

REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE

MINISTERE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR
ET DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE

UNIVERSITE MENTOURI DE CONSTANTINE
FACULTE DES SCIENCES EXACTES
DEPARTEMENT DE PHYSIQUE

N° d'ordre :

Série :

MEMOIRE

Présenté pour l'obtention du diplôme de Magister en Physique

Spécialité: Sciences des Matériaux

Option : Métallurgie

THEME

Etude Calorimétrique et Dilatométrique d'un alliage Al-Mg-Si

Par

Tahar ABID

Soutenu le// 2007

Devant le jury :

| | | | |
|--------------|---------------|-------|----------------------------------|
| Président : | R. BENSAHA | Prof. | Université Mentouri- Constantine |
| Rapporteur : | A. BOUBERTAKH | M.C | Université Mentouri- Constantine |
| Examineurs : | A. BOUDJADA | M.C | Université Mentouri- Constantine |
| | M. BENABDOUN | M.C | Université Mentouri- Constantine |
| | A. KARAALI | M.C | Université Mentouri- Constantine |

“ The end will begin when the seekers of knowledge become
satisfied with their own achievements ”

Extrait du Nobel Prize Address by Ahmed Zewail
Stockholm, Sweden

REMERCIEMENTS

Ce travail de mémoire a été effectué au laboratoire de recherche Propriétés Thermodynamiques et Traitements de surfaces des matériaux de l'université Mentouri de Constantine.

Je tiens tout d'abord à remercier le Dr. Abdelhamid Boubertakh pour m'avoir accueilli, conseillé et encadré tout au long de ce travail au sein du laboratoire.

Un grand merci aussi au doctorant Youcef Aouabdia pour m'avoir aidé avec constance et efficacité tout au long de mon séjour au laboratoire.

Je remercie vivement le Pr. Rabah Bensaha, professeur à l'université de Constantine pour avoir accepté de présider le jury de soutenance et pour l'intérêt qu'il a porté à mon travail.

Que le Dr. A. Boudjada, le Dr. M. Benabdoun et le Dr. A. Karaali, tous trois maîtres de conférences à l'université de Constantine, trouvent ici l'expression de ma sincère gratitude pour avoir accepté d'être les examinateurs de ce mémoire.

Je voudrais aussi témoigner ma gratitude à mes collègues, A. Bouchahem, pour son aide ininterrompu et avec qui collaborer a toujours été un réel plaisir et H. Bouhlias - Laboratoire défauts et structures, pour la microscopie électronique à balayage.

Ce travail n'aurait pas pu être réalisé sans l'aide de nombreuses personnes ingénieurs et techniciens, du laboratoire Chimie Métallurgie -TREFISOUD qui m'ont aidé pour accomplir certains essais et qui m'ont fait partager leurs connaissances.

Egalement, je tiens à témoigner ma gratitude particulièrement à K. Badri de l'institut Des sciences et technologies de Montréal pour sa contribution incessante à la recherche bibliographique en particulier, la littérature sur les alliages Al-Mg-Si .

Mes remerciements vont aussi à toutes les personnes du laboratoire que je n'ai pas pu citer, mais qui ont compté pour moi par leur aide et leur sympathie.

*A l'âme de mon père, qu'il repose en paix
A ma chère mère, à ma sœur et mes frères.....
A ma chère épouse, à Yasser et la belle Maissoun..*

SOMMAIRE

| | |
|--|----------|
| Introduction générale | 1 |
| Chapitre I Les alliages à base d'aluminium | |
| I.1 Aluminium : Principales Caractéristiques et Applications..... | 4 |
| I.2 Alliages d'aluminium industriels : | 5 |
| I.2.1 Principales séries : Désignation numérique..... | 5 |
| I.2.2 Alliages Al- Mg-Si (Cu), Série 6000..... | 7 |
| I.3 Les alliages Al- Mg-Si (Cu) et l'Industrie d'alutomobiles | 8 |
| I.4 Domaines de phases métastables des alliages Al-Mg-SiCu) | 9 |
| Chapitre II Influence de la précipitation sur les propriétés mécaniques des alliages Al-Mg-Si (Cu) | |
| II.1 Traitement de durcissement structural (par précipitation) | 13 |
| II.1.1 Principe..... | 13 |
| II.1.2 Phénomènes structuraux et Mécanismes de la précipitation..... | 13 |
| II.2 Evolution des propriétés mécaniques des alliages AlMgSi(Cu) | 16 |
| II.3 Précipitation et comportement mécanique des alliages de la série 6000. | 20 |
| Chapitre III Précipitation dans les alliages Al-Mg-Si(Cu) | |
| III.I Chronologie du phénomène de précipitation..... | 22 |
| III.2 Précipitation et dissolution à l'état solide | 23 |
| III.3 Germination et Croissance | 23 |
| Coalescence des précipités..... | 24 |
| III.4 Cinétique de précipitation | 25 |
| III.5.1 Séquence de précipitation dans les alliages Al-Mg-Si | 26 |
| III.5.1.1 Les amas de solutés et /ou zones G P..... | 26 |
| III.5.1.2 La phase durcissante β'' | 28 |
| III.5.1.3 La phase β' | 30 |
| III.5.1.4 La phase d'équilibre β - Mg_2Si | 31 |

| | |
|---|----|
| III.5.2 Influence des éléments d'alliage..... | 32 |
| III.5.3 Effet du rapport Mg/Si | 33 |
| III.5.4 Rôle des lacunes trempées et autres défauts | 34 |
| III.5.5 Vieillessement naturel..... | 35 |
| III.5.6 Effet de pré revenu..... | 36 |
| III. 5.7 Conclusion..... | 37 |

Chapitre IV Matériaux et Techniques expérimentales

| | |
|---|----|
| IV.1 Matériau étudié..... | 38 |
| IV.2 Gammes de traitements thermiques appliqués..... | 38 |
| IV.3 Techniques expérimentales utilisées..... | 40 |
| IV.3.1 Microscopie optique..... | 40 |
| IV.3.2 Microscopie Electronique à Balayage – MEB | 41 |
| IV.3.3 Calorimétrie Différentielle à Balayage – DSC | 43 |
| IV.3.4 Diffraction des rayons X (DRX)..... | 45 |
| IV.3.5 Micro dureté - Hv | 49 |
| IV.3.6 Dilatométrie | 50 |

Chapitre V Résultats et Discussions

| | |
|---|----|
| V.1 Microscopie optique | 52 |
| V.1.1 Etat brut..... | 52 |
| V.1.2 Etat homogénéisé | 52 |
| V.1.3 Etat vieilli..... | 53 |
| V.2 Microscopie Electronique à Balayage – MEB | 55 |
| V.3 Diffraction des Rayons X | 57 |
| V.4 Calorimétrie Différentielle (DSC) | 63 |
| V.4.1 Etablissement de la séquence de précipitation | 63 |
| V.4.2 Cinétique des réactions..... | 66 |
| V.4.2.1 Détermination de l' énergie d'activation..... | 66 |
| V.4.2.2 Méthode de KISSINGER-AKAHIRA- SUNOSE (KAS) | 67 |

| | |
|---|-----------|
| V.5 Micro durezza - Hv | 72 |
| V.5.1 Effet des vieillissements artificiels isothermes sur le durcissement de l'alliage .72 | |
| V.5.2 Effet de maturation a l'ambiante et l'excès de Si sur le durcissement.....76 | |
| V.5.3 Effet de prerevenu et maturation a l'ambiante.....78 | |
| V.6 Etude Dilatométrique | 80 |
| V.6.1 Etude de l'anisotropie du coefficient de dilatation thermique (α) | 87 |
| Conclusion générale..... | 90 |
| Perspectives..... | 91 |
| Références bibliographiques..... | 92 |

INTRODUCTION GENERALE

L'aluminium et ses alliages sont généralement reconnus tant pour leur faible densité comparativement aux aciers par exemple, que pour leurs propriétés mécaniques. Récemment, les besoins de l'industrie de véhicules dont le degré de sécurité et de confort est très élevé pour une consommation en carburant réduite font des alliages d'aluminium des candidats naturels pour la réalisation des ouvrants automobiles (capots, portières,...).

En effet, ils peuvent posséder des caractéristiques mécaniques acceptables pour un poids plus faible. Le marché de l'automobile représente donc pour les fabricants d'aluminium un marché important, dont les potentialités sont plus grandes encore [15].

En général, les alliages d'aluminium sont incontournables pour de multiples applications aussi bien dans le domaine de l'aéronautique que dans celui de l'industrie automobile. Les alliages de la série 6000 (Al-Mg-Si) font partie des alliages à durcissement structural ou trempants. Leur durcissement est obtenu par une suite de traitements thermiques : remise en solution solide, trempé puis revenu.

Dans les alliages d'aluminium de la série 6000, les principaux éléments d'alliage sont le magnésium et le silicium qui se combinent pour former le composé stoechiométrique Mg_2Si , durcissant dans l'état métastable. Ces alliages sont utilisés à l'état trempé mûri ou trempé revenu, ce qui leur confère de bonnes propriétés mécaniques. Les principaux constituants d'alliage, notamment dans les 6000, se répartissent en deux types de phases :

- Une matrice en solution solide d'Al de structure CFC contenant essentiellement de l'aluminium.
- Des précipités durcissants dont la morphologie et la distribution spatiale dépendent du traitement thermique subi par l'alliage.

Dans ce travail, nous avons étudié l'alliage pseudo ternaire Al-Mg-Si, code J564F de composition : 0,56% Si, 0,50 %Mg et 0,17% Fe (en % poids)

L'idée principale de notre travail est de mener une étude calorimétrique et dilatométrique afin d'appréhender les réactions de précipitation et de dissolution dans cet alliage, tout en attachant tant d'intérêt aux méthodes utilisées dans la détermination

de cinétique de réactions que pour une description générale de la cinétique des réactions de transformation.

Théoriquement une étude de la cinétique des transformations de phase qui mettent en jeu plusieurs processus comme la germination (homogène et hétérogène) et la croissance (gouvernée par la traversée de l'interface ou par la diffusion dans la phase mère) s'avère très difficile. En effet, aucune étude physique complète n'a pu être développée dans ce sens ; cependant certaines lois approximatives dans la mesure ou elles ne tiennent compte que de l'énergie d'activation apparente, sont couramment utilisées dans l'étude de la cinétique de précipitation parce qu'elles sont plus ou moins en accord avec des mesures expérimentales. L'objectif consiste ici à exploiter les cinétiques globales obtenues précédemment afin de pouvoir relier leurs paramètres descriptifs (n , E) aux mécanismes des transformations impliqués. Egalement, un grand intérêt a été procuré à l'étude de l'influence de maturation, du pre revenu et du vieillissement artificiel sur le durcissement de notre alliage. Une telle étude est justifiée par le rôle déterminant de ces paramètres quant à l'évolution des propriétés mécaniques de tel alliage.

Ce manuscrit est articulé autour de cinq chapitres :

Dans le chapitre I, quelques aspects généraux ayant trait à l'aluminium et à ses alliages sont rappelés. Dans un premier temps, les différentes séries d'alliages classées selon la nature des microstructures engendrées par les traitements thermiques et dans un second temps, les alliages Al-Mg-Si(Cu) ainsi leurs différentes phases en présence ont été exposées et recensées, en fin quelques applications des tôles en alliages d'aluminium dans l'industrie d'automobile sont évoquées.

Le chapitre II porte sur les méthodes d'amélioration et l'évolution des propriétés mécaniques des alliages 6000 au cours du traitement thermique de durcissement par précipitation. L'influence des paramètres d'un traitement de revenu sur les alliages Al-Mg-Si(Cu) de la série 6000 est ainsi quasiment développée.

Dans le chapitre III, nous décrirons les séquences de précipitation dans les alliages Al-Mg-Si(Cu). Les différents précipités intermédiaires métastables sont ainsi présentés.

Enfin, l'influence d'éléments d'alliage, des paramètres de traitement et le rôle des lacunes trempées sur la précipitation de ces alliages sont suffisamment élucidés.

Dans le chapitre IV, les différentes techniques expérimentales telles que DSC, dilatométrie, MEB, diffraction des rayons X, microdureté et microscopie optique sont introduites d'un point de vue théorique et expérimental.

Le chapitre V, traite les résultats obtenus et discussions. Finalement, nous terminons ce manuscrit par une conclusion générale qui résumera l'ensemble des résultats obtenus et tentera de suggérer des voies prometteuses à explorer pour l'avenir.

CHAPITRE I

LES ALLIAGES A BASE D'ALUMINIUM

I.1 L'ALUMINIUM : PRINCIPALES CARACTERISTIQUES ET APPLICATIONS

L'aluminium, métal semi-précieux peut être obtenu presque pur ($Al > 99,99\%$) par raffinage électrolytique suivant le procédé à trois couches en électrolyse ignée. Bien entendu la méthode de la zone fondue permet d'atteindre une pureté encore plus grande, meilleure que $99,999\%$ [1].

L'aluminium industriel contient généralement environ $0,5\%$ d'impuretés, dont les principales sont le fer et le silicium. Aujourd'hui, le procédé HEROULT conçu en 1986 en France est toujours la méthode fondamentale utilisée dans la production d'aluminium.

A la température ambiante, L'aluminium cristallise dans le système cubique à faces centrées, avec un paramètre de réseau de $0,404\text{ nm}$. Sa masse volumique est de $2,7\text{ g/m}^3$ d'où son utilisation sollicitée dans les domaines de la construction aéronautique et du transport.

La conductibilité électrique de l'aluminium dépend largement du degré de pureté. La conductivité est à 20°C : 62% de celle de cuivre [2].

L'aluminium s'est imposé dans le domaine électrique où il remplace les métaux traditionnels. Ses propriétés magnétiques sont celles d'un métal faiblement paramagnétiques, elles sont assez influencées par la teneur en fer.

Pour un titre de $99,97\%$ la susceptibilité magnétique est égale à $+0,645 \cdot 10^{-6}$. Cette propriété est utilisée pour la construction d'appareils de mesure amagnétiques, et en construction navale pour la défense contre les mines magnétiques (dragueurs) [2].

Grâce à la couche d'oxyde qui se forme en surface, les alliages d'aluminium résistent à la corrosion. Le potentiel de dissolution de l'aluminium a une grande importance, il reflète à la fois la grande activité chimique du métal, et son aptitude à l'autoprotection, la différence de potentiel entre l'Al nu et Al recouvert d'un film d'oxyde peut atteindre environ 1 volt [2].

L'aluminium et ses alliages sont utilisés dans les emballages alimentaires et souples, les tubes, les opercules, dans l'architecture, la décoration, etc..

Les propriétés mécaniques de l'aluminium non allié sont faibles. On peut toutefois améliorer ces propriétés par écrouissage, par addition d'éléments d'alliage avec traitements thermiques, selon les cas.

L'aluminium a une température de fusion relativement basse, d'environ 660°C, il en résulte une facilité de fusion qui présente un avantage certain pour les opérations de fonderie. L'aluminium est très ductile, on peut aisément le mettre en forme à l'état solide, par déformation.

I.2 ALLIAGES INDUSTRIELS D'ALUMINIUM

Les alliages industriels sont obtenus par introduction d'éléments d'addition rentrant en solution solide et formant des précipités qui entraînent des compositions d'alliages de plus en plus complexes. Cependant on peut considérer que ces alliages comportent une addition principale déterminante pour les propriétés de résistance mécanique (résistance à la traction, etc.) et des additions secondaires en teneurs plus faibles qui ont une action spécifique.

Les alliages industriels peuvent être mis en forme selon deux techniques, le corroyage et la fonderie, d'où deux grandes catégories doivent être distinguées [23]: alliages corroyés (wrought en anglais) et alliages de fonderie .

I.2.1 PRINCIPALES SERIES : DESIGNATION NUMERIQUE

Conformément aux directives de l'Aluminium Association (Washington DC, USA), les alliages d'aluminium sont désignés à l'aide d'un système numérique de quatre chiffres [3]. Le premier chiffre indique l'élément d'alliage principal. Le second chiffre indique une variante de l'alliage initial. Souvent, il s'agit d'une fourchette plus petite dans un ou plusieurs éléments de l'alliage. Les troisième et quatrième chiffres sont des numéros d'ordre et servent à identifier l'alliage. La seule exception est la série 1000, dont ces deux chiffres indiquant le pourcentage d'aluminium, tableau 1. Ce groupe de quatre chiffres est parfois suivi d'une lettre indiquant une variante nationale.

| Série | Désignation | Elément d'alliage principal | Phase principale présente dans l'alliage |
|------------|-------------|--------------------------------|---|
| Série 1000 | 1XXX | 99% d'aluminium au mini. | - |
| Série 2000 | 2XXX | Cuivre (Cu) | Al ₂ Cu - Al ₂ CuMg |
| Série 3000 | 3XXX | Manganèse (Mn) | Al ₆ Mn |
| Série 4000 | 4XXX | Silicium (Si) | - |
| Série 5000 | 5XXX | Magnésium (Mg) | Al ₃ Mg ₂ |
| Série 6000 | 6XXX | Magnésium(Mg) et Silicium (Si) | Mg ₂ Si |
| Série 7000 | 7XXX | Zinc (Zn) | MgZn ₂ |
| Série 8000 | 8XXX | Autres éléments | - |
| Série 9000 | / | Non utilisé | - |

Tableau 1 : Désignation numérique et phases principales des alliages d'aluminium

Egalement, Les alliages d'aluminium destinés à être corroyés peuvent être classés en deux familles en fonction du type de transformation ou de traitement qui permettra d'obtenir les caractéristiques mécaniques et de résistance à la corrosion [4] :

- Les alliages à durcissement structural qui seront traités thermiquement, (Séries : 2000, 4000, 6000 et 7000)
- Les alliages écrouis qui obtiendront leurs caractéristiques mécaniques par écrouissage, donc par déformation à froid. (Séries : 1000 ,3000 et 5000).

Il est à noter que la norme européenne indique que cet ensemble de 4 chiffres doit être précédé pour les alliages destinés à être corroyés par le préfixe EN (EN 573-1), suivi par les lettres A (pour aluminium) et W (pour les produits corroyés) et en plus un tiret « - ». Voici un exemple : EN AW-4007. Il est important de noter que la notation complète est rarement utilisée.

I.2.2 ALLIAGES Al-Mg-Si (Cu), SERIE 6000

Les alliages d'aluminium les plus distingués sont ceux qui forment à l'état d'équilibre une solution solide faiblement alliée ou des phases intermétalliques, d'où leur dénomination alliages à solution solide.

Les alliages Al-Mg-Si sont des alliages à solution solide type Al-Mg₂Si [1], série 6000 qui fait partie de la catégorie des alliages corroyés à durcissement structural. Ces alliages sont généralement livrés après homogénéisation, trempe et vieillissement naturel.

Les alliages Al-Mg-Si(Cu) sont largement utilisés comme des alliages structuraux de moyenne résistance qui allient les avantages suivants : une bonne formabilité , une bonne soudabilité et une résistance remarquable à la corrosion (passivation à la corrosion sous tension) [5]. Les éléments d'alliage de cette série sont le magnésium (Mg) et le silicium (Si). Cette famille d'alliage a une grande importance industrielle. Elle est très utilisée pour les profilés. Ils ont une de très bonne aptitude à la déformation (filage, matriçage principalement) et à la mise en forme à froid à l'état recuit. Leurs caractéristiques mécaniques sont moyennes et sont inférieures à celles des alliages 2000 et 7000. Ces caractéristiques peuvent être améliorées par addition de silicium qui formera avec le Mg, le précipité durcissant Mg₂Si. Ils présentent une bonne résistance à la corrosion notamment atmosphérique. Ils se soudent très bien (soudure à l'arc ou brasage). On peut les classer en deux groupes [6] :

- Un groupe dont les compositions sont plus riches en magnésium et silicium tel que les alliages 6061 et 6082, qui sont utilisés pour des applications de structure (charpente, pylône...).

- Une deuxième catégorie renferme une faible teneur en silicium qui par conséquent aura des caractéristiques mécaniques plus faibles tel que le cas du 6060 qui permettra de grandes vitesses de filage mais qui aura des caractéristiques mécaniques plus faibles [6].

Il faut également noter l'existence du 6101 anciennement appelé Amelec. Cet alliage a été énormément utilisé pour ces aptitudes de conducteur électrique. Il a notamment été utilisé pour la fabrication de lignes moyenne et haute tension en France.

I.3 LES ALLIAGES Al-Mg-Si (Cu) ET L'INDUSTRIE D'AUTOMOBILES

Récemment, un regain d'intérêt pour les alliages Al-Mg-Si-(Cu) de la série 6000 a été motivé par leur utilisation dans l'industrie d'automobiles, du fait de leur bon compromis densité - propriétés mécaniques [7].

Ces alliages ont des propriétés distinctives en partie, dû à l'addition du cuivre responsable de la formation des phases Q et Q', [8,17-20]. Cette phase Q est stable seulement en composé quaternaire avec une stoechiométrie différemment rapportée.

Il a été rapporté, que tous Les alliages de la série 6000 sont principalement durcis par la phase β'' pendant le vieillissement artificiel à la température 180 °C [9]. Egalement, dans l'utilisation pour tôles d'automobiles, le durcissement par vieillissement est exécuté pendant le cycle de cuisson de la peinture [10] (environ 30 min à 175 °C). Ainsi les alliages sont employés dans l'état sous vieilli. Un constat peut être fait pour les alliages contenant une quantité excédentaire de Si par rapport à la composition quasi binaire Al-Mg₂Si. Ceux-ci ont atteint des niveaux satisfaisants de dureté pendant cette période limitée de vieillissement.

En revanche, ces alliages présentent un durcissement en maturation plus élevé. Ceci est indésirable dans le contexte de la fabrication des tôles automobiles, on souhaite un alliage qui ne durcit pas en cours de mise en forme. Seul, l'opération de cuisson de la peinture peut constituer le revenu de vieillissement [11].

Actuellement, les alliages 6016 et 6111(développé par Alcan en 1980) livrés en état T4 [12-15, 29] sont respectivement employés dans la fabrication de la majorité des panneaux internes et externes des véhicules en Europe et pour skin panel en Amérique du nord.

Ces alliages allient une excellente formabilité avec une bonne résistance en service dû aux effets de la précipitation rapide de la phase durcissante pendant le traitement de la cuisson de peinture.

I.4 DOMAINES DE PHASES METASTABLES DES ALLIAGES Al-Mg-Si(Cu)

Le diagramme de phases métastables est le lieu des températures en fonction des concentrations de la solution solide correspondant à la formation des zones GP ou des précipités intermédiaires métastables lors des stades initiaux de la maturation ou de revenu, ainsi qu'à leur dissolution (réversion) lors d'un chauffage de courte durée [16].

La famille des alliages Al-Mg-Si(Cu) est formée lorsque le cuivre est ajouté à la série 6xxx, ou réciproquement, quand le silicium est ajouté aux alliages Al-Cu-Mg de la série 2000.

Un mécanisme commun et spécifique à tous ces alliages, c'est celui de la formation de la phase quaternaire observée expérimentalement dans les laboratoires d'Alcoa par Dix et al.[20]. Cette phase a depuis lors été différemment désignée par Q [17], W , λ ou h [18, 19].

Pendant la maturation, beaucoup d'alliages ternaires commerciaux Al-Mg-Si ont des compositions dans un domaine triphasé comprenant les phases d'équilibre suivantes : aluminium primaire, (Al), β et silicium primaire [20]. Par addition du Cu, la coexistence des domaines d'équilibre triphasés évolue dans les trois espaces de composition tétraédrique. Une quatrième phase d'équilibre est présente à l'intérieur de chacun de ces espaces comprenant les deux phases communes, à savoir (Al), et la phase intermédiaire quaternaire Q, et deux des trois autres phases, à savoir $\theta(\text{CuAl}_2)$, β et (Si). Ceci est schématiquement exposé dans la figure II.1.

Dans le système quaternaire Al-Mg-Si-Cu, quand le rapport $\frac{Mg}{Si}$ est supérieur à 1, les compositions aux températures de vieillissement artificiel se situent dans le tétraèdre I, dont les phases en coexistence sont, (Al), Q, θ et β . Quand $\frac{Mg}{Si} < 1$, les compositions occupent le tétraèdre II, en présentant les phases en coexistence, (Al), Q, θ et (Si).

Quand la teneur de Cu est basse, le domaine de composition du tétraèdre III est occupé; la valeur varie avec du Mg et Si, mais elle est généralement moins de 0.5%.

Une vue plus claire des domaines tétraédriques de phases est présentée dans une projection schématique simplifiée, figure I. 2. Un aspect intéressant du rapport composition domaine de phase s'avère immédiatement certain.

Dans les alliages Al-Mg-Si, un rapport $\frac{Mg}{Si} = 1.73 : 1$ (correspondant au 2:1 l'alliage est dit stoechiométrique) est exigé pour la formation de la phase β . Si le rapport est inférieur, l'alliage est dit à excès de Si. Dans son étude, Edwards [20] montre que pour les phases précurseurs métastables, le rapport de la composition appropriée devrait être plus de 1:1.

Dans le système Al-Mg-Si-(Cu), le rapport de $\frac{Mg}{Si}$ définissant la frontière de phase entre les tétraèdres I et II semble être également de près de 1 : 1.

Quant à l'effet de composition sur la stabilité relative de phases, Chakrabarti et al.[20] présentent certaines tendances qui sont bien définies. Dans le tétraèdre I et II, le cuivre a un remarquable effet de stabilisateur sur la quantité de θ et beaucoup moins sur les autres phases de coexistence.

L'augmentation de la teneur en silicium accroît fortement la quantité de la phase Q dans le tétraèdre I, et la quantité de silicium dans tétraèdre II. Aussi l'augmentation de la teneur en magnésium augmente β dans le tétraèdre I et Q dans le tétraèdre II.

Il est important de noter que, quoique l'addition du Cu aux alliages Al-Mg-Si favorise l'apparition des phases Q et θ , elle modifie les quantités relatives de silicium et β suite à un changement des domaines de coexistence des phases d'équilibre. Cependant, l'effet de l'addition de Cu sur les fractions relatives de volume est beaucoup plus fort sur θ que sur Q.

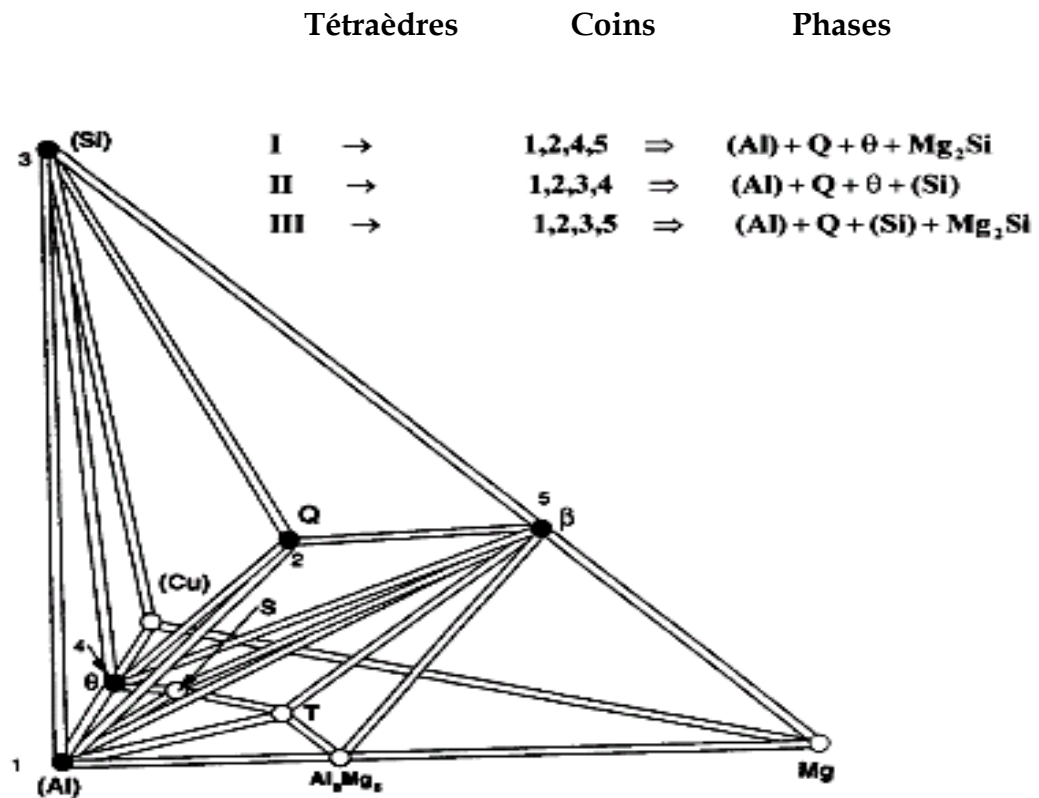


Figure I.1: Ligne diagramme des domaines de phase d'équilibre dans le système Al-Mg-Si(Cu) à la température ambiante [20].

