

REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE

MINISTERE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR

ET DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE

UNIVERSITE MENTOURI - CONSTANTINE

FACULTE DES SCIENCES EXACTES

DEPARTEMENT DE PHYSIQUE

N° d'ordre :.....

Série :.....

MEMOIRE

Présenté pour obtenir le Diplôme de Magister en Physique

Spécialité : Sciences des Matériaux

Option : Métallurgie

THEME

Etude du durcissement structural de l'alliage

Al-4,6 %Cu-1 %Mg-0,7 %Si (% mass).

Par :

FAR DALEL

Soutenu le : 03 / 05 / 2012

Devant le jury :

Président :	S. CHEKROUD	Prof.	Université Mentouri-Constantine
Rapporteur :	D. HAMANA	Prof.	Université Mentouri-Constantine
Examineurs :	M. BOUCHEAR	Prof.	Université Mentouri - Constantine
	R. AMICHI	M. C.	Université Mentouri - Constantine
	A. HAYOUNE	M.R.	Centre de Recherche Nucléaire-Birine-Djelfa

Remerciements

REMERCIEMENTS

Je remercie tout d'abord le grand puissant. Dieu qui m'a éclairé le chemin pour réaliser ce modeste travail.

*Ce travail a été réalisé au sein du "Laboratoire de Transformations de Phases" sous la direction de Monsieur **DJAMEL HAMANA** Directeur du Laboratoire et Professeur au Département de Physique de la Faculté des Sciences Exacte de l'Université Mentouri - Constantine, Je tiens d'abord à le remercier pour m'avoir accueilli dans son laboratoire et pour avoir dirigé ce mémoire. Je lui exprime toute ma gratitude pour m'avoir initiée à la recherche et fait partager ses connaissances et pour la qualité de son encadrement, sa confiance en m'attribuant ce travail et sa disponibilité à mon égard.*

*Je suis reconnaissante à Monsieur **S. CHEKROUD**, Professeur au Département de Physique de la Faculté des Sciences de l'Université Mentouri-Constantine, pour l'honneur qu'il me fait en acceptant la présidence de ce jury.*

*Ma reconnaissance s'adresse aussi à Monsieur **M. BOUCHEAR**, Professeur au Département de Physique de l'Université Mentouri-Constantine pour avoir accepté de juger ce travail et de faire partie du jury d'examen.*

*J'adresse également ma gratitude à Mme **Amichi Rachida**, Maitre de conférences au Département de Physique de la Faculté des Sciences de l'Université Mentouri-Constantine, et Mr **Hayoune Abdelali**, maître de recherche qui m'ont fait l'honneur de faire partie de ce jury.*

*Je tiens à remercier tous ceux qui ont contribué de près et de loin à la réalisation de ce travail ; mes sincères gratitude vont à Mr **Hayoune Abdelali**, Maitre de recherche au Centre de Recherche Nucléaire de Birine (CRNB), non seulement pour les échantillons qu'il m'a fournis, pour son aide pour les mesures de la microdureté Vickers, les essais de diffraction X et DSC et l'interprétation des résultats ainsi que pour tout le temps qu'il m'a gentiment consacré, mais également pour sa gentillesse, sa générosité. Je le remercie beaucoup.*

*Je remercie également l'ensemble des membres du laboratoire de Transformations de Phases pour leurs conseils, pour leur soutien et ainsi que pour leur gentillesse, en particulier Melles **L.Chetibi** et **Z. Belamri** et **A. Mouatsi** sans oublier Mr **M. Hachouf**.*

Sommaire

SOUMMAIRE

<i>INTRODUCTION GENERAL</i>	8
--	---

Chapitre I La précipitation dans les alliages d'aluminium

I.1 INTRODUCTION	12
I.2 LES ALLIAGES D'ALUMINIUM	13
I.3 PHENOMENE DE LA PRECIPITATION	14
I.3.1 Différents types de précipitation	15
I.3.2 Mécanismes de précipitation	16
I.4 PHENOMENE DE DURCISSEMENT DANS LES ALLIAGES D'ALUMINIUM.....	21
I.4.1 Durcissement par affinage de la taille des grains	22
I.4.2 Durcissement par solution solide	23
I.4.3 Durcissement par déformation plastique (écrouissage)	24
I.4.4 Durcissement par précipitation (durcissement structural)	24

Chapitre II La précipitation dans les alliages Al-Cu-Mg-Si

II.1 INTRODUCTION	36
II.2 LES ALLIAGES Al-Cu-Mg-Si	36
II.3 DIAGRAMME D'EQUILIBRE QUATERNAIRE Al-Cu-Mg-Si	39
II.4 LA PRECIPITATION DANS LES ALLIAGES Al-Cu-Mg-Si	40
II.4.1 La séquence de précipitation dans les alliages Al-Cu-Mg-Si	41
II.4.2 Caractéristiques des différentes phases précipitées	44
II.5 L'INFLUENCE DES DIFFERENTS PARAMETRES SUR LA PRECIPITATION DANS LES ALLIAGES Al-Cu-Mg-Si	50
II.5.1 Effet du silicium dans les alliages Al-Cu-Mg	50
II.5.2 Excès de Cu	51
II.5.3 Excès de Mg.....	51
II.5.4 Influence de l'effet du vieillissement naturel sur les alliages Al-Cu-Mg-Si	52
II.5.5 Influence de l'effet du vieillissement artificiel sur les alliages Al-Cu-Mg-Si.....	53

Chapitre III Matériaux étudiés et Méthodes expérimentales utilisées

III.1	INTRODUCTION	55
III.2	ALLIAGES ETUDIÉS	55
III.3	TRAITEMENTS THERMIQUES APPLIQUES	55
III.4	METHODES EXPERIMENTALES UTILISEES	56
III.4.1	Microscopie Optique	56
III.4.2	Analyse calorimétrique différentielle (DSC)	58
III.4.3	Analyse dilatométrique différentielle	59
III.4.4	Diffraction des rayons X	60
III.4.5	Microdureté	62

Chapitre IV Résultats expérimentaux et discussion

IV.1	INTRODUCTION	65
IV.2	IDENTIFICATION DE LA SEQUENCE DE PRECIPITATION DANS LES ALLIAGE Al-Cu-Mg-Si	65
IV.2.1	Etude par analyse calorimétrique différentielle à balayage (DSC)	66
IV.2.2	Etude par analyse dilatométrique différentielle	67
IV.2.3	Etude par diffraction des rayons X	68
IV.2.4	Etude par mesure de la micr-dureté	76
IV.3	ETUDE DE L'EFFET DE LA MATURATION A LA TEMPERATURE AMBIANTE SUR L'ETAT DE LA SOLUTION SOLIDE.....	77
IV.4	ETUDE DE L'EFFET DU VIEILLISSEMENT ARTIFICIEL SUR L'ETAT DE SOLUTION SOLIDE	79
IV.4.1	Etude des cinétiques de durcissement durant le vieillissement à 160 °C	80
IV.4.2	Etude métallographique.....	85

<i>CONCLUSION GENERALE</i>	89
---	----

<i>PERSPECTIVES</i>	91
----------------------------------	----

<i>REFERENCES</i>	93
--------------------------------	----

<i>RESUME</i>	97
----------------------------	----

Introduction

Introduction générale

L'utilisation des matériaux dépend de leur disponibilité, de leur coût, de leur facilité de mise en forme et de leur compatibilité avec l'environnement (propriétés mécaniques, physiques et chimiques). Tout progrès technologique important est souvent lié au développement de matériaux dotés de propriétés améliorées ou de nouveaux matériaux. De toutes les méthodes destinées à améliorer la résistance des métaux, celle qui a eu le plus de succès est le durcissement par précipitation, pour un métal très ductile, tel que l'aluminium ou le cuivre.

Le durcissement par précipitation permet d'atteindre des résistances élevées tout en conservant une ductilité satisfaisante [1]. La technique est fondée sur le fait que certaines phases solubles à haute température peuvent par des méthodes appropriées, de trempe et revenu, être partiellement ou complètement éliminée sous la forme d'une dispersion durcissante à des températures proches de la température ambiante.

Le durcissement par précipitation est devenu la plus technique importante pour accroître la résistance des alliages, non seulement de ceux qui sont destinés à travailler aux températures ordinaires, mais aussi de ceux qui sont utilisés sous des températures de 1000 °C et même plus [2]. Les applications du durcissement structural dans les alliages légers sont extrêmement nombreuses et importantes ; elles couvrent un vaste champ industriel.

La précipitation dans les alliages d'aluminium et le phénomène de durcissement structural sont des exemples types d'une problématique scientifique où l'innovation industrielle, les chercheurs théoriciens, les expérimentateurs et les instruments d'observation et de caractérisation ont progressé ensemble, et progressent encore. La précipitation d'une nouvelle phase, de manière extrêmement fine, à partir d'une solution solide sursaturée est la base du durcissement structural des alliages d'aluminium.

La taille, la cohérence, la morphologie et la densité des particules de la phase précipitée contrôlent le durcissement de l'alliage, alors que la taille de grains de la matrice contrôle sa ductilité. Ces caractéristiques microstructurales peuvent être affectées essentiellement par deux facteurs: la température de vieillissement et le taux de la déformation plastique généralement effectuée entre le traitement d'homogénéisation et de vieillissement.

L'aluminium à l'état pur présente de faibles caractéristiques mécaniques rendant impossible son utilisation dans la construction de structures mécaniques. Cependant, l'ajout d'éléments d'addition et l'application de traitements thermiques provoquent la précipitation de certaines phases dans la matrice d'aluminium ; l'alliage est alors généralement plus résistant mais aussi moins ductile que l'aluminium pur. Il existe plusieurs familles d'alliages d'aluminium corroyés qui diffèrent par leurs éléments d'addition principaux; Al-Cu (série 2000), Al-Mn (série 3000), Al-Si (série 4000), Al-Mg (série 5000), Al-Mg-Si (série 6000) et les alliages Al-Mg-Zn (série 7000). Les alliages qui répondent au durcissement structural par précipitation sont les alliages de la série 2xxx (Al-Cu /Al-Cu-Mg), la série 6xxx (Al-Mg-Si) et la série 7xxx (Al-Zn).

Dans ce travail nous nous intéressons aux alliages Al-Cu- Mg-Si qui font partie à la série 2XXX. Il est connu depuis longtemps qu'ils durcissent par précipitation des phases métastables au cours de vieillissement à des températures entre 160 °C et 200 °C. Cependant, ces alliages industriels peuvent subir un traitement de durcissement par précipitation qui améliore notablement les propriétés mécaniques ; ces dernières sont déterminées par la microstructure développée après des traitements thermiques comprenant la mise en solution solide des tous les constituants, une trempe et un vieillissement à une température intermédiaire. Cette microstructure peut être décrite par la composition, la morphologie, la distribution et la taille des précipités formés durant la décomposition des solutions solides sursaturées dans ces alliages.

Bien que plusieurs travaux furent consacrés aux phénomènes de précipitation dans les alliages Al-Cu-Mg-Si dans différents domaines de température, plusieurs questions restent encore posées et concernant surtout la cinétique, le mécanisme et la séquence de précipitation ainsi que la forme des particules précipitées.

Ce mémoire de Magister a été réalisée dans le but d'étudier l'influence de la précipitation des différentes phases, produites par différents traitements thermiques, sur le durcissement d'un alliage Al - 4,65 % Cu -1,077 % Mg - 0,702 % Si - 0,691 % Mn - 0,412 % Fe (% massique).

Dans ce travail nous avons utilisé différentes techniques de caractérisation telle que l'analyse calorimétrique différentielle à balayage (DSC), l'analyse dilatométriques différentielle, la diffraction des rayons X à l'ambiante (DRX) et à haute température (DRXHT), les mesures de la microdureté et l'observation métallographique par microscopie optique.

En plus d'une introduction où on présente et on justifie le choix de ce thème de recherche, et d'une conclusion où on résume l'essentiel des résultats obtenus et d'une liste des références bibliographiques consultées, ce mémoire est constitué de quatre chapitres :

- le premier chapitre s'intéresse aux notions générales sur la précipitation dans les alliages à base d'aluminium, suivi d'un rappel théorique sur le phénomène de durcissement dans ces alliages.
- Le second chapitre est un rappel sur la précipitation dans les alliages Al-Cu-Mg-Si et les phases apparaissant dans leur séquence de précipitation ainsi que l'influence des différents paramètres sur la précipitation.
- le troisième chapitre comporte une description des méthodes expérimentales utilisées, c'est-à-dire la microscopie optique, l'analyse calorimétrique différentielle à balayage (DSC), l'analyse dilatométrique différentielle, la diffraction des rayons X et les mesures de la microdureté.
- Le quatrième chapitre présente les résultats expérimentaux obtenus par les différentes techniques et leurs interprétations.

Chapitre I

*La précipitation
dans les alliages
d'aluminium*

Chapitre I

La précipitation dans les alliages d'aluminium

I.1 Introduction

Les alliages d'aluminium ont un large champ d'applications grâce à la diversité de leurs propriétés mécaniques. Les alliages d'aluminium à durcissement structural (à l'exemple de ceux de la série 6000) sont utilisés dans le cadre de l'allègement des structures notamment, de transport aérien, naval et terrestre.

Un alliage mis en solution à haute température puis trempé à l'eau, se trouve à l'état de solution solide sursaturée. Celle-ci évolue vers l'équilibre caractérisé par la précipitation d'une phase d'équilibre en passant par une succession d'états métastables caractérisés par la précipitation des phases métastables cohérentes ou semi-cohérentes avec la matrice. Ces précipités entravent le mouvement des dislocations et sont responsables du durcissement de l'alliage. La précipitation des phases régie par la diffusion d'atomes de soluté au sein de la matrice, peut être accélérée par des traitements thermiques de revenu.

La précipitation d'une solution solide sursaturée est un processus physicochimique dont la cinétique est déterminée par plusieurs facteurs, en particulier la présence des défauts du réseau et leur répartition dans l'alliage, et le type de transformation (décomposition spinodale, précipitation continue et précipitation discontinue).

L'intérêt qui s'attache à l'étude des réactions de précipitation est dû principalement aux modifications des propriétés mécaniques des solutions solides au sein desquelles elles se produisent. Ces modifications consistent le plus souvent en une élévation de la limite élastique, de la charge de rupture et de la dureté. L'évolution de ces grandeurs au cours du vieillissement dépend dans une large mesure de la température et de l'état structural du matériau.

Nous avons reporté dans ce chapitre quelques uns des aspects généraux des alliages d'aluminium et leurs domaines d'applications, ainsi que les différents types d'alliages classés selon la nature des microstructures qu'ils peuvent engendrer.

Ce chapitre est consacré à la précipitation dans les alliages à base d'aluminium et au phénomène de durcissement dans les alliages d'aluminium.

I.2 Les alliages d'aluminium

L'aluminium est peu utilisé à l'état pur, sauf en miroiterie, du fait de sa faible résistance mécanique (au maximum 20 kg/mm²), d'où son utilisation sous forme d'alliages. En effet, l'addition contrôlée des éléments d'alliages tels que ; le cuivre, le silicium, le magnésium, le manganèse, le titane, le chrome, le zinc, le cobalt améliorent les propriétés mécaniques [3.4].

Le durcissement structural de l'aluminium est obtenu par l'ajout d'éléments d'addition ; ces derniers peuvent être soit en solution solide soit sous forme de précipités.

L'aluminium et ses alliages sont utilisés dans tous les domaines de l'industrie et de la vie quotidienne : constructions aéronautique et automobile, l'industrie ferroviaire et navale (superstructures et équipements), dans le bâtiment (toitures, façades, aménagement intérieur), dans l'industrie électrique (conducteurs électriques et appareillages), pour la fabrication d'appareils ménagers, l'emballage et la décoration [5 ,6], et enfin l'utilisation des alliages d'aluminium pour les composants du groupe moto propulseur, en particulier les alliages à durcissement structural Al-Si-Mg-Cu pour les culasses Diesel [7].

Les alliages du système Al-Cu-Mg-Si servent aussi de matériaux structuraux importants dans l'industrie du véhicule à moteur et aérospatiale [7]. Par ailleurs, les alliages Al-Mg-Si-(Cu), de durcissement par précipitation, ont été choisis pour la fabrication des panneaux de revêtements [8].

Série Désignation	Élément d'alliage principal	Phase principale présente dans l'alliage
Série 1000 1XXX	99% d'aluminium au minimum	
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	Lithium (Li)	-
Série 9000 /	Non utilisé	-

Tableau I. 1 : Désignation des séries principales des alliages d'aluminium [3, 9]

Il existe environ 310 alliages d'aluminium différents, les alliages d'aluminium les plus répandus sont Al-Cu, Al-Mg, Al-Cu-Mg-Si, ainsi que Al-Zn-Mg-Cu. A l'état d'équilibre, tous ces alliages forment une solution solide faiblement alliée et des phases intermétalliques Al_2Cu , (phase θ), Mg_2Si , Al_2CuMg (phase S), Al_6CuMg_4 (phase T), Al_3Mg_2 .

Suivant l'aptitude au durcissement par traitement thermique, les alliages corroyés sont classés en deux types : Alliages sans durcissement structural (non trempant) et alliages avec durcissement structural (trempant). Les alliages sans durcissement structural sont les alliages à base de Mn et Mg tels que ; Al-Mn (série 3000), Al-Mg (série 5000), Al-Mg-Mn (alliages de forge et d'estampage) [10]. Les alliages qui répondent au durcissement structural par précipitation sont les alliages de la série 2xxx (Al-Cu /Al-Cu-Mg), la série 6xxx (Al-Mg-Si) et la série 7xxx (Al-Zn) [11].

La possibilité de traiter thermiquement un alliage est due à l'augmentation, avec la température, de la solubilité à l'état solide des éléments d'addition. En général, les traitements thermiques en métallurgie sont : la trempe, le revenu, le recuit et le vieillissement : ce sont des opérations de chauffage suivi de refroidissement qui ont pour but de modifier la nature et la répartition des constituants d'un matériau [12]. On peut diviser les traitements thermiques appliqués aux alliages d'aluminium en trois types : traitements d'homogénéisations, traitements de durcissement structural et traitements d'adoucissement [13, 14].

I.3 Phénomène de la précipitation

Tout système hors équilibre minimise son énergie par un réarrangement atomique qui s'effectue par diffusion des atomes et des défauts de structure pour atteindre un état d'équilibre stable ou métastable. La précipitation d'une solution solide sursaturée est une transformation caractérisée par une germination et une croissance d'une ou de plusieurs phases.

Elle consiste en général en une décomposition de la solution solide sursaturée (la matrice mère) en une nouvelle phase (le précipité) et une nouvelle solution solide (la matrice appauvrie).

Pour déclencher une réaction de précipitation, il faut effectuer les trois étapes suivantes :

- Mise en solution à une température suffisante pour mettre en solution le plus grand nombre possible d'éléments. Cette étape permet de dissoudre les précipités présents, d'éliminer toute ségrégation dans l'alliage et d'arriver à un système monophasé.
- Refroidissement rapide ou trempe pour obtenir une seule phase hors équilibre, dite solution solide sursaturée.
- Maturation ou revenu pendant lesquels se produit la décomposition contrôlée de la solution solide sursaturée.

Au cours du maintien de l'alliage à température ambiante ou à basse température après la trempe, la solution solide sursaturée est donc métastable. Au cours de cette phase, appelée maturation ou vieillissement naturel, l'alliage durcit progressivement et spontanément et la solution solide se décompose pour donner naissance à la formation de petits amas d'atomes de soluté (les zones de Guinier-Preston ou zones GP) en très grande densité (de l'ordre de 10^{17} à $10^{18}/\text{cm}^3$) : c'est le pré-precipitation [14].

I.3.1 Différent type de la précipitation

Il existe deux types de précipitation : la précipitation discontinue et la précipitation continue.

Précipitation continue : La précipitation continue est une transformation pendant laquelle la concentration en soluté de la phase mère diminue continûment jusqu'à sa valeur d'équilibre. Cette précipitation conduit donc, au moins dans un premier temps, à l'obtention d'un certain nombre de précipités isolés qui grossissent par le drainage des atomes de soluté. Cependant, ces précipités n'ont pas tous, dans des conditions thermiques données, la même probabilité d'apparition.

En effet, les relations cristallographiques entre la phase mère et le produit de la précipitation déterminent les énergies associées à l'interface et l'énergie élastique emmagasinée dans la matrice.

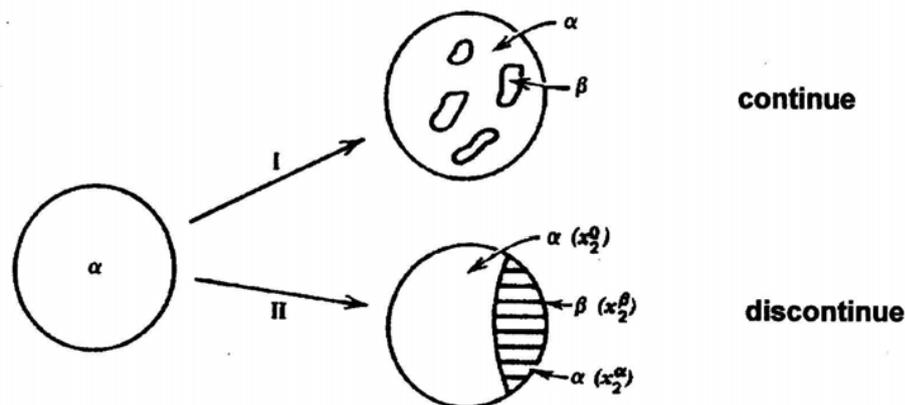


Fig. I. 1 : Illustration schématique des deux types de réactions de précipitation [15].

Précipitation discontinue : On dit qu'il y'a précipitation discontinue quand, pendant la transformation, le cristal est divisé en deux catégories de régions, les unes où la transformation est complète, les autres où la solution solide sursaturée reste inchangée. Elle nécessite donc la germination et la croissance de cellules constituées de produits biphasés (lamelles de la seconde phase noyées dans la matrice d'équilibre). Partant de la solution solide, on obtient donc un mélange d'une solution solide réorientée ou non par rapport à la phase mère qui est appauvrie, et d'une nouvelle phase dispersée dans la matrice.

I.3.2 Mécanisme de précipitation

I.3.2.1 Décomposition d'une solution solide sursaturée

La décomposition d'une solution solide sursaturée est un processus physico-chimique dont les cinétiques sont déterminées par plusieurs facteurs, en particulier la présence des défauts du réseau et leur répartition dans l'alliage, et le type de transformation (décomposition spinodale, précipitation continue et précipitation discontinue).

L'intérêt qui s'attache à l'étude de ces réactions est dû principalement aux modifications des propriétés mécaniques des solutions solides qui peuvent en résulter au cours des ces réaction.

La décomposition peut être décrite par la succession de trois étapes : germination, croissance et coalescence.

I.3.2.1.1 La germination

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. La germination semble se faire au hasard et être due aux fluctuations naturelles de concentration de la phase mère.

On distingue deux types de germination:

- ❖ La germination homogène : qui ne peut théoriquement exister que dans un cristal parfait. 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.

Pour qu'il y ait germination homogène, il faudrait qu'un élément de petit volume de la phase mère soit structurellement, chimiquement et énergétiquement identique à n'importe quel autre

élément de cette phase. Le processus de germination homogène implique la formation d'une interface. Celui-ci s'accompagne d'une variation d'enthalpie libre donnée par l'expression:

$$\Delta G = \Delta G_V + \Delta G_S + \Delta G_d \dots\dots\dots(1) [16]$$

Avec $\Delta G_V \leq 0$; $\Delta G_S \geq 0$; $\Delta G_d \geq 0$

Où ΔG_V : énergie libre volumique de formation d'un germe ou d'un précipité.

ΔG_S : énergie libre de surface.

ΔG_d : énergie élastique de distorsion des réseaux (la variation d'enthalpie de déformation).

Le terme ΔG_d est généralement négligeable en première approximation vu sa faible contribution au premier stade de la germination. A ce stade le germe est de très petite dimension. Les deux autres termes de variations d'enthalpie libre sont étroitement liés aux dimensions du germe.

