitre II). Les Figure III-16a et Figure III-16b représentent les histogrammes de fréquence relative et fréquence cumulée relatifs à la distribution du diamètre équivalent surfacique des grains d'aluminium, après élaboration du composite 823-100-2-optimisé. L'étendue en taille varie de 1 à 100 µm et la fréquence cumulée indique que ~90% des grains ont une taille inférieure à 60 µm. Sachant que la taille des grains d'aluminium initiales est inférieure à 63 µm, celles-ci n'ont donc pas grossi au cours du frittage SPS.

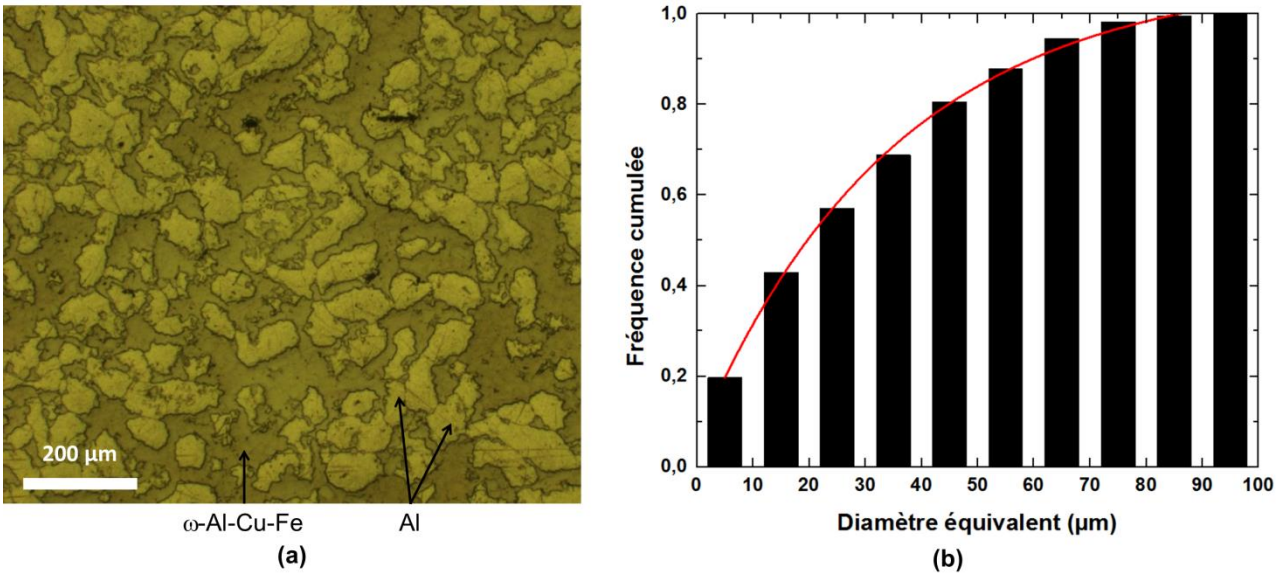


Figure III-16 : (a) Micrographie optique de la zone analysée montrant le renfort et les grains d'aluminium et (b) histogramme de fréquence cumulée de la distribution du diamètre équivalent surfacique des grains d'aluminium après l'élaboration du composite 823-100-2-optimisé.

Remarque : La méthode de synthèse des échantillons composites Al/ω-Al-Cu-Fe est répétable. Une vingtaine d'échantillons composites Al/ω-Al-Cu-Fe (non-optimisés et optimisés) ont été élaborés par SPS.

III.3. Matériaux à interface plane Al/Al-Cu-Fe

Afin d'étudier les mécanismes réactionnels se produisant au cours de la transformation de phase Al + i-Al-Cu-Fe → ω-Al-Cu-Fe, des échantillons modèles à géométrie simplifiée constitués d'une interface plane Al / i-Al-Cu-Fe ont été élaborés.

Les matériaux modèles à interface plane sont constitués d'une couche de poudre d'aluminium et d'une couche de particules i-Al-Cu-Fe, tassées sous l'effet de vibrations et superposées dans une matrice en

graphite cylindrique de diamètre intérieur 8 mm. Les échantillons sont synthétisés par SPS à 823K / 100 MPa / 15 min (sauf précision contraire). Dans un premier temps, l'objectif est d'observer et d'analyser la zone interfaciale formée entre les couches d'aluminium et de particules Al-Cu-Fe. A plus long terme, l'obtention d'une zone interfaciale régulière permettra la caractérisation mécanique de la zone interfaciale. Différents temps de maintien (2, 4, 8 et 15 min) sont appliqués. Les échantillons sont ensuite découpés dans la hauteur, avec une scie à fil diamanté, ce qui permet d'obtenir des tranches présentant les trois couches (l'aluminium, les particules Al-Cu-Fe et la zone interfaciale formée), d'environ 3 mm d'épaisseur. Aucune analyse DRX n'a pu être effectuée en raison de la taille réduite des échantillons (environ 3 x 8 mm²). Des observations MEB en électrons rétrodiffusés sont réalisées sur chacun des échantillons. Un exemple est présenté Figure III-17 pour t = 15 min. Après frittage réactif, l'échantillon est composé de trois régions distinctes : une couche d'aluminium dense (région 1), une couche poreuse contenant les particules i-Al-Cu-Fe initiales (région 3) et une zone interfaciale formée durant la synthèse (région 2).

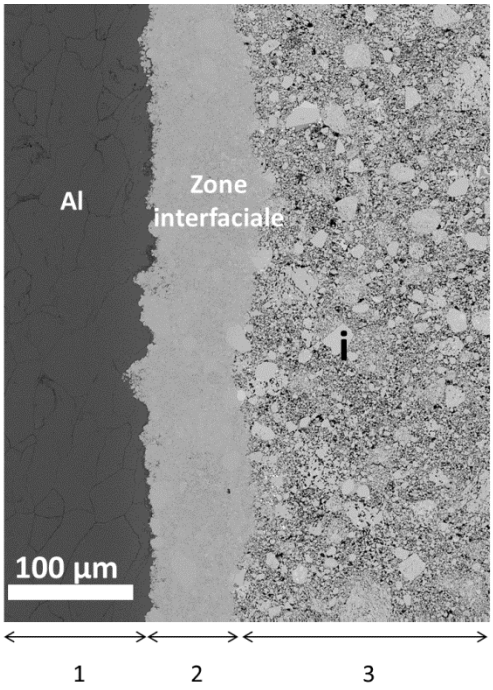


Figure III-17 : Image MEB d'un échantillon modèle à interface plane Al/i-Al-Cu-Fe après frittage réactif à 823 K / 100 MPa / 15 min, mettant en évidence les couches d'aluminium (région 1), les particules i-Al-Cu-Fe initiales (région 3) ainsi que la zone interfaciale formée durant le frittage réactif (région 2).

Pour certains échantillons, une feuille de tantale de 5 µm d'épaisseur est insérée entre les couches de poudres Al et i-Al-Cu-Fe, avant le frittage réactif, afin de matérialiser l'interface initiale. Celle-ci est perforée en son centre avec un trou de 3 mm de diamètre. La feuille de tantale étant inerte, l'objectif est d'observer la direction de diffusion des atomes à l'interface entre les deux couches.

La Figure III-18 est une micrographie MEB en électrons rétrodiffusés présentant les couches d'aluminium (1) et de particules i-Al-Cu-Fe initiales (3), la zone interfaciale irrégulière (2) formée lors de la synthèse et la feuille de tantale. A noter qu'une fissure s'est formée le long de la zone interfaciale.

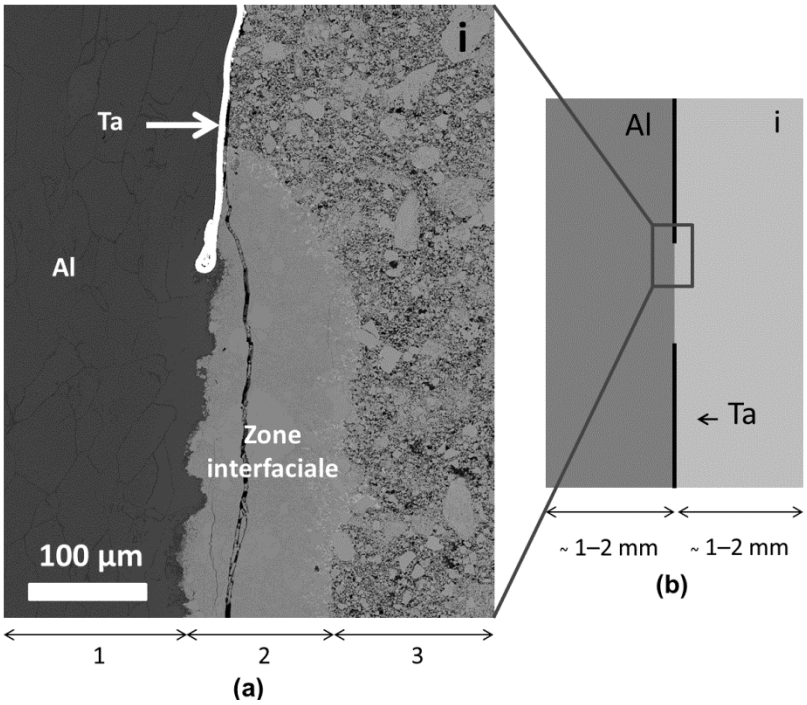


Figure III-18 : Echantillon modèle à interface plane Al/i-Al-Cu-Fe avec une feuille de tantale perforée, (a) micrographie MEB après frittage réactif à 823 K / 100 MPa / 15 min, (b) schéma représentatif du système avant frittage.

La seconde catégorie d'échantillons modèles, dont l'objectif est d'obtenir des zones interfaciales régulières, diffère de la première par l'utilisation de disques d'aluminium et d'échantillons i-Al-Cu-Fe massifs, à la place des poudres. Les disques d'aluminium (Good Fellow, 99,9%) présentent une épaisseur de 1 mm et un diamètre de 8 mm. La phase i-Al-Cu-Fe provient soit du lingot 1 massif, soit de poudres i-Al-Cu-Fe densifiées par SPS. Pour chaque échantillon, une feuille de tantale est insérée entre Al et i-Al-Cu-Fe.

Pour le premier type d'échantillon, une plaque de 5,6 x 5,6 mm^2 est découpée dans le lingot 1 ; de telles dimensions permettront son insertion dans la matrice en graphite (diamètre intérieur de 8 mm). La plaque est préalablement polie, jusqu'à une épaisseur de 2 mm environ ; ceci afin d'obtenir une zone interfaciale plane et propre. Le disque d'aluminium et la plaque i-Al-Cu-Fe sont superposés dans la matrice en graphite. La phase i-Al-Cu-Fe étant fragile, la plaque est entourée de poudre d'aluminium afin d'éviter sa rupture et la pression est limitée à 50 MPa. La Figure III-19 présente une

micrographie MEB de l'échantillon après frittage réactif, mettant en évidence la plaque d'aluminium (1), le lingot 1 très poreux (3), la zone interfaciale (2) relativement régulière entre Al et le lingot 1 (délimitée en rouge) ainsi que la feuille de Tantale. Les contrastes noirs visibles sur la plaque i-Al-Cu-Fe sont les porosités présentes initialement au sein du lingot 1.

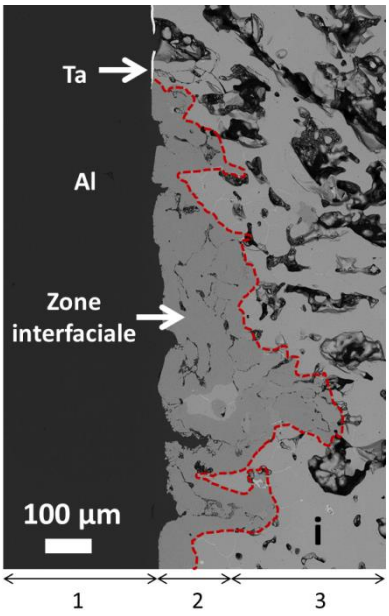


Figure III-19 : Image MEB en électrons rétrodiffusés de l'aspect général d'un échantillon à interface plane Al/i-Al-Cu-Fe après frittage réactif à 823 K / 50 MPa / 15 min. Une feuille de tantale est préalablement insérée entre les couches Al (1) et i-Al-Cu-Fe initiale (3). La phase i-Al-Cu-Fe provient d'un morceau du lingot 1 découpé et poli.

Pour le deuxième type d'échantillon, de la poudre i-Al-Cu-Fe (lingot 1 – granulométrie < 25 µm) est frittée par SPS de manière à obtenir un échantillon dense. L'objectif étant de s'affranchir de l'effet des porosités sur les mécanismes réactionnels au cours de la formation de la phase ω-Al-Cu-Fe.
La température de frittage des échantillons est généralement choisie à $0{,}75T_f$ (avec T_f : la température de fusion). La phase i-Al-Cu-Fe n'a pas de température de fusion directe car elle se décompose en un liquide + solide [7]. Il faut donc considérer la température péritectique T_p de la phase i-Al-Cu-Fe avec $T_p \sim 1\,130$ K. La température de densification est alors fixée à 948 K. Cependant, après cette première étape de densification, l'échantillon n'étant pas dense, une seconde étape en température a été appliquée. Pour se faire, 0,2 g de poudre i-Al-Cu-Fe est frittée à 948 K / 100 MPa / 2 min suivi d'une montée en température à 1075 K sous 50 MPa. La température de consigne est ensuite abaissée jusqu'à $T_{ambiante}$.

La phase i-Al-Cu-Fe présentant un comportement fragile, le comprimé obtenu après frittage s'est fracturé en plusieurs morceaux lors de la découpe à la scie à fil. Les morceaux, trop petits pour être analysés par DRX, sont observés par MEB et analysés par EDX. Les Figure III-20a et Figure III-20b

représentent des micrographies MEB au bord de l'échantillon i-Al-Cu-Fe densifié par SPS, respectivement à faible et plus fort grandissement. La Figure III-20c est une micrographie MEB prise à cœur de l'échantillon. Les analyses EDX confirment que la phase i-Al-Cu-Fe est préservée mais on observe également la formation de λ-$Al_{13}Fe_4$ et β-$Al_{50}Cu_{50-x}Fe_x$. La proportion des phases λ-$Al_{13}Fe_4$ et β-Al-Cu-Fe est plus importante au bord, résultant d'une température non homogène entre les bords de la matrice. Les compositions des différentes phases sont présentées Table III-4 en fonction de la zone observée. La composition des phases λ-$Al_{13}Fe_4$ et β-$Al_{50}Cu_{50-x}Fe_x$ est semblable au bord et au centre. Par ailleurs, la porosité des échantillons densifiés est faible et très inférieure à celle du lingot 1.

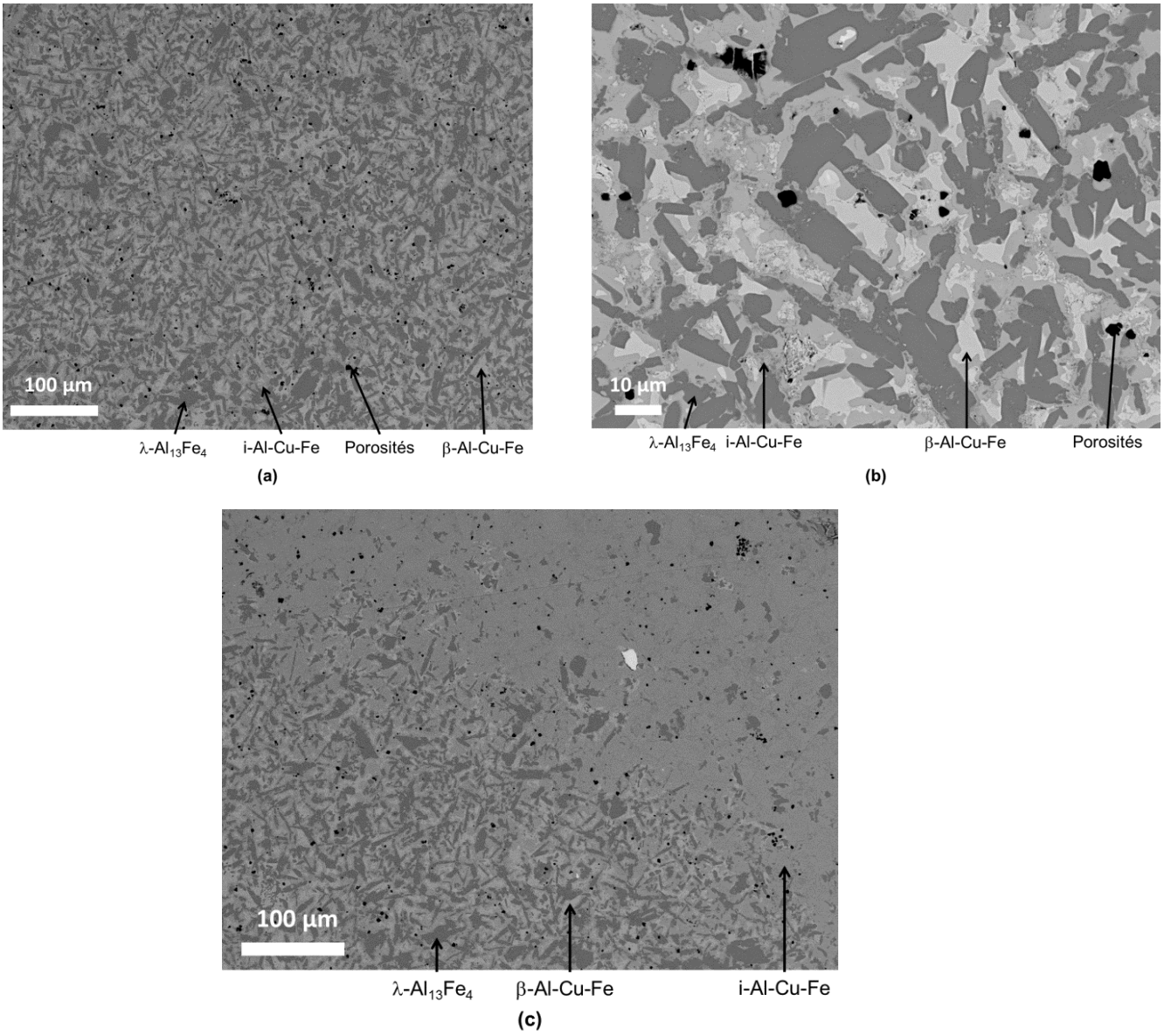


Figure III-20 : Micrographies MEB, au bord à (a) faible et (b) plus fort grandissement ainsi que (c) à cœur, de l'échantillon du comprimé i-Al-Cu-Fe densifié par SPS à 948 K / 100 MPa / 2 min suivi d'une seconde étape de frittage à 1075 K / 50 MPa.

Poudre i-Al-Cu-Fe densifiée par SPS	EDX				Observations
	Phases détectées	Al (%. at.)	Cu (%. at.)	Fe (%. at.)	
Bord	i-Al-Cu-Fe	60 - 62	23 - 26	13 - 15	
	λ-$Al_{13}Fe_4$	71 -72	22 - 23	6 - 7	
	β-$Al_{50}Cu_{50-x}Fe_x$	51 - 52	34 - 35	13 - 14	
Centre	i-Al-Cu-Fe	61 - 63	23 - 25	14 - 15	Proportion des phases λ-$Al_{13}Fe_4$ et β-$Al_{50}Cu_{50-x}Fe_x$ plus faible au centre
	λ-$Al_{13}Fe_4$	70 - 71	6 – 7	22 - 23	
	β-$Al_{50}Cu_{50-x}Fe_x$	50 - 51	35 - 36	13 -14	

Table III-4 : Nature et composition des phases formées après frittage de l'échantillon de poudre i-Al-Cu-Fe par SPS.

L'échantillon de poudre i-Al-Cu-Fe densifié, usiné au cœur de l'échantillon pour limiter la teneur en phase λ-$Al_{13}Fe_4$ et β-$Al_{50}Cu_{50-x}Fe_x$ et préalablement poli, est superposé au disque d'aluminium dans la matrice en graphite. L'échantillon i-Al-Cu-Fe densifié est également entouré de poudre d'aluminium. Afin d'éviter sa rupture au cours du frittage sous pression, celle-ci est limitée à 50 MPa. Après synthèse, les observations MEB montrent la formation d'une zone interfaciale plane et régulière (2) entre la couche d'aluminium (1) et la couche i-Al-Cu-Fe initiale (3). Les contrastes noirs visibles au sein de la couche i-Al-Cu-Fe correspondent à des porosités. Cependant, il faut noter que la couche i-Al-Cu-Fe est plus dense que celle présentée précédemment et la taille des porosités est moindre : une dizaine de microns en moyenne (Cf. Figure III-21).

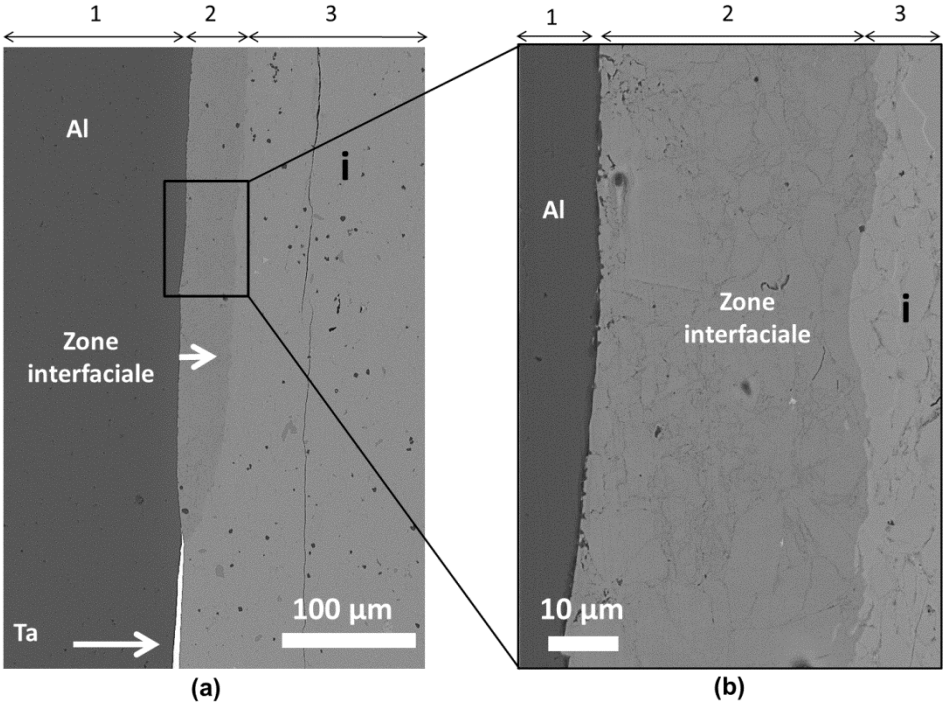


Figure III-21 : Micrographies MEB en électrons rétrodiffusés de (a) l'aspect général et (b) à plus fort grandissement d'un échantillon à interface plane Al/i-Al-Cu-Fe après frittage réactif à 823 K / 50 MPa / 15 min. Une feuille de tantale est insérée entre les couches Al (1) et i-Al-Cu-Fe initiale (3) avant frittage.

Les zones interfaciales qui se sont formées entre les couches (1) et (3) lors du frittage réactif seront analysées plus en détail dans le chapitre suivant.

Remarque : La méthode de synthèse des échantillons modèles à interface plane est tes Al/i-Al-Cu-Fe est répétable. Une dizaine d'échantillons modèles à interface plane (les deux catégories confondues) ont été élaborés par SPS.

IV. Transformation de phase i-Al-Cu-Fe en ω-Al-Cu-Fe

Dans cette partie, nous allons nous intéresser à l'étude de la transformation de phase i-Al-Cu-Fe en ω-Al-Cu-Fe. Les séquences qui interviennent lors de la transformation de phase seront étudiées à partir de différents types d'échantillons, dont l'élaboration a été décrite dans le chapitre précédent. Tout d'abord, nous analyserons les échantillons modèles à interface plane initiale Al/i-Al-Cu-Fe synthétisés par frittage flash à 823 K. Nous venons de voir que les échantillons modèles à interface plane Al/i-Al-Cu-Fe sont divisés en deux classes en fonction de la forme des matières premières utilisées : poudres ou massifs d'aluminium et de i-Al-Cu-Fe (voir chapitre III). Les résultats obtenus à partir des observations MEB (essentiellement en électrons rétrodiffusés) et des analyses EDX, pour les deux classes d'échantillons, seront présentés dans deux sections distinctes.

Par la suite, les observations MEB et les analyses EDX, effectuées sur le composite Al/ω-Al-Cu-Fe partiellement transformé (noté 793-100-8, voir chapitre III), seront présentées en détails et permettront d'établir des similitudes entre la microstructure des composites et des échantillons à interface plane.

Cette étude sera complétée par l'observation in-situ de l'évolution de la microstructure d'un composite Al/i-Al-Cu-Fe soumis à un traitement thermique. Ce travail a fait l'objet d'une publication [57].

IV.1. Echantillons modèles à interface plane Al/i-Al-Cu-Fe

La Figure IV-1 présente des micrographies MEB pour chacune des catégories d'échantillons modèles à interface plane : synthèse à base de poudre (Cf. Figure IV-1a), synthèse au moyen d'une plaque i-Al-Cu-Fe provenant du lingot 1 (Cf. Figure IV-1b) et synthèse à partir de poudre i-Al-Cu-Fe préalablement densifiée par SPS (Cf. Figure IV-1c). Comme évoqué dans le chapitre III, pour certains échantillons, une feuille de tantale est insérée entre les couches de poudres Al et i-Al-Cu-Fe avant le frittage réactif. L'objectif est d'observer la direction de diffusion des atomes à l'interface entre les deux couches.

Pour tous les échantillons modèles, les observations MEB montrent que la zone interfaciale (région 2) se forme entre la zone délimitée par la feuille de tantale et la couche i-Al-Cu-Fe. On en conclut donc que l'aluminium diffuse vers les particules i-Al-Cu-Fe afin de former la zone interfaciale durant le frittage réactif.

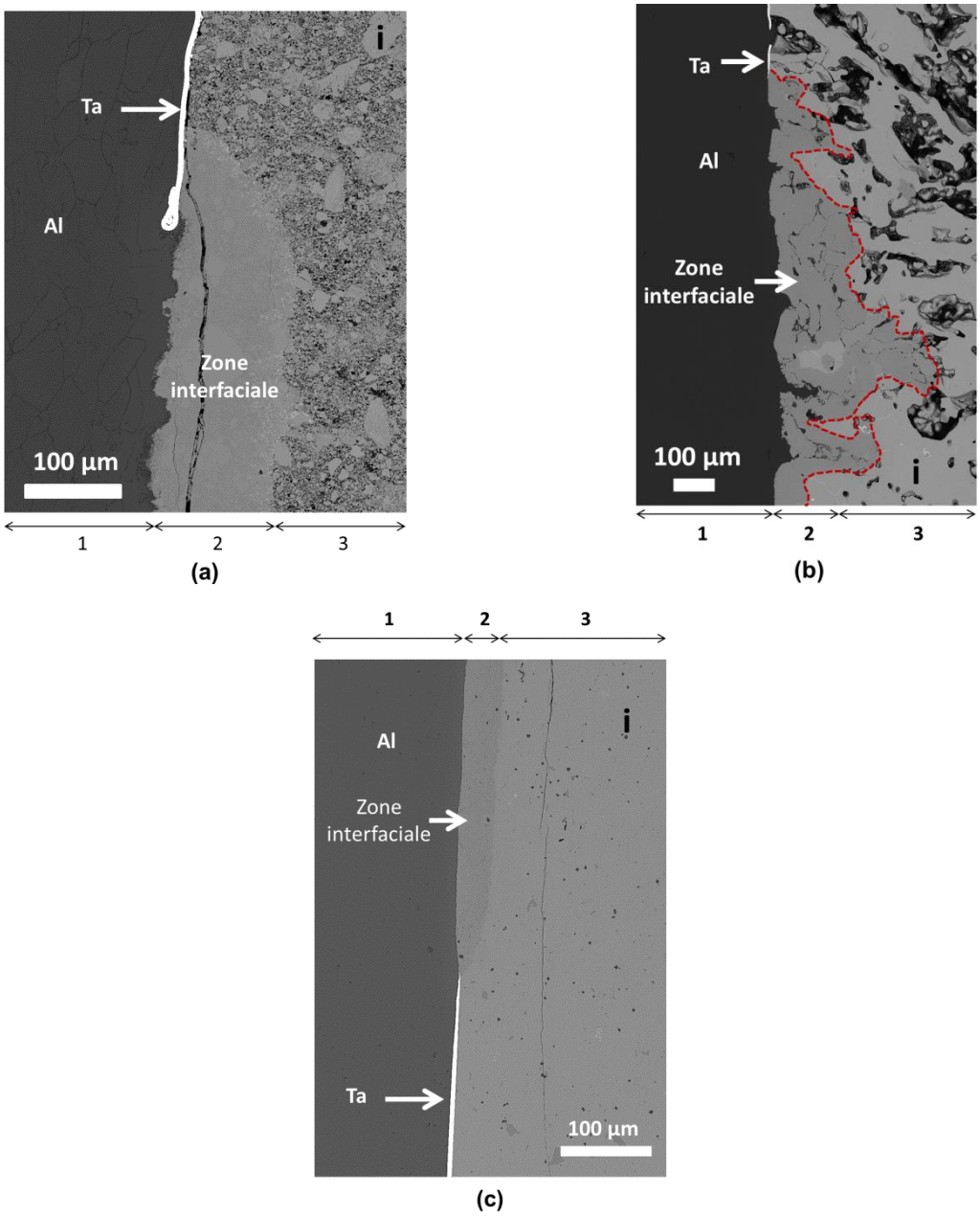


Figure IV-1 : Micrographies MEB des échantillons modèles (a) 823-100-15-interface-poudre, (b) 823-100-15-interface-massif-1 et (c) 823-100-15-interface-massif-2 mettant en évidence la feuille de tantale perforée.

IV.1.1. Echantillons modèles synthétisés à partir de poudre

La Figure IV-2 représente des micrographies MEB de l'échantillon modèle synthétisé, à partir de poudre, à différents temps de maintien (2, 8 et 15 minutes), afin d'étudier l'effet du temps de maintien sur la microstructure (épaisseur de la zone interfaciale et nature des phases formées). Ces échantillons seront notés par la suite 823-100-2-interface-poudre, 823-100-8-interface-poudre et 823-100-15-interface-poudre.

Trois régions sont visibles : l'aluminium (région 1), les particules i-Al-Cu-Fe initiales (région 3) et la zone interfaciale formée durant le frittage réactif (région 2). Quel que soit le temps de maintien appliqué, la largeur des zones interfaciales est semblable. Plus généralement, les analyses ont montré que les caractéristiques des zones interfaciales (microstructure, phases secondaires, morphologie, …) ne dépendent pas du temps de maintien. Par conséquent, seule l'analyse portant sur la microstructure de l'échantillon modèle 823-100-8-interface-poudre sera présentée en détail.

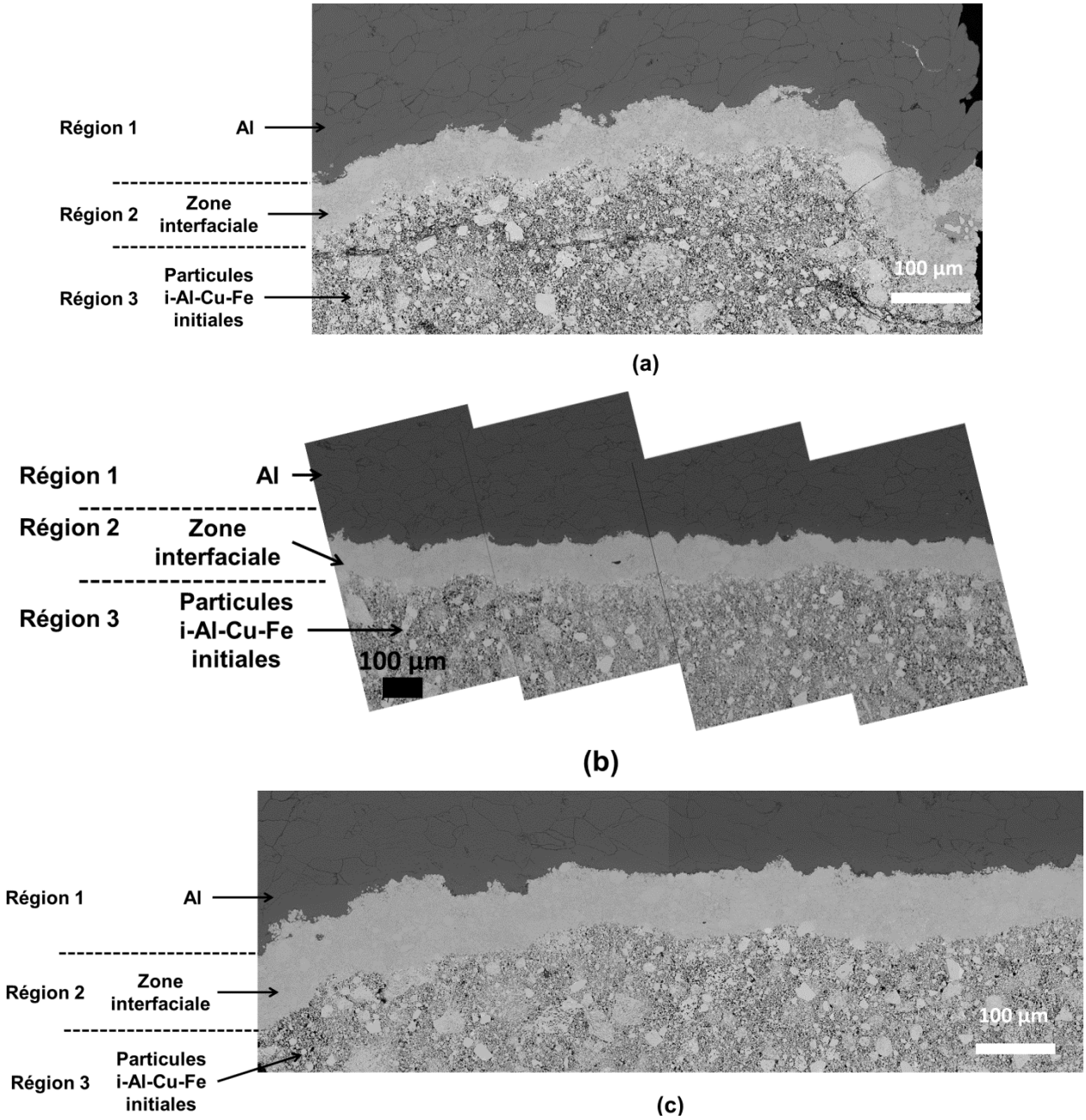


Figure IV-2 : Micrographies MEB montrant l'aspect général des échantillons modèles à interface plane (a) 823-100-2-interface-poudre, (b) 823-100-8-interface-poudre et (c) 823-100-15-interface-poudre.

IV.1.1.1. Caractérisation des couches d'aluminium (région 1)

La couche d'aluminium est dense et ne présente pas de porosités. Les analyses EDX à proximité de l'interface avec la région 2 montrent que du cuivre, contenu dans les particules i-Al-Cu-Fe a diffusé dans Al. La Figure IV-3 montre l'évolution de la teneur en cuivre en fonction de la distance à l'interface région 2/région 1. La teneur maximale en cuivre atteint 2 % atomique à proximité de la zone interfaciale et diminue jusqu'à une concentration non-détectable à 50 µm de la zone interfaciale. La longueur de diffusion du cuivre dans l'aluminium est similaire à 8 et 15 min.

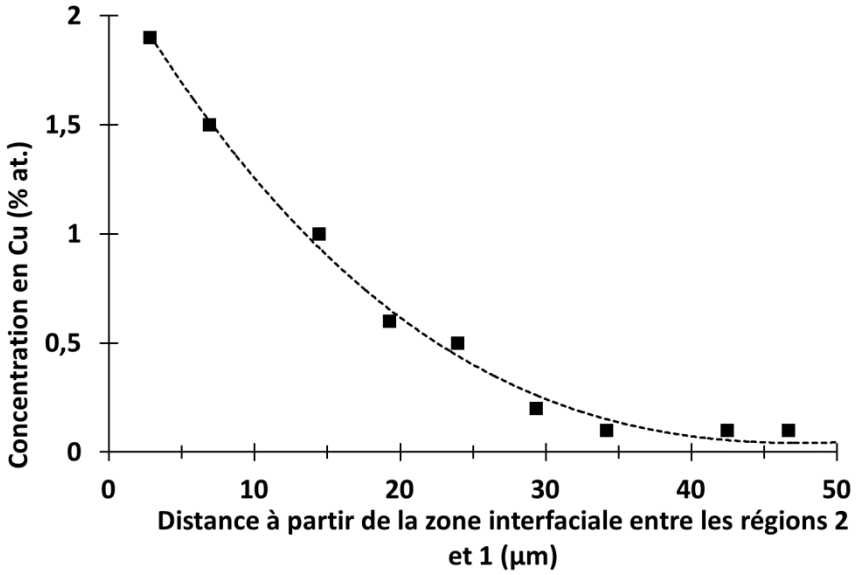


Figure IV-3 : Concentration en cuivre mesurée par EDX dans la couche d'aluminium, à partir de la zone interfaciale entre les régions 2 et 1, pour l'échantillon modèle 823-100-8-interface-poudre.