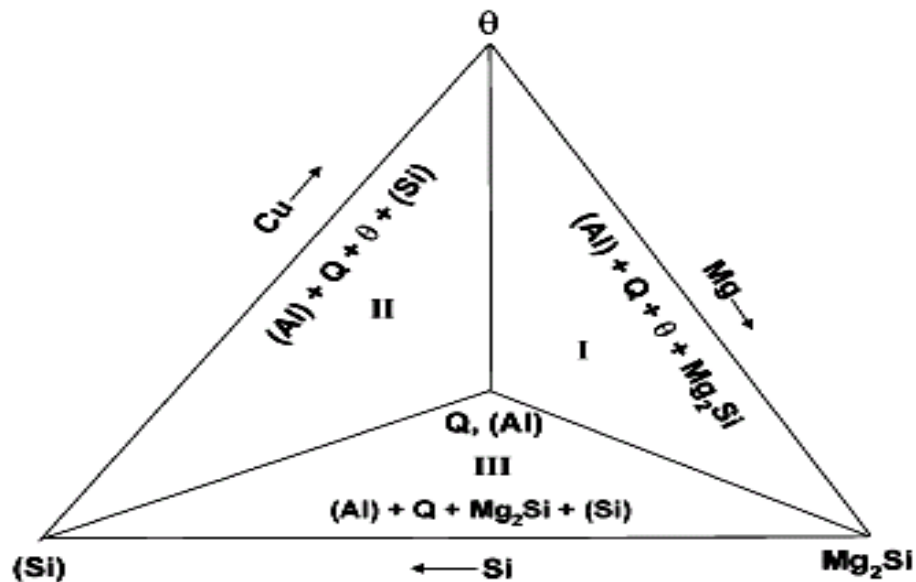


Figure I.2 : Alliages Al-Mg-Si(Cu) groupés par occupation du domaine de phases sur une pseudo projection des tétraèdres des quatre domaines de phase. La ligne verticale représente les alliages ayant un rapport $\frac{Mg}{Si} = 1$, [20].

CHAPITRE II

INFLUENCE DE LA PRECIPITATION SUR LES PROPRIETES MECANIQUES DES ALLIAGES Al-Mg-Si (Cu)

Dans ce chapitre, nous nous intéressons exclusivement à la méthode d'amélioration des propriétés mécaniques par traitement thermique des alliages Al-Mg-Si(Cu), et plus précisément au traitement de durcissement par précipitation, en passant en revue brièvement, les phénomènes structuraux et les mécanismes de durcissement structural en vue d'appréhender l'évolution des propriétés mécaniques des alliages Al-Mg-Si(Cu) de la série 6000 qui font objet de notre investigation.

Certaines propriétés des matériaux intimement associées à leur structure sont difficilement modifiables ; ce sont leurs propriétés intrinsèques, qui dépendent du type de leurs liaisons et de leurs structures atomiques (la masse volumique, le coefficient de dilatation linéique, les propriétés thermiques et les propriétés magnétiques etc.).

En revanche, on peut modifier considérablement de nombreuses autres propriétés des matériaux par l'action d'un moyen extérieur au matériau lui-même, sont de ce fait dites extrinsèques. Parmi les propriétés ainsi modifiables (extrinsèques), citons les propriétés mécaniques suivantes : la dureté, la ténacité, la limite élastique, la résistance à la traction et la ductilité.

Ainsi, par application des traitements thermiques ou mécaniques appropriées, les alliages d'aluminium acquièrent des propriétés mécaniques intéressantes.

Bien que, toutes les méthodes de durcissement agissent de la même façon, elles rendent difficile, voir impossible, le mouvement des dislocations dans le réseau cristallin.

On peut distinguer trois méthodes d'amélioration des propriétés mécaniques des alliages à base d'aluminium [28] :

-Méthode d'amélioration par traitement thermique dite durcissement par précipitation (pour les alliages trempant).

-Méthode d'amélioration par traitement mécanique dite durcissement par écrouissage (pour les alliages non trempants).

-Méthode d'amélioration de durcissement par solution solide (appliquée principalement à la série 5000)

II.1. TRAITEMENT DE DURCISSEMENT STRUCTURAL (PAR PRECIPITATION)

II.1.1 PRINCIPE

Le traitement de durcissement par précipitation est un traitement de trempe structurale [22] des alliages d'aluminium comprenant une mise en solution solide à haute température des éléments d'addition, (on doit toujours effectuer une mise en solution à une température inférieure à la température début de fusion (sinon l'alliage peut être brûlé et, par conséquent inutilisable) ; suivie :

- d'un refroidissement suffisamment rapide pour maintenir à la température ambiante de la solution solide existant à des températures plus élevées (solution sursaturée métastable) ;
- d'un traitement de désursaturation consiste en : maturation à l'ambiante (vieillessement naturel) ou revenu à une température supérieure, pendant lesquels se produit la décomposition contrôlée de la solution solide sursaturée ; en vue de favoriser un retour partiel vers les conditions d'équilibre et d'obtenir ainsi les propriétés mécaniques visées.

II.1.2 PHENOMENES STRUCTURAUX ET MECANISMES DE LA PRECIPITATION

Les phénomènes intervenant pendant le troisième stade (maturation et revenu) de la précipitation sont très complexes [16].

Très schématiquement, on peut dire que la décomposition de la solution solide sursaturée obtenue par trempe (refroidissement rapide) s'articule en deux stades, le premier concernant une précipitation caractérisée par la formation des zones GP de (Guinier - Preston) qui sont des agrégats riches en solutés et cohérents avec la matrice. Le second comportant la précipitation de phases intermédiaires métastables et éventuellement, si la décomposition est suffisamment poussée, de phases stables d'équilibre [6].

D'une façon générale, l'expérience a montré, dans le cas des alliages d'aluminium, que pendant la maturation on a affaire exclusivement à la précipitation, c'est-à-dire à la formation des zones GP, qui diffèrent en nombre, dimensions, formes et dans la cinétique du grossissement d'un alliage à un autre, cependant que, par suite des difficultés de germination, la phase stable ou les autres phases métastables, ayant une structure cristallographique différente de celle de l'aluminium, ne peuvent pas apparaître. Pendant le revenu, quoiqu'on puisse encore avoir au début l'apparition de zones GP, celles-ci sont généralement remplacées par une ou plusieurs phases métastables [6].

Fait important à retenir, dans le cas du durcissement structural, la trempe ne durcit pas l'alliage et ne modifie pas la structure cristalline de l'alliage par conséquent, à l'état brut de trempe les propriétés mécaniques sont toujours médiocres, mais il présente généralement une bonne ductilité. C'est en effet au cours du vieillissement naturel ou artificiel qu'il y a modification des propriétés mécaniques (durcissement).

Ce durcissement s'explique par un phénomène de précipitation résultant de la décomposition contrôlée de la solution solide sursaturée au cours du maintien isotherme.

Le durcissement obtenu est fonction du temps et de la température de maintien.

Par revenu à des températures élevées, on peut obtenir directement la phase d'équilibre ; mais aux plus basses températures, pour lesquelles on observe le remarquable durcissement, la solution solide se décompose en plusieurs étapes.

Le durcissement maximal obtenu par précipitation correspond à un état particulier des précipités : pendant le vieillissement naturel ou artificiel, les particules grossissent continuellement, leur compositions chimiques et leur structures cristallines évoluent également ainsi que la distance moyenne qui les sépare. On peut expliquer par la théorie des dislocations (mécanisme d'Orowan), le fait que la courbe de dureté en fonction de la durée de vieillissement (ou de la taille des précipités et la distance qui les

sépare) passe par un maximum. En présence des particules précipitées, les dislocations doivent poursuivre leur déplacement, soit contourner les particules soit les cisailer [28]. En général, le cisaillement n'est pas possible que s'il existe une certaine continuité entre les plans de glissement du solvant et ceux du précipité, c'est-à-dire lorsque les précipités sont cohérents ou moins partiellement cohérents. Par exemple, entre les zones G P et les premiers précipités θ'' qui sont cohérents avec la matrice, dans le cas de l'alliage Al-4,5% Cu, la distance est très faible, soit de l'ordre de 10nm [23]. Les dislocations ne peuvent pas se courber selon un tel diamètre, car la scission nécessaire déterminée par l'équation suivante :

$$\tau = \frac{Gb}{d}$$

Où b : vecteur de Burgers,

G : module de cisaillement,

d : distance moyenne entre les précipités

Serait alors d'environ 1000 MPa [23]. Elles ne peuvent donc se déplacer qu'en cisillant ces précipités puisque ils sont cohérents.

Le mécanisme du contournement (d'Orowan) [16], sous l'effet de la contrainte appliquée la dislocation en déplacement vient buter sur les particules mais poursuit son mouvement dans les espaces libres entre celles-ci. La ligne de dislocation forme des arcs, nécessitent une énergie supplémentaire due à l'augmentation de la contrainte extérieure, de plus en plus grande qui finissent par se recombiner pour redonner une ligne de dislocation mais en laissant derrière eux des boucles des dislocations autour des particules qui perturbera ultérieurement le passage d'une autre dislocation.

Il est important de noter que quelque soit le processus de franchissement des précipités (cisaillement ou contournement), le mouvement des dislocations ne peut se poursuivre que si la contrainte extérieure est augmentée ; ceci traduit par le durcissement dû à un précipité, durcissement qui provoque une amélioration des propriétés mécaniques.

II.2 EVOLUTION DES PROPRIETES MECANIQUES DES ALLIAGES Al-Mg-Si

L'évolution des propriétés mécaniques des alliages d'aluminium est pratiquement toujours conditionnée par les mêmes étapes dans le durcissement de la structure. Ces trois états successifs sont l'état sous-vieilli, bien vieilli et sur-vieilli [24]. Cette séquence provoque une augmentation puis une diminution des caractéristiques de résistance mécanique (résistance à la traction, etc.), cf. figure II.1. On note que les propriétés de ductilité varient en sens inverse.

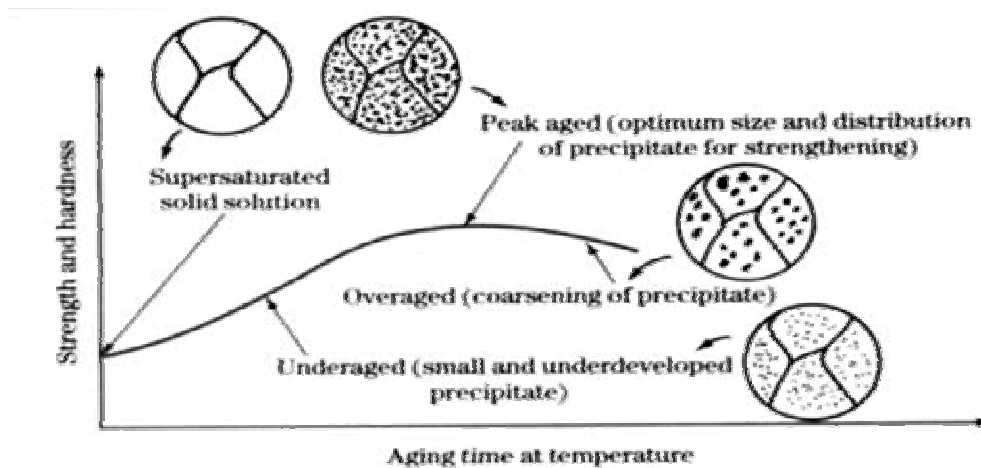


Figure II.1 Evolution schématique de la dureté et de la résistance mécanique d'un alliage à durcissement structural pendant le vieillissement [24].

Siddiqui et al. [25] conclu dans son travail portant sur l'influence des paramètres de vieillissement sur les propriétés mécaniques de l'alliage 6063 (en % mass.) (0.5 % Si, 0.5% Mg, 0.09% Fe ,0.08% Cu) ce qui suit : -La résistance élastique augmente continuellement avec l'augmentation de la température. Un temps supplémentaire de traitement thermique cause une légère baisse de cette caractéristique.

-Egalement, la résistance mécanique augmente constamment, lorsque la durée de

revenu et la température augmentent. Une augmentation supplémentaire de la température de revenu entre 473 et 498 K pendant 10 à 12 heures réduit la résistance mécanique de cet alliage, cf. figure II.2.

-Une augmentation persistante et prononcée de la dureté est corrélée avec la durée et la température de revenu, cf. Figure II.3.

L'alliage atteint sa dureté maximale à 473 K quand qu'il est revenu pendant huit heures. Ensuite, une diminution intervient en même temps que la durée et la température décroissent.

-La Figure III.4 montre l'influence du traitement thermique sur la ductilité de l'alliage. Le pourcentage d'allongement de l'alliage 6063 chute graduellement avec l'augmentation du temps et de la température de revenu.

-La résistance à la fatigue augmente en vieillissant l'alliage au-dessus de la température ambiante. Ceci est dû au durcissement de précipitation à température élevée et à l'augmentation de la durée

-L'augmentation initiale des propriétés mécaniques, est dû à un mécanisme de diffusion de lacunes. Aux températures ambiantes et élevées, c'est-à-dire dans les conditions sous-vieillies et bien vieilles, les lacunes sont très mobiles. Ces dernières jouent un rôle significatif dans la formation des zones GP, lesquelles sont considérablement riches en atomes de soluté. La ségrégation locale d'atomes de soluté produit une distorsion des plans du réseau. Ces tensions s'effectuent à l'intérieur des zones et s'étendent dans plusieurs couches atomiques de la matrice. Avec une augmentation dans le nombre ou la densité de ces zones, le degré de perturbation dans le réseau cristallin augmente. Cependant, les propriétés mécaniques aussi bien que le comportement à la rupture de

l'alliage sont améliorées. L'effet de renforcement peut aussi être un résultat de l'interférence avec le mouvement des dislocations. Ceci est dû à la formation de précipités dans les conditions sous vieilles et bien vieilles. L'alliage bien vieilli a les meilleures propriétés mécaniques comparées est un alliage sous vieilli et sur vieilli. Une baisse dans les propriétés mécaniques de l'alliage dans les conditions de sur vieillissement est apparue. Une coalescence des précipités donne des particules plus grandes, avec un grain plus grand, et aussi due au « recuit » des défauts. Ceci peut causer moins d'obstacles au mouvement des dislocations et ainsi les propriétés mécaniques commencent à diminuer.

Il est à conclure, que les mécanismes de blocage ou de ralentissement des dislocations sont principalement en jeu.

Aussi, les courbes enregistrées et les phénomènes mis en évidence sont généralisables à la série 6000 et à tous les alliages à durcissement structural moyennant un travail expérimental [25].

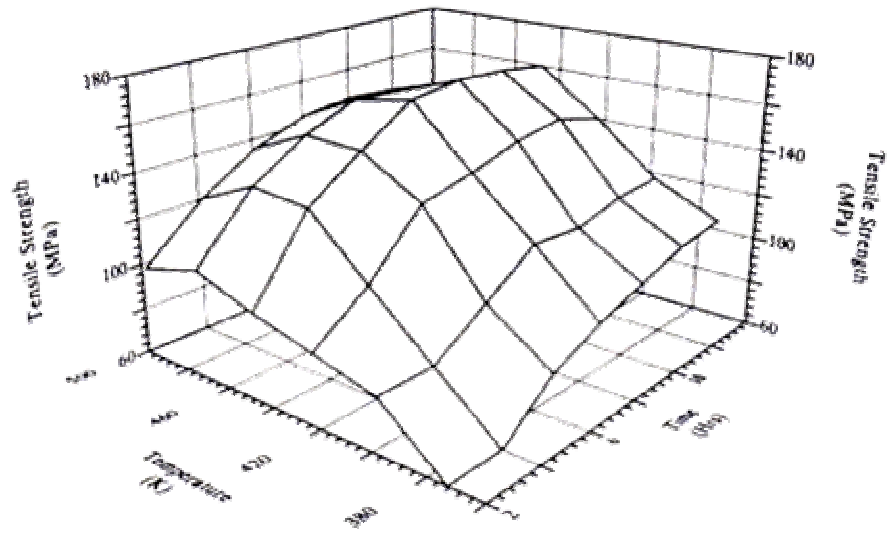


Figure II.2 Effet du temps et de la température sur la résistance mécanique d'un alliage 6063[25].

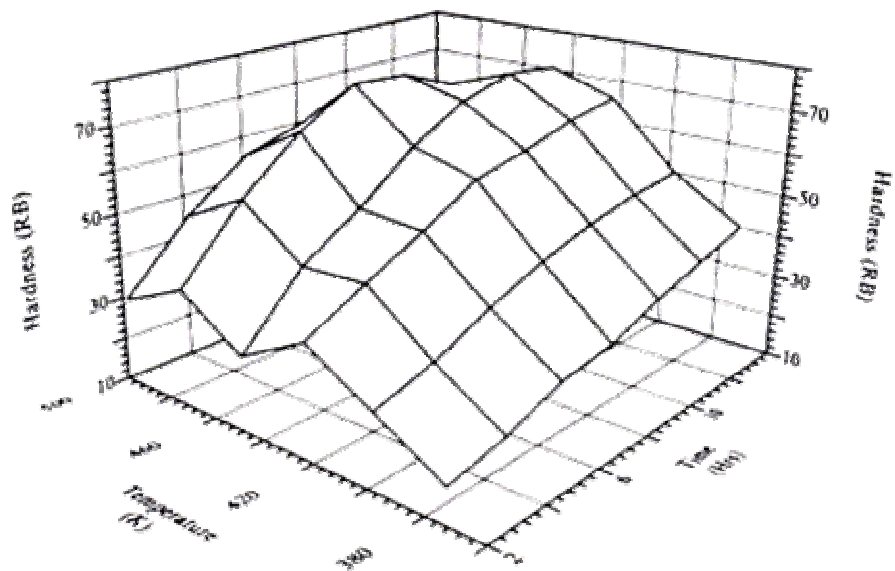


Figure II.3 : Effet du temps et de la température sur la dureté d'un alliage 6063 [25].

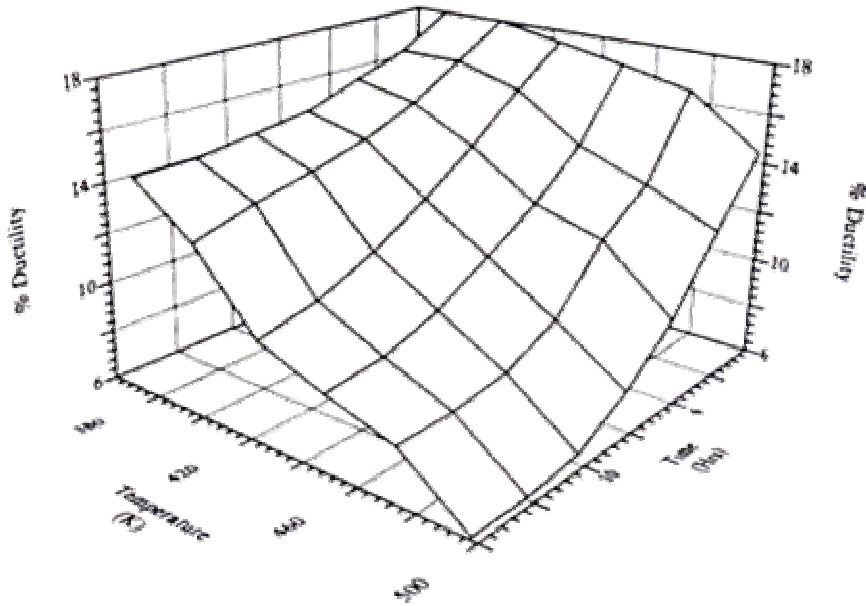


Figure II.4 : Effet du temps et de la température sur la ductilité d'un alliage 6063[25].

II.3 PRECIPITATION ET COMPORTEMENT MECANIQUE DES ALLIAGES DE LA SERIE 6000

La faible précipitation dans les alliages d'aluminium de la série 6000 n'influence pas le comportement linéaire élastique du matériau. Cependant, la valeur de la limite d'élasticité dépend de la présence de précipités durcissants puisqu'ils constituent des obstacles au mouvement des dislocations [26].

Dans les alliages de la série 6000, la microstructure et la précipitation influencent directement la contrainte d'écoulement (point à partir duquel les dislocations peuvent se déplacer) et ensuite la capacité d'érouissage. Selon la nature des obstacles à franchir, la nature de la solution solide, les dislocations générées par l'érouissage, les contraintes résiduelles, les joints de grains et les précipités, les mécanismes seront différents. Par exemple, deux mécanismes de durcissement structural peuvent

intervenir dans le cas des précipités [27]. Le franchissement de l'obstacle par cisaillement, qui concerne en général les précipités cohérents ou semi-cohérents avec la matrice et de petite taille et le contournement de l'obstacle par le mécanisme d'Orowan, qui concerne les précipités incohérents ou de taille élevée.

Le durcissement structural permet d'obtenir une limite d'élasticité élevée; le survieillissement donne à l'alliage une capacité d'écrouissage satisfaisante pour obtenir un bon niveau de ténacité. Toutefois, la présence de ces précipités, en plus des dispersoïdes au manganèse (dans l'alliage 6056), introduit des sites potentiels de germinations de cavités en rupture ductile.

En conclusion, l'état de précipitation associé influence directement le comportement mécanique du matériau [26]. En effet, les mécanismes de franchissement des obstacles par les dislocations engendrent un écrouissage plus ou moins important selon la nature, le nombre et la taille des obstacles.

CHAPITRE III

PRECIPITATION DANS LES ALLIAGES

Al-Mg-Si(Cu)

Le présent chapitre se propose d'étudier les séquences de précipitation dans les alliages Al-Mg-Si(Cu) en présentant succinctement les théories de germination – croissance – coalescence ainsi que la problématique des premiers stades de précipitation dans ces dits alliages. Les différentes études publiées sur le sujet, et qui portent sur l'influence de divers paramètres rentrant en jeu seront passés en revue afin de bien cerner notre travail.

III.1 CHRONOLOGIE DU PHENOMENE DE PRECIPITATION

La précipitation ou durcissement par vieillissement a été découvert par Alfred Wilm en Allemagne en 1906. Il a tenté de durcir un alliage d'aluminium contenant 2% Cu, d'une manière analogue à celle appliquée aux aciers, par une trempe rapide. L'échantillon était au début doux, mais sa dureté augmentait en fonction du temps à la température ambiante après trempe. Les résultats ont été publiés en 1911 sans interprétation précise [31].

C'est en 1938, en analysant ce qui s'appelle des « traînées orientées de diffraction diffuse » sur des clichés de diffraction, que Preston établit l'existence des zones de précipitation. En 1939, André Guinier mettait en évidence ces mêmes zones par diffusion diffuse aux petits angles [32]. Ces travaux ont conduit à la découverte des zones de précipitation communément appelées zones de Guinier- Preston (zones GP).

Les premières études de la précipitation dans le système ternaire Al-Mg-Si datent du milieu du siècle dernier avec les caractérisations par diffraction de rayons X des alliages d'aluminium industriels. Après revenu, la présence de zones GP commence à devenir décelable sur les diffractogrammes de Guinier et Lambot [33]. Ces derniers interprètent les intensités diffuses observées perpendiculairement aux directions $[001]^*$ du réseau réciproque de l'aluminium comme provenant d'amas allongés dans les directions $\langle 001 \rangle$ de la matrice d'aluminium. Les traînées diffuses se fractionnent en cours de revenu, signe d'une mise en ordre interne de ces zones GP.

Durant les années suivantes, plusieurs auteurs [34, 35] ont travaillé sur ces alliages à l'aide de la diffraction X et ont pu montrer l'évolution de ces zones GP en matière de taille (diamètre et longueur) et l'effet de différentes températures de revenu.

Lutts [35] suggère par ailleurs que les zones GP sont probablement constituées d'un nombre significatif de lacunes. Finalement, un changement de structure a été démontré entre les zones GP en forme d'aiguilles maintenant dénommées β'' et la phase β' [36], qui en général correspond à un maximum de dureté (pic de dureté).

III.2 PRECIPITATION ET DISSOLUTION A L'ETAT SOLIDE

Selon la théorie des transformations en phase solide, une solution solide sursaturée se décompose en phase d'équilibre par précipitation de particules d'une seconde phase qui consomme l'excès de soluté dans la solution sursaturée. Selon Chalmers [37], la précipitation est définie comme la formation d'une nouvelle phase à partir d'une solution solide sursaturée après traitements thermiques, inversement à la dissolution, étant la disparition d'une phase rendue instable par une variation de température en se développant sans germination. La précipitation peut être décrite par la succession de trois étapes : germination, croissance et coalescence.

III.3 GERMINATION ET CROISSANCE

Selon la théorie classique de Gibbs étendue aux transformations de phases à l'état solide par Turnbull et Fischer [16], la germination, étape initiale de la précipitation, suppose la formation à partir de la matrice de germes stables, riches en soluté (de composition très différente de celle de la solution solide) et dotés d'une interface définie avec la matrice. Les germes peuvent résulter de fluctuations statistiques de composition de taille suffisante (de l'ordre du nanomètre) au sein de la solution solide avec une cinétique de formation très rapide en présence de lacunes en sursaturation (précipitation homogène), ou se former préférentiellement sur les défauts du réseau ou les interfaces préexistantes entre les différents grains ou les particules. Les germes de précipités, ainsi formés sont caractérisés par leur rayon critique qui est d'autant plus petit que la température de l'alliage s'écarte de la température d'équilibre. Lorsque la barrière de

germination devient élevée, la germination s'arrête et les précipités existants vont croître [16].

La croissance initiale des précipités se fait par drainage selon un processus régi par le transfert du soluté à l'interface entre la matrice et le précipité (ne peut s'appliquer strictement qu'aux tout premiers stades de précipitation avec des germes de taille critique très petite), soit par la diffusion des atomes de soluté dans la matrice, soit par un mode mixte.

Il est admis communément que la croissance des précipités est contrôlée par la diffusion en volume (le processus le plus lent), dans ce cas le rayon des précipités croît en $t^{\frac{1}{3}}$ [15]. En définitive, on obtient, après croissance des précipités de transition (métastables) et/ou stables possédant une très large distribution de tailles (diamètre, longueur ou épaisseur)

- COALESCENCE DES PRÉCIPITÉS

Pendant l'étape de croissance, le rayon des particules créées lors de la germination augmente, alors que le nombre de précipités reste constant. Enfin, lorsque la sursaturation s'approche de zéro, la seule force motrice qui permet au système d'évoluer est la diminution de la surface totale des précipités. Ce mécanisme se traduit par le grossissement des plus gros précipités au détriment des plus petits qui se redissolvent (mûrissement d'Ostwald), c'est la coalescence. Elle se traduit par une diminution du nombre de précipités et conduit à une minimisation de l'énergie totale du système.

En réalité, ces trois étapes peuvent intervenir simultanément et doivent être traitées ensemble pour modéliser les cinétiques de précipitation. Pour cela, il existe plusieurs méthodes qui permettent de simuler ces cinétiques, à différentes échelles.

III.4 CINÉTIQUE DE PRÉCIPITATION

En général, la cinétique de précipitation (décomposition) procédant par mécanisme de germination et croissance obéit à une loi de transformation offerte par Avrami [40]. Ce mécanisme de précipitation isotherme d'une nouvelle phase dépend essentiellement de deux facteurs distincts, l'énergie de formation des germes et la mobilité des atomes [23]. Étant donné que la réaction de précipitation se fait par deux processus, chacun est gouverné par sa propre énergie d'activation. La vitesse de la réaction sera déterminée par le processus le plus lent.

La fraction volumique (x) de la nouvelle phase est donnée par l'équation d'Avrami :

$$x = 1 - \exp(-Kt^n) \dots\dots\dots(III.1)$$

où K et n sont des coefficients caractéristiques du type de transformation considérée.

Ainsi, pour décrire la cinétique des réactions isothermes à l'état solide, la théorie la plus communément citée, demeure celle de Johnson - Mehl - Avrami (JMA) [41- 42] et, indépendamment, Johnson et Mehl, ont développé une théorie pour rendre compte du taux de réaction observé à l'état solide.

La réaction de précipitation est un tout. Il est admis que l'énergie d'activation du processus de croissance qui se fait par diffusion, souvent en volume ne diffère pas trop de l'énergie d'activation de la diffusion de l'atome de soluté considéré dans la matrice. Ainsi, l'énergie d'activation mesurée à partir d'un diagramme de calorimétrie différentielle à balayage (DSC), permet en comparaison avec l'énergie d'activation de la diffusion de différents atomes solutés présents dans la matrice, de déterminer lequel ou lesquels sont impliqués dans la réaction [7].

Les cinétiques globales, c'est à dire l'évolution temporelle du volume de phase transformé (aspect caractérisé par un taux de transformation) peuvent être obtenues par des différentes méthodes expérimentales (DSC, dilatométrie, etc.).

III.5.1 SEQUENCES DE PRECIPITATION DANS LES ALLIAGES Al-Mg-Si

L'étude de la séquence de précipitation d'un alliage Al-(Mg₂Si) consiste à déterminer une succession d'états de précipitation caractérisés par une ou plusieurs phases métastables qui peuvent être différentes selon la composition de l'alliage et son histoire thermique.

Des récentes études portant sur la cinétique de précipitation des alliages Al-Mg-Si en modes isothermes [17] et anisothermes [45, 46] décrivent les séquences de décomposition mises en jeu lors du chauffage et l'influence de la vitesse de chauffage sur la cinétique de transformation.

La séquence de précipitation dans ces alliages est rendue plus complexe par la présence de phases métastables et d'au moins deux éléments d'additions distincts (Mg et Si).