Si on suppose que les germes ont une forme sphérique [8, 17], de rayon r on a :

$$\Delta G_V = 4\pi r^3 /3(G_\beta - G_\alpha) \dots\dots\dots (2)$$

$$\Delta G_S = 4\pi r^2 \delta \dots\dots\dots (3)$$

Où G_β et G_α sont les enthalpies libres volumiques spécifiques des phases respectivement et δ l'enthalpie libre superficielle spécifique à l'interface α/β .

Par substitution dans l'équation (1) on a alors :

$$\Delta G = 4\pi r^3 /3(G_\beta - G_\alpha) + 4\pi r^2 \delta \dots\dots\dots (4) [18]$$

Elle englobe deux termes, l'un négatif ΔG_V et l'autre positif ΔG_S .

Une valeur critique du rayon r_c du germe est déterminée par la condition suivante [19] :

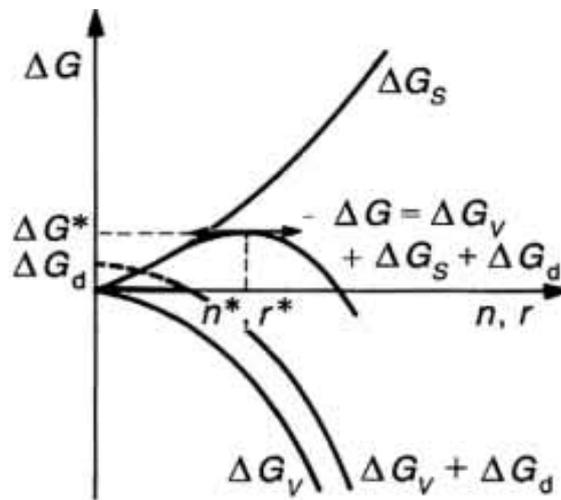
$$d\Delta G /dr = 4\pi r^2 (G_\beta - G_\alpha) + 8\pi r \delta = 0 \dots\dots\dots (5)$$

$$r_c = - 2\delta / (G_\beta - G_\alpha) \dots\dots\dots (6)$$

Toute croissance du germe de rayon r inférieure au rayon critique r_c ($r < r_c$) entraîne un accroissement de l'enthalpie libre de l'alliage, ce qui est impossible car $d\Delta G /dr > 0$.

Dans le cas où $r > r_c$, on a $d\Delta G/dr < 0$, toute croissance du germe de rayon supérieur à r_c entraîne une diminution de l'enthalpie libre de l'alliage; c'est-à-dire un accroissement de la stabilité du germe, ceci est schématisé dans la figure I.2 [19].

La théorie de la germination et de la croissance tient compte du fait qu'une barrière d'énergie doit être franchie afin que les embryons puissent se stabiliser. Cette barrière d'énergie résulte du compromis existant entre une énergie de volume qui stimule la germination et l'énergie de création de l'interface qui retarde celle-ci [4].



$n^*, r^*, \Delta G^*$ valeurs critiques au-dessous desquelles la germination est déstabilisée

Fig. I. 2 : Évolution schématique des composantes de la variation d'énergie libre totale ΔG induite par la germination en fonction du nombre d'atomes n ou du rayon r du germe [19].

- ❖ La germination hétérogène : la germination démarre presque toujours sur des hétérogénéités de la phase mère qui abaissent l'enthalpie libre de formation des germes en réduisant, soit l'énergie superficielle, soit l'énergie de déformation, soit les deux. Ces imperfections peuvent être les joints de grains, les surfaces de polygonisation, les dislocations isolées, les défauts d'empilement et les défauts ponctuels.

Dans le cas d'un joint de grain, l'enthalpie libre de formation d'un germe sur un joint de grain, ΔG_j , est reliée à celle de la formation d'un germe sphérique de même rayon dans la matrice, ΔG_m , par la relation:

$$\Delta G_j = \Delta G_m (2 - \cos\theta + \cos 3\theta) \dots\dots\dots (7) [20].$$

Où θ est l'angle d'équilibre de tension superficielle, représenté schématiquement dans la figure I.3.

Les deux germes sont donc critiques pour une même valeur du rayon, mais l'enthalpie libre du germe critique est beaucoup plus faible dans le joint que dans la matrice. Cette différence entre les enthalpies libres de formation des embryons fait que la germination hétérogène démarre bien avant la germination homogène.

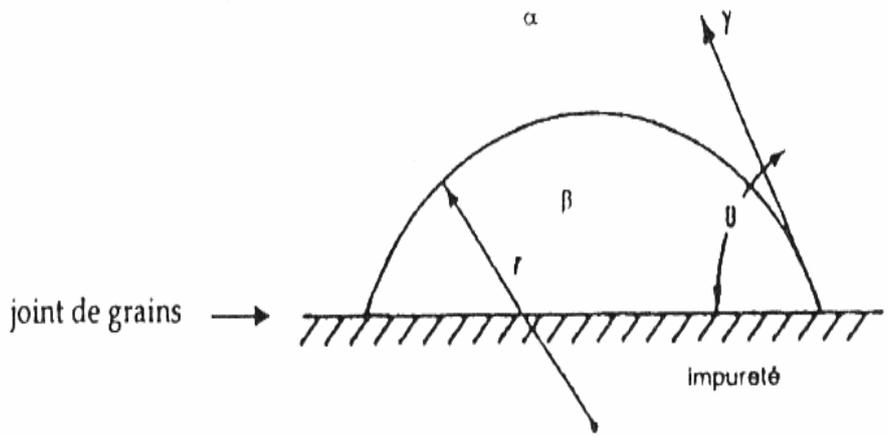


Fig. I. 3 : Germination sur un joint de grains [20].

1.3.2.1.2 La croissance

La croissance ultérieure des germes et des précipités est régie par la diffusion des atomes de soluté vers les germes, qui est thermiquement activée.

Le traitement de revenu provoque la croissance initiale des précipités par drainage du soluté selon un processus régi, soit par le transfert du soluté à l'interface entre la matrice et le précipité, soit par la diffusion du soluté dans la matrice, soit par un mode de contrôle mixte. Il s'ensuit l'existence d'un gradient de concentration en soluté dans la matrice à partir de l'interface entre la matrice et le précipité.

Les cinétiques de transformation de phases résultant d'un processus de germination et croissance sont généralement régies par la loi de transformation proposée par Johnson Mehl-Avrami-Kolmorov [21, 22]. Elle exprime le taux d'avancement de la transformation au cours du temps :

$$F=1-\exp(-kt)^n \dots\dots\dots (8)$$

Où k est une constante dépendant de la température et de la vitesse de la transformation et n, le paramètre de croissance variant de 1 à 4 selon le type de transformation.

1.3.2.1.3 La coalescence

Lorsqu'un système contenant une phase dispersée est maintenu à une température relativement élevée, le nombre de particules de la phase dispersée décroît tandis que la taille moyenne des particules augmente. Pendant cette coalescence, les grandes particules croissent aux dépens des plus petites particules car le système tend à réduire son énergie libre globale en diminuant la surface totale des interfaces [19].

La coalescence des précipités prend place quand la concentration des atomes du soluté est plus importante aux voisinages des particules fines par rapport à celle du volume adhérent aux grandes particules. Cette différence de concentration fait que les atomes de soluté diffusent depuis la surface de séparation des particules fines vers la surface de séparation des grandes particules.

Les atomes du composant de base diffusent de la grande particule à la particule fine. Cette diffusion entraîne une sursaturation de la solution solide près de la seconde phase. Ce qui entraîne leur croissance [8].

1.3.2.2 Décomposition spinodale

La courbe d'énergie libre molaire de Gibbs, représentée à une température T (Fig. I. 4), est caractérisée par deux points d'inflexion I et J aux concentrations x_I et x_J .

Une diminution continue et progressive de l'énergie libre chimique du système de concentration comprise entre x_I et x_J , favorable du point de vue thermodynamique, est obtenue par la démixtion de la solution solide initiale en deux composantes dont l'une est de plus en plus appauvrie en soluté et l'autre, de plus en plus enrichie en soluté.

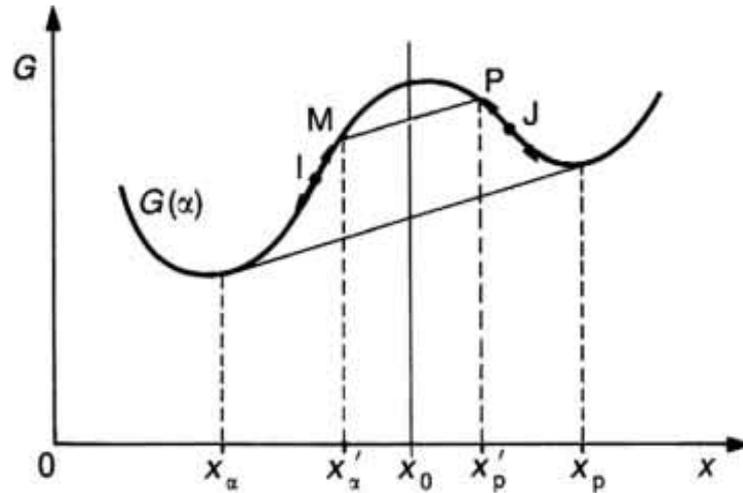


Fig. I. 4 : Courbe d'énergie libre G à basse température d'un alliage de concentration x_0 [23].

La précipitation qui s'initie alors à partir de fluctuations de faibles amplitudes et très étendues en composition au sein de la solution solide, se produit dans tout le grain.

Les différences de compositions, très faibles au début de la démixtion de l'alliage, tendent à s'amplifier au fur et à mesure de l'avancement de la décomposition, le soluté migrant vers le précipité par diffusion à courte distance en remontant le gradient de concentration jusqu'à la composition finale du précipité x_p . Il en résulte une microstructure caractérisée par une modulation apparemment périodique de la distribution de précipités dans la matrice. [18].

I.4 Phénomène de durcissement dans les alliages d'aluminium

Le durcissement des alliages d'aluminium a été découvert en 1906 par l'allemand Alfred Wight dans le système Al-Cu-Mg-Mn [10]. Il est obtenu par l'ajout d'éléments qui modifient plus ou moins sa microstructure soit en entrant en solution solide de substitution, soit en formant des précipités hors solutions solide, soit en permettant le durcissement structural.

Les propriétés mécaniques d'un matériau, sont liées à sa microstructure et précisément au mouvement facile ou difficile des dislocations. En effet, pour améliorer les propriétés mécaniques d'un matériau, il faut créer des obstacles au mouvement des dislocations, c'est le type d'obstacle qui va définir le mécanisme de durcissement, dont on peut citer quelques-uns : Durcissement par irradiation, Durcissement par réduction de la taille des grains, Durcissement en solution, Durcissement par déformation plastique (écrouissage), Durcissement par précipitation (durcissement structural) [24]. Dans notre travail interviennent les quatre derniers mécanismes.

I.4.1 Durcissement par affinage de la taille des grains

La taille des grains est gouvernée par plusieurs paramètres, comme la composition chimique du matériau et l'histoire thermique et mécanique subie par le matériau (contrainte et déformation, chauffage/refroidissement...).

Les joints de grains constituent des obstacles importants au mouvement des dislocations. La distance entre dislocations, à l'équilibre avec la contrainte appliquée, croît lorsque l'on va de l'obstacle vers la source. En tête d'empilement, au voisinage de l'obstacle, les dislocations exercent une force locale, proportionnelle à leur nombre, qui finit par déclencher le glissement dans le deuxième grain, au-delà d'une valeur critique.

Plus la taille de grains est petite, plus la densité des joints de grain augmente ; la taille de l'empilement et la contrainte exercée en tête d'empilement sont alors faibles [10, 12, 25]. Il faut donc une contrainte extérieure d'autant plus élevée pour déclencher la déformation plastique dans les grains adjacents.

Expérimentalement comme par le calcul, on trouve la loi suivante, dite de Hall et Petch, qui décrit bien la variation des paramètres macroscopiques (propriétés mécaniques) en fonction des paramètres microstructuraux (taille des grains) [12, 26].

$$\sigma = \sigma_0 + K \frac{1}{d^{1/2}} \dots\dots\dots (9)$$

- σ Représente la limite d'élasticité du matériau (en cisaillement).
- K Constante intrinsèque du matériau.
- d La taille moyenne des grains.
- σ_0 La contrainte de cisaillement nécessaire au mouvement des dislocations dans le réseau parfait.

Cette loi est bien respectée pour la plupart des alliages métalliques (Fig. I. 3), du moins lorsque le grain est suffisamment gros pour qu'on puisse parler d'empilement de dislocations. Pour les matériaux à grains très fins (typiquement 10 nm), on ne peut plus parler d'empilement de dislocations et d'autres lois pourraient intervenir.

Il existe une relation proposée par TABOR (1975), reliant la contrainte d'écoulement σ à la microdureté H_v [27].

$$\sigma = 3H_v \dots\dots\dots (10)$$

$$kH_v = H_0 + K' \frac{1}{d^{1/2}} \dots\dots\dots (11)$$

k' constante intrinsèque du matériau.

Les moyens souvent utilisés pour réduire la taille des grains, sont les déformations plastiques sévères (**DPS**) par des traitements thermomécaniques [25, 27, 28]. Enfin, l'avantage de la taille fine des grains est d'avoir de bonnes propriétés mécaniques tout en conservant les propriétés ductiles du matériau [26, 28].

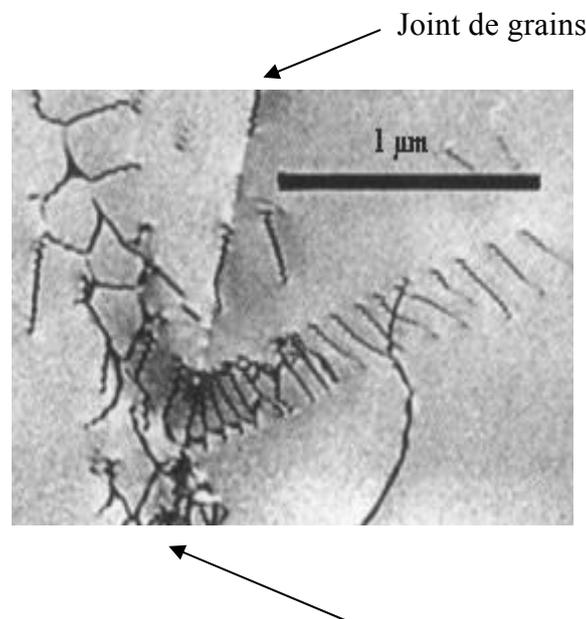


Fig. I. 5 : Durcissement par la taille de grains : empilement de dislocations près d'un joint de grains, créant des contraintes dans le grain d'à côté [26].

I.4.2 Durcissement par solution solide

Ce type de durcissement est obtenu par addition d'éléments d'alliage en solution, il perturbe le réseau qui devient plus difficile à déformer. Si l'élément n'est pas en solution solide, il forme aussi des perturbations dans le réseau comme les précipités qui ont le même effet de difficulté de déformation [26].

La résistance mécanique du métal sera d'autant plus grande que le nombre et l'importance de ces perturbations seront plus grands [10]. On comprendra, bien sûr, que l'effet sera d'autant plus important pour la création d'une solution solide sursaturée qui a un potentiel pour la précipitation au cours du vieillissement à une température élevée. Le mécanisme de ce durcissement est expliqué par l'existence d'une force de freinage qui résulte d'une interaction entre les dislocations et les atomes étrangers en solution.

I.4.3 Durcissement par déformation plastique (écrouissage)

Le durcissement par écrouissage correspond à une modification de structure provoquée par une déformation plastique [29]. Cependant, l'augmentation de la densité de joints de grains entrave davantage le mouvement des dislocations et en raison de l'augmentation de leur densité, les dislocations s'enchevêtrent et durcissent l'alliage. Cet effet est d'autant plus marqué que la mise en forme subie est importante ou que le taux d'écrouissage est élevé [22, 26].

Les effets d'un durcissement par déformation peuvent être adoucis par un traitement thermique de recuit. Dans ce traitement, les propriétés et les structures peuvent revenir aux états précédant le travail à froid. Le matériau subit trois processus distincts à ces températures élevées de recuit : restauration, recristallisation et grossissement du grain. Un durcissement par déformation à chaud est possible mais largement réduit par la restauration et la recristallisation [26].

I.4.4 Durcissement par précipitation (durcissement structural)

En 1911, Wilms découvrit qu'un alliage Al-Cu durcissait au cours du vieillissement à température ambiante après trempe. Ce fut le point de départ d'une nouvelle technique d'amélioration des propriétés mécaniques des métaux [4], en particulier pour l'aluminium. C'est grâce à cette technique que ses alliages sont devenus les alliages privilégiés pour les applications dans le domaine du transport, notamment dans l'aéronautique [30]. Aujourd'hui, le durcissement par précipitation est devenu une pratique courante en métallurgie. Elle ne s'applique pas uniquement aux alliages à base d'aluminium. Le tableau ci-dessous donne des exemples d'alliages qui durcissent par précipitation lors d'un revenu après trempe.

La précipitation est le moyen d'obtenir le durcissement le plus important dans les alliages d'aluminium, loin devant le durcissement par solution solide ou par écrouissage. Cependant, le durcissement d'un alliage par précipitation est contrôlé par l'interaction entre les dislocations et les précipités qui peuvent se former durant le vieillissement [31].

Métal de base Alliage	Paramètres cristallographiques des précipités	Précipités
Al-Cu	a = 0,405 nm ; c = 0,763 nm a = 0,572 nm ; c = 0,581 nm a = 0,607 nm ; c = 0,487 nm	Zones GP planaires θ'' -Al ₂ Cu θ' -Al ₂ Cu θ -Al ₂ Cu
Al-Cu- Mg (Cu/Mg \approx 2,2)	a = 0,404 nm ; b = 0,924 nm ; c = 0,720 nm a = 0,400 nm ; b = 0,923 nm ; c = 0,714 nm	Zones GP ou GPB S'-Al ₂ CuMg S-Al ₂ CuMg
Al-Cu-Mg-Si (Mg \approx Si; Cu > 3 %)	a = 0,572 nm ; c = 0,581 nm a = 1,032 nm ; c = 0,405 nm	θ' -Al ₂ Cu λ' -Al ₅ Cu ₂ Mg ₈ Si ₇
Al-Li-Cu (Li \geq 1 %)	a= 0,404 nm a= 0,496 nm ; c= 0,931 nm a=0,575 nm ; c= 0,608 nm	δ' -Al ₃ Li T1-Al ₂ CuLi T' ou T' _B ou θ' -Al ₂ Cu(Li)

Tableau. I. 2 : Alliages durcissables par précipitation d'une seconde phase [4].

Pour comprendre ce type de durcissement, on utilise la théorie élastique des dislocations (notion de champ de contrainte associé à une dislocation, de tension de ligne ...) et des observations physiques (microscopie électronique). En effet, la vitesse de déplacement des dislocations sera liée à la nature des obstacles qui gênent leur mouvement [4, 30].

Principe : Les dislocations vont interagir avec les précipités de la matrice, entraînant une action durcissante, car les inclusions ancrent les dislocations et gênent leur mobilité. De ce fait, la déformation plastique ne peut prendre naissance et se poursuivre que si les inclusions sont franchies par les dislocations. Ce franchissement sera fonction de la cohérence ou non des inclusions avec la matrice [31, 32]. Les précipités peuvent être cohérents, semi-cohérents ou incohérents avec la matrice.

a- Les précipités cohérents

Les précipités sont cohérents, s'il y a continuité géométrique des réseaux cristallographiques de la matrice et des précipités dans toutes les directions cristallographiques. Seules la nature et la disposition des atomes sur le réseau sont modifiées (Fig. I. 6).

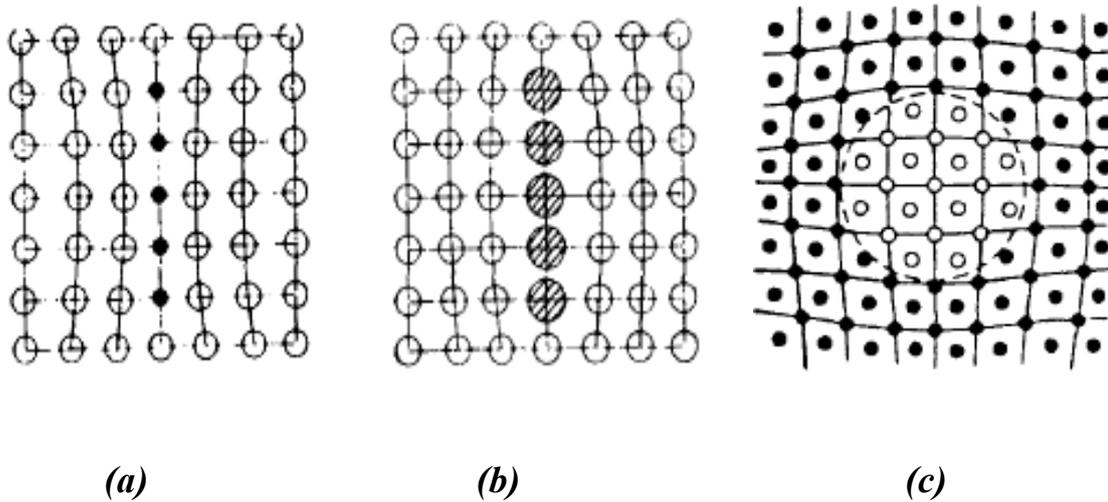


Fig. I. 6 : Représentations schématiques de précipités dans les solides cristallins:

- a) Zone GP, effet de taille négatif;
- b) Zone GP, effet de taille positif;
- c) Précipité cohérent avec distorsion du réseau due à une variation de volume [33].

L'écart à la cohérence δ dans un plan cristallographique est donné par la différence relative des distances réticulaires d_{hkl} dans le plan de la matrice et $d'_{h'k'l'}$, dans le plan de précipité:

$$\delta = (d_{hkl} - d'_{h'k'l'}) / (d_{hkl} + d'_{h'k'l'}) \dots\dots\dots (12) [4]$$

Cet écart est à l'origine de distorsions élastiques dans les réseaux cristallographiques des deux phases. Dans les alliages d'aluminium, la précipitation cohérente est le premier stade de la précipitation homogène. Les précipités cohérents sont nécessairement très petits à condition que l'écart à la cohérence ne soit pas très faible. Pour les zones Guinier-Preston, cet écart est faible lorsque l'écart à la cohérence est, ou devient, trop élevé ; des dislocations sont nécessaires aux

interfaces précipité-matrice pour accommoder les distorsions élastiques [22]. Ce mécanisme s'observe pour des précipités possédant un très fort écart à la cohérence.

b- Les précipités semi-cohérents

Lorsque le germe atteint une dimension critique au delà de laquelle l'énergie de déformation devient plus importante que l'énergie interfaciale, un réseau de dislocations s'introduit progressivement et fait ainsi perdre la continuité du réseau dans certains endroits de l'interface. Le précipité devient à ce moment semi-cohérent, représenté schématiquement dans la figure I.7. (a).

c- Les précipités incohérents

Ces précipités forment une interface avec la matrice à travers laquelle il n'existe aucune continuité du réseau cristallin. Au cours de la croissance du précipité les dislocations continuent leur introduction progressive jusqu'à la perte totale de la continuité du réseau au niveau de l'interface. Il se produit ainsi un changement brusque d'une structure à l'autre au niveau de cette interface représenté schématiquement dans la figure I.7. (b).

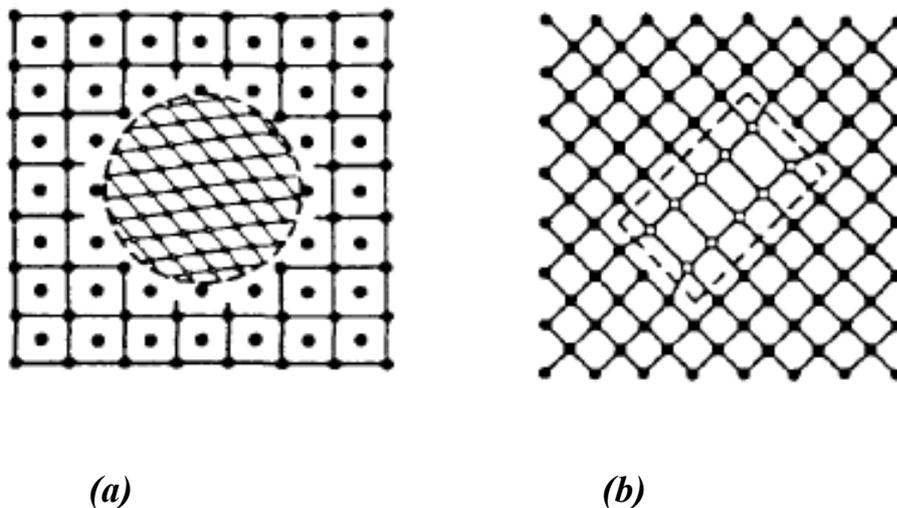


Fig. I. 7 : Représentation schématique du précipité ; (a) semi-cohérent avec la matrice et (b) incohérent avec la matrice [34].