IV.1.1.2. Caractérisation des couches de i-Al-Cu-Fe (région 3)

Les observations MEB et analyses chimiques de la couche constituée initialement de particules i-Al-Cu-Fe (région 3) sont effectuées dans des zones éloignées de la zone interfaciale. La Figure IV-4 montre des micrographies MEB de la région 3 à différents grandissements. La région 3 présente un aspect poreux (contraste noir). Les analyses EDX indiquent une composition de particules i-$Al_{58-61}Cu_{26-29}Fe_{12-14}$ (contraste gris) et de β-$Al_{48-50}Cu_{39-43}Fe_{8-12}$ résiduelle (contraste blanc). La phase β-$Al_{48-50}Cu_{39-43}Fe_{8-12}$ était déjà présente au sein du lingot 1 et la gamme de composition des particules i-Al-Cu-Fe est la même que celle relevée pour ce lingot.

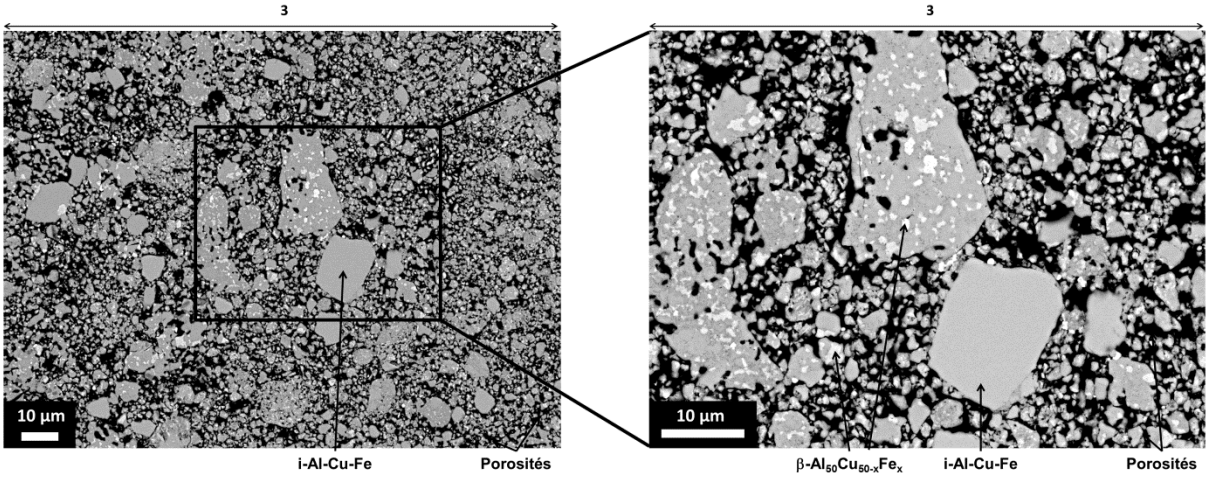


Figure IV-4 : Micrographies MEB de la région 3 constituée initialement de particules i-Al-Cu-Fe montrant (a) l'aspect général, (b) à plus fort grandissement.

IV.1.1.3. Microstructure de la zone interfaciale (région 2)

La zone interfaciale peut être divisée en 3 régions, en fonction des différents contrastes chimiques observés : régions 2a, 2b et 2c (Cf. Figure IV-5). Il est important de noter que les régions 2a et 2b sont très denses comparativement à la région 2c et à la couche i-Al-Cu-Fe initiale de la région 3.

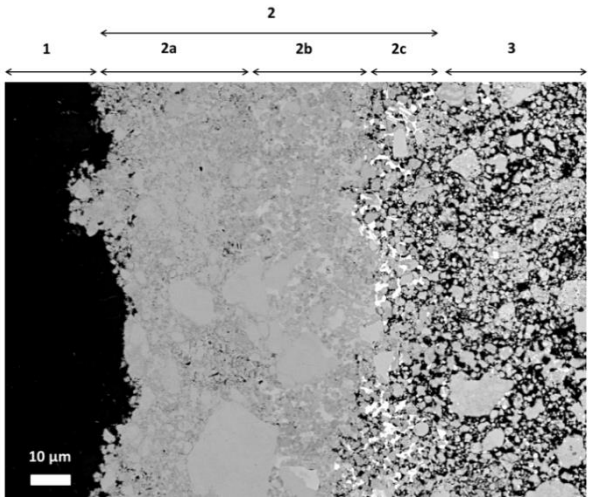


Figure IV-5 : Micrographies MEB de l'échantillon modèle à interface plane 823-100-8-interface-poudre montrant la couche d'aluminium (région 1) et de particules i-Al-Cu-Fe initiales (régions 3) ainsi que la zone interfaciale formée durant le frittage réactif (région 2).

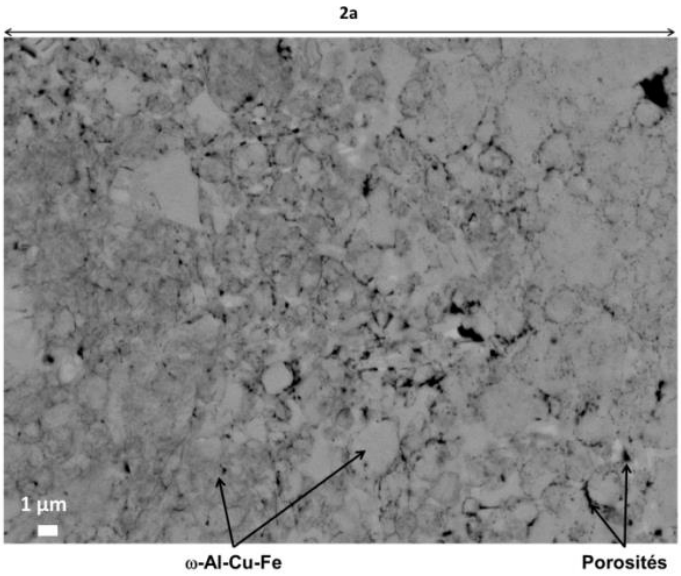
Bien que des contrastes différents de gris soient visibles au sein de la région 2a (Cf. Figure IV-6a), les compositions mesurées par EDX correspondent à la phase ω-Al-Cu-Fe (composition présentée Table IV-1), quelles que soient la taille et la morphologie des particules. Les différents contrastes ne sont

donc pas liés à la composition chimique. Aucune particule présentant une composition correspondant à la phase i-Al-Cu-Fe n'a été détectée. Les contrastes noirs sont des porosités.

La Figure IV-6b met en évidence la région 2b, dont le taux de porosité semble similaire à celui de la région 2a. D'après les analyses EDX, la phase ω-Al-Cu-Fe (contraste gris foncé) coexiste avec la phase θ-Al_2Cu (contraste gris clair). Cette dernière semble présenter une bonne mouillabilité vis-à-vis des particules ω-Al-Cu-Fe.

La région 2c est très poreuse mais certaines porosités sont remplies par une phase au contraste blanc dont la composition correspond à AlCu. La région 2c est donc composée de particules i-Al-Cu-Fe et de AlCu (contraste blanc (Cf. Figure IV-6c). Des particules ω-Al-Cu-Fe sont également détectées à proximité de la région 2b. Par ailleurs, la composition relevée pour les particules i-Al-Cu-Fe diffère de la composition initiale du lingot 1 (Voir Chapitre III) et, par conséquent, de la région 3 : après frittage réactif, les particules sont enrichies en aluminium et appauvries en cuivre (voir Table IV-1).

La composition relevée pour la phase ω-Al-Cu-Fe n'est pas la même pour les régions 2a et 2b : à proximité de la couche d'aluminium (région 2a), la phase ω-Al-Cu-Fe est plus riche en aluminium et la gamme de composition en fer et cuivre est plus étendue par rapport à celle de la région 2b.



(a)

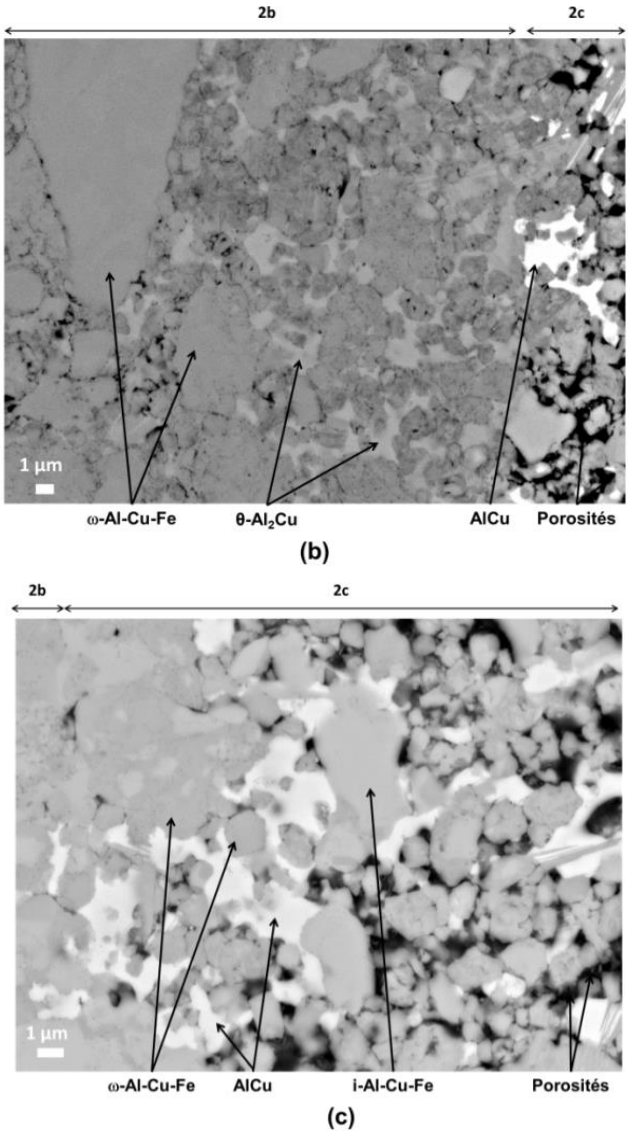


Figure IV-6 : Micrographies MEB, (a) de la région 2a composée de la phase ω -Al-Cu-Fe, (b) la région 2b mettant en évidence la phase ω-Al-Cu-Fe en contact avec θ-Al_2Cu, (c) de la région 2c présentant les particules i-Al-Cu-Fe et AlCu remplissant les porosités initialement présentes.

	Phases détectées	Al (%. at.)	Cu (%. at.)	Fe (%. at.)
Région 2a	ω-Al-Cu-Fe	68 - 70	17 - 22	10 - 13
Région 2b	ω-Al-Cu-Fe	67 -68	21 - 22	10 -11
	θ-Al_2Cu	66 - 68	28 - 33	2 - 5
Région 2c	i-Al-Cu-Fe	61 - 64	23 - 26	12 - 14
	AlCu	47 - 50	47 - 51	2 - 3
Région 3	i-Al-Cu-Fe	58 - 61	26 - 29	12 - 14

Table IV-1 : Composition des différentes phases détectées au niveau de la région 2.

Certaines particules i-Al-Cu-Fe, présentant une transformation i-Al-Cu-Fe vers ω-Al-Cu-Fe partielle, sont observées à l'interface entre les régions 2b et 2c. La composition relevée pour les différentes phases détectées est présentée Table IV-2. Ces particules partiellement transformées, dont la taille excède souvent une dizaine de microns, présentent deux aspects différents (Figure IV-7a et Figure IV-8).

Le premier cas de transformation partielle est présenté Figure IV-7a. Les analyses EDX montrent que la particule est composée de i-Al-Cu-Fe (contraste gris clair) et de ω-Al-Cu-Fe (contraste gris foncé). La phase ω-Al-Cu-Fe est présente à proximité de la région 2b et au bord d'un joint de grain. Les analyses EDX de la phase i-Al-Cu-Fe (contraste gris clair) indiquent un enrichissement en aluminium et un appauvrissement en cuivre par rapport à la composition mesurée pour la région 3. L'autre particularité réside dans l'existence d'un joint de grain contrasté (contraste blanc). Des lignes de profil effectuées en EDX, à travers le joint de grain, sont présentées Figure IV-7b : le joint de grain est enrichi en cuivre et appauvri en aluminium et en fer comparativement à la phase i-Al-Cu-Fe. La phase ω-Al-Cu-Fe semble s'être également formée à partir de ce joint de grain.

Un deuxième exemple de transformation partielle d'une particule i-Al-Cu-Fe est présenté Figure IV-8. Toute la partie en contact avec la région 2b est transformée en ω-Al-Cu-Fe alors que la phase i-Al-Cu-Fe est en contact avec la région 2c. D'après les analyses chimiques, la phase β-$Al_{50}Cu_{50-x}Fe_x$, phase résiduelle du lingot 1 et présente au cœur de la particule, est encerclée par ω-Al-Cu-Fe et i-Al-Cu-Fe.

	Phases détectées	Al (% at.)	Cu (% at.)	Fe (% at.)
Particules partiellement transformées	i-Al-Cu-Fe	61 - 62	24 - 25	12 - 13
	ω-Al-Cu-Fe	66 - 67	22 - 23	10 - 11
	β-$Al_{50}Cu_{50-x}Fe_x$	50 - 51	37 - 38	11 - 12

Table IV-2 : Composition des différentes phases mesurée par EDX après transformation partielle des particules i-Al-Cu-Fe (échantillon 823-100-8-interface-poudre).

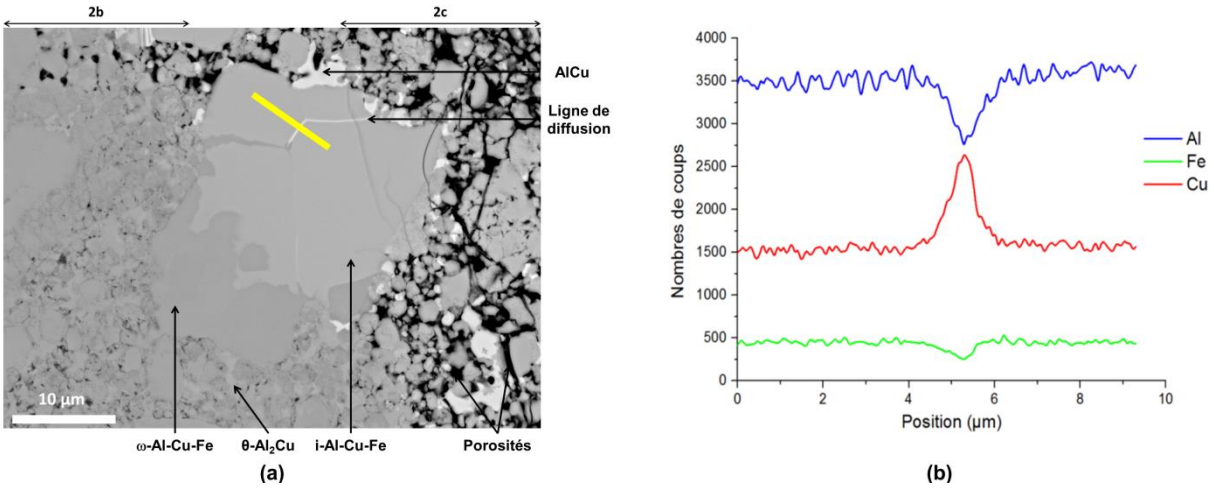


Figure IV-7 : (a) Micrographie MEB d'une particule i-Al-Cu-Fe partiellement transformée en ω-Al-Cu-Fe à l'interface entre les régions 2b et 2c (échantillon 823-100-8-interface-poudre) et (b) analyse qualitative EDX des éléments Al, Fe et Cu le long de la ligne définie sur la micrographie (a) montrant un changement de la composition au niveau du joint de grain.

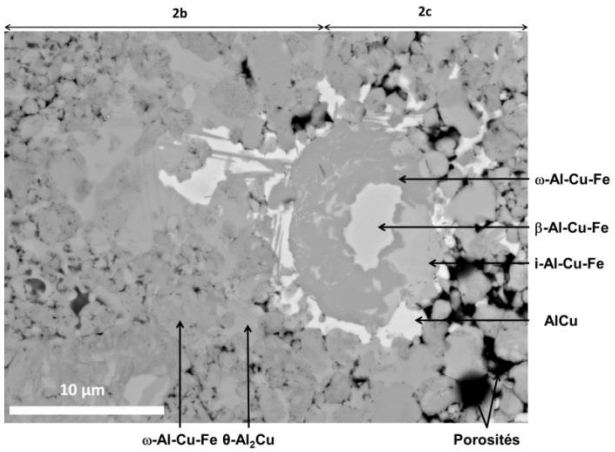


Figure IV-8 : Micrographie MEB d'une particule i-Al-Cu-Fe partiellement transformée en ω-Al-Cu-Fe à l'interface entre les régions 2b et 2c (échantillon 823-100-8-interface-poudre).

Une autre particularité, observée dans ces échantillons, est liée à la présence d'une microstructure eutectique de type lamellaire (Cf. Figure IV-9), résultant de la solidification d'une phase liquide. Ces zones sont observées, à proximité des parois de la matrice en graphite, en grande majorité dans la couche poreuse de particules i-Al-Cu-Fe non-transformées (région 3) et plus rarement dans la région 2. Les analyses EDX de cette microstructure lamellaire indiquent la présence d'une solution solide d'aluminium α-Al (contraste gris foncé) et de la phase θ-Al_2Cu (contraste gris clair) ; les compositions sont présentées Table IV-3. Ces analyses sont cohérentes avec le diagramme d'équilibre de phases Al-Cu (Cf. Annexe 2) qui indique une réaction eutectique L → α-Al + θ-Al_2Cu à 821 K [58].

La microstructure eutectique présentée Figure IV-9 se trouve dans la région 3. Elle est entourée de particules i-Al-Cu-Fe (contraste gris clair), de AlCu (contraste blanc).

Les contrastes noirs correspondent aux porosités. Les particules en contact direct avec la région eutectique présentent quant à elles une composition correspondant à la phase ω-Al-Cu-Fe : les particules i-Al-Cu-Fe initiales ont donc subi une transformation de phase.

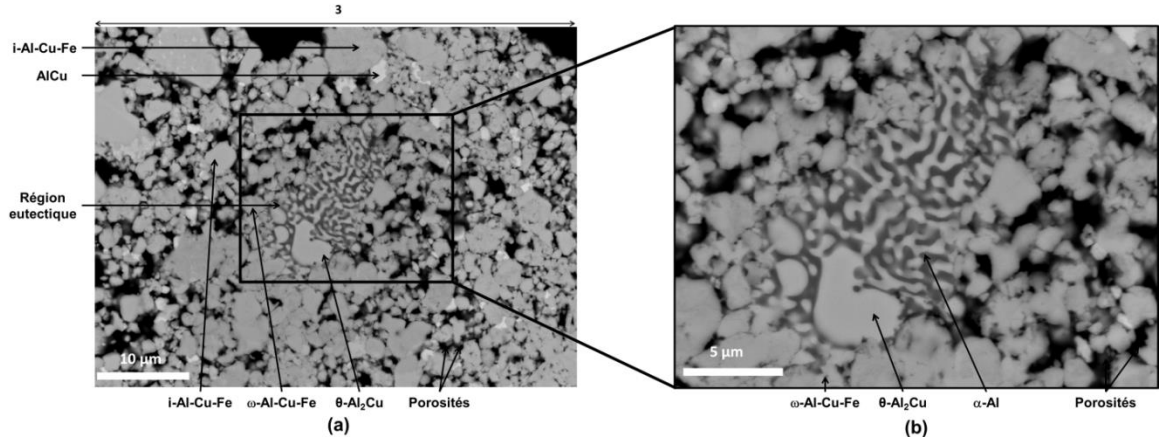


Figure IV-9 : Micrographies MEB, de l'échantillon 823-100-8-interface-poudre, mettant en évidence (a) la microstructure eutectique lamellaire, au niveau de la région 3 et (b) l'eutectique à plus fort grandissement.

	Phases détectées	Al (%. at.)	Cu (%. at.)	Fe (%. at.)
A proximité de l'eutectique	i-Al-Cu-Fe	62 - 64	24 - 26	12 - 13
	ω-Al-Cu-Fe	68 - 69	20 - 22	10 - 11
	AlCu	50 - 51	47 - 48	1 - 2
Eutectique	θ-Al_2Cu	66 - 67	32 - 34	0 - 1
	α-Al	92 - 95	5 - 8	-

Table IV-3 : Composition des différentes phases mesurée par EDX au sein de la région eutectique et à proximité, pour l'échantillon modèle à interface plane 823-100-8-interface-poudre.

IV.1.2. Echantillons modèles formés à partir de massifs

Les échantillons modèles à interface plane sont également synthétisés à partir d'un disque Al et d'une plaque i-Al-Cu-Fe ; ceci afin d'obtenir une zone interfaciale davantage plane. La plaque i-Al-Cu-Fe provient, soit du lingot 1, soit de poudre i-Al-Cu-Fe préalablement densifiée par SPS.

IV.1.2.1. Echantillon modèle synthétisé à partir du lingot 1

L'échantillon modèle, noté 823-50-15-interface-massif-1, est élaboré à partir d'un disque Al et d'une plaque i-Al-Cu-Fe, à 823 K / 100 MPa / 15 min.

Les observations MEB (Cf. Figure IV-10) montrent la couche Al (région 1), la zone interfaciale qui s'est formée (région 2) et la plaque poreuse i-Al-Cu-Fe (région 3). La zone interfaciale, très irrégulière, présente une largeur comprise entre 50 et 380 µm. Son taux de porosité est très inférieur à celui du lingot. Les analyses EDX, dans la couche d'aluminium, indiquent qu'il y a diffusion du cuivre du lingot vers l'aluminium. La teneur maximale en cuivre atteint 2,5 % at. près de la zone interfaciale et diminue jusqu'à une concentration non-détectable, à une distance de 27 µm environ de la zone interfaciale (Cf. Figure IV-11).

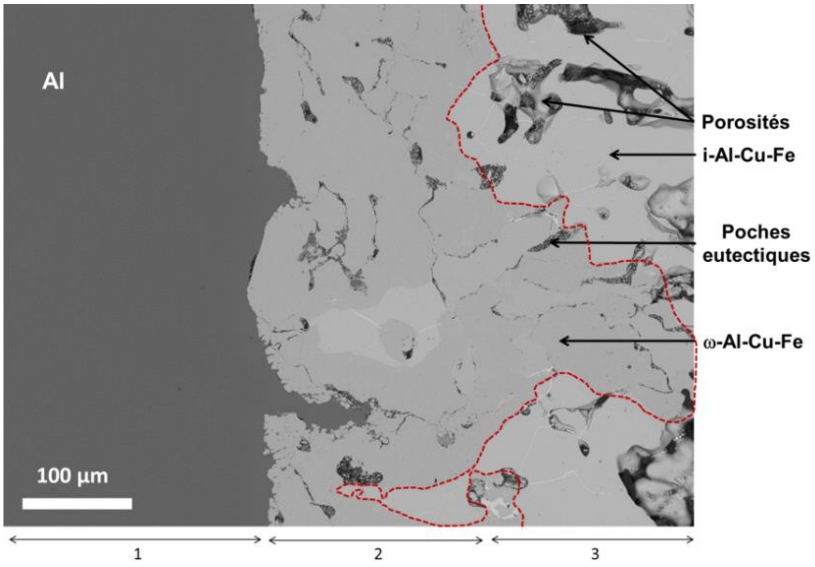


Figure IV-10 : Micrographie MEB de l'aspect général de l'échantillon modèle 823-50-15-interface-massif-1, mettant en évidence la couche d'aluminium (région 1), la plaque i-Al-Cu-Fe provenant du lingot 1 (région 3) et la zone interfaciale (région 2) formée très irrégulière.

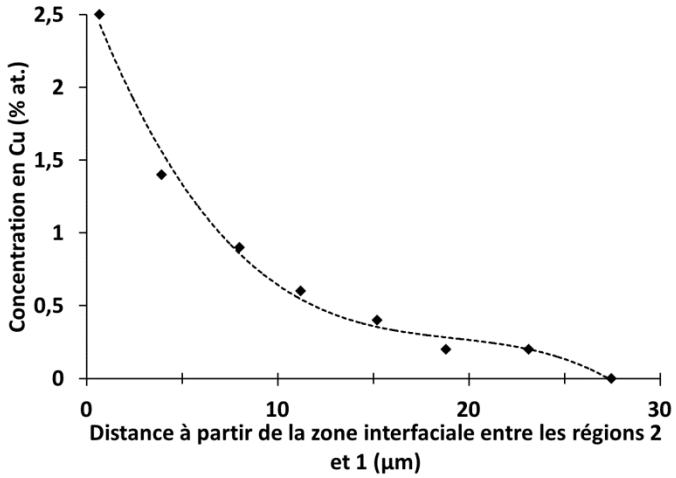


Figure IV-11 : Concentration en cuivre au sein du disque d'Al, obtenue à partir des analyses EDX, en fonction de la distance à l'interface entre les régions 2 et 1 pour l'échantillon modèle 823-50-15-interface-massif-1.

La zone interfaciale comprend différents contrastes chimiques et donc plusieurs phases : la composition est présentée Table IV-4.

La Figure IV-12a met en évidence la formation de la phase ω-Al-Cu-Fe. La phase ω-Al-Cu-Fe est entourée de porosités (contraste noir) et de la phase i-Al-Cu-Fe, dont la composition est identique à celle mesurée pour le lingot 1.

La Figure IV-12b, à plus fort grandissement, montre la présence de poches d'eutectique entourées de ω-Al-Cu-Fe. Les zones d'eutectique sont situées au niveau des porosités initialement présentes dans le lingot et sont constituées d'une alternance de couches de solution solide d'aluminium α-Al et de θ-Al_2Cu. Cette structure eutectique est similaire à celle observée Figure IV-9.

La Figure IV-12c met en évidence la présence de i-Al-Cu-Fe et ω-Al-Cu-Fe, des phases secondaires θ-Al_2Cu et AlCu ainsi que β-$Al_{50}Cu_{50-x}Fe_x$, phase résiduelle du lingot 1. Cette configuration est similaire à ce qui a été observé dans le cas de l'échantillon modèle 823-100-8-interface-poudre (Voir Figure IV-8). Par ailleurs, des chemins de diffusion (contraste blanc), visibles au sein de la phase i-Al-Cu-Fe et sur le pourtour de β-$Al_{50}Cu_{50-x}Fe_x$, sont enrichis en cuivre et appauvris en aluminium par rapport à la composition de i-Al-Cu-Fe. Cette configuration a également été observée à la Figure IV-7a.

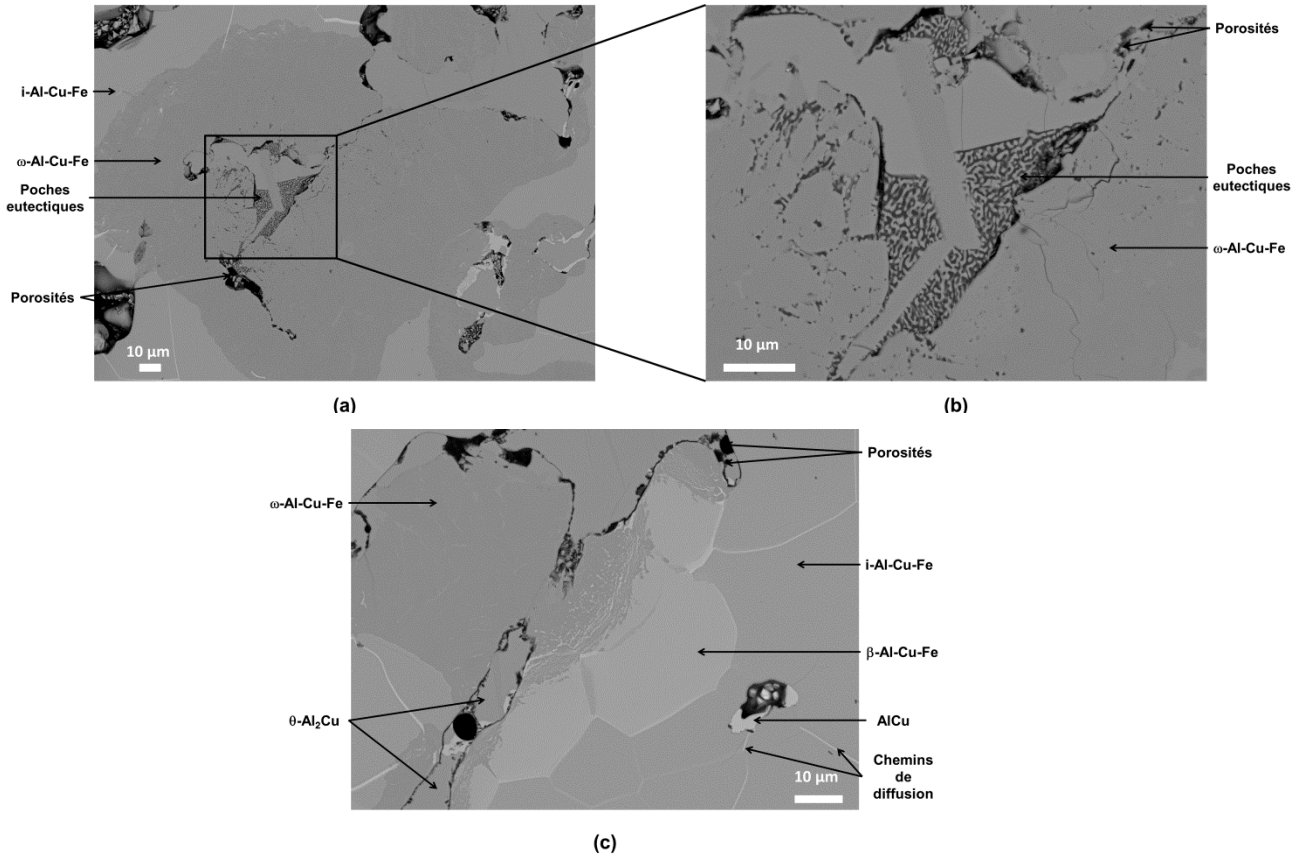


Figure IV-12 : Micrographies MEB de l'échantillon modèle 823-50-15-interface-massif-1 montrant, (a) une zone transformée en ω-Al-Cu-Fe, (b) entourant une poche eutectique et (c) une zone mettant en évidence la formation de la phase ω-Al-Cu-Fe et de plusieurs phases secondaires.

Phases détectées	Al (%. at.)	Cu (%. at.)	Fe (%. at.)
i-Al-Cu-Fe	60 - 61	27 - 28	12 - 13
ω-Al-Cu-Fe	66 - 68	22 - 23	9 - 11
AlCu	47 - 51	48 - 49	1 - 4
θ-Al_2Cu	64 - 66	33 - 35	0 - 2
β-$Al_{50}Cu_{50-x}Fe_x$	50 - 53	39 - 44	4 - 10

Table IV-4 : Composition des différentes phases mesurée par EDX pour l'échantillon modèle 823-50-15-interface-massif-1.

IV.1.2.2. Echantillon modèle synthétisé à partir de i-Al-Cu-Fe densifié par SPS

L'échantillon modèle 823-50-15-interface-massif-2, est élaboré à partir d'un disque Al et de poudre i-Al-Cu-Fe préalablement densifiée par SPS. A partir des observations MEB, présentées Figure IV-13, l'échantillon peut être divisé en trois régions : la couche d'aluminium (région 1), la couche i-Al-Cu-Fe initiale (région 3) et la zone interfaciale (région 2) formée entre les régions 1 et 3 durant le frittage réactif, qui présente une largeur d'environ 40 µm.

Les analyses EDX au sein de la couche d'aluminium montrent qu'il y a diffusion du cuivre de la couche i-Al-Cu-Fe vers l'aluminium. La teneur maximale en cuivre atteint 2% at. environ près de la zone interfaciale entre les régions 1 et 2, et diminue jusqu'à une concentration non-détectable, à une distance de 35 ± 1 µm de la zone interfaciale (Cf. Figure IV-14).

La composition de la phase i-Al-Cu-Fe (région 3) est similaire à celle mesurée pour la poudre densifiée avant frittage réactif de l'échantillon modèle. Les phases résiduelles λ-$Al_{13}Fe_4$ et β-$Al_{50}Cu_{50-x}Fe_x$ sont également détectées (Voir Table Table IV-5).

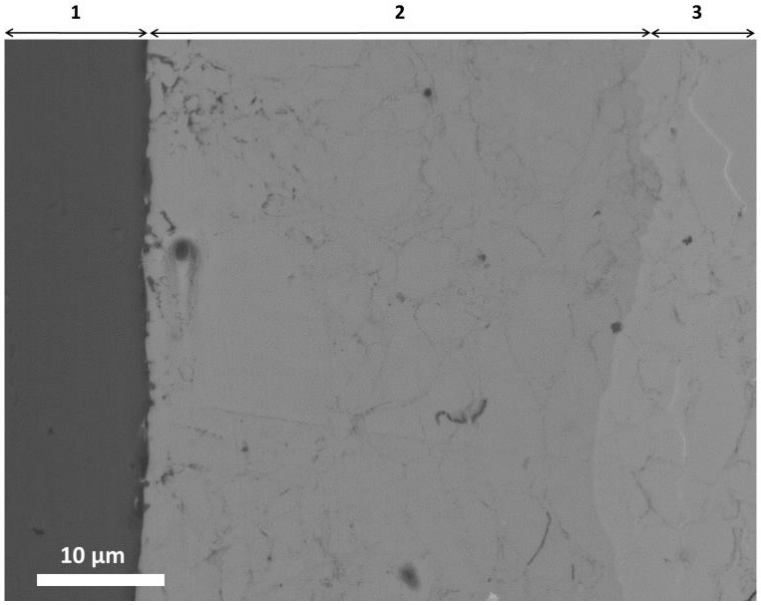


Figure IV-13 : Micrographie MEB de l'échantillon modèle 823-50-15-interface-massif-2 mettant en évidence la couche d'aluminium (région 1), la couche i-Al-Cu-Fe (région 3) et la zone interfaciale formée entre les régions 1et 3 (région 2).

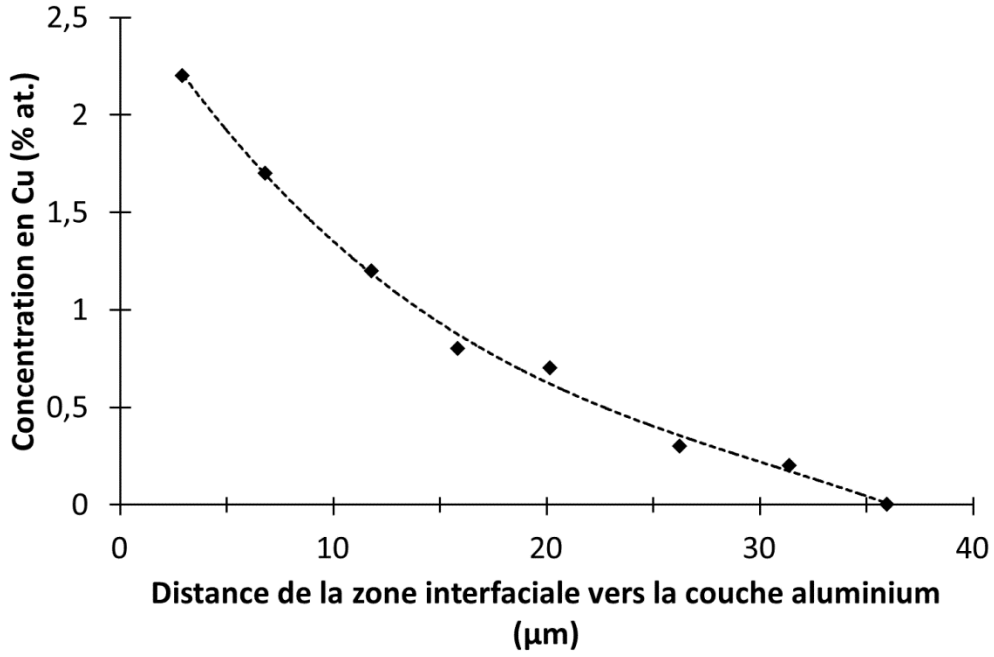


Figure IV-14 : Concentration en cuivre au sein du disque d'Al, obtenue à partir des analyses EDX, en fonction de la distance à la zone interfaciale pour l'échantillon modèle 823-50-15-interface-massif-2.