La séquence de précipitation communément admise pour les alliages pseudo-binaires Al-(Mg₂Si) [10, 15, 47, 48] est la suivante :

(SSS) → Amas de solutés et/ou zones GP → β'' en aiguilles → β' en bâtonnets
 → β (Mg₂Si) en plaquettes

Ainsi, on peut distinguer d'autres séquences proposées, selon la composition d'alliage considéré :

Pour le cas des alliages à excès de Si, contenant 0,07% Cu (%masse), la séquence de précipitation proposée est la suivante [47, 48] :

SSS → Zones GP → β'' aciculaire → β' bâtonnets → Q' lamellaire → β + Si

Pour le cas des alliages à excès de Si, contenant 0,19% Cu (%masse), la séquence de précipitation proposée est la suivante [47] :

(SSS) → clusters / Zones GP → β'' bâtonnets → Q' lamellaire → Q + Si

III.5.1.1 LES AMAS DE SOLUTES ET /OU ZONES G P

Au cours du maintien d'un alliage d'aluminium à durcissement structural à la température ambiante après la trempe, la solution solide sursaturée se trouve en état

métastable. Au cours de ce stade, appelé maturation, l'alliage durcit progressivement et spontanément et la solution solide se décompose pour donner naissance à la formation, à partir de la matrice, de germes stables de petits amas d'atomes de soluté (les zones de Guinier-Preston), en très grande densité (de l'ordre de 10^{17} à 10^{18} /cm³)[16], dont la taille supposée comprise entre 1 et 5 nm de diamètre. L'observation en microscopie électronique en transmission conventionnelle d'objets de telle taille est rendue presque impossible par les valeurs très proches des facteurs de diffusion électroniques de l'aluminium, du magnésium et du silicium[15].

Des récents travaux utilisant des techniques de caractérisation modernes et mieux adaptés à l'étude de ces objets, telle la sonde atomique ont été menés par différents auteurs [15, 48, 50, 51]. Ces amas d'atomes sont toujours situés aux noeuds du réseau de la matrice aluminium et sont constitués de petites portions de plans cristallographiques du réseau d'aluminium enrichis en atomes de soluté.

A cette étape, ces amas d'atomes sont plus ou moins sphériques [49], contiennent en majorité des atomes d'aluminium en plus des atomes de Mg et/ou Si et orientées selon les directions $[100]_{Al}$, sont d'abord désordonnées puis organisées en alternance de couches d'atomes de silicium entourés de deux couches d'atomes de magnésium. Geuser [15] rapporte que lorsque l'on parlera d'amas homo-atomiques, il s'agira d'amas enrichis en un seul type de soluté en plus des atomes de solvants, et non pas d'objets contenant 100% du soluté en question).

Edwards et al. [48] ont détecté à la fois des amas de Mg, des amas de Si et des hétéro-amas contenant du Mg et du Si après l'apparition d'un large pic à basse température dans des diagrammes de (DSC). En revanche, les travaux [50, 51], affirment que leurs profils de concentration ne laissent apparaître que des homo-amas de Mg dans l'état brut de trempe. Ils suggèrent qu'une maturation à température ambiante et/ou un prérevenu à température inférieure à 100°C verraient la formation d'amas de Si, puis de co-amas Mg-Si. Les deux équipes sont cependant d'accord pour affirmer que les co-amas formés pendant le prérevenu servent très probablement de sites de germination

préférentielle très finement répartis pour la phase β'' qui leur fait suite dans la séquence de précipitation.

Vaumousse et al.[52] en étudiant des alliages de la série 6000 sont parvenus à la même conclusion à l'aide d'une technique d'identification d'amas, ils affirment qu'un alliage brut trempée contient déjà des amas de solutés, mais ne précisent pas s'il s'agit d'homou ou d'hétéro-amas. Leur méthode incluant le choix d'un nombre d'atomes minimal pour la définition d'un amas, l'efficacité de détection d'un amas paraît cependant limitée.

III.5.1.2 LA PHASE DURCISSANTE β''

Cette phase de transition cohérente avec la matrice appelée β'' conserve une morphologie similaire à celle des amas de soluté (zones GP) [16], en se formant ainsi en aiguilles au dépens des ces précurseurs qui sont des amas contenant autant de Mg que de Si, s'étendant le long des directions $\langle 100 \rangle_{Al}$. En effet, elle a longtemps été considérée dans la littérature comme une zone GP (zone GP-II) car elle donne lieu dans un cliché de diffraction électronique à des traînées diffuses perpendiculaires aux directions $[001]^*$ du réseau réciproque de la matrice d'aluminium. Ces traînées étaient interprétées de la même façon que pour les zones GP des Al-Cu comme étant la trace de zones isostructurales très fines [15]. La dénomination par β'' et la structure de β'' ont été initialement présentés par Shchegoleva [5] suite à une étude par diffraction des rayons X d'un alliage Al-Mg-Si. Elle a déterminé que la structure de β'' est du type monoclinique, avec $a = b = 0.616$ nm, $c = 0.71$ nm et $\beta = 82^\circ$. Selon les travaux menés par les auteurs [17, 20, 53, 54], cette phase cohérente est responsable de la microstructure correspondante au pic de dureté dans les alliages Al-Mg-Si(Cu) modèles ou industriels à faible teneur en cuivre. De nombreuses études ont proposé des structures cristallines plus ou moins concordantes [55, 56]. L'utilisation du microscope à transmission à haute résolution (HRTEM) a apporté des images montrant les colonnes atomiques au coeur de ces précipités (figures III.1 et 2). Les structures ainsi proposées pour la phase β'' sont présentées comme suit :

- Monoclinique bc , $a = 1.534 \text{ nm}$, $c = 0.689 \text{ nm}$, $b = 0.405 \text{ nm}$, $\beta = 106^\circ$, Edwards [5]

- Monoclinique $a = 0.30 \text{ nm}$, $c = 0.33 \text{ nm}$, $b = 0.40 \text{ nm}$, $\beta = 71^\circ$, Lynch [56]

- Monoclinique $C2/m$ $a = 1.516 \text{ nm}$, $c = 0.674 \text{ nm}$, $b = 0.405 \text{ nm}$, $\beta = 105.3^\circ$, Andersen [57]

- Monoclinique $(P2/m)$ $a = 0,770 \text{ nm}$, $c = 0,203 \text{ nm}$, $b = 0,670$, $\gamma = 75^\circ$ [5]

Le groupe de Andersen [57] a beaucoup travaillé sur l'extraction du motif complet des précipités et ils ont publié une étude résolvant entièrement la structure de β'' , une cellule élémentaire contenant deux fois le motif Mg_5Si_6 pour une structure C_2/m , à base C centrée, et de paramètres de maille $a = 1,516 \text{ nm}$ – $b = 0,405 \text{ nm}$ – $c = 0,674 \text{ nm}$ – $\beta = 105,3^\circ$. Selon Andersen [57], le rapport $\frac{Mg}{Si}$ des précipités est donc égale à $\frac{5}{6}$, et les précipités ne sont pas supposés contenir d'aluminium. L'argument principal de l'exclusion des atomes d'aluminium est la distance interatomique calculée dans la structure difficilement acceptable pour des atomes d'aluminium. D'autres études publiées par le même groupe [58, 59] ont nuancé ce résultat en affirmant qu'une certaine quantité d'aluminium était probablement présente dans les précipités aux premiers stades de développement, en substitution des atomes de Mg. On aurait donc un rapport $\frac{Mg}{Si}$ inférieur à la valeur théorique supposée de $\frac{5}{6}$ mais qui tendrait vers cette valeur au cours du revenu. Un résultat particulièrement marquant ressortant de toutes les études de ces précipités en sonde atomique est que le rapport $\frac{Mg}{Si}$ des précipités est inférieur à 2 qui est le rapport stoechiométrique correspondant à la phase stable Mg_2Si [49, 51, 60]. Ces rapports sont mesurés entre 1 et 1,7. Tandis que Matsuda et al. [15] ont trouvé ce rapport égale à 0,17, ces derniers semblent dépendre fortement de la composition nominale de l'alliage. Il est de l'ordre de 1,7 pour des alliages Al-Mg-Si et autour de 1 dans des alliages en excès de Si.

Les dimensions des précipités observés sont peut être responsables aux écarts à la stoechiométrie. En effet, la microstructure correspondante au pic de dureté montre des précipités dont les dimensions sont de l'ordre de 2 nm [9, 54].

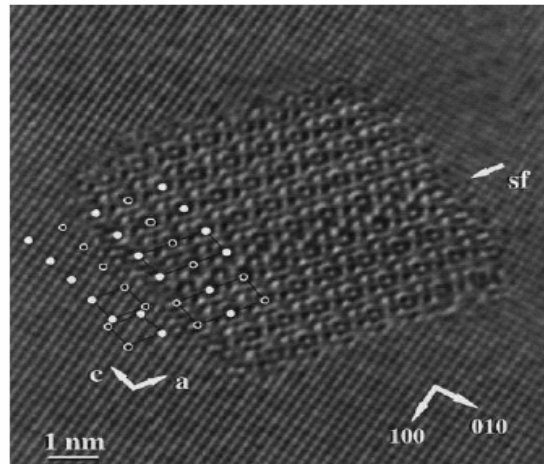


Figure III.1- Image de la phase β'' obtenue par MET à haute résolution, la direction du faisceau électronique // à $[001]_{Al}$ [57].

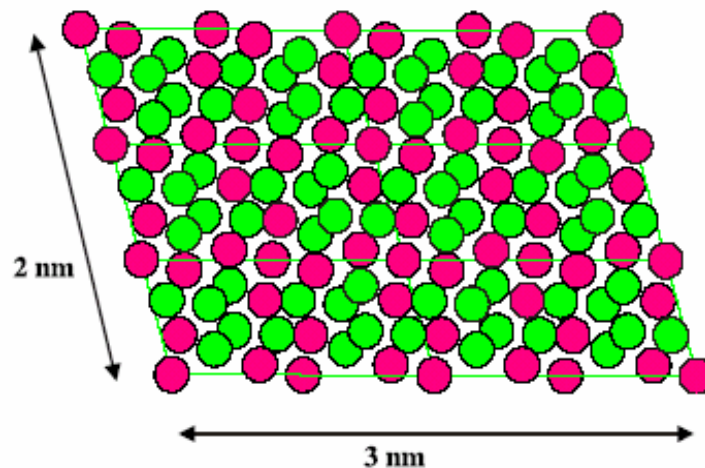


Figure III.2- Précipité de β'' construit selon le modèle Andersen et al. [57], de dimensions similaires à ceux présents au pic de dureté. Le rapport $\frac{Mg}{Si}$ de ce précipité vaut 0,95 (distinct de la stoechiométrie $\frac{5}{6}$ déduite de la formule chimique).

● Atomes d'aluminium

● Atomes de magnésium

III 5.1.3 LA PHASE β'

Cette phase intermédiaire, ayant un rapport $\frac{Mg}{Si}$ plus faible que celui de la phase d'équilibre. Les rapports $\frac{Mg}{Si}$ trouvés dans la littérature sont essentiellement identiques à celles mesurés pour la phase β' (entre 1 et 1,7 selon les alliages) [56, 60].

Elle précipite sous la forme de bâtonnets mesurant entre 5 et 15 nm de diamètre. La structure de cette dernière a été bien déterminée en diffraction électronique par celles proposées par ces auteurs [36,56]. Il s'agit d'une maille hexagonale de paramètres :

$$a = 0,705\text{nm} - c = 0,405\text{nm}, \text{ rapport } \frac{Mg}{Si} : 1.73 \quad [36]$$

$$a = b = 0,407, c = 0,405 \text{ nm}, \text{ rapport } \frac{Mg}{Si} : 1.54 \quad [56]$$

Comme les aiguilles β'' , les bâtonnets β' sont cohérents avec la matrice d'aluminium le long de leur grand axe. Une étude récente menée par Anderson et al. [62], propose la stoechiométrie suivante $Mg_{18}Si_{10}$. Des récents travaux (Cayron et Buffat [19]; et Anderson et al. [62]) de MET à haute résolution ont montré que cette phase pouvait co-exister avec β'' dans un même précipité.

III.5.1.4 LA PHASE D'EQUILIBRE β - Mg_2Si

Actuellement, il est bien convenu que la nucléation de cette phase se fait après dissolution de la phase intermédiaire β' et ne correspond pas à la transformation de cette dernière, ceci peut être argumenté par le fait que ces deux phases ont des structures cristallographiques entièrement différentes [6]. Elle précipite sous forme de plaquettes carrées d'épaisseur proche de la dizaine de nm et de quelques centaines de nm de côté.

Sa structure est cubique à faces centrées ordonnée, du type CaF_2 , avec un paramètre de maille $a = 0,639\text{nm}$ [15]. Cette phase (β - Mg_2Si) est incohérente avec la matrice, mais conserve toutefois des relations d'orientations : $(001)_\beta \parallel (001)_{Al}$ et $[110]_\beta \parallel [100]_{Al}$, [15].

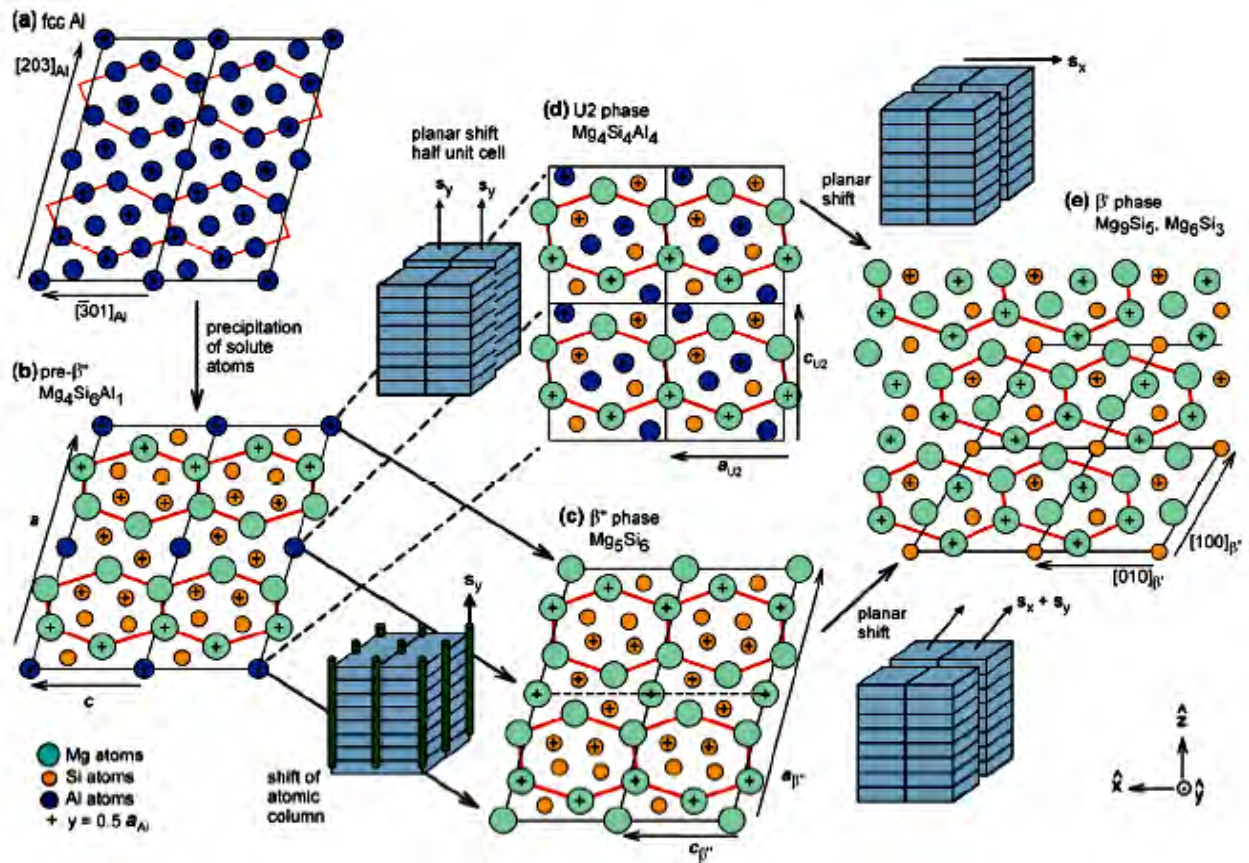


Figure III.3 Séquences de précipitation et transitions de phases rapportées pour les alliages de la série 6000[63].

Récemment, Van Huis et al.[63] rapportent les diverses phases de précipités et les transitions de phases qui se produisent pendant la séquence de précipitation des alliages Al-Mg-Si-(Cu). Les structures sont schématisées sur une grille cartésienne conformément aux rapports d'orientation en vigueur. La normale au plan de paramètre du réseau est cohérente avec le réseau de la matrice Al ($y = [010]_{\text{Al}} = 4,05 \text{ \AA}$). Des hexagones renfermant des atomes Mg peuvent être distingués presque dans toutes les structures. Chaque hexagone renferme un parallélogramme constitué de quatre atomes.

III.5.2 INFLUENCE DES ELEMENTS D'ALLIAGE

La composition de l'alliage joue un rôle prépondérant, elle régit considérablement du comportement durant la précipitation dans les alliages Al-Mg-Si(Cu).

En effet, la modification des propriétés mécaniques [17, 19, 57] est principalement due à la diversité des phases métastables qui se forment et leurs compositions qui sont différentes à celle de la phase stable β -Mg₂Si. Les écarts à la stoechiométrie ainsi que la présence d'autres éléments d'addition vont favoriser l'apparition de certaines phases.

Outre les deux principaux éléments Si et Mg, les alliages de la série 6000 renferment des additions secondaires en particulier le cuivre, le chrome, le manganèse et des impuretés tel que le fer. Le cuivre modifie la séquence de la précipitation dépendant de sa teneur, mais il a une influence sur la cinétique du vieillissement naturel à la température ambiante (maturation). Il est admis que l'effet du faible teneur en cuivre est d'affiner la précipitation et d'augmenter le durcissement après revenu[20], ceci pourrait provenir d'une forte interaction avec les lacunes. La présence du cuivre en forte teneur dans l'alliage conduit à des modifications remarquables de la séquence de précipitation. En effet, il a été justifié la disparition de la phase β' au profit de la phase Q' dans un alliage 6061 chargé en cuivre [15]. Outre les modifications sur la séquence de précipitation, le cuivre modifie également la composition chimique des précipités.

Les éléments de transition, tels que Cr ou Mn forment des dispersoïdes assez grossiers, leur interface avec la matrice constitue un site de germination préférentielle qui provoque la phase durcissante[7]. Ces éléments sont généralement introduits à des taux très faibles. Ils sont utilisés pour contrôler la taille des grains et pour donner une meilleure résistance aux alliages.

III.5.3 EFFET DU RAPPORT $\frac{Mg}{Si}$

Les alliages dont le rapport $\frac{Mg}{Si}$ est égal à 2 sont dits "stoechiométriques". Leur élaboration industrielle veille à ce qu'il y ait ce rapport, (soit 1,73 :1 en %at.) entre la concentration de Mg et celle de Si de façon à former la phase Mg₂Si [7].

Selon les écarts à la stoechiométrie, rapport $\frac{Mg}{Si}$, on distingue deux groupes d'alliages : alliages avec excès de silicium dont le rapport $\frac{Mg}{Si}$ se trouve entre 0.8 et 1.8 et alliages avec excès de magnésium avec $\frac{Mg}{Si}$ supérieur à 2 [5].

La présence de magnésium en excès aurait tendance à favoriser la phase stable Mg₂Si au dépend des phases durcissantes dont le rapport $\frac{Mg}{Si}$ est < 2 [20], donc l'excès en Mg est indésirable du point de vue des propriétés mécaniques. Alors que l'excès de silicium améliore les propriétés mécaniques, mais peut affecter la ductilité de l'alliage. Aussi, l'excès de Si augmente le durcissement par maturation à l'ambiante mais n'influe pas sur la cinétique de précipitation.

Gupta et al.[13], déduit que les alliages à excès de Si ont un pic de dureté supérieur aux alliages dits stoechiométriques.

D'une manière générale, l'excès de Si favorise les phases métastables (dont le rapport $\frac{Mg}{Si} < 2$) au dépens de la phase stable d'équilibre, en affectant la composition des précipités durcissants [15].

Pour les alliages contenant une faible teneur de cuivre, l'excès de Si modifie également la séquence de précipitation [15, 66], c'est-à-dire l'apparition de la phase quaternaire Q et son précurseur Q'.

III.5.4 ROLE DES LACUNES TREMPÉES ET AUTRES DEFANTS

C'est aux lacunes de trempe qu'on attribue généralement le rôle principal dans le durcissement. Ce rôle a été précisé par Girifalco et Herman [67] par un processus appelé pompe à lacunes, citons un exemple typique d'un alliage AB à durcissement structural, on peut avoir ainsi 10^{20} atomes de B transférés vers les zones au cours du durcissement par l'intermédiaire d'environ 10^{17} lacunes trempées pour $10^{22} / \text{cm}^3$, chaque lacune dans ce mécanisme, opère d'environ 1000 atomes. La cinétique de pré précipitation est régie

par la sursaturation en lacunes de trempe créées selon mécanismes activés thermiquement.

Egalement, La formation des amas sous forme d'homo amas et/ou d'hétéro amas et des zones GP dans les alliages durcis par maturation à l'ambiante s'explique par la présence d'un nombre élevé de lacunes en sursaturation après mise en solution à haute température et trempe rapide [68, 69]. La formation des paires lacunes-solutés ou complexes lacunes-solutés résulte de l'interaction entre les deux. Geuser [15] rapporte que les complexes lacunes-Mg dans les alliages Al-Mg-Si vont se diriger vers les puits de lacunes (dislocations et joints de grains) afin de permettre aux lacunes en sursaturation de s'éliminer. Ceci va résulter en ségrégation des solutés autour des puits de lacunes.

En effet, il a été proposé [15] que la ségrégation du Mg et du Cu sur les dislocations provoque un durcissement des alliages Al-Cu-Mg aux premiers temps de vieillissement qui s'apparente à l'effet de Proveton - Le Chatelier. Un autre effet important résultant de l'interaction lacunes solutés sur le vieillissement de l'alliage est la précipitation hétérogène sur les boucles de dislocations. Ces boucles sont observées dans les alliages contenant du Mg et Cu et dans les alliages contenant du Si, elles servent de germination préférentielle pour les précipités.

III.5.5 VIEILLISSEMENT NATUREL

La formation d'amas d'atomes (homo amas Mg, Si et /ou hétéro amas Mg-Si) dès les premières heures de la maturation à l'ambiante a été étudiée par des mesures de résistivité électrique [68, 71], ces amas conduisent à l'évolution de la dureté en cours de maturation [69].

Dans certains cas, la maturation retarde l'arrivée du pic de dureté durant le revenu[59]. Ce comportement a été expliqué par des modèles de revenus bi- paliers [49]. L'idée est que, quelque soit le temps de maintien à température ambiante, les amas formés ne pourront être stables à la température de revenu. Par conséquent les précipités

durcissants vont germer à partir d'une solution solide moins sursaturée et vont donc produire une dispersion plus grossière [15].

III.5.6 EFFET DE PREREVENU

Pour corriger cet effet de maturation à l'ambiante, non souhaité [15]. Des traitements de prérevenu sont connus industriellement pour accélérer la cinétique de durcissement au revenu. Il s'agit de traitements thermiques à température en général inférieure à 100 °C pendant quelques minutes ou quelques heures. Ceci s'interprète souvent par une stabilisation des amas formés, qui vont ainsi servir de sites de germination préférentielle pour les précipités durcissants [34, 49]. Ceci explique l'amélioration des propriétés mécaniques après revenu [17, 25].

Szeles et al.[15] en étudiant les alliages à excès de silicium ont montré que les boucles de dislocation disparaissaient lorsqu'on traitait l'alliage après la trempe à une température supérieure à 100°C. En effet, si cela était le cas dans nos alliages, on pourrait alors expliquer l'influence d'un prérevenu. Sans prévieillissement de l'alliage, on aurait précipitation hétérogène sur les boucles de dislocations, alors qu'avec un prérevenu, on aurait une germination homogène bien plus fine. Cette hypothèse est étayée par le fait que des alliages à excès de silicium ont de meilleures propriétés mécaniques après revenu (sans prérevenu préalable), lorsqu'ils sont trempés à l'eau bouillante que lorsqu'ils sont trempés à l'eau froide [73]. Cela pourrait être lié à la formation ou l'absence de formation de boucles de dislocations.

Une véritable compréhension de la nature et des mécanismes de formation des amas de solutés permettra de comprendre l'effet d'une maturation à l'ambiante et d'optimiser le prérevenu.

III. 5.7 CONCLUSION

Les séquences de précipitation d'alliages d'aluminium à durcissement structural série 6000 ont été étudiées par plusieurs chercheurs à l'aide de moyens d'investigation modernes tels que la microscopie électronique à haute résolution, la microscopie ionique et la sonde atomique tomographique qui permet de caractériser les matériaux métalliques avec une résolution subnanométrique et d'établir des cartographies tridimensionnelles des différents éléments dans le volume analysé.

La séquence de précipitation dans les alliages d'aluminium est donc surtout liée aux éléments d'alliages et aux traitements thermiques appliqués. Elle se décompose suivant les éléments en présence susceptibles de former des associations (β -Mg₂Si et Q).

Les zones GP formées se présentent sous formes d'amas diffus de solutés (Mg et Si) et contiennent une proportion importante d'aluminium (de 75 à 80 at. % en moyenne).

L'ajout de cuivre à l'alliage 6000 ternaire augmente de façon spectaculaire la densité et la fraction volumique de la phase durcissante β'' [49].

CHAPITRE IV

MATERIAUX ET TECHNIQUES

EXPERIMENTALES

IV.1 MATERIAU ETUDIE

Dans ce travail notre choix s'est porté sur un type de système pseudo binaire à base d'aluminium ; il s'agit d'un alliage Al-Mg-Si à excès de silicium, dont le rapport Mg /Si : 0,89 , qui se trouve entre 0.8 et 1.8

La composition initiale en éléments d'addition de cet alliage est donnée dans le tableau suivant (en % mass.):

| Code | Si | Mg | Fe | Cu | Mn | Cr | Zn | Ti | B | Al |
|--------------|------|------|------|-------|-------|-------|-------|-------|--------|------|
| J564F | 0.56 | 0.50 | 0.17 | 0.002 | 0.030 | 0.001 | 0.003 | 0.011 | 0.0015 | Bal. |

IV.2 GAMMES DE TRAITEMENTS THERMIQUES APPLIQUES

Le système Al-Mg-Si constitue une classe importante d'alliages industriels à caractéristiques mécaniques moyennes, qui sont obtenues par application d'un traitement thermique approprié, dit traitement de durcissement structural. Ce dit traitement comporte trois grands stades :

- Mise en solution (homogénéisation), consiste en un chauffage à température élevée (400 à 550 °C) suivant les alliages considérés [6]. Dans le cas de notre alliage cette température est choisie à partir de diagramme d'équilibre du système Al-Mg-Si. Elle est de l'ordre de 530 °C. Un maintien pendant (1h) a permis pratiquement de dissoudre tout le Si, Mg et le Fe dans la solution solide, et d'obtenir une solution homogène (domaine monophasé).

- Trempe à l'eau froide (refroidissement rapide) afin d'obtenir à la température ambiante, une solution solide sursaturée.

- Durcissement structural, par un traitement de revenu (vieillessement artificiel) qui conduit généralement à un durcissement plus important de l'alliage, ou par maturation (vieillessement naturel).

Afin d'élucider l'effet des paramètres des traitements appliqués sur le durcissement par précipitation, nous avons procédé dans notre travail à une série de traitements thermiques, lesquels, nous présentons ci-dessous :

-A)- Vieillissement artificiel aux températures 100, 150 ,200 et 250 °C, pendant des durées , allant de 01min à 24 h ,des échantillons homogénéisés 01h à 530°C et refroidis à l'eau,.

- Vieillissement artificiel aux températures 300, 350 ,400 et 550 °C, pendant (01) une minute.

-B) – Traitements de vieillissement artificiel à 180°C, pendant des différentes durées, allant de 01min à 24 h.

- Vieillissement artificiel à 180°C, pendant des différentes durées, allant de 01min à 24 h ,des échantillons homogénéisés pendant 01h à 530°C, refroidis à l'eau, et puis vieillis à l'ambiante durant 21 et 30 jours.

-C)- Traitements de vieillissement artificiel à 180°C, pendant des différentes durées, allant de 01min à 24 h ,des échantillons homogénéisés pendant 01h à 530°C et pré vieillis respectivement : pendant 01 h à 75°C et 01h à 100°C ,après traitement les échantillons ont été suivis de vieillissements naturel pendant 21 jours et 30 jours.

Dans le but de faire des observations microscopiques, les échantillons sont polis mécaniquement sur papiers abrasifs (du numéro 400 au numéro 1200), puis à la pâte d'alumine, et nettoyés chaque fois par l'eau distillée ; les surfaces ont été ensuite attaquées chimiquement par un réactif d'attaque approprié ,dit Killer [8]:

- Acide fluorhydrique HF : 2 ml.
- Acide Chlorhydrique HCl: 3ml.
- Acide nitrique HNO_3 : 5 ml.
- Eau distillée H_2O : 180 ml.