I.4.4.1 Mécanismes du durcissement structural

Les mécanismes du durcissement structural sont analysés à partir de l'approche mécanique associée à la modélisation numérique, pour rendre compte à l'échelle du grain des distributions et des résistances des obstacles, et d'une approche physique qui intègre la nature précise des obstacles (composition, structure cristallographique, etc.) et traduit les mécanismes locaux d'interactions précipité/dislocation. Les contributions relatives de ces mécanismes dépendent de la nature de l'alliage mais généralement de la taille et la dispersion de précipités.

I.4.4.1.1 Effets à distance

Les variations de volume liées à la précipitation ainsi que les différences entre les constantes d'élasticité des précipités et de la matrice sont à l'origine de micro-contraintes internes au matériau qui affectent le mouvement des dislocations, générant un durcissement et engendrant des effets macroscopiques [4].

a- Durcissement par différence de module de cisaillement

L'énergie d'une dislocation, caractérisée par sa tension de ligne, est fonction du module de cisaillement de la matrice. Une différence ΔG de module de cisaillement entre la matrice (G_{mat}) et une particule (G_p) induit une force d'interaction particule/dislocation et génère un durcissement caractérisé par un accroissement de la contrainte seuil σ d'écoulement des dislocations (accroissement de la limite d'élasticité vraie) $\Delta\sigma$ [35].

b- Durcissement par contraintes de cohérence

Ce mécanisme est dû à la différence du paramètre de maille entre la matrice et les précipités cohérents ou encore une différence de coefficient de dilatation thermique entre la matrice et les précipités (cohérents ou incohérents).

Dans les deux cas, le champ de distorsion élastique autour des précipités interagit avec les champs de déformation associés aux dislocations et limite ainsi leur mouvement [36].

I.4.4.1.2 Effet à courte distance

Le durcissement par précipitation est très important dans les alliages d'aluminium. Il est lié à l'interaction précipité-matrice qui dépend de la nature de la particule et de sa relation

cristallographique avec la matrice [37]. Les dislocations peuvent soit cisailer la particule soit la contourner (Fig. I. 8(a)).

I.4.4.1.2.1 Cisaillement des précipités par les dislocations

Le franchissement des précipités par les dislocations par cisaillement fait intervenir des effets à courte distance et par conséquent les caractéristiques chimiques et cristallographiques du précipité et celles de l'interface précipité/matrice. Macroscopiquement, le cisaillement se traduit par la présence de marches de glissement en surface d'échantillons déformés plastiquement ou encore par une faible sensibilité à l'écroutissage des courbes contrainte-déformation [38].

Par microscopie électronique en transmission, la morphologie des lignes de dislocations et des bandes de cisaillement, qui entraîne une localisation de la déformation est caractéristique de ce mécanisme [4, 38]. Pour de faibles déformations plastiques, le cisaillement de précipités n'apparaît que lorsque ceux-ci sont cohérents ou semi-cohérents et que la dislocation peut glisser de manière continue de la matrice dans les précipités.

Lorsque les plans de glissement de la matrice et des précipités sont en coïncidence (plans en épitaxie), le cisaillement s'effectue dans un seul plan (Fig. I. 8. (b)).

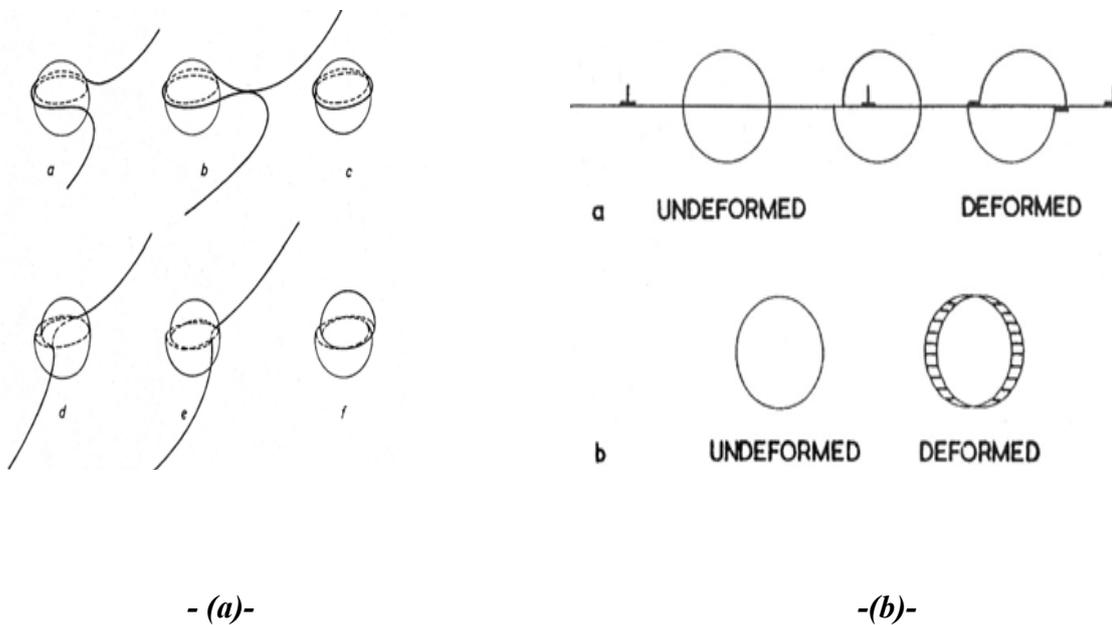


Fig. I. 8 : **a)-**Mécanisme de franchissement d'un précipité : a, b, c contournement et d, e, f cisaillement, **b)-** Mécanisme de cisaillement se produisant dans un seul plan [37].

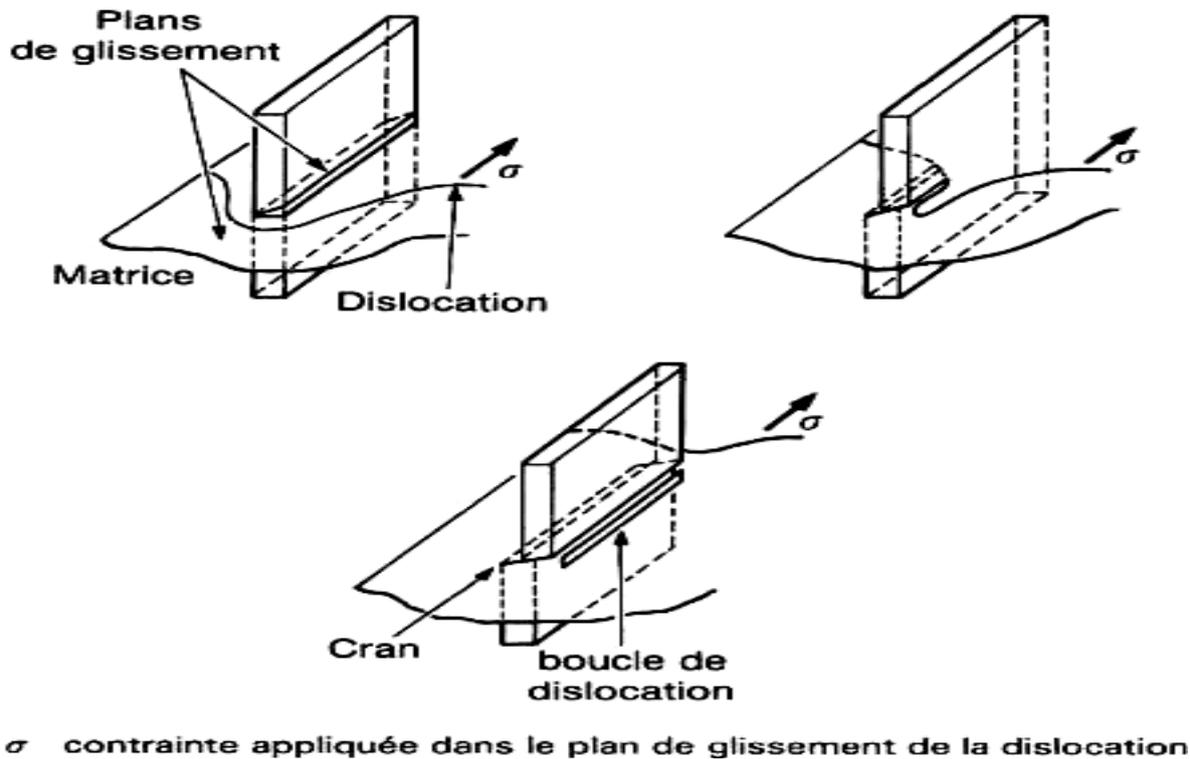


Fig. I. 9 : Cisaillement d'une plaquette ne possédant pas les mêmes plans de glissement que la matrice [38].

Dans le cas contraire, la géométrie du cisaillement peut être beaucoup plus complexe et conduire à l'émission de boucles de dislocations à l'interface précipité/matrice ou encore à la formation d'un cran le long de la ligne de dislocation (Fig. I. 9) [38].

Durcissement chimique :

Lors du cisaillement, plusieurs mécanismes peuvent gouverner le durcissement chimique de l'alliage, il y a la contribution chimique des précipités qui correspond au coût énergétique et qui peut être due à trois contributions [39]:

- la création d'une interface matrice-précipité supplémentaire lors d'un passage de la dislocation à travers le précipité,
- changement de la distance entre les dislocations partielles d'une dislocation dissociable quand elles traversent le précipité où l'énergie d'empilement est différente de celle de la matrice,

- travail additionnel nécessaire pour la création d'une paroi d'antiphase à l'intérieur des précipités ordonnés.

a- Durcissement par incrément de surface

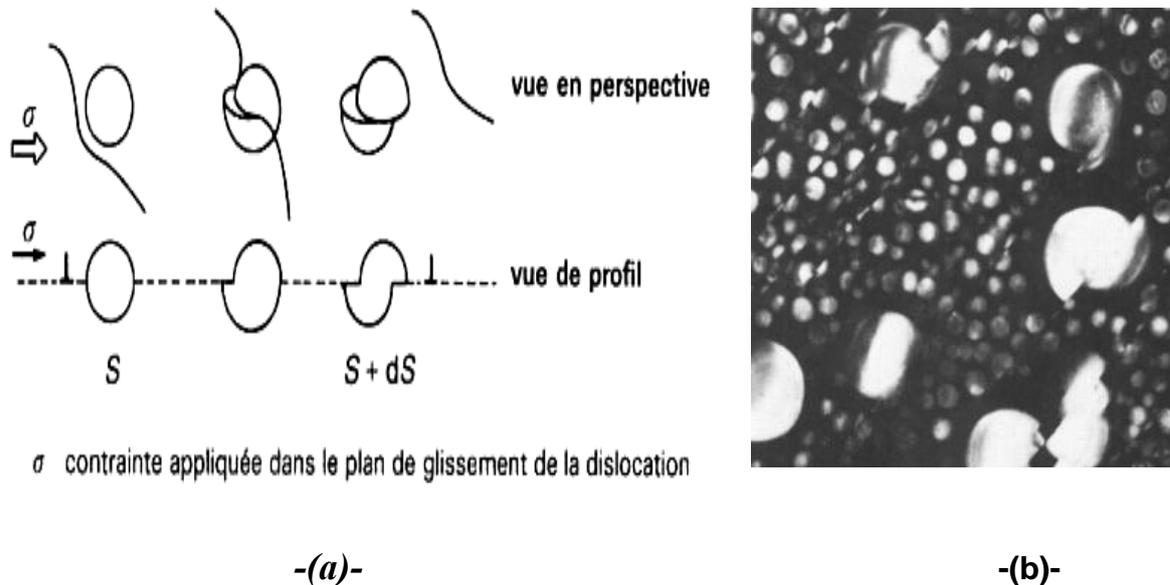


Fig. I. 10 : (a) Cisaillement d'un précipité sphérique dans le plan de glissement d'une dislocation coin, (b) observation au microscope électronique en transmission [4, 40].

Le durcissement d'origine chimique est lié à la création d'une interface précipité/matrice (Fig. I. 10) supplémentaire ds apparaissant au cisaillement, et nécessite l'apport d'énergie $\gamma_s dS$, où γ_s est l'énergie superficielle de l'interface du précipité qui s'oppose à sa création et contribue à freiner le mouvement des dislocations. Ce type de mécanisme n'apporte généralement pas de contribution significative au durcissement dans le cas des précipités cohérents, car leur énergie inter-faciale est trop faible (de l'ordre de 10 à 100 mj/m^2) [4, 25].

c- Durcissement par différence d'énergie de faute d'empilement

Cet effet intervient pour des particules ayant une énergie de faute d'empilement plus faible que celle de la matrice. L'énergie de faute d'empilement d'un cristal est à l'origine de la dissociation en deux dislocations partielles, selon la nature de la phase dans laquelle glisse la dislocation ; leur séparation est plus ou moins prononcée et gêne son mouvement [25, 38].

Dans ce cas, lorsque la dislocation tente de se séparer du précipité, la distance entre les deux dislocations partielles est différente dans le précipité et dans la matrice et la compatibilité à l'interface matrice-précipité impose une distorsion de cette faute d'empilement, coûteuse en énergie. De plus, les énergies de ligne dans la matrice et le précipité sont dans ce cas différentes.

d- Durcissement par effet d'ordre

Le durcissement par la création de fautes de structure est un mécanisme caractéristique de certains alliages de nickel. Ce durcissement suppose la présence de précipités de structure ordonnée. Leur franchissement par une dislocation de la matrice conduit à la formation d'une paroi d'antiphase où l'ordre chimique entre les atomes voisins n'est plus respecté (Fig. I. 11) [37].

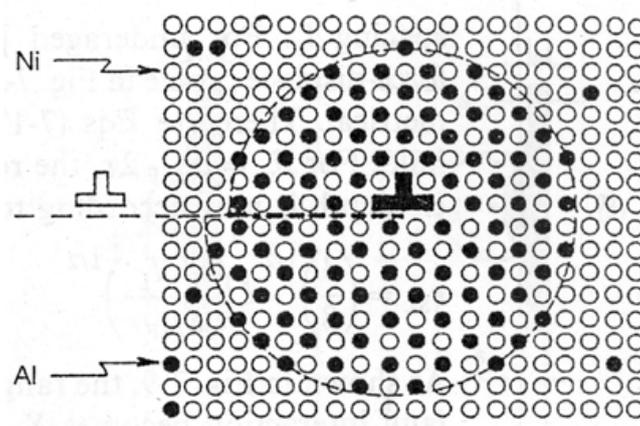


Fig. I. 11 : Représentation schématique de la paroi d'antiphase formée lors du passage d'une dislocation [37].

Ce mécanisme se caractérise microscopiquement par des empilements de dislocations appariées (super-dislocations) (Fig. I. 12). La première dislocation de la paire cisaille et crée les parois d'antiphase dans les précipités ; la deuxième dislocation, de même vecteur de Burgers et glissant dans le même plan que la première, efface le défaut. On ne prend en compte que l'effet de la première dislocation [4, 38, 41] :

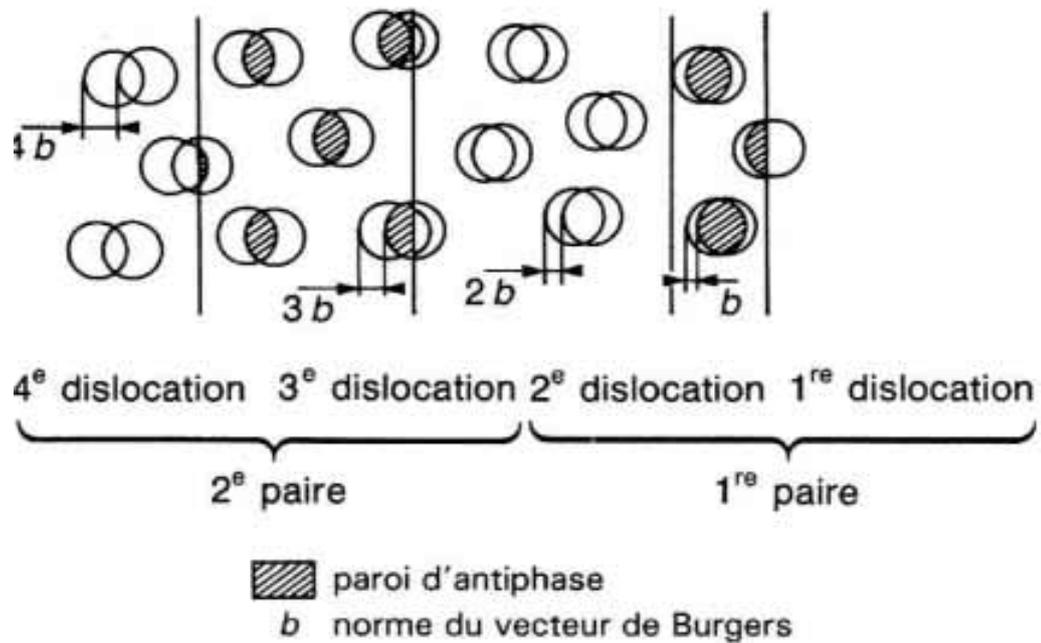


Fig. I. 12 : passages de deux super dislocations dans des précipités [41].

I.4.4.1.2.2 Contournement des précipités par les dislocations

Le cisaillement, associé aux précipités cohérents ou de très petite taille, dans les alliages sur-revenus, les dislocations franchissent les précipités par contournement.

Contournement par glissement primaire :

Le mécanisme de contournement le plus simple est le contournement d'Orowan ou contournement primaire sans déviation (Fig. I. 13). La dislocation évite par contournement le précipité tout en restant dans son propre plan de glissement. Les deux brins de la ligne de dislocation, incurvés de part et d'autre de l'obstacle, se recombinent, permettant l'échappement de la dislocation et laissant autour du précipité une boucle de dislocation [4, 25, 42].

Ce mécanisme, ainsi que tout mécanisme de contournement, concerne les précipités non cisillables parce qu'ils sont incohérents (cas des dispersoïdes ou des précipités structuraux coalescés grossiers) ou parce que le champ de distorsion élastique les environnant s'oppose à

l'approche de la dislocation, ou enfin parce que le bilan énergétique est favorable au contournement même si les précipités sont cristallographiquement cisailables.

L'analyse expérimentale du durcissement d'Orowan a surtout été faite sur des matériaux durcis par de fines dispersions d'oxydes (Cu-SiO₂, Cu-BeO, Cu-Al₂O₃).

Ce mécanisme est caractéristique des alliages d'aluminium trempant élaborés par des procédés conventionnels et traités dans des états sur-revenus. Cependant, dans la pratique, ces traitements d'adoucissement, qui s'accompagnent en outre d'une précipitation intense et grossière aux joints de grain, sont peu utilisés [37].

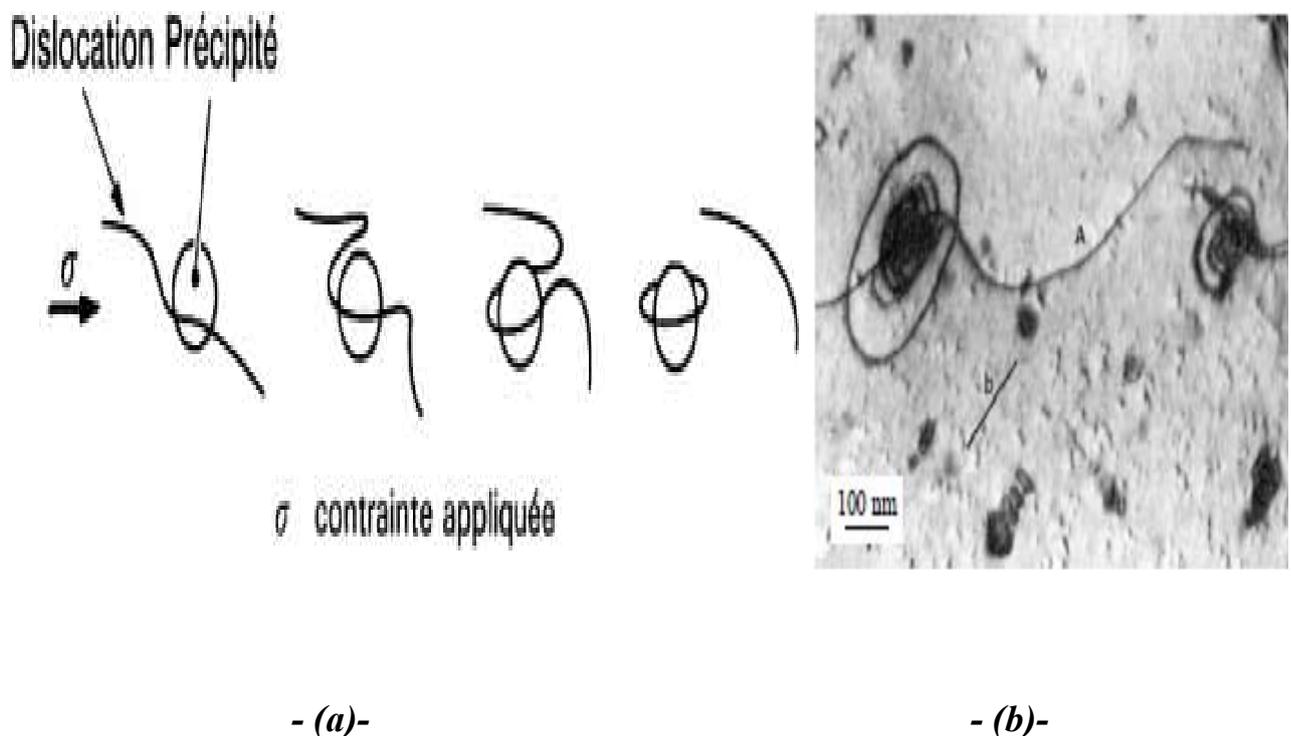


Fig. I. 13 : Contournement des précipités par les dislocations :

(a) mécanisme d'Orowan ; (b) observation, par microscopie électronique en transmission, de boucles de dislocations autour des précipités dans un alliage d'aluminium [42].

Chapitre II

La Précipitation

dans les alliages

Al-Cu-Mg-Si

Chapitre II

La Précipitation dans les alliages Al-Cu-Mg-Si

II.1 Introduction

Le changement de la microstructure dans les alliages Al-Cu-Mg-Si s'opère par la précipitation à l'état solide d'une nouvelle phase à partir des éléments d'additions (Cu, Mg, Si) et d'atomes de solvant (Al). Cependant, avant l'apparition de la phase thermodynamiquement stable, on observe souvent la formation des phases métastables. Ces phases métastables sont souvent plus cohérentes avec la structure cristalline de la matrice (Al- α cubique à faces centrées de paramètre de maille $a = 0,405$ nm) [4].

Bien que la précipitation dans les alliages Al-Cu-Mg-Si a fait l'objet d'une recherche scientifique théorique et expérimentale intense [43-47], la séquence de précipitation dans ces alliages reste toujours un sujet d'actualité et beaucoup de questions restent sans réponses, en particulier, en ce que concerne les mécanismes de formation, la nature, la structure, et la composition des phases apparaissant lors de la décomposition de la solution solide sursaturée.

Ainsi, l'étude de la séquence de précipitation dans ces alliages 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.

La précipitation confère aux alliages Al-Cu-Mg-Si un comportement mécanique appréciable, d'où leur grande importance particulièrement dans l'industrie aéronautique.

Ce chapitre présente donc les alliages Al-Cu-Mg-Si avant de détailler la précipitation et les séquences de précipitation ainsi que l'influence des différents paramètres sur la précipitation dans ces alliages.