La zone interfaciale formée durant le frittage réactif est régulière et ne présente que peu de porosités. Par ailleurs, la zone interfaciale est composée uniquement de ω-Al-Cu-Fe, dont la composition est très proche de la composition nominale ω-Al_7Cu_2Fe. Les phases θ-Al_2Cu et AlCu n'ont pas été détectées à la zone interfaciale. La composition des différentes phases détectées est présentée Table IV-5.

	Phases détectées	**Al (% at.)**	**Cu (% at.)**	**Fe (% at.)**
Région 2	**ω-Al-Cu-Fe**	68 - 70	19 - 21	10 - 11
Région 3	**i-Al-Cu-Fe**	62 - 65	22 - 25	13 - 15
	λ-$Al_{13}Fe_4$	70 - 72	6 - 8	21 - 22
	β-$Al_{50}Cu_{50-x}Fe_x$	49 - 51	42 - 43	7 - 8

Table IV-5 : Composition des phases mesurée par EDX pour l'échantillon modèle 823-50-15-interface-massif-2.

IV.1.3. Echantillons modèles : bilan

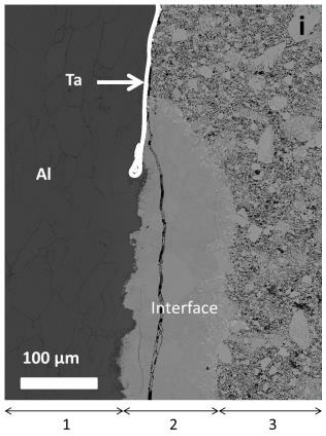
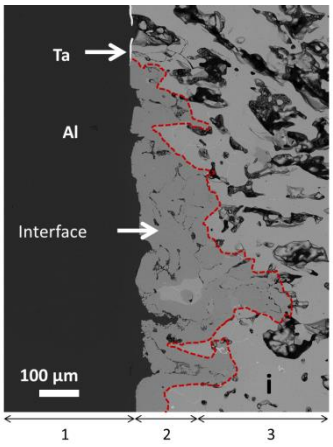
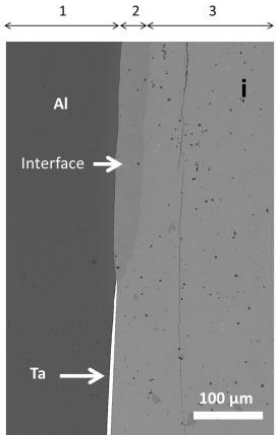
	Echantillon modèle à interface plane (Poudre)	Echantillon modèle à interface plane (Plaque i)	Echantillon modèle à interface plane (Plaque i)
	823-100-8-interface-poudre	**823-50-15-interface-massif-1**	**823-50-15-interface-massif-2**
Micrographies MEB			
Caractéristiques zones interfaciales	Gradient de porosités qui diminue en direction de Al Plusieurs phases secondaires Cas similaire aux composites	Larges porosités Plusieurs phases secondaires	Peu de porosités Aucune phase secondaire
Phases zones interfaciales	ω-Al-Cu-Fe θ-Al_2Cu AlCu	ω-Al-Cu-Fe θ-Al_2Cu AlCu β-$Al_{50}Cu_{50-x}Fe_x$ Eutectique	ω-Al-Cu-Fe
Largeur de la zone interfaciale	80 - 90 µm	≥ 100 µm	40 µm
Diffusion de Cu dans Al	45 µm	25 µm	35 µm

Table IV-6 : Caractéristiques des différents échantillons modèles à interface plane.

IV.2. Composite Al/i-Al-Cu-Fe partiellement transformé

Les échantillons modèles à interface plane ont permis d'observer la transformation partielle de i-Al-Cu-Fe vers ω-Al-Cu-Fe ainsi que les séquences spatiales de formation des phases lors de la synthèse. Dans le chapitre III, il a été mentionné que, pour des températures comprises entre 793 K et 813 K, la transformation de phase i-Al-Cu-Fe vers ω-Al-Cu-Fe est incomplète pour les composites Al/Al-Cu-Fe.

IV.2.1. Microstructures

L'objectif de cette section est de comprendre la transformation de phase i-Al-Cu-Fe en ω-Al-Cu-Fe via l'étude de la microstructure des composites Al/i-Al-Cu-Fe partiellement transformés en Al/ω-Al-Cu-Fe. Pour cela, l'échantillon 793-100-8, décrit dans le chapitre III, sera observé au MEB et analysé par EDX.

La Figure IV-15 présente une micrographie MEB de l'échantillon 793-100-8. Il est possible de distinguer des agglomérats de petites et de plus grosses particules de renfort. Les porosités (contraste noir) sont également visibles entre les particules de renfort.

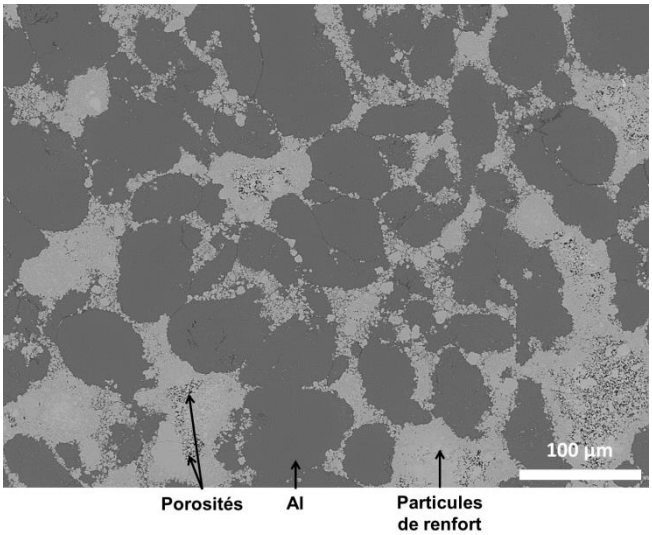


Figure IV-15 : Micrographie MEB de l'aspect général de l'échantillon 793-100-8.

Les observations MEB de la matrice Al (Cf. Figure IV-16a) mettent en évidence la présence de joints, enrichis en cuivre, entre les particules. Les analyses EDX effectuées au sein de la matrice Al montrent que celle-ci contient du cuivre, avec une teneur maximale de 2,5% at. à proximité des particules Al-Cu-Fe (Cf. Figure IV-16b).

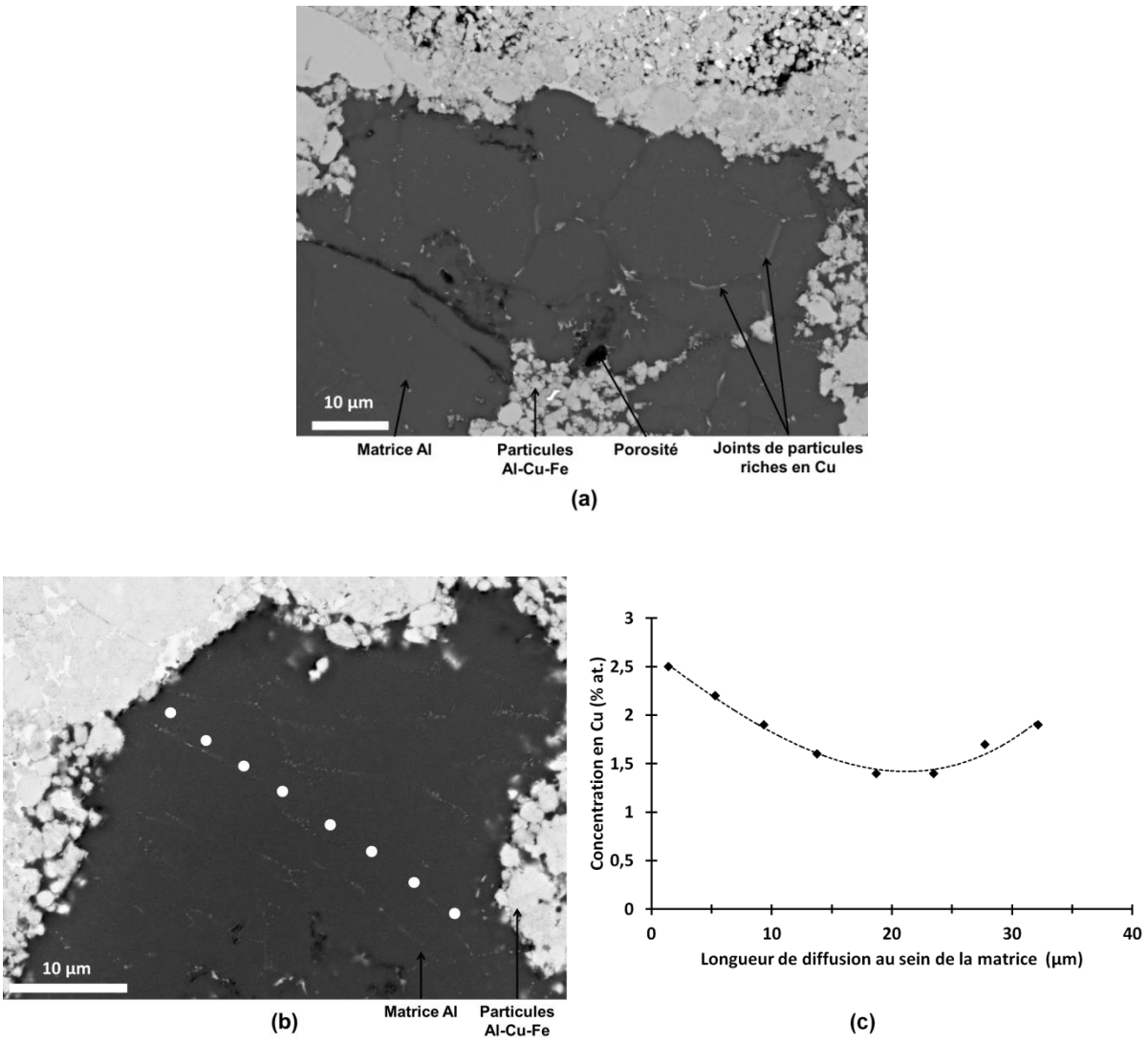


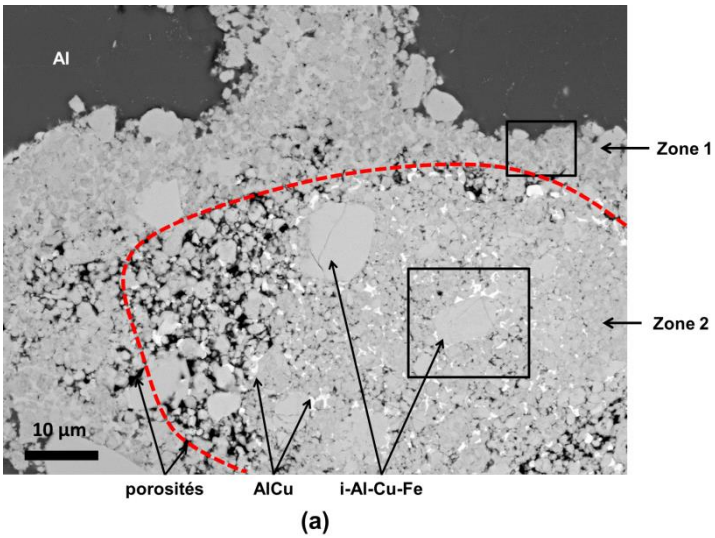
Figure IV-16 : Micrographies MEB de la matrice Al de l'échantillon 793-100-8 mettant en évidence (a) les joints de particules plus riches en cuivre, (b) la position des pointés EDX et (c) la concentration en cuivre à partir des différents pointés réalisés au sein de la matrice Al.

Les micrographies présentées Figure IV-17 montrent des zones partiellement transformées à différents grandissements. Les contrastes chimiques indiquent que plusieurs phases se sont formées. A partir des contrastes, il est possible de diviser la région des particules de renfort en deux zones.

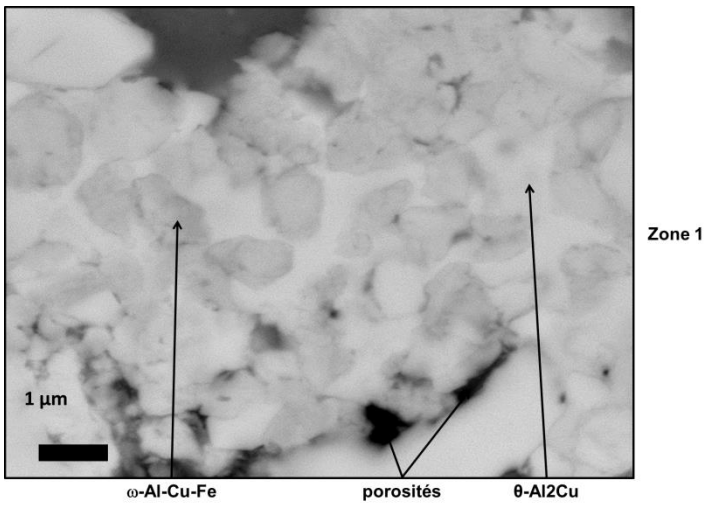
La micrographie Figure IV-17b, correspond à la zone 1 symbolisée Figure IV-17a. Celle-ci se situe à la périphérie du renfort, en contact avec la matrice Al. D'après les analyses EDX, les particules i-Al-Cu-Fe sont transformées en phase ω-Al-Cu-Fe. Dans cette zone, aucune particule i-Al-Cu-Fe n'a été détectée. On note la présence d'une phase mouillante θ-Al_2Cu entre les particules de ω-Al-Cu-Fe. L'aspect fondu de θ-Al_2Cu a déjà été observé au sein des échantillons modèles (Voir Figure IV-6b).

La composition des différentes phases détectées est reportée Table IV-7. Les phases en présence dans la zone 1 sont similaires à celles observées au sein de la région 2b pour les échantillons modèles synthétisés à base de poudre.

La zone 2, présentée Figure IV-17c, se situe au sein de l'agrégat formé à partir des particules de renfort. Cette zone est essentiellement composée de particules i-Al-Cu-Fe et de AlCu (contraste blanc) ; AlCu semble remplir les porosités initialement présentes. Au sein de la zone 2, aucune particule ω-Al-Cu-Fe n'a été détectée. La composition relevée pour la phase i-Al-Cu-Fe montre qu'il y a eu un enrichissement en aluminium et un appauvrissement en cuivre, par rapport à la composition mesurée pour le lingot 1. Les phases en présence dans la zone 2 sont similaires à celles observées au sein de la région 2c pour les échantillons modèles synthétisés à base de poudre.



(a)



(b)

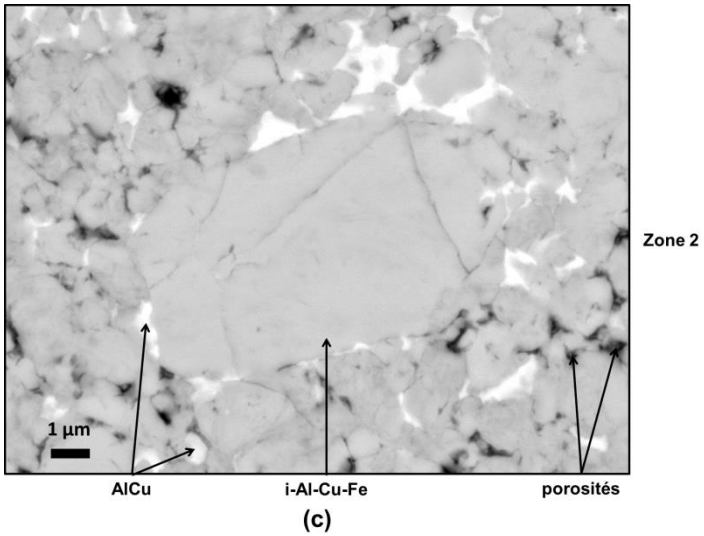


Figure IV-17 : (a) Micrographies MEB de l'échantillon 793-100-8 partiellement transformé, (b) zone 1 montrant la phase ω-Al-Cu-Fe en contact avec la phase θ-Al_2Cu, (c) les particules i-Al-Cu-Fe et porosités initiales comblées par la phase AlCu dans la zone 2.

	Phases détectées	Al (% at.)	Cu (% at.)	Fe (% at.)
Matrice Al	α - Al	97 - 100	0 - 3	0 - 1
Région 1	ω-Al-Cu-Fe	67 - 71	16 - 21	10 - 14
	θ - Al_2Cu	66 - 67	30 - 33	1 - 3
Région 2	i-Al-Cu-Fe	62 - 65	21 - 25	12 - 14
	AlCu	49 - 51	46 - 49	1 - 4
Particules	β-$Al_{50}Cu_{50-x}Fe_x$	51 - 58	30 - 43	5 - 18

Table IV-7 : Composition des différentes phases mesurée par EDX au sein du composite 793-100-8.

Des particules de renfort présentant une transformation partielle de i-Al-Cu-Fe vers ω-Al-Cu-Fe sont également visibles dans le composite Al/i-Al-Cu-Fe. La Figure IV-18a permet d'observer une particule i-Al-Cu-Fe (contraste gris clair) partiellement transformée en ω-Al-Cu-Fe (contraste gris foncé) à la périphérie de la particule en contact avec Al. Par ailleurs, les joints de grains (contraste blanc) sont enrichis en cuivre et appauvris en aluminium par rapport à la phase i-Al-Cu-Fe. Une micrographie à plus fort grandissement est présentée Figure IV-18b. La phase ω-Al-Cu-Fe semble se former le long de certains joints de grains. Ce phénomène est également observable pour les échantillons modèles à interface plane (Voir Figure IV-7).

Un deuxième exemple de particule i-Al-Cu-Fe partiellement transformée est présenté Figure IV-19. D'après les analyses EDX, la particule est composée de i-Al-Cu-Fe, β-$Al_{50}Cu_{50-x}Fe_x$ et ω-Al-Cu-Fe.

Des chemins de diffusion enrichis en cuivre et appauvris en aluminium sont visibles. Comme précédemment, la phase ω-Al-Cu-Fe semble se former à partir de ces chemins de diffusion. Ce phénomène a déjà été observé dans les échantillons modèles (Voir Figure IV-8 et Figure IV-12c).

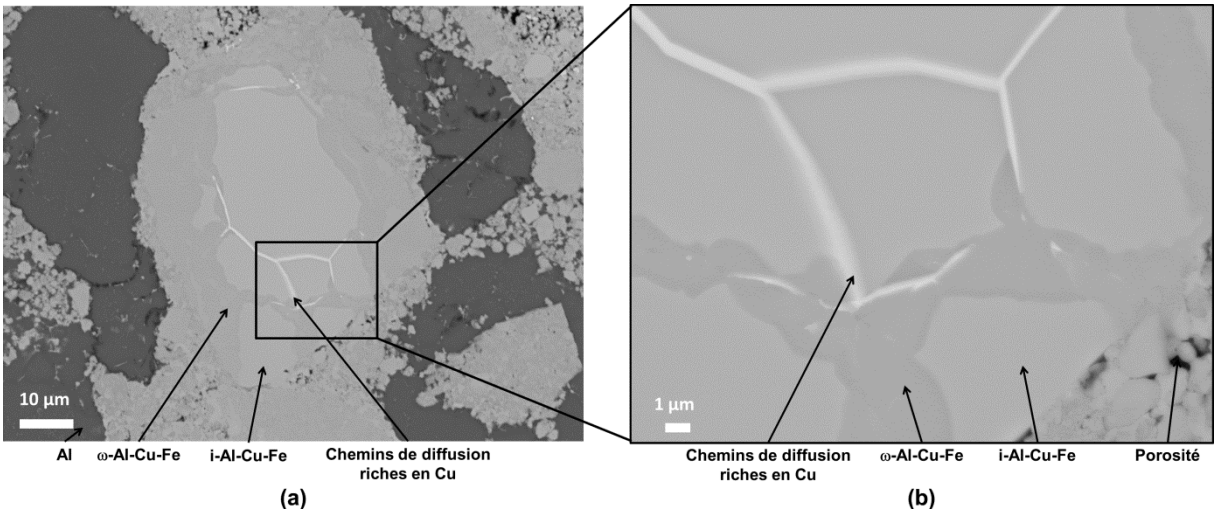


Figure IV-18 : Micrographies MEB d'une particule i-Al-Cu-Fe partiellement transformée en ω-Al-Cu-Fe, (a) mettant en évidence des joints de grains contrastés, (b) à plus fort grandissement soulignant la présence de ω-Al-Cu-Fe le long des joints de grains.

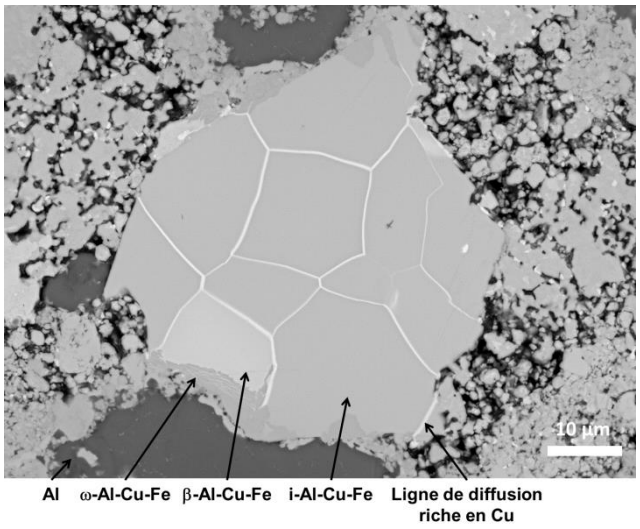


Figure IV-19 : Micrographie MEB du composite 793-100-8 partiellement transformé en Al/ω-Al-Cu-Fe mettant en évidence des particules i-Al-Cu-Fe présentant des joints de grains contrastés et révélant la présence de ω-Al-Cu-Fe en contact avec Al, i-Al-Cu-Fe et β-$Al_{50}Cu_{50-x}Fe_x$ résiduelle.

Une microstructure eutectique a été observée au sein des échantillons modèles à interface plane. Dans les composites partiellement transformés, l'eutectique n'a pas été détecté.

Cependant, pour le composite 833-100-2, l'apparition de liquide lors de la synthèse a été évoquée dans le chapitre précédent (Cf. Table III-2 et Table III-3). Une des gouttes solidifiées provenant du composite 833-100-2 a été analysée par EDX, la taille de l'échantillon ne permettant pas d'analyses DRX.

La micrographie MEB en coupe transverse de la goutte solidifiée met en évidence une microstructure eutectique lamellaire typique (Cf. Figure IV-20). Celle-ci est composée d'une alternance de couches de solution solide d'aluminium α-Al (contraste noir) et d'une phase très riche en cuivre et en aluminium (contraste clair), supposée être la phase θ-Al_2Cu. La taille des lamelles est trop fine par rapport à la poire d'interaction du faisceau pour déterminer une composition fiable en EDX. Néanmoins, selon la littérature, une réaction eutectique L → α-Al + θ-Al_2Cu a lieu à 821 K, ce qui est cohérent avec les résultats obtenus à 833K [58].

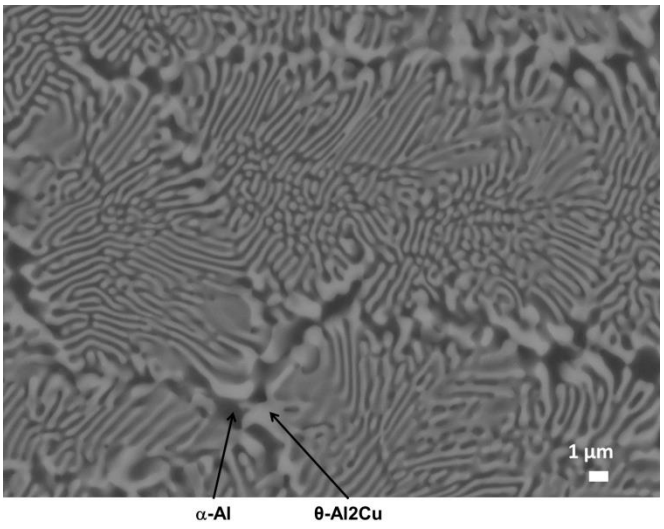


Figure IV-20 : Micrographie MEB d'une goutte solidifiée provenant de la synthèse du composite 833-100-2 et mettant en évidence la microstructure typique d'un eutectique composé d'une solution solide d'aluminium α-Al et de θ-Al_2Cu.

Les observations et les analyses pour le composite 793-100-8 partiellement transformé indiquent la présence de i-Al-Cu-Fe et ω-Al-Cu-Fe ainsi que la présence de plusieurs phases intermédiaires (AlCu, θ-Al_2Cu) et de β-$Al_{50}Cu_{50-x}Fe_x$ résiduelle. Ces phases intermédiaires semblent jouer un rôle dans la transformation de phase i-Al-Cu-Fe vers ω-Al-Cu-Fe. Des joints de grains ou de particules ayant subi un enrichissement en cuivre et un appauvrissement en aluminium comparativement à i-Al-Cu-Fe sont également mis en évidence.

IV.2.2. MEB in-situ : observations et analyses

Dans cette section, les résultats obtenus lors du chauffage in-situ des composites Al/i-Al-Cu-Fe au MEB-FEG Zeiss Supra 55VP (décrit dans le chapitre II) seront décrits, ceci afin de mieux comprendre les différentes étapes de la transformation de phase i-Al-Cu-Fe vers ω-Al-Cu-Fe.

IV.2.2.1. Traitement thermique au MEB in-situ

IV.2.2.1.1. Etape de chauffage

Le composite Al/i-Al-Cu-Fe, noté 773-100-2 et décrit dans le chapitre III, est utilisé pour le traitement thermique in-situ au MEB. Pour rappel, les analyses DRX et EDX indiquent que ce composite est composé d'aluminium et de i-Al-Cu-Fe. Des traces de phases résiduelles λ-$Al_{13}Fe_4$ et β-$Al_{50}Cu_{50-x}Fe_x$ sont détectées (voir Chapitre III).

L'objectif est de chauffer l'échantillon jusqu'à 823 K par pas de 100, 50 et 10 K, jusqu'à 673, 773 et 823 K respectivement (Voir Figure I-6 et description chapitre II). La température limite du traitement thermique (T = 823 K) est choisie à partir du diagramme d'équilibre de phase Al-Cu [58] (Cf. Annexe 2) de manière à éviter la formation d'un eutectique α-Al + θ-Al_2Cu qui endommagerait le dispositif expérimental.

Afin de suivre l'évolution de la microstructure lors du traitement thermique, la même zone est observée et analysée avant et après chauffage (Voir Figure IV-21). La zone choisie permettra d'observer le comportement des régions de renfort poreuses, de la matrice aluminium ainsi que de la zone interfaciale entre une particule de renfort et la matrice Al. La particule de renfort i-Al-Cu-Fe au centre de la micrographie, dont la taille est largement supérieure à celles présentes autour, sera plus particulièrement observée.

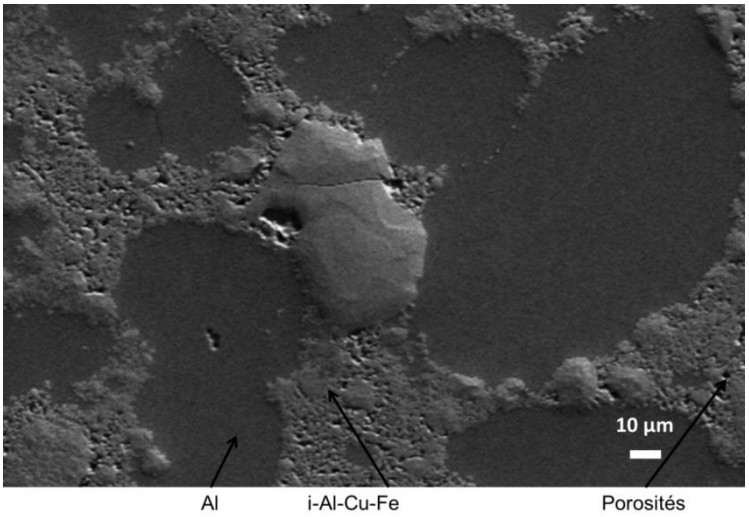


Figure IV-21 : Micrographie MEB en électrons secondaires, à température ambiante, du composite 773-100-2 montrant la zone sélectionnée pour l'observation au cours du chauffage in-situ au MEB-FEG.

Pour les températures inférieures à 673 K, la microstructure n'évolue pas. A partir de 673K, des sphérules (contraste blanc) apparaissent sur les particules de renfort, au niveau des joints ou au sein des zones poreuses (Cf. Figure IV-22a et Figure IV-22b). Au sein de la matrice aluminium, le seul changement observable est l'apparition d'une cloque.

Les micrographies MEB prises à 773 K sont présentées Figure IV-22c et Figure IV-22d. De 673 K à 773 K, nous observons une augmentation de la proportion de sphérules (contraste blanc) et un accroissement de leur volume. Par ailleurs, des fissures sont apparues sur la grosse particule de renfort, celles-ci s'accompagnant du déchaussement de certaines zones de la particule.

A partir de 783 K, la taille et le nombre des sphérules (contraste blanc) n'évoluent plus. Entre 803 K et 823 K (Cf. Figure IV-22e et Figure IV-22f), nous observons l'apparition de relief dans la matrice aluminium et une fissuration plus marquée au sein de la particule de renfort. Ces deux effets s'accentuent lorsque la température augmente.

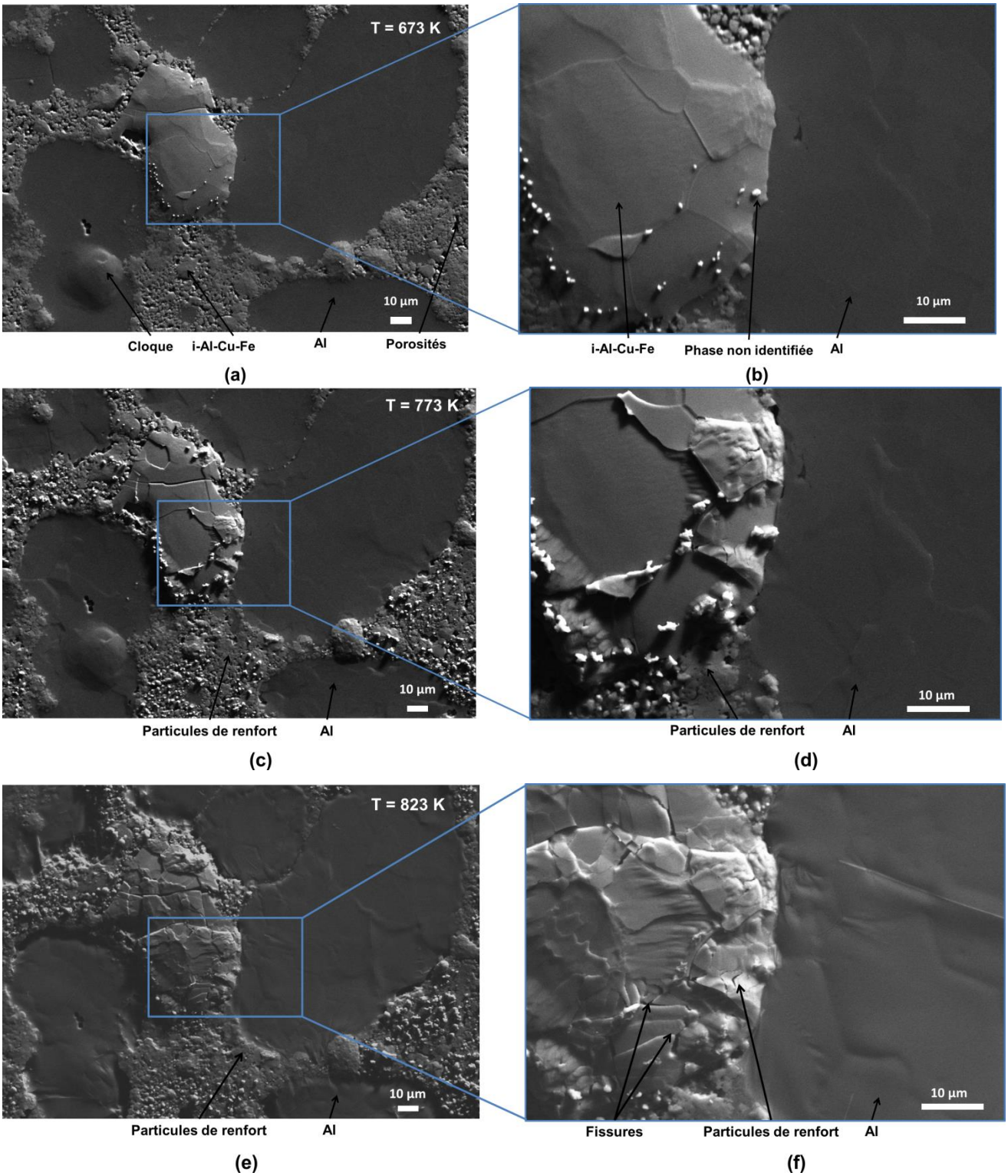


Figure IV-22 : Micrographies MEB en électrons secondaires du composite 773-100-2 au cours du chauffage in-situ au MEB-FEG (a) et (b) à T = 673 K, (c) et (d) a T = 773 K, (e) et (f) à T = 823.

La modification de la microstructure et l'apparition de sphérules au cours du chauffage jusqu'à T = 823K sont observables sur toute la surface de l'échantillon comme présenté Figure IV-23.

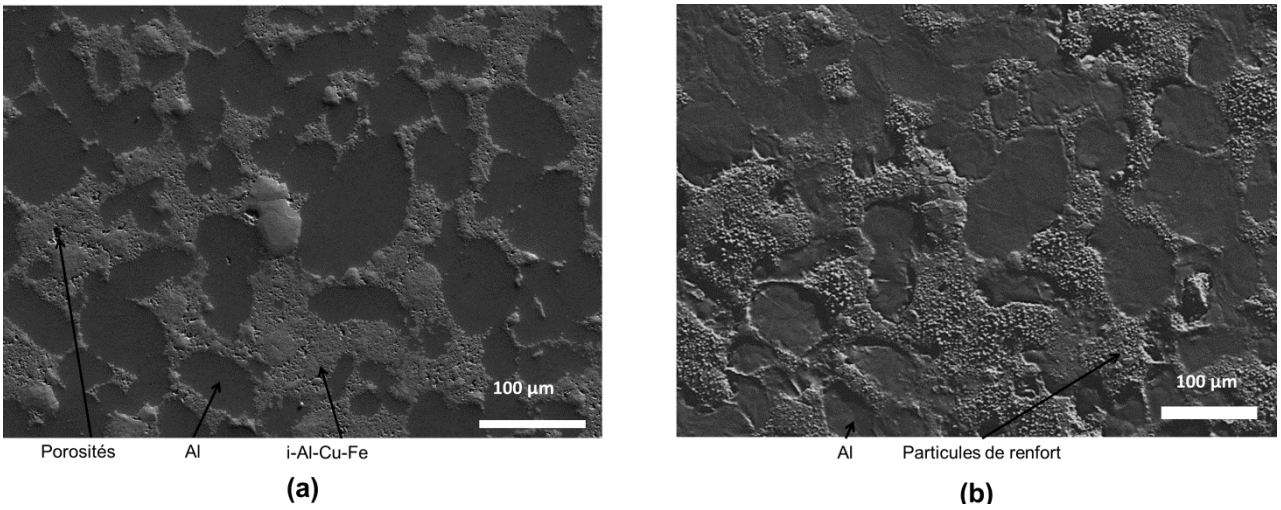


Figure IV-23 : Micrographies MEB de la surface de l'échantillon 773-100-2 (a) avant et (b) après le chauffage à T=823K.

IV.2.2.1.2. Refroidissement

La vitesse de refroidissement (sous vide) est de 5 $K.min^{-1}$. Les Figure IV-24a et Figure IV-24b montrent des micrographies MEB prises lors du refroidissement à 673 K et 373 K respectivement. Pour T< 673 K, nous observons la formation de précipités au sein de la matrice Al. Les précipités sont d'autant plus nombreux que la température diminue. La microstructure des particules de renfort n'évolue pas.

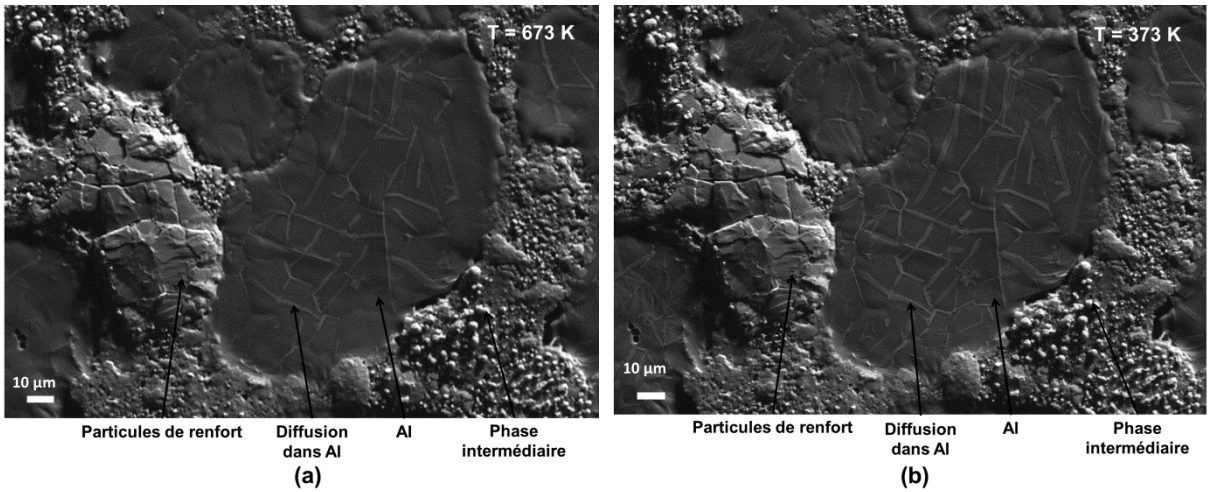


Figure IV-24 : Micrographies MEB de l'échantillon 773-100-2 lors du refroidissement à T = 673 K (a) et T 373 K (b), mettant en évidence les précipités formés au sein de la matrice aluminium.