La durée d'attaque dans le bain varie de 20 à 30 secondes.

IV.3 TECHNIQUES EXPERIMENTALES UTILISEES

Afin de pouvoir mener notre étude, nous avons utilisé des techniques expérimentales bien adaptées à ce genre d'investigation. Intéressons nous maintenant aux techniques expérimentales auxquelles nous avons accès. Nous partons avec l'idée principale qu'il faut se consacrer à la précipitation de notre alliage.

IV.3.1 MICROSCOPIE OPTIQUE

Le microscope optique utilisé est un microscope métallographique à grand champ AXVERT 25 CA. C'est un appareil optique muni de lentilles qui permettent le grossissement de l'image pour déterminer la microstructure du matériau étudié.

Notre microscope est doté d'une camera photographique qui permet la prise d'un grand nombre d'images avec différents grossissements.

Le principe de microscope optique est basé sur l'augmentation du pouvoir séparateur de l'œil. Ce pouvoir séparateur est de l'ordre de grandeur de la longueur d'onde vraie $\frac{\lambda}{n}$. Il permet l'observation par réflexion d'une surface métallique parfaitement plane, obtenue par polissage mécanique

La métallographie optique, par un grossissement jusqu'à X1000 permet d'appréhender la morphologie des grains avec leurs tailles et formes. L'utilisation de l'attaque chimique peut révéler des traces d'impuretés non observées. Egalement, l'attaque chimique consiste à révéler la morphologie des précipités.

Parmi les méthodes de la détermination de la taille de grains, on peut citer :

- Méthode de la distribution des grains basée sur un raisonnement mathématique; elle permet de grouper les grains en différentes classes selon leur forme.
- Méthode de comptage dont le principe est le comptage du nombre des grains soit par la technique planimétrique de Jefferies, soit par la technique de la longueur interceptée de Heyn.
- Méthode de comparaison qui utilise un oculaire de comparaison, sur lequel on superpose, partiellement à l'image de la structure, l'image sur cliché pour la comparais-

on selon la méthode ASTM, ou selon les échelles Européennes de comparaison AFNOR (France) et UNIMET (Italie).

Dans notre cas, nous avons utilisé une méthode de comptage basée sur la technique planimétrique de Jefferies. Cette technique est la plus usuelle lorsqu'on cherche une estimation quantitative de la taille de grains, que ce soit dans le contrôle de la production ou dans la recherche.

Elle consiste à inscrire sur l'image de l'échantillon un cercle d'aire connue (dans notre cas c'est un cercle de 60 mm de diamètre tracé sur écran dépoli du microscope optique. On compte le nombre de grains situés entièrement à l'intérieur du cercle (N_i) et on l'ajoute ensuite à la moitié du nombre des grains coupés par la circonférence (N_c) de ce cercle. Le nombre total de grains, (N_T) sera donc: $N_T = N_i + \frac{N_c}{2}$

L'aire vraie divisée par le nombre total de grains comptés donne l'aire moyenne des grains. Si G est le grossissement de l'image qui apparaît sur l'écran dépoli, la vraie surface, A_v explorée sur l'échantillon est : $A_v = \frac{A_{obs}}{G^2}$

D'où l'aire moyenne réelle du grain qui est donnée par la relation : $A_g = \frac{A_v}{N_T}$

La détermination de la taille des grains sur des échantillons métallographiques est réalisée à un grossissement adapté à la taille de grains. Ce grossissement est choisi de façon à avoir un nombre suffisant de grains dans l'image. Nous avons pris des mesures aux différents endroits de l'échantillon.

IV.3.2 MICROSCOPIE ELECTRONIQUE A BALAYAGE (MEB)

La microscopie électronique à balayage (MEB) est une technique de microscopie basée sur le principe des interactions électrons-matière. Un faisceau d'électrons balaie la surface de l'échantillon à analyser qui, en réponse, réémet certaines particules. Différents détecteurs permettent d'analyser ces particules et de reconstruire une image de la surface. Dans la pratique, les MEB les plus conventionnels, c'est-à-dire, équipés de détecteurs d'électrons secondaires permettent d'atteindre une résolution

de l'ordre de 20 nm et un grossissement (bien que ce facteur soit moins important) qui peut aller jusqu'à 300 000 fois[74].

La microscopie électronique à balayage est utilisée principalement pour analyser la topographie de la surface d'un matériau étudié. Comparativement au microscope optique, le MEB est caractérisé surtout par sa résolution élevée et sa profondeur de champ importante.

Le principe du MEB est de balayer un échantillon par une sonde électronique fine. Cette dernière est projetée sur l'échantillon à analyser. L'interaction entre la sonde électronique et l'échantillon génère des électrons secondaires qui ne proviennent que de la zone superficielle (quelques nanomètres), de basse énergie qui sont accélérés vers un détecteur d'électrons secondaires qui amplifie le signal. A chaque point d'impact correspond ainsi un signal électrique. L'intensité de ce signal électrique dépend à la fois de la nature de l'échantillon au point d'impact qui détermine le rendement en électrons secondaires et de la topographie de l'échantillon au point considéré. Il est ainsi possible, en balayant le faisceau sur l'échantillon, d'obtenir une cartographie de la zone balayée.

Le microscope électronique à balayage est caractérisé par :

- La sonde électronique a un diamètre au niveau de l'échantillon de 3 à 10 nm. C'est la résolution limite du microscope.
- Le grandissement est égal au rapport de la largeur de balayage sur l'écran (valeur fixe) sur la largeur de balayage de l'objet. Il peut atteindre 100000 fois. Mais il existe un grandissement efficace qui est le rapport entre le pouvoir séparateur de l'œil (ε) sur le diamètre de la sonde (d_s).

$$\text{Exemple : Si } \varepsilon = 0.2 \text{ mm, } d_s = 10 \text{ nm} = 10^{-5} \text{ mm} \Rightarrow G_{\text{efficace}} = \frac{\varepsilon}{d_s} = 20000$$

- Une des particularités du microscope à balayage est sa grande profondeur de champ, qui est de l'ordre du "mm" pour un grossissement de 100. Il peut atteindre 10 μm pour un grossissement de 100000. Ceci permet l'observation facile de reliefs importants comme ceux des surfaces de ruptures.

Dans notre cas, nous avons utilisé un microscope électronique à balayage TESCAN TS 5130 avec une tension d'accélération de 20 KV, équipé d'un système EDAX

IV.3.3 CALORIMETRIE DIFFERENTIELLE A BALAYAGE (DSC)

Elle permet de mesurer les dégagements et les absorptions de flux de chaleur qui ont lieu dans un échantillon lors d'un cycle thermique programmé.

En effet, cette méthode d'analyse thermique consiste à mesurer la différence entre le flux de chaleur de l'échantillon et la substance inerte (référence) alors qu'ils sont soumis à un même programme thermique. La mesure obtenue est un flux de chaleur en fonction de la température T (programme en chauffage et/ou refroidissement continu) ou du temps t . Plus exactement on mesure une puissance, le dégagement de chaleur par unité de temps, $\frac{dQ}{dt}$

Le calorimètre différentiel à balayage utilisé est du type SETARAM DSC 92 couplé à un contrôleur CS-92. Ce dernier est relié à un ordinateur sur lequel est installé un logiciel, donnant accès à toutes les fonctions de l'appareil et permettant l'affichage des résultats ainsi que leur analyse. Ce calorimètre différentiel à balayage peut analyser des échantillons solides ou liquides. Les échantillons solides peuvent être sous forme de film, poudre, cristal, ou de granulé.

Le thermogramme consiste en un fond lisse sur lequel se superposent des pics correspondant à un dégagement ou une absorption de chaleur 'anormal' de l'échantillon.

Lors d'une réaction exothermique (précipitation d'une phase), la DSC enregistre un pic au-dessus de la ligne de base (établie de façon expérimentale par un choix judicieux de la référence, ou par reconnaissance visuelle de ce fond et on le soustrait manuellement de la courbe expérimentale) et pour une réaction endothermique (dissolution d'une phase), elle enregistre un pic au-dessous de la ligne de base; le logiciel associé à l'appareillage nous permet de connaître température de chaque pic et le résultat du calcul de l'aire formée par le pic avec la ligne de base du thermogramme.

En général, les faibles vitesses de chauffage /refroidissement garantissent un état plus proche de l'équilibre. En revanche, les grandes vitesses ont l'avantage de requérir un temps réduit pour l'essai, cependant on s'éloigne de plus en plus de l'équilibre et on perd en sensibilité à mesure que la vitesse grandit. A vitesse modérée, la résolution de pics proches en température est plus aisée. De plus, l'effet thermique qui correspond à l'aire d'un pic augmente linéairement avec la vitesse de chauffage. Ceci implique que des anomalies deviennent plus facilement identifiables à mesure que l'on augmente la vitesse, et donc deviennent comparativement plus malaisées à reconnaître à faible vitesse [7].

L'aire d'un pic est déterminée par la relation suivante :

$$\Delta C_p = f(T), \text{ soit } \Delta H = \int C_p \cdot dT \dots \dots \dots (IV.1)$$

Pour une réaction se faisant à plus haute température pour une plus grande vitesse, elle est donc plus rapide, c'est-à-dire moins étalée sur l'échelle des temps. Comme l'aire, qui correspond à l'enthalpie, doit être constante (une fois divisée par la masse), cela veut dire que le pic gagnera en intensité pour compenser la perte en largeur (sur l'échelle des temps).

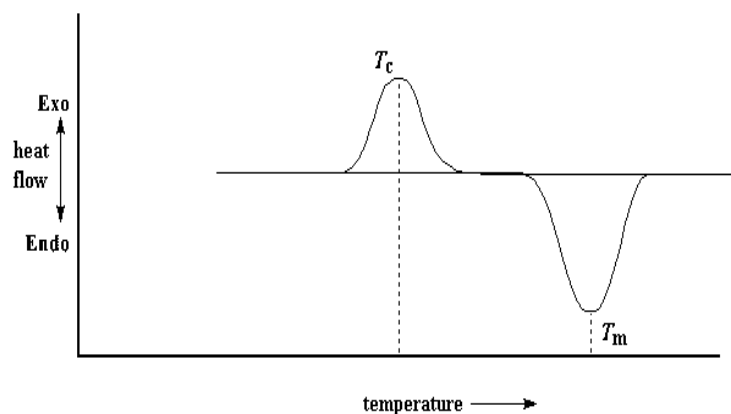


Figure IV.1 Thermogramme enregistré lors d'une analyse DSC.

Une préparation appropriée de l'échantillon qui maximise la surface de contact entre la capsule et l'échantillon réduira la résistance thermique entre l'échantillon et le capteur et aura pour conséquence une justesse et une résolution maximale.

Les meilleures formes d'échantillon pour un résultat optimum sont les disques minces, les films ou les granulés fins écrasés en une fine couche sur le fond de la capsule.

Dans nos essais, nous avons utilisé des échantillons de formes cylindriques similaires à des disques minces ayant 3 mm d'épaisseur et 5 mm de diamètre. La masse moyenne de l'échantillon est d'environ de 180 mg et une référence en aluminium pur. Les cycles thermiques appliqués à nos échantillons, comprend respectivement un chauffage à des vitesses variables de : 5, 10 , 15 et 20 °/min, de l'ambiante jusqu'à 550°C avec un temps de maintien de 5 min, suivi d'un refroidissement jusqu'à l'ambiante avec la même vitesse. Par manque de moyens, nos essais ont été effectués sans atmosphère contrôlée.

IV.3.4 DIFFRACTION DES RAYONS X (DRX)

L'analyse par diffraction des rayons X (diffractométrie X) permet de déterminer les distances interatomiques et l'arrangement des atomes dans les réseaux cristallins. Comme les rayons X sont diffractés de façon différente par les constituants du réseau suivant la construction de ce dernier, l'irradiation de la matière par rayons X permet de connaître sa nature cristallographique. L'étude des structures cristallines est effectuée avec des échantillons monocristallins, par contre pour la caractérisation des matériaux on utilise plus souvent des échantillons polycristallins ou des poudres. De nombreuses applications ont ainsi été développées permettant, par exemple, d'identifier les formes cristallographiques ou phases, de déterminer les contraintes internes et les textures, ou encore de caractériser la surface d'un matériau.

En faisant interagir sous un angle θ , avec un cristal qui peut être composé d'une famille des plans atomiques parallèles situés à la même distance réticulaire, un faisceau parallèle de rayons X monochromatique de longueur d'onde λ .

Le rayonnement diffracté doit vérifier la condition de Bragg [43]:

$$2 d_{hkl} \sin \theta = n \lambda \dots\dots\dots (IV.2)$$

Cette relation est fondamentale dans toutes les techniques de diffraction des RX.

Elle comporte trois paramètres d_{hkl} , θ , et λ . Le terme d_{hkl} est déterminé par la nature de cristal.

Il existe plusieurs méthodes expérimentales d'étude de la géométrie cristalline. Elles reposent sur l'interprétation des figures de diffraction. L'une a pour objet la détermination des distances réticulaires. Les autres visent l'étude de la symétrie du cristal. Dans chacune des méthodes, l'obtention des figures de diffraction impose des conditions.

La diffractométrie donne des pics de diffraction, ou encore des diffractogrammes.

Cette propriété simplifie beaucoup le travail quantitatif sur la diffraction X. La caractéristique fondamentale de la diffractométrie est qu'elle donne directement une information numérique sur l'intensité de diffraction.

En ce qui nous concerne, nous avons utilisé un diffractomètre de poudre, BRUCKER ADVANCE D8, monté en géométrie à haute résolution. L'intervalle angulaire qu'il permet de mesurer s'étend de 10 à 120° sur l'échelle 2θ .

Le balayage de cet intervalle ne se fait pas à pas, la longueur du pas étant 0,02° toujours sur l'échelle 2θ .

La source de rayonnement X utilisée a une cible en Cu, la radiation émise est le doublet $K_{\alpha 1} - K_{\alpha 2}$ du cuivre (notée Cu- K_{α}).

Le diffractogramme obtenu est composé d'une série de pics avec des maxima à des intensités variables, correspondant à l'angle de diffraction. Le bruit de fond est dû aux fluctuations statistiques du processus de comptage, ainsi qu'une diffusion parasite des rayons X (comme la fluorescence de l'échantillon). Pour corriger cet effet [76], on peut avoir recours à un monochromateur du côté du rayon diffracté, qui est une solution générale, ou encore choisir une autre radiation pour l'application spécifique que l'on cherche. Le diffractomètre donne donc deux grandeurs pour chaque pic l'angle de diffraction 2θ du pic et l'intensité de diffraction $I(2\theta)$. La première permet de déterminer la distance interréticulaire de diffraction de la famille de plans responsable de l'apparition de ce pic, par application directe de la relation de Bragg.

La deuxième grandeur, l'intensité, permet sous certaines conditions de déduire la structure de l'échantillon étudié, pour peu que cette structure possède un ordre approprié.

L'intensité comporte aussi une information qualitative qui peut se révéler intéressante. Un échantillon texturé à une distribution d'intensités qui écarte de celle mesurée en l'absence de texture. Cette dernière mesure devrait être tabulée dans les volumes de spectre standard, par exemple, le fichier ASTM. En effet, si les intensités de certains pics dévient remarquablement des valeurs rapportées dans le fichier ASTM, il est probable que l'échantillon est texturé [7]. En plus de ces deux grandeurs, la forme des pics de diffraction contient aussi des informations sur l'échantillon analysé.

La théorie classique de diffraction prévoit des largeurs extrêmement faibles pour le pic de diffraction, de l'ordre de la seconde d'arc. En effet les facteurs qui contribuent à l'élargissement des pics de diffraction correspondent aux écarts de la pratique (aberrations instrumentales) par rapport aux hypothèses du calcul théorique.

Quant à l'état microstructural de l'échantillon, il y a au moins trois sources d'élargissement du pic de diffraction qui ne sont dues qu'à l'échantillon seul [7]: la taille des cristallites, les contraintes résiduelles (ou internes) et les fautes d'empilement. Un échantillon présentant une de ces trois sources, aura des pics de diffraction élargis. La diffraction X permet à partir de la structure cristalline de mettre en évidence la nature des phases en présence. La recherche de phase s'effectue par analyse du spectre et comparaison à des fiches ASTM en attribuant un facteur de mérite qui qualifie la justesse de la comparaison. Concernant les mesures des textures, ces dernières peuvent être visualisées sur les diffractogrammes. En effet, bien que la position angulaire corresponde à la fiche étalon, les rapports entre les intensités diffractées peuvent être modifiés jusqu'à l'extinction de certaines raies. Les orientations préférentielles (textures) sont généralement représentées par des figures de pôles. Elles consistent à mesurer l'intensité diffractée pour une famille de plans $\{hkl\}$ dans toutes les directions, et à en donner une représentation bidimensionnelle sous la forme d'une projection stéréographique, nommée figure de pôles.

La mesure de figures de pôles pour plusieurs familles $\{hkl\}$ permet de calculer la Fonction de Distribution des Orientations qui donne une représentation tridimensionnelle de la texture. Pour l'analyse des contraintes, la diffraction X permet de déterminer les distances interréticulaires dans les matériaux cristallisés. Ainsi, si on utilise le réseau cristallin comme jauge de déformation, il est possible de déterminer les contraintes internes dans les différentes phases d'un matériau déformé. Ces contraintes sont liées à des déformations élastiques du réseau cristallin. Au travers de la loi de BRAGG les variations de la distance interréticulaire dues aux déformations macroscopiques se manifestent par un déplacement des pics de diffraction, tandis que les microdéformations se manifestent par un élargissement des raies. Les effets sont d'autant plus importants que l'angle de diffraction 2θ est proche de 180° . On observe généralement une superposition des macro- et des microdéformations qui complique le dépouillement.

Dans notre investigation, la diffractométrie X est essentiellement utilisée pour mettre en évidence les phases formées et de suivre leur évolutions, après avoir subi aux échantillons d'un alliage Al-Mg-Si des différentes séries de traitements de durcissement structural (maturation et vieillissement artificiel).

Aussi, nous nous intéressons à l'appréciation de l'état mécanique (texture, contraintes internes) de ces échantillons. Cet examen reste cependant approximatif.

IV.3.5 MICRO DURETE

Elle permet la mesure de la dureté des matériaux sans les endommager. La dureté d'un métal est définie comme la résistance qu'il oppose à la pénétration d'un autre corps plus dur que lui. Pour des conditions expérimentales données, la dureté du métal est d'autant plus grande que la pénétration du corps est plus faible.

L'appareil utilisé est un microduromètre semi-automatique du type ZWICK à pénétration Vickers sous une charge de mesure de 300 g lié à un micro-ordinateur qui permet la mesure automatique de microdureté grâce à un logiciel approprié.

Le principe de l'essai consiste à exercer sur la surface de l'échantillon à étudier une force constante pendant un temps (t) donné à l'aide d'un poinçon en diamant très dur appelé pénétrateur, ce dernier a une forme pyramidale à base carrée, la dureté Vickers (Vickers Hardness) est alors définie par le quotient de la charge appliquée F par la surface de l'empreinte permanente S.

F : la charge appliquée (en kg) par le pénétrateur ;

S : la surface latérale (en mm²) de l'empreinte pyramidale. Elle est définie

$$\text{par :} \quad S = \frac{1}{2} \frac{d^2}{\sin\left(\frac{\theta}{2}\right)} \quad \Rightarrow$$

$$H_v = \frac{1.854F}{d^2} \quad (\text{kgf/mm}^2) \dots \dots \dots (\text{IV.3})$$

Avec l'angle θ , au sommet entre deux faces opposées, est de $136^\circ \pm 0,5^\circ$

Il suffit de mesurer la longueur de la diagonale de la base carrée de l'empreinte pour accéder à la valeur de la dureté Vickers; on tire les valeurs de la dureté à partir de deux longueurs d_1 et d_2 des deux diagonales et on fait la moyenne et ceci est répété pour dix empreintes; on prend ensuite la valeur moyenne de ces dix mesures, laquelle sera prise comme la valeur de H_v pour le matériaux (ou l'état) étudié.

Les essais que nous avons réalisés sous une charge très faible (300 g) sont appelés essais de microdureté. L'empreinte de quelques dizaines de micromètres obtenue est mesurée

à l'aide d'un microscope dont est doté le microduromètre ; cet appareil permet éventuellement une étude très localisée de la surface.

L'épaisseur des pièces minces doit limiter le choix de F; on peut considérer que l'épaisseur minima, la charge et la dureté interviennent dans la formule [61]:

$$a - 10 f = 1,945 \sqrt{F / H_v} \dots\dots\dots (IV.4)$$

Avec f représente la profondeur de l'empreinte (mm) et a est l'épaisseur minima (mm)

IV.3.6 DILATOMETRIE DIFFERENTIELLE

L'analyse dilatométrique consiste à enregistrer les variations de longueur d'un échantillon en fonction de la température ou du temps. La dilatométrie différentielle consiste à amplifier la différence de dilatation entre un échantillon que l'on étudie et un étalon dont on connaît les propriétés. Elle permet de détecter les changements de phase (transformation allotropique, phénomène de précipitation, les points de curie, les transformations ordre désordre des alliages). Egalement, elle permet d'étudier la variation du coefficient d'expansion thermique en fonction de la température.

L'interprétation des courbes obtenues consiste à déterminer les différentes étapes des transformations, tout en précisant s'il y a une contraction ou dilatation.

L'intérêt de la courbe dérivée en dilatométrie est pour mettre en évidence des transformations qui s'effectuent avec de faibles variations de volume .

Le dilatomètre utilisé est du type DIL 402C NETTZSCH4, dont la gamme de température allant de : 25°C à 1600°C

Les vitesses de chauffe et refroidissement sont : 0.01°C/min à 50°C/min

La gamme de mesure de 500/5000 µm , avec une résolution Δl : 8 nm

Le DIL 402 C fonctionne avec le logiciel Proteus sous MS Windows. Ce logiciel inclut toutes les données nécessaires pour effectuer une mesure et en évaluer les résultats. En général, il permet aisément le traitement des courbes de dilatation $\frac{\Delta L}{L_0}$ en fonction du temps ou de la température et le coefficient d'expansion thermique dans l'intervalle de température imposé pour chaque segment du cycle thermique programmé.

Quant à nos essais dilatométriques, le cycle thermique imposé à nos échantillons consiste en un chauffage dans l'intervalle de température allant de 25 à 550°C, avec une vitesse de 10°/min, suivi d'un refroidissement à la même vitesse.

Nous avons effectué des mesures de coefficient dilatation α (T) selon les deux directions dans l'intervalle de températures de 25 à 550 °C. Les dimensions des échantillons sont : 5 mm x 20 mm (largeur x longueur), selon les deux directions : la direction parallèle au sens de laminage et la direction perpendiculaire au dans le plan de laminage. Les essais ont été effectués sous une atmosphère contrôlée.

CHAPITRE V

RESULTATS ET DISCUSSIONS

V.1 MICROSCOPIE OPTIQUE

L'évolution de l'état structural des échantillons, ayant subi divers traitements thermiques, a été suivie à l'aide d'un microscope optique à grand champ 500 du type AXIVERT 25CA équipé d'une caméra photographique qui permet l'obtention des micrographies de différentes microstructures en utilisant différents grossissements. L'examen des microstructures, nous a permis la mesure de la taille des grains des échantillons.

V.1.1 ETAT BRUT

La microstructure à l'état brut des échantillons prélevés à partir de la tôle à l'état de réception est présentée sur la figure V.1. Cette microstructure révèle une répartition plus ou moins irrégulière de la taille des grains. En effet, cette micrographie montre l'existence de certains précipités à l'intérieur des grains.

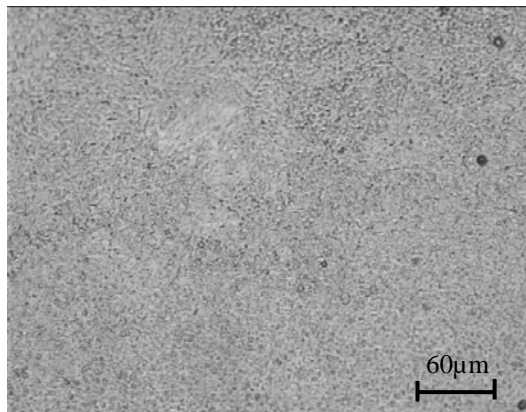


Figure V.1 Micrographie d'un échantillon à l'état brut de coulée

V.1.2 ETAT HOMOGENEISE

La mise en solution des différents échantillons portés à 530°C et maintenus pendant (01) une heure a conduit à une microstructure caractéristique du domaine monophasé qui semble pratiquement homogène, caractérisée par une distribution plus ou moins

uniforme des tâches sombres qui peuvent être attribuées à la formation des précipités [α -AlFeSi, α -AlFe(Mn)Si] stables à haute température, figure V.2 .

V.1.3 ETAT VIEILLI

Après avoir homogénéisé à 530°C pendant une (01) heure et trempé à l'eau, les différents échantillons ont subi des vieillissement direct aux températures : 180, 250, 400 °C respectivement pendant 1h. Les microstructures obtenues sont présentées sur la figure V. 3

La taille moyenne des grains est d'environ 60 μm (figure V.3), on peut constater que notre alliage est caractérisé par une grosseur un peu large moyennant autres alliages Al-Mg-Si contenant des éléments d'addition qui affinent la taille et forment des dispersoïdes (Cu , Mn, etc..). Ceci est consolidé par les résultats des travaux obtenus par d'autres chercheurs [8, 47].

L'observation par microscope optique des échantillons traités thermiquement à des températures inférieures ou égales à 400°C, n'a révélée aucune différence en microstructure entre les différents échantillons en fonction du temps de vieillissement. La taille et la distribution de particules restent pratiquement invariantes dans les échantillons traités à des températures inférieures à 400 °C.

En revanche, dans le cas des échantillons traités thermiquement au delà de 400°C, la taille des particules s'accroît d'une manière appréciable. La figure V. 3(c) illustre la distribution de ce type de particules dans les échantillons traités thermiquement à la température 400°C, déjà observées à l'état brut. La formation de ces particules est principalement due à la présence du Fe et Mn, en plus de l'excès de Si.

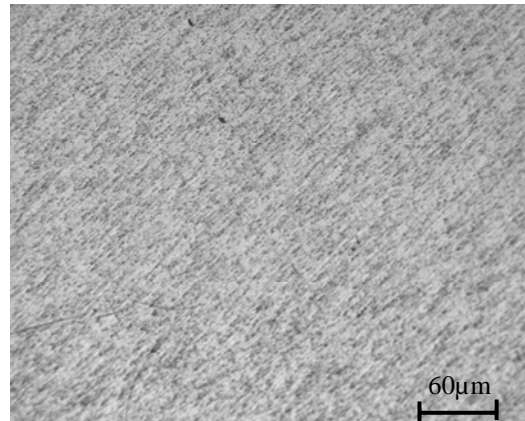


Figure V.2 Microstructure d'un échantillon homogénéisé 1h à 530°C

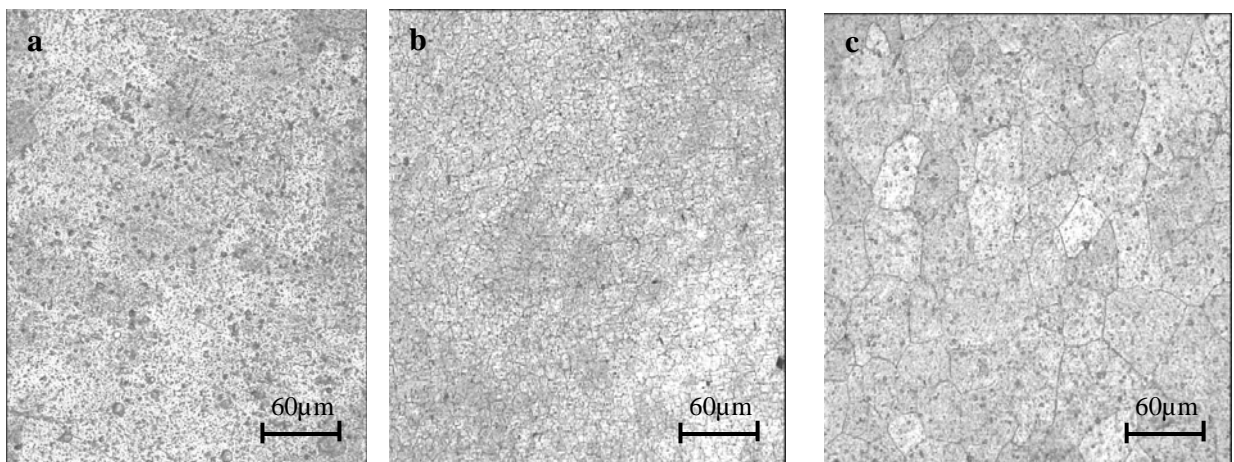


Figure V.3 Microstructures des échantillons vieillis

- a) 1h à 180 °C
- b) 1h à 250 °C
- c) 1h à 400 °C

V.2 MICROSCOPIE ELECTRONIQUE A BALAYAGE (MEB)

La figure V.4 , montre les micrographies des échantillons respectivement, à l'état de réception , vieilli à 180°C pendant 4 heures et 24 heures , obtenues par microscopie électronique à balayage (MEB).