II.2 Les alliages Al-Cu-Mg-Si

Le système d'alliage Al-Cu-Mg-Si rassemble plusieurs groupes d'alliages comme les alliages travaillés de la série 2XXX (avec le silicium comme impureté ou élément d'alliage), les alliages 6XXX et les alliages de fonderie 3XXX, qui ont été largement étudiés, à cause de leurs excellentes propriétés [47, 48].

Évidemment, ces alliages sont situés dans différentes parties du système et contiennent différentes concentrations des différents constituants, comme éléments majeurs le cuivre, le magnésium et le silicium et peuvent, en outre, être allié avec des quantités petites de manganèse et du fer [43, 49]. Parmi tous les éléments d'addition, le fer est probablement le plus important, parce qu'il a une affinité avec plusieurs éléments d'addition tel que Mn, Cr, et Si. Il peut former ainsi une large gamme de composés intermétalliques tels que α -Fe₃Al₂Si₃ et Al₂FeSi [44, 50-53].

Les Propriétés spéciales aux alliages Al- Cu-Mg-Si :

-L'unicité du système Al-Cu-Mg-Si est qu'il est le seul système à base d'aluminium où la phase quaternaire Q (Al₅Cu₂Mg₈Si₆, Al₃Cu₂Mg₉Si₇ ou Al₄Cu₂Mg₈Si₇) formée dont les éléments principaux de l'alliage existe, est en équilibre avec l'aluminium dans les intervalles compositionnelles des alliages commerciaux [8, 11, 47].

-L'autre caractéristique prééminente dans ce système est l'un des éléments : le silicium n'est pas réellement un métal mais un semi-conducteur, ce qui peut faire une différence dans son interaction et formation de phase avec les autres constituants métalliques [8, 47, 54]. Ceci peut être un facteur responsable de l'unique comportement de précipitation de la phase β (Mg₂Si), et par la suite, pour la précipitation controversée de la phase Q (Al₅Cu₂Mg₈Si₆, Al₃Cu₂Mg₉Si₇ ou Al₄Cu₂Mg₈Si₇).

L'augmentation initiale des propriétés mécaniques de ces alliages, est due à un mécanisme de diffusion de lacunes. Aux températures ambiantes et élevées, c'est-à-dire dans les conditions sous-vieilles et bien vieilles, les lacunes sont très mobiles. Ces lacunes 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 des zones, le degré de perturbation dans le réseau augmente [55].

L'évolution de ces propriétés mécaniques avec le temps de revenu à température modérée est relativement complexe, et dépend des phases métastables présentes dans l'alliage. La phase d'équilibre offre peu d'intérêt du point de vue propriétés mécaniques, car les particules ont des grosses tailles, et sont très dispersées [43].

Les propriétés mécaniques finales de ces alliages sont déterminées par la microstructure développée après des traitements thermiques introduisant la mise en solution solide des tous les constituants, une trempe et un vieillissement à une température intermédiaire. Cette microstructure peut être décrite par la composition, la morphologie, la distribution et la taille des précipités formés durant la décomposition des solutions solides sursaturées [43, 47].

Ainsi, les alliages Al-Cu-Mg-Si sont renforcés par évolution de la microstructure pendant le vieillissement. En effet, la nature du renforcement des phases précipitées est déterminée par les niveaux de soluté et le rapport de Cu: Mg, ainsi que les paramètres de traitement thermomécanique. Il y a généralement une augmentation significative de la dureté et de niveaux de résistance avec une augmentation du rapport Cu: Mg [42].

Le durcissement dans ces alliages est basé sur le durcissement par précipitation des phases métastables, il se produit avec la précipitation des phases θ' (Al_2Cu) et les phases S' (Al_2CuMg) et de leurs précurseurs. L'ancienne phase peut contenir le cuivre et se transforme plus tard en θ'' , θ' et θ ou en phase S selon la quantité de cuivre ou magnésium et la température de vieillissement [47].

L'effet de renforcement peut aussi être un résultat de l'interférence avec le mouvement des dislocations [55].

L'alliage Al-Cu-Mg-Si est disponible sous les formes plaquées aluminium feuillé et de plat dans l'état recuit [53, 56, 57]. Ils sont largement utilisés dans différents domaines comme nouveaux matériaux de structure à cause de leurs bonnes propriétés mécaniques et électrochimiques ; qui constituent, principalement, de nombreux types d'instruments tels que le cadre, l'hélice, le piston [58, 59], ainsi que dans les applications aéronautiques qui exigent la tolérance aux dommages de fatigue [60, 61].

Ces matériaux pourraient être faits pour résister aux températures plus élevées, leur résistance à fatigue relativement bonne, particulièrement sous les formes épaisses de plat, avec des améliorations de force et d'autres caractéristiques spécifiques. Ils ont également trouvé l'application dans les structures d'avions.

Les formes plaquées aluminium ont amélioré la dureté de rupture et la croissance de fatigue. Ainsi ils pourraient remplacer des alliages plus lourds et plus chers dans beaucoup d'applications structurales aérospatiales, comme les structures métalliques de fuselage, les supports de raidissement, les nervures et les secteurs structuraux où la rigidité, et la résistance à la fatigue sont exigées [62, 63].

II.3 Diagramme d'équilibre quaternaire Al-Cu-Mg-Si

Bien que le diagramme de phase de ce système n'est pas encore bien déterminé, on le considère comme une combinaison du diagramme d'équilibre du binaire Al-Cu et celui du système Al-Cu-Mg [64, 65].

La figure (II. 1) représente une section isotherme à 200 °C du diagramme d'équilibre ternaire Al-Cu-Mg. Dans le domaine correspondant aux faibles teneurs en cuivre et en magnésium, il apparaît quatre types de précipités. Dans la zone correspondant aux rapports massiques Cu/Mg élevés, si ce rapport est supérieur à 8, l'agent durcissant est alors Al_2Cu , et si ce rapport est compris entre 4 et 8 deux types de précipités sont activés (Al_2Cu et Al_2CuMg). Aux rapports Cu/Mg de plus en plus faibles entre 4 et 1,5 seul Al_2CuMg contrôle les propriétés ; en dessous de cette proportion les propriétés dépendent de Al_6CuMg_4 et apparaissent successivement les phases suivantes : la phase S seule dans la matrice α , S avec la phase T (Al_6CuMg_4) et S avec la phase β ($Al_{12}Mg_{17}$) [66, 67].

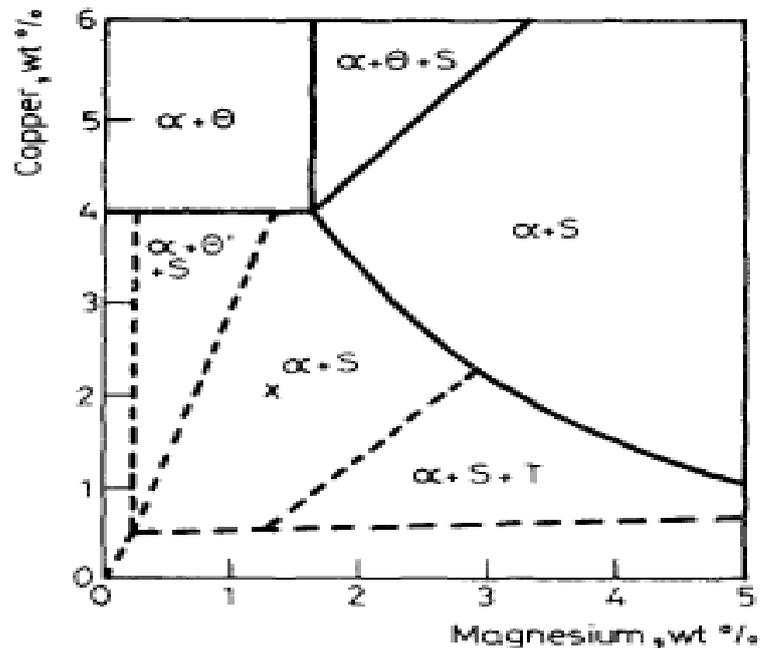


Fig. II. 1 : Diagramme d'équilibre Al-Cu-Mg ; section isotherme à 200 °C; $\alpha = Al$, $\theta = CuAl_2$,
 $S = Al_2CuMg$, $T = Al_6CuMg_4$ et $\beta = Al_{12}Mg_{17}$ [67].

Les données de littérature sur la séquence de précipitation pendant le vieillissement artificiel des alliages Al-Cu-Mg-Si sont en bon accord avec la section isotherme à 200 °C du diagramme de phase Al-Cu-Mg montré dans la figure (II. 1) [64].

La section isotherme du diagramme de phase d'Al-Cu-Mg à 200 °C montre qu'avec lequel est les alliages environ 1% de magnésium et entre 3% et 4% devrait être dans une région triphasée ($\alpha + \text{Al}_2\text{Cu} + \text{Al}_2\text{CuMg}$). Par conséquent, leur séquence de précipitation aurait comme conséquence la formation finale des deux phases θ et S [67].

II.4 La précipitation dans les alliages Al-Cu-Mg-Si

Dans la littérature, de diverses études ont été faites sur la précipitation dans les alliages Al-Cu-Mg-Si, qui peut se produire en plusieurs séquences en introduisant la formation de plusieurs phases stables et métastables [10, 43, 46, 47, 52, 68]. En effet, La composition chimique, la structure cristalline et la morphologie des phases précipitées font l'un des sujets les plus discutés dans la littérature moderne ; d'une manière générale les phases d'équilibre les plus citées pour ces alliages sont : θ (Al, Cu), β (Mg, Si), S (Al, Cu, Mg), Q (Al, Cu, Mg, Si) et Si, selon la composition de l'alliage [43-47, 52, 56, 57, 62, 69].

La précipitation dans les alliages Al-Cu-Mg-Si a été étudiée par diffraction des rayons X dans les années (1950- 1960), la microscopie électronique à transmission et à balayage dans les années (1970-1990), par l'analyse calorimétrique différentielle à balayage (1980-2000) et par la microscopie électronique à transmission à haute résolution (1990-2000).

Par ailleurs, les résultats des analyses thermiques sur le comportement de la précipitation dans ces alliages sont également présentés mais ne peuvent pas identifier les phases impliquées dans la réaction. Cependant, à l'aide d'autres techniques (telles que la microscopie optique ou électronique et la diffraction des rayons X) on peut étudier les séquences de précipitation dans ces alliages [44, 56, 57, 69, 70].

Récemment des études [47, 62, 64, 71, 72, 73] de la précipitation ont été réalisées par combinaison de l'analyse calorimétrique différentielle à balayage (DSC) et la microscopie électronique à transmission (MET).

Selon la littérature [56, 57], le thermogramme de DSC montre toutes les transformations se produisant pendant le vieillissement ; généralement les pics dans l'intervalle [70, 150 °C] sont associés à la formation des zones GP et leur dissolution, tandis que les pics de précipitation se trouvent entre 200 et 500 °C qui correspond à la formation de la phase θ'' et à la formation simultanément des phases θ' et S'. Cependant, La disparition progressive du premier pic

exothermique de DSC pendant le vieillissement normal dans ces alliages, correspondant à l'augmentation initiale de la dureté, et l'observation au MET, suggèrent la formation des zones GP (riche en Cu) + GPB (riche en Mg) [62].

Plus récemment, Dutta et al [74] ont employé l'analyse calorimétrique différentielle à balayage (DSC) pour étudier l'alliage Al-Cu-Mg-Si (Al- 4.57% Cu-0.42% Mg- 0.66% Si (% massique), plus d'autres éléments). Seulement trois vitesses de chauffage de DSC (5, 10, et 20° C/min) ont été employés ; pour une vitesse de chauffage intermédiaire ils ont observé un pic de formation des zone GP à la température 77 °C et deux pics exothermiques à 234 °C et à 285 ° C attribués à la formation de la phase λ' ($\text{Al}_5\text{Cu}_2\text{Mg}_8\text{Si}_5$) et à la phase θ' respectivement.

Smith [75] a effectué une étude approfondie par analyse calorimétrique différentielle à balayage (DSC) de l'alliage Al-Cu-Mg (Al-4.5% Cu-1.6% Mg-0.1% Si (% massique)), et a observé la formation et la dissolution zone GP, ainsi que deux processus de précipitation a température élevées.

Donc, ces résultats indiquent que le premiers pic à basse température implique la formation de la phase S' (CuMgAl_2) et le second celle de la phase θ' , tandis que Badini et al [57] concluent que le premiers pic est dû à la précipitation de la phase θ'' (CuAl_2) et que le second est dû à la formation simultanée des phases (S' + θ').

II.4.1 La séquence de précipitation dans les alliages Al-Cu-Mg-Si

La séquence de précipitation dans les alliages Al-Cu, Al-Cu-Mg et Al-Cu-Mg-Si a déjà été étudiée expérimentalement dans le passé, ainsi que l'effet des additions mineures d'autres éléments tels que le Si, Ag et Zr [43, 44, 56, 69]. Néanmoins, ces dernières années plusieurs chercheurs proposent toujours différents séquences de précipitation pour les systèmes Al-Cu-Mg-Si [47, 69, 76]. Donc la particularité de ce système est la probabilité de production de plusieurs séquences de précipitation [10, 46, 47, 69]. De plus, différentes désignations des phases précipitées peuvent être établies dans la littérature [45-47, 69].

D'une manière générale, quatre possible séquences de précipitation sont établies [10, 46, 47, 52, 57, 69]:

- 1) S.S.S \rightarrow GPZ \rightarrow θ'' \rightarrow θ' \rightarrow θ (Al_2Cu) où GPZ sont les zones Guinier–Preston composées des atomes de Cu.
- 2) S.S.S \rightarrow GPBZ \rightarrow GPBZII (S'') \rightarrow S' \rightarrow S (Al_2CuMg) où GPBZ sont les zones Guinier–Preston–Bagaryatsky constituées des atomes Cu et Mg.

3) S.S.S \rightarrow GPZ \rightarrow Q' \rightarrow Q ($\text{Al}_5\text{Cu}_2\text{Mg}_8\text{Si}_6$, $\text{Al}_3\text{Cu}_2\text{Mg}_9\text{Si}_7$ ou $\text{Al}_4\text{Cu}_2\text{Mg}_8\text{Si}_7$).

4) S.S.S \rightarrow GPZ \rightarrow β'' \rightarrow β' \rightarrow β (Mg_2Si).

Plusieurs études calorimétriques au sujet des séquences et des cinétiques de précipitation dans ces alliages sont rapportées dans la littérature, avec quelques désaccords au sujet de la précipitation des phases intermédiaires à la suite de la formation des zones GP.

Badini et al [57] ont effectué une étude approfondie par analyse calorimétrique différentielle à balayage (DSC) de l'alliage Al-Cu-Mg (Al- 4.25% Cu- 1.3% Mg (%mass)).

Ils ont discuté deux séquences possibles de précipitation :

- La première implique la formation des zones GP, la phase métastable θ'' , la phase semi-cohérence θ' et la phase θ (CuAl_2 tétragonale).
- L'autre concerne la formation des zones GP, la phase semi-cohérents S' et la phase stable S (CuMgAl_2 orthorhombique).

Ils ont observé un pic de formation des zones GP et deux pics exothermiques de précipitation associés aux phases (θ'' et θ'/S').

Donc, les alliages Al-Cu-Mg-Si montrent deux séquences différentes de précipitation, selon le pourcentage de Cu et le rapport massique Cu/Mg ; ces processus peuvent se produire séparément ou simultanément [56, 57, 75, 77]. Les deux séquences de précipitation pour ces alliages sont les suivantes :

1) S.S.S \rightarrow GPZ \rightarrow θ'' \rightarrow θ' \rightarrow θ (Al_2Cu).

2) S.S.S \rightarrow GPBZ \rightarrow S' \rightarrow S (Al_2CuMg).

Où GPz riche en Cu sont les zones de Guinier-Preston, θ'' et θ' sont les phases métastables (Al_2Cu), θ est la phase d'équilibre (Al_2Cu), GPBz riche en Cu/Mg sont les zones Guinier-Preston-Bagariastkij, S' est la phase métastable (Al_2CuMg), S est la phase d'équilibre (Al_2CuMg).

Selon les conditions temps-température (recuit isotherme, température du recuit, précipitation sur chauffage etc.), la précipitation peut passer par cette séquence ou commencer à une certaine étape.

Les grandes concentrations en Cu assurent la précipitation de la phase θ (Al_2Cu) :
-Premièrement, dans la zone correspondant aux rapports massiques Cu/Mg élevés, le renforcement de l'alliage Al-Cu-Mg-Si fortement allié en cuivre est normalement rapporté en

littérature comme étant dû à la précipitation de la phase θ (Al_2Cu) et la phase S (Al_2CuMg) [43, 44,47].

La précipitation de ces phases suit le chemin typique de la précipitation dans les alliages à base d'aluminium : θ' et S' sont des structures intermédiaires des deux phases d'équilibre θ et S et pourraient l'une ou l'autre se développer à partir des zones GP (riche en Cu) ou des zones GPB (riche en Cu et Mg), respectivement [44, 47].

-Deuxièmement, aux rapports Cu/Mg de plus en plus faibles, apparaissent successivement les phases suivantes : la phase S (Al_2CuMg) qui ne contient pas le Si seule dans la matrice α , S avec la phase T (Al_6CuMg_4) et la phase S (Al_2CuMg) avec la phase β [3, 44, 47, 53].

Dans le domaine correspondant aux faibles teneurs en cuivre, il apparaît d'autres types de précipités.

Selon Chakrabarti et Laughlin [47, 78], la précipitation de la phase β (Mg_2Si), ne peut être observée que pour les taux Mg/Si supérieurs à 1 (cette condition n'est vérifiée que pour les grandes concentrations en Mg et les faibles teneurs en Si dans les limites permises des concentrations de ces éléments). Dans le cas où le taux Mg/Si est inférieur à l'unité, la présence dans les séquences de précipitation des phases Q et S est plus probable et dépend de la concentration en Si [47] : de très faibles teneurs en Si favorise la précipitation de la phase ternaire S, alors que les fortes teneurs rendent possible la précipitation de la phase Q et la phase Si.

La formation de la phase Q au cours du vieillissement des alliages Al-Cu-Mg-Si est l'un des sujets les plus discutés [7, 47, 53, 64, 69, 73]. Jusqu'aux années 1980, la phase Q n'a pas été mise en évidence ; la majorité des études par MET ont montré la précipitation des phases intermédiaires β , θ ainsi que la phase du Si [47].

Les particules de la phase Q ont été observées dans la microstructure de certains alliages, cependant ces particules ont été formées au cours du processus de solidification ou durant le refroidissement à partir de la température d'homogénéisation.

Certains auteurs ont observé des particules de cette phase au cours du vieillissement seulement car ils ont étudié des alliages avec des compositions chimiques correspondant à la formation de la phase Q [47, 45, 53].

Et enfin, plusieurs phases et leurs précurseurs qui ne doivent pas coexister peuvent coexister à cause des cinétiques de formations et la formation privilégiée sur des sites préférentiels de précipitation [45].

II.4.2 Caractéristiques des différentes phases précipitées

II.4.2.1 Les zones de Guinier et Preston (G.P) / ou zones GP (Guiner-Preston-Bagayaratsky)

Le durcissement de l'alliage Al-Cu-Mg-Si est optimal quand il y a des zones c à d des précipités cohérents et ultramines. Deux types de zones peuvent être observés dans ce l'alliage:

- ❖ Un type qui est prédominant dans l'alliage dont le rapport des nombres d'atomes Cu et Mg, (N_{Cu}/N_{Mg}), est élevé et qui est le même que le type de zones trouvées dans les alliages binaires Al-Cu : Les zones Guinier-Preston (GP).
- ❖ Un deuxième type de zones habituellement dénommé Guinier-Preston-Bagaryatsky (GPB).

Le premier stade de la décomposition des solutions solides sursaturées est la formation des petits objets riches en atomes solutés qui peuvent être des amas atomiques (des atmosphères atomiques) constituées essentiellement d'atomes solutés.

L'observation au microscope électronique à transmission conventionnelle (MET) est rendue presque impossible par les valeurs très proches des facteurs de diffusion électroniques de l'aluminium, du cuivre, du magnésium et du silicium [60].

Les zones GP (Guinier-Preston) sont formées de disques d'atomes de Cu, de l'ordre 40 –200 Å de diamètre, plans et parallèles aux plans {100} de la matrice [3] ; elles seraient constituées soit de monocouches, soit de couches superposées pouvant contenir jusqu'à 50 % d'atomes de cuivre (fig. II. 3). Ces particules ont un diamètre moyen de 10 nm et l'épaisseur d'un seul plan atomique [79].

L'effet de taille des atomes (cuivre plus petit que l'aluminium) provoque la contraction des plans atomiques sur les zones GP, mais ces zones sont cohérentes avec la matrice. Ces zones GP en très grande densité (de l'ordre de 10^{17} à $10^{18}/\text{cm}^3$), introduisent des distorsions élastiques dans le réseau de la matrice [15].

Donc bien que démontrée indirectement par l'augmentation de la dureté de l'alliage, la formation des ces amas atomiques et/ou des zones GP à température ambiante est extrêmement difficile à observer expérimentalement [8].

L'alliage Al-Cu-Mg-Si a mûri à température ambiante après une trempe, par conséquent, il est durci par des zones GPB. Ces zones GPB se forment à une température proche de 80 °C et se dissolvent à 200 °C. Leur structure n'a pas été définitivement établie mais il est généralement admis qu'elles se composent d'un arrangement d'atomes de Cu et de Mg [43, 62].

En 1938, Guinier [80] et Preston [81] ont interprété leurs résultats de diffraction des rayons X par la présence de plaquettes riches en Cu situées dans les plans $\{100\}$ de la matrice à l'origine d'un champ de déplacement dû à l'écart entre les tailles des atomes Cu et Al. Ces particules sont connues comme zones GP (zones Guinier-Preston). Ces précipités (ou pré-précipités) métastables se trouvent dans différents alliages et sous diverses formes selon l'effet de taille introduit par le ou les éléments d'alliages.

En 1943, Perlitz et Westgren [82] ont proposé la formation des zones GP au début de la précipitation dans les alliages Al-Cu-Mg. D'abord, il y a la ségrégation des éléments d'addition sous forme d'amas cohérents avec la matrice, au moins dans les directions a et b. Ensuite, ces zones prennent une structure tétragonale [22], avec les paramètres cristallins suivants : $a = b = 4,05 \text{ \AA}$, $c = 8,10 \text{ \AA}$. Ces résultats sont confirmés récemment par Wolverton [83].

Bagayaratsky [42] a considéré les zones GPB comme une petite rangée d'atomes de soluté Cu et Mg posés sur une des directions $\langle 100 \rangle$ de la matrice d'aluminium.

Silcock [84] a fourni une interprétation différente pour les zones GPB, Il a conclu que les zones GPB étaient de particules en forme d'aiguilles, avec un diamètre de 1-2 nm et une longueur de 4-8 nm. Il a proposé que les zones GPB pouvaient avoir une maille tétragonale avec les paramètres $a = 0.55 \text{ nm}$, $c = 0.404 \text{ nm}$.

Selon Mondolfo [3], la solution solide se décompose pour former les zones GPB. Il a proposé une structure orthorhombique de ces zones GPB avec les paramètres cristallins suivants : $a = 4,05 \text{ \AA}$, $b = 9,06 \text{ \AA}$, $c = 7,25 \text{ \AA}$ (Fig. II. 2).

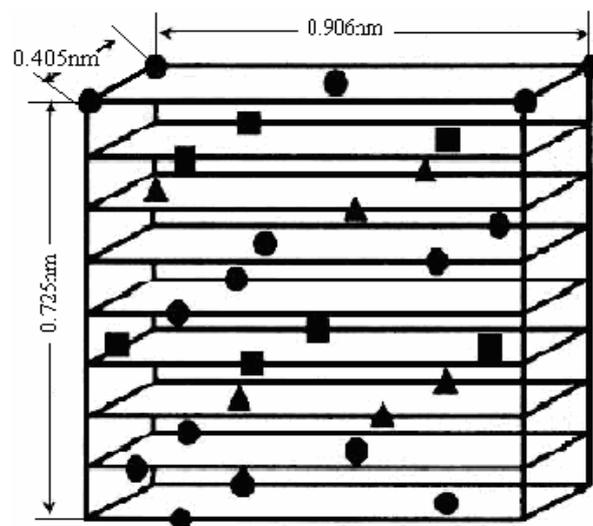


Fig. II. 2 : la structure cristallographique des zones GPB proposée par Mondolfo [3].