IV.2.2.2. Analyses post-mortem

Les analyses DRX effectuées post-mortem, présentées Figure IV-25, indiquent que l'échantillon 773-100-2, après traitement thermique, est composé d'aluminium, de ω-Al-Cu-Fe et de θ-Al_2Cu. Aucun pic correspondant à i-Al-Cu-Fe n'a été détecté.

L'échantillon 773-100-2 après traitement thermique est observé au MEB-FEG JEOL 7001-TTLS (décrit au Chapitre II) et analysé par EDX. Les micrographies MEB, en électrons rétrodiffusés présentées Figure IV-26, montrent l'aspect général de l'échantillon à différents grandissements. Les observations post-mortem couplées aux analyses EDX confirment la précipitation d'une nouvelle phase θ-Al_2Cu au sein de la matrice Al contenant du cuivre (concentration maximale de Cu dans Al à 1 % at.).

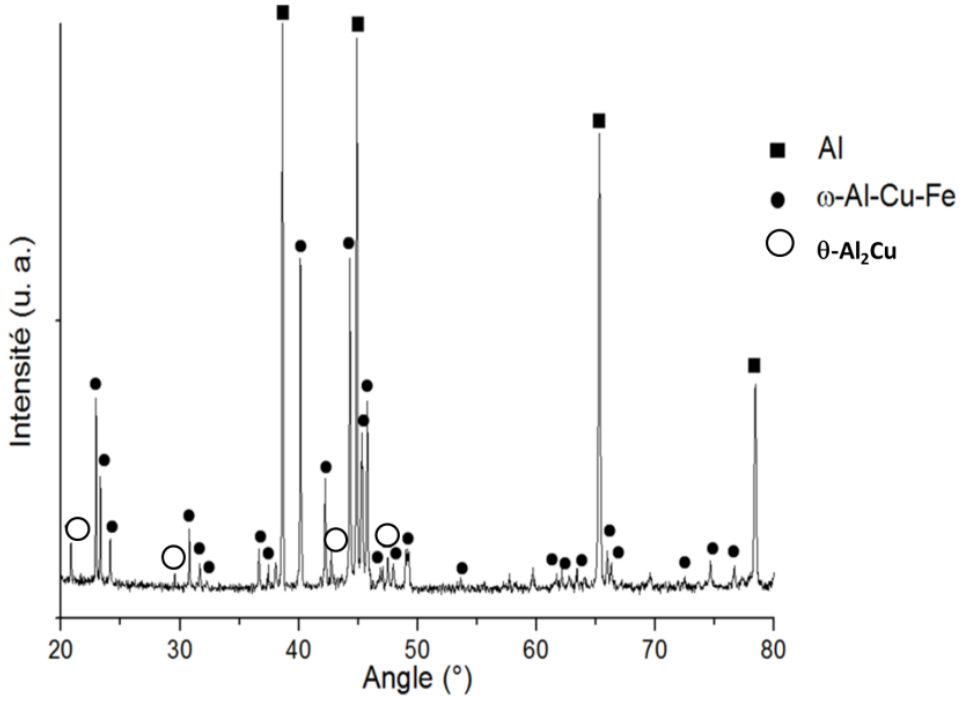


Figure IV-25 : Diffractogramme de l'échantillon 773-100-2 ayant subi un traitement thermique in-situ au MEB.

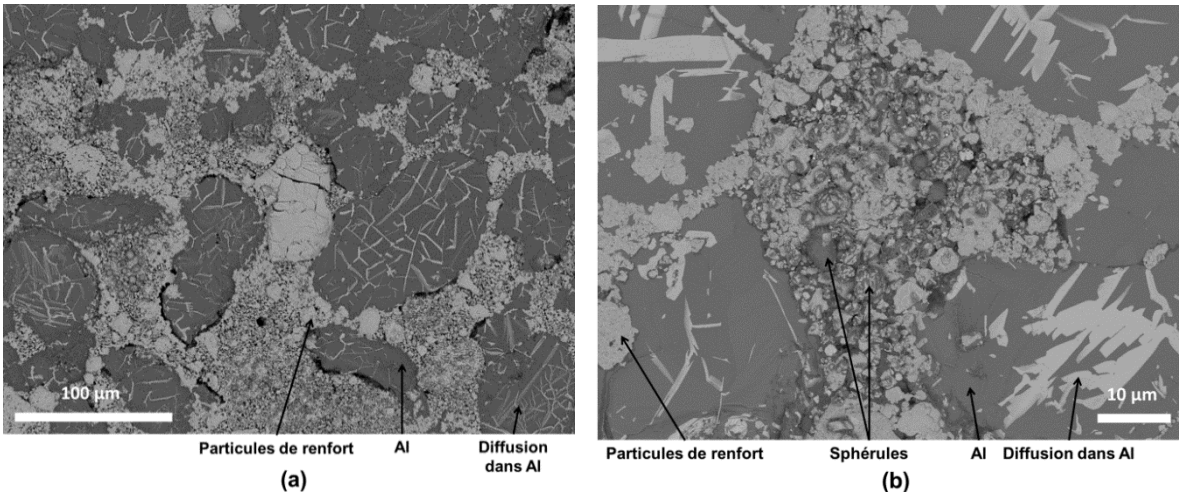


Figure IV-26 : Micrographies MEB en électrons rétrodiffusés montrant (a) l'aspect général de la surface de l'échantillon 773-100-2 après traitement thermique, (b) à plus fort grandissement, une zone de renfort initialement poreuse.

Les sphérules formées au sein des particules de renfort sont observées en électrons secondaires (Cf. Figure IV-27a) et en électrons rétrodiffusés (Cf. Figure IV-27b). Une tension d'accélération de 5 kV est utilisée dans ce cas, ce qui permet d'observer la proche surface et de diminuer la taille de la sonde lors des analyses chimiques. A 5 kV, il faut considérer une erreur de 3 % at. environ et une poire d'interaction pour Al et θ-Al_2Cu estimée à 300 et 200 nm respectivement.

La phase formée lors du chauffage au MEB in-situ, et présente après refroidissement sous forme de gouttelettes solidifiées (Cf. Figure IV-27a), comporte une microstructure lamellaire caractéristique d'une structure eutectique (Cf. Figure IV-27b). Les analyses EDX indiquent que les gouttelettes solidifiées sont composées d'une alternance de couches de solution solide α-Al (contraste gris foncé) et de θ-Al_2Cu (contraste gris clair), dont la composition est présentée Table IV-8.

Des analyses EDX sont également réalisées autour des gouttelettes solidifiées donc au niveau des particules de renfort. Les particules i-Al-Cu-Fe initiales sont transformées en une phase qui est enrichie en aluminium et appauvrie en cuivre, de composition $Al_{66\text{-}71}Cu_{16\text{-}20}Fe_{12\text{-}14}$.

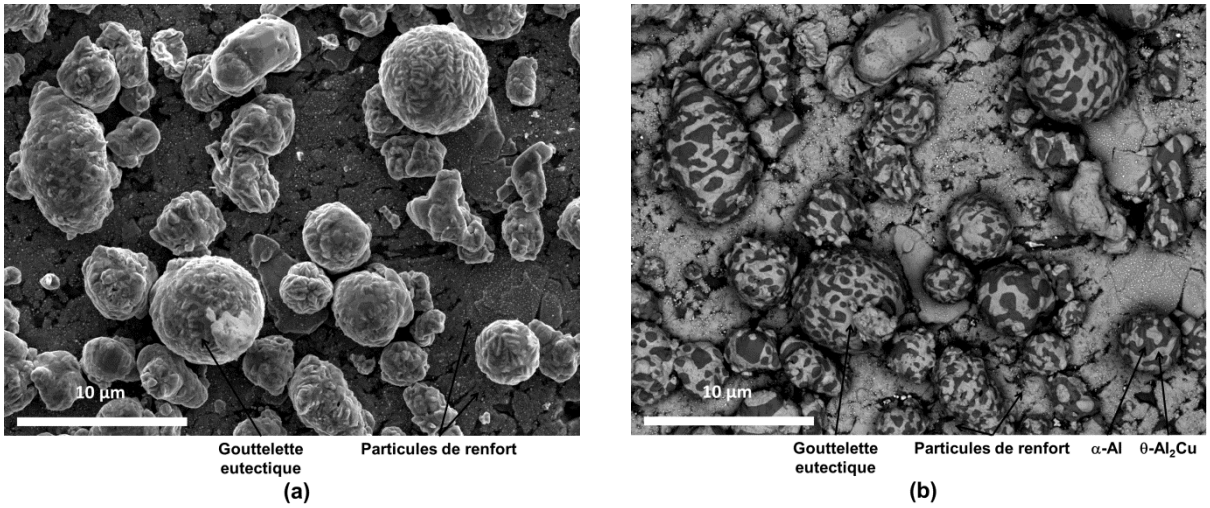


Figure IV-27 : Micrographies MEB post-mortem des particules de renfort, présentant des gouttelettes d'eutectique solidifiées au niveau des zones poreuses, (a) en électrons secondaires et (b) en électrons rétrodiffusés.

Noms	EDX			
	Phases détectées	Al (% at.)	Cu (% at.)	Fe (% at.)
Matrice Al	α-Al	99 - 100	0 - 1	-
	θ-Al_2Cu	67 - 68	32 - 33	-
Particule de renfort observée	ω-Al-Cu-Fe	65 - 67	18 -20	14 - 15
Régions eutectique	ω-Al-Cu-Fe	66 - 71	16 - 20	12 - 14
	α-Al	97 - 100	0 - 3	-
	θ-Al_2Cu	62	38	-

Table IV-8 : Composition des phases détectées par EDX pour l'échantillon 773-100-2-recuit post-mortem.

La Figure IV-28 présente une micrographie MEB en électrons rétrodiffusés de la particule de renfort observée lors du chauffage. Les différents contrastes visibles sont dus au relief provenant de la fissuration et du déchaussement de la particule. Les analyses EDX post-mortem sur la particule i-Al-Cu-Fe initiale de composition $Al_{65-67}Cu_{18-20}Fe_{14-15}$ indique qu'il y a eu enrichissement en aluminium et appauvrissement en cuivre de la phase i-Al-Cu-Fe initiale (Cf. Table IV-8). D'après les analyses DRX, ces phases correspondent à la phase ω-Al-Cu-Fe. Quelle que soit la taille des particules de renfort, la composition est $Al_{65-67}Cu_{18-20}Fe_{14-15}$.

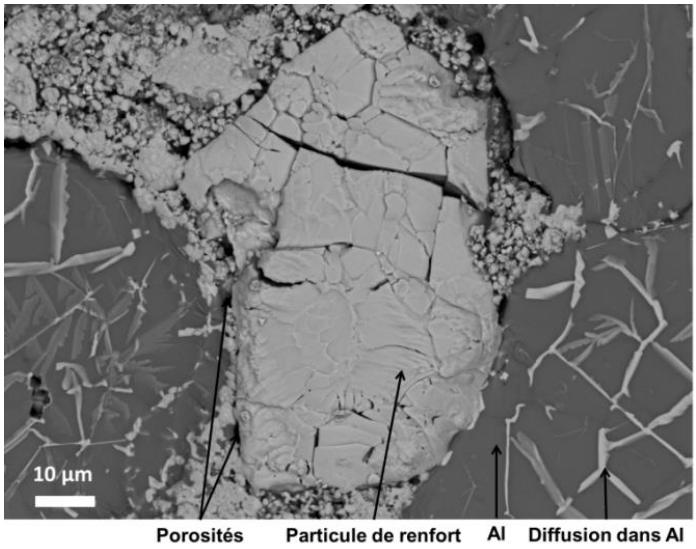


Figure IV-28 : Micrographie MEB en électrons rétrodiffusés de la particule de renfort post-mortem observée lors du traitement thermique de l'échantillon 773-100-2.

Compte tenu de la présence de nombreux précipités θ-Al_2Cu et de la formation des sphérules α-Al + θ-Al_2Cu, une analyse EDX globale a été réalisée sur une zone de 500 x 600 µm², afin de vérifier qu'il n'y a pas eu de perte de matière. Si l'on considère que la transformation de phase Al + i-Al-Cu-Fe ➔ ω-Al-Cu-Fe est totale, la composition mesurée correspond bien à la composition calculée Al/40 % vol. ω-Al_7Cu_2Fe (Cf. Table IV-9). A partir de ces analyses, il en ressort que durant le recuit de l'échantillon 773-100-2, il n'y a pas eu de perte de matière.

	Analyse globale		
	Al (%. at.)	**Cu (%. at.)**	**Fe (%. at.)**
Compositions mesurées	87,8	8,2	4
Compositions calculées	88	8	4

Table IV-9 : Composition totale mesurée par EDX et calculée pour un composite Al/ω-Al-Cu-Fe.

Deux autres tranches découpées dans l'échantillon 773-100-2 ont également subi un traitement thermique. Cependant, le nombre de pas en température et la température finale atteinte (848 K au lieu de 823 K) ont été augmentés. Le temps de maintien pour chaque palier a été augmenté également (de 10 à 30 min). Ces paramètres ont été modifiés afin de détecter un éventuel changement de la microstructure.

Les résultats des analyses DRX et EDX de ces deux échantillons sont similaires à ceux présentés ci-dessus. La seule différence est liée à la présence des phases θ-Al_2Cu (hors structures eutectique) et AlCu dans quelques zones poreuses initialement du renfort (Cf. Figure IV-29).

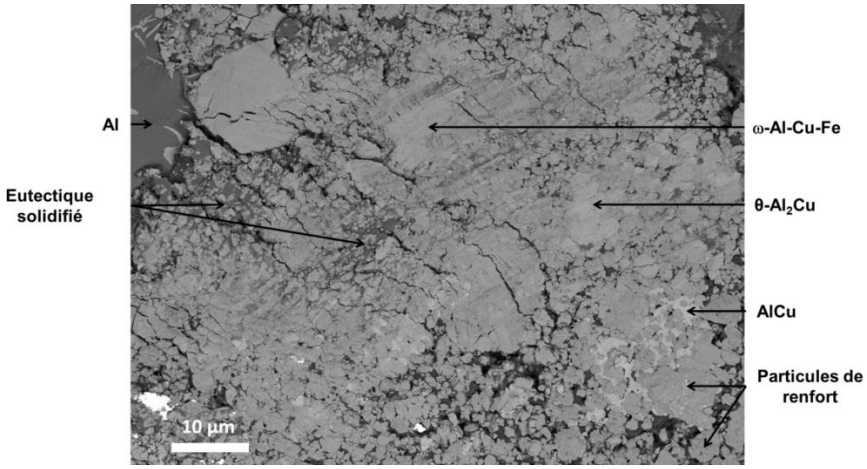


Figure IV-29 : Micrographie MEB post-mortem d'un deuxième échantillon 773-100-2 ayant subi un traitement thermique, mettant en évidence la présence des phases θ-Al_2Cu, AlCu et des zones eutectique solidifiées.

IV.3. Discussion

L'étude détaillée de la microstructure des échantillons modèles à interface plane est effectuée en couplant les observations MEB et les analyses EDX. Dans cette étude, les traitements thermiques menés en présence de la feuille de Tantale à l'interface initiale entre les couches Al et i-Al-Cu-Fe (voir Figure IV-1) démontrent que l'aluminium diffuse dans la couche de particules i-Al-Cu-Fe poreuse, afin de former la phase ω-Al-Cu-Fe durant le chauffage, et cela, quel que soit le type d'échantillon modèle à interface plane.

La comparaison des zones interfaciales dans les différents types d'échantillons modèles à interface plane (Cf. Figure IV-6) permet d'établir un lien entre la présence de porosités et la formation de phases secondaires ainsi que la largeur des zones interfaciales. L'échantillon 823-50-15-interface-massif-2, élaboré par SPS à partir de i-Al-Cu-Fe dense, présente une zone interfaciale régulière et uniquement composée de ω-Al-Cu-Fe. Dans les deux autres cas, la couche i-Al-Cu-Fe qui n'a pas réagi présente des porosités dont la taille varie selon le type d'échantillon. Dans le cas de l'échantillon 823-100-8-interface-poudre, la zone interfaciale présente un gradient de porosité, qui diminue en direction de la couche d'aluminium. Il a été montré que les porosités initialement présentes ont été

comblées par AlCu (région 2c) et θ-Al_2Cu (région 2b). Lorsque de larges porosités sont présentes, cas de l'échantillon 823-50-15-interface-massif-1, elles sont comblées par des structures eutectique, et d'autres phases secondaires (AlCu, θ-Al_2Cu) se forment parallèlement à la phase ω-Al-Cu-Fe. La microstructure de l'interface est dans ce cas irrégulière et complexe.

Concernant la largeur des interfaces, l'échantillon 823-50-15-interface-massif-2 a une interface de 40 µm d'épaisseur, ce qui est bien en dessous des valeurs mesurées pour 823-100-8-interface-poudre et 823-50-15-interface-massif-1 : 80-90 µm et 50-380 µm, respectivement. La largeur des interfaces augmente donc avec la présence de porosités, ce qui suggère que la diffusion des espèces chimiques est facilitée à la surface des porosités. Cela peut s'expliquer par le fait que, en se basant sur le modèle de marche au hasard, la diffusion en surface est plus rapide que la diffusion en volume.

La diffusion du cuivre, des particules Al-Cu-Fe vers la couche d'aluminium, a également été observée pour tous les échantillons modèles à interface plane. Les distances de diffusion varient selon le type d'échantillon : 45, 25 et 35 µm, respectivement pour 823-100-8-interface-poudre, 823-50-15-interface-massif-1 et 823-50-15-interface-massif-2. L'échantillon 823-50-15-interface-massif-1 présente une distance de diffusion du cuivre inférieure à celle des deux autres échantillons modèles. La formation de régions eutectique au sein des zones initialement poreuses peut expliquer une telle valeur : le cuivre peut être consommé par ces régions. Dans le cas des échantillons modèles synthétisés à partir de poudre, la distance de diffusion est la même à 8 et 15 min, ce qui sous-entend que le cuivre ne diffuse plus dès 8 minutes.
L'appauvrissement en cuivre des particules i-Al-Cu-Fe dans la région 2c est cohérent avec les analyses EDX effectuées, montrant que le cuivre diffuse dans la couche d'aluminium (Voir Figure IV-3). En considérant la phase ω-Al-Cu-Fe comme une autre source possible de cuivre, l'augmentation du temps de maintien devrait générer un accroissement de la distance de diffusion. Or, quel que soit le temps de maintien (8 et 15 min), les longueurs de diffusion du cuivre dans l'aluminium sont identiques, il apparaît donc que le cuivre est rejeté par la phase i-Al-Cu-Fe, et non par la phase ω-Al-Cu-Fe formée à l'interface Al/i-Al-Cu-Fe des échantillons modèles.
La Figure IV-30 met en évidence la longueur de diffusion théorique du cuivre dans l'aluminium en fonction du temps à T = 823 K. Pour les temps de maintien 2, 8 et 15 min appliqués, on obtient les longueurs de diffusion théoriques de 4, 8 et 11 µm respectivement (points rouges). Or, les analyses EDX montrent que les longueurs de diffusion de Cu ne varient pas, quel que soit le temps de maintien. De plus, les distances de diffusion du cuivre observées sont très supérieures (45 µm) aux distances calculées ce qui n'est pas cohérent avec un phénomène de diffusion classique de Cu dans Al à l'état solide. Cependant, divers auteurs ont rapporté une accélération des mécanismes de transport de masse

au cours de la densification SPS sous l'effet de courants élevés, phénomène appelé électro-migration. Ce phénomène, qui diminue l'énergie d'activation, a été rapporté en particulier dans le cas des systèmes Sn-Cu [59] et Cu-Ni [60]. A notre connaissance, il n'y a pas eu d'étude dédiée au système Al-Cu.

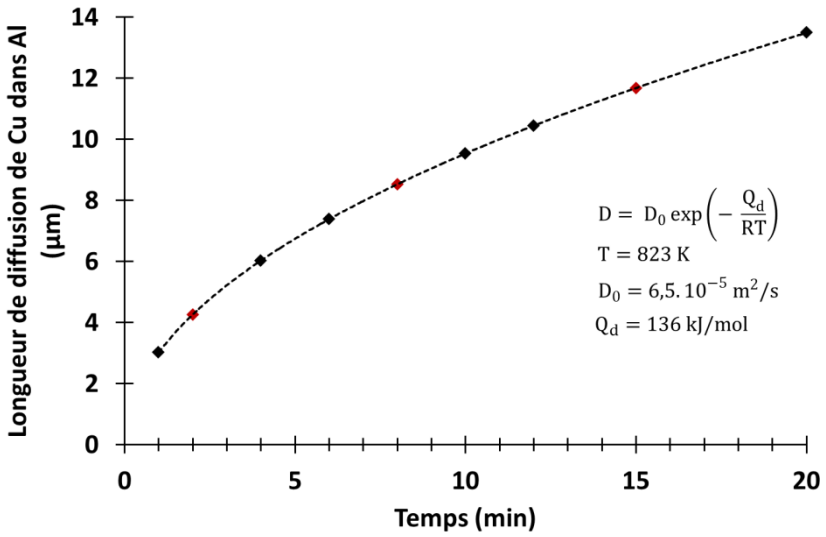


Figure IV-30 : Longueur de diffusion calculée du cuivre dans l'aluminium en fonction du temps.

Les observations et analyses réalisées sur les composites Al/ω-Al-Cu-Fe élaborés par SPS, mettent en évidence les phases intermédiaires AlCu et θ-Al_2Cu. Ces phases présentent des morphologies similaires à celles observées pour les échantillons modèles synthétisés à base de poudre (échantillon 823-100-8-interface-poudre). En effet, la microstructure des zones 1 et 2 du composite 793-100-8 (Cf. Figure IV-17) est similaire à celle des régions 2b et 2c des échantillons modèles à interface plane (Cf. Figure IV-6). De plus, des exemples de particules i-Al-Cu-Fe partiellement transformées en ω-Al-Cu-Fe, incluant la phase résiduelle β-$Al_{50}Cu_{50-x}Fe_x$, sont présentes au sein des composites et des échantillons modèles. Par conséquent, pour expliquer la transformation de phase i-Al-Cu-Fe vers ω-Al-Cu-Fe, nous utiliserons les analyses réalisées sur les échantillons modèles à interface plane, élaborés à base de poudre. Les essais de chauffage in-situ, sans pression, réalisés au MEB, permettent d'apporter des informations supplémentaires quant aux états intermédiaires observés.

Il a été démontré qu'au-delà d'une certaine température, il est possible de transformer la phase i-$Al_{63,5}Cu_{24}Fe_{12,5}$ en ω-$Al_{70}Cu_{20}Fe_{10}$, à partir des réactifs Al et i-Al-Cu-Fe [3,5,47,48,61,62]. Par SPS, Laplanche et al. [17] ont synthétisé la phase ω-Al-Cu-Fe, en mélangeant des poudres Al et i-Al-Cu-Fe dans les proportions adéquates à 873 K ; ils ont montré que la transformation de phase résulte de la diffusion de l'aluminium vers la phase i-Al-Cu-Fe. Dans [4], El Kabir et al. ont synthétisé par

compression isostatique à chaud, à T = 823 K et P = 180 MPa, un composite Al/ ω-Al_7Cu_2Fe composé de 40% volumique de particules de renfort, à partir d'un mélange d'aluminium et de 30% volumique de i-Al-Cu-Fe. Ils ont montré que la transformation de phase s'accompagne d'une augmentation du volume des particules de renfort. Ces résultats sont cohérents avec ceux obtenus par Kenzari et al. [50] lors de la synthèse de composite Al/ ω-Al_7Cu_2Fe par frittage sous faible pression uniaxiale, à T = 823 K et P = 32 MPa. Ali et al. [47] ont confirmé ces résultats en étudiant la transformation i-Al-Cu-Fe vers ω-Al-Cu-Fe par diffraction des rayons X in-situ durant le chauffage. Ils ont montré que la réaction débute à 755 K et est complète à 923 K. Durant la transformation, aucune phase intermédiaire n'est observée. Dans ces études [5,7], la transformation de phase i-Al-Cu-Fe vers ω-Al-Cu-Fe se déroule à l'état solide.

Dans notre étude, au sein de la région 2c (échantillon 823-100-8-interface-poudre), les particules i-Al-Cu-Fe sont enrichies en Al et appauvries en Cu par rapport aux particules initiales. Les Figure IV-7 et Figure IV-18 montrent clairement la transformation directe de i-Al-Cu-Fe vers ω-Al-Cu-Fe à la périphérie et le long des joints de grains des particules i-Al-Cu-Fe. En effet, la périphérie de la particule i-Al-Cu-Fe est en contact direct avec l'aluminium alors que les joints de grains facilitent la diffusion d'Al. La périphérie et les joints de grains des particules i-Al-Cu-Fe apparaissent donc comme des sites de nucléation préférentiels pour la phase ω-Al-Cu-Fe. Par ailleurs, la transformation de phase s'accompagne d'une augmentation du volume des particules de renfort, comme le montre les observations in-situ lors du chauffage (Cf. Figure IV-22). Nous retrouvons donc sans surprise les résultats des études précédentes : les particules i-Al-Cu-Fe se transforment directement en ω-Al-Cu-Fe et cette transformation s'accompagne d'une augmentation de volume des particules de renfort.

Cependant, dans notre étude, les microstructures obtenues sont différentes de celles décrites par Ali et al. [47] et Laplanche et al. [16]. Tout d'abord, les observations, concernant l'échantillon 823-100-8-interface-poudre (région 2b et 2c) et les composites Al/i-Al-Cu-Fe partiellement transformés, montrent la présence des phases AlCu et θ-Al_2Cu. Les échantillons modèles à interface plane mettent en évidence une séquence spatiale avec la phase riche en cuivre (AlCu) du côté des particules i-Al-Cu-Fe et les phases riches en aluminium (ω-Al-Cu-Fe et θ-Al_2Cu) du côté de l'aluminium. De plus, les analyses EDX révèlent la présence d'une faible teneur en fer au sein des phases AlCu et θ-Al_2Cu. Haidara et al. [11] ont montré que, durant la formation des phases Al-Cu-Fe, à partir des éléments Al/Cu/Fe déposés séquentiellement, les phases θ-Al_2Cu et AlCu sont toujours des phases intermédiaires, quel que soit l'ordre de la séquence d'empilement des éléments. Ces auteurs ont également montré que le fer diffuse très lentement et ne réagit qu'après la formation des phases θ-Al_2Cu et AlCu. Des résultats similaires ont été observés par Grenet et al. [10] pour un système

Al/Cu/Fe/Cu/Al. Cependant, bien que nos échantillons soient différents des systèmes (films minces) présentés ci-dessous, nous observons les mêmes phases.

L'observation d'une séquence spatiale de phases dans les échantillons modèles à interface plane est cohérente avec un gradient des différentes espèces chimiques, en particulier pour l'aluminium et le cuivre, avec les phases riches en cuivre du côté des particules i-Al-Cu-Fe et les phases riches en aluminium du côté de la couche d'aluminium. Les observations post-mortem ne permettent pas de déterminer si la séquence spatiale est due à une séquence temporelle (les phases AlCu et θ-Al_2Cu seraient des phases intermédiaires comme observé par Haidara et al [11]), ou si la croissance de ces phases résulte de réactions indépendantes et locales dépendant des espèces chimiques en présence. Dans le cas d'une séquence temporelle, Haidara et al. [11] ont montré que θ-Al_2Cu est la première phase à se former, puis disparait pour former la phase AlCu. Dans notre cas, si la séquence spatiale observée est assimilée à une séquence temporelle, AlCu serait la première phase à se former suivie de la phase θ-Al_2Cu.

Pour les échantillons modèles synthétisés à base de poudre, la morphologie des régions 2b et 2c suggère que θ-Al_2Cu et AlCu comblent les porosités entre les particules i-Al-Cu-Fe ou/et ω-Al-Cu-Fe. Ces phases jouent donc un rôle dans la réduction de la porosité. Dans la région 2a, formée uniquement de ω-Al-Cu-Fe, les porosités sont entièrement comblées. Une telle configuration est également observée au sein des composites Al/ω-Al-Cu-Fe partiellement transformés. En effet, la morphologie des composites présentés Figure IV-17b et Figure IV-17c est similaire à celle observée pour les régions 2b (Figure IV-6b) et 2c (Figure IV-6c) des échantillons modèles à interface plane à base de poudre, respectivement. Dans le cas des composites, θ-Al_2Cu et AlCu apparaissent donc comme des phases intermédiaires permettant la formation de la phase ω-Al-Cu-Fe.

La présence de la phase β-$Al_{50}Cu_{50-x}Fe_x$ est également observée dans les échantillons modèles (poudre et massif) et dans les composites au sein des grosses particules partiellement transformées. La phase β-$Al_{50}Cu_{50-x}Fe_x$ n'est pas produite lors de l'élaboration mais est une phase résiduelle. Lityńska-Dobrzyńska et al. [48] ont mis en évidence, lors de la synthèse de composites Al/ω-Al-Cu-Fe à 673 K, le rôle de la phase β-$Al_{50}Cu_{50-x}Fe_x$ résiduelle dans la transformation de phase i-Al-Cu-Fe en ω-Al-Cu-Fe. Nos résultats suggèrent que le présence de la phase β-$Al_{50}Cu_{50-x}Fe_x$ favorise la transformation de phase i-Al-Cu-Fe en ω-Al-Cu-Fe. Cependant, elle n'est pas nécessaire à cette transformation.

Il est difficile d'expliquer nos résultats en faisant seulement intervenir des phénomènes de diffusion à l'état solide. En effet, pour les échantillons modèles à interface plane Al/Al-Cu-Fe à base de poudre, l'épaisseur de l'interface atteint 80-90 µm en seulement 2 minutes. Cette réaction, qui s'avère très rapide, n'est pas compatible avec un simple processus de diffusion à l'état solide. Par exemple, dans le

cas du système Ag-Zn, où le coefficient de diffusion peut atteindre des valeurs de l'ordre de 10^{-11} m²/s [63], l'épaisseur de la couche d'intermétallique à l'interface Ag-Zn est seulement de 15 µm pour 2 minutes de traitement thermique isotherme à 573K [4]. Dans notre cas, une épaisseur de 80-90 µm est obtenue pour la couche formée à l'interface des échantillons modèles à interface plane, au bout de 2 minutes de chauffage. De plus, l'épaisseur de l'interface ne croît pas avec la durée de traitement (entre 2 et 15 min) ce qui signifie que la cinétique ne suit pas une loi parabolique, caractéristique de la diffusion à l'état solide.

La présence d'une phase liquide durant la synthèse des composites Al/ω-Al-Cu-Fe est également cohérente avec les analyses de déplacement du piston inférieur durant le cycle SPS. En effet, quand la température atteint 808K, le piston inférieur s'élève soudainement puis se stabilise (Voir Figure II-2). Ce phénomène est interprété par la production soudaine d'une phase liquide, par fusion partielle de l'échantillon. Cette phase liquide remplit ensuite les porosités présentes dans la couche i-Al-Cu-Fe. Le remplissage des pores par la phase liquide induit une augmentation de la densité de l'échantillon, qui est enregistrée par le déplacement du piston. Par conséquent, la croissance de l'interface ne doit pas résulter uniquement d'un processus de diffusion à l'état solide.

Finalement, les traitements thermiques in-situ effectués pour les composites Al/i-Al-Cu-Fe montrent que des gouttelettes sont formées à 823 K. De telles gouttelettes, solidifiées durant le refroidissement, présentent post-mortem une microstructure eutectique de type lamellaire. Le déplacement soudain du piston SPS, mentionné ci-dessus, pourrait donc être corrélé à la formation de l'eutectique dans les régions poreuses. Ce déplacement soudain du piston se produit entre 808 K et 828 K, ce qui est cohérent avec la température de l'eutectique, 821 K. L'eutectique (α-Al + θ-Al_2Cu) se forme par réaction entre l'aluminium et la phase i-Al-Cu-Fe : le cuivre provenant des particules i-Al-Cu-Fe réagit avec l'aluminium pour former la phase θ-Al_2Cu. Cependant, la présence de θ-Al_2Cu n'est pas restreinte à la structure eutectique lamellaire. En effet, d'après les observations MEB, il semblerait que cette phase soit présente en grande quantité et la plupart du temps, en dehors des zones eutectique.

La croissance rapide de la zone interfaciale et la présence d'une phase liquide suggèrent donc que la diffusion rapide via le liquide migrant à travers les porosités intervient entre la source d'aluminium et la source de cuivre (particules i-Al-Cu-Fe). La morphologie des régions 2c, 2b et 2a est également cohérente avec l'apparition d'une phase liquide. Cette analyse est confortée par le comblement des porosités par une structure eutectique, dans le cas des zones interfaciales très poreuses (échantillon 823-50-15-interface-massif-1).

Bien que le processus d'élaboration soit différent, Suarez et al [15] montrent que les phases liquides riches en cuivre (θ-Al_2Cu et AlCu) conduisent à la formation de ω-Al-Cu-Fe. Dans notre cas, l'observation de gouttelettes d'eutectique solidifiées dans les zones poreuses et la présence de

ω-Al-Cu-Fe (confirmée par DRX et EDX), au sein des composites 773-100-2 ayant subi un traitement thermique, confirment l'implication des phases riches en cuivre dans la formation de ω-Al-Cu-Fe. Cependant, il est impossible d'exclure l'existence ici d'un processus de diffusion à l'état solide pendant et après l'étape de refroidissement.

IV.4. Conclusion

La transformation de phase lors de la synthèse de composites Al/ω-Al-Cu-Fe et d'échantillons modèles à interface plane ayant subi un frittage réactif par SPS à 823 K / 100 - 50 MPa / 2 - 15 min est étudiée. La comparaison des observations MEB et des analyses EDX, effectuées pour les composites Al/ω-Al-Cu-Fe partiellement transformés, mettent en évidence une microstructure complexe avec la formation de phases intermédiaires. La présence de ces phases suppose qu'elles interviennent dans la formation de la phase ω-Al-Cu-Fe.

Deux scénarios différents sont proposés afin d'expliquer la formation de la phase ω-Al-Cu-Fe. Celle-ci se forme à partir des porosités initialement présentes dans la couche de particules i-Al-Cu-Fe à partir des phases intermédiaires AlCu et θ-Al_2Cu. La formation de la phase ω-Al-Cu-Fe résulte également de la transformation de particules i-Al-Cu-Fe enrichies en aluminium. De tels scénarios conduisent à la formation d'une microstructure complexe.

Une structure eutectique a été observée au sein des porosités initialement présentes dans la phase i-Al-Cu-Fe durant le traitement thermique au MEB in-situ sans pression. Quand la pression est appliquée lors de la synthèse (cas du SPS), l'eutectique peut réagir avec les phases intermédiaires et former la phase ω-Al-Cu-Fe, ce qui n'est pas le cas pour une synthèse sans pression. Par conséquent, il est possible de conclure que le processus de synthèse affecte les différentes séquences de la transformation de phase i-Al-Cu-Fe vers ω-Al-Cu-Fe.

Par ailleurs, les particules de renfort Al-Cu-Fe réagissent comme des sources de cuivre et de fer. La diffusion du cuivre dans la matrice Al pourrait avoir des conséquences sur les propriétés mécaniques du composite, sachant que la déformation plastique a lieu au niveau de la matrice.

V. Propriétés mécaniques multi-échelles et microstructures associées

V.1. Propriétés mécaniques macroscopiques – essais de compression

Cette première partie concerne les propriétés mécaniques macroscopiques de composites Al/ω-Al-Cu-Fe synthétisés dits « optimisés » (notés 823-100-2, voir chapitre III) et « non-optimisés » (notés 853-50-2, voir chapitre III). Pour rappel, les échantillons composites « optimisés » ont été synthétisés avec des poudres présentant une distribution granulométrique resserrée (< 25 µm) et un mélange de poudre optimisé (mélange au Turbula) par rapport aux échantillons composites « non-optimisés ». Pour cela, des essais de compression ont été réalisés à différentes températures sur ces composites. L'effet de l'optimisation des mélanges de poudres (Cf. Chapitre III) sur les propriétés mécaniques des composites est étudié. De plus, les microstructures des composites déformés à température ambiante et à 723 K sont analysées et comparées. Le traitement thermique in-situ au MET d'une lame mince ainsi que les observations réalisées durant le chauffage ont permis de mieux comprendre l'évolution de la microstructure.