La micrographie, figure V.4(a), de l'échantillon tel que reçu, sans lui faire subir un traitement thermique révèle la présence de précipités de petites tailles, repartis aléatoirement dans la matrice.

Les micrographies des figures V.4 (b), (c) et (d) montrent également, l'existence de précipités dispersés dans la matrice. La taille et la densité de ces précipités varient en fonction de la durée de maintien à la température de vieillissement.

Toutes les micrographies montrent deux types de précipités, l'un apparaît clair et très fin et l'autre sombre et relativement gros. Pour déterminer la composition chimique de ces précipités, il est nécessaire d'en effectuer l'analyse par EDAX (Energy Dispersive X-ray analysis). Selon des travaux d'analyses des précipités effectués sur des alliages similaires [8], les deux types de précipités observés peuvent être attribué à la phase α -AlFeSi et/ou la phase α -AlFe(Mn)Si stables à haute température.

La présence du Mn en plus du Fe, favorise l'apparition la phase du type α -AlFeMnSi. Elle est plus répandue après un traitement thermique à hautes températures.

La formation des dispersoïds dans les alliages Al-Mg-Si, est due à la présence du Mn ou Cr et le fer. Leur interface avec la matrice α -aluminium constitue un site de germination préférentielle pour des phases. Le Cu et le Mn ou Cr sont introduits pour contrôler la taille du grain et pour donner une meilleure résistance mécanique aux alliages [7], figure V.4 (c).

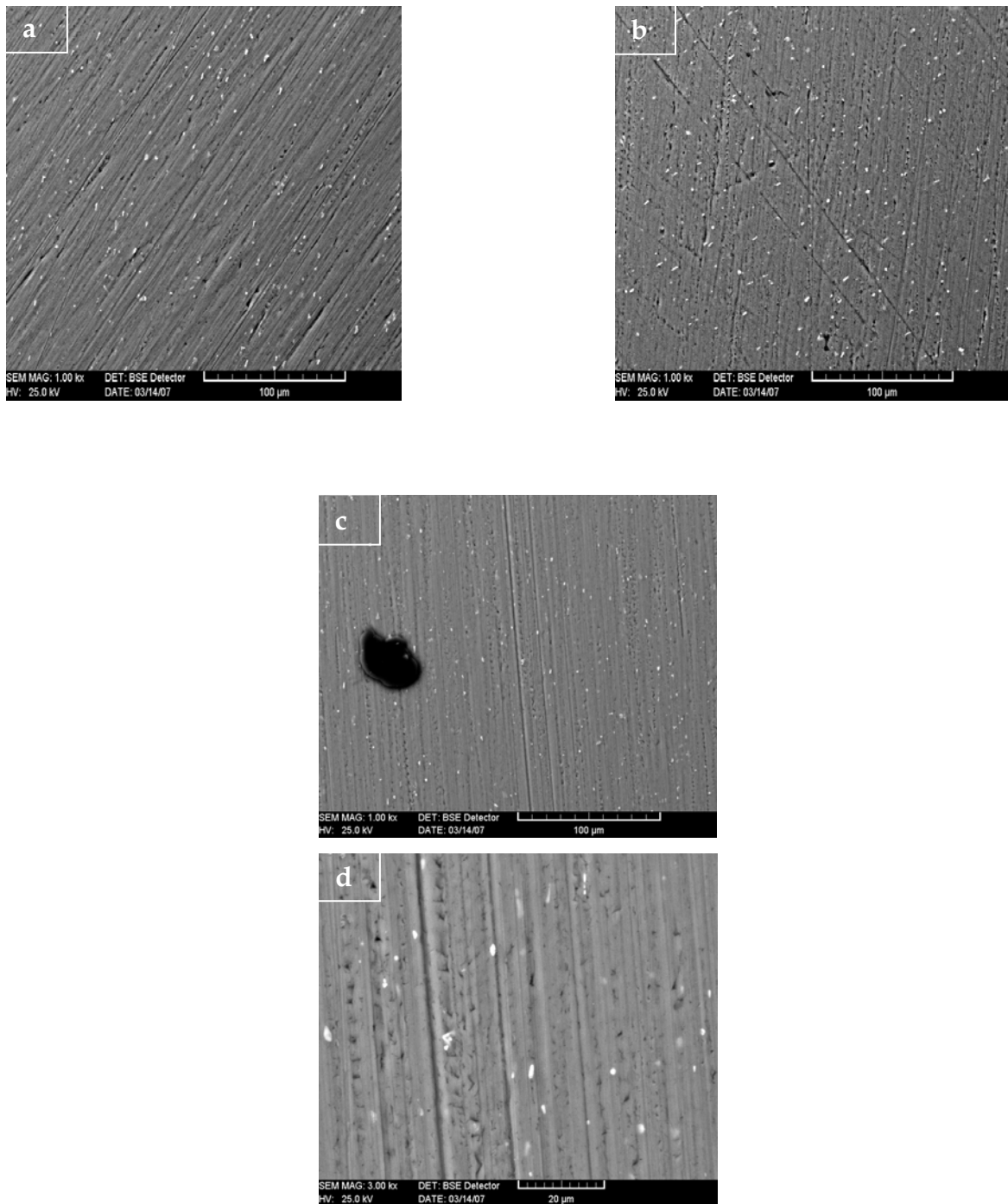


Figure V.4 Microstructures obtenues par MEB

a) Etat de réception

b) Etat vieilli 4 h à 180°C

c) et d) Vieilli 24 h à 180 °C

V.3 DIFRACTION DES RAYONS X

Les spectres de diffraction des rayons X des échantillons étudiés à l'état brut et à l'état homogénéisé sont illustrés sur la figure V.5. L'intensité rapportée est l'intensité relative, les intensités ont été normalisées de façon à ce que le pic le plus intense ait une intensité (100) en unités arbitraires (u a). Selon les fiches ASTM, les pics enregistrés correspondent à la structure de la matrice α -aluminium (C.F.C.). Néanmoins, la réflexion la plus intense remarquée c'est celle due aux plans (200) et non celle due aux plans (111), comme prescrite par les fiches ASTM. Ceci suppose l'existence d'une orientation privilégiée (texture), étant donné que notre alliage est un profilé obtenu par laminage. Les échantillons à l'état brut et homogénéisé sont donc tous texturés avec leurs plans (100)_{Al} parallèles au plan de laminage [7].

La figure V.6 représente le spectre de diffraction RX des échantillons vieillis à 180°C et maintenus respectivement : 30 min , 2 h , 4h , 6h, 8h, et 12 h. A l'exception de l'échantillon vieilli pendant 30 min qui présente une raie intense à 111.17°, dont l'apparition ne peut être affectée qu'à la présence de la phase d'équilibre Mg₂Si. Les autres échantillons ne montrent que des raies correspondantes à celles de la matrice α -aluminium. Ceci est probablement dû à la faible fraction volumique des phases intermétalliques présentes.

Les diffractogrammes des échantillons vieillis respectivement à 300, 450 et 550°C pendant (01) une minute sont illustrés sur la figure V.7.

Quant à l'échantillon traité à 300°C , nous enregistrons l'apparition d'une raie intense en 75.25 ° située entre les deux raies (220) et (310), cette raie peut être attribuée à la phase d'équilibre Mg₂Si qui s'est formée lors de la décomposition de la solution solide sursaturée α -aluminium. Aussi, nous constatons que la composante de la texture observée dans les échantillons à l'état brut et homogénéisée est disparue dans les échantillons traités à 300°C .

Les spectres des échantillons vieillis à 450 et 550 °C présentent des raies caractéristiques de la matrice d'aluminium, similaires à celles obtenues à l'état brut. Néanmoins, Leurs intensités sont supérieures.

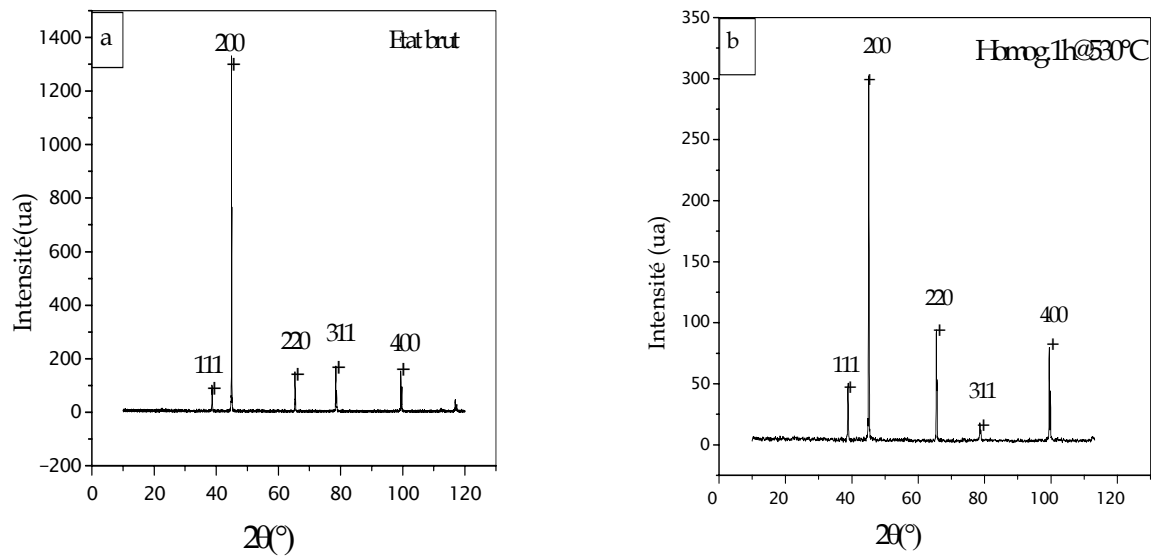


Figure V.5 Spectres de diffraction des rayons X

a) état brut

b) homogénéisé 1h 530°C

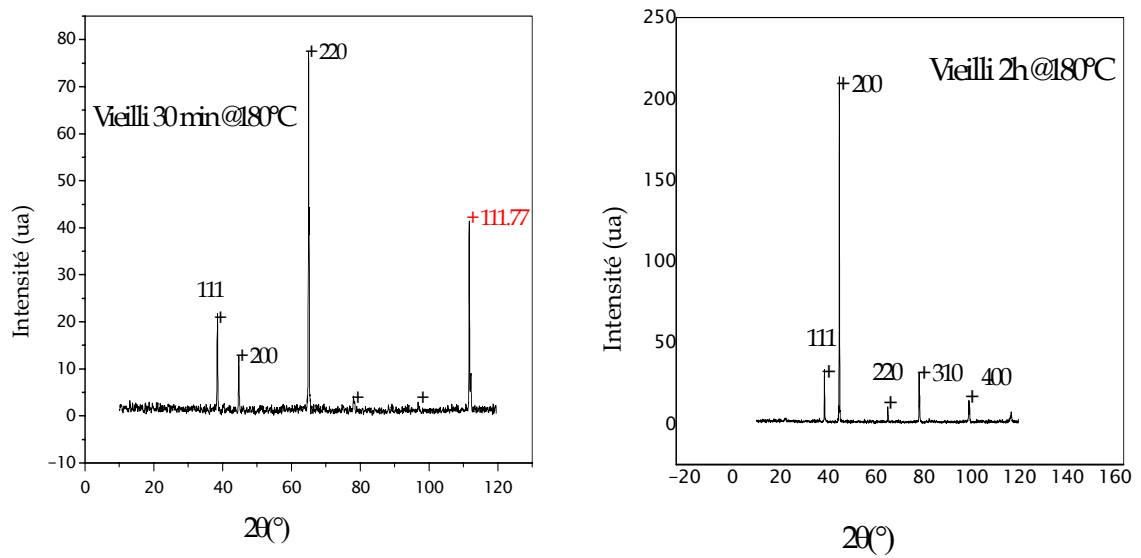


Figure V.6 Diffractogrammes des échantillons vieillis à 180°C pour différents temps de maintien.

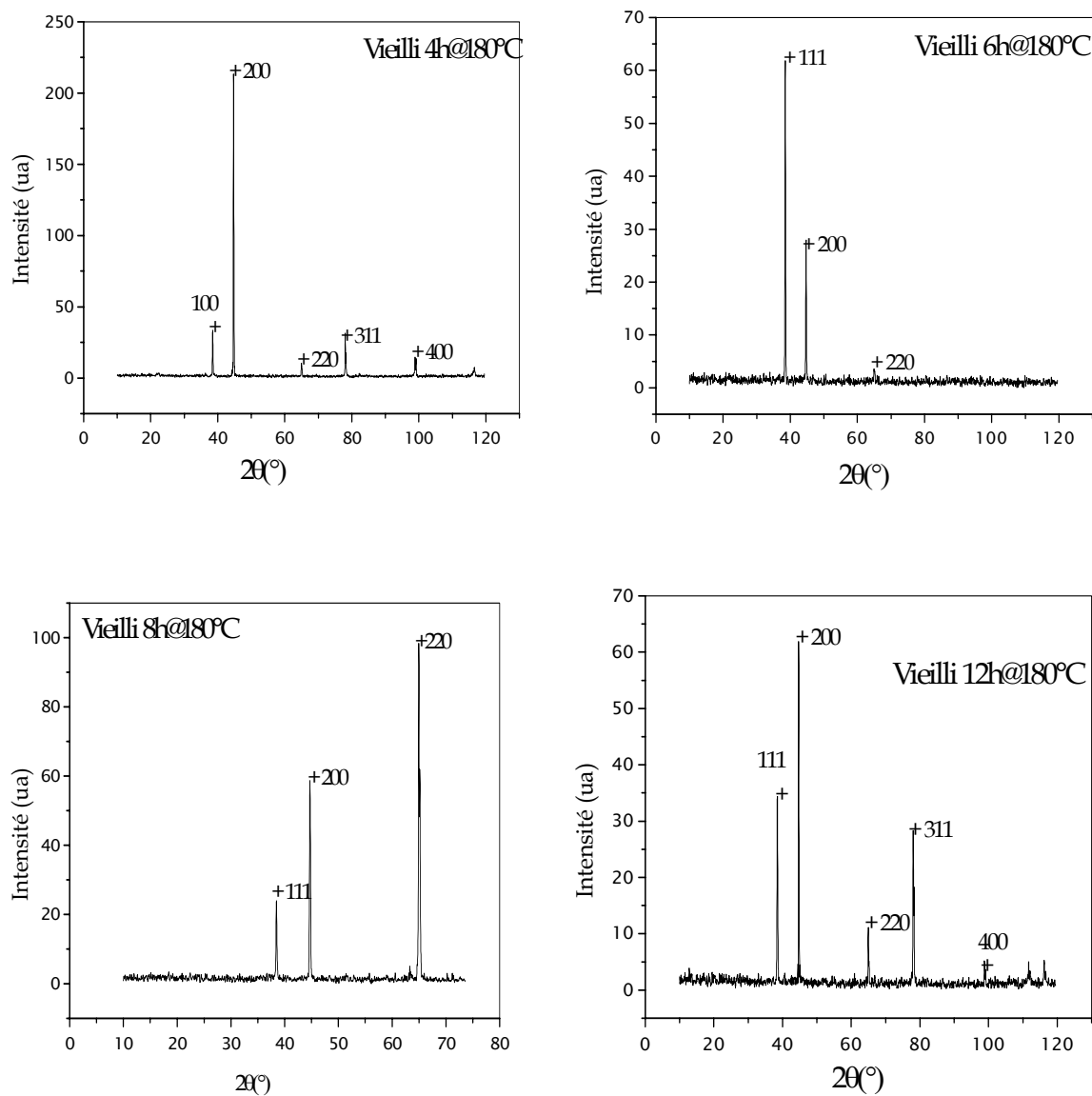


Figure V.6 Diffractogrammes des échantillons vieillis à 180°C pour différents temps de maintien.

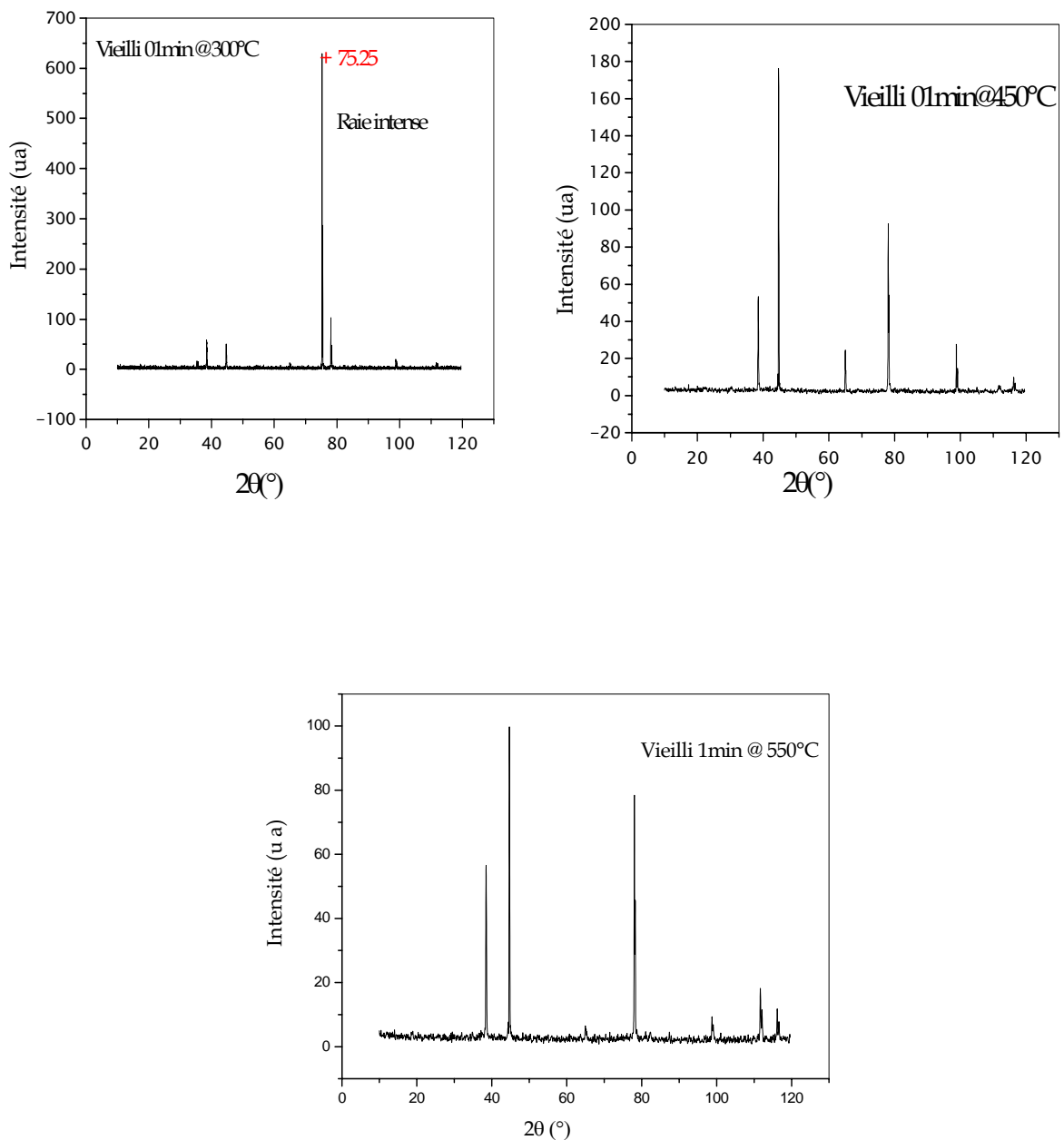


Figure V.7 Diffractogrammes des échantillons vieillis aux températures 300 , 450 et 550 °C pendant une (01) minute.

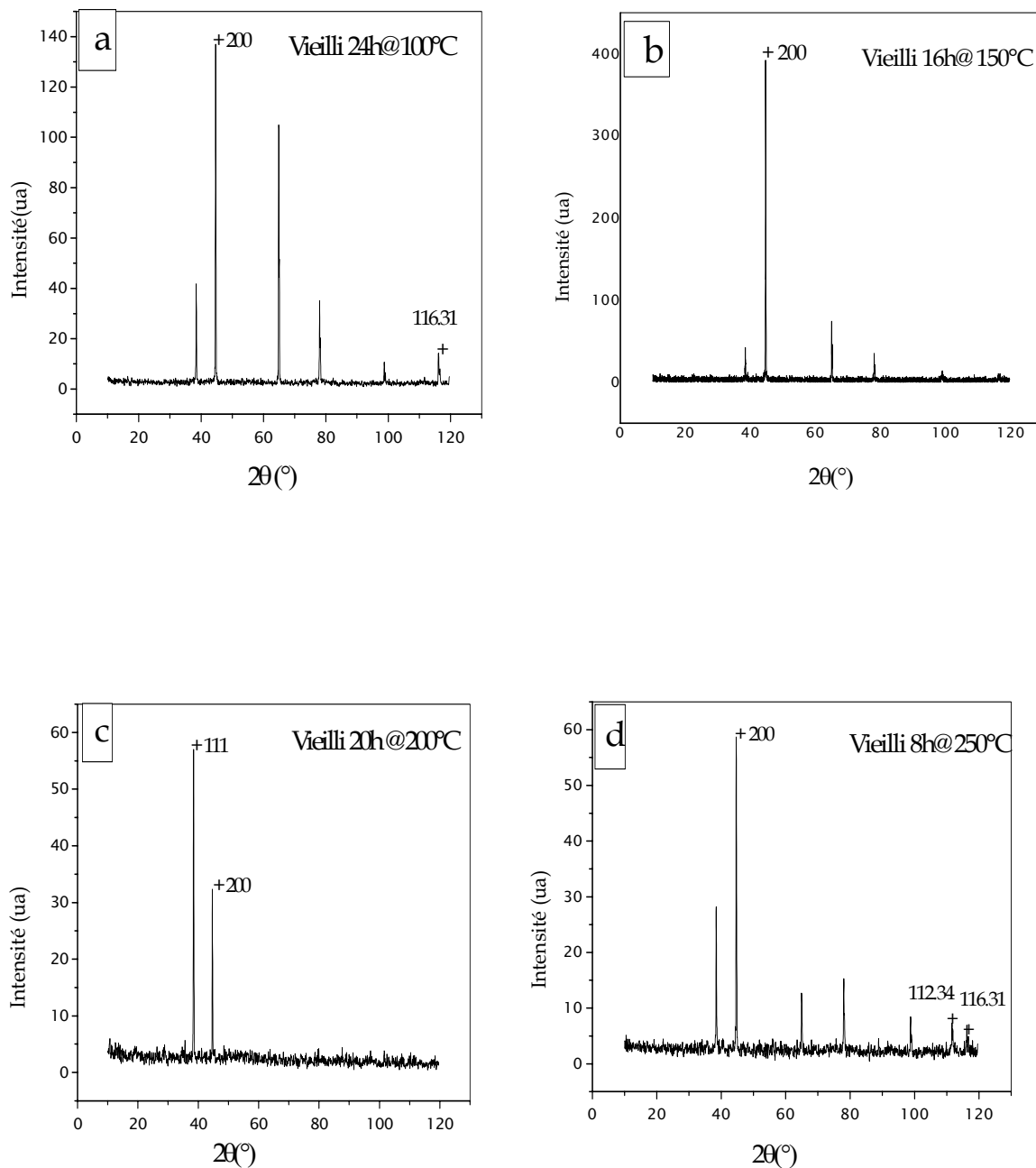


Figure V.8 Spectres de diffraction des rayons X des échantillons présentant des pics de dureté.

a) Vieilli pendant 24h à 100°C

b) Vieilli pendant 16h à 150°C

c) Vieilli pendant 20h à 200°C

d) Vieilli pendant 8h à 250°C

Par ailleurs, il est à constater que le vieillissement pendant 6h a provoqué une disparition de la composante de la texture développée à l'état de réception. Les spectres de diffraction des échantillons traités et qui ont présentés des valeurs de dureté (Hv) élevées sont montrés sur la figure V.8.

Nous constatons que les deux échantillons traités respectivement à 100°C pendant 24h et 16h à 250 °C montrent des raies appartenant à des phases intermétalliques qui, apparemment, selon plusieurs chercheurs sont attribuées à la phase durcissante β'' [7, 8,15, 49].

V. 4 CALORIMETRIE DIFFERENTIELLE (DSC)

V.4.1 ETABLISSEMENT DE LA SEQUENCE DE PRECIPITATION :

La technique expérimentale la plus essentielle de notre travail, a été celle de l'analyse calorimétrique des échantillons. Nous avons utilisé un calorimètre-SETARAM, type DSC-92, qui atteint une température à l'utilisation de 530°C. La vitesse de chauffage peut être réglée par incréments de 0.01°C/min à 30°C/min. Les creusets utilisés sont en aluminium et qui n'ont pas servi auparavant. Le calorimètre fonctionne avec un logiciel donnant accès à toutes les fonctions de l'appareil et permettant l'affichage des résultats.

La masse des échantillons a été choisie pour être la plus proche possible de celle de la référence (en aluminium pur). Les échantillons ont à chaque essai été déposés de façon à maximiser la surface de contact entre l'échantillon et le fond de creuset.

Pour chaque échantillon, état de réception et homogénéisé 01h à 530°C et trempé à l'eau, nous avons tout d'abord procédé à un essai fait à une vitesse de chauffage de 10°C/min.

Ayant terminé ces essais, nous avons ensuite procédé à une série de quatre essais sur des échantillons homogénéisés et trempés à l'eau, faites à des vitesses de chauffage différentes (05, 10, 15, et 20 °C/min).

L'établissement de la séquence de précipitation a été suivi par l'analyse calorimétrique différentielle faite à la vitesse de chauffage de 10°C/min effectuée sur des échantillons ayant subis une mise en solution à la température de 530 °C pendant une heure (01) suivi d'une trempe à l'eau.

Le thermogramme, figure V.9 (a) de l'échantillon à l'état brut présente des pics exothermiques au voisinage des températures 50 , 290 et 401 °C et des pics endothermiques au alentour des températures suivantes : 205 , 374 et 445 °C.

Dans la figure V.9 (b) on présente le thermogramme de DSC, des échantillons homogénéisés puis trempés à l'eau, en utilisant une vitesse de chauffage de 10°C/min.

La courbe correspondante à notre alliage révèle en alternance deux pics apparents exothermiques et trois pics endothermiques.

Les pics exothermiques sont situés respectivement, dans l'intervalle de température : 180 - 316°C pour le pic A et 320- 375°C pour le pic B. Conformément à la séquence de précipitation acceptée communément par plusieurs chercheurs pour les alliages pseudo binaire, type Al-Mg₂Si, le pic A est attribué à la formation des deux phases intermédiaires β'' et β', ce qui confirme les résultats obtenus par les auteurs [8, 64]. La phase β'' s'est formée aux dépens des zones GP et/ou clusters de Mg et Si. Il est apparent que ce pic s'est produit suite au chevauchement des deux réactions. Donc on peut conclure que les deux réactions β'' et β' interagissent entre elles.

Le pic B, est par conséquent, ne peut être attribué qu'à la formation de la phase stable β, résultante de la réaction de décomposition de la solution solide sursaturée et les particules de Si, du fait que notre alliage contient un excès de silicium.

Les pics endothermiques apparaissant aux températures: 110°C (pic (a)), 391°C (pic (b)) et 453°C (pic (c)). Le pic (a) correspond à la dissolution des zones GP. Le pic (b) est attribué à la dissolution des deux phases métastables β'' et β'. Tandis que le pic (c) correspond à la dissolution de la phase d'équilibre β ainsi que les particules de Si.

Nous constatons qu'à l'exception du pic B, les autres pics enregistrés dans le cas des échantillons à l'état brut sont caractérisés par des faibles intensités et sont déplacés vers les basses températures, comparativement à l'état homogénéisé puis trempé.