Depuis les premiers travaux de Bagaryatsky et Silcock, un grand nombre de recherches ont porté sur la formation de la zone GPB en utilisant diverses techniques expérimentales [3, 16, 22,43]. Ces recherches sur les zones GPB ont pu confirmer leur morphologie en forme d'aiguille prédite par Silcock. Par ailleurs, ces dernières années la structure la plus acceptée est le modèle de [22] proposé par Perlitz et Westgren [82] pour la zone GPB qui a une structure P4/nbm avec des paramètres de maille $a = 0.405$ nm, $c = 0.810$ nm.

Des observations après un vieillissement naturel ou avec un temps de vieillissement artificiel court n'ont pas pu révéler leur présence. Donc la détection des zones GPB n'a été possible que dans les étapes ultérieures du vieillissement artificiel [37, 43].

II.4.2.2 Précipitation de la phase θ''

La phase θ'' (ou GP II) qui apparaît à des températures comprises entre 130 et 200 °C, précipite sous forme de plaquettes parallèles aux plans $\{100\}$ de la matrice, soit par précipitation homogène en présence des zones GP, soit par précipitation hétérogène sur les zones GP [4, 10]. Elle se présente sous la forme de plans riches en Cu (toujours dans les plans $\{100\}$ de la matrice) séparés par deux (GP II (2)) ou trois (GP II (3)) plans riches en Al [74, 79]. Cette phase est toujours cohérente mais les contraintes élastiques internes sont plus importantes que dans le cas des zones GP.

II.4.2.3 Précipitation de la phase θ'

La précipitation de la phase θ' (Al_2Cu) dans l'alliage Al-Cu-Mg-Si n'est pas seulement due à la teneur de Cu, mais elle est aussi liée à la concentration du silicium et au rapport Cu/Mg.

La concentration élevée de Si et le rapport élevé Cu/Mg ont comme effet d'augmenter la précipitation de la phase θ' (Al_2Cu) [4, 46, 66, 85].

La phase θ' précipite sous forme de plaquettes dont les grandes faces sont cohérentes et parallèles aux plans $\{100\}$ de la matrice, préférentiellement par germination hétérogène et croissance sur les dislocations, au détriment de la phase θ'' cohérente lors d'un sur-revenu ou après un écrouissage entre la trempe et le revenu. Leur structure a été bien déterminée par diffraction électronique. Cette phase a une structure tétragonale centrée avec des paramètres de mail $a = b = 0,404$ nm et $c = 0,580$ nm [56, 57, 75].

Les petites faces sont semi-cohérentes et présentent des dislocations de désaccord de type $b=a/2\langle 100 \rangle$ [44]. L'énergie d'interface est de l'ordre de 0,1 à 0,23 J.m⁻² [15, 83]. Le rapport d'orientation entre la phase θ' (Al₂Cu) et la matrices d'Al est :

$$(100)_{\theta'} // (100)_{Al} \quad \text{et} \quad [100]_{\theta'} // [100]_{Al}$$

Les dislocations d'accommodation dans les coins des plaquettes de θ' et sont étroitement espacées, et leur présence est associée avec une grande anisotropie de l'énergie libre interfaciale. Il est cependant clair que les grandes contraintes élastiques obtenues au cours du stade de germination de la phase θ' font en sorte qu'elle germe préférentiellement sur les dislocations, puis dans les champs de contraintes des plaquettes existantes [56, 57, 86].

II.4.2.4 Précipitation de la phase d'équilibre θ

La perte de cohérence des précipités au cours du vieillissement est due au grossissement des germes, suivi de l'apparition de réseaux de dislocations parallèles à la direction $[100]_{\alpha}$ sur les faces larges des précipités θ' .

Ces dislocations sont en fait des dislocations de «désaccord de structure» ou d'accommodation qui minimisent les tensions internes dans la matrice [15, 55, 57, 78, 86]. Donc le processus de perte de cohérence des précipités de la phase θ' conduit à la formation d'autres précipités de la phase stable θ (Al₂Cu).

Les précipités de cette phase se trouvent sous forme de bâtonnets sans orientation déterminée et leurs sites préférentiels sont les joints de grains. Elle présente une structure quadratique centrée (tétragonale) de paramètres $a = 0,607$ nm et $c = 0,487$ nm. L'énergie d'interface est de l'ordre de 1 à 2 J m⁻² [8, 56, 79].

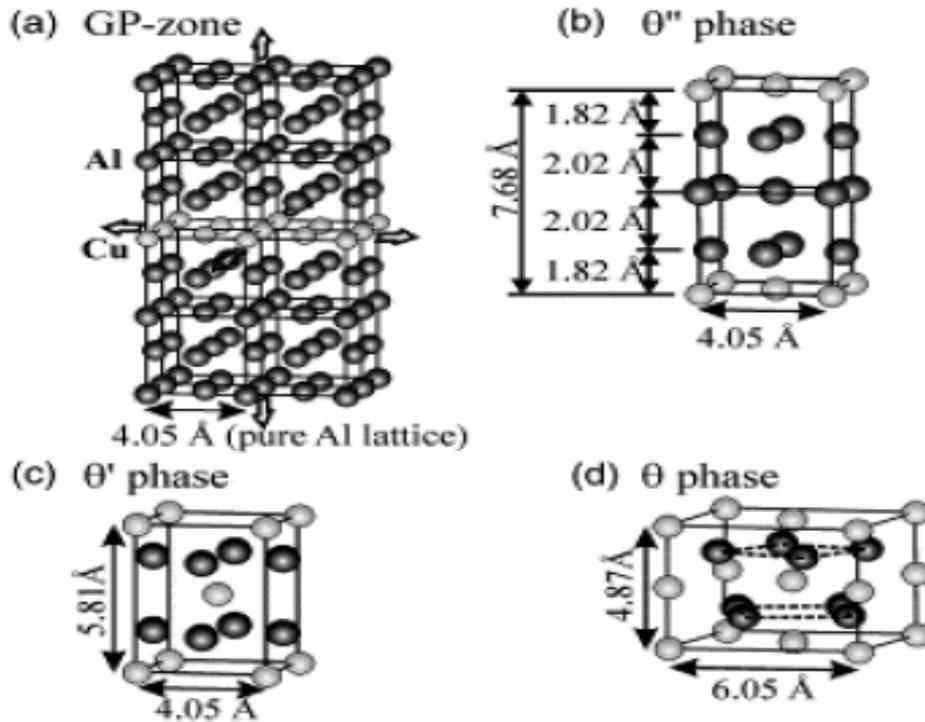


Fig. II. 3 : Structure cristalline de ; (a) les zones GP, (b) la phase θ'' , (c) la phase θ' et (d) la phase θ [79].

II.4.2.5 Précipitation de la phase d'équilibre S

Quelques structures de la phase S ont été signalées [45, 46, 53, 56, 63, 66, 87] mais la structure la plus acceptée pour la phase S semble être celle proposée par Perlitz et Westgren [82].

En 1943 Perlitz et Westgren "PW" [82] ont attribué pour la première fois le nom et la structure de la phase S dont la composition stœchiométrique est Al_2CuMg , la structure de cette phase est orthorhombique avec un groupe d'espace (Cm cm) et les paramètres du réseau cristallin sont : $a = 4,00 \text{ \AA}$, $b = 9,23 \text{ \AA}$ et $c = 7,14 \text{ \AA}$.

Morphologiquement, la phase S' semi-cohérente précipite par germination homogène sous forme d'aiguilles ou par germination hétérogène sur les dislocations sous forme de bâtonnets parallèles aux directions $\langle 100 \rangle$ de la matrice, avec des faces orientées parallèlement aux plans $\{120\}_\alpha$ (se produisent au début du vieillissement) [56, 63, 87, 88]. Elle reste cohérente avec la matrice au moins dans les directions a et b [3, 4, 47].

D'après Mondolfo [3] la phase (S') est orthorhombique appartenant au groupe d'espace (Cm cm) et dont les paramètres cristallins sont les suivants : $a = 4,01 \text{ \AA}$, $b = 9,25 \text{ \AA}$, $c = 7,15 \text{ \AA}$.

Des mesures cristallographiques de paramètre de maille montrent que les deux phases S' et S ont la même composition stœchiométrique et la même structure cristallographique mais présentent une légère différence de paramètres cristallins [4, 56, 66, 87] :

$$\left\{ \begin{array}{l} a_{(S')} = 0,405 \text{ nm}, \quad b_{(S')} = 0,89 \text{ nm}, \quad c_{(S')} = 0,76 \text{ nm}. \\ a_{(S)} = 0,405 \text{ nm}, \quad b_{(S)} = 0,921 \pm 0,006 \text{ nm}, \quad c_{(S)} = 0,719 \pm 0,012 \text{ nm}. \end{array} \right.$$

En effet, plusieurs travaux récents ont considéré qu'il n'y a pas de distinction entre les deux phases S' et S. Les auteurs de ces travaux pensent que l'apparition des deux phases est associée au même stade et par conséquent, ils concluent qu'il n'y a pas de différence entre les deux phases. Pour cela, nous avons considéré le nom de S'/S [4, 45, 46, 56, 63].

Les phases S'(S) ont été rapportées au précipité sous la forme de lattes sur les plans $\{012\} \alpha$ et allongées le long des directions $\langle 001 \rangle \alpha$ de la matrice et ont été supposés de posséder le même rapport d'orientation (OU) avec la matrice d'aluminium comme suit [44-46, 53, 86, 87]:

$$[100]_{S'(S)} // [100] \alpha, [010]_{S'(S)} // [0-21] \alpha \text{ et } [001]_{S'(S)} // [012] \alpha.$$

Quant au phénomène de durcissement structural du matériau, on montre que pour les traitements thermiques favorisant l'existence de la phase S', le matériau est plus dur que lorsqu'il contient la phase d'équilibre S [4, 42, 78].

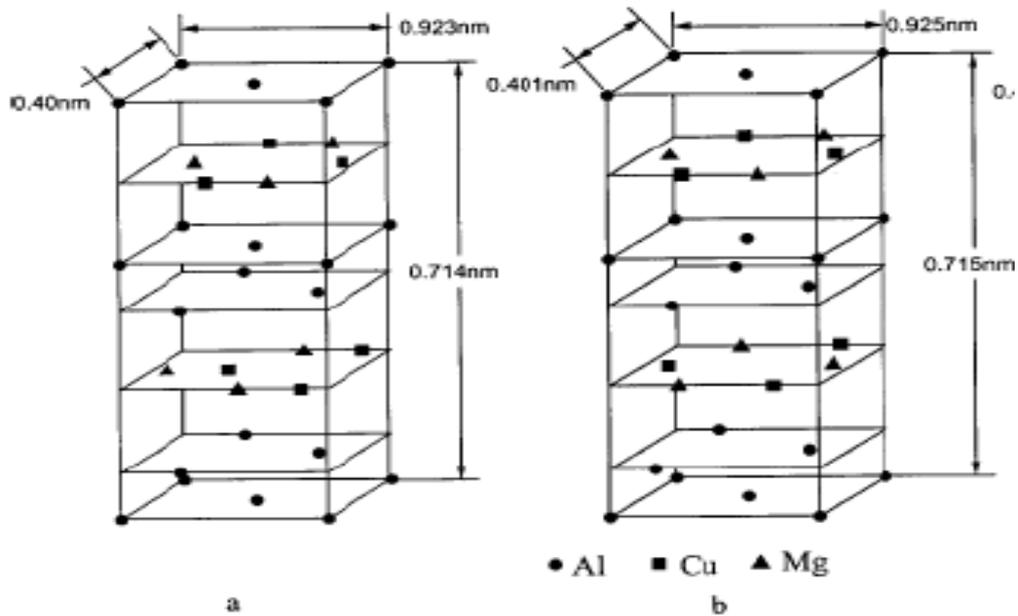


Fig. II. 4 : Structure cristallographique de la phase S proposée par ; (a) Perlitz et Westgren [82], (b) Mondolfo [3].

II.5 L'influence des différents paramètres sur la précipitation dans les alliages Al-Cu-Mg-Si

II.5.1 Effet du silicium dans les alliages Al-Cu-Mg

Hutchinson et al [46] ont étudié la séquence de précipitation des alliages Al-Cu-Mg avec l'addition de Si et ont montré que l'effet du Si sur le processus de précipitation dépend de toute la teneur en éléments principale de l'alliage en plus du rapport massiques Cu/Mg.

Ainsi, les additions de Si, Fe et Ni modifient le processus de précipitation des alliages Al-Cu-Mg de diverses manières. Les intermétalliques qui peuvent se former à partir des éléments Fe, Mn, Si et Al (plus probablement $Fe_3 Al_2 Si_3$) dans les alliages Al-Cu-Mg affectent également la trempabilité [47, 79, 85].

Une addition, même faible, de silicium (Si = 0,25 %) à des alliages Al-2,5 % Cu-1,2 % Mg et Al-2,5 % Cu-1,5 % Mg conduit à une plus grande stabilité des zones GPB, à une distribution plus fine et plus dense des précipités de phase (S') après revenu à haute température – sans modification de leur nature [4, 47, 53].

En effet, l'addition de Si augmente le durcissement par vieillissement artificiel dans ces alliages et retarde le durcissement par vieillissement à la température ambiante.

Ces résultats sont liés à une forte interaction entre les atomes de silicium et les lacunes (l'énergie de liaison atome Si - lacune 0.07 eV), ce qui a pour effet un piégeage efficace des lacunes après la trempe [49, 53, 55, 86, 89].

Dans les alliages à très forte teneur en silicium libre ($\text{Si} > 1 \%$), tels que certains alliages de moulage hypo-eutectiques, la co-précipitation fine des phases S' , θ' et/ou λ' se produit à côté des particules grossières de silicium primaires ou eutectiques [4].

L'excès de silicium améliore certes les propriétés mécaniques des alliages mais peut affecter leur ductilité. Il faut donc veiller à ce qu'il n'y ait pas trop de Si parce qu'il a tendance à ségréger aux joints des grains, ce qui rend le matériau fragile [10, 53].

Dans les alliages à teneur en silicium libre sensiblement égale à la teneur en magnésium ($0,3\% < \text{Si} = \text{Mg} < 1\%$), la solution solide se décompose suivant la séquence :



La phase λ' précipite sous forme d'aiguilles très fines suivant les directions $[100]_{\text{Al}}$ [4].

II.5.2 Excès de Cu

Les alliages contenant de 4 à 6 (% mass) de cuivre, sont ceux qui répondent le plus fortement aux traitements thermiques. Pour cela, De nombreuses études ont été effectuées sur l'influence de Cu sur le comportement de précipitation dans les alliages Al-Cu-Mg-Si pendant le traitement de vieillissement de durcissement [8, 70, 90].

En général, l'addition du cuivre favorise la cinétique de précipitation pendant le vieillissement artificiel. Il est bien connu que l'addition de cuivre augmente la dureté des alliages Al-Cu-Mg-Si et améliore sensiblement la résistance après l'opération de mise en forme et le traitement thermique [8].

Le cuivre contribue au durcissement structural de l'alliage mais en diminue la ductilité ; il est responsable de la formation de la phase θ (Al_2Cu).

II.5.3 Excès de Mg

Dans les alliages de type Al-Cu-Mg-Si, l'effet du magnésium est le plus intéressant. Cependant, l'addition de magnésium aux alliages d'aluminium-cuivre permet d'accélérer et d'intensifier le durcissement par vieillissement naturel à cause d'effet de taille de ces atomes qui est plus important que celui des atomes Cu et en raison d'une plus grande mobilité des atomes Mg ; ces

derniers vont certainement interagir avec les lacunes et forment à l'étape initiale du vieillissement naturel les zones GPB (riche en Cu+ Mg) [79, 86].

Un accroissement ultérieur de la concentration en magnésium dans la solution solide sursaturée a comme conséquence la formation d'une nouvelle phase [49, 53, 55]. C'est la phase ternaire Al_2CuMg dont le chemin de précipitation est semblable à celui de la phase Al_2Cu . Ceci, généralement augmente l'effet durcissant et le niveau de dureté des alliages Al-Cu contenant de petites additions de magnésium [55, 64, 77].

II.5.4 Influence de l'effet du vieillissement naturel sur les alliages Al-Cu-Mg-Si

Les effets du vieillissement naturel sur la précipitation des alliages Al-Cu-Mg-Si ont également été étudiés et rapporté [70, 89]. Ainsi, la raison de l'influence forte du vieillissement naturel sur le comportement de la précipitation des alliages Al-Cu-Mg-Si est supposée d'être la formation des zones GP (riche en Cu) + GPB (riche en Cu et Mg).

Les zones GP + GPB sont formés par des clusters et des Co-clusters des atomes de cuivre, de silicium et de magnésium, à l'aide des lacunes pendant le vieillissement naturel, menant à l'influence distinct du temps de vieillissement naturel sur le processus de précipitation des alliages Al-Cu-Mg-Si.

Selon les études les plus récentes par LU et al. [53], Quainoo et al. [70], le vieillissement à l'ambiante résultait en un état de la solution solide différent au moment de l'application du revenu ; ce qui a un grand effet sur l'évolution microstructurale de la solution solide sursaturée. Cet état différent va avoir une influence sur les tout premiers stades de précipitation, il convient donc de comprendre les phases qui sont précipitées au cours de vieillissement artificiel et la phase la plus durcissante de la séquence de précipitation [55, 89].

Poole et al [89] ont étudié l'effet du vieillissement sur l'évolution de la limite conventionnelle d'élasticité pendant le vieillissement artificiel des alliages Al-Cu-Mg-Si. Ils ont observé cela avec le vieillissement naturel à long terme, avant le vieillissement artificiel, le composant initial de l'effort de fléchissement (résultant du vieillissement normal) a graduellement diminué pendant que le vieillissement artificiel progressait.

Dans certains cas, la maturation à l'ambiante retarde l'arrivée du pic de dureté durant le revenu [53, 89]. L'idée est que, quelque soit le temps de maintien à température ambiante, les zones formées ne pourront être stables à la température de revenu. Autrement dit, leur croissance à température ambiante ne leur permettra pas d'atteindre le rayon critique (r^*) à la température de revenu (étant donnée la sursaturation résiduelle de la matrice en solutés). Ces précipités sont donc

en régime de dissolution et la fraction volumique baisse. Les précipités durcissants vont, quant à eux, germer à partir d'une solution solide moins sursaturée, et vont donc produire une dispersion plus grossière [55].

II.5.6 Influence de l'effet du vieillissement artificiel sur les alliages Al-Cu-Mg-Si

La microstructure dans les alliages Al-Cu-Mg-Si a été changée avec le traitement de vieillissement et on a observé que les précipités dans la structure sont dispersés finement avec l'augmentation du temps de vieillissement.

Le vieillissement artificiel dans les alliages Al-Cu-Mg-Si produit la structure la plus dure attribuable à l'accélération de la précipitation de la phase θ' -Al₂Cu et à d'autres phases comme Al₂CuMg [43, 53].

La dureté maximale est associée à une dispersion uniforme fine de latte formées par des précipités orientés le long de la direction $\langle 0\ 1\ 0 \rangle$ et de plats de la phase θ' se trouvant sur le plan $\{0\ 0\ 1\}$ [43].

Chapitre III

*Matériaux et
méthodes
expérimentales*

Chapitre III

Matériau étudié et méthodes expérimentales utilisées

III.1 introduction

Dans ce chapitre sera d'abord présenté l'alliage que nous avons étudié (sa composition chimique), les différents traitements thermiques appliqués puis les méthodes expérimentales utilisées pour la caractérisation des échantillons telles que la calorimétrie différentielle à balayage (DSC), la dilatométrie différentielle, le microscope optique, le micro-duromètre et la diffraction des rayons X (DRX).

III.2 Alliages utilisés

L'étude présentée dans ce travail est faite sur un alliage à base d'aluminium du système Al-Cu-Mg-Si dont la composition chimique est donnée dans le tableau suivant :

<i>Elément</i>	<i>Al</i>	<i>Cu</i>	<i>Mg</i>	<i>Si</i>	<i>Mn</i>	<i>Fe</i>
<i>% mass.</i>	<i>reste</i>	<i>4,652</i>	<i>1,077</i>	<i>0,702</i>	<i>0,691</i>	<i>0,412</i>

Tableau. III. 1: la composition chimique de l'alliage étudié.

L'alliage étudié est réceptionné sous la forme d'une tôle d'épaisseur de 1 cm.

Les échantillons de la DRX, DSC, l'analyse dilatométrique et pour les mesures de la microdureté ont été découpés de cette tôle à l'aide d'une micro tronçonneuse semi-automatique puis ont été poli par le papier abrasif (du numéro 240 au numéro 1200) pour avoir leurs formes finales.

III.3 Traitements thermiques

Dans le but d'obtenir des solutions solides sursaturées, les alliages ont été portés à 525 °C pendant 16 h et (domaines monophasés du système) afin de tout dissoudre (Cu, Mg et Si) dans la solution solide et ensuite trempés rapidement dans l'eau froide.

L'étude présentée dans ce travail est faite sur des échantillons homogénéisés, trempés puis vieillies pour différents temps à différentes températures :

- A la température ambiante (vieillessement naturel) afin de déterminer les mécanismes des premiers stades de la décomposition de la solution solide sursaturée.
- A une température intermédiaire $T = 160\text{ °C}$ des solutions solides sursaturées pour différentes durées de maintien. Le choix de ces traitements qui sont des traitements industriels est fait dans le but de déterminer les microstructures responsables du durcissement maximal de l'alliage étudié.

Tous les traitements thermiques des échantillons sont faits directement après la trempe. Afin d'éviter l'effet de la maturation à la température ambiante, certains échantillons ont été stockés dans le congélateur (à -15°C) en attente des essais DSC, dilatométrique ou les mesures de la microdureté.

III.4 Méthodes expérimentales utilisées

III.4.1 La microscopie optique

La microscopie optique sert à déterminer où à observer la microstructure de l'échantillon (taille des grains, forme des grains ainsi que celles des précipités,...etc.), ainsi que les évolutions microstructurales des alliages ayant subi des traitements thermiques (isothermes et anisothermes). La structure peut être modifiée par tous les traitements mécaniques, thermiques et chimiques que subit le métal indépendamment des transformations physico-chimiques qui peuvent résulter de ces traitements.

Les microscopes optiques métallographiques permettent l'observation par réflexion d'une surface métallique parfaitement plane, obtenue par polissage mécanique et ayant subie des traitements thermiques voulus. On colore différemment les phases composant des alliages étudiés par un réactif.

Pour l'étude métallographique. Les échantillons sont observés avec un microscope optique OLYMPUS de type SC30 équipé d'une caméra photographique qui permet l'obtention d'un grand nombre des photos des différentes microstructures avec différents grossissements (Fig. III. 1).

-Polissage des échantillons :

Les échantillons subissent un polissage en utilisant des papiers émeri de granulométrie décroissante (du numéro 240 au numéro 1200), placés sur un disque rotatif. Le polissage de finition est un polissage à la pâte diamantée répartie à l'aide d'un lubrifiant sur le disque. Les granulométries utilisées sont $6\text{ }\mu\text{m}$ à $1/4\text{ }\mu\text{m}$.

-Attaque chimique :

L'observation des échantillons au microscope optique nécessite une attaque chimique pour révéler sa structure ; on utilise un réactif de Keller dont la composition est la suivante :

- Acide fluorhydrique (HF) : 05 ml
- Acide chlorhydrique (HCl) : 09 ml
- Acide nitrique (NHO3) : 23 ml
- Eau distillée (H2O) : 87 ml

Les échantillons sont plongés environ 2 à 3 secondes dans cette solution, puis sont à nouveau nettoyés à l'éthanol et séchés avec de l'air comprimé.



Fig. III. 1 : Le microscope optique de type OLYMPUS SC30.

III.4.2 Analyse calorimétrique différentielle (DSC)

Les alliages métalliques subissent des transformations des phases qui absorbent ou dégagent de l'énergie lorsqu'ils sont soumis à des traitements thermiques.