V.1.1. Essais de compression

Dans cette section, pour faciliter la compréhension, les échantillons seront nommés de la façon suivante :

- **Aluminium « non-renforcé »** fait référence à la poudre d'aluminium (également utilisée lors de l'élaboration des composites) densifiée par SPS.
- **« Optimisé »** fait référence à un échantillon composite dont la préparation a été optimisée (voir chapitre III).
- **« Non-optimisé »** fait référence à un échantillon composite dont la préparation n'a pas été optimisée (voir chapitre III). Dans cette section, cette notation se réfère uniquement à l'échantillon 853-50-2 (décrit au chapitre III).
- **« Al/ω optimisés »** fait référence aux éprouvettes de compression, provenant de composites optimisés, une éprouvette a été déformée par température.
- **« Al/ω optimisé – toutes T »** correspond à une seule éprouvette déformée à toutes les températures. Ces éprouvettes proviennent également de composites optimisés.

V.1.1.1. Courbes contrainte-déformation en température

Les essais de compression ont été effectués à vitesse de déformation imposée $\dot{\varepsilon} = 1{,}4.10^{-4}\ s^{-1}$, de 293 K à 823 K, sur des échantillons composites Al/ω-Al-Cu-Fe « non-optimisés », « optimisés » et de

l'aluminium « non-renforcé ». Dans un premier temps, l'objectif étant d'obtenir une tendance de l'évolution de la contrainte d'écoulement $\sigma_{0,2\%}$ en fonction de la température, une éprouvette de compression provenant d'un composite « non-optimisé » a été déformée à toutes les températures. Les essais ont été réalisés à température décroissante afin d'éviter un écrouissage trop important de l'échantillon. A chaque température, l'essai de compression est alors arrêté lorsque la déformation plastique atteint 0,2 % (Cf. chapitre II). Les courbes contrainte-déformation obtenues ne seront pas présentées ici. Par la suite, les essais de compression ont été réalisés en déformant une éprouvette par température, les échantillons provenant de composites « optimisés ». L'essai de compression est dans ce cas mené jusqu'à rupture de l'échantillon.

La Figure V-1a présente quatre exemples de courbes contrainte-déformation obtenues à partir de composites « optimisés ». Les essais de compression ont été réalisés jusqu'à fracture des échantillons, phénomène mis en évidence par une fissuration des composites à 45° par rapport à l'axe de compression (Cf. Figure V-1b). Les courbes de compression montrent une diminution de la contrainte d'écoulement et une augmentation de la ductilité des composites lorsque la température augmente. Les courbes de contrainte-déformation présentent des caractéristiques similaires : un stade de déformation élastique suivi d'un stade de déformation plastique à durcissement positif et par la suite, à durcissement négatif.

La limite d'élasticité supérieure σ_{UYS} (avec UYS : Upper Yield Stress) correspond à la valeur supérieure du crochet de compression. Cependant, dans notre cas, le σ_{UYS} correspond plus vraisemblablement à l'initiation de la fissuration, plutôt qu'au début d'un véritable stade d'adoucissement plastique. A 293 K, la fracture intervient rapidement pour un taux de déformation plastique de ~ 2 % et une limite d'élasticité supérieure (ou limite d'écoulement supérieure) de ~ 450 MPa. Pour les échantillons déformés à 473 K et 573 K, les taux de déformation sont supérieurs à 4 %. Concernant l'échantillon déformé à 723 K, le crochet de compression n'apparait pas, la déformation plastique est constituée d'un plateau à durcissement nul. Le taux de déformation plastique mesuré (ε ~ 6,8 %) est plus élevé ici que pour toutes les températures.

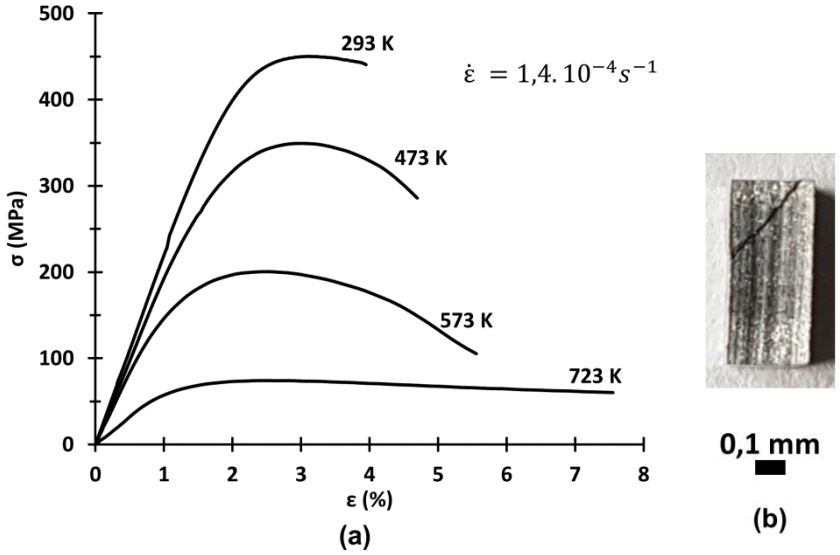


Figure V-1 : (a) Courbes contrainte-déformation à différentes températures pour les composites Al/ω-Al-Cu-Fe « optimisés », (b) image en microscopie optique du composite déformé à 293 K mettant en évidence une fissuration à 45° par rapport à l'axe de compression.

Pour chaque lot SPS, il est possible d'extraire deux éprouvettes de compression. La Figure V-2 présente l'évolution des courbes contrainte-déformation de composites « optimisés » en fonction de la température des essais et des lots d'éprouvettes. Les éprouvettes provenant d'un même lot ont été déformées à deux températures différentes : 293 K et 473K. Tout d'abord, la pente d'élasticité des courbes est similaire pour deux éprouvettes provenant du même lot, ce qui est cohérent. Cependant, en considérant deux lots d'éprouvettes différents, les pentes d'élasticité diffèrent sans aucune raison apparente.

Par ailleurs, deux essais de compression ont été réalisés à 293 K et 473 K, à partir d'éprouvettes de lots différents. L'allure des courbes est similaire pour une même température. A 293 K, les éprouvettes se déforment de manière élastique puis plastiquement mais subissent une fracture rapide ($\varepsilon \sim 2$ % pour l'éprouvette du lot 1 et $\varepsilon \sim 4$ % pour l'éprouvette du lot 2). A 473 K, ce sont des éprouvettes provenant des lots 1 et 3 qui ont été déformées. Les deux courbes présentent un crochet de compression avec $\sigma_{UYS} \sim 390$ MPa pour l'éprouvette « Lot 1 – 473 K » et $\sigma_{UYS} \sim 350$ MPa pour l'éprouvette « Lot 3 – 473 K ». Dans les deux cas, le crochet de compression est suivi d'une diminution de la contrainte, due à la fissuration des échantillons. Les taux de déformation sont similaires pour les deux composites.

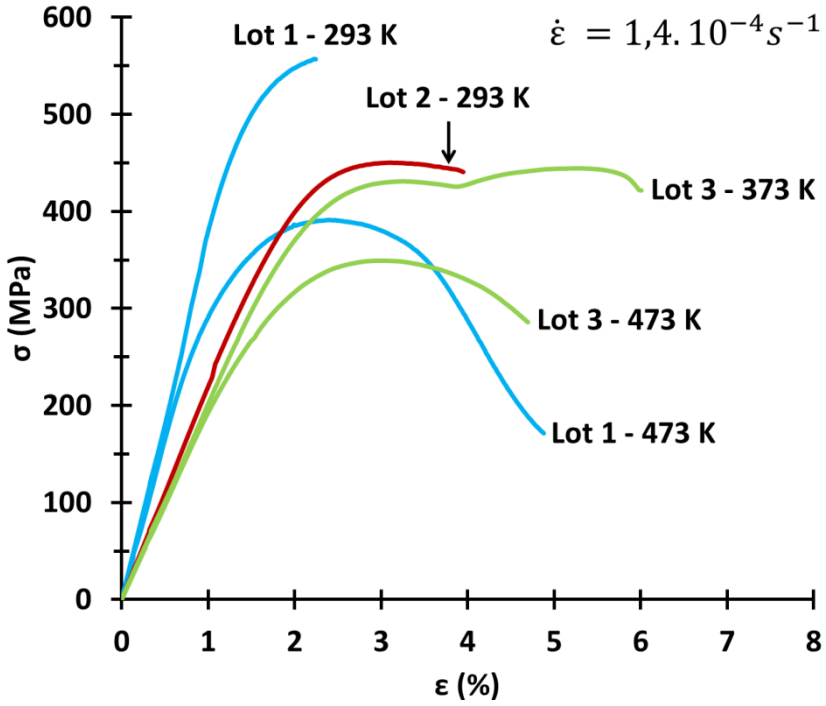


Figure V-2 : Courbes contrainte-déformation de composites Al/ω-Al-Cu-Fe « optimisés » mettant en évidence l'influence du lot d'échantillon produit par SPS sur la pente d'élasticité et la contrainte d'écoulement.

En résumé, bien que les méthodes d'élaboration soient les mêmes et selon les lots d'échantillons considérés, une dispersion des pentes élastiques pour les courbes contrainte-déformation est observée.

V.1.1.2. Evolution de la contrainte d'écoulement $\sigma_{0,2\%}$ en fonction de la température

La Figure V-3 montre l'évolution de la contrainte d'écoulement $\sigma_{0,2\%}$ en fonction de la température, pour l'aluminium « non-renforcé » et les composites Al/ω-Al-Cu-Fe « optimisés » et « non-optimisés ». Les valeurs de $\sigma_{0,2\%}$ des composites « non-optimisés » ont été obtenues à partir d'une éprouvette déformée à toutes les températures. Pour tous les échantillons, les valeurs de $\sigma_{0,2\%}$ diminuent lorsque la température augmente. De plus, tous les composites Al/ω-Al-Cu-Fe présentent des valeurs de contraintes supérieures à celles obtenues pour l'aluminium « non-renforcé ».

Par ailleurs, quelle que soit la température, la contrainte $\sigma_{0,2\%}$ du composite Al/ω-Al-Cu-Fe « non-optimisé » est inférieure à celle des composites « optimisés ». La différence des valeurs de contrainte entre composites « optimisés » et « non-optimisés » augmente lorsque la température diminue. La principale différence entre ces composites est basée sur l'étape d'optimisation du mélange de poudres

avant le frittage SPS (voir Chapitre III). Cet écart de contrainte serait donc lié à la microstructure du composite.

Dans le cas des composites « Al/ω optimisés » et « Al/ω optimisé – toutes T », la contrainte $\sigma_{0,2\%}$ est similaire, pour les deux types de composites, lorsque T > 523 K et T < 423 K. Quand T = 423 K et 473 K, la contrainte $\sigma_{0,2\%}$ est supérieure pour le composite « Al/ω optimisés ». Concernant les composites « Al/ω optimisés », un changement de pente est observé entre 473 K et 523 K, alors que dans le cas du composites « Al/ω optimisé – toutes T », celui-ci apparait entre 373 K et 423 K. Dans les deux cas, la rupture de pente est caractérisée par une chute de contrainte de l'ordre de 140 MPa. Ce phénomène suggère un changement de mécanisme de déformation plastique dans ces composites.

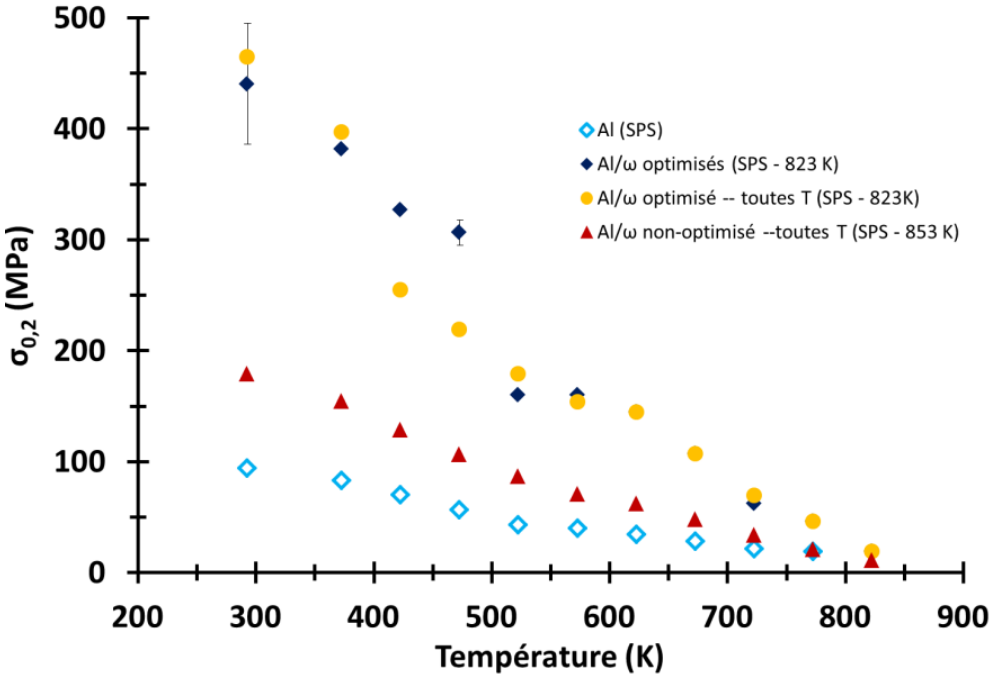


Figure V-3 : Evolution de la contrainte d'écoulement $\sigma_{0,2\%}$ en fonction de la température pour de l'aluminium et des composites Al/ω-Al-Cu-Fe (« optimisés » et « non-optimisés »).

V.1.2. Microstructures

La microstructure à cette échelle est identique pour les composites « non-optimisés » et « optimisés » déformés à température ambiante. Les micrographies les plus représentatives sélectionnées ici proviennent du composite « non-optimisé » (853-50-2), sauf indication contraire.

Les Figure V-4a et Figure V-4b sont des micrographies MET en champ clair du composite « non-optimisé » déformé à température ambiante (échantillon 853-50-2). La Figure V-4a montre l'aspect

général de la microstructure du composite : les particules de renfort ω-Al-Cu-Fe (contraste noir) dispersées au sein de la matrice aluminium (contraste clair). La Figure V-4b, à plus fort grandissement, montre que la phase ω-Al-Cu-Fe peut se présenter sous forme d'amas de particules ou, plus géométriquement, sous forme de lamelles. La composition chimique et la structure cristallographique des lamelles ont été vérifiées par EDX et par cartographie automatique des orientations cristallographiques au MET en collaboration avec P. Donnadieu (SIMAP Grenoble).

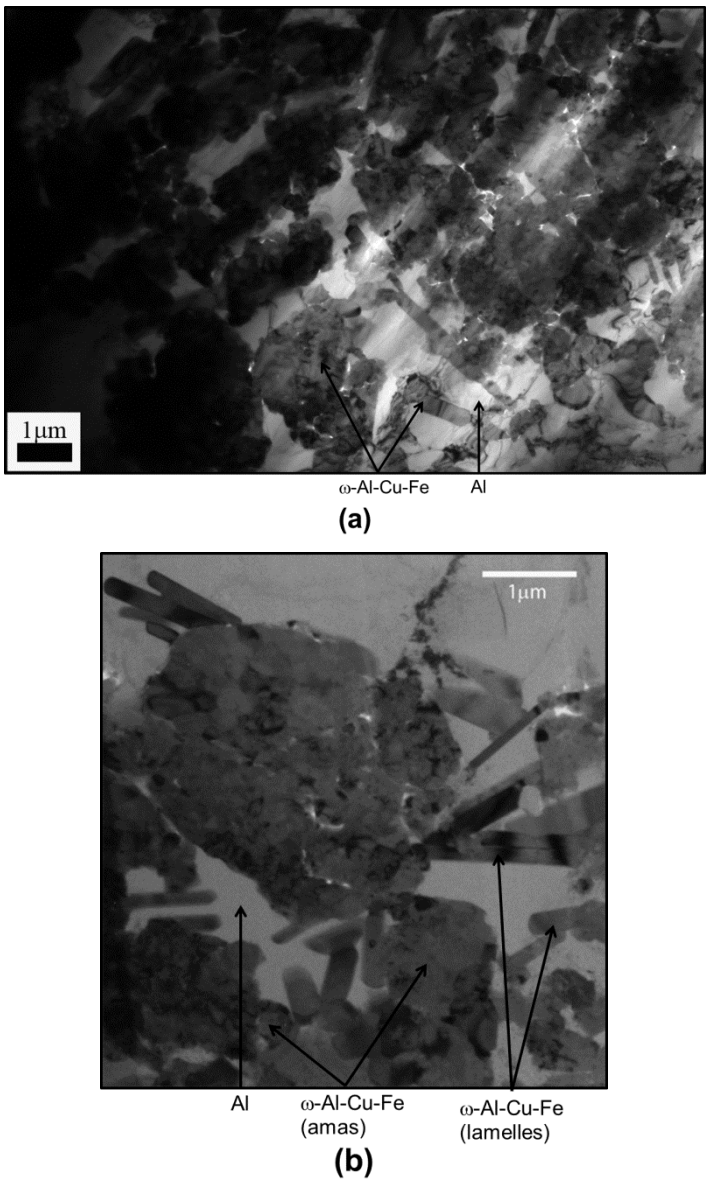


Figure V-4 : Micrographies MET en champ clair présentant (a) l'aspect général de l'échantillon composite 853-50-2 déformé à température ambiante, (b) les différentes morphologies des particules de renfort dispersées au sein de la matrice Al.

La Figure V-5 présente des micrographies MET en champ clair obtenues au sein de la matrice aluminium et met en évidence la présence de précipités dans une même zone selon deux orientations différentes (Figure V-5a-b axe de zone = <001> et Figure V-5c-d axe de zone = <011>). Les mesures EDX réalisées au MET indiquent que les précipités sont des composés Al-Cu. Cependant en raison de leur faible taille et de la présence de cuivre en solution dans la matrice Al, il ne nous a pas été possible d'obtenir leur composition précise. Les Figure V-5a et Figure V-5b sont très comparables à la Figure I-20 [36] (voir chapitre I) montrant des précipités θ'-Al_2Cu et obtenue dans la même orientation [001] : dans les deux cas, on observe bien deux familles de précipités sous forme de plaquettes parallèles aux plans $\{100\}_{Al}$. Ces précipités ont une longueur allant de 100 nm à 200 nm et une largeur de 15 nm à 20 nm, ce qui correspond aux dimensions caractéristiques des précipités θ'-Al_2Cu. Pour cette orientation, les conditions d'observation ne permettent pas de visualiser la troisième famille. Pour les Figure V-5c et Figure V-5d obtenues selon l'orientation [011], une famille de précipités est toujours « debout », les deux autres familles sont inclinées dans la lame. Les précipités θ'-Al_2Cu sont connus pour avoir une forme de plaquette octogonale (cf. Figure V-6) bien visible (lignes rouges) sur la Figure V-5d [64].

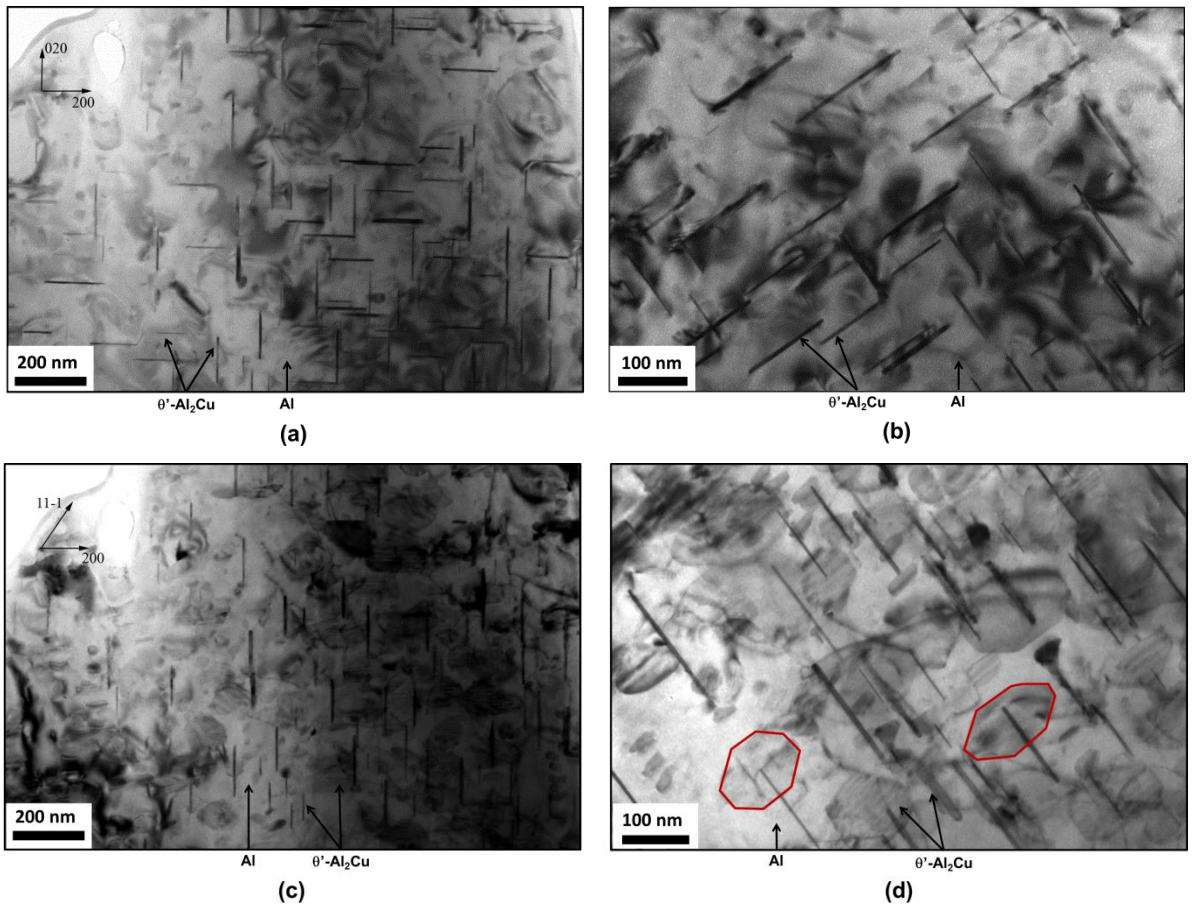


Figure V-5 : Micrographies MET en champ clair mettant en évidence la présence de précipités θ'-Al_2Cu au sein de l'échantillon 853-50-2. Les micrographies (a) et (b) sont prises en axe de zone [001] à faible et plus fort grandissement et les micrographies (c) et (d) en axe de zone [011] à faible et fort grandissement, respectivement.

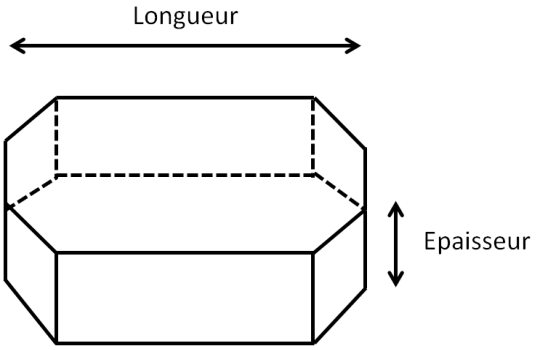
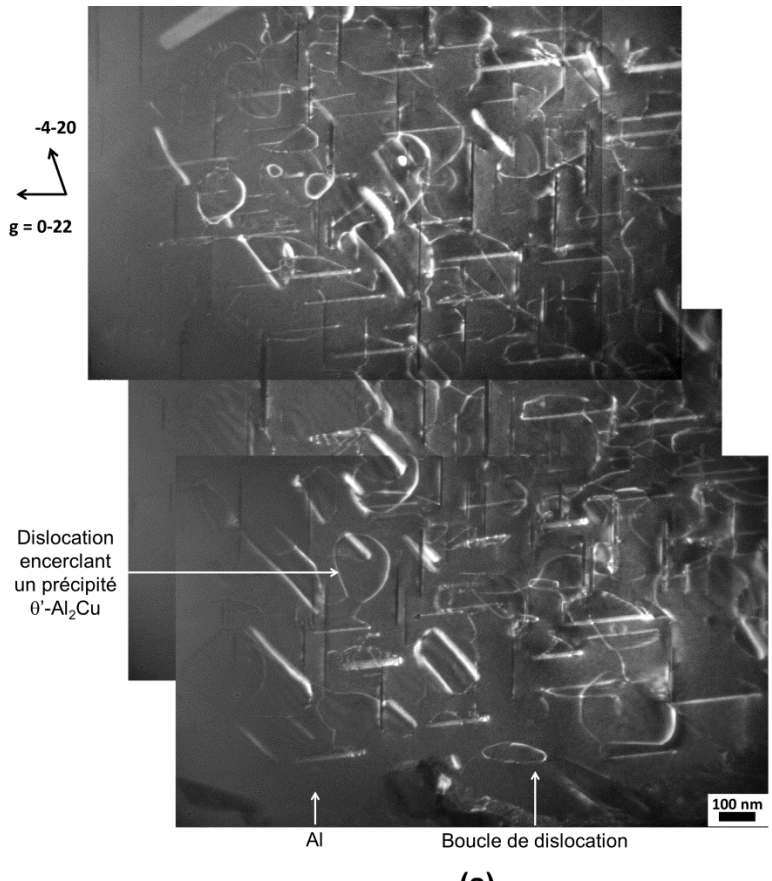
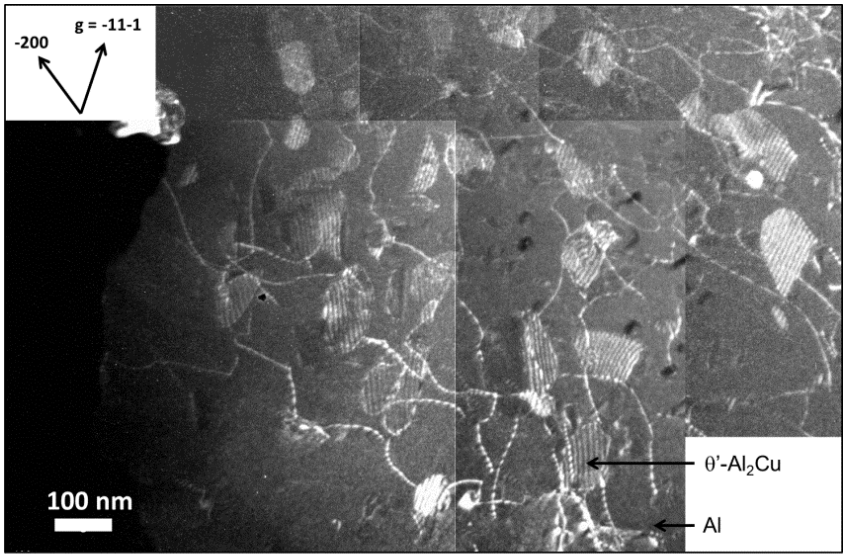


Figure V-6 : Schéma de la morphologie d'un précipité θ'-Al_2Cu.

Les Figure V-7a et Figure V-7b sont des micrographies MET obtenues en champ sombre sous condition de faisceau faible permettant d'imager l'interaction des dislocations avec les précipités θ'-Al_2Cu présents au sein de la matrice Al (contraste noir). Ces figures ont été obtenues suivant deux orientations différentes. Dans le premier cas (Cf. Figure V-7a), les conditions de diffraction sont telles que les précipités θ'-Al_2Cu sont quasiment invisibles mais leurs contours sont mis en évidence par les dislocations. Dans le deuxième cas (Cf. Figure V-7b), certains précipités sont visibles grâce à un système de franges parallèles blanches et noires, qui provient du déphasage de l'onde électronique lié à la présence des précipités au sein de la matrice Al.



(a)



(b)

Figure V-7 : (a) et (b) Micrographies MET en champ sombre, de l'échantillon 853-50-2 déformé à température ambiante montrant les précipités θ'-Al_2Cu au sein de la matrice Al, contournés par les dislocations.

Les micrographies suivantes (Cf. Figure V-8) ont été obtenues pour un échantillon déformé à 723 K. On reconnaît sur la Figure V-8a (champ clair) et la Figure V-8b (mode STEM) les précipités θ'-Al_2Cu, sous forme de plaquettes, dispersés au sein de la matrice Al. Seules deux familles de précipités sont visibles, la troisième n'est pas visible avec l'orientation choisie. Cependant, bien que la microstructure de la matrice à 723 K semble similaire à celle de l'échantillon déformé à température ambiante, la taille des précipités a augmenté : celle-ci varie maintenant entre 100 et 800 nm. Cette gamme de tailles est bien plus élevée que celle mesurée après déformation à température ambiante.

La micrographie en champ sombre (Cf. Figure V-9) met en évidence la présence de nombreuses dislocations au sein de la matrice Al. Dans ce cas, les précipités ne sont pas visibles et aucune trace de boucle de dislocation n'est observée. Bien que la densité de dislocations n'ait pas été mesurée, celle-ci semble plus élevée pour un échantillon déformé à 723 K qu'à température ambiante.

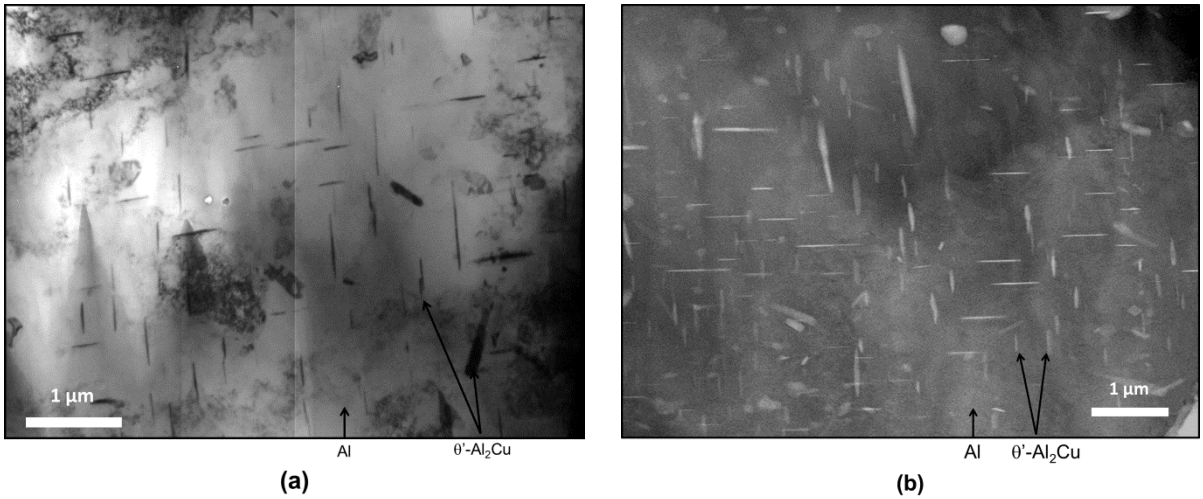


Figure V-8 : (a) Micrographie MET en champ clair et (b) micrographie en mode STEM mettant en évidence la présence de précipités θ'-Al_2Cu au sein d'un échantillon composite « optimisé » synthétisé à 823 K – 100 MPa – 2min déformé à 723 K.

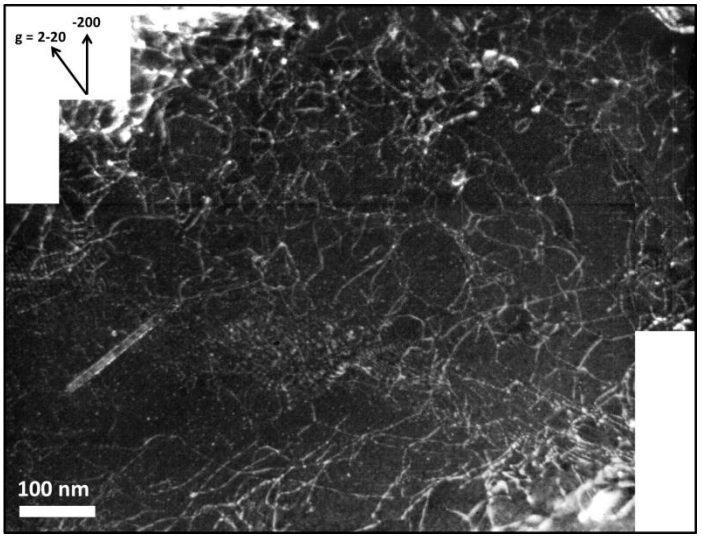


Figure V-9 : Micrographies MET en champ sombre, d'un échantillon 823-100-2 déformé à 723 K, montrant les dislocations au sein de la matrice Al.

V.1.3. Traitement thermique in-situ

La comparaison de la microstructure de la matrice aluminium des échantillons déformés à température ambiante et à 723 K suggère à la fois, une évolution de la taille et du nombre des précipités. Afin d'évaluer l'évolution de cette microstructure avec la température, une lame mince, provenant d'un composite « non-optimisé » (échantillon 853-50-2, voir chapitre III), a subi un traitement thermique in-situ dans un MET JEOL 2200 FS (Cf. Chapitre II). Le cycle thermique est présenté Figure V-10. L'échantillon a été chauffé jusqu'à 573 K (et pas au-delà, afin d'éviter l'endommagement du dispositif

expérimental) et maintenu à cette température de façon à observer l'évolution (nombre, fraction surfacique, taille) des précipités θ'-Al_2Cu au sein de la matrice Al. Durant le palier en température d'une durée de 1h20, des micrographies MET ont été enregistrées toutes les 3 minutes.

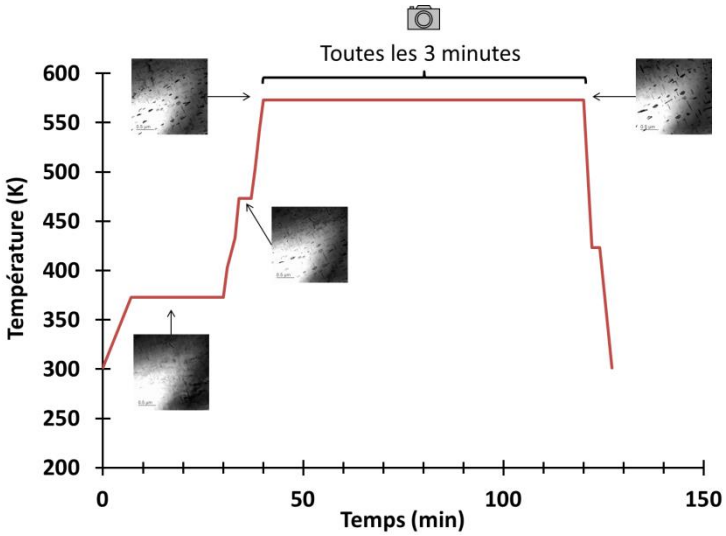


Figure V-10 : Cycle thermique appliqué, pour la lame mince 853-50-2, lors du traitement thermique in-situ au MET.

Pour faciliter l'étude de l'évolution des précipités, seules deux micrographies MET (après 2min et 1h20 à T = 573K) ont été utilisées pour comparaison (Cf. Figure V-11). La Figure V-11a et la Figure V-11b présentent les micrographies MET de l'échantillon 853-50-2 enregistrées après 2 min et 1h20 à 573K, respectivement. Ces figures montrent la matrice Al (contraste blanc ou gris clair) et les précipités θ'-Al_2Cu (contraste gris foncé). A noter que l'hétérogénéité du contraste observée résulte de la déformation de la lame lors de la montée en température, très certainement due aux contraintes thermiques. A partir de leur morphologie, on distingue deux catégories de précipités : les précipités « debout » et « inclinés » dans la lame comme dans le cas de la Figure V-5b. Le nombre de précipités par catégorie et ceux présents avant/après traitement thermique ainsi que l'évolution en taille sont quantifiés, à partir de ces deux micrographies.

Deux méthodes différentes ont été utilisées afin de comptabiliser les précipités. Dans un premier temps, une zone identique, à t = 2 min et 1h20, a été sélectionnée et délimitée en rouge sur les micrographies (Cf. Figure V-11). Au sein de cette zone, les précipités ont été comptabilisés manuellement et classés dans une ou l'autre des deux catégories.

Par la suite, la fraction surfacique « projetée » des précipités présents après 2 min et 1h20 à 573 K, a été mesurée par analyses d'images, à l'aide du logiciel Gimp. Le contour de chaque précipité a été entouré manuellement, ceci afin de prendre en compte tous les précipités y compris ceux au contraste faible et/ou présents dans le volume de la lame. Ensuite, les images ont été binarisées.