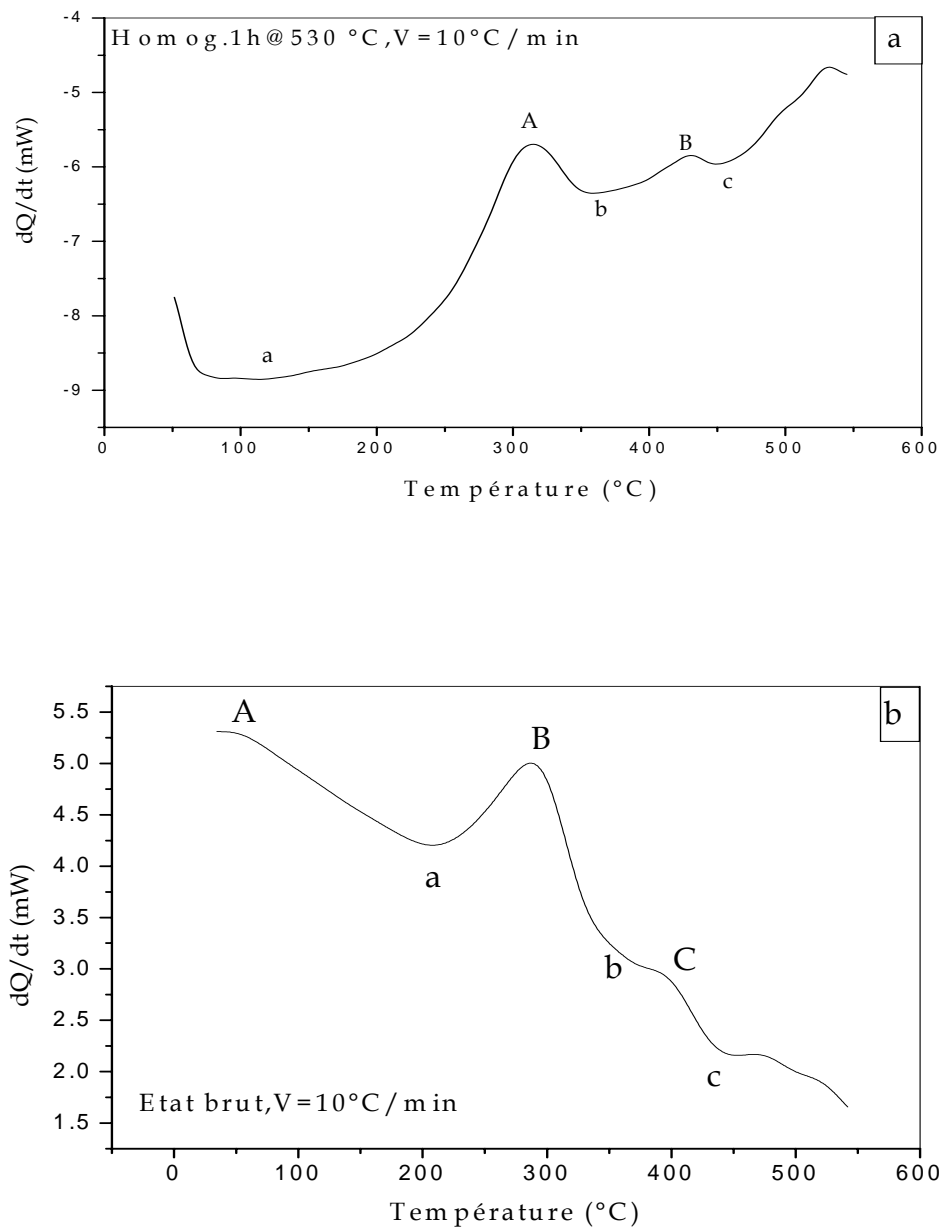


Figure V.9 Thermogrammes DSC obtenus par une vitesse de chauffage de $10^{\circ}C/min$
a) Etat brut
b) Etat homogénéisé et puis trempé à l'eau

V.4.2 CINÉTIQUE DES REACTIONS

La cinétique de réaction (précipitation et dissolution des précipités) est toujours reliée aux concepts des énergies d'activation et de l'ordre de réaction. En effet il existe un grand nombre de méthodes de calcul d'énergie d'activation. Des différentes méthodes ont été appliquées telles que la méthode de Kissinger, la méthode d'Ozawa [38] etc. pour évaluer les énergies d'activation efficaces pour la précipitation et le processus de dissolution dans des conditions anisothermes. En mesurant un paramètre physique approprié pendant une transformation de phase, il est possible de tracer l'évolution de cette transformation de phase en fonction du programme température-temps auquel le matériau est soumis.

Le degré de transformation f ($0 \leq f \leq 1$) peut être calculé à partir de telles données. L'historique du matériau du point de vue thermique détermine le degré de transformation. La fraction transformée ne dépend pas du temps ou de température d'une manière directe, d'où une variable α est présentée qui détermine entièrement le degré de transformation, et dépend de l'histoire thermique.

V.4.2.1 DETERMINATION DE L'ÉNERGIE D'ACTIVATION

L'analyse d'une réaction thermiquement activée est habituellement commencée après la détermination de l'énergie d'activation E . Une fois E est déterminée, la combinaison de la valeur E et une courbe simple de transformation fournit essentiellement la solution pour la détermination du triplet cinétique ($E, k_0, f(\alpha)$) et détermine ainsi la cinétique de la réaction. De là, il sera clair que la détermination de l'énergie d'activation soit l'étape cruciale dans l'analyse.

Par conséquent, l'objectif de la détermination de l'énergie d'activation n'est pas seulement la première étape pour déterminer les paramètres cinétiques, mais il mène aussi à un meilleur arrangement des mécanismes de la réaction thermiquement activée. Pour des expériences avec des vitesses de chauffage linéaire, les énergies d'activation des réactions peuvent être dérivées d'un ensemble d'expériences exécutées à différentes vitesses de chauffage.

Parmi les méthodes utilisées pour la détermination de l'énergie d'activation d'une réaction donnée, on propose celle qui est considérée relativement simple « méthode de Kissinger » [21, 44, 70].

V.4.2.2 METHODE DE KISSINGER-AKAHIRA-SUNOSE (KAS)

Cette méthode [21] repose sur l'hypothèse selon laquelle, au cours de la montée en température, la réaction passe par un maximum avant de décroître, grâce à la relation

suivante :

$$\ln \left(\frac{T_p^2}{V} \right) = \frac{E_a}{RT_p} + c$$

$$c = \ln \left(\frac{E_a}{Rk_0} \right)$$

D'où l'indice (p) indique la position du pic considéré, R constante des gaz parfaits E_a est l'énergie d'activation et C est une constante.

La représentation de $\ln \left(\frac{T_p^2}{V} \right)$ en fonction $\frac{1}{T_p}$, en échelle semi-logarithmique, nécessite la connaissance de température de pic en question (T_p) correspondante à chaque vitesse de chauffage, pour laquelle la transformation (précipitation ou dissolution) est maximale, dont le coefficient $\frac{E_a}{R}$ représente la pente de la droite ainsi obtenue.

Pour cela, nous avons entrepris la réalisation d'une étude cinétique, par le calcul des énergies d'activation par la méthode de Kissinger [39, 44, 70].

Nous avons procédé à une série de quatre mesures, effectuées à différentes vitesses de chauffage : 5, 10, 15 et 20°C/min. Les thermogrammes DSC, ainsi enregistrés sont illustrés sur la figure V.10

La superposition des différents thermogrammes, figure V.11 montre que les pics sont généralement intenses et se décalent vers les hautes températures et le bruit de fond diminue avec l'augmentation de la vitesse de chauffage.

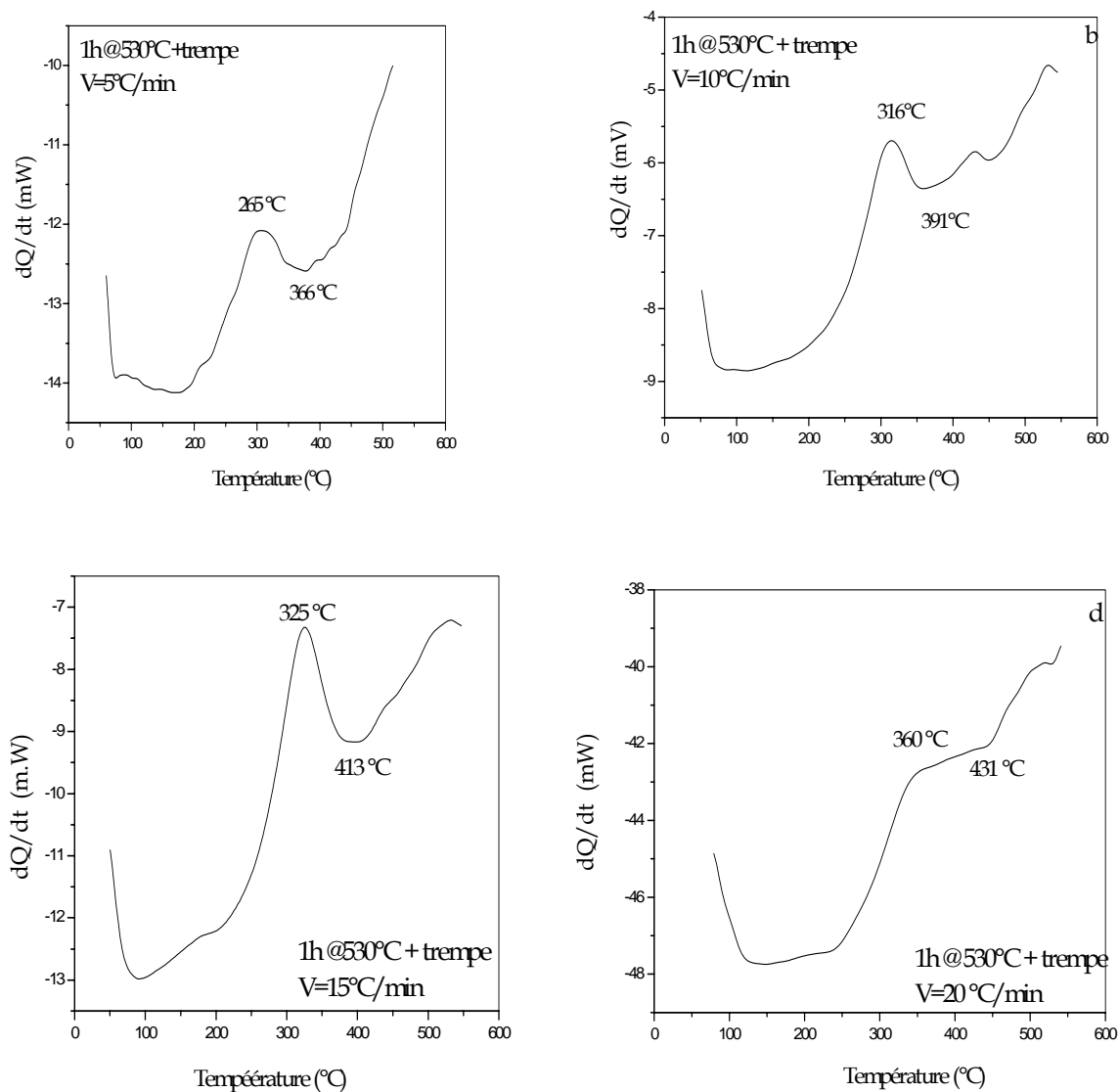


Figure V.10 Thermogrammes DSC obtenus à différentes vitesses de chauffage

- (a) 5 °C/min
- (b) 10 °C/min
- (c) 15 °C/min
- (d) 20 °C/min

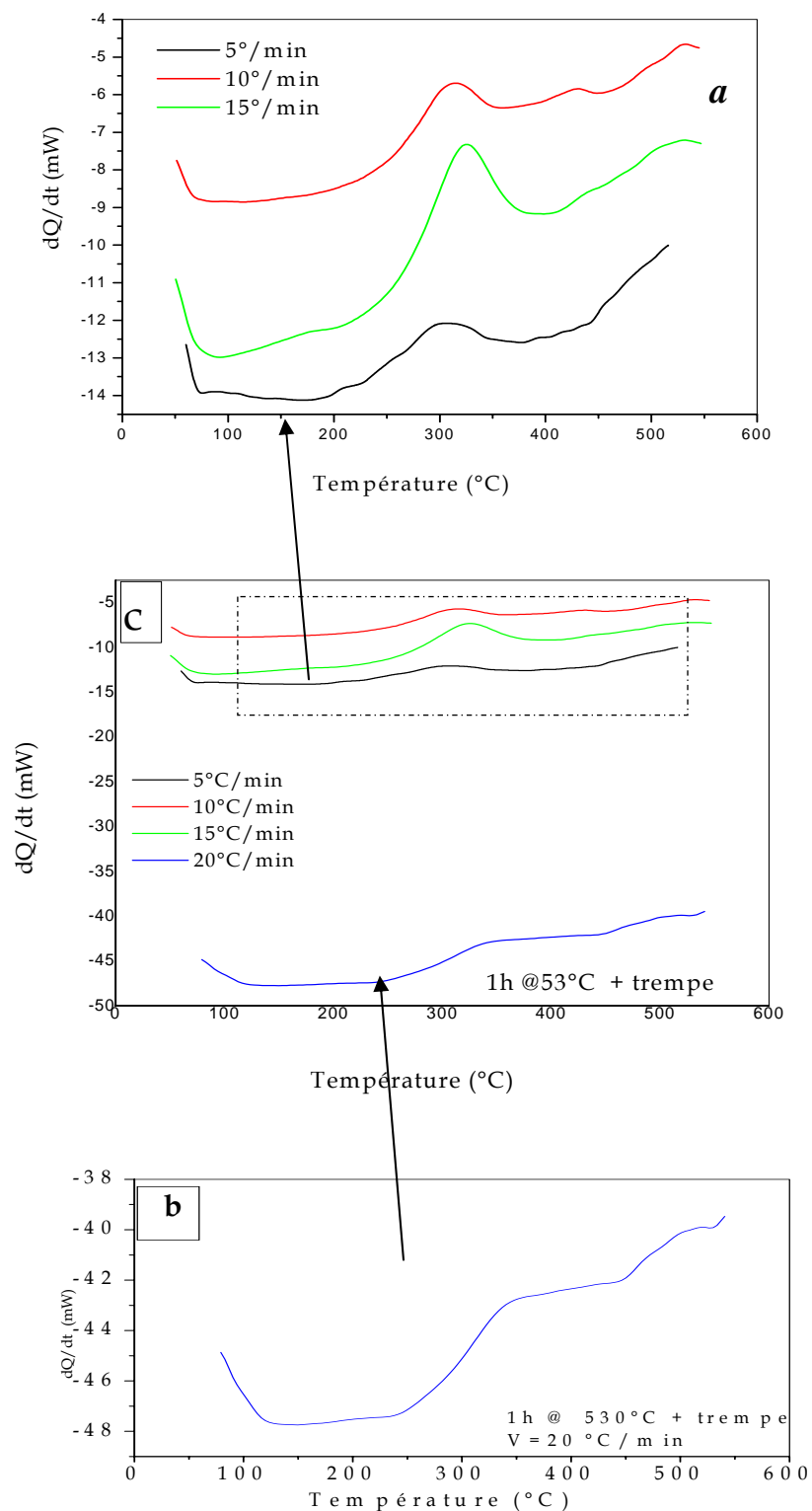


Figure V.11 Superposition des différents thermogrammes, obtenus à différentes vitesses de chauffage.

- a) superposition des courbes obtenues avec les vitesses 5, 10 et 15°C/min, pour mieux montrer le décalage des pic à ces vitesses
- c) superposition de courbes obtenues avec les vitesses 5, 10, 15 et 20°C/min
- b) courbe obtenue à la vitesse 20°C/min

Pour illustrer la méthode de calcul de l'énergie d'activation décrite ci-dessus, nous présentons l'analyse du pic apparent correspondant à la formation des phases β'' et β' et celui correspondant à la dissolution de ces deux phases.

Les énergies d'activation sont déterminées, à partir de la droite obtenue lors de la représentation de la relation précédente sur papier semi logarithmique. Cette représentation graphique requiert la connaissance des températures pour chaque vitesse de chauffage pour laquelle la transformation (formation ou dissolution) est maximale (T_P).

Les figures V.12 a et b représentent respectivement l'évolution de $\ln\left(\frac{T_P^2}{V}\right)$ en fonction de $\frac{1}{T_P}$, pour le cas de la précipitation des deux phases β' et β'' et de leurs dissolution .

Les courbes ainsi, obtenues sont des droites, dont les deux donnent directement les énergies d'activation de formation et de dissolution recherchées.

Ces énergies d'activation sont respectivement : ~ 32.66 kJ /mole pour la réaction précipitation et ~ 68.34 kJ /mole pour la réaction de dissolution. On constate que les valeurs obtenues sont faibles par comparaison aux travaux publiés sur des alliages similaires par d'autres chercheurs [8, 64]. Ces résultats peuvent être expliqué par l'éventuelle interdépendance et interaction des deux réactions, c'est à dire celle de β'' et celle de β' [8].

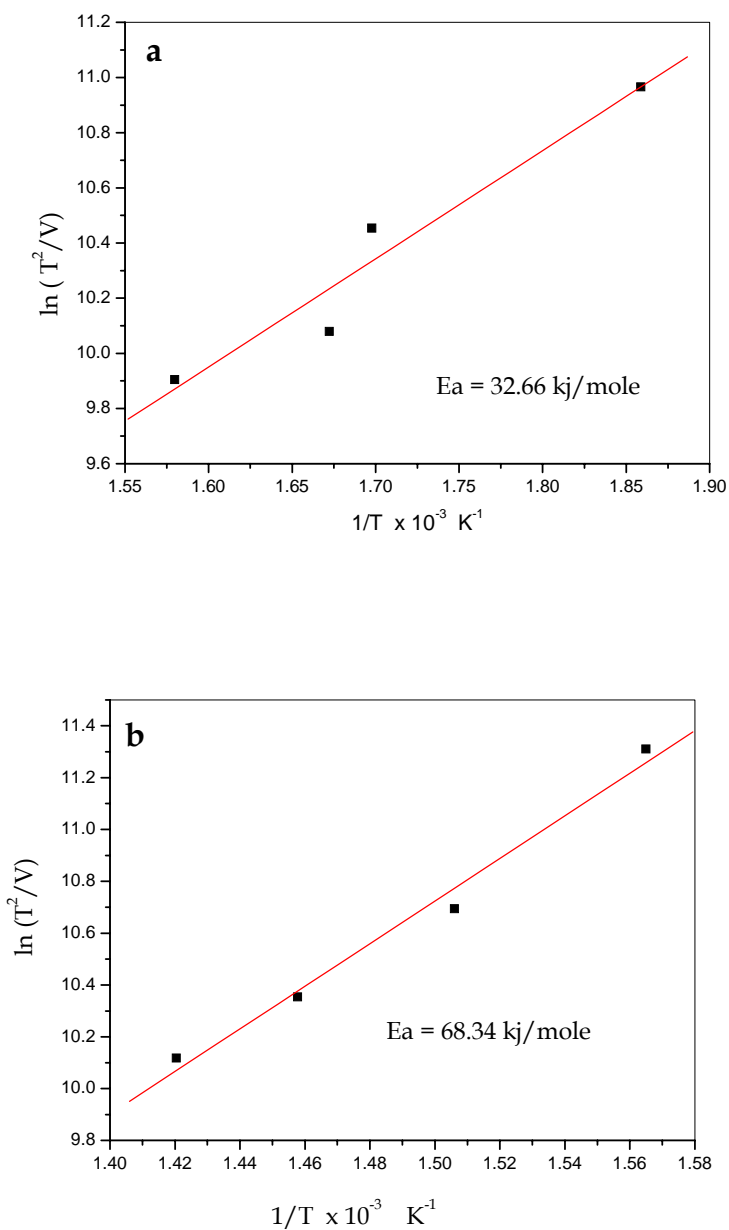


Figure V.12 Courbes utilisées pour la détermination des énergies d'activation, obtenues par la méthode Kissinger

(a) Energie de formation

(b) Energie de dissolution

V.5 MICRODURETE - Hv

Les mesures de microdureté ont été prises au moyen d'un microduromètre commercialisé par le fabricant Zwick . Les tests se font avec un pénétrateur pyramide en diamant sous une charge de 300g. Nous avons tout d'abord, effectués des mesures à l'état brut, et à l'état homogénéisé suivi d'une trempe, où nous avons remarqué une légère diminution de la microdureté après mise en solution et trempe (état brut : 34 kgf/mm² et 31 kgf/mm² pour état homogénéisé). Ceci peut être expliqué par l'effet néfaste de la trempe structurale sur la dureté, du fait que la trempe après mise en solution ne modifie pas la structure cristalline de l'alliage [23].

V.5.1 EFFET DES VIEILLISSEMENTS ARTIFICIELS ISOTHERMES SUR LE DURCISSEMENT DE L'ALLIAGE

La figure V.13, montre l'évolution de la microdureté en fonction du temps, des échantillons ayant subit des vieillissement directs après trempe, respectivement aux températures suivantes : (a) 100 °C , (b) 150 °C , (c) 200 °C et (d) 250 °C.

Dans le cas du traitement à 100°C, courbe (a), la microdureté varie d'une manière insignifiante avec le temps de vieillissement jusqu' atteindre une valeur relativement élevée après 24h de maintien, ceci est probablement dû à la formation des précipités durcissants durant cette intervalle de temps. Au-delà, elle tend à se stabiliser.

A 150 °C, courbe (b), après 16h de maintien, la dureté augmente distinctement et atteint son maxi aussi, après environ 20h, puis elle se stabilise autour de cette valeur. Cette augmentation de dureté est probablement liée à la formation des précipités durcissants.

Dans le cas du vieillissement à 200°C, courbe (c), la dureté suit également la même allure, mais elle commence a augmenter rapidement juste après 6h et atteint son maximum après un temps de maintien inférieur à 20h , ceci peut être expliqué par l'effet de l'élévation de la température du traitement sur le durcissement de l'alliage, l'augmentation de la température a conduit à une formation plus rapide des précipités durant le revenu à cette température.

En fin, dans le cas du traitement à 250° C, nous remarquons que la dureté augmente et atteint rapidement sa valeur maximale juste, après 10h , puis diminue et se stabilise autour d'une valeur similaire à celle de l'état de brut . Ceci peut être aussi expliqué par l'effet de température du traitement, l'alliage a subi un adoucissement après 10h de maintien à 250 °C, probablement suite à une déstabilisation plus rapide de la phase β'' et à l'apparition de précipités de Silicium [15].

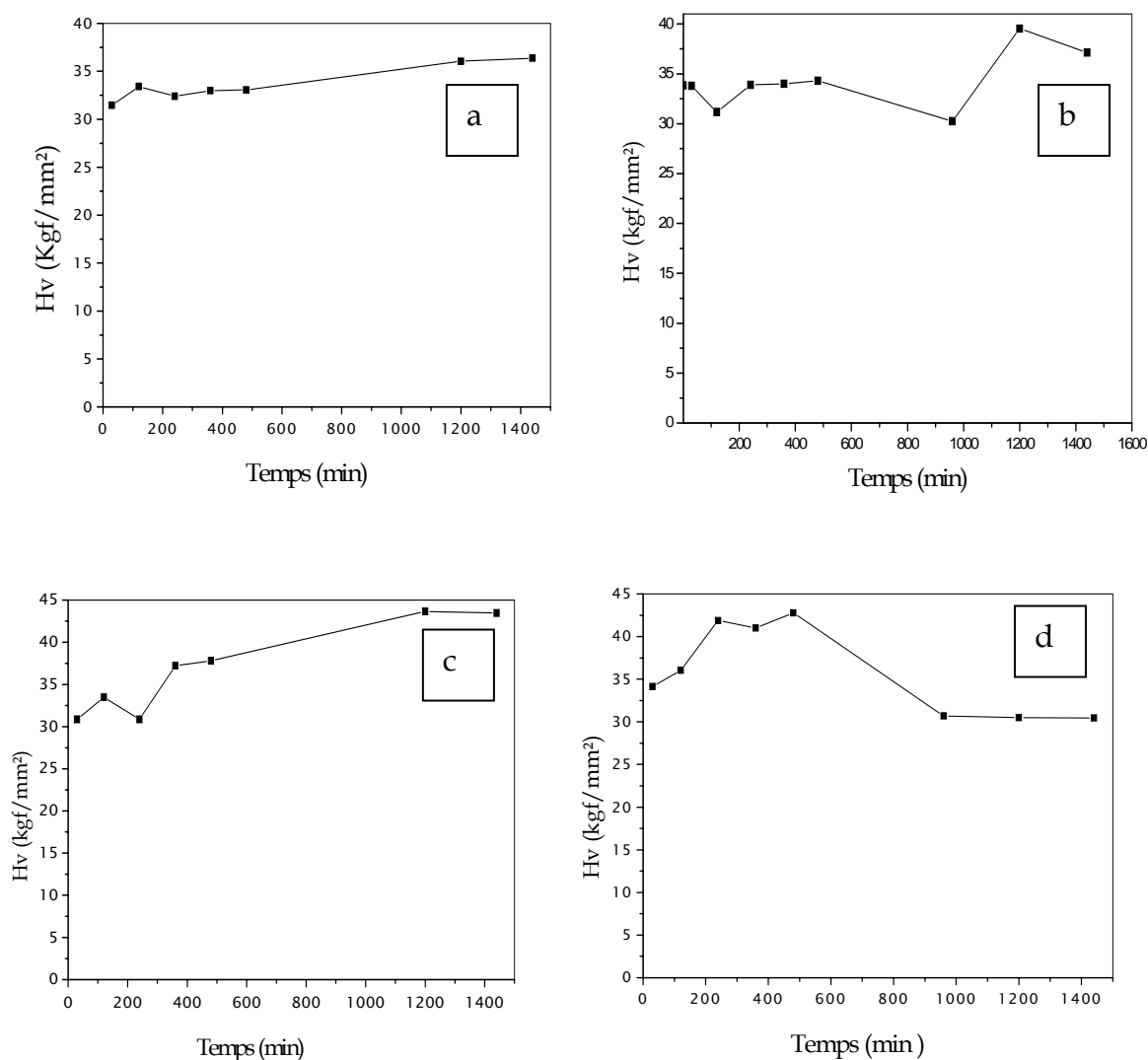


Figure V.13 Evolution de la microdureté en fonction du temps et de température de vieillissement

(a) Vieilli à 100°C , (b) Vieilli à 150°C, (c) Vieilli à 200 °C et (d) Vieilli à 250 °C

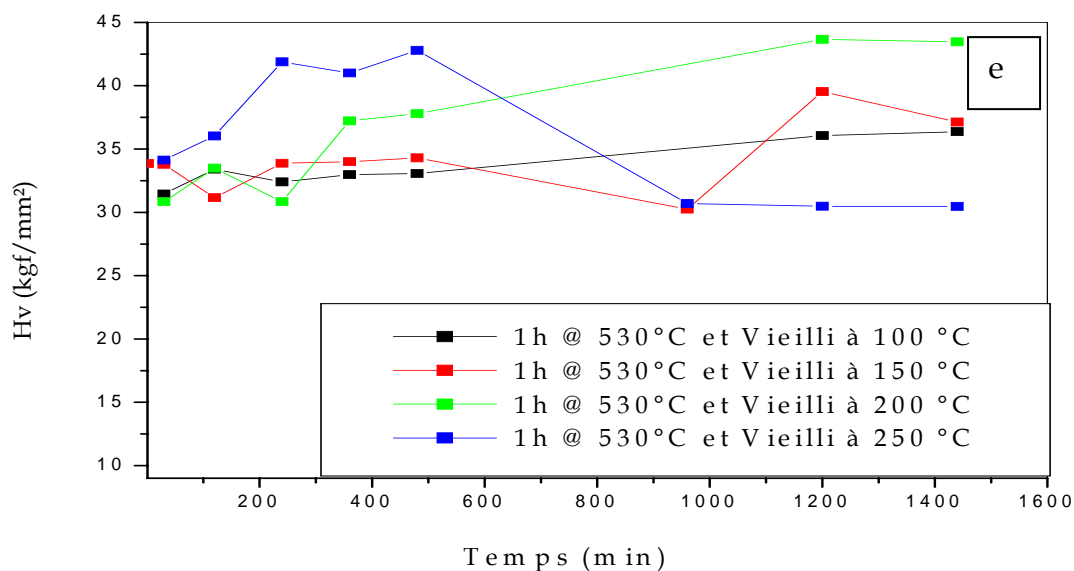


Figure V.13 (e) Evolution de la microdureté en fonction du temps et de température de vieillissement : Superposition des quatre courbes

L'évolution de la microdureté en fonction de la température est présentée sur la figure V.14. Nous constatons que la microdureté la plus élevée a été enregistrée à la température de 300 °C, ce pic de dureté peut être attribué à la formation de la phase durcissante β'' , ce qui est en bon accord avec les résultats de DSC. Au-delà de cette température, la dureté chute rapidement et se stabilise au voisinage d'une valeur légèrement inférieure à celle obtenue à l'état homogénéisé puis trempé. Cette baisse peut être attribuée à un effet d'adoucissement favorisé par l'effet d'élévation de la température du vieillissement (conditions de sur vieillissement). L'adoucissement est due à la coalescence des précipités qui donne des particules plus grandes, avec un grain plus gros, et aussi due au « recuit » des défauts. Ceci peut causer moins d'obstacles au mouvement des dislocations et ainsi les propriétés mécaniques commencent à se dégrader. Ceci est en bon accord avec les travaux menés par Siddiqui et al. [25].

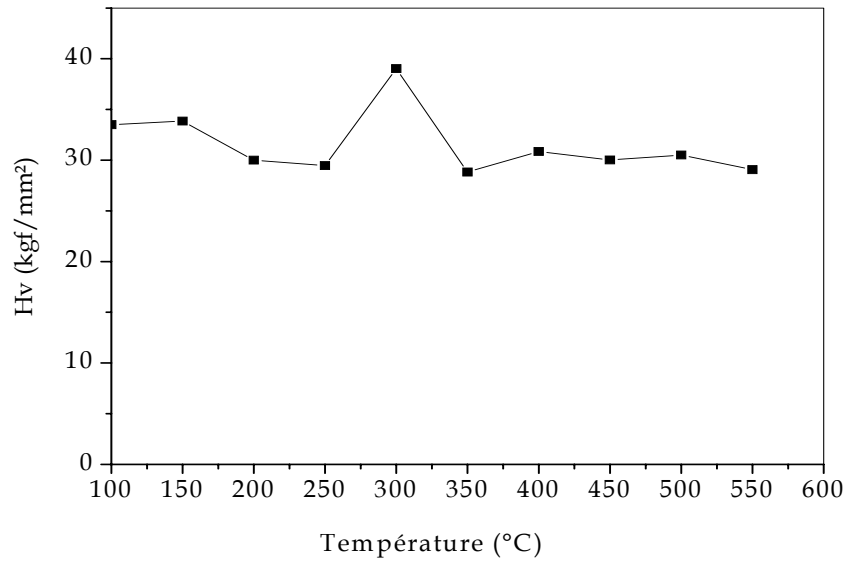


Figure V.14 Evolution de la microdureté en fonction de la température de vieillissement

Dans le cas de vieillissement à 180° C , figure V.15, la dureté varie progressivement en fonction du temps de vieillissement. Cette évolution est expliquée par la présence de l'excès de silicium qui en général augmente le durcissement de l'alliage, en favorisant les phases à rapport $\frac{Mg}{Si}$ inférieur à 2, autrement dit, les phases métastables durcissantes au dépend de la phase stable. Ce durcissement par vieillissement à cette température a été confronté aux résultats obtenus par microscopie électronique à balayage qui révèlent des microstructures caractérisées par de dispersion fine de précipités. Ce qui est en accord avec les travaux de Gupta et al.[73].