La technique de (DSC = Differential Scanning Calorimetry) représente un moyen qualitatif et quantitatif rapide pour la caractérisation des précipités dans les alliages d'aluminium. Cette technique peut faciliter la compréhension de la thermodynamique et la cinétique de processus de précipitation. Elle permet de mesurer la différence de flux thermique entre l'échantillon et la référence en fonction de la température ou du temps au cours d'un cycle thermique programmé. Une différence de température est mesurée entre l'échantillon et la référence à l'aide de thermocouples. Cette technique permet de suivre l'évolution structurale des matériaux dans des conditions prédéfinies et sous atmosphère contrôlée. Lors d'une réaction exothermique (formation d'une phase) qui dégage de la chaleur, la courbe DSC enregistre un pic situé au dessus de la ligne de base et pour une réaction endothermique (dissolution d'une phase) qui absorbe de la chaleur, elle enregistre un pic au dessous de la ligne de base (voir fig. III. 2).

L'aire formée par le pic et la ligne de base du thermo-gramme est :

$$\Delta C_p = f(T) \quad \text{soit} \quad H = C_p \leftarrow \rightleftarrows T \dots\dots\dots (III. 1).$$

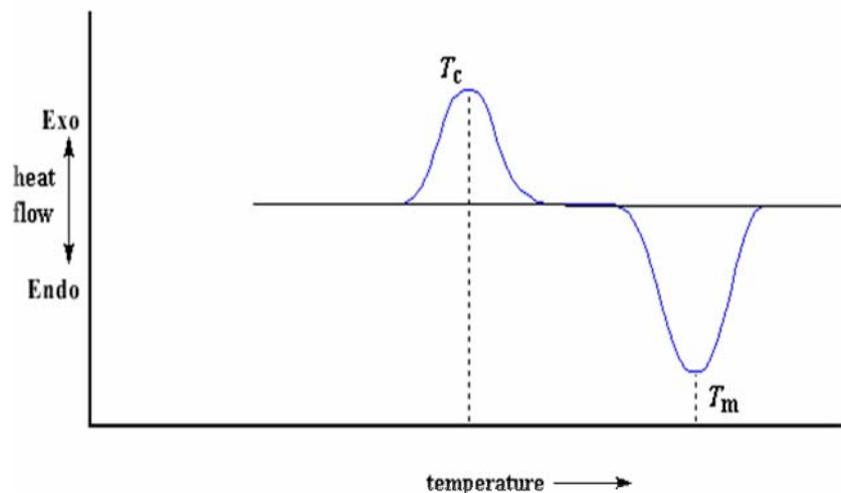


Fig. III. 2 : Courbe de DSC.

Les essais calorimétriques ont été réalisés juste après trempe et après différents temps de maturation à la température ambiante ($\sim 25\text{ }^{\circ}\text{C}$), sur les échantillons traités par un calorimètre du type SETARAM DSC SetSysEvo 1500 (du centre de Recherche Nucléaire de Birine CRNB). Les échantillons ont été préparés mécaniquement sous la forme de disque de 4 mm de diamètre et 2 mm de hauteur (soit une masse de 70 mg).

Les essais DSC ont été réalisés sous une atmosphère d'azote en chauffant les échantillons de la température ambiante à une température de $540\text{ }^{\circ}\text{C}$, avec une vitesse de $10\text{ }^{\circ}\text{C}/\text{min}$ dans des creusets d'alumine. Le flux de chaleur et la température ont été calibrés en utilisant les enthalpies et les températures de fusion des standards In, Sn, Pb, Ag_2SO_4 , et Al. La ligne de base a été corrigée en utilisant un échantillon d'aluminium pur comme une référence.

III.4.3 l'analyse dilatométrique différentielle

La dilatométrie est une méthode physique largement utilisée pour caractériser le comportement thermique des matériaux, non seulement sur leur dilatabilité mais aussi en ce qui concerne les diverses évolutions structurales dont ils peuvent être le siège. Elle est très sensible au phénomène de précipitation et peut même donner des informations d'ordre macroscopique sur des processus qui se produisent à l'état microscopique. Il faut noter la sensibilité de la dilatométrie à des variations dimensionnelles très faibles dues, entre autre, aux changements de structures qui se produisent dans le matériau étudié au niveau atomique.

Pour l'analyse dilatométrique différentielle nous avons utilisé un dilatomètre ADAMEL LHOMARGY de type DT1000 qui sert à suivre les transformations de phases par mesure des variations dimensionnelles relatives $\Delta L/L_0$ en fonction de la température, au cours des cycles thermiques identiques à ceux utilisés pour le DSC. Le pilotage du dilatomètre est assuré automatiquement par un système informatique. L'exploitation des courbes dilatométriques enregistrées se fait à l'aide d'un logiciel particulier (LOGIDIL) qui permet le traitement des courbes de dilatation en fonction du temps ou de la température pour chaque segment du cycle thermique imposé, avec la courbe dérivée correspondante. Les échantillons du dilatomètre ont été préparés sous forme parallélépipède avec des dimensions de $3\times 3\times 15\text{ mm}^3$.



Fig. III. 3 : Dilatomètre de trempe ADAMEL L HOMARGY de type DT 1000.

III.4.4 La diffraction des RX

La diffraction des rayons X est l'une des méthodes les plus puissantes utilisées dans les études des transformations de phases.

Le diffractomètre à rayon X est constitué de trois parties:

1)- la source des rayons X: C'est un tube contenant deux pôles, l'un est un filament (Cathode) chauffé par l'effet Joule l'autre s'appelle l'anode qui est une plaque de Cuivre pour la plupart des diffractomètres. Les deux pôles soumis à un potentiel de quelques dizaines de kilovolts qui accélèrent les électrons venant du filament. L'interaction électron-matière va entrer la matière dans un état excité, la désexcitation est faite par l'émission et des rayons X ; ce dernier est monochromatisé par un filtre métallique (nickel).

2)- le porte échantillon: Cette partie peut avoir beaucoup de formes et beaucoup de fonction (fixe, rotatif) selon la nature des échantillons (solide, poudre...etc.) et aussi selon les conditions expérimentales choisies.

3)- le détecteur des rayons X diffractés: La matière va émettre un rayonnement de même longueur d'onde que le rayonnement incident mais dans des directions différentes de celle du faisceau initial. Chaque atome va être la source d'un rayonnement diffusé et l'onde observée dans une direction donnée sera la résultante de la superposition des ondes provenant de chaque atome.

La diffraction des rayons X par les cristaux doit être vérifiée la loi de Bragg:

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

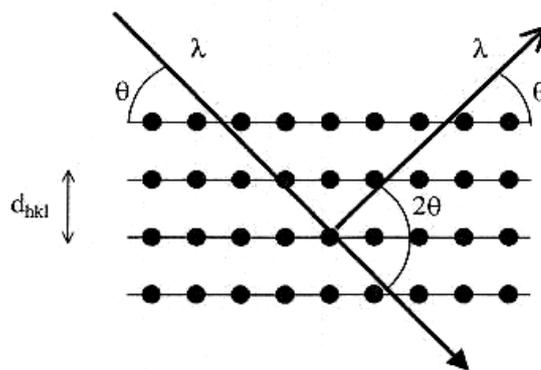


Fig. III. 4: Famille des plans cristallins en condition de Bragg.

-Les spectres de diffraction ont été enregistrés avec un diffractomètre du type X-Pert Philips équipé d'une chambre de diffraction à chaud (HTK1200 de Anton Paar) avec une radiation $\text{CuK}\alpha$ ($\lambda = 0.15405 \text{ nm}$) sous les conditions 45 kV/40 mA. Les cycles de la diffraction in situ sont composés d'un chauffage à partir de l'ambiante à la température d'homogénéisation 550 °C avec la même vitesse utilisée dans les essais de DSC (les essais de DRX ont été réalisés au sein du centre de Recherche Nucléaire de Birine CRNB). Durant le chauffage les échantillons sont maintenus aux différents points caractéristiques des courbes DSC et dilatométriques pour l'enregistrement des spectres DRX correspondant.

Pour la diffraction à la température ambiante nous avons utilisé une porte échantillon spinner. Les variations du paramètre du réseau cristallin de l'alliage étudié en fonction de la durée de vieillissement à une température donnée, ont été suivies par diffraction des rayons X aux grands angles.



Fig. III. 5 : diffractomètre X-PERT PRO MPD.

III.4.5 La microdureté

La dureté d'un matériau caractérise sa résistance à la pénétration : un pénétrateur est appliqué sur la surface du matériau à tester avec une force pendant un temps donné. Plus l'empreinte laissée est petite, plus le matériau est dur.

Bien que la dureté ne soit pas une propriété simple à définir, les essais de dureté sont très utilisés en raison de leur simplicité et de leur caractère tractif. Leur résultat donne un aperçu synthétique des propriétés mécaniques du matériau testé.

Plusieurs types d'essais sont couramment utilisés, leur principe est le même, ils ne diffèrent que par la forme de pénétrateur utilisé : essai Brinell, essai Rockwell, essai Shore et l'essai Vickers, on utilise. On a utilisé la méthode Vickers.

Essai Vickers

La mesure de la microdureté est basée sur la détermination des dimensions d'empreintes produites dans le matériau par un pénétrateur de forme pyramide (Vickers), sous l'action d'une charge appliquée.

Le rapport de la force appliquée F à la surface S en cours de l'empreinte donne la dureté H_V ($H_V = F/S$).

Le microduromètre utilisé comporte une colonne de microscope optique en réflexion, qui permet de viser la zone souhaitée sur un échantillon poli; le pénétrateur Vickers est ensuite placé dans l'axe optique pour effectuer l'essai, puis le microscope permet de mesurer les diagonales de l'empreinte (de quelques micron à quelque dizaines de microns).

Pour suivre l'évolution de la microdureté durant les différents traitements thermiques appliqués, nous avons utilisé un microduromètre du type Controlab (Modèle VTD 12) à pénétration Vickers. Les empreintes ont été induites par une charge de mesure de 2,94 N avec un temps de maintien de la charge de 10 s. Les mesures de microdureté ont été réalisés au sein du centre de Recherche Nucléaire de Birine CRNB).

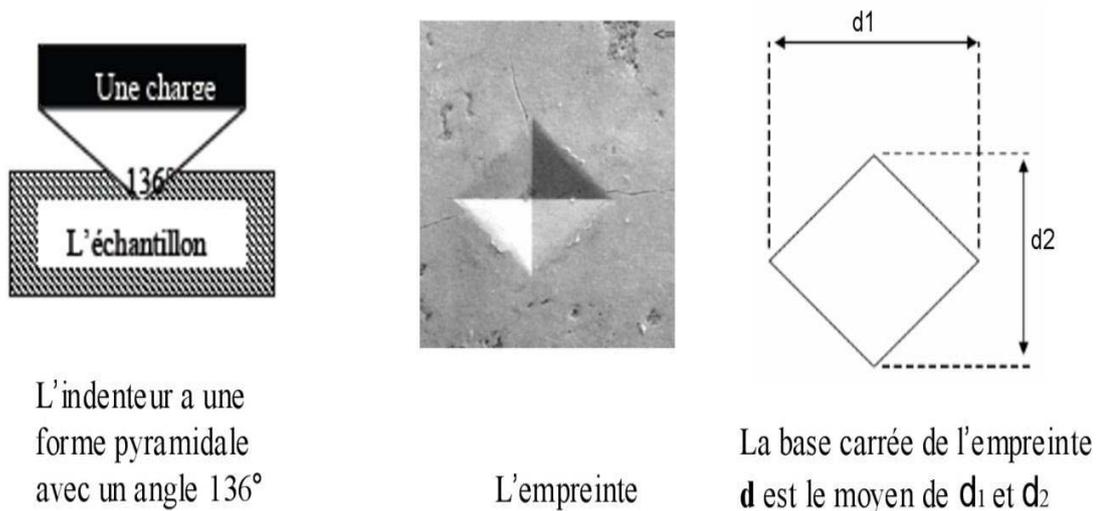


Fig. III. 6 : Indenteur et l'empreinte d'indentation.

Chapitre IV

*Résultats
expérimentaux et
interprétations*

Chapitre IV

Résultats expérimentaux et interprétations

IV.1 Introduction

Comme on l'a déjà mentionné auparavant dans les chapitres précédents, la précipitation dans les alliages du système Al-Cu-Mg-Si a fait l'objet de plusieurs études en utilisant une multitude de techniques de caractérisation entre autre la microscopie électronique à transmission (MET), la microscopie électronique à balayage (MEB), la diffraction des rayons X (DRX) l'analyse calorimétrique différentielle à balayage (DSC) et les essais mécaniques [43 47, 56, 57, 77]. Cependant, la majorité de ces études ont mené à des conclusions contradictoires sur la nature des mécanismes de formation des phases pouvant précipiter dans ces alliages [13, 43-47, 52-54, 60, 63].

L'une des distinctions les plus remarquables de ces alliages est la possibilité de la production de quatre séquences de précipitation qui mènent à la formation des phases d'équilibre S (Al_2CuMg), θ (Al_2Cu), Q (Al_2CuMgSi) et Si [39, 44-47, 52, 56].

La particularité du présent travail est l'essai de la détermination des séquences de précipitation pouvant se produire dans un alliage appartenant au système Al-Cu-Mg-Si (Al- 4,65 % Cu- 1,077 % Mg- 0,702 % Si- 0,691 % Mn- 0,412 % Fe (% massique)) et l'étude de l'effet de la maturation à la température ambiante et du vieillissement artificiel à 160 °C sur la microstructure et par conséquent, sur les propriétés mécaniques de l'alliage étudié, en utilisant principalement l'analyse thermique (essais dilatométriques et DSC), la diffraction des rayons X, les mesures de la microdureté et l'observation métallographique par la microscopie optique.

IV.2 Identification de la séquence de précipitation dans l'alliage étudié

Avant de connaître le comportement d'un alliage au cours de vieillissement à une température donnée il est important de déterminer la séquence de précipitation au cours du chauffage jusqu'à cette température.

Pour cela, nous avons principalement utilisé l'analyse calorimétrique différentielle et l'analyse dilatométrique. Pour l'identification des différents effets calorimétrique et pour suivre les paramètres des précipités, nous avons utilisé la diffraction in situ des rayons X.

IV.2.1 L'étude par l'analyse calorimétrique différentielle à balayage (DSC)

La courbe de DSC obtenue au cours du chauffage d'un échantillon homogénéisé et trempé, avec une vitesse de 10 °C/min est présentée dans la figure (IV.1). Cette figure montre la présence de sept effets calorimétriques dont quatre sont exothermiques (I, IV, V et VI) avec des maximums situés respectivement aux températures 80 °C, 260 °C, 290 °C, 360 °C et trois sont endothermiques (II, III et VII) avec des minimums situés respectivement aux températures 170, 200 et 460 °C.

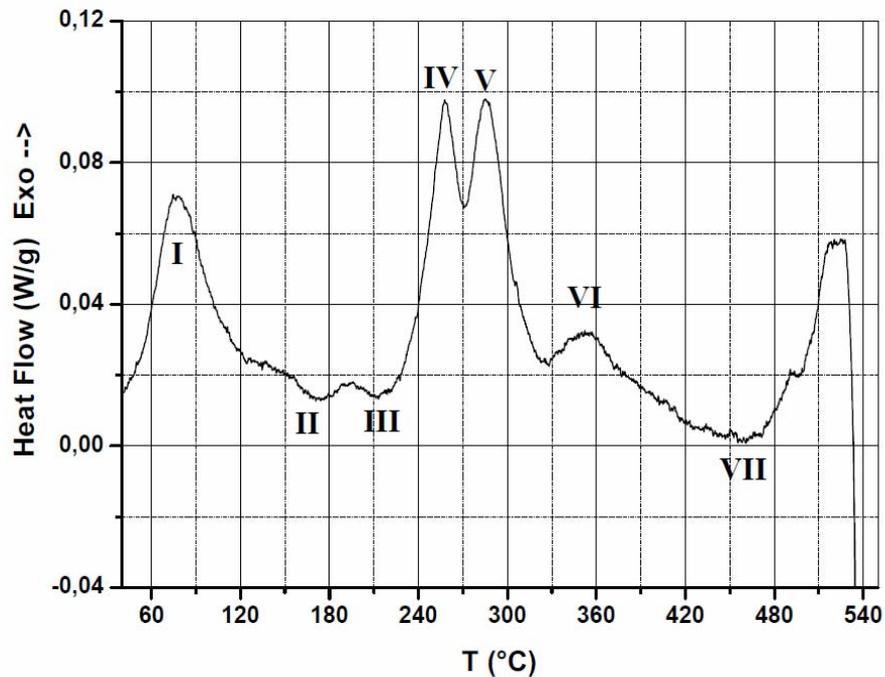


Fig. IV. 1 : Courbe de DSC enregistrée juste après trempé d'un échantillon homogénéisé et trempé.

- ❖ Le premier pic exothermique (I) apparaissant dans l'intervalle de température [60 °C, 120 °C], avec un maximum situé vers 80 °C, peut être attribué à la formation des zones GP et GPB, qui se forment généralement après la trempe des alliages de ce type.
- ❖ Les deux pics endothermiques (II et III) qui le suivent (observés dans l'intervalle de température [120 °C, 230 °C]) ne peuvent correspondre qu'à la dissolution des zones formés précédemment. Si on compare les quantités des chaleurs échangées dans ces réactions, on peut dire que la majorité des zones formées ne se dissolvent pas mais servent comme des précurseurs pour les phases qui peuvent se former au cours du chauffage ultérieur.

La nature des phases responsables de l'apparition des trois pics exothermiques observés dans l'intervalle de température [230 °C, 370 °C] (IV, V et VI) reste difficile à déterminer du fait que les températures de formation des phases possibles de se former dans cet intervalle de température c'est-à-dire θ' , θ , S' et S varient avec la vitesse de chauffage, l'histoire thermique et la composition de l'alliage.

Le chauffage continue conduit à l'apparition du pic endothermique (VI) dans l'intervalle de température [370 °C, 500 °C] avec un maximum situé vers 460 °C. Ce pic ne peut représenter que la dissolution des phases formées précédemment.

IV.2.2 L'étude par l'analyse dilatométrique différentielle

Dans le but de confirmer les résultats obtenus par l'analyse calorimétrique différentielle on a procédé à l'analyse dilatométrique en effectuant le même cycle thermique.

La figure (IV.2) présente le segment de chauffage ainsi que sa dérivée obtenus durant le chauffage d'un échantillon homogénéisé et trempé avec une vitesse de chauffage de 10 °C/min. Pour les basses températures, on n'observe que l'apparition de faibles effets qui sont difficile à déterminer. Dans l'intervalle de température [280 °C, 355 °C] on observe apparaître une expansion sur la courbe dérivée du segment de chauffage. Par comparaison avec la courbe de DSC de la figure (IV.1), on peut dire que cette expansion représente les mêmes transformations de phases conduisant à l'apparition des deux derniers pics exothermiques (V et VI).

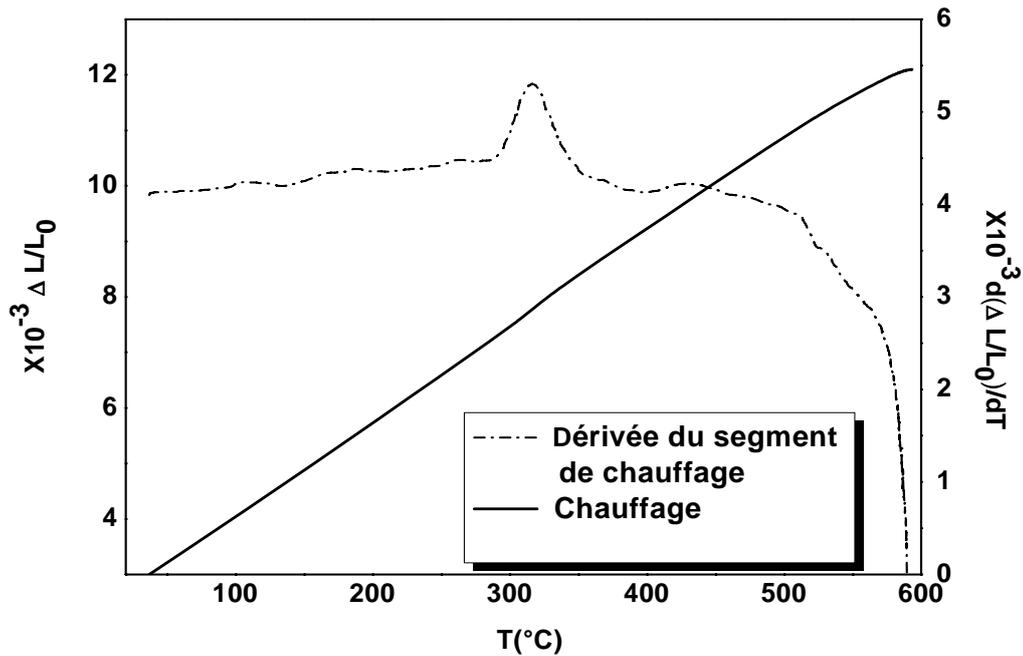


Fig. IV. 2 : Segment de chauffage et sa dérivée enregistrés au cours du chauffage avec une vitesse de 10 °C/min d'un échantillon homogénéisé et trempé.

IV.2.3 L'étude par diffraction des rayons X

Partie -1 : Pour déterminer les origines des différentes anomalies calorimétriques apparaissant au cours du chauffage de l'échantillon trempé, des échantillons subissant le même traitement ont été préparés pour la diffraction des rayons X à hautes températures. Le cycle thermique appliqué est le même que celui utilisé dans l'essai DSC. Le chauffage a été interrompu pour l'enregistrement des spectres de diffraction des rayons X dès que la température atteint les points caractéristiques des différentes anomalies calorimétriques.

Pour l'état de trempé (Fig. IV. 3) on note, en plus de la présence des pics de diffraction correspondant à la matrice d'aluminium, la présence de certaines raies de diffraction qui peuvent être attribuées aux intermétalliques qui peuvent se former à partir des éléments Fe, Mn, Si et Al (plus probablement $Fe_3 Al_2 Si_3$) [3, 22, 50-53].

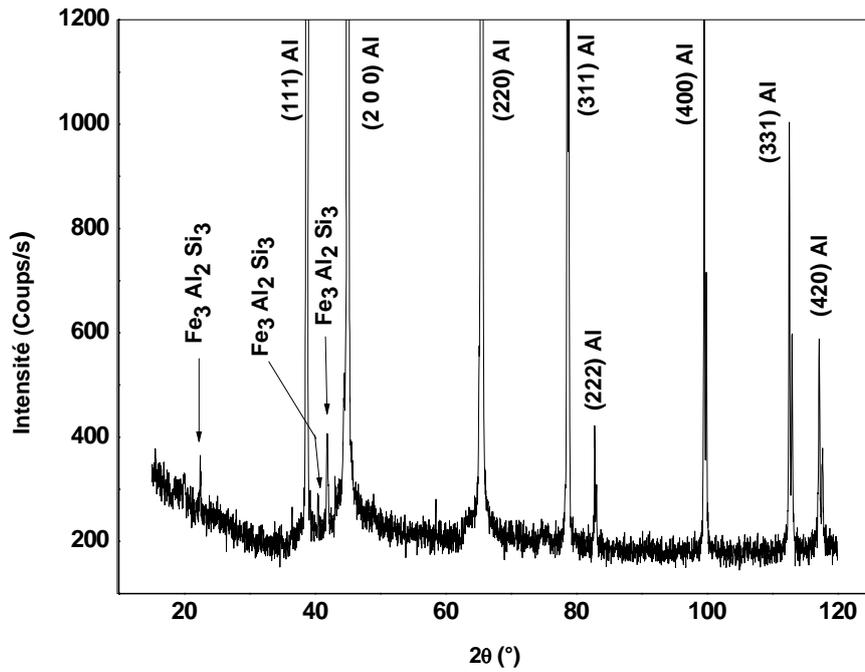


Fig. IV. 3 : Spectre de diffraction des rayons x pour un échantillon homogénéisé et trempé.