Les résultats obtenus pour la première méthode sont regroupés dans la Table V-1. En prenant en considération l'existence de trois familles de précipités θ'-Al_2Cu (parallèles aux trois familles de plans $\{100\}_{Al}$), deux des familles sont rassemblées au sein de la catégorie. Le rapport catégorie 1/ catégorie 2 attendu est donc 1/2. Les résultats obtenus à t = 2min et à t = 1h20 peuvent être considérés cohérents avec une répartition des précipités de 1/3 (catégorie 1) et 2/3 (catégorie 2).

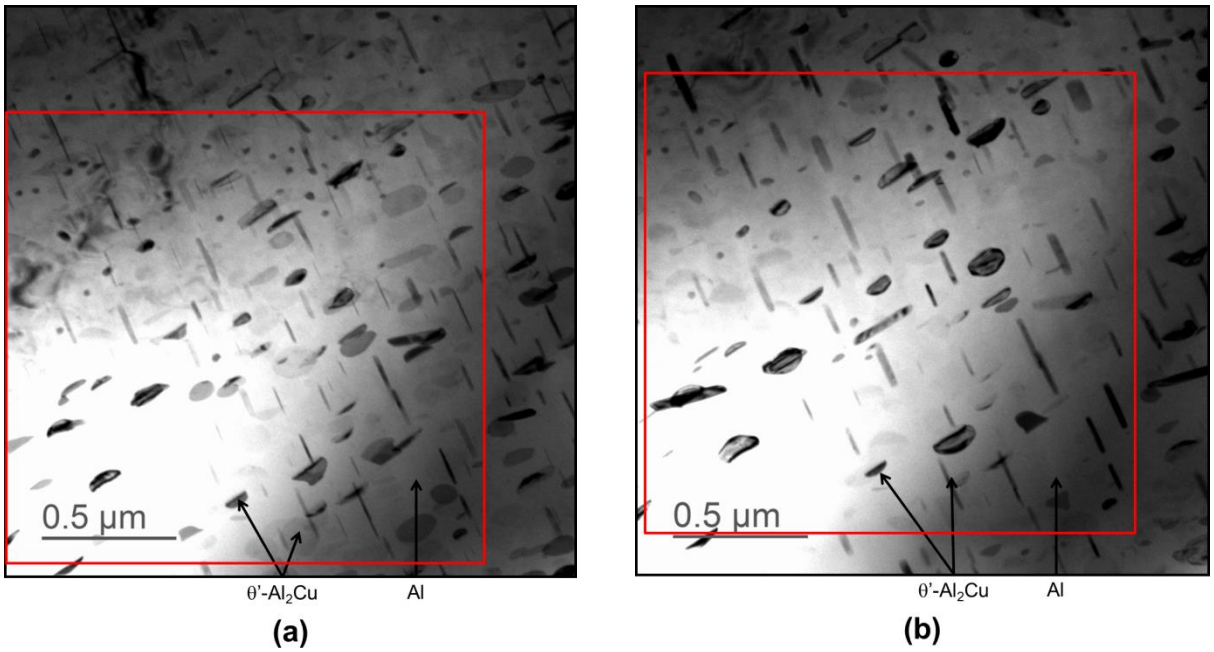


Figure V-11 : Micrographies MET du composite « non-optimisé » 853-50-2 pendant le traitement thermique à T = 573 K pour un temps de maintien de (a) t = 2 min et (b) t = 1h20.

	Nombre total de précipités	Nombre de précipités dans catégorie 1	Nombre de précipités dans catégorie 2	Nombre de précipités catégorie 1/ catégorie 2
t = 2min	212	79	133	0,59
t = 1h20	168	54	114	0,47

Table V-1 : Nombre de précipités comptabilisés pour 2 min et 1h20 de recuit, selon les catégories 1 et 2.

Les Figure V-12a et Figure V-12b correspondent, respectivement, aux images binarisées des micrographies MET après 2 min et 1h20 de traitement thermique. Les précipités sont représentés en noir et la matrice en blanc. La fraction surfacique « projetée » des précipités est de 24% après 2 min et de 18% après 1h20 de temps de maintien à 573 K. Après un palier à 573 K durant 1h20, la fraction surfacique « projetée » des précipités a diminué de 25% : il y a donc eu dissolution de certains précipités durant le traitement thermique. Ce résultat est en bon accord avec celui obtenu par comptage des précipités pour lequel une dissolution d'environ 20% des précipités est observée.

L'écart de 5 % peut s'expliquer par la différence de taille des zones étudiées, et donc, par le nombre de précipités considéré. Cette dissolution des précipités implique un enrichissement en cuivre de la matrice Al. Cependant, à partir de ces analyses et compte tenu du caractère anisotrope des précipités, la fraction surfacique ne peut pas être reliée directement à la fraction volumique.

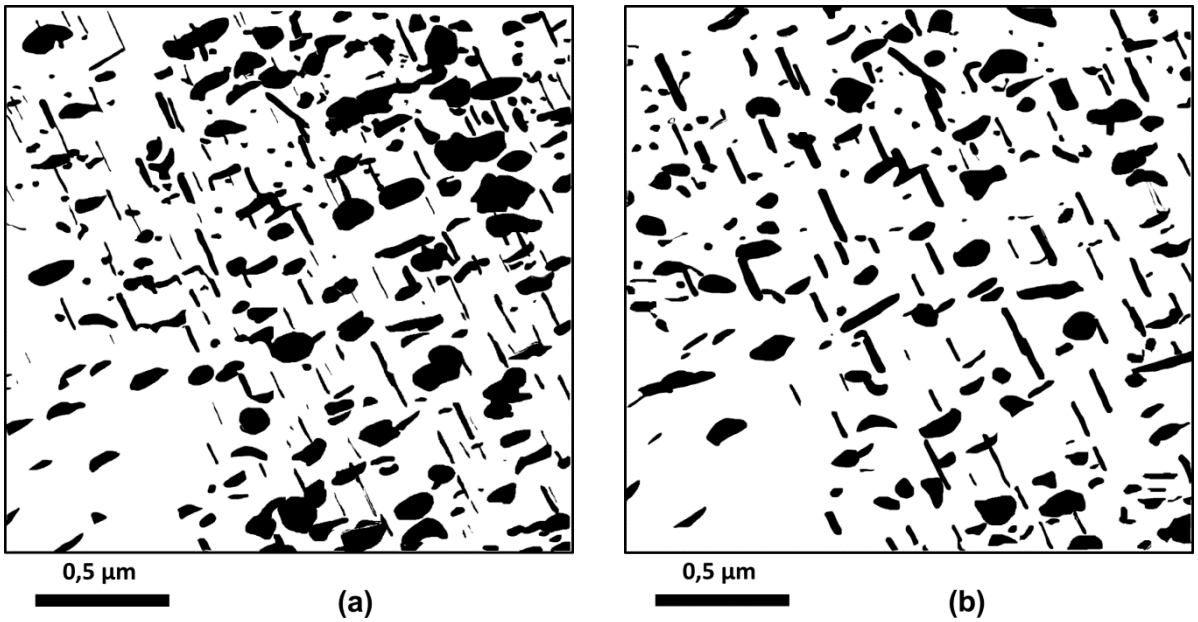


Figure V-12 : Images binarisées de l'échantillon 853-50-2 mettant en évidence la fraction surfacique « projetée » des précipités (contraste noir) pendant le recuit à T = 573 K pour un temps de maintien de (a) t = 2 min et (b) t = 1h20.

L'évolution des grandeurs caractéristiques des précipités a été analysée. La morphologie des précipités θ'-Al_2Cu est schématisée Figure V-6. Les Figure V-13a et Figure V-13b montrent, respectivement, l'évolution de l'« épaisseur » et de la « longueur » des précipités après 2 min et 1h20. Les notions d'épaisseur et de longueur ont été arbitrairement associées aux plus petites et plus grandes dimensions des précipités, respectivement.

Une population de 63 précipités a été considérée. Cependant, les mesures d'épaisseur n'ont pu être réalisées que sur une population de 44 précipités, l'orientation des autres n'étant pas propice à cette mesure. A t = 2 min, 91 % des précipités présentent une épaisseur comprise entre 1 et 30 nm, dont 57 % entre 10 et 20 nm (voir Figure V-13a). Après 1h20, l'épaisseur moyenne des précipités a augmenté. En effet, la proportion des précipités dont l'épaisseur est comprise entre 20 et 50 nm augmente (2/3 des précipités), il n'y a plus de précipités dans la gamme 1-10 nm.
Concernant la longueur des précipités (Cf. Figure V-13b), celle-ci est toujours inférieure à 200 nm. Au sein de la microstructure observée à t = 2 min, plus de la moitié des précipités (57%) ont une longueur comprise entre 80 et 140 nm.

A t = 1h20, les précipités sont distribués de manière plus homogène sur toute la gamme de taille : le nombre de précipités ayant une longueur inférieure ou égale à 80 nm est la même que pour la microstructure observée au bout de 2 minutes. En revanche, il n'y a plus que 43% de la population entre 80 et 140 nm et le nombre de précipités ayant une longueur supérieure à 160 nm a doublé.

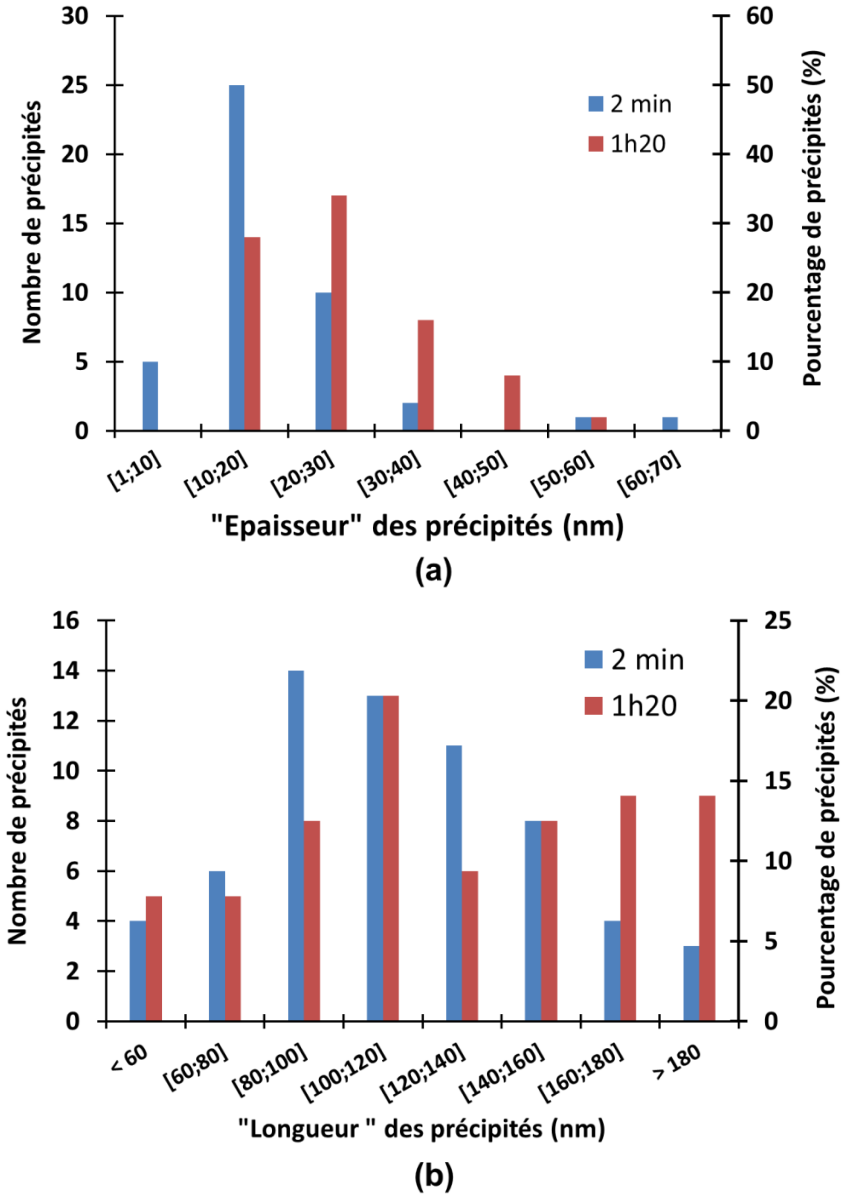


Figure V-13 : Histogramme correspondant à (a) « l'épaisseur » et (b) « la longueur » mesurées pour la population de précipités après 2 min et 1h20 de traitement thermique à 573 K.

Après un traitement thermique d'1h20 à 573K, l'évolution des précipités θ'-Al_2Cu est donc marquée par deux phénomènes : des effets de disparition/dissolution de certains précipités et une augmentation en taille des précipités restants, consécutivement, la matrice Al s'enrichit en Cu.

V.1.4. Discussion

Tous les composites Al/ω-Al-Cu-Fe élaborés par SPS présentent des contraintes d'écoulement supérieures à celles de l'aluminium « non-renforcé » et ce, quelle que soit la température, ce qui est cohérent dans le cas d'un renforcement d'une matrice par des particules de renfort dures. Cependant, nous avons vu que, si tous les composites contiennent 40 % volumique de phase ω, le renforcement dépend des procédés d'élaboration (optimisé ou pas) et dépend du « lot » testé. Nous avons également vu que la contrainte varie en fonction de la température. Après avoir discuté ces différents points, nous comparerons les résultats obtenus sur les composites SPS à ceux obtenus avec les composites élaborés par CIC.

- Influence de l'optimisation des composites

La Figure V-3 montre l'évolution de $\sigma_{0,2\%}$ en fonction de la température, obtenue lors d'essais de compression à vitesse imposée, réalisés sur les composites « optimisés » et « non-optimisés ». A toutes les températures, la contrainte $\sigma_{0,2\%}$ des composites « optimisés » est supérieure à celle des composites « non-optimisés ». La différence de contrainte est particulièrement importante à basse température : à température ambiante, la contrainte est inférieure à 200 MPa pour les échantillons « non-optimisés » alors qu'elle atteint 450 MPa pour les échantillons « optimisés ».

Pour rappel, l'optimisation des échantillons a consisté en l'amélioration du mélange des poudres au moyen d'un mélangeur de type Turbula® et en utilisant une poudre i-Al-Cu-Fe présentant une distribution granulométrique resserrée. D'après les observations MEB (voir chapitre III), les particules de renfort au sein du composite « non-optimisé » ne sont pas distribuées de manière homogène et forment des agglomérats de particules au sein de la matrice. Dans le cas des composites « optimisés », les particules sont réparties de manière homogène. De plus, les mesures de densité apparente (~ 93 %) attestent la présence de porosité au sein de l'échantillon « non-optimisé » alors que celle mesurée pour le composite « optimisé » est de ~99 %. En revanche, d'après les observations MET réalisées sur des échantillons « optimisés » et « non-optimisés » déformés à température ambiante, aucune différence notable n'est constatée entre les microstructures de la matrice. Pour rappel, à ces températures et ces niveaux de contrainte, la phase ω-Al-Cu-Fe se déforme uniquement élastiquement [19] (Cf. Figure I-9), la plasticité du composite est donc assurée par la matrice Al. Nos résultats suggèrent donc que la différence de contrainte observée est due à une différence de renforcement direct c'est-à-dire à un transfert de charge moins efficace dans le cas du composite « non-optimisé ». En effet, les régions ayant localement une forte fraction volumique de renfort présentent des contraintes plus élevées et des taux de porosités localement supérieur par rapport aux autres régions dont la distribution est homogène. Ce sont alors des sites préférentiels pour la nucléation de fissures [27,28].

- Influence de lot d'échantillon SPS

La comparaison des courbes contrainte-déformation des composites « optimisés » provenant de lots différents a mis en évidence une disparité entre les pentes élastiques (Cf. Figure V-2). Plusieurs hypothèses permettraient d'expliquer un tel comportement : un mauvais positionnement des éprouvettes dans le dispositif expérimental de déformation ou bien une disparité des microstructures. Or, les pentes d'élasticités d'échantillons issus d'un même lot sont identiques (Cf. lots 1 et 3, Figure V-2) ce qui écarte la première hypothèse. De plus, les analyses DRX et EDX ainsi que les observations MEB effectuées sur ces échantillons n'ont pas permis de mettre en évidence de différences notables au niveau de la microstructure des échantillons des différents lots : la répartition des particules de renfort est homogène pour tous les composites « optimisés », et le taux de porosités identique. Nous n'avons donc pas actuellement d'explications rationnelles quant à la dispersion des pentes d'élasticité.

La comparaison des différentes courbes met également en évidence une dispersion dans les valeurs de σ_{UYS}, le lot 1 ayant des valeurs supérieures à celles des lots 2 à 293 K et 3 à 473 K. L'analyse MET des échantillons SPS a toujours montré la présence de précipités θ'-Al_2Cu au sein de la matrice quel que soit le lot dont est issu l'échantillon. De plus, la diffusion de cuivre dans la matrice a été mesurée par EDX à l'échelle du MEB pour chaque composite. Il a été constaté que la concentration maximale de Cu est comprise entre 2,5 et 4% at. Cette différence n'est pas significative compte tenu de l'incertitude de mesure (~ 1 % at.). Enfin, la taille de grains a été mesurée dans un seul échantillon issu du lot 5 (non présenté dans cette étude). Cependant, on ne peut exclure une distribution en taille des grains différente entre les échantillons liée à un gradient de température au cours de l'élaboration SPS ce qui pourrait expliquer la dispersion observée pour les mesures de σ_{UYS}.

- Composites « optimisés »

Les résultats présentés dans ce mémoire constituent la première étude pour laquelle des essais de compression en température ont été réalisés sur des composites Al/ω-Al-Cu-Fe synthétisés par SPS.

Dans un premier temps, prenons en considération l'évolution de la contrainte d'écoulement $\sigma_{0,2\%}$ en fonction de la température pour les composites « Al/ω optimisés ». Une température de transition, entre deux régimes de températures, est observée entre 473 K et 523 K. Cette rupture de pente suggère que les mécanismes de déformation à basse et à haute température sont différents. Comme précisé précédemment, pour les températures et les niveaux de contrainte considérés, la phase ω-Al-Cu-Fe se déforme uniquement élastiquement : la déformation plastique se situe donc au sein de la matrice aluminium.

Pour $T \leq 473$ K, il est possible d'observer une forte dépendance de la contrainte en température, ce qui signifie que les obstacles au mouvement des dislocations peuvent être franchis par activation

thermique. D'après les observations MET, à température ambiante (Cf. Figure V-7a), les précipités θ'-Al_2Cu sont contournés par les dislocations plutôt que cisaillés. La dépendance en température suggère que le contournement se fait par glissement dévié. Pour de telles températures, le mécanisme de montée des dislocations est peu probable au sein de l'aluminium. En effet, d'après les études portant sur les énergies d'activation lors du fluage d'aluminium pur menées par Sherby et al. [65] et Carrard [66], le mécanisme de montée des dislocations intervient pour des températures supérieures à 473 K. Cependant, la présence d'une solution solide de cuivre et de précipités θ'-Al_2Cu pourrait entraîner une variation de cette température.

Nous verrons plus loin par comparaison avec des composites élaborés par CIC que c'est le franchissement des précipités θ'-Al_2Cu qui contrôle la plasticité des composites. Des boucles de dislocations autour des précipités sont observées ce qui correspond à un contournement de type Orowan, qui n'est que peu thermiquement activé. Cependant, la microstructure des composites étant complexe, plusieurs mécanismes de déformation plastique peuvent être en compétition, comme l'a souligné G. Laplanche dans l'interprétation des volumes d'activation des composites Al/ω-Al-Cu-Fe élaborés par CIC [18].

La Figure V-14 présente l'évolution de la contrainte d'écoulement $\sigma_{0,2\%}$ en fonction de la température pour un composite Al-Al_2O_3 et un alliage Al-Cu-Mg-Mn. En ce qui concerne de l'alliage Al-Cu-Mg-Mn la chute de contrainte brutale est attribuée au grossissement ou à la dissolution des précipités. Dans le cas du composite, la faible rupture de pente est associée à un changement de mécanisme.

Pour des températures inférieures à 200°C, l'évolution de la contrainte $\sigma_{0,2\%}$ du composite « Al/ω optimisés » est semblable à celle de l'alliage Al-Cu-Mg-Mn, alors que pour T > 200°C, celle-ci est comparable à celui d'un composite Al-Al_2O_3. Ces observations suggèrent que pour de basses températures, c'est la modification de la microstructure qui domine l'évolution de la contrainte. A plus haute température, c'est l'effet composite et donc le transfert de charge qui domine. Ces observations confortent les hypothèses selon lesquelles, l'évolution de la contrainte en température des composites « Al/ω optimisés » repose à la fois sur un changement de mécanisme et sur une évolution microstructurale des précipités au sein de la matrice.

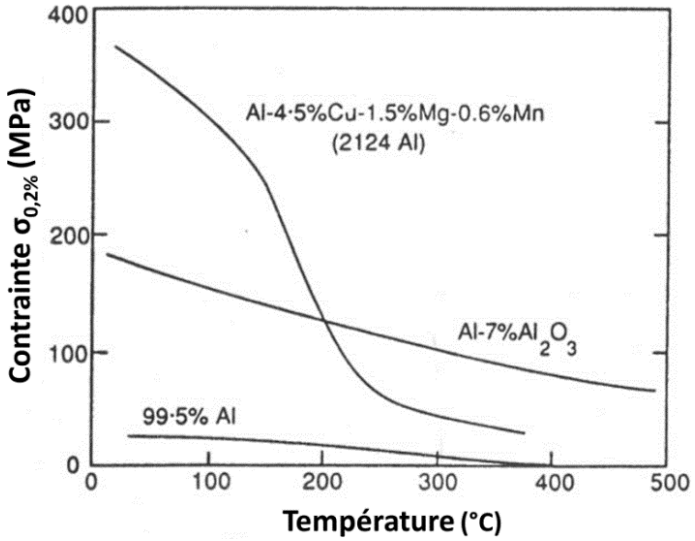


Figure V-14 : Evolution de la contrainte $\sigma_{0,2\%}$ en fonction de la température pour un alliage Al-Cu-Mg-Mn et un composite Al-Al_2O_3, d'après [27].

Pour T ≥ 523 K, les contraintes sont inférieures à 150 MPa, et dépendent toujours de la température. D'après les observations MET réalisées sur l'échantillon déformé à 723 K (Cf. Figure V-9), la densité de dislocations semble plus élevée qu'à température ambiante. A une telle température, on pourrait s'attendre à ce qu'une restauration accompagnée d'une annihilation des dislocations conduisent à un résultat inverse. Bien que le taux de déformation plastique maximale obtenu pour l'échantillon déformé à 723 K soit très supérieur à celui de l'échantillon déformé à T_{amb}, ce stade de déformation est caractérisé par un durcissement nul : la nucléation des dislocations est compensée par de l'annihilation. On peut noter que les courbes $\sigma_{0,2\%}(T)$ des échantillons d'aluminium montrent également un changement de pente avec une température de transition à 523 K. Pour T > 523 K, l'adoucissement de l'aluminium est attribué à des mécanismes de montée des dislocations ainsi qu'à de l'annihilation des dislocations. L'augmentation de la taille des précipités et la diminution de leur fraction surfacique contribue également à l'adoucissement de la matrice.

La pente de $\sigma_{0,2\%}(T)$ des composites est cependant plus importante que celle de l'aluminium « non-renforcé » ce qui suggère que dans ce domaine de températures, le durcissement n'est pas dû uniquement à un transfert de charge mais également à du renforcement indirect (voir chapitre I).

- Composites « Al/ω optimisé – toutes T » et « Al/ω optimisés » : effet du traitement thermique

Le composite « Al/ω optimisé – toutes T » a été déformé à toutes les températures, de 823 K à 293 K. Nous observons pour ce mode de déformation un décalage de la température de transition (423 K au lieu de 523 K) vers les basses températures. Il est probable que la microstructure du composite « Al/ω optimisé – toutes T » a évolué lors des déformations successives à plus haute température. La microstructure est donc différente de celle des composites « Al/ω optimisés » ce qui entraîne un

décalage de la température de transition de 423 K et 473 K. Pour T < 423 K, les valeurs de contraintes d'écoulement sont similaires pour les deux composites, ce qui est pourrait être lié à un phénomène de re-précipitation à ces températures.

- Comparaison des composites CIC / SPS

Pour faciliter la compréhension, aucune différence ne sera faite entre les composites « Al/ω optimisés » et « Al/ω optimisé – toutes T ». Par la suite, ces derniers seront notés « composites SPS ».

Lors des essais de compression à vitesse imposée, et quelle que soit la température, les « composites SPS » se fissurent très rapidement et les essais sont interrompus suite à la rupture de l'échantillon (taux de déformation ~ 4 %, voir Figure V-1). Pour les composites CIC, bien que les essais aient été interrompus, pour la plupart avant fracture, les taux de déformation plastique atteints sont nettement supérieurs (~ 7 %, voir Figure I-36) à ceux obtenus pour les composites SPS. Par exemple, pour les composites CIC déformés à température ambiante, la rupture se produit à 15% de déformation plastique.

La Figure V-15 présente l'évolution de la contrainte d'écoulement $\sigma_{0,2\%}$ en fonction de la température pour des composites Al/ω-Al-Cu-Fe élaborés par SPS et CIC (provenant d'une précédente étude menée par El Kabir [32] et Laplanche [18]). La contrainte $\sigma_{0,2\%}$ des composites CIC diminue avec la température et deux régimes en température sont également visibles avec une température de transition à environ 550 K. Les mécanismes de déformation des composites CIC ont déjà été abordés dans le chapitre I. Pour T < 550 K, la déformation plastique est attribuée au contournement des nanoparticules de renfort par des mécanismes thermiquement activés. Pour T > 550 K, la diminution des contraintes est assimilée à des mécanismes de montée et à de l'annihilation des dislocations.

Quelle que soit la température, la contrainte d'écoulement $\sigma_{0,2\%}$ des composites SPS est supérieure à celle des composites CIC, l'écart le plus important étant à température ambiante où il atteint 100 MPa. Le transfert de charge dans les composites CIC ou SPS est *a priori* identique : dans les deux cas, la fraction volumique de la phase ω-Al-Cu-Fe est de 40%. Cependant, il ne faut pas négliger le rôle de l'alumine sur la cohésion des interfaces matrice/renfort. En effet, l'aluminium présente une grande affinité pour l'oxygène, et bien que non étudiée dans le cadre de ce travail, une couche d'alumine doit inévitablement se former à la fois lors du stockage des poudres d'Al mais également au cours de la synthèse des composites que ce soit par SPS ou par CIC. La couche d'alumine formée lors du traitement CIC de plusieurs heures est très probablement plus épaisse que celle formée au cours du frittage SPS de quelques minutes. Cette couche d'alumine constitue une barrière de diffusion et entrave le frittage des poudres. Elle pourrait donc affecter négativement le transfert de charge matrice/renfort et plus particulièrement le comportement mécanique des composites CIC.

L'écart de contrainte est également lié à un renforcement indirect différent c'est-à-dire à une évolution de la microstructure de la matrice différente. Les observations MET à température ambiante ont montré la présence de précipités θ-Al_2Cu, dont la taille varie de 700 nm à 2 µm, et de nanoparticules ω-Al-Cu-Fe [5] dans le cas des composites CIC (Cf. Figure I-37). Cependant, il faut prendre en considération que l'observation des précipités θ-Al_2Cu n'est pas systématique au sein des composites CIC. En effet, selon Laplanche [18], l'observation de précipités θ-Al_2Cu dépendait du type de grille (Mo ou Cu) utilisée et de l'étape de préparation des lames minces au PIPS. Pour les composites SPS, ce sont des précipités θ'-Al_2Cu, dont la taille varie de 10 à 150 nm. Cette différence de microstructure s'explique par les temps de maintien en température différents lors de la synthèse des deux composites : 2 min pour les composites SPS et 120 min pour les composites CIC. Ce résultat est en bon accord avec l'évolution du durcissement selon le type de précipités dans les alliages d'aluminium [36]. Il montre également que dans le cas des composites SPS, la plasticité est contrôlée par le franchissement des précipités θ'-Al_2Cu.

En ce qui concerne l'analyse des tailles de grains de la matrice Al, aucune différence significative n'est observée entre les composites SPS et CIC : dans les deux cas, l'étendue en taille va de 1 à 100 µm. La fréquence cumulée indique que 80% des grains ont une taille inférieure à 50 µm pour les composites SPS (voir Figure III-16b), et 60 µm pour les composites CIC [32]. Donc la taille de grains de la matrice n'est pas à l'origine du durcissement observé entre les composites CIC et SPS.

L'écart de contrainte entre les deux types de composites tend à diminuer lorsque la température augmente. Cela peut être lié à une modification de la microstructure (θ'-Al_2Cu dans les composites SPS et nanoparticules de renfort dans les composites CIC) ou à une dépendance en température différente des mécanismes de franchissement des obstacles dans les composites CIC et SPS.

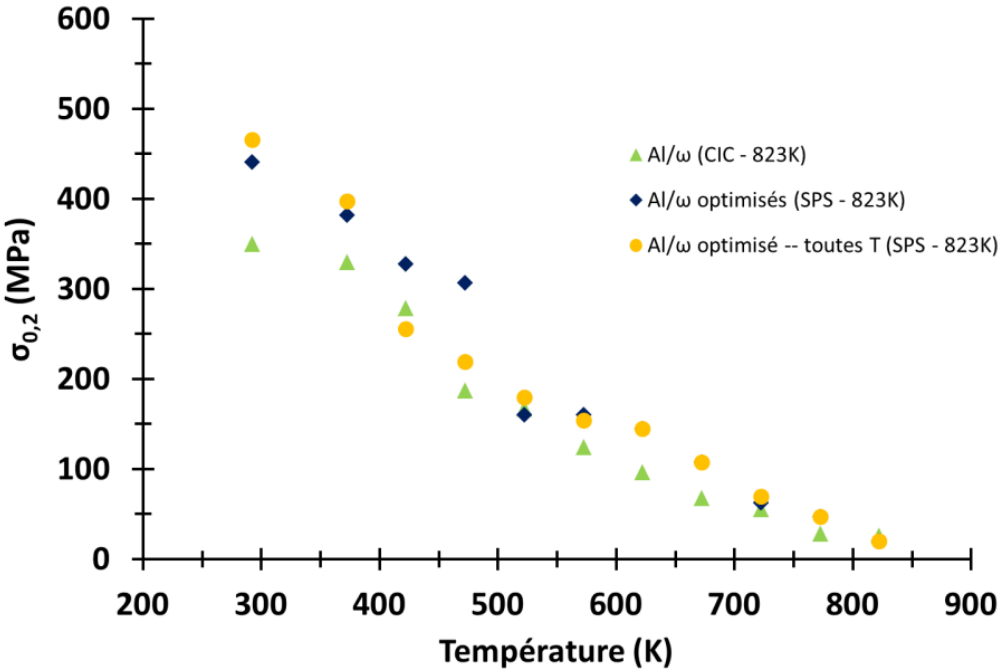


Figure V-15 : Evolution de la contrainte $\sigma_{0,2\%}$ en fonction de la température pour des composites Al/ω-Al-Cu-Fe « optimisés » élaborés par SPS et des composites Al/ω-Al-Cu-Fe élaborés par CIC.

V.1. Propriétés mécaniques à l'échelle submicrométrique – nanoindentation

Dans la section précédente, il a été montré que la plasticité du composite Al/Al-Cu-Fe a lieu au sein de la matrice aluminium. De manière à sonder plus finement les propriétés mécaniques de la matrice, des analyses à l'échelle submicrométrique ont été effectuées par nanoindentation. En particulier, afin de sonder les éventuelles hétérogénéités de propriétés mécaniques dans la matrice, des réseaux réguliers d'empreintes de nanoindentation seront réalisés afin de reconstruire une carte de propriétés mécaniques locales. Les essais de nanoindentation ont été réalisés pour l'échantillon 853-50-2, présenté au Chapitre III.

V.1.1. Courbes force-déplacement

Une zone exempte de rayures est choisie afin d'éviter de fausser les résultats. La planéité et la rugosité (inférieure à quelques Ångström) ont été vérifiées à l'aide d'un microscope à force atomique (AFM). Le réseau de nanoindentation chevauche à la fois la matrice aluminium et les particules de renfort. Cette configuration permet de sonder les propriétés mécaniques des deux composants.

La Figure V-16 correspond à une micrographie MEB de la zone indentée. La matrice aluminium (contraste foncé) est dense et sans porosités. Le renfort (contraste clair) est hétérogène et est constitué

d'une particule de renfort dense et d'une zone périphérique composée de petits agglomérats de particules, sous forme de « dentelle ».

On observe sur cette figure le réseau de nanoindentation constitué de 144 empreintes (12 x 12) avec un pas de 5 µm entre chaque indentation. Ce pas permet d'éviter que les déformations introduites lors de l'indentation de la zone voisine interagissent avec la nouvelle zone d'indentation. Les essais de nanoindentation sont réalisés en déplacement contrôlé (Voir Chapitre II). Pour chacune des indentations, la profondeur de pénétration est fixée à 150 nm et la vitesse de charge à 150 $nm.min^{-1}$. Une pause de 15s est appliquée à charge maximale pour éviter les effets de fluage en cours de décharge. La fréquence d'acquisition est fixée à 20 Hz.

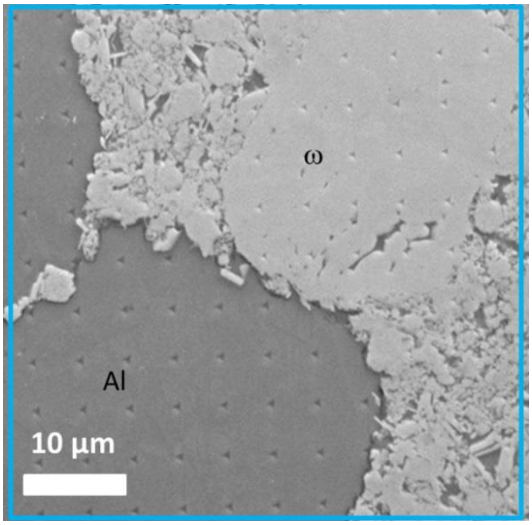


Figure V-16 : Micrographie MEB mettant en évidence le réseau de nanoindentation.

Les Figure V-17a et Figure V-17b montrent les courbes force-déplacement typiques obtenues, respectivement, pour les particules de renfort et la matrice. Pour chacune des courbes, la profondeur maximale de pénétration atteinte est de 150 nm avant d'entamer le processus de décharge, conformément au mode de déplacement imposé. La force atteinte lors du chargement dans le renfort (~ 4 500 µN) est très largement supérieure à celle de la matrice Al (~400 µN) ce qui est cohérent compte tenu des écarts de dureté attendus.

L'autre particularité concerne l'aspect de la courbe de charge. Dans le cas des particules de renfort, bien que la courbe de charge ne soit pas parfaitement lisse, les quelques perturbations sont attribuées à l'aspect dentelé et à l'inclusion d'aluminium entre les particules de renfort. Pour la matrice Al, chaque courbe de charge présente des instabilités de déformation plastique qui se caractérisent par des chutes de force.

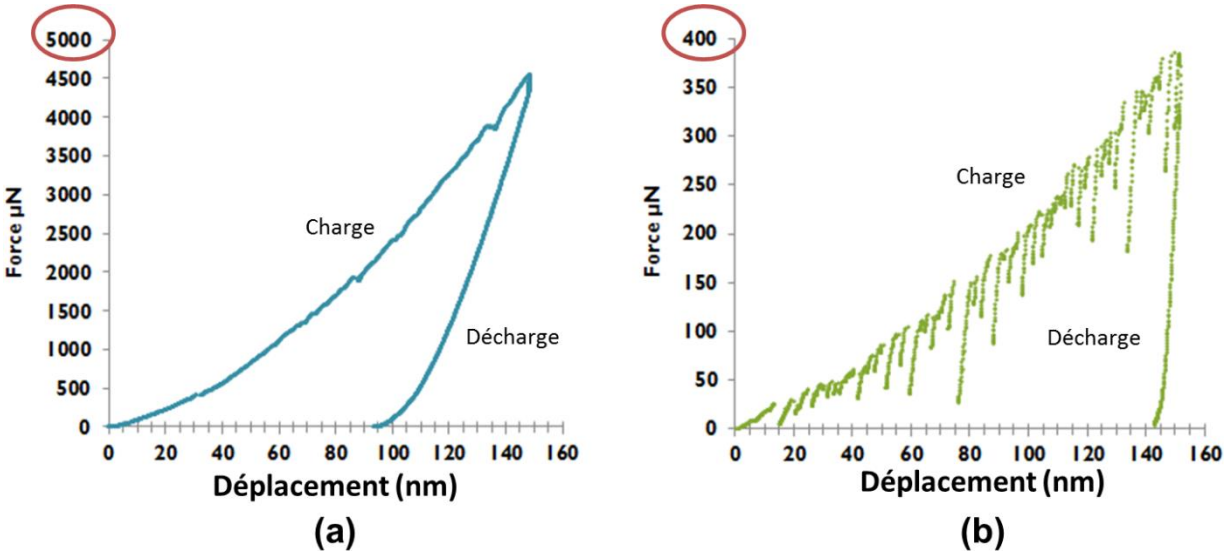


Figure V-17 : Courbes force-déplacement obtenues en nanoindentation caractéristiques (a) des particules de renfort et (b) de la matrice aluminium.