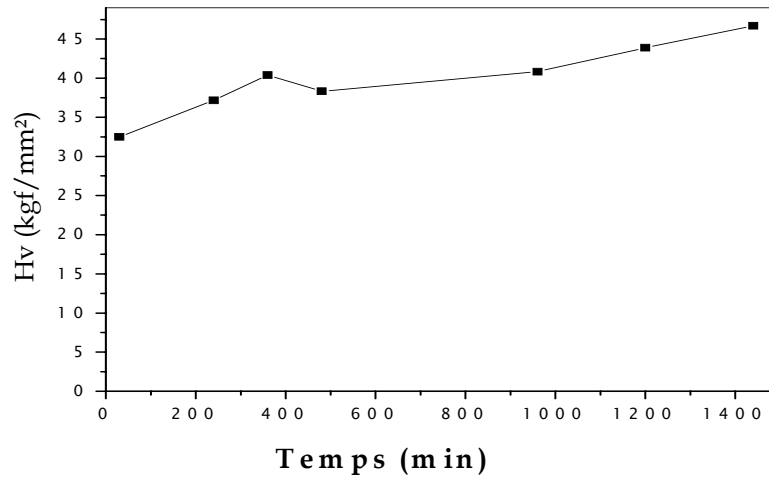


Figure V.15 Evolution de la microdureté en fonction du temps de vieillissement artificiel à la température 180 °C

V.5.2 EFFET DE MATURATION A L'AMBIANTE ET L'EXCES DE SI SUR LE DURCISSEMENT

Les courbes de microdureté des alliages étudiés en fonction du temps de vieillissement artificiel à 180°C, après une maturation de 21 jours et une autre d'un mois, sont représentées respectivement dans les figures V.16 a et b .

Dans le cas du maturation de 21 jours, figure V. 16 a, nous remarquons qu'au-delà d'un maintien de l'ordre de 6h , la dureté augmente rapidement et atteint sa valeur maximale après une durée de 16h. Cette évolution de dureté est attribuée aux amas d'atomes qui se sont formés dès les premières heures de la maturation, autrement dit, après le traitement de mise en solution et trempe, l'alliage contient de nombreuses lacunes en sursaturation. Cette sursaturation est suffisante pour que les coefficients de diffusion des solutés permettent de former des amas d'atomes qui conduisent à un durcissement de l'alliage [68, 69, 71] .

La figure V.16 b, montre la variation de la dureté en fonction du temps de vieillissement des échantillons vieillis à l'ambiance pendant 1 mois, nous constatons que la dureté reste presque uniforme jusqu'à 16 h, puis elle atteint son maximum après 20h, mais ce maximum est moins intense comparativement au premier cas. Ceci est expliqué par le retard de l'arrivée du pic de dureté durant le revenu, effet constaté par Marioara et

al.[59]. Ce comportement a été expliqué dans la littérature par des modèles de revenus bi-paliers [34]. L'idée est quelque soit le temps de maintien à température ambiante, les amas d'atomes formés ne pourront être stables à la température de revenu. Ils vont donc se dissoudre. Les précipités durcissants vont quant à eux, germer à partir d'une solution solide moins sursaturée, et vont donc produire une dispersion plus grossière. Nous pouvons aussi, conclure que l'augmentation de la dureté par maturation à l'ambiante est du à l'excès de silicium, ceci est confirmé par les travaux de Gupta et al.[73]. En comparant, ce comportement du vieillissement artificiel à 180°C après maturation avec celui de vieillissement direct à la même température, on peut retenir que l'excès de silicium favorise l'amélioration des propriétés mécaniques de l'alliage. Aussi on remarque que toutes les valeurs de microdureté du cas (a) sont supérieures à celles du deuxième cas (b), ceci nous amène à conclure que le durcissement des échantillons mûris 21 jours est plus élevé qu'à celui des échantillons mûris un mois.

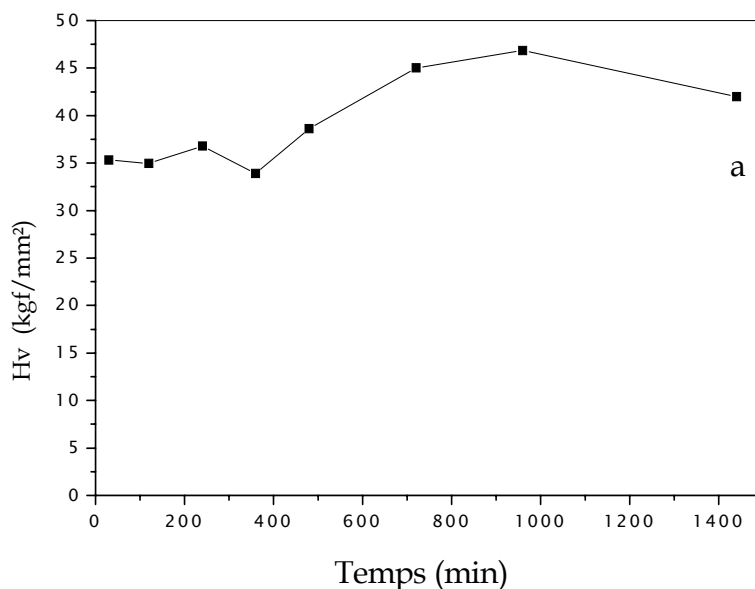


Figure V.16 (a) Variation de la microdureté avec le temps de vieillissement artificiel à 180°C
Après une maturation de 21 jours

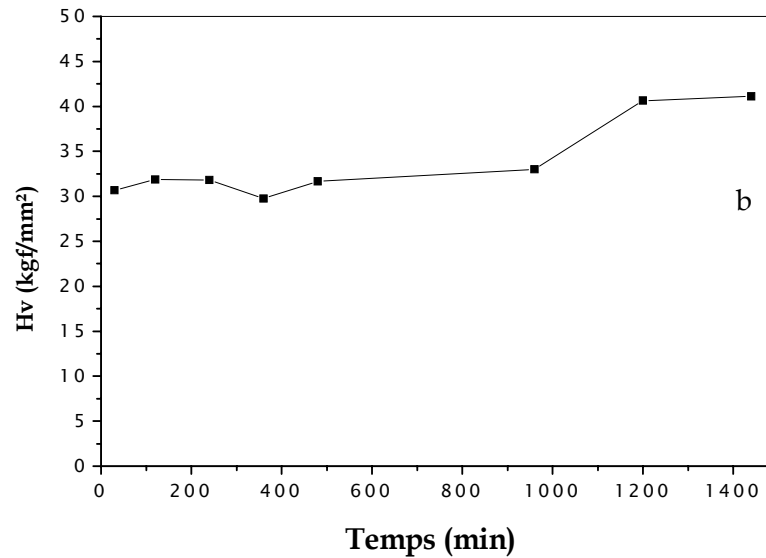


Figure V.16 (b) Variation de la microdureté avec le temps de vieillissement artificiel à 180°C
Après une maturation d'un mois

V.5.3 EFFET DE PREREVENU ET MATURATION A L'AMBIANTE

Pour étudier l'effet d'un prérevenu sur le durcissement de notre alliage. Nous avons appliqué une série de traitements thermiques, respectivement à 75 °C et à 100°C pendant une heure. Les différents échantillons pré-vieillis ont été ensuite trempés et vieillis à la température ambiante pendant 21 jours et d'autres pendant 1 mois.

Les figures V. 17 a et b montrent, respectivement, les variations de dureté durant le revenu à 180°C pour les deux cas : (a) - pré-vieilli à 75 °C et mûri 21 jours et

(b) - pré-vieilli à 75 °C et mûri 01 mois

Nous constatons, clairement que la dureté de l'alliage suit pratiquement la même évolution. En effet, elle commence à augmenter dès les premières minutes de revenu pour les deux cas. Cependant, le pic le plus intense a été enregistré après 20 h de maintien à 180 °C pour le premier traitement du prérevenu pendant 1h à 75 °C et une maturation de 21 jours , soit environ de 50 kgf/mm².

Egalement, le pic de dureté marqué pour le deuxième traitement du prérevenu a été atteint après 24 h, mais avec une intensité plus grande, qui était de l'ordre de 58 kgf/mm². Dans le cas de traitement d'un prérevenu à 100°C pendant 1h, les figures V.18 a et b révèlent de variations similaires de la dureté durant le revenu à 180°C pour les deux cas : - prérevenu et maturation de 21 jours
- prérevenu et maturation d'un mois.

En effet, la microdureté, commence à accroître dès les premières minutes du revenu, comme dans le cas précédent. Cependant, la dureté maximale a été atteinte après 24 h dans le cas du maturation de 21 jours, elle avoisinait aussi les 57 kgf/mm². De ces faits, nous pouvons expliquer l'effet de prérevenu et maturation à l'ambiante sur le durcissement de notre alliage par l'amélioration des propriétés mécaniques après revenu notamment la dureté, ceci a été confirmé par les travaux de Miao et al. [17].

Cette amélioration de la dureté s'interprète souvent par une stabilisation des amas d'atomes, qui vont aussi servir de sites de germination préférentielle pour les précipités durcissants, également ceci est en bon accord avec les travaux menés par plusieurs chercheurs [15, 49, 59].

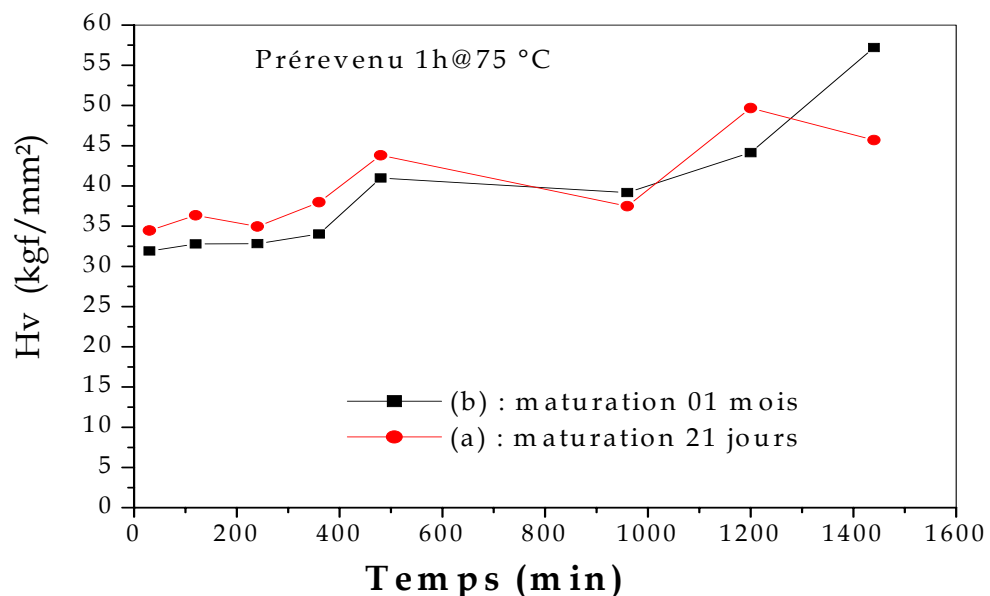


Figure V.17 Evolution de la microdureté en fonction du temps de vieillissement artificiel à 180°C après maturation :

- (a) - pré vieilli 1h à 75° C et vieillis 21 jours
- (b) - pré vieilli 1h à 75° C et vieillis 01mois

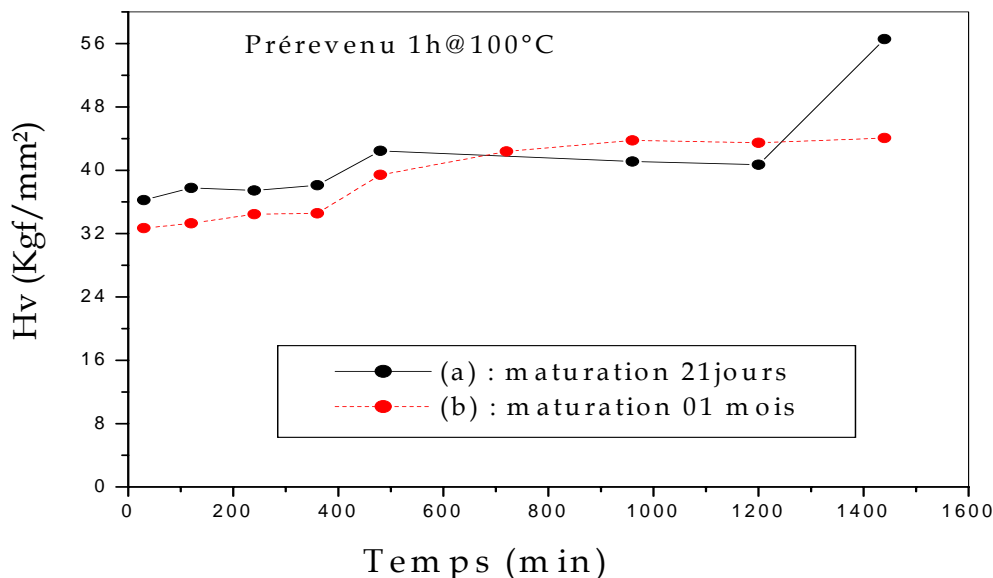


Figure V.18 Evolution de la microdureté en fonction du temps de vieillissement artificiel à 180°C après maturation

(a) pré-vieilli 1h à 100 ° C et vieillis 21 jours

(b) pré-vieilli 1h à 100 ° C et vieillis 01mois

V.6 ETUDE DILATOMETRIQUE

L'examen des courbes dilatométriques dérivées $d\left(\frac{\Delta L}{L_0}=f(T)\right)$ de notre alliage à l'état brut et celui homogénéisé, montre différentes anomalies enregistrées lors du chauffage des échantillons. Elles sont dues à des phénomènes de transformations de phase (précipitation ou dissolution). Les figures V.19, V.20, V.21 et V.22 révèlent l'existence plus de deux anomalies claires et bien distinctes dans l'intervalle de température 25 - 550°C. Ces anomalies se résument brièvement comme suit :

Le premier pic correspondant à une expansion se situant dans les intervalles de température portées au tableau I, pour l'état brut et homogénéisé selon les deux directions : parallèle à la direction de laminage et perpendiculaire à la direction de laminage, dans le plan de laminage.

| Etat | Direction \parallel | Direction \perp |
|-------------|-----------------------|-------------------|
| Brut | 50 - 155 °C | 90 - 160 °C |
| Homogénéisé | 50 - 110 °C | 50 - 120 °C |

Tableau I domaines de température du premier pic

De même, le deuxième pic correspondant à une expansion se situant dans les intervalles de température portées au tableau II, pour l'état brut et homogénéisé selon les deux directions : parallèle à la direction de laminage et perpendiculaire à la direction de laminage, dans le plan de laminage .

| Etat | Direction \parallel | Direction \perp |
|-------------|-----------------------|-------------------|
| Brut | 190 - 280 °C | 160 - 290 °C |
| Homogénéisé | 120 -270 °C | 130- 198 °C |

Tableau II domaines de température du second pic

La troisième anomalie correspondant toujours à une augmentation de la longueur du matériau étudié se situe dans les intervalles de température suivants :

- 288 - 330 °C pour l'état brut selon la direction de laminage.
- 200-280 °C pour l'état homogénéisé selon la direction perpendiculaire à la direction de laminage, dans le plan de laminage.

On constate que cette anomalie est plus étalée dans le temps, comparativement au deux précédentes. On peut conclure que les points de transformations de phases révélées par les mesures dilatométriques coïncident tout autour de celles des courbes de la DSC effectuées sous mêmes conditions (vitesses de chauffage de l'ordre de 10°C/min, etc.) et dans le même intervalle de température.

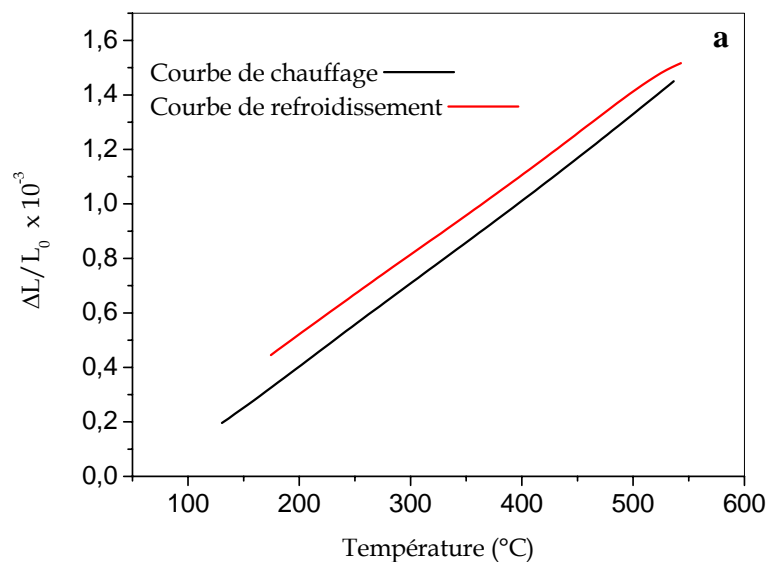


Figure V.19 (a) Etat brut : Variation de $\frac{\Delta L}{L_0}$ en fonction de la température direction \perp à la direction de laminage, dans le plan de laminage

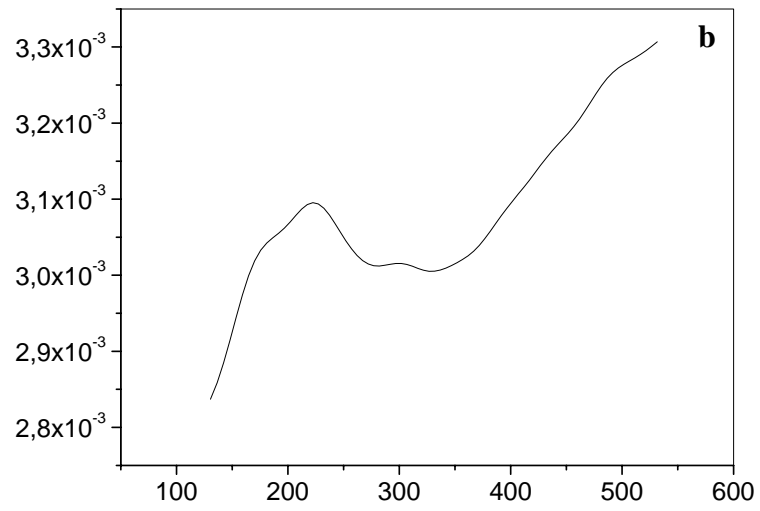


Figure V.19 (b) Etat brut : Courbe dérivée du segment de chauffage

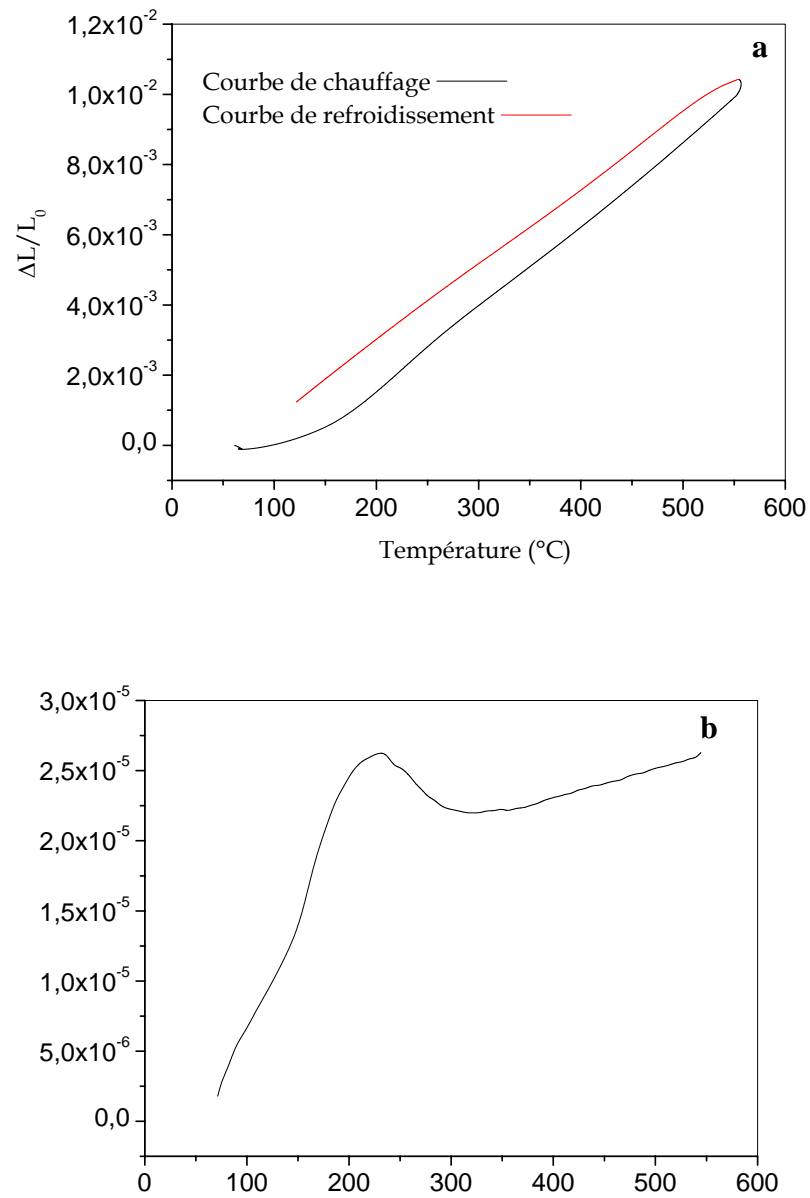


Figure V.20 Etat brut

(a) Variation de $\frac{\Delta L}{L_0}$ en fonction de la température
direction // à la direction de laminage

(b) Courbe dérivée du segment de chauffage

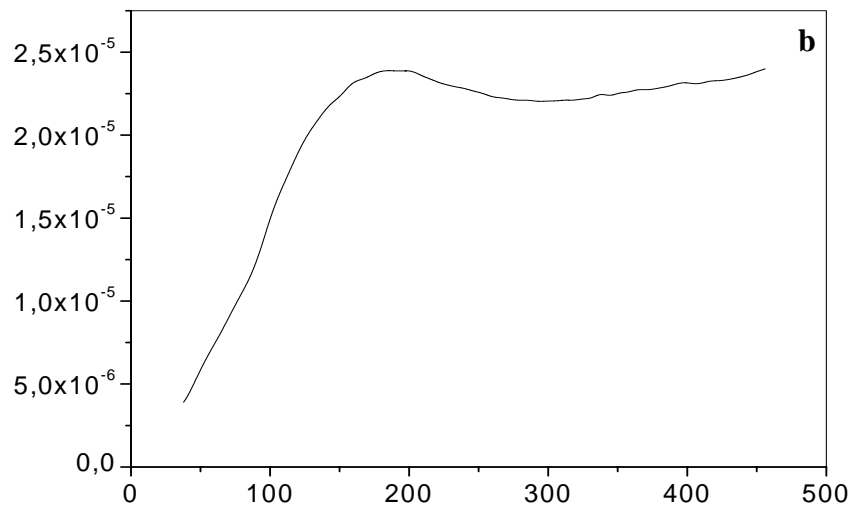
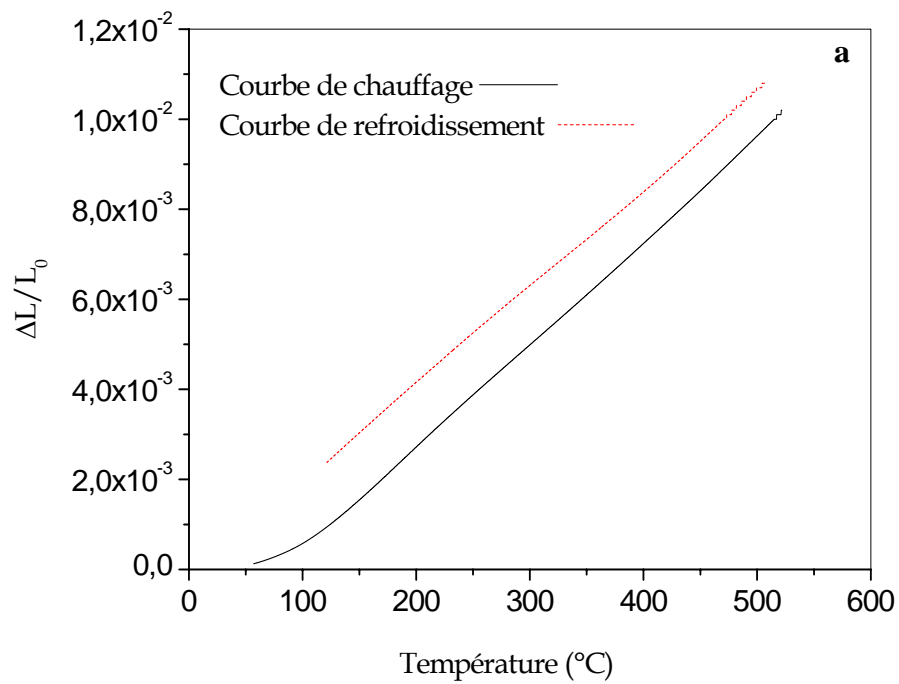


Figure V. 21 Echantillon traité 1h à 530°C et trempé à l'eau

(a) Variation de $\frac{\Delta L}{L_0}$ en fonction de la température direction // à la direction de laminage

(b) Courbe dérivée du segment de chauffage

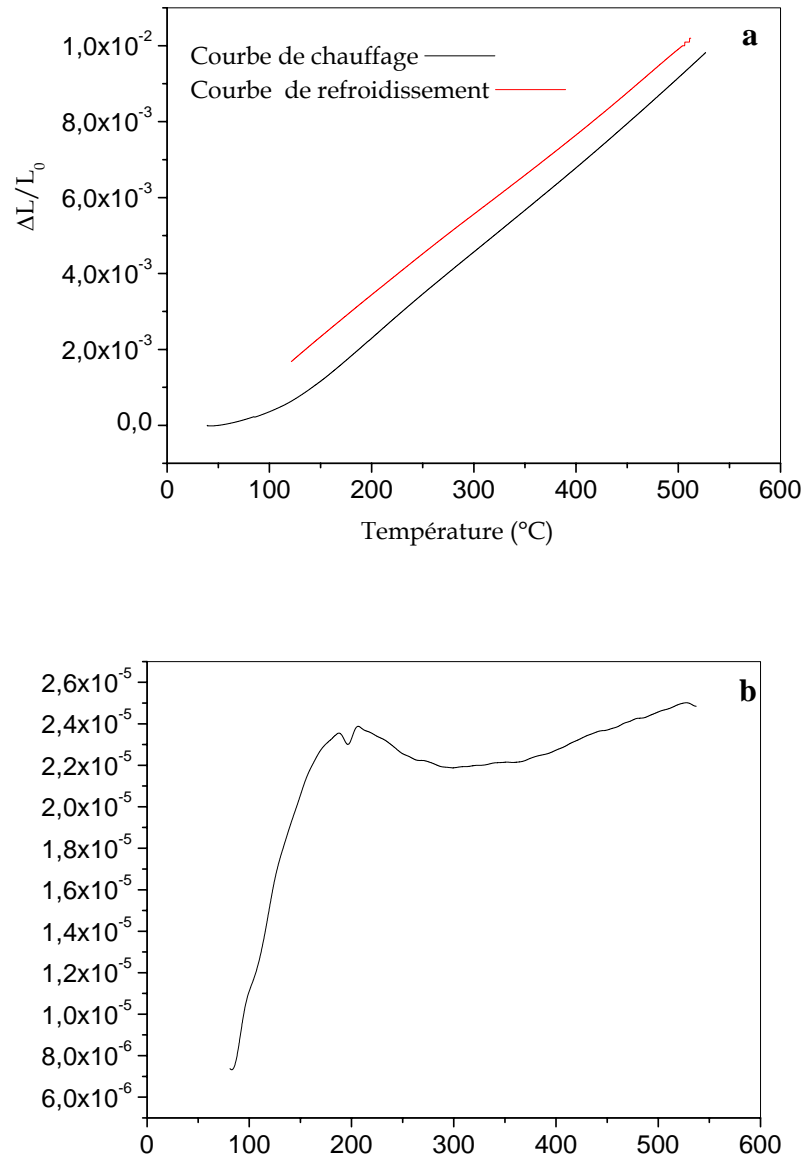


Figure V. 22 Etat traité 1h à 530 $^{\circ}\text{C}$ et trempé à l'eau

- (a) Variation de $\frac{\Delta L}{L_0}$ en fonction de la température direction \perp à la direction de laminage, dans le plan de laminage
- (b) Courbe dérivée du segment de chauffage

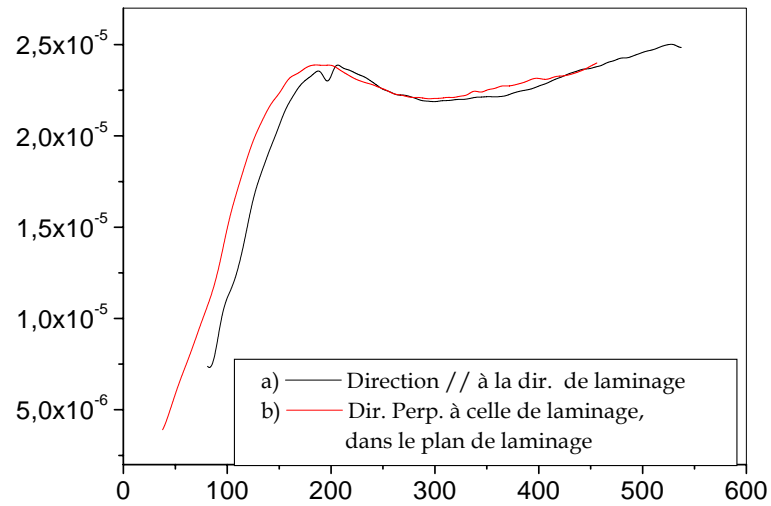


Figure V.23 Etat homogénéisé - courbes dérivées dans les deux directions

(a) Direction // à la direction de laminage

(b) Direction \perp au sens laminage, dans le plan de laminage

V.6.1 ETUDE DE L'ANISOTROPIE DU COEFFICIENT DE DILATATION THERMIQUE ($\alpha(T)$)

L'effet de traitement thermique (homogénéisé 1 h à 530 °C puis trempé à l'eau sur l'évolution du coefficient de dilatation thermique α (T) dans les deux directions, respectivement, parallèle et perpendiculaire à la direction de laminage, dans le plan de laminage, est représentée sur les figures V.25 a et b. Même si l'allure générale des courbes reste quasiment identique à celle correspondante à l'état brut, figure V.24. On note, cependant quelques changements apparents d'une part, on observe l'apparition de troisième pic et d'autre part le premier et le deuxième pic sont déplacés vers les basses températures. Aussi, il est à remarquer que les transformations de phases sont observées dans les diagrammes correspondants aux deux directions étudiées, figure V.26. En effet, il est très important de noter que $\alpha_{//}$ est $\geq \alpha_{\perp}$, c'est-à-dire que le coefficient de dilatation thermique suivant la direction parallèle à la direction de laminage est souvent supérieur à celui mesuré dans la direction perpendiculaire. Cette anisotropie du coefficient de dilatation thermique est due apparemment, soit au fait que les quantités de précipités présentes lors de la précipitation /dissolution d'une phase se diffèrent d'une direction à une autre, soit à la différence entre les grandeurs des liaisons inter atomiques suivant les deux directions étudiées. Ceci est en bon accord avec les travaux accomplis par les chercheurs sur l'alliage Al-0.5%Mg-0.88%Si [65, 72].