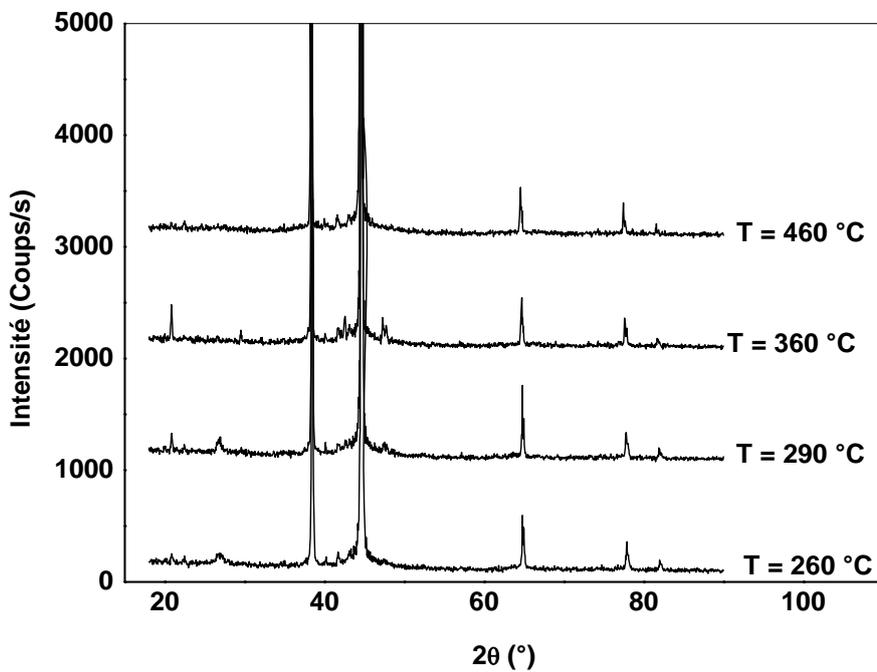


Fig. IV. 4 : Spectres de DRX in situ enregistrés à différentes températures au cours du chauffage d'un échantillon trempé ($T = 260, 290, 360$ et 460 °C).

La figure (IV.4) montre les spectres de DRX enregistrés à différentes températures ($T = 260, 290, 360$ et 460 °C) au cours du chauffage d'un échantillon trempé. De ces spectres (voir aussi le tableau 1) il est évident que les pics exothermiques (IV et V) sont associés à la précipitation des phases S' et S'/θ' respectivement, alors que le dernier pic exothermique est dû à la précipitation des phases d'équilibre S et θ . Par conséquent, le dernier pic endothermique est certainement lié à la dissolution des phases d'équilibre S et θ .

$T = 260$ °C	2θ (°)	20,87		26,81		43,12		47,68		
	Phase	S'		S'		S'		S'		
$T = 290$ °C	2θ (°)	20,87	22,436	26,81	42,62		43,18		47,43	47,8
	Phase	S'	θ'	S'	θ'		S'		θ'	θ'
$T = 360$ °C	2θ (°)	20,82	22,79	26,52	29,5	37,93	41,77	42,5	47,43	47,8
	Phase	S	θ	S	θ	θ	θ	S	θ	θ

Tableau. IV. 1: positions angulaires des pics de diffraction correspondant aux différentes phases détectées.

A partir de ces résultats, les séquences de précipitation qui peuvent se produire au cours du chauffage continu de l'alliage étudié sont celles conduisant à la formation des phases d'équilibre S et θ .

Selon la littérature, ces résultats sont en bon accord avec certains travaux [43, 44, 46, 56, 57, 69, 74] et tombent en contradiction avec d'autres, qui proposent la précipitation d'autres phases (θ et β , θ et Q ou parfois les deux à la fois) [47, 48, 53, 69]. Donc les différents effets calorimétriques peuvent être interprétés comme suit:

- Le premier pic exothermique (I) caractérisé par un maximum situé à 80 °C, peut être lié à la formation des zones GP (riche en Cu) et GPB (riche en Cu, Mg).

- Les deux pics endothermiques (II et III) apparaissant dans l'intervalle de température [120 °C, 230 °C] sont dus à la dissolution des zones GP et GPB.
- Le pic exothermique (IV) est lié à la formation de la phase S', alors que le pic exothermique (V) représente la précipitation des phases S' et θ' .
- Le dernier pic exothermique (VI) est dû à la formation des phases d'équilibres S et θ , tandis que le pic endothermique (VII) est attribué à leur dissolution.

Partie-2 : Pour pouvoir expliquer le comportement dilatométrique de notre alliage, nous avons aussi réalisé une série de spectres de diffraction des rayons X mais cette fois à la température ambiante : nous avons préparé des échantillons minces (d'une épaisseur inférieure à 0.5 mm) afin de minimiser les contraintes dues à la trempe. Ces échantillons ont été homogénéisés et trempés à l'eau froide puis chauffés pendant 20 min à différentes températures : $T = 85, 255, 280, 360$ et 470 °C). Les spectres obtenus sont présentés dans la figure (IV.5).

Bien que la détection des différents précipités qui peuvent se former dans l'alliage étudié par la diffraction des rayons X (DRX) est très possible, la formation et la nature de ces phases peuvent être aussi indirectement déterminées, en suivant l'évolution de deux paramètres:

(1) le paramètre cristallin de la matrice d'aluminium; en effet, la différence des rayons atomiques entre les atomes solutés Cu, Mg et Si d'une part et l'atome d'Al de l'autre part, crée des distorsions dans le réseau cristallin et donc fait varier son paramètre cristallin [53, 55]. Comme conséquence, la variation de la concentration des atomes solutés Cu, Mg et Si au cours de la précipitation de différentes phases implique une variation du paramètre cristallin de la matrice d'aluminium.

Sachant que les différences de rayons atomiques entre l'aluminium et les solutés Cu et Mg sont: $\Delta r_{Cu} = -10,5 \%$, $\Delta r_{Mg} = +11,8 \%$ et $\Delta r_{Si} = -3,8 \%$ (avec $\Delta r_i = (r_i - r_{Al})/r_{Al}$) [55], on peut négliger l'effet des atomes Si devant l'effet des atomes Cu et Mg ; la formation des précipités riches en Mg (S' et S) doit être traduite par une diminution du paramètre cristallin, alors que leur dissolution correspondant au retour de ces atomes en solution solides fait augmenter le paramètre cristallin. D'autre part, la formation des phases riches en Cu (θ' et θ) qui fait diminuer la concentration des atomes Cu en solution solide résultent en une augmentation du paramètre cristallin de la matrice, par conséquent leurs dissolution conduit à sa diminution [53].

Ainsi, la nature de la phase formée à une température donnée peut être prédite par la variation du paramètre cristallin à cette température.

(2) la largeur à mi-hauteur ***FWHM*** (Full Width at Half Maximum) des pics de diffraction de la matrice; il est bien établi que toutes les phases métastables (cohérentes ou semi cohérentes) et stables (incohérentes) apparaissant dans la séquence de précipitation des alliages Al-Cu-Mg-Si (GP, GPB, S', θ' , S et θ) conservent les mêmes orientations cristallographiques avec la matrice d'aluminium : d'une manière générale, les différents types de précipités se forment sur les plans $\{100\}$ de la matrice [44-47, 53, 56, 57, 79, 84].

$$(100)_{\theta'', \theta', \theta} // (100)_{Al} \text{ et } [100]_{\theta'} // [100]_{Al}$$

$$(100)_{S'(S)} // (100)_{Al} \text{ et } [100]_{S'(S)} // [100]_{Al}$$

La cohérence des phases métastables (GP, GPB, S', et θ') est assurée par la présence d'une forte densité de dislocations dites dislocations d'accommodation et donc de fortes contraintes sur les plans $\{100\}_{Al}$ où se forment ces précipités [72].

Ces contraintes sont traduites par un élargissement des raies de diffraction des rayons X et donc des valeurs plus importantes de ***FWHM*** des raies de diffraction de la matrice (une augmentation des valeurs de la largeur à mi-hauteur) par rapport au cas où les précipités sont absents ou sont incohérents, cas des précipités d'équilibre S et θ (leur formation ne fait pas varier la largeur à mi-hauteur des pics de diffraction de la matrice).

A cet effet, le type de phases formées (cohérentes ou incohérentes) peut déterminer à partir de la variation du paramètre ***FWHM*** les pics de diffraction de la matrice.

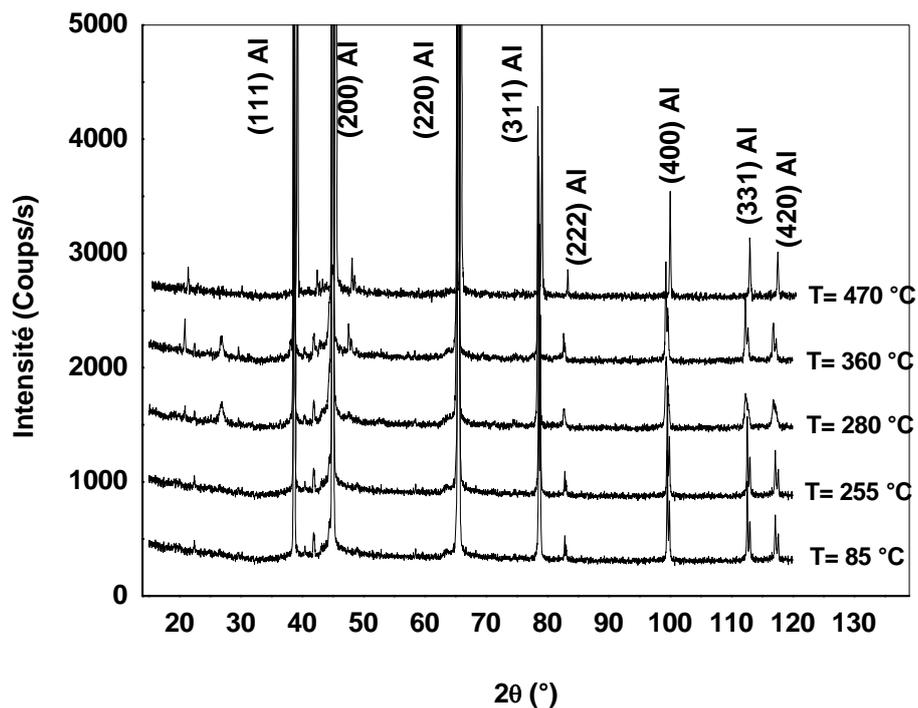


Fig. IV. 5 : Spectres de DRX enregistrés après chauffage de 20 min à différentes températures ($T = 85, 255, 280, 360$ et 470 °C) d'un échantillon homogénéisé et trempé.

$T = 255$ °C	2θ (°)	20,86		26,83		41,94				
	Phase	S'		S'		S'				
$T = 280$ °C	2θ (°)	20,86	22,47	26,83	29,62		41,16	42,05	47,45	47,70
	Phase	S'	θ'	S'	θ'		S'	S'	θ'	θ'
$T = 360$ °C	2θ (°)	20,95	22,52	26,79	29,46	37,94	41,94	42,06	47,45	47,70
	Phase	S	θ	S	θ	θ	θ	S	θ	θ
$T = 470$ °C	2θ (°)	20,94			29,57	37,94	41,69		47,45	47,70
	Phase	S			θ	θ	θ		θ	θ

Tableau. IV. 2 : positions angulaires des pics de diffraction correspondant aux différentes phases détectées.

La variation des valeurs du paramètre cristallin de la matrice en fonction de la température est présentée dans la figure (IV.6). De cette figure on peut noter que ;

- l'augmentation initiale de a_{Al} enregistrée à $T = 85 \text{ }^\circ\text{C}$ correspond à un appauvrissement de la matrice d'atomes Cu et Mg qui participent à la formation des zones GP et/ou GPB,
- la faible diminution des valeurs du paramètre cristallin à $T = 255 \text{ }^\circ\text{C}$ trouvent son explication dans la co-précipitation des atomes Mg et Cu pour former la phase contenant ces deux types d'atomes (S' ou S): l'effet de la précipitation des atomes Mg (qui doit être accompagnée par une diminution du paramètre cristallin) est compensé par l'effet de la précipitation des atomes Cu. Cependant du fait que l'effet de taille des atomes Mg est plus important que celui des atomes Cu, la co-précipitation de ces deux types d'atomes pour former la phase Al_2CuMg s'accompagne par une faible diminution du paramètre cristallin de la matrice,
- les plus importantes variations du paramètre cristallin sont enregistrées pour les hautes températures ($T = 280$ et $360 \text{ }^\circ\text{C}$). La grande augmentation de la valeur du paramètre cristallin observée à $T=280 \text{ }^\circ\text{C}$ ne peut être expliquée que par la précipitation des atomes Cu pour former la phase riche en Cu (Al_2Cu c à d θ' ou θ).

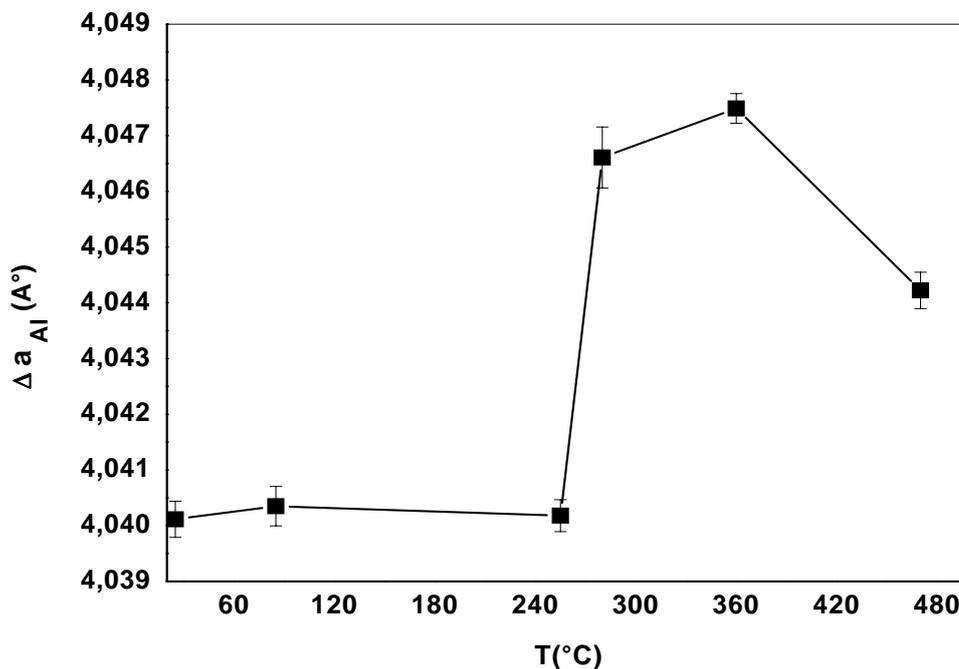


Fig. IV. 6 : Variation des valeurs du paramètre cristallin de la matrice a_{Al} en fonction de la température.

Avec l'augmentation de la température à $T= 360\text{ }^{\circ}\text{C}$, le paramètre cristallin de la matrice continue à augmenter mais avec un taux moins important. Ceci peut trouver son explication dans la co-précipitation des phases riches en Cu (Al_2Cu), qui augmente le paramètre cristallin et la phase riche en Cu et Mg (c a d Al_2CuMg) qui fait diminuer légèrement le paramètre cristallin.

Pour déterminer le type (cohérent ou incohérent) des phases précipitées, nous avons choisi de suivre la variation des valeurs de la largeur à mi-hauteur (***FWHM***) des pics $(200)_{\text{Al}}$ et $(400)_{\text{Al}}$ en fonction de la température (Fig. IV. 7).

De la figure (IV.7) on peut constater une augmentation progressivement des valeurs de la largeur à mi-hauteur des pics $(200)_{\text{Al}}$ et $(400)_{\text{Al}}$ pour les températures ($255\text{ }^{\circ}\text{C}$, $280\text{ }^{\circ}\text{C}$) correspondant aux pics calorimétriques (IV, V) et avec un degrés moindre pour la température du pic (I). Ce qui veut dire que ces pics correspondent à la formation des phases qui ont une certaine cohérence avec la matrice c à d des phases métastables. Donc, à $T= 85\text{ }^{\circ}\text{C}$ on a la formation des zones GP et/ou GPB, à $T= 255\text{ }^{\circ}\text{C}$; et à $T= 280\text{ }^{\circ}\text{C}$ il y a la formation des phases S' et θ' respectivement. La diminution des valeurs de ***FWHM*** à $T=360\text{ }^{\circ}\text{C}$ (correspondant à la formation de la phase riche en Cu (Al_2Cu) et celle riche en Cu et Mg (Al_2CuMg)) est une indication à la disparition des contraintes de cohérence; donc ces phases sont les phases d'équilibre S et θ .

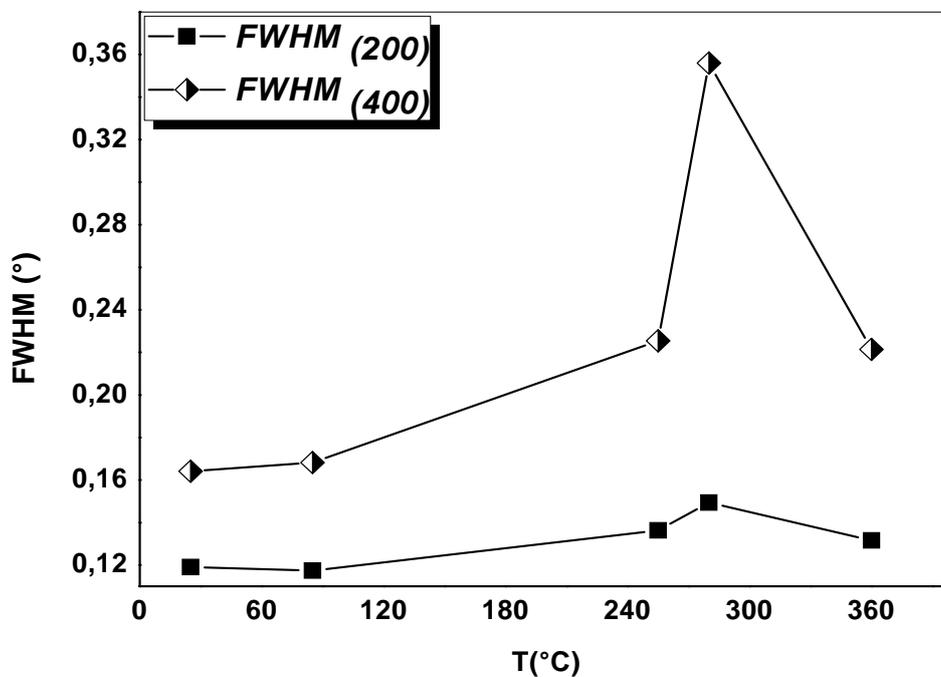


Fig. IV. 7 : variation des valeurs *FWHM* des plans (200) et (400).

IV.2.4 Résultats de la microdureté

La figure (IV.8) qui représente la variation des valeurs de la microdureté en fonction de la température, montre que le durcissement maximal est atteint pour les températures correspondant aux deux pics de la courbe de DSC situés à 85 °C et 280 °C.

Le durcissement initial peut être principalement attribué à la formation des zones GP (riche en Cu) + GPB (riche en Mg), tandis que le second durcissement maximal correspondant au pic (V) de la courbe de DSC qui est associée à la formation de la phase la plus durcissante dans ce type d'alliage. De ces résultats, il est confirmé une autre fois que ce pic est dû à la précipitation de la phase semi-cohérent θ' .

La diminution des valeurs de la microdureté à la température correspondant au pic (VI) de la courbe de DSC est directement attribuée à la diminution de la quantité des phases précipitées et en particulier, de la phase métastable θ' qui est le responsable du durcissement dans se type d'alliages et à la précipitation des phases d'équilibre S/ θ . On note ensuite qu'il y a une chute de dureté liée à la dissolution des phases d'équilibre S/ θ .

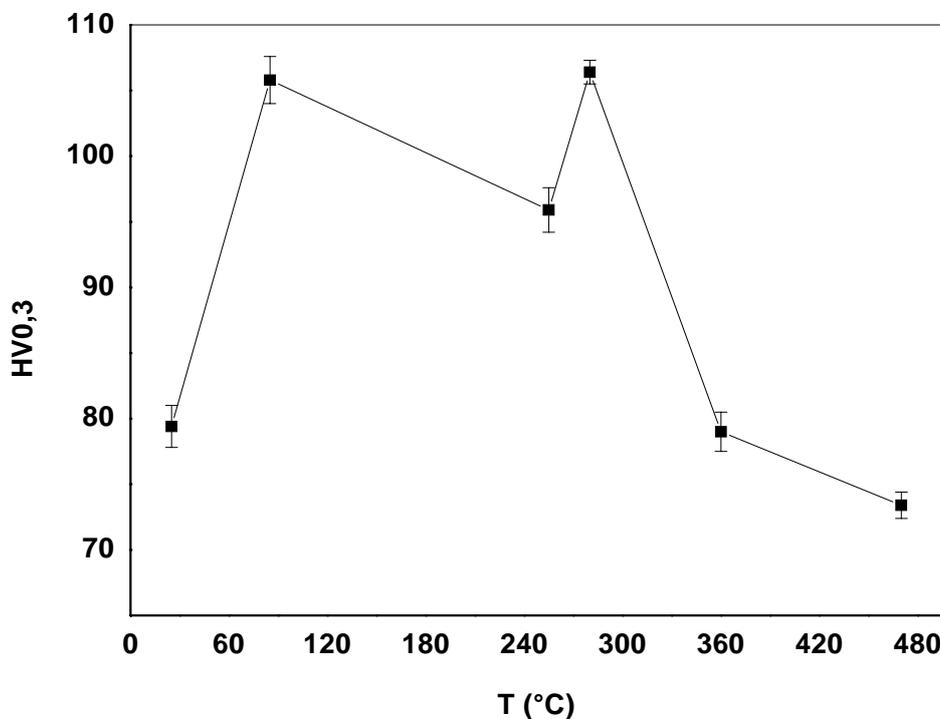


Fig. IV. 8 : Variation des valeurs de la microdureté en fonction de la température.

IV.3 Etude de l'effet de la maturation à la température ambiante sur l'état de la solution solide

Les alliages du système Al-Cu-Mg-Si a montré des taux élevés de durcissement qui dépend notablement des phases précipitant pendant le vieillissement naturel [43, 53, 62, 72]. De ce fait, la variation de la microdureté avec le temps de vieillissement peut fournir des renseignements sur les phases précipitées. Cette partie est concentrée sur l'influence de la maturation à l'ambiante sur le durcissement de l'alliage étudié. On peut illustrer cette influence en suivant les caractéristiques mécaniques de l'alliage pendant la maturation à l'ambiante.

La figure (IV.9) montre les cinétiques de durcissement de notre alliage au cours d'une maturation à l'ambiante. Nous remarquons que l'augmentation de la dureté est rapide à partir de l'état juste après la trempe vers un palier au bout de 12 heures; les valeurs de la microdureté restent presque constantes dans tous le palier.

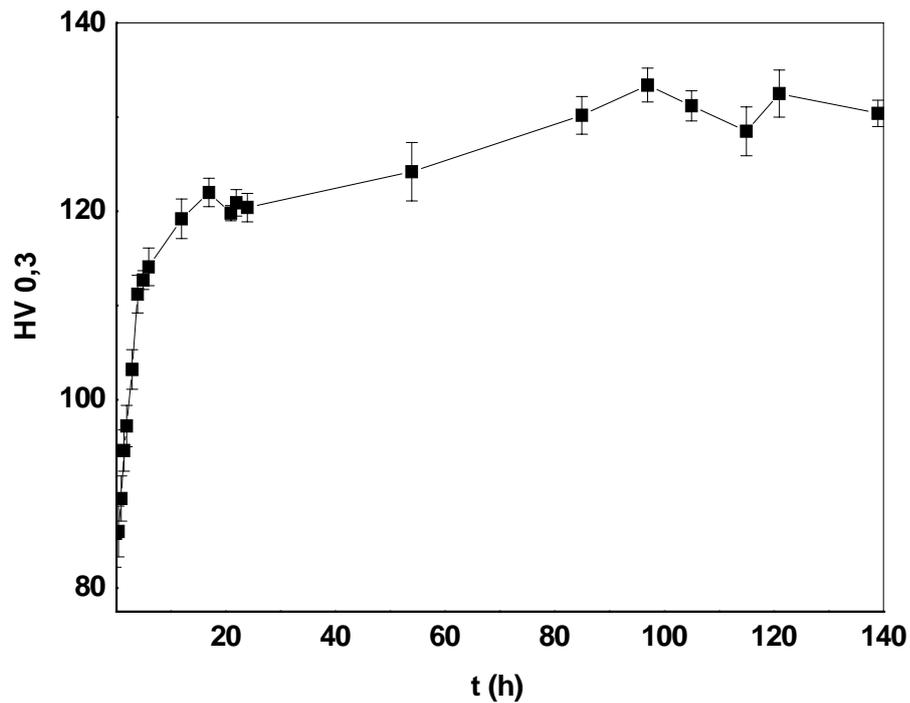


Fig. IV. 9 : *Cinétique de durcissement de l'alliage étudié pendant la maturation à la température ambiante.*

Pour comprendre les mécanismes qui régissent ce durcissement, il convient donc d'étudier les tout premiers stades de la décomposition des solutions solides sursaturées maturées à l'ambiante. L'idée est de se concentrer sur les effets calorimétriques apparaissant à basse température. On a donc fait subir à un échantillon une mise en solution suivie d'une trempe et d'une maturation à l'ambiante pour des temps correspondant aux différents points de la figure (IV.9).