V.1.2. Corrélation dureté et composition chimique

Dans le Chapitre II, il a été montré que la dureté est déterminée à partir de la courbe de décharge et qu'à chaque indentation, il est possible d'associer une valeur de dureté. A partir de ces valeurs (Cf. Figure V-18), une cartographie (Cf. Figure V-19) a été réalisée afin de visualiser l'évolution de la dureté par rapport à la zone sondée. Pour cela, une interpolation aux plus proches voisins a été appliquée. Cette interpolation consiste à attribuer, jusqu'à mi-distance entre chaque indentation, la valeur de dureté de l'indentation voisine.

La dureté de la phase ω-Al-Cu-Fe est comprise entre 10 et 12 GPa, avec une valeur moyenne de 11 GPa et celle de la matrice Al se situe entre 0,5 et 2 GPa, avec une valeur moyenne de 1,5 GPa (Cf. Figure V-18). La cartographie montre que la dureté de la phase ω-Al-Cu-Fe n'est pas homogène sur toute la zone de renfort. Au sein de la particule dense, la dureté est homogène et plus élevée que pour la zone dentelée, l'inclusion d'aluminium entraînant une diminution de la dureté. La particularité de cette cartographie réside dans l'existence d'un gradient de dureté au sein de la matrice aluminium. En effet, la dureté augmente lorsqu'on s'approche de l'interface matrice/renfort Ce gradient de dureté est clairement mis en évidence sur la cartographie présentée Figure V-19a.

La Figure V-19a met en évidence l'évolution des courbes force-déplacement en fonction de la position au sein de la matrice aluminium. De plus, quelle que soit la position au sein de la matrice, toutes les courbes présentent des sauts de force, dont l'amplitude et la fréquence seront discutées ultérieurement.

Les Figure V-19b et Figure V-19c présentent une cartographie chimique du cuivre réalisée par EDX au sein de la zone indentée ainsi que des pointés EDX réalisés à proximité de l'interface (point noir) jusqu'au sein de la matrice (point rouge). Au sein de la particule de renfort dense, la concentration en cuivre est homogène, contrairement aux zones dentelées. Cela est dû au fait que l'inclusion d'aluminium au sein des agglomérats de renfort est sondé avec les zones dentelées, à cause de la poire d'interaction (~3 µm). Dans le cas de la matrice Al, un gradient de cuivre est observé au voisinage des interfaces entre Al et ω-Al-Cu-Fe : la concentration en cuivre, d'environ 0,2% au milieu de la zone Al, augmente progressivement en s'approchant de l'interface, jusqu'à une valeur de 2,7 % atomique

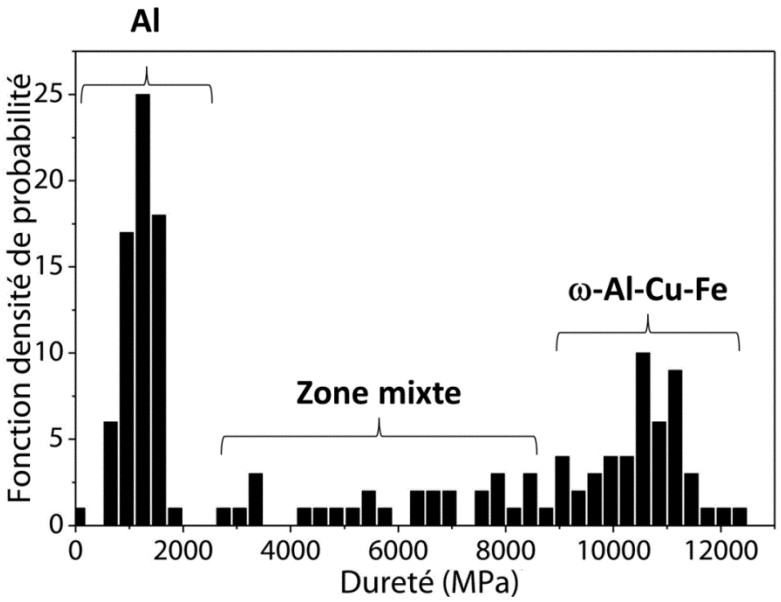
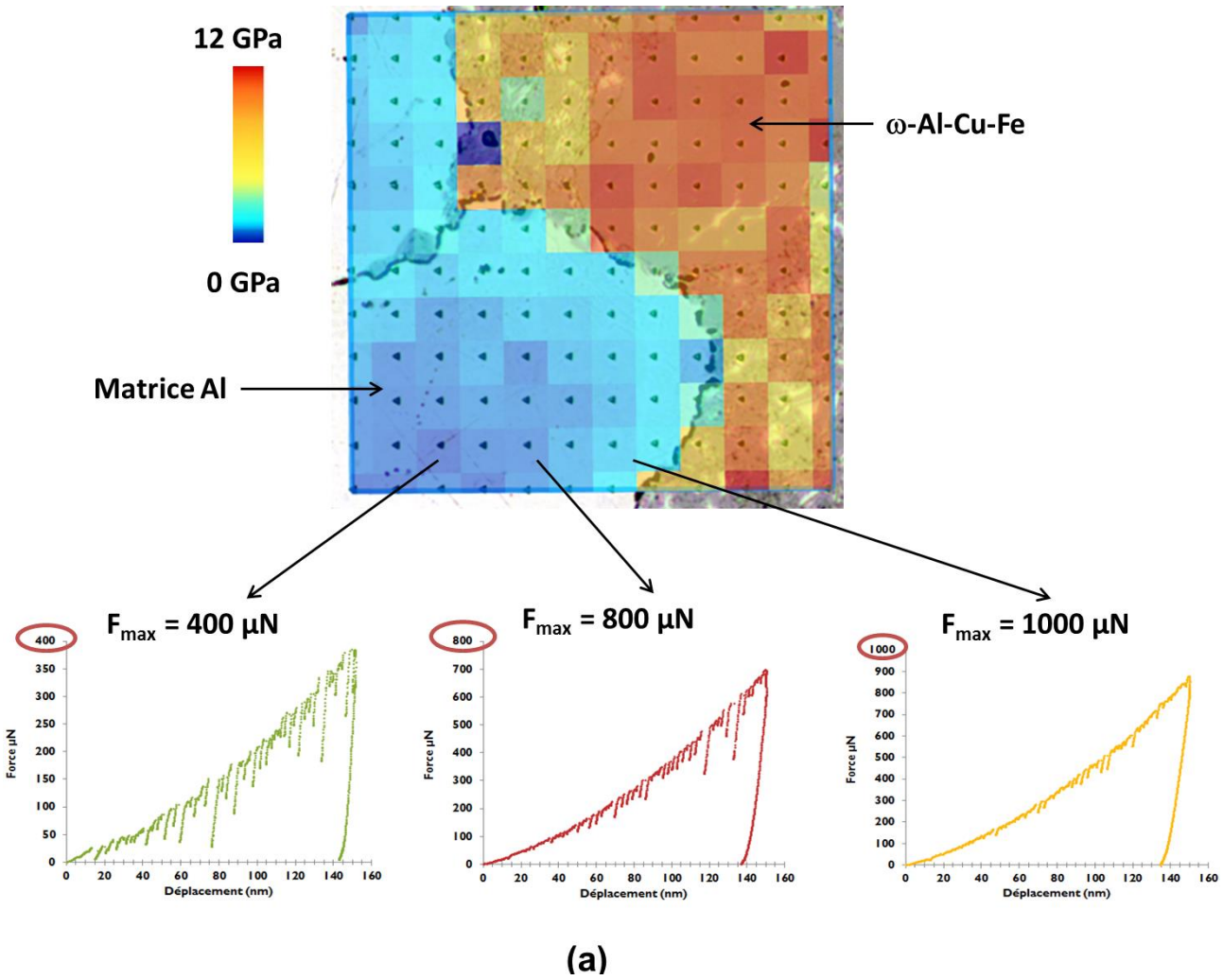
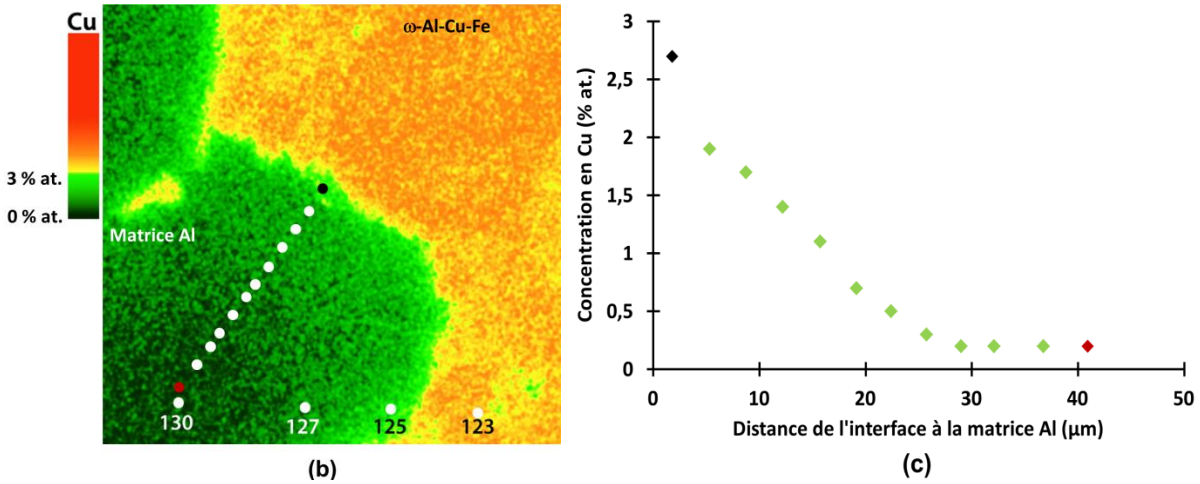


Figure V-18 : Histogramme des valeurs de dureté mettant en évidence la dureté de Al et de la phase ω-Al-Cu-Fe.



(a)



(b) (c)

Figure V-19 : (a) Cartographie de dureté de la zone indentée mettant en évidence un gradient de dureté présentée avec l'évolution des courbes forces déplacement selon la position dans la matrice Al et (b) cartographie chimique du cuivre obtenue en EDX montrant un gradient de concentration et (c) évolution de la concentration en Cu de l'interface à la matrice Al.

V.1.3. Analyses des sauts de force

L'amplitude et la fréquence des chutes de force dépend de la position au sein de la matrice Al et donc de la concentration en cuivre. Afin de mieux analyser les chutes de force observées précédemment pour les courbes force-déplacement de la matrice Al, un nouveau réseau d'indentation est réalisé. Pour cela, un polissage mécano-chimique (Voir Chapitre II) est effectué de manière à enlever les déformations induites par l'ancien réseau (épaisseur de quelques microns enlevée). Un nouveau réseau de 7x2 indentations est réalisé sur la même zone, avec un pas de 4 µm entre chaque indentation pour améliorer la résolution par rapport à la première cartographie. Les différents paramètres appliqués sont : la profondeur de pénétration à 100 nm, la vitesse de déplacement à 10 nm.min-1 et la fréquence d'acquisition fixée cette fois à sa valeur maximum de 400 Hz, afin d'optimiser l'analyse des chutes de force par l'augmentation du nombre points enregistrés lors de l'essai de nanoindentation.

Une cartographie chimique du cuivre superposée à une image optique, présentée Figure V-20, montre la localisation du nouveau réseau au sein de la matrice Al. Ce réseau permet de couvrir la zone correspondant aux gradients de dureté et de concentration de cuivre. Des courbes force-déplacement sont présentées en fonction de la position dans la matrice, et sont numérotées de 1 à 4 (Cf. Figure V-20). Comme précédemment, la force augmente lorsque la zone sondée est proche de l'interface matrice/renfort et diminue en s'éloignant de l'interface. Les sauts de force sont visibles pour chacune des courbes.

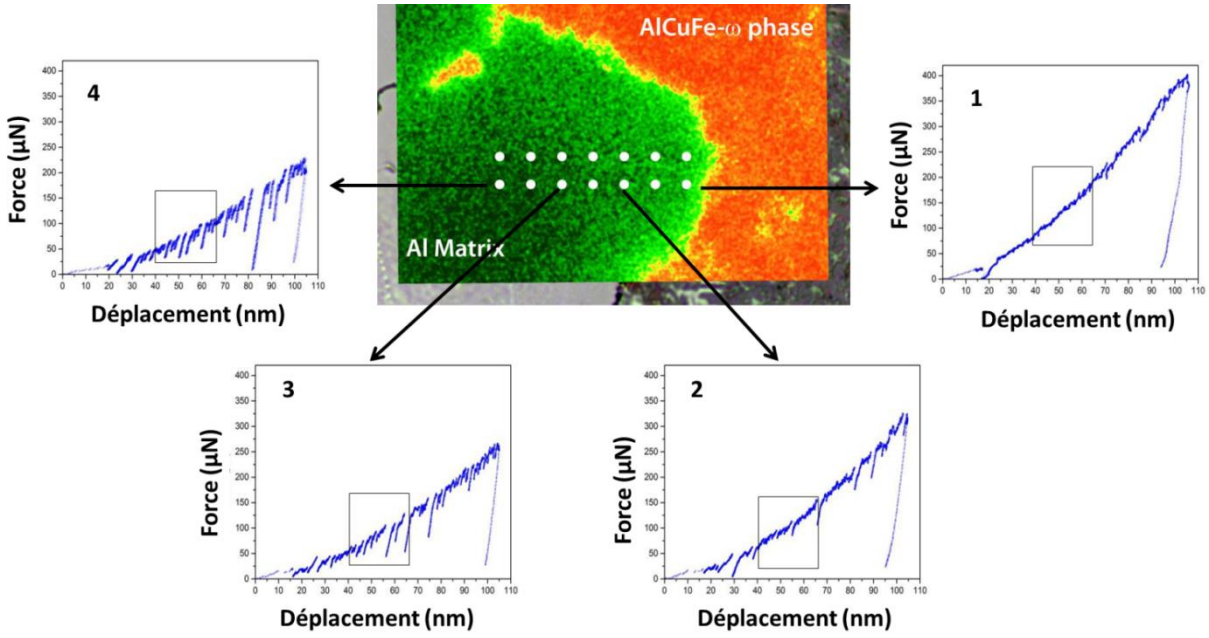


Figure V-20 : Cartographie chimique superposée à une image optique du nouveau réseau d'indentation au sein de la matrice Al et l'allure des courbes force-déplacement en fonction de la position dans la matrice.

L'étude des sauts de force est basée sur l'analyse de l'amplitude et de la fréquence des sauts observées pour les courbes présentées Figure V-20. La gamme de profondeur de pénétration, délimitée par des rectangles sur les courbes (Cf. Figure V-20), est identique pour chacune des courbes, ce qui permet d'assimiler les sauts de force à des chutes de contrainte.

La comparaison des sauts de force est réalisée en soustrayant l'enveloppe de la courbe de charge. La Figure V-21a est une schématisation de l'enveloppe de charge (contraste rouge) et la Figure V-21b, le résultat obtenu après soustraction de cette enveloppe. Cette représentation permet de comparer l'allure et l'amplitude des sauts de force même pour des zones de dureté différentes (étude absolue de l'amplitude des sauts).

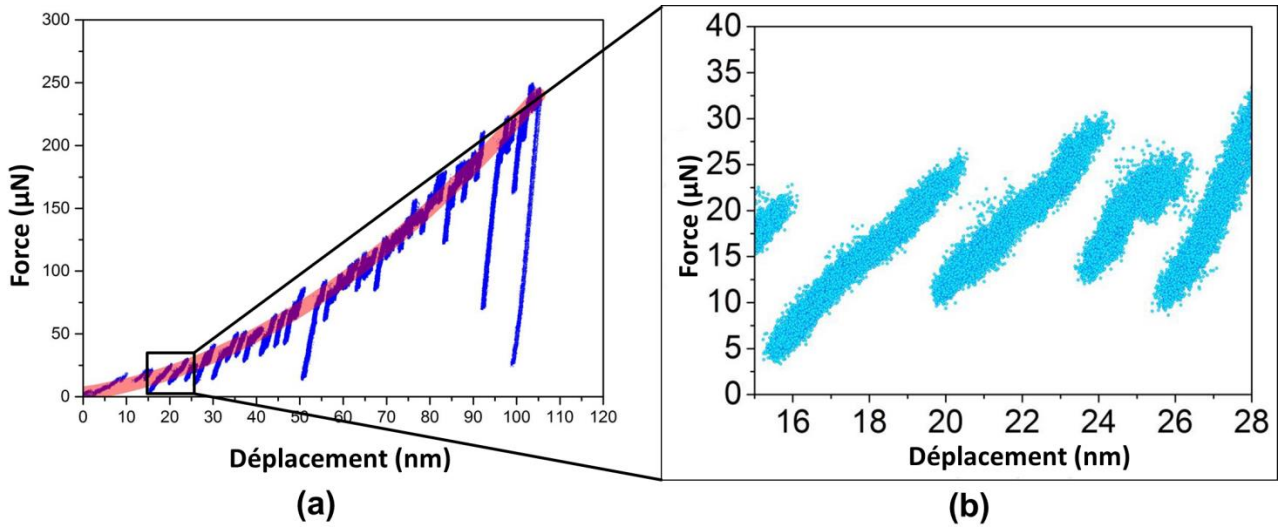


Figure V-21 : Schématisation (a) de l'enveloppe de charge (rouge) pour une courbe force-déplacement et (b) du résultat obtenu après soustraction de l'enveloppe.

Pour rappel, la force et le déplacement sont mesurés indépendamment en fonction du temps, les courbes force-déplacement sont donc reconstruites à partir de ces signaux. Cependant, en mode déplacement imposé sur une machine « molle », il est difficile de suivre les chutes de force. Pour les analyser, il s'avère nécessaire de représenter l'évolution de la force au cours du temps.

La Figure V-22a présente le comportement de la force (courbe rouge) et du déplacement (courbe verte) en fonction du temps lors des chutes de force. La Figure V-22b correspond à une représentation de la force en fonction du déplacement pour la même zone d'observation que celle présentée Figure V-22a. Pour simplifier, prenons comme exemple le comportement de la force et du déplacement entre t = ~12 s et ~ 37 s (Cf. Figure V-22a). Lorsque l'indenteur est en période de charge, la force augmente nécessairement. Il est de même pour le déplacement de la pointe au sein de l'échantillon. A un instant donné (~ 37 s), il est possible d'observer simultanément une chute de la force et une augmentation du

déplacement, qui n'excède pas le micron. Ces variations sont dues à une déformation brutale de l'échantillon. Le déplacement étant très rapide, il n'y a pas encore asservissement et l'indenteur suit le mouvement de l'échantillon. Pour rappel, la cellule de force est constituée d'un actuateur piézoélectrique et d'un ressort : c'est le ressort à travers l'actuateur qui permet de déplacer la pointe. Par la suite, après asservissement, le piézoélectrique relève la pointe : la force et le déplacement diminuent simultanément.

Sur la courbe force-déplacement (Cf. Figure V-22b), le comportement des chutes de force et les sauts en déplacement ne sont pas bien visibles en raison de l'accumulation du bruit provenant des deux signaux.

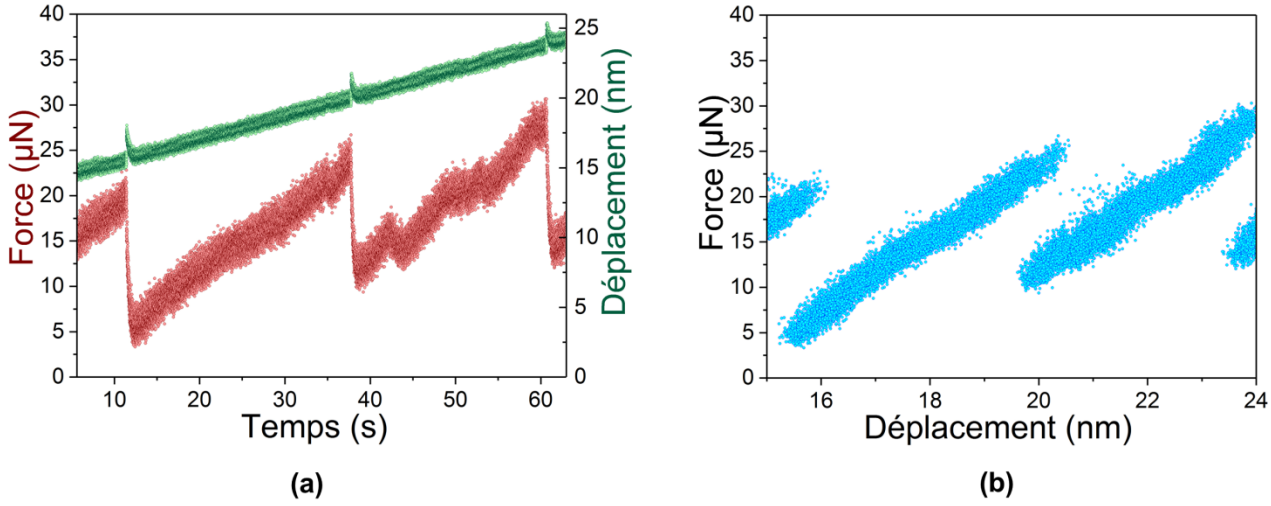


Figure V-22 : (a) Comportement de la force (courbe rouge) et du déplacement (courbe verte) en fonction du temps lors des chutes de forces et (b) représentation de la force en fonction du déplacement pour la même zone d'observation.

La Figure V-23 montre l'évolution des sauts de force présentée en fonction du temps, pour les quatre courbes sélectionnées (Cf. Figure V-20). Le déplacement est donné ici à titre indicatif. La gamme de profondeur de pénétration sélectionnée est située entre 42 et 60 nm. Les courbes numérotées de 1 à 4 présentent une concentration en cuivre qui évolue de 3 à 0,2 % atomique.

L'amplitude et la fréquence des chutes de forces sont analysées de manière qualitative. Celles-ci sont différentes pour les quatre zones. Lorsque la zone sondée est proche de l'interface matrice/renfort (cas n°1), la fréquence des sauts augmente et l'amplitude diminue, par rapport aux autres courbes. Dans ce cas-là, la concentration en cuivre est proche de 3 % atomique. En considérant une concentration de cuivre à 0,2 % atomique (cas n°4), l'amplitude des sauts est plus élevée alors que la fréquence est plus faible par rapport au cas n°1. De manière générale, lorsque la concentration de cuivre augmente, il y a un accroissement de la fréquence et une diminution de l'amplitude des sauts de force (voir Figure V-23).

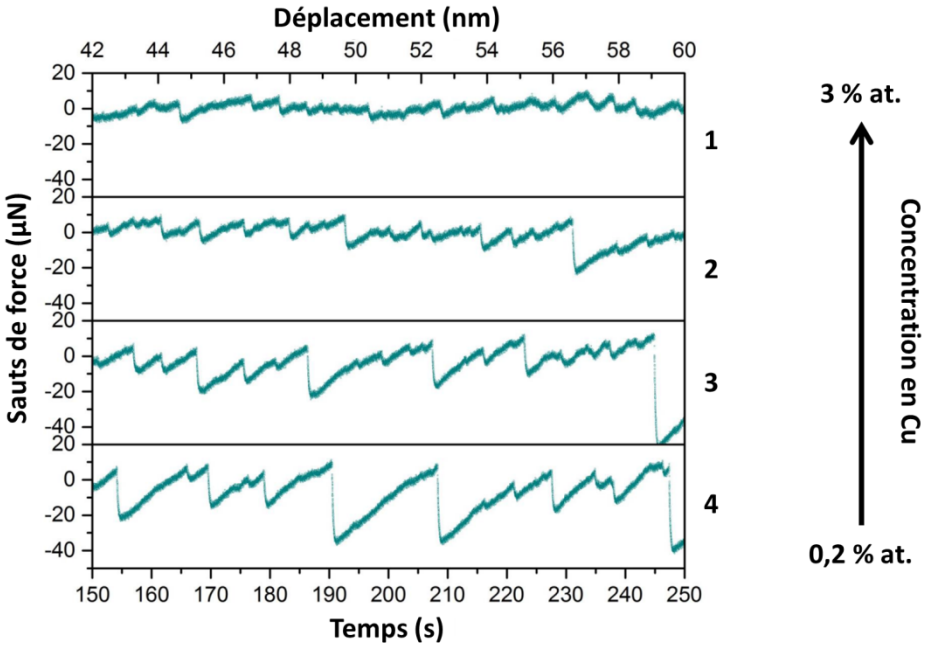


Figure V-23 : Evolution des sauts de force en fonction du déplacement et de la position de la zone sondée au sein de la matrice Al (et donc de la concentration en cuivre)

V.1.4. Discussion

- Les courbes force-déplacement

Les courbes force-déplacement ont mis en évidence la présence d'instabilités de déformation plastique. La fréquence et l'amplitude de ces instabilités évoluent selon la concentration de cuivre au sein de la matrice. Nous avons vu que les chutes de forces sont accompagnées d'un brusque déplacement du piston dû à la déformation très rapide de l'échantillon. A l'échelle microscopique, la déformation de l'échantillon peut être due à une diminution de la contrainte sous l'indenteur. De plus, l'évolution de la force en fonction de la concentration en Cu suggère que la déformation est due à des interactions entre les dislocations mobiles et les atomes en soluté.

De telles interaction ont été observées pour des alliages Al-Mg et Al-Cu [41,67,68][69–72] lors d'essais macroscopiques (traction ou de compression uniaxiaux) et microscopique (microindentation). La Figure V-24 montre des courbes force-déplacement en mode force contrôlée, obtenue à température ambiante, qui montre des instabilités de déformation plastique. Des paliers de déformation sans augmentation de la force sont observés conformément au mode force contrôlée (voir chapitre I). La Figure V-24 met en évidence l'influence de la teneur en solution solide sur les courbes force-déplacement pour des alliages Al-Mg et Al-Cu. La courbe force-déplacement de l'aluminium pur ne présente aucune instabilité de déformation plastique, ce qui n'est plus le cas lors de l'addition d'élément d'alliage Mg et Cu (voir Figure V-24a), dès lors qu'une force critique F_c est atteinte. L'augmentation de la concentration en Mg (voir Figure V-24b) génère un accroissement de la force et

de l'apparition des instabilités [69]. Ces résultats sont cohérents avec ceux obtenus par Horváth et al. [73] lors d'essais de compression sur des alliages Al-Mg. Ils ont montré que l'évolution de $\Delta\sigma$ dépend fortement de la concentration de Mg. Ce type d'instabilité a été attribué à de l'effet PLC.

Cependant, contrairement à notre étude, les instabilités de déformation plastique présentées ci-dessous sont régulières et reproductibles. Les auteurs [69,72] attribuent ce phénomène à une stabilité de la solution solide. Bien que le mode imposé (force) soit différent de celui appliqué dans notre cas, la présence des instabilités plastiques et la dépendance de la forme des courbes force-déplacement à la concentration en cuivre pourrait provenir d'effets PLC.

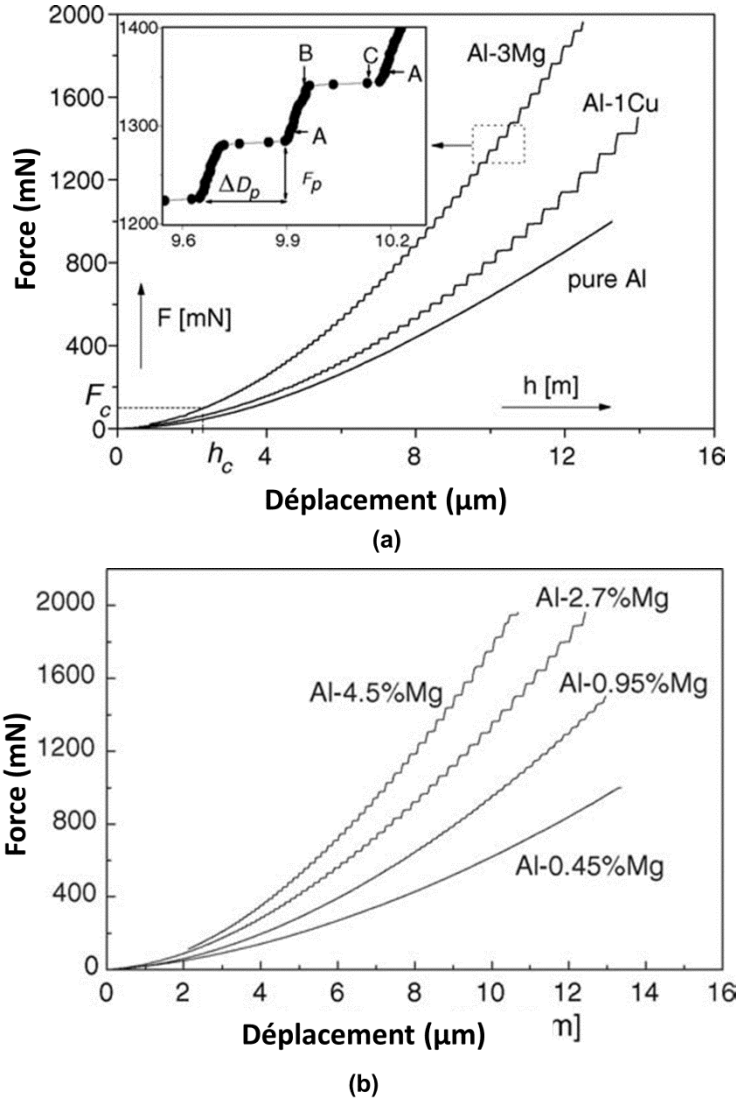


Figure V-24 : Courbes force-déplacement typique obtenues lors de tests (a) de microindentation pour de l'aluminium pur et des alliages Al-3%Mg et Al-1%Cu et (b) de tests d'indentation pour des alliages de Al-Mg dont la concentration de Mg varie entre 0,45 % et 4,5 %, d'après [69].

- Corrélation entre la dureté et la concentration en Cu

Les courbes force-déplacement, en fonction de la position au sein de la matrice, ont montré que la force maximale atteinte par l'indenteur augmente avec l'accroissement de la concentration en cuivre. La dureté étant calculée à partir de la force maximale (voir Equation II-4), il y a alors une corrélation entre le gradient de dureté et le gradient de concentration en cuivre. Des résultats similaires ont été obtenus par Chinh et al. [72], dans le cas d'un alliage Al-Mg, la présence d'oscillation de dureté en fonction de la concentration en Mg.

De manière simplifiée, un tel durcissement de la matrice Al peut s'expliquer par l'interaction des dislocations et de la solution solide de cuivre. Dans notre cas, l'enfoncement de l'indenteur entraîne le mouvement des dislocations, ce qui induit de la déformation au sein de l'échantillon. Les solutés de cuivre apparaissent comme des obstacles qui freinent et bloquent le mouvement des dislocations : ce phénomène génère un durcissement de la matrice.

- Les chutes de force

Les analyses des chutes de force ont montré une dépendance de l'amplitude et de la fréquence de ces chutes à la concentration en cuivre au sein de la matrice. Dans notre étude, les analyses EDX ont montré une diffusion du cuivre allant de 0,2 à 2,7 % atomique. De plus, l'observation de la microstructure au MET d'un échantillon à température ambiante a mis en évidence la présence de précipités θ'-Al_2Cu au sein de la matrice Al (Cf. Figure V-5). La matrice est donc, à la fois, constituée d'une solution solide et de précipités θ'-Al_2Cu.

Thevenet et al. [74] ont étudié l'influence de la précipitation pour un alliage Al-Zn-Mg-Cu, lors d'essais de traction, en appliquant différents traitements thermiques de vieillissement. Pour chaque échantillon, des précipités différents (des zones GP à des précipités stables, voir chapitre I) se sont formés. L'analyse des courbes contrainte-déformation, obtenues à vitesse de déformation constante ($\dot{\varepsilon} = 1{,}2\,.\,10^{-3}\ s^{-1}$) et à température ambiante, a montré que l'amplitude des sauts de force semble être affectée par les précipités. Les zones GP retardent l'apparition des instabilités de déformation plastique alors que les précipités métastables augmentent l'amplitude des sauts de force. Les précipités métastables diminuent cette amplitude, probablement par réduction de la concentration en éléments d'alliage. Ces instabilités de déformation plastique sont également attribuées à de l'effet PLC.

Nous allons considérer dans un premier que les instabilités observées pour les courbes force-déplacement sont dues à de l'effet PLC.

Il est généralement accepté que les effets PLC soient associés à un phénomène de vieillissement dynamique et donc, à l'interaction des dislocations mobiles avec les nuages d'atomes en soluté (voir chapitre I). Dans notre cas, l'amplitude et la fréquence des sauts de force peuvent être corrélées à l'interaction dynamique entre les dislocations et les atomes de cuivre et/ou les précipités θ'-Al_2Cu. Lorsque les dislocations sont en mouvement, leurs libres parcours moyens dépendent de la solution solide et/ou les précipités θ'-Al_2Cu.

En considérant le cas d'une solution solide, lors du déplacement des dislocations, celles-ci rencontrent des atomes de soluté. Les lignes de dislocations peuvent ainsi se charger en soluté et former un nuage de Cottrell. Les dislocations sont ensuite freinées puis bloquées dans leur mouvement durant un certain temps d'arrêt. A l'échelle macroscopique, cela peut se caractériser par une chute de la force. Parallèlement, l'asservissement en mode déplacement contrôlé impose à l'indenteur son mouvement au sein de l'échantillon. Or, lorsque la force est suffisamment élevée, les dislocations se libérèrent du nuage de Cottrell et continuent leurs mouvement : le matériau se déforme plastiquement sous l'indenteur. Lors du désépinglage et selon la concentration en cuivre, les dislocations rencontrent plus ou moins des solutés de cuivre et le libre parcourt moyen, entre deux obstacles, diminue ou augmente entre chaque saut de force. Pour résumer :

- Concentration de cuivre élevée → libre parcours moyen faible → fréquence des sauts élevée → amplitude faible
- Concentration de cuivre faible → libre parcours moyen élevé → fréquence des sauts faible → amplitude élevée

Si l'on considère l'apparition d'effet PLC, les chutes de force rendent compte d'événements d'épinglage / désépinglage des dislocations par des atomes de cuivre en soluté.

Cependant, il est possible que ce type d'instabilité provienne également des bandes de Piober-Lüders. Ce type de déformation est caractérisé par la présence d'un seul crochet de contrainte suivi d'un palier de déformation, visibles sur les courbes contrainte-déformation (voir Figure I-26). Les bandes de Piobert-Lüders ne traversent qu'une fois l'échantillon et la propagation de ces bandes se déroule à contrainte d'écoulement constante. Or la prise en compte d'un nouveau volume lors de l'essai de nanoindentation, pourrait justifier l'apparition répétée de chute de force.

En effet, il faut prendre en considération la spécificité de la nanoindentation : lorsque l'indenteur s'enfonce dans l'échantillon, le volume de travail sollicité augmente (Cf. Figure V-25). Les champs de contrainte sont non-uniformes, le nouveau volume de travail est soumis à moins de contrainte. Il faut imposer une force plus élevée pour continuer le mouvement de l'indenteur. Ce phénomène permet d'expliquer la recharge au niveau de la courbe force-déplacement et la valeur de la force qui est moindre. L'amplitude du saut de force dépend du taux de déformation du matériau.

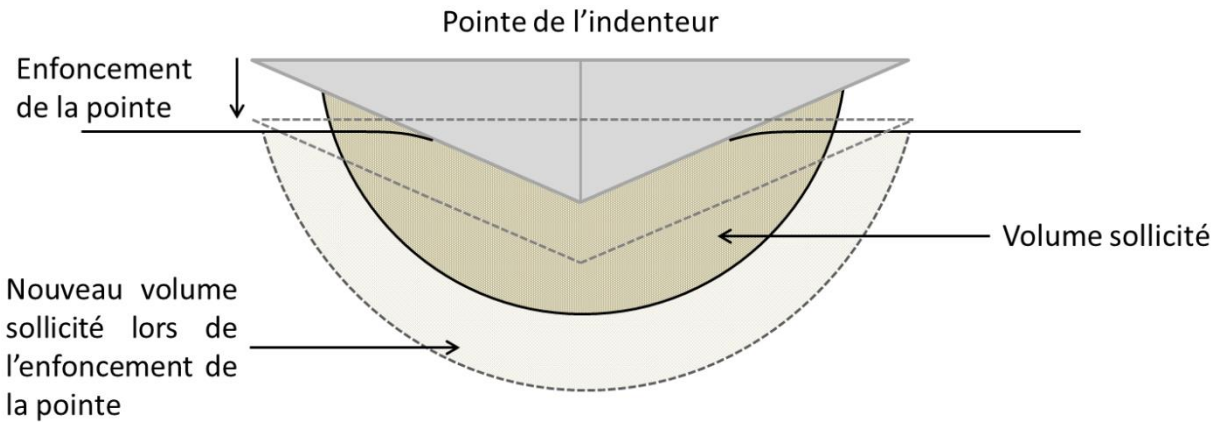


Figure V-25 : Schématisation de l'augmentation du volume sollicité lors de l'enfoncement de la pointe de l'indenteur.