On peut donc, conclure que l'effet de traitement d'homogénéisation (1 h à 530 °C puis trempé à l'eau) a un multiple effet sur l'alliage étudié :

Il favorise la décomposition de la solution solide sursaturée α -aluminium.

Il favorise les transformations de phases, les réactions de précipitation et dissolution se produisent dans un intervalle de température moins étalé.

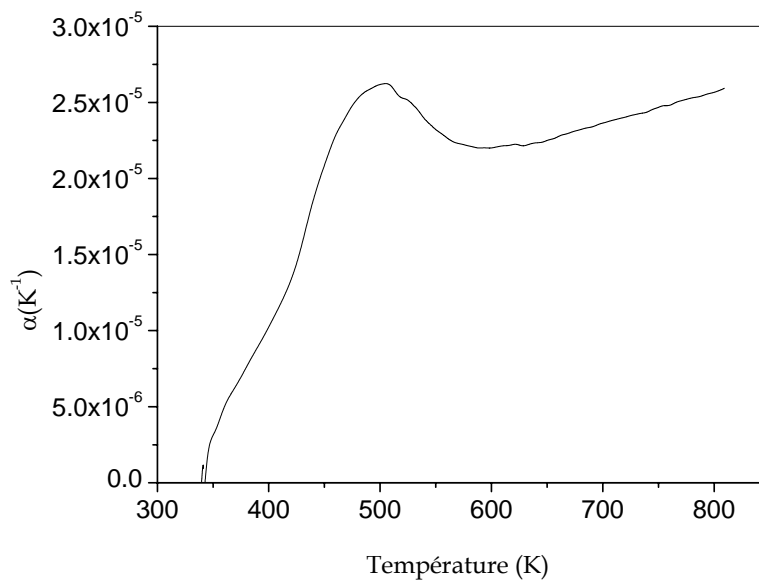


Figure V. 24 Etat brut - Variation de α en fonction de la température, suivant la direction // à la direction de laminage

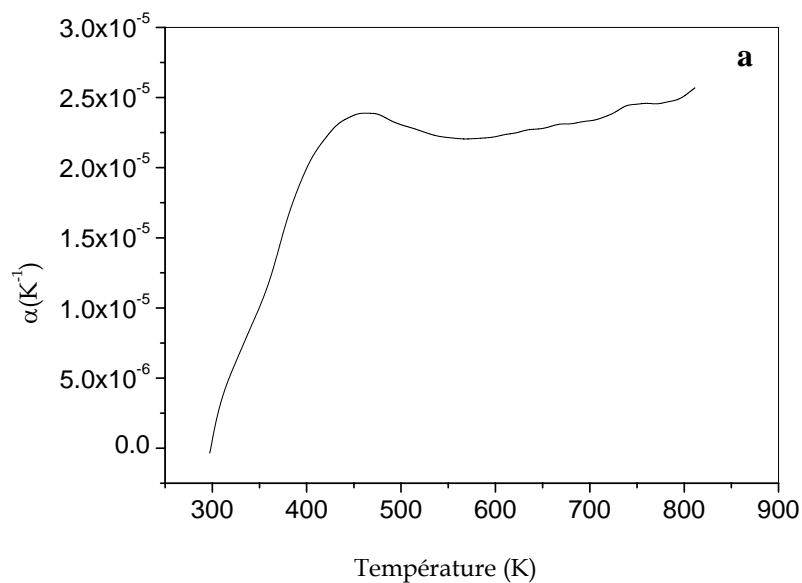


Figure V. 25 (a) Homogénéisé 1h à 530°C suivie d'une trempe – Variation de α en fonction de la température : direction // à la direction de laminage

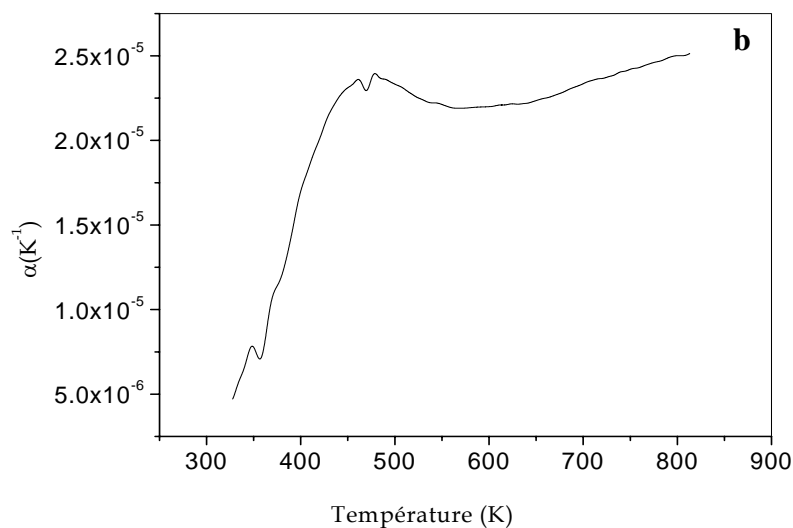


Figure V. 25 (b) Homogénéisé 1h à 530°C suivie d'une trempe – Variation de α en fonction de la température : direction \perp au sens de laminage, dans le plan de laminage

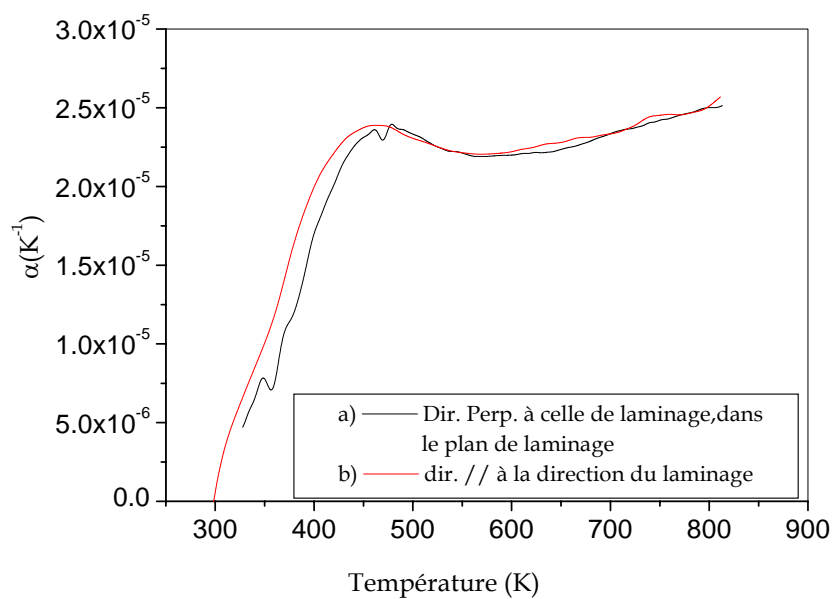


Figure V. 26 Homogénéisé 1h à 530°C suivie d'une trempe –
Variation de α en fonction de la température, dans les deux directions.
(a) direction \perp au sens laminage, dans le plan de laminage
(b) direction $//$ à la direction de laminage

CONCLUSION GENERALE

CONCLUSION GENERALE

L'objectif de ce travail était d'accomplir une étude calorimétrique et dilatométrique d'un alliage pseudo ternaire Al- Mg- Si, de composition : 0,56% Si, 0,50 %Mg et 0,17% Fe (en % masse) . En particulier on a souhaité de comprendre les réactions de précipitation et de dissolution dans cet alliage et d'élucider l'effet de maturation à l'ambiante et celui de prérevenu sur le durcissement de l'alliage.

Pour cela, nous avons utilisé principalement des techniques expérimentales, bien adaptées à ce genre de travaux d'investigations scientifiques à savoir, la calorimétrie différentielle (DSC) , la dilatométrie et la diffraction des rayons X.

Egalement, on a consolidé notre étude par microscopies électronique à balayage et optique. En fin, la mesure de micro-dureté pour suivre le durcissement de l'alliage.

Les principaux résultats de ce travail peuvent se résumer de la manière suivante :

- La vraisemblable séquence de précipitation dans l'alliage, proposée sur la base des thermogrammes DSC et les méthodes de calcul des cinétiques des réactions est la suivante : $SSS \longrightarrow \text{Zones GP} \longrightarrow \beta'' \longrightarrow \beta' \longrightarrow \beta(\text{Mg}_2\text{Si})$
- Le grossissement de la taille moyenne des grains pendant les différents traitements thermiques n'a été constaté qu'à des températures supérieures à 300 °C .
- L'excès de silicium dans l'alliage augmente la dureté pendant le vieillissement artificiel .
- Le durcissement de l'alliage non vieilli à l'ambiante varie progressivement en fonction du temps de vieillissement artificiel à la température 180°C.
- Le pic de dureté correspondant à la phase durcissante β'' à une dispersion fine de précipité', a été atteint après 24h de revenu à 180°C.
- Les spectres de diffraction des RX, révèlent que la tôle étudiée est texturée à la réception. Également, elle perd sa texture à 300°C et pendant 6 h de revenu à 180°C.
- Pendant les premières heures de revenu, l'alliage ayant subi un prérevenu présente une précipitation plus durcissante beaucoup plus fine que l'alliage sans prérevenu.
- Le durcissement qui se produit pendant la maturation à l'ambiante est attribué à une interaction entre les divers défauts (dislocations, lacunes et autres)

-L'alliage ayant subi un prérevenu d'une heure à 75 °C effectué juste après la trempe et une maturation d'un mois a présenté le meilleur durcissement structural.

Les résultats de l'analyse dilatométrique de l'alliage étudié montrent que les différentes transformations de phase enregistrées lors du chauffage de matériau sont dues à des phénomènes de précipitation /dissolution des phases et l'ensemble de ces transformations se produisent simultanément suivant les deux directions parallèle et perpendiculaire au laminage.

L'étude de l'évolution de coefficient de dilatation thermique révèle que l'alliage étudié est anisotrope, les valeurs de α (T) diffèrent d'une direction à une autre et le traitement thermique de l'alliage n'a pas modifié le comportement dilatométrique de ce dernier.

PERSPECTIVES

D'une manière générale, il serait intéressant de suivre la cinétique de précipitation sur un temps étalé de revenu afin de déduire les paramètres régissant cette cinétique.

Cette suggestion nous amène à convoiter que les futures études sur ce type d'alliage utilisent de manières complémentaires plusieurs techniques. La complémentarité entre une technique d'observation extrêmement locale comme la sonde atomique tomographique qui permet de caractériser les matériaux métalliques avec une résolution subnanométrique et d'établir des cartographies tridimensionnelles des différents éléments dans le volume analysé et la microscopie électronique à transmission semble très prometteuse.

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- [1] H. Leiris, Métaux et alliages autres que les aciers et les fontes, Tome II, Masson et cie éditeurs. 71-92, 1971
- [2] J. Herenguel, Métallurgie spéciale, Tome 1. L'Aluminium et ses alliages, Le Magnésium et ses alliages Paris VI^e, p. 33. 1962
- [3] The Aluminum Association, 1525 Wilson Boulevard, Arlington, VA 2220 www.aluminum.org. Revised: April 2006
- [4] A. Boubertakh, Thèse d'état, Université Mentouri Constantine, 2002
- [5] C. Cayron, Thèse de doctorat, École polytechnique Lausanne, 2000
- [6] R. Develay, Traitements thermiques des alliages d'aluminium, Doc. M 1290. les Techniques de l'ingénieur, 1991
- [7] A. Boushaba, Mémoire de MAGISTER. Université de Constantine, 2005
- [8] Y. Aouabdia, Mémoire de MAGISTER. Université Mentouri Constantine, 2005
- [9] A. Perovic, D. Perovic, G. C. Weatherly et D. J. Lloyd. Scripta Mater., Vol.41 (7), 703-708, 1999
- [10] G. Kow Quainoo, Ph. D. Thesis, The University of Saskatchewan Saskatoon, 2004
- [11] G. B. Burger, A. K. Gupta, P. W. Jeffrey et D. J. Lloyd Mater. Chara., Vol. 35, 23-39, 1995
- [12] W. S. Miller, L. Zhuang, J. Bottema, A. J. Wittebrood, P. Smet Mater. Sci. Eng. A, Vol. 280, 37- 49, 2000
- [13] A.K. Gupta, D.J. Lloyd et S.A. Court, Mater. Sci. Eng. A, Vol. 316, 11-17, 2001
- [14] S. Esmaeili, X. Wang, D. J. Lloyd et W. J. Poole, Métal. Mater. Trans., Vol. 34A, 751-762, 2003
- [15] F. Geuser, Thèse de doctorat, Université de ROUEN, 2005
- [16] B. Dubost et P. Sainfort : Durcissement par précipitation des alliages d'aluminium, chapitre M240 -M242. Les Techniques de l'Ingénieur, 1991
- [17] W. F. Miao et D. E. Laughlin, Scripta Mater., Vol. 40(7), 873-878, 1999.
- [18] C. Cayron, L. Sagalowicz, O. Beffortet , P. A. Buffat, Phil. Mag., Vol. 79(11), 2833-2851, 1999
- [19] C. Cayron et P. A. Buffat, Acta Mater., Vol. 48, 2639-2653, 2000
- [20] D. J. Chakrabarti et D. E. Laughlin, Prog. in Mater. Sci., Vol. 49, 389- 410, 2004

- [21] H. Bensouyad, Mémoire de MAGISTER, Université de Constantine, 2006
- [22] J. Barralis , G. Maeder. Précis de Métallurgie. 6^{ème} édition Editions Nathan-9, rue Méchain- 75014 Paris, 124-131, 1997
- [23] J. P. Bailon et J. M. Dorlot, Des Matériaux, par presses internationales Polytechniques, 227-242 et 512-520, réimpression, automne 2004, Canada
- [24] W. F. Smith, Principles of materials science and engineering, McGraw-Hill, p. 528, 1996
- [25] R. A. Siddiqui H. A. Abdullah K. R. Al-belushi, Journal. Mater. Process. Tech. V. (102), 234 -240, 2000
- [26] A. Asserin-lebert, Thèse de doctorat, ENSMP, PARIS, 2005
- [27] D. François, A. Pineau, A. Zaoui. Comportement mécanique des matériaux Hermès, 2000
- [28] M. F. Ashby., D. R. H. Jones, Matériaux, tome 2.DUNOD, Paris, 1991, Chap.10
- [29] Y. Birol, Scripta Mater. Vol. 54 , 2003–2008, 2006
- [30] F. Serradj, Mémoire de MAGISTER. Université Mentouri Constantine, 2005
- [31] Morris .E. Fine, The Strengthening of metals, 141-161
- [32] Sur le web : http://www.fr.wikipedia.org/wiki/George_Dawson_Preston
- [33] A. Guinier, Personal Reminiscences, 575-578
<http://www.iucr.org/iucr-top/publ/50YearsOfXrayDiffraction/guinier.pdf>
- [34] D. W. Pashley, M. H. Jacobs et J. T. Vietz , Phil. Mag., Vol. 16, 51, 1967
- [35] A. Lutts : Acta Métal., Vol. 9, 577, 1961
- [36] M. H. Jacobs : Phil. Mag., Vol. 26, 1, 1972
- [37] B. Chalmers, Métallurgie physique, Edition DUNOD, Paris, p. 355 , 1963
- [38] T. Ozawa, J. Therm. Anal., Vol. 2, 301-324, 1970
- [39] H. E. Kissinger, Analytical Chemistry, Vol. 40, 1702, 1957
- [40] M. Avrami, J. Chem. Phys., Vol. 7, 1103, 1939
- [41] M. Avrami, J. Chem. Phys., Vol. 8, 212, 1940
- [42] M. Avrami, J. Chem. Phys., Vol. 9, 177, 1941
- [43] B. D. Cullity, Elements of X-Ray diffraction, Second edition, Addison-Wesley publishing compagny, INC., 1978

- [44] G. Texier, Thèse de doctorat, I N S A de Rennes, 2005
- [45] S. Esmaeili, D. J. Lloyd et W. J. Poole, *Acta Mater.*, Vol. 51, 3467–3481, 2003
- [46] N. Maruyama, R. Uemori, N. Hashimoto, M. Saga et M. Kikuchi, *Scripta Mater.*, Vol. 36(1), 89–93, 1997
- [47] W. F. Miao et D. E. Laughlin, *Met. Mater. Trans.*, Vol., 31(A), 361–371, 2000
- [48] G. A. Edwards, K. Stiller, G. L. Dunlop et M. J. Couper, *Acta Mater.*, Vol. 46, 3893–3904, 1998
- [49] A. Bigot, Thèse de doctorat, Université de Rouen, 1998
- [50] M. Murayama, K. Hono, M. Saga et M. Kikuchi, *Mater. Sci. Eng.*, Vol. A, 250, 127–132, 1998
- [51] M. Murayama et K. Hono, *Acta Mater.*, Vol.47, 1537–1548, 1999
- [52] D. Vaumousse, A. Cerezo, P. J. Warren et S. A. Court, *Mater. Sci. Forum*, Vols. 396-402, 693–698, 2002
- [53] A. K. Gupta, D. J. Lloyd et S. A. Court, *Mater. Sci. Eng.*, Vol. A, 316,11–17, 2001
- [54] D. J. Chakrabarti, Y. Peng et D. E. Laughlin, *Mater. Sci. Forum*, Vols. 396-402, 857– 862, 2002
- [55] R. P. Wahi, And M. von Heimendahl, *Phys. Stat. Sol.*, Vol. 24, 607, 1974
- [56] J. P. Lynch, L. M. Brown et M. H. Jacobs : *Acta Metall.*, Vol. 30, 1389, 1982
- [57] S. J. Andersen, H. W. Zandbergen, J. Jansen, C. Træholt, U. Tundal et O. Reiso, *Acta Mater.*, Vol. 46, 3283–3298, 1998
- [58] C. D. Marioara, S. J. Andersen, J. Jansen et H. W. Zandbergen, *Acta Mater.*, Vol. 49, 321–328, 2001
- [59] C. D. Marioara, S. J. Andersen, J. Jansen et H. W. Zandbergen, *Acta Mater.*, Vol. 51, 789–796, 2003
- [60] G. A. Edwards, K. Stiller, G. L. Dunlop et M. J. Couper, *Mater. Sci. Forum*, Vols. 217-222, 713–718, 1996
- [61] C. Richardet : *Structure et propriétés des métaux*, Editions Delta, Sa la Tour de Peitz. SUISE. 3^{eme} édition, 9-10
- [62] S. J. Andersen, C. D. Marioara, A. Froseth, R. Vissers et H. W. Zandbergen. *Mater. Sci. Eng. A*, Vol. 390, 127–138, 2005

- [63] M. A. Van Huis , J. H. Chen A, B, H. W. Zandbergen A, M. H. F. Sluiter, *Acta Mater.*, Vol. 54, 2945–2955 , 2006
- [64] A. Luo, D. J. Lloyd, A. Gupta et W. V. Youdelis, *Acta Metall. Mater.*, Vol. 41(3), 769- 776, 1993
- [65] R. Guemini, Thèse d'état, Université Mentouri Constantine, 2002
- [66] V. Massardier et T. Epicier, *Mater. Sci. Forum*, Vols. 396-402, 851–856, 2002
- [67] Y. Quere : Défauts ponctuels dans les métaux, Masson et Cie Editeurs, Paris, 176-179, 1967
- [68] Y. Birol , *Scri. Mater.* Vol. 52, 169–173, 2005
- [69] Y. Birol, *Mater. Sci. Eng. A*, Vol. 391, 175–180, 2005
- [70] S. Vyasovkin, *Macromol. Rapid Commun.* Vol.23, 771-775, 2002
- [71] S. Esmaili, D. J. Lloyd et W. J. Poole, *Mater. Lett.*, Vol. 5, 575–577, 2005
- [72] M. Benabdoun, Thèse d'état, Université Mentouri Constantine, 2004
- [73] A. K. Gupta et D. J. Lloyd, *Mater. Sci. Forum*, Vols. 396-402, 971–976, 2002
- [74] Sur le web, <http://fr.wikipedia.org/MEB>
- [75] P. Pavlov, A. Khokhlov, *Physique de solide*. Editions Mir Moscou, 39-40, 1989

دراسة سبيكة ألومنيوم – مغنيزيوم – سيليسيوم (Al-Mg-Si) بواسطة التحليل الحراري التفاضلي

و التمدد الحراري

ملخص

في إطار هذا العمل المنجز اعتمدنا دراسة سبيكة ألومنيوم – مغنيزيوم – سيليسيوم (Al-Mg-Si) المحتواة على فائض من السيليسيوم، والتي تنتمي إلى السبائك ذات التصليد البنيوي (فصيلة 6000)، اعتنينا بدراسة حركية الترسيب في هذه السبيكة، تأثير التعتيق الأولي و التقادم الطبيعي على صلادة هذا الخليط .

لإنجاز هذا العمل استعملنا بعض التقنيات، أساسا التحليل الحراري التفاضلي، للتمدد الحراري التحليل بحيود الأشعة السينية، مستعينين في ذلك بالمجهر الالكتروني الماسح و المجهر الضوئي، و أخيرا قياس الصلادة و ذلك لتتبع عملية تصليد السبيكة.

هذه الدراسة سمحت بتوضيح ما يلي :

لم يلاحظ تغير بنيوي إلا في العينات المعالجة عند درجات حرارة عالية تفوق 300° .

فائض السيليسيوم في السبيكة أدى إلى رفع صلادة هذه الأخيرة و ذلك بظهور أطوار ذات صلادة عالية و توزيع دقيق للترسبات، إلا أن ذلك لم يكن له تأثير على حركية التفاعلات.

تأثير التعتيق الأولي مباشرة بعد التجنيس و السقاية هو لتصحيح التأثير الغير مرغوب فيه للتقادم الطبيعي جاعلا عملية تصليد هذا الخليط تكون سريعة أثناء التقادم الاصطناعي.

الصلادة القصوى المتعلقة بالطور " β " يمكن الحصول عليها خلال 20 ساعة أثناء المعالجة عند درجة حرارة 180°

للعينات التي عرضت على التقادما الأولية والطبيعية على الترتيب: 1 ساعة في 75° ، شهر و 1 ساعة في 100°

21 يوما

نتائج التحليل للتمدد الحراري تظهر بان السبيكة غير متماتلة النواحي، حيث أن معامل التمدد الحراري يختلف من اتجاه إلى آخر.

الكلمات الافتتاحية: سبائك الألومنيوم (Al-Mg-Si)، التحليل الحراري، التمدد الحراري، طاقة النشاط، حركية التفاعل،

معامل التمدد الحراري

Etude calorimétrique et dilatométrique d'un alliage Al-Mg-Si

RESUME

Dans le cadre de ce travail, nous avons entrepris d'étudier un alliage Al-Mg-Si à excès de silicium de la série 6000, faisant partie de la catégorie des alliages à durcissement structural. Nous nous intéressons à la cinétique de précipitation dans cet alliage, l'effet du prerevenu et de la maturation à l'ambiante sur le durcissement de l'alliage. Pour ce faire, nous avons principalement utilisé la calorimétrie différentielle (DSC), la dilatométrie et la diffraction des rayons X. Egalement, on a consolidé ces techniques par microscopies électronique à balayage et optique.

En fin, la mesure de micro dureté afin de suivre le durcissement de l'alliage.

L'étude a permis de mettre en évidence que le changement microstructural n'a été manifesté que pour les échantillons vieillis à des températures supérieures à 300°C

L'excès de silicium dans l'alliage augmente le durcissement, en favorisant l'apparition des phases métastables durcissantes à dispersion fine de précipités. Cependant, il n'influe pas sur la cinétique des réactions. L'effet du prerevenu juste après l'homogénéisation et la trempe est de corriger l'effet indésirable de maturation à l'ambiante en rendant plus rapide le durcissement de l'alliage pendant le vieillissement artificiel.

Le durcissement maximal correspondant à la phase durcissante β'' , peut être obtenu pendant 20 h de revenu à 180°C, pour des échantillons ayant subit respectivement des pré vieillissements et des maturations suivants : 1h à 75 °C, mûri un mois et 1h à 100°C, mûri 21 jours.

Les résultats de l'analyse dilatométrique montrent que l'alliage est anisotrope, le coefficient de dilatation thermique diffère d'une direction à une autre.

Mots clés : Alliages d'aluminium Al Mg Si, DSC, Dilatometrie, Cinétique de réaction, Energie d'activation, Coefficient de dilatation

Calorimetric and dilatometric study of an Al-Mg-Si alloy

ABSTRACT

In this work, we have undertaken the study of an Al-Mg-Si alloy of 6000 series with excess silicon. The 6000 series belongs to the category of heat treatable alloys. We deal with the precipitation kinetics in this alloy, the effect of the pre ageing and the ageing at room temperature on the alloy hardening.

In order to do this, we have used mainly the differential scanning calorimetry (DSC), dilatometry, X-ray diffraction, electronic and optical microscopies and finally the micro hardness measurement in order to monitor the alloy hardening .

The study revealed that the microstructural change was manifested only for the samples aged at temperatures higher than 300°C

The excess silicon in alloy increases hardening, by favouring the appearance of the metastable phases hardening with fine dispersion of precipitates. However, it does not affect the sequence of reactions. The effect of the pre aging of samples just after the homogenisation and quenching is to correct the adverse effect of ageing at room temperature while making faster the hardening of alloy during the artificial ageing.

The maximum hardening which corresponds to the formation of the hardened phase β' , can be obtained after 20 h of aging at 180°C, for samples that undergo pre ageing and maturations: 1hour at 75 °C aged one month at room temperature and 1hour at 100°C aged 21 days temperature.

The dilatometric results showed that the alloy is anisotropic; the thermal expansion coefficient differs from a direction to another.

Keywords: Al-Mg-Si alloys, DSC, Dilatometry, Reaction kinetic, Activation energy, Thermal expansion coefficient