A l'échelle macroscopique, l'effet PLC ou les bandes dePiober-Lüders se caractérisent par la formation de bande à la surface de l'échantillon. Cependant, l'observation de l'échantillon indenté au microscope à force atomique ne fait état que de la présence de ligne de glissement à la surface de la matrice. Afin de mieux appréhender le comportement de ces instabilités de déformation plastique en nanoindentation, il s'avère nécessaire de différencier les essais à l'échelle macroscopique et submicrométrique. En effet, dans le cas d'un essai de traction uniaxiale, par exemple, il faut raisonner en termes de déformation et prendre en considération une section constante. L'effet PLC ou les bandes de Piober-Lüders résultent du comportement global d'une densité moyenne de dislocations, ce qui conduit à des effets d'avalanches pour les dislocations et une déformation importante : formation des bandes PLC ou de Piober-Lüders. Dans le cas d'essais en nanoindentation, c'est un raisonnement en déplacement qui est appliqué. Contrairement aux essais macroscopiques, il n'y a pas l'historique de déformation car la section qui est déformée évolue au cours de l'essai de nanoindentation. De plus, il faut prendre en considération que ce sont des sauts nanométriques donc la densité de dislocations sollicitée lors de l'indentation et le mouvement collectif de ces dislocations ne sont pas aussi élevés qu'à l'échelle macroscopique. Ce phénomène conduit à la formation de bande de glissement mais il n'y a pas de signature de bandes PLC ou de Piober-Lüders.

Des analyses supplémentaires sont nécessaires afin de déterminer plus clairement l'origine de ces instabilités plastiques.

V.1.5. Conclusion

Une caractérisation des propriétés mécaniques de composites Al/ω-Al-Cu-Fe synthétisés par SPS a été réalisée à l'échelle macroscopique et submicrométrique.

Des essais de compression en température ont été effectués, pour la première fois, pour des composites SPS. Dans un premier temps, la comparaison des propriétés mécaniques des composites dits « optimisés » et « non-optimisés » ont montré que la distribution non-homogène du renfort et la présence de porosités affectent négativement les propriétés mécaniques du composite « non-optimisé ».

La dépendance en température de la contrainte $\sigma_{0,2\%}$, pour les composites « optimisés », suggère que les mécanismes de déformation sont thermiquement activés avec un changement de mécanisme entre 473 K et 523 K. L'étude en température de la contrainte $\sigma_{0,2\%}$ et de la microstructure des composites « optimisés » ont montré que la déformation de ces derniers est dominée, à la fois par la microstructure de la matrice à basse température ($T \leq 473$ K) et par des effets composites (transfert de charge) à haute température ($T > 473$ K). La transition entre ces régimes de températures est également attribuée au changement de mécanisme de plasticité avec le passage d'un mouvement des dislocations par glissement à de la montée.

L'influence de la microstructure a été mis en évidence en comparant les propriétés mécaniques des composites SPS et CIC. L'écart de contrainte observé est attribué à une différence de la microstructure (différents précipités au sein de la matrice).

Les essais de nanoindentation ont mis en évidence des instabilités de déformation plastique (chutes de force répétitives) au sein de la matrice Al. L'analyse des chutes de force a montré une dépendance de l'amplitude et de la fréquence à la concentration en cuivre. Ces instabilités peuvent être dues à des interactions dynamiques entre les dislocations mobiles et les solutés : effet PLC ou bandes de Piober-Lüders. Cependant, les analyses réalisées ne permettent pas de conclure quant au mécanisme qui intervient, des analyses supplémentaires sont donc nécessaires.

A noter que ce type d'instabilités n'a pas été observé lors des essais de compression, ce qui peut s'expliquer par le fait que les échelles d'observation (macroscopique et submicrométrique) sont différentes. De plus, les conditions d'observations telles que la vitesse de déformation ou les températures ne sont peut-être pas adaptées.

Conclusion générale

Le premier objectif de ce travail était la détermination des paramètres de synthèse en vue de l'élaboration de composites Al/ω-Al-Cu-Fe par frittage flash SPS. Des échantillons modèles à interface plane ont également été synthétisés afin d'étudier la transformation de phase de i-Al-Cu-Fe en ω-Al-Cu-Fe. Finalement, une caractérisation multi-échelle des propriétés mécaniques (compression et nanoindentation) a été réalisée, apportant ainsi des éléments de réponses quant à la compréhension des mécanismes intervenant lors de la déformation de composites Al/ω-Al-Cu-Fe. Les principaux résultats obtenus durant cette étude sont rappelés, suivis de quelques perspectives.

Des échantillons composites Al/ω-Al-Cu-Fe ont été synthétisés par SPS à partir d'un mélange de poudre d'aluminium et de particules i-Al-Cu-Fe, de granulométrie contrôlée. Les différentes campagnes d'élaboration ont permis de déterminer les paramètres « procédés SPS » qui conduisent à une transformation de phase i-Al-Cu-Fe en ω-Al-Cu-Fe totale. La température, la pression et le temps de maintien ont ainsi été fixés à 823 K, 100 MPa et 2 min, respectivement.
De plus, l'optimisation des paramètres « poudres », par le resserrement de la distribution en taille des particules (< 25 µm) de renfort et l'optimisation du mélange des poudres (mélange au Turbula), ont permis d'élaborer un composite dense (~99 %) présentant un renfort distribué de manière homogène dans la matrice.

La transformation de phase i-Al-Cu-Fe en ω-Al-Cu-Fe a été étudiée à l'aide d'échantillons modèles à interface plane Al/i-Al-Cu-Fe synthétisés par SPS à 823 K / 100 - 50 MPa / 2 - 15 min et de composites Al/ω-Al-Cu-Fe partiellement transformés. Deux scénarios différents sont proposés afin d'expliquer la formation de la phase ω-Al-Cu-Fe. Tout d'abord, la transformation de i-Al-Cu-Fe en ω-Al-Cu-Fe résulte directement d'un enrichissement en aluminium et d'un appauvrissement en cuivre des particules i-Al-Cu-Fe, conformément aux travaux de Laplanche [18]. Le deuxième scénario repose sur la formation de la phase ω-Al-Cu-Fe à partir des phases intermédiaires AlCu et θ-Al_2Cu et/ou de l'eutectique (α-Al + θ-Al_2Cu), au sein des porosités initialement présentes. Cette étude a également mis en évidence que le processus de synthèse (avec ou sans pression) et donc la microstructure initiale (présence ou non de porosités) affectent les différentes séquences de la transformation de phase i-Al-Cu-Fe vers ω-Al-Cu-Fe. Le matériau final est un composite Al/ω-Al-Cu-Fe dense, avec une matrice Al enrichie en cuivre.

Pour la première fois, les propriétés mécaniques des composites SPS ont été caractérisées à partir d'essais de compression en température. La dépendance en température de $\sigma_{0,2\%}$, suggère que les mécanismes de déformation sont thermiquement activés avec un changement de mécanisme entre 473 K et 523 K. Les observations MET ont mis en évidence la présence de précipités θ'-Al_2Cu au sein de la matrice Al, qui est le lieu de la plasticité du composite. Les observations in-situ et post-mortem ont montré que cette microstructure évolue lors du traitement thermique : la taille de ces précipités augmente et la fraction surfacique diminue lorsque la température croît. La transition entre les régimes basse et haute températures est attribuée à l'évolution microstructurale et ainsi qu'au changement de mécanisme de plasticité avec le passage d'un mouvement des dislocations par glissement à de la montée.

La comparaison des propriétés mécaniques des composites SPS et CIC a montré que la contrainte d'écoulement est supérieure dans le cas des composites SPS, et ce à toutes les températures. Cet écart de contrainte est attribué à une différence de la microstructure de la matrice (différents précipités au sein de la matrice). Cependant, contrairement aux composites CIC, les composites SPS présentent une ductilité plus faible et une dispersion des valeurs de contrainte.

Ces résultats ouvrent différentes perspectives concernant l'étude de la microstructure et des propriétés mécaniques. Tout d'abord, au sein des composites Al/ω-Al-Cu-Fe, il a été montré que la phase ω-Al-Cu-Fe peut adopter une morphologie très « géométrique » sous forme de lamelles, ce qui suggère l'existence de relations d'orientation entre la phase « simple » Al et la phase « complexe » ω-Al-Cu-Fe. Des analyses de cartographie automatique des orientations cristallographiques au MET (ACOM-ASTAR) ont déjà été réalisées et seront analysées prochainement.

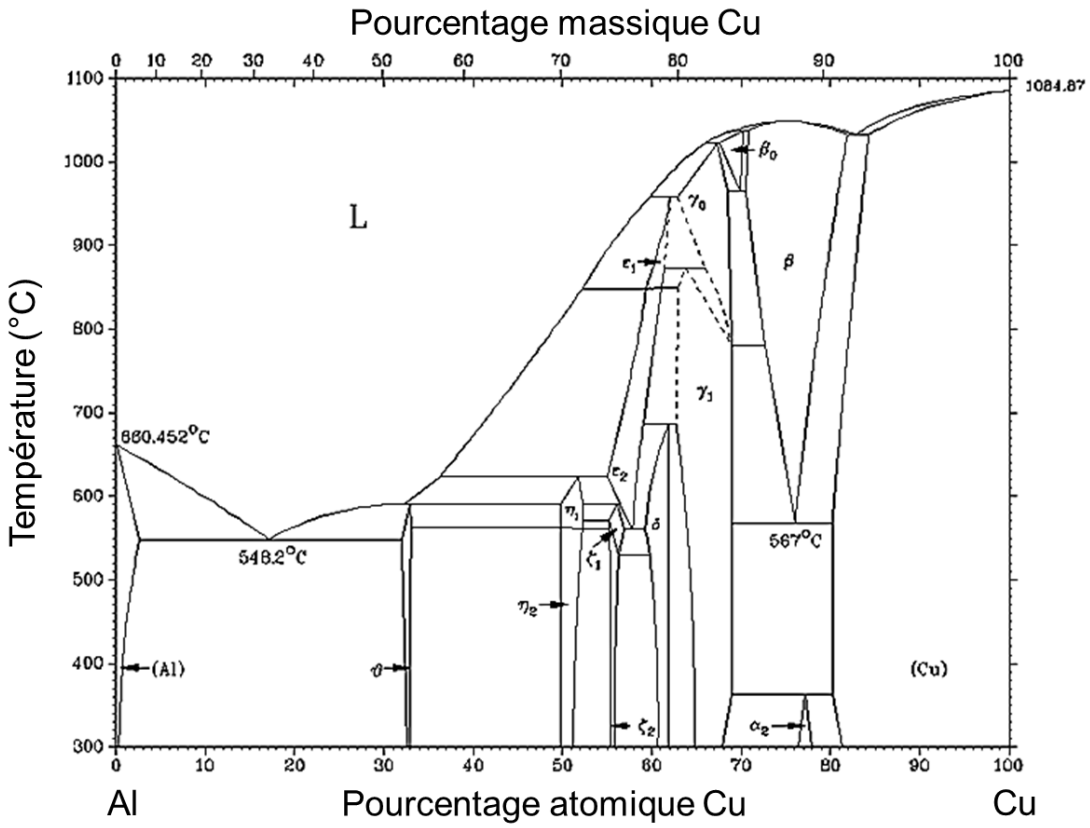
Plus généralement, le rôle des interfaces dans ce type de composite est primordial, aussi bien pour le transfert de charge que pour le renforcement indirect. Les échantillons modèles, avec une zone interfaciale plane dense et rectiligne, présentent à la fois des interfaces Al/ω-Al-Cu-Fe et ω-Al-Cu-Fe/i-Al-Cu-Fe. Il serait intéressant d'étudier la tenue de ces zones interfaciales à différentes échelles. Dans un premier temps, des essais de cisaillement à l'échelle macroscopique permettront d'étudier le comportement global et de caractériser la résistance mécanique de ces zones interfaciales. A l'échelle microscopique, des essais de compression de micro-piliers à l'interface de composites Al/Al-Cu-Fe pour différentes configurations (phases, orientations) pourront être envisagés. Les champs de déplacement des différentes phases pourront être déterminés à différentes échelles.

Des essais de nanoindentation ont été réalisés au sein de la matrice Al. Lors de ces essais, les courbes force-déplacement mettent en évidence des instabilités de déformation plastique caractérisées par des chutes de force répétitives. Le gradient de dureté a été corrélé à un gradient de concentration en cuivre. L'analyse des chutes de force a montré que leur amplitude et leur fréquence dépendent de la concentration en cuivre. Ces instabilités suggèrent des interactions dynamiques entre les dislocations mobiles et les solutés (PLC ou Lüders). Afin de confirmer la présence d'effets PLC au sein de la matrice Al, plusieurs essais peuvent être envisagés. Dans notre étude, les instabilités plastiques ont été assimilées à des effets PLC. Cependant, la zone sondée évolue au cours de l'essai de nanoindentation, contrairement à un essai macroscopique (par exemple en traction), ce qui pourrait expliquer que des bandes de déformation PLC n'aient pas été observées. Il serait alors pertinent d'analyser les zones plastiques au MET ainsi que la configuration des dislocations sous les empreintes (ancrage des dislocations, champs de contrainte autour des dislocations, …). Pour cela, quatre lames minces ont été préparées par FIB au sein des zones indentées, pour différentes valeurs de concentration en cuivre. Il serait également nécessaire d'étudier un système modèle pour lequel l'effet PLC est bien établi et connu afin d'identifier l'effet PLC en nanoindentation. Des essais préliminaires ont ainsi été réalisés sur les alliages Al-Mg. Finalement, à partir des résultats obtenus sur ce système modèle, la réalisation d'une étude sur la quantification des effets PLC (amplitude, fréquence) en fonction de la concentration en solutés, pourra être envisagée. Pour ce faire, les échantillons modèles à interface plane, présentant une diffusion du cuivre dans la matrice, pourront être utilisés.

Annexe 1 : Propriétés physico-chimiques de l'aluminium et des phases i-Al-Cu-Fe et ω-Al-Cu-Fe

	Propriétés physico-chimiques		
	Al	**Phase ω-Al-Cu-Fe**	**Phase i-Al-Cu-Fe**
Masse volumique ($g.cm^{-3}$)	2,69	4,14	4,51
Température de fusion (K)	660	-	-
Température péritectique (K)	-	1 023 [18]	1 150 [18]
Coefficient dilatation thermique (K^{-1})	23.10-6	15,4.10-6 [24]	12,6.10-6 [24]
Résistivité électrique à T_{amb} (μΩ.cm)	2,8	6 [11]	2 000 - 3 000 [11]
Dureté Vickers (GPa)	167.10-3	7 [16]	8 [20]
Module d'Young (T_{amb})	62	168 [24]	182 [24]

Annexe 2 : Diagramme de phase du système binaire Al-Cu



Phase	Système cristallin	Température de formation ou de décomposition (K)
Al	Cubique	933
Cu	Cubique	1357
θ-Al_2Cu	Quadratique	864
η_2-AlCu	Monoclinique	863
ξ_2-Al_3Cu_4	Orthorhombique	843
δ-Al_2Cu_3	Rhomboédrique	959
γ_2-Al_4Cu_9	Cubique	1146

Références

[1] A.P. Tsai, K. Aoki, A. Inoue, T. Masumoto, Synthesis of stable quasicrystalline particle-dispersed Al base composite alloys, J. Mater. Res. 8 (1993) 5–7. doi:10.1557/JMR.1993.0005.

[2] S.D. Kaloshkin, V.V. Tcherdyntsev, A.I. Laptev, A.A. Stepashkin, E.A. Afonina, A.L. Pomadchik, V.I. Bugakov, Structure and mechanical properties of mechanically alloyed Al/Al-Cu-Fe composites, J. Mater. Sci. 39 (2004) 5399–5402. doi:10.1023/B:JMSC.0000039253.28721.3f.

[3] S. Kenzari, P. Weisbecker, M. Curulla, G. Geandier, V. Fournee, J.M. Dubois, Formation and properties of Al composites reinforced by quasicrystalline AlCuFeB particles, Philos. Mag. 88 (2008) 755–766. doi:10.1080/14786430801955253.

[4] T. El Kabir, A. Joulain, V. Gauthier, S. Dubois, J. Bonneville, D. Bertheau, Hot isostatic pressing synthesis and mechanical properties of Al/Al–Cu–Fe composite materials, J. Mater. Res. 23 (2008) 904–910. doi:10.1557/jmr.2008.0111.

[5] G. Laplanche, A. Joulain, J. Bonneville, V. Gauthier-Brunet, S. Dubois, T. El Kabir, Microstructural and mechanical study of an Al matrix composite reinforced by Al-Cu-Fe icosahedral particles, J. Mater. Res. 25 (2010) 957–965. doi:10.1557/JMR.2010.0118.

[6] G. Laplanche, J. Bonneville, A. Joulain, V. Gauthier-Brunet, S. Dubois, Mechanical properties of Al–Cu–Fe quasicrystalline and crystalline phases: An analogy, Intermetallics. 50 (2014) 54–58. doi:10.1016/j.intermet.2014.02.004.

[7] F. Faudot, The Al-Cu-Fe phase diagram : aluminium-rich corner and icosahedral region, Ann. Chim. 18 (1993) 445–456.

[8] G. Phragmén, On the phases occurring in alloys of aluminium with copper, magnesium, manganese, iron, and silicon, J. Inst. Met. 77 (1950) 489–551.

[9] M.G. Bown, P.J. Brown, The structure of $FeCu_2Al_7$ and *T* (CoCuAl), Acta Crystallogr. 9 (1956) 911–914. doi:10.1107/S0365110X56002576.

[10] T. Grenet, F. Giroud, C. Loubet, J.L. Joulaud, M. Capitan, Real time study of the quasicrystal formation in annealed Al-Cu-Fe metallic multilayers, Mater. Sci. Eng. A. 294–296 (2000) 838–841. doi:10.1016/S0921-5093(00)01054-6.

[11] F. Haidara, B. Duployer, D. Mangelinck, M.-C. Record, In-situ investigation of the icosahedral Al–Cu–Fe phase formation in thin films, J. Alloys Compd. 534 (2012) 47–51. doi:10.1016/j.jallcom.2012.04.036.

[12] P. Barua, B.S. Murty, V. Srinivas, Mechanical alloying of Al–Cu–Fe elemental powders, Mater. Sci. Eng. A. 304–306 (2001) 863–866. doi:10.1016/S0921-5093(00)01621-X.

[13] F. Schurack, J. Eckert, L. Schultz, Synthesis and mechanical properties of mechanically alloyed Al-Cu-Fe quasicrystalline composites, Philos. Mag. 83 (2003) 1287–1305. doi:10.1080/1478643031000076613.

[14] G. Rosas, J. Reyes-Gasga, R. Pérez, Morphological characteristics of the rapidly and conventionally solidified alloys of the AlCuFe system, Mater. Charact. 58 (2007) 765–770. doi:10.1016/j.matchar.2006.12.004.

[15] M.A. Suarez, I.A. Figueroa, G. Gonzalez, G.A. Lara-Rodriguez, O. Novelo-Peralta, I. Alfonso, I.J. Calvo, Production of Al–Cu–Fe metallic foams without foaming agents or space holders, J. Alloys Compd. 585 (2014) 318–324. doi:10.1016/j.jallcom.2013.08.015.

[16] G. Laplanche, A. Joulain, J. Bonneville, V. Gauthier-Brunet, S. Dubois, Synthesis and brittle-to-ductile transition of the ω-Al0.7Cu0.2Fe0.1 tetragonal phase, Mater. Sci. Eng. A. 527 (2010) 4515–4518. doi:10.1016/j.msea.2010.02.049.

[17] G. Laplanche, P. Gadaud, J. Bonneville, A. Joulain, V. Gauthier-Brunet, S. Dubois, F. Jay, Spark plasma sintering synthesis and mechanical spectroscopy of the ω-Al0.7Cu0.2Fe0.1 phase, J. Mater. Sci. 47 (2011) 169–175. doi:10.1007/s10853-011-5784-1.

[18] G. Laplanche, Guillaume Laplanche - Synthèse et caractérisation de la phase ω-Al7Cu2Fe et de composites Al/Al-Cu-Fe, Poitiers, 2011. http://theses.univ-poitiers.fr/notice/view/21922 (accessed January 31, 2017).
[19] G. Laplanche, J. Bonneville, A. Joulain, V. Gauthier-Brunet, S. Dubois, Plasticity of the ω-Al7Cu2Fe phase, J. Alloys Compd. 665 (2016) 144–151. doi:10.1016/j.jallcom.2015.12.161.
[20] E. Giacometti, N. Baluc, J. Bonneville, J. Rabier, Microindentation of Al-Cu-Fe icosahedral quasicrystal, Scr. Mater. 41 (1999) 989–994. doi:10.1016/S1359-6462(99)00242-0.
[21] K. Tanaka, Y. Mitara, M. Koiwa, Elastic constants of Al-based icosahedral quasicrystals, Philos. Mag. A. 73 (1996) 1715–1723. doi:10.1080/01418619608243008.
[22] E. Giacometti, N. Baluc, J. Bonneville, Activation parameters of plastic flow in icosahedral Al-Cu-Fe, Philos. Mag. Lett. 79 (1999) 1–7. doi:10.1080/095008399177598.
[23] E. Giacometti, N. Baluc, J. Bonneville, Plastic Deformation Of AI-Cu-Fe Icosahedral Quasicrystals, MRS Online Proc. Libr. Arch. 553 (1998). doi:10.1557/PROC-553-295.
[24] F. Tang, I.E. Anderson, T. Gnaupel-Herold, H. Prask, Pure Al matrix composites produced by vacuum hot pressing: tensile properties and strengthening mechanisms, Mater. Sci. Eng. A. 383 (2004) 362–373. doi:10.1016/j.msea.2004.05.081.
[25] E. Giacometti, Contribution à l'étude des propriétés mécaniques de l'alliage quasicristallin icosaédrique Al-Cu-Fe, 1999. https://infoscience.epfl.ch/record/32564 (accessed February 3, 2017).
[26] M. Taya, R.J. Arsenault, Metal Matrix Composites: Thermomechanical Behavior, Elsevier, 2016.
[27] T.W. Clyne, P.J. Withers, An Introduction to Metal Matrix Composites, Cambridge University Press, 1995.
[28] N. Chawla, K.K. Chawla, Metal Matrix Composites, Springer, 2006.
[29] B. Ralph, H.C. Yuen, W.B. Lee, The processing of metal matrix composites — an overview, J. Mater. Process. Technol. 63 (1997) 339–353. doi:10.1016/S0924-0136(96)02645-3.
[30] A. Evans, C. SanMarchi, A. Mortensen, Metal Matrix Composites in Industry: An Introduction and a Survey, Kluwer Academic, 2003. https://infoscience.epfl.ch/record/130824?of=HB (accessed February 1, 2017).
[31] D.B. Miracle, Metal matrix composites – From science to technological significance, Compos. Sci. Technol. 65 (2005) 2526–2540. doi:10.1016/j.compscitech.2005.05.027.
[32] T. El Kabir, Etude de matériaux composites à matrice base Al renforcés par des particules Al-Cu-Fe, Thèse de doctorat, Université de Poitiers. UFR des sciences fondamentales et appliquées, n.d.
[33] P. Donnadieu, S. Benrhaiem, C. Tassin, F. Volpi, J.-J. Blandin, Preparation, microstructure and properties of magnesium-γMg17Al12 complex metallic alloy in situ composites, J. Alloys Compd. 702 (2017) 626–635. doi:10.1016/j.jallcom.2017.01.294.
[34] R.J. Arsenault, N. Shi, Dislocation generation due to differences between the coefficients of thermal expansion, Mater. Sci. Eng. 81 (1986) 175–187. doi:10.1016/0025-5416(86)90261-2.
[35] Joints de grains et plasticité cristalline PRIESTER Louisette, Libr. Lavoisier. (n.d.). http://www.lavoisier.fr/livre/physique/joints-de-grains-et-plasticite-cristalline/priester/descriptif-9782746225527 (accessed March 8, 2017).
[36] B. Dubost, P. Sainfort, Durcissement par precipitation des alliages d'aluminium, Ed. Techniques Ingénieur, 1991. http://www.techniques-ingenieur.fr/base-documentaire/materiaux-th11/methodes-de-caracterisation-et-d-analyse-des-metaux-et-alliages-42532210/durcissement-par-precipitation-des-alliages-d-aluminium-m240/.
[37] D. Hull, D.J. Bacon, 10 - Strength of Crystalline Solids, in: Introd. Dislocations Fourth Ed., Butterworth-Heinemann, Oxford, 2001: pp. 193–236. doi:10.1016/B978-075064681-9/50010-9.
[38] J.L. Strudel, Dislocations et deformation plastique : Ecole d'été d'Yravals, Les Éditions de physique, 1979.
[39] L.J. Cuddy, W.C. Leslie, Some aspects of serrated yielding in substitutional solid solutions of iron, Acta Metall. 20 (1972) 1157–1167. doi:10.1016/0001-6160(72)90164-2.

[40] P. Rodriguez, Serrated plastic flow, Bull. Mater. Sci. 6 (1984) 653–663. doi:10.1007/BF02743993.
[41] J. Vergnol, J. Caisso, R. Jacquesson, Relationship between secondary creep of Al-Mg alloys and their mechanical instability, Memoires Sci. Rev. Métallurgie. 67 (1970) 647.
[42] B.J. Brindley, P.J. Worthington, Yield-point phenomena in substitutional alloys, Metall. Rev. 15 (1970) 101–114. doi:10.1179/mtlr.1970.15.1.101.
[43] K. Chihab, Y. Estrin, L.P. Kubin, J. Vergnol, The kinetics of the Portevin-Le Chatelier bands in an Al-5at%Mg alloy, Scr. Metall. 21 (1987) 203–208. doi:10.1016/0036-9748(87)90435-2.
[44] L.P. Kubin, Y. Estrin, A nonlinear aspect of crystal plasticity : the Portevin-Le Chatelier effect, J. Phys. 47 (1986) 497–505. doi:10.1051/jphys:01986004703049700.
[45] P. Penning, Mathematics of the portevin-le chatelier effect, Acta Metall. 20 (1972) 1169–1175. doi:10.1016/0001-6160(72)90165-4.
[46] K. Bouabdallah, Caractérisation de l'effet Portevin-Le Chatelier dans les alliages aluminium magnésium - Apport des techniques d'analyse d'images, phdthesis, Université de Savoie, 2006. https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00193176/document (accessed March 1, 2017).
[47] F. Ali, S. Scudino, M.S. Anwar, R.N. Shahid, V.C. Srivastava, V. Uhlenwinkel, M. Stoica, G. Vaughan, J. Eckert, Al-based metal matrix composites reinforced with Al–Cu–Fe quasicrystalline particles: Strengthening by interfacial reaction, J. Alloys Compd. 607 (2014) 274–279. doi:10.1016/j.jallcom.2014.04.086.
[48] L. Lityńska-Dobrzyńska, M. Mitka, A. Góral, K. Stan-Głowińska, J. Dutkiewicz, Microstructure and mechanical properties of aluminium matrix composites reinforced by Al62Cu25.5Fe12.5 melt spun ribbon, Mater. Charact. 117 (2016) 127–133. doi:10.1016/j.matchar.2016.04.025.
[49] F. Tang, H. Meeks, J.E. Spowart, T. Gnaeupel-Herold, H. Prask, I.E. Anderson, Consolidation effects on tensile properties of an elemental Al matrix composite, Mater. Sci. Eng. A. 386 (2004) 194–204. doi:10.1016/j.msea.2004.07.040.
[50] S. Kenzari, Elaboration et Caractérisation de Nano-Composites Métal-Intermétalliques Complexes, PhD thesis, Vandoeuvre-les-Nancy, INPL, 2006. http://www.theses.fr/2006INPL088N (accessed June 22, 2016).
[51] J. Bonneville, G. Laplanche, A. Joulain, V. Gauthier-Brunet, S. Dubois, Al-matrix composite materials reinforced by Al-Cu-Fe particles, J. Phys. Conf. Ser. 240 (2010) 012013. doi:10.1088/1742-6596/240/1/012013.
[52] J. Ayache, L. Beaunier, J. Boumendil, G. Ehret, D. Laub, Sample Preparation Handbook for Transmission Electron Microscopy: Techniques, Springer Science & Business Media, 2010.
[53] C. Tromas, Cours de nanoindentation - Master IMHP 2e année, (n.d.).
[54] J. Woirgard, J.-C. Dargenton, An alternative method for penetration depth determination in nanoindentation measurements, J. Mater. Res. 12 (1997) 2455–2458. doi:10.1557/JMR.1997.0324.
[55] T. Ishimasa, Y. Fukano, M. Tsuchimori, Quasicrystal structure in Al–Cu–Fe annealed alloy, Philos. Mag. Lett. 58 (1988) 157–165. doi:10.1080/09500838808214748.
[56] M. Texier, Microstructures et mécanismes de déformation des alliages quasicristallins Al-Cu-Fe et Al-Pd-Mn déformés aux hautes et basses températures, Université de Poitiers. UFR des sciences fondamentales et appliquées, 2004. http://www.theses.fr/2004POIT2268 (accessed February 7, 2017).
[57] A. Joseph, V. Gauthier-Brunet, J.P. Monchoux, A. Joulain, F. Brisset, C. Tromas, J. Douin, F. Pettinari, J. Bonneville, S. Dubois, Formation processes of the ω-Al70Cu20Fe10 phase synthesized by SPS technique, J. Alloys Compd. 699 (2017) 1157–1165. doi:10.1016/j.jallcom.2016.12.221.
[58] T.B. Massalski, Binary Alloy Phase Diagrams, Asm International, Ohio, 1990.
[59] S.-W. Chen, C.-M. Chen, W.-C. Liu, Electric current effects upon the Sn/Cu and Sn/Ni interfacial reactions, J. Electron. Mater. 27 (1998) 1193–1199. doi:10.1007/s11664-998-0068-5.
[60] J. Zhao, J.E. Garay, U. Anselmi-Tamburini, Z.A. Munir, Directional electromigration-enhanced interdiffususion in the Cu–Ni system, J. Appl. Phys. 102 (2007) 114902. doi:10.1063/1.2809444.

[61] A.-P. Tsai, A. Inoue, T. Masumoto, A Stable Quasicrystal in Al-Cu-Fe System, Jpn. J. Appl. Phys. 26 (1987) L1505. doi:10.1143/JJAP.26.L1505.
[62] T. El Kabir, A. Joulain, V. Gauthier, S. Dubois, Hot isostatic pressing synthesis and mechanical properties of Al/Al-Cu-Fe composite materials, (n.d.).
[63] D.S. Williams, R.A. Rapp, J.P. Hirth, Multilayer diffusional growth in silver-zinc alloys, Metall. Trans. A. 12 (1981) 639–652. doi:10.1007/BF02649739.
[64] M.V. Lancker, Metallurgy of Aluminium Alloys, Chapman & Hall, 1967.
[65] O.D. Sherby, J.L. Lytton, J.E. Dorn, Activation energies for creep of high-purity aluminum, Acta Metall. 5 (1957) 219–227. doi:10.1016/0001-6160(57)90169-4.
[66] M. Carrard, Etude du glissement (001) dans l'aluminium et de son importance en fluage, Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne - EPFL, 1985. https://infoscience.epfl.ch/record/31075 (accessed April 10, 2017).
[67] L.P. Kubin, K. Chihab, Y. Estrin, The rate dependence of the portevin-Le chatelier effect, Acta Metall. 36 (1988) 2707–2718. doi:10.1016/0001-6160(88)90117-4.
[68] E. Pink, The effect of precipitates on characteristics of serrated flow in AlZn5Mg1, Acta Metall. 37 (1989) 1773–1781. doi:10.1016/0001-6160(89)90062-X.
[69] G. Bérces, N.Q. Chinh, A. Juhász, J. Lendvai, Kinematic analysis of plastic instabilities occurring in microhardness tests, Acta Mater. 46 (1998) 2029–2037. doi:10.1016/S1359-6454(97)00428-X.
[70] G. Bérces, N.Q. Chinh, A. Juháasz, J. Lendvai, Occurrence of plastic instabilities in dynamic microhardness testing, J. Mater. Res. 13 (1998) 1411–1413. doi:10.1557/JMR.1998.0199.
[71] N.Q. Chinh, G. Horváth, Z. Kovács, J. Lendvai, Characterization of plastic instability steps occurring in depth-sensing indentation tests, Mater. Sci. Eng. A. 324 (2002) 219–224. doi:10.1016/S0921-5093(01)01315-6.
[72] N.Q. Chinh, G. Horváth, Z. Kovács, A. Juhász, G. Bérces, J. Lendvai, Kinematic and dynamic characterization of plastic instabilities occurring in nano- and microindentation tests, Mater. Sci. Eng. A. 409 (2005) 100–107. doi:10.1016/j.msea.2005.04.057.
[73] G. Horváth, N.Q. Chinh, J. Gubicza, J. Lendvai, Plastic instabilities and dislocation densities during plastic deformation in Al–Mg alloys, Mater. Sci. Eng. A. 445–446 (2007) 186–192. doi:10.1016/j.msea.2006.09.019.
[74] D. Thevenet, M. Mliha-Touati, A. Zeghloul, The effect of precipitation on the Portevin-Le Chatelier effect in an Al–Zn–Mg–Cu alloy, Mater. Sci. Eng. A. 266 (1999) 175–182. doi:10.1016/S0921-5093(99)00029-5.

Microstructure et caractérisation mécanique multi-échelles des composites Al/ω-Al-Cu-Fe synthétisés par métallurgie des poudres

Résumé : Des matériaux composites à matrice Al renforcée par des particules d'alliage ω-Al_7Cu_2Fe ont été synthétisés par frittage flash à partir de poudre icosaédrique i-Al-Cu-Fe et de poudre d'aluminium. La transformation de phase de i-Al-Cu-Fe en ω-Al-Cu-Fe est étudiée à partir d'analyses d'échantillons modèles à interface plane. Les résultats montrent que la transformation de phase s'accompagne de la formation d'une phase liquide et de l'apparition de composés AlCu et Al_2Cu. Elle met en jeu la diffusion des trois éléments cuivre, aluminium et fer. Parallèlement, la matrice Al s'enrichit en cuivre. La microstructure complexe finale dépend de la porosité initiale.
Les composites Al/ω-Al-Cu-Fe ont été déformés par compression à vitesse imposée, entre 273 K et 823 K. L'évolution de la contrainte d'écoulement avec la température met en évidence deux régimes de déformation plastique. L'analyse microstructurale, par microscopie électronique en transmission, révèle la présence de précipités θ'-Al_2Cu dans la matrice Al. L'évolution de cette microstructure avec la température est discutée conjointement à l'évolution de la contrainte d'écoulement. La déformation plastique du composite se situant essentiellement dans la matrice, une caractérisation locale des propriétés mécaniques de cette matrice a été réalisée par nano-indentation. Les courbes force-déplacement montrent des instabilités de déformation plastique. Les analyses chimiques locales mettent en évidence la corrélation entre hétérogénéités chimiques et instabilités mécaniques. Ces résultats sont analysés dans le cadre d'interactions entre dislocations et solutés mobiles.
Mots-clés : Composites, plasticité, métallurgie des poudres, microstructure, transformation de phase

Microstructure and multi-scale mechanical characterization of Al/ω-Al-Cu-Fe composites synthesized by powder metallurgy

Abstract: Al/ω-Al_7Cu_2Fe composites were synthesized by spark plasma sintering from initial icosahedral Al-Cu-Fe and Al powders. The i- to ω-Al-Cu-Fe phase transformation is studied from model samples with planar Al/i-Al-Cu-Fe initial interface. The phase transformation occurs in solid and liquid states and reveals the presence of AlCu and Al_2Cu intermediate phases. The phase transformation involves Cu, Fe and Al diffusion and the Al matrix is enriched in Cu. The initial porosities play a key role in the final complex microstructure.
Compression tests were performed on Al/ω-Al_7Cu_2Fe composites at constant strain-rate in the temperature range 293-823 K. The evolution of the flow stress with temperature reveals two deformation regimes. The observations performed by transmission electron microscopy show that θ'-Al_2Cu precipitation occurs in the Al matrix during the synthesis. The evolution of the matrix microstructure with temperature is analysed and discussed together with the evolution of the flow stress. As the plastic deformation takes place in the ductile Al matrix, local mechanical caracterisation is performed in the matrix using nano-indentation tests. The load-displacement curves show serrated behavior. Local chemical analyses demonstrate correlation between chemical heterogeneities and mechanical instabilities. These results are analysed in the frame of interactions between dislocations and mobile solutes.
Key-words: Composites, plasticity, powder metallurgy, microstructure, phase transformation