Les courbes de DSC enregistrées pour des échantillons trempés et vieillis à l'ambiante pour différentes périodes sont montrées sur la figure (IV.10). On observe donc la diminution progressive de l'intensité du pic exothermique (I), qui reflète la réaction de précipitation se produisant au cours du chauffage dans le DSC, jusqu'à sa disparition après presque 12 heures. Pour des temps de maturation à température ambiante supérieurs, on note l'apparition d'un pic endothermique à la place du premier pic exothermique (I). Par contre les autres pics ne montrent pas de changements significatifs.

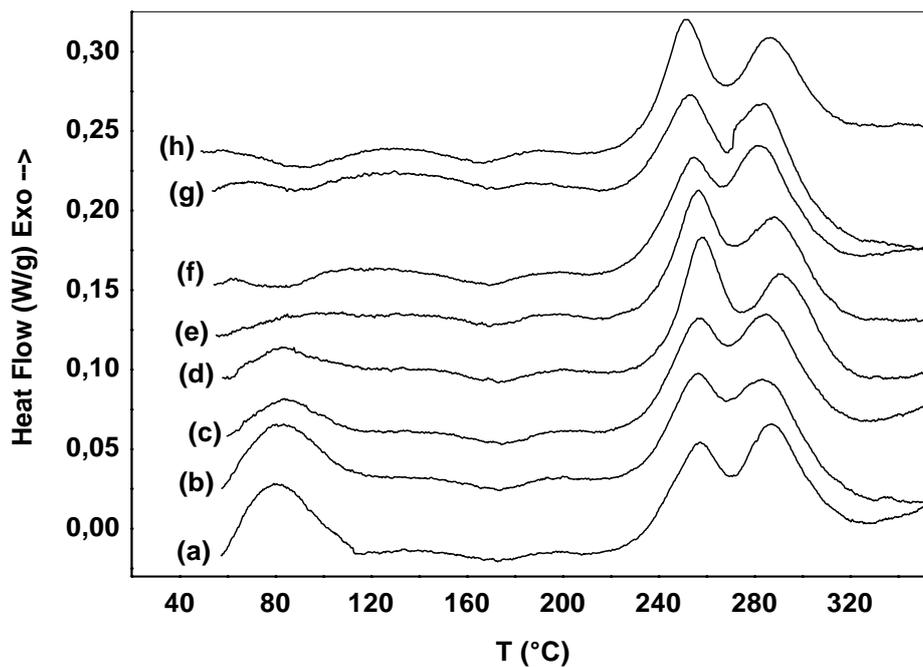


Fig. IV. 10 : Courbes de DSC enregistrées pour des échantillons trempés et vieillis à l'ambiante pour différentes périodes : (a) juste après trempé, (b) 2 h, (c) 4 h, (d) 6 h, (e) 12 h, (f) 1 j, (g) 2 j, (h) 4j.

A partir de ces résultats, on peut noter que l'augmentation du temps de vieillissement naturel réduit l'intensité du premier pic exothermique (I). Ce qui implique que la (ou les) phase (s) donnant lieu à l'effet (I) est (sont) formée (s) durant ce vieillissement.

Au vu des résultats obtenus dans la partie précédente, il est clair cependant que le premier pic exothermique (I) est dû à la formation des GP + GPB, alors que le pic endothermique représente leur dissolution [63].

L'augmentation des valeurs de la microdureté (Fig. IV. 9) correspond à la diminution progressive de l'intensité du pic (I) qui disparaît complètement après presque 12 heures (le début du palier). Donc on peut deviner que les mêmes phases donnant l'effet (I) (les zones GP et /ou GPB), sont responsables du durcissement rapide observé. La disparition du pic (I) après 12 heures de vieillissement naturel signifie que la formation des zones GP et GPB est complète. Pour cela, le petit pic endothermique apparaissant entre 60 °C et 110 °C pour des temps de vieillissement naturel prolongés, peut être attribué à la dissolution des amas atomiques.

Cette étude a permis de mieux comprendre les mécanismes de durcissement de notre alliage. Par ailleurs, le durcissement qui se produit pendant la maturation à l'ambiante, dès les premiers instants suivant la trempe, peut être expliqué par la forte concentration de lacunes qui a été conservée par la présence des atomes Si; à cause de la forte énergie de liaison atome Si - lacune, des complexes Si-lacunes se forment avec les lacunes de trempe en sursaturation [79]. D'autre part, pour des raisons de relaxation de contraintes de distorsion, découlant de l'effet de taille des atomes Mg, ces derniers, vont certainement interagir avec les lacunes et forment des complexes qui contiennent probablement du cuivre (lacunes-Cu-Mg et/ou les zones GP). Ces complexes vont se diriger vers les puits de lacunes (dislocations et joints de grain) afin de permettre aux lacunes en sursaturation de s'éliminer et aussi freiner le mouvement de dislocation [72, 53]. Ceci va résulter en une ségrégation de solutés autour des puits de lacunes et un durcissement supplémentaire observé.

IV.4 Etude de l'effet du vieillissement artificiel sur l'état de la solution solide

Au vu des résultats précédent on voit que la maturation à température ambiante après la trempe des échantillons de l'alliage étudié, qui est une étape inévitable dans les traitements thermiques industriels, a un grand effet sur l'évolution microstructurale de la solution solide sursaturée. Dans tout ce qui suit, les traitements thermiques sont différemment appliqués après la trempe afin d'éviter toute complication.

IV.4.1 Etude des cinétiques de durcissement durant le vieillissement à 160 °C

Dans cette partie, nous nous sommes intéressés au durcissement de l'alliage étudié durant un vieillissement à une température intermédiaire $T=160\text{ °C}$.

La figure (IV.11) montre la variation des valeurs de la microdureté en fonction du temps de vieillissement à $T= 160\text{°C}$. De cette figure, on constate que les valeurs de la microdureté augmentent rapidement pour atteindre un palier qui commence à 20 h et prend fin après 48 h de vieillissement à 160 °C. On note ensuite qu'il y a une diminution graduelle remarquable pour les durées supérieures.

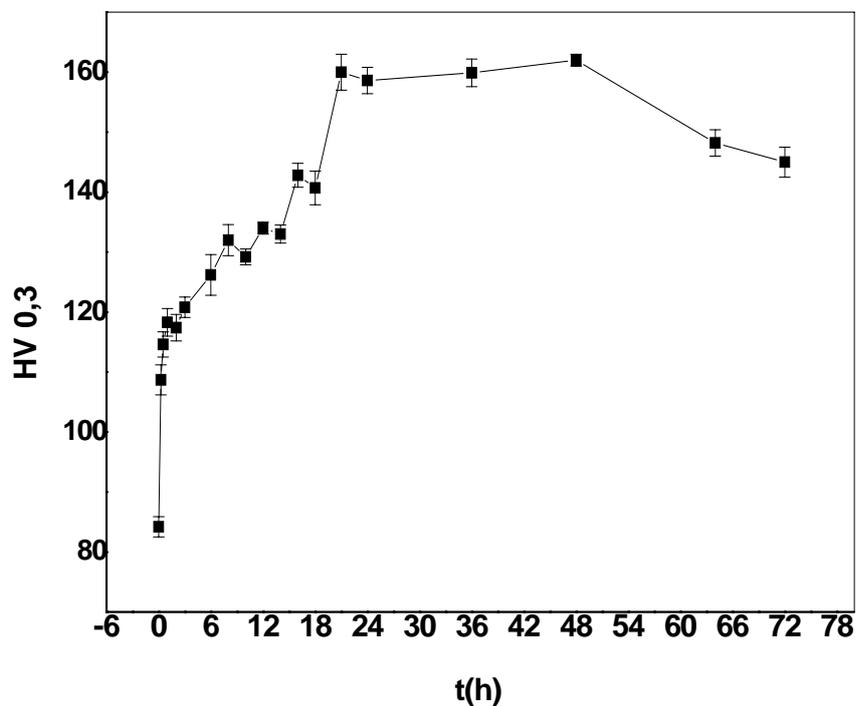


Fig. IV. 11 : Variation des valeurs de la microdureté en fonction du temps de vieillissement à $T=160\text{ °C}$.

Pour comprendre les mécanismes du durcissement enregistré durant le vieillissement à 160 °C, nous avons procédé à l'analyse calorimétrique différentielle (DSC). Les courbes de DSC enregistrées pour des échantillons homogénéisés, trempés et vieillis pendant différentes périodes à 160 °C sont montrées dans la figure (IV.12).

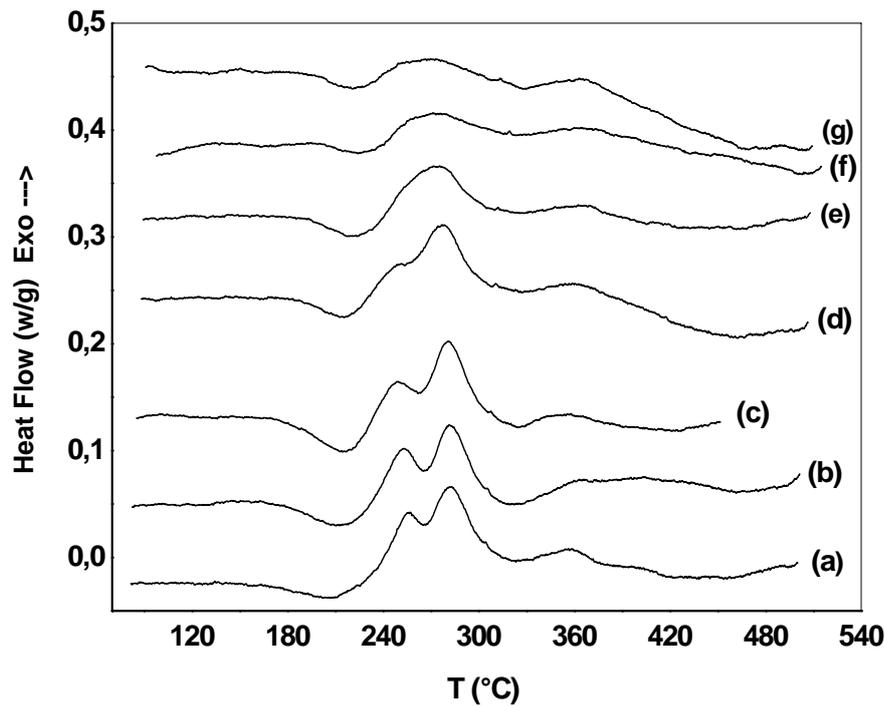


Fig. IV. 12 : Courbes de DSC enregistrées pour des échantillons homogénéisés, trempés et vieillis pendant différentes périodes à 160 °C, (a) 0,5 h, (b) 1 h, (c) 4 h, (d) 12 h, (e) 16h, (f) 24 h, (g) 36 h.

Une comparaison prudente de ces thermogrammes avec la courbe de DSC enregistrée pour l'état de trempé (Fig. IV. 1), qui sert ici comme une référence, permet de noter que l'augmentation du temps de vieillissement à 160 °C conduit aux effets suivants :

Une disparition complètement des effets calorimétrique à basse température correspondant à la formation et dissolution des zones GP et GPB, à partir du plus faible temps de vieillissement (0.5 h la courbe (a)). Ce phénomène ne peut s'expliquer que par la formation rapide et complète de ces derniers au cours du vieillissement à 160 °C, et qui peut expliquer une partie de l'augmentation notée des valeurs de la microdureté.

Pour cela les deux pics endothermiques II et III (liés à la dissolution des zones GP + GPB) sont remplacés par un seul pic endothermique situé entre 150 et 240 °C qui se déplace vers les hautes températures avec l'augmentation du temps de vieillissement à 160 °C. La variation de la surface de ce pic endothermique n'est pas constante ; en effet on note qu'elle augmente avec le temps de vieillissement pour les premières heures (4 h) puis elle commence à diminuer.

Une diminution progressive de la surface du pic exothermique IV (lié à la précipitation de la phase métastable S') jusqu'à sa disparition après 14 ou 16 heures de maintien à 160 °C

(la courbe (e)). À partir de ce temps on n'observe qu'un seul pic exothermique large (celui qui a été lié à la formation de la phase θ') avec une surface qui diminue avec l'augmentation ultérieure du temps de vieillissement.

De ces résultats, on peut conclure que le durcissement rapide et maximum observé après différentes durées de maintien à 160 °C, est premièrement, dû à la formation des phases dont la dissolution donne le pic endothermique situé entre 150 et 240 °C et qui sont responsables aussi de la diminution puis la disparition du pic exothermique IV représentant la formation de la phase S' ; deuxièmement à la précipitation de la phase durcissante, qui est responsable du durcissement maximal obtenu dans ce type d'alliage et l'augmentation de leur quantité durant des maintiens ultérieurs.

Pour pouvoir expliquer l'évolution de l'allure des courbes de DSC avec le temps de vieillissement à T=160 °C, nous avons réalisé des essais de la diffraction des rayons X à haute température.

Les séquences des spectres de DRX in situ enregistrés après différentes périodes de maintien à 160 °C (jusqu'à 22 h) sont montrés dans la figure (IV.13).

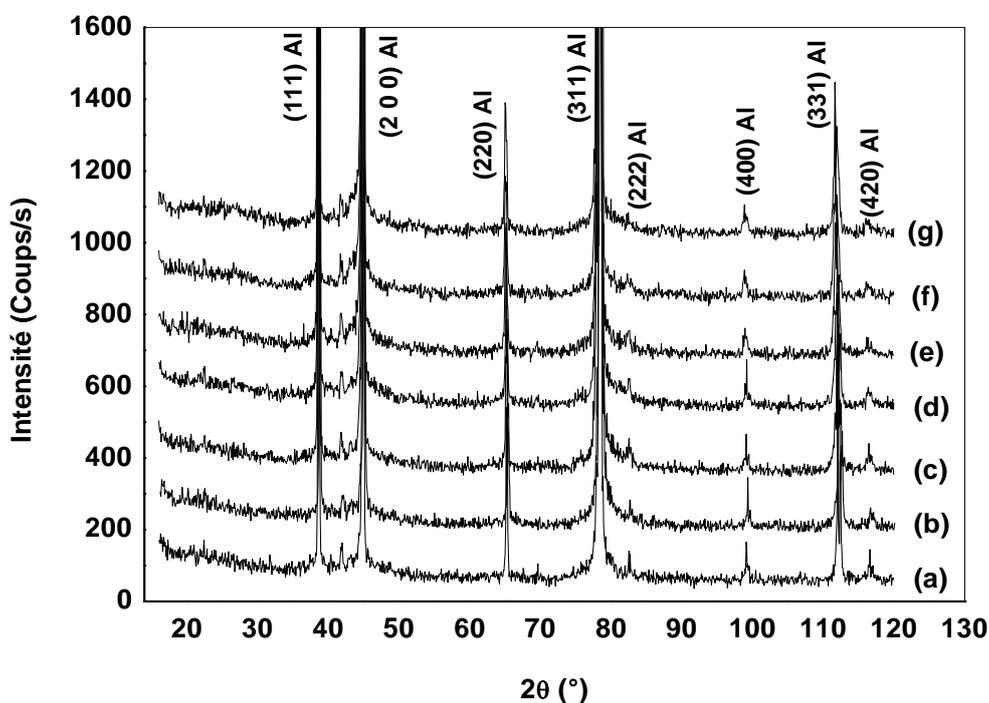


Fig. IV. 13 : Spectre de diffraction des rayons X in situ, d'un échantillon homogénéisé, trempé puis vieillis à 160 °C pendant : (a) 0,5 h, (b) 1 h, (c) 2 h, (d) 4 h, (e) 8 h, (f) 16 h, (g) 22 h.

Il est difficile de déterminer les phases responsables de l'évolution microstructurale notée pour le vieillissement à 160 °C directement à partir des spectres de la figure (IV.13).

Pour cela nous avons mesuré le paramètre cristallin de la matrice d'aluminium en fonction du temps de vieillissement à 160 °C.

La variation du paramètre de maille en fonction du temps de vieillissement à $T= 160\text{ °C}$ est représentée dans la figure (IV.14). De cette figure on observe que le paramètre cristallin diminue pour les premiers temps de vieillissement (0.5 h), augmente graduellement pour atteindre sa valeur maximale après presque 10 h, puis reste presque constant pour les plus grands temps de vieillissement.

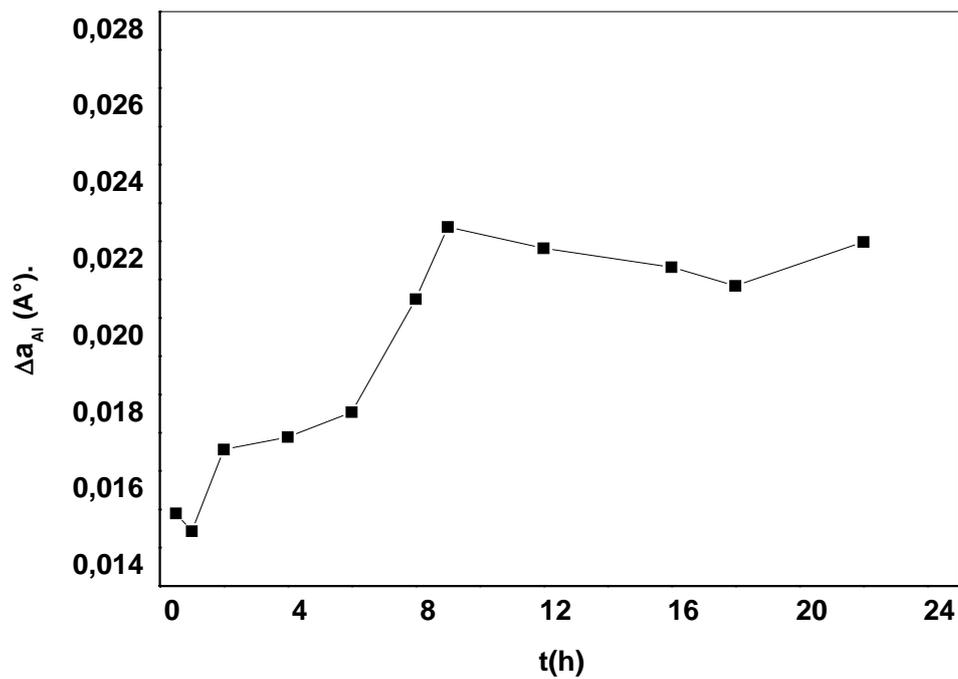


Fig. IV. 14 : *Variation du paramètre cristallin de la matrice d'aluminium en fonction du temps de vieillissement à 160 °C.*

La diminution initiale du paramètre cristallin est due à la dissolution complète des zones GP qui sont formées durant la trempe (correspondant au retour des atomes Cu en solution solide).

L'augmentation graduelle du paramètre cristallin pour les vieillissements durant moins de 10 h et qui d'une part correspondent à l'augmentation puis la diminution de la surface du pic endothermique apparaissant entre 150 et 240 °C et d'autre part à la diminution de la surface du pic exothermique IV des courbes de DSC (Fig. IV. 12), ne peut être expliquée que par la précipitation d'une phase riche en Cu (c à d les phases θ'' , θ' ou θ) qui fait diminuer la concentration des atomes Cu en solution solide ; il en résulte donc en une augmentation du paramètre cristallin de la matrice. En tenant en compte des températures d'apparition de ces trois phases, on peut dire que le pic endothermique apparaissant entre 150 et 240 °C (fig. IV. 12) est dû à la dissolution de la phase θ'' . Ainsi la diminution puis la disparition du pic exothermique IV (qui a été lié à la formation de la phase S') implique que cette phase s'est éliminée progressivement par l'augmentation de la quantité de la phase θ'' durant ce maintien.

La diminution de la surface du pic endothermique situé entre 150 et 240 °C (lié à la dissolution de la phase θ'') et celle du pic exothermique dû à la précipitation de la phase θ' , observée pour les temps de vieillissement supérieurs à 4h, trouve son explication dans le fait que la phase θ'' s'est transformée en phase θ' au cours de ces traitements.

La stabilisation du paramètre cristallin quelque soit l'augmentation du temps de vieillissement à 160 °C, permet de déduire qu'une quantité plus importante d'atomes Cu est déjà précipitée pour former la phase métastable θ' (Al_2Cu).

Au vu de ces résultats, on peut conclure que le durcissement observé, est dû à la formation de la phase θ'' qui est transformée en phase durcissant θ' pour obtenir le durcissement maximal dans ces alliages.

D'autre part, la diminution ultérieure des valeurs de la microdureté avec la prolongation du vieillissement à 160 °C, est directement attribuée à la diminution de la quantité de phases précipitées et en particulier, de la phase métastable θ' et à la précipitation des phases d'équilibre.

IV.4.2 Etude métallographique

Le vieillissement artificiel produit une structure plus dure attribuée à l'accélération de la précipitation des phases. Ainsi, la distribution dans la matrice de précipités qui sont responsables du durcissement rapide de l'alliage étudié.

Dans le but de suivre l'évolution microstructure accompagnant les effets observés sur la courbe DSC et plus précisément celle correspondant au pic de la dureté à 160 °C, on a fait subir à l'échantillon des traitements thermiques spécifiques. Pour cela un échantillon de l'alliage Al-Cu-Mg-Si a été homogénéisé 16 h à 525 °C, trempé à l'eau et vieilli pendant différents temps de vieillissement à 160 °C correspondant aux différents points de la figure (IV.11).

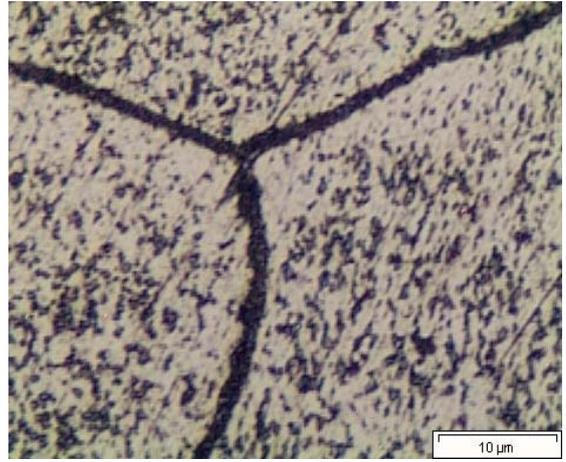
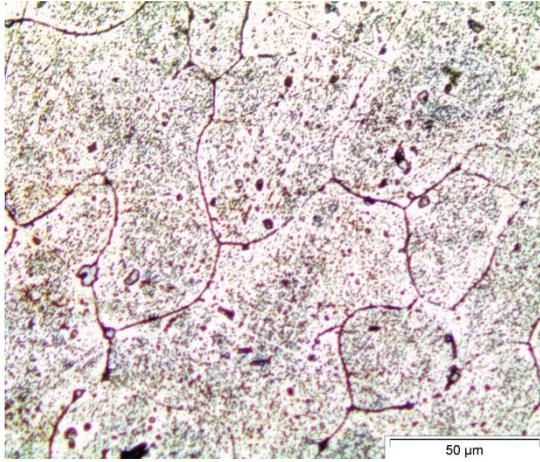
Les observations typiques de la microstructure des échantillons par microscope optique sont présentées dans la figure (IV.15). On constate que les tâches sombres peuvent être attribuées à des précipités qui sont distribués dans toute la matrice. Approximativement les tailles des grains observées après différents temps de vieillissement à 160°C est le même, car la grosseur des grains est presque identique, soit après un maintien de 4 h ou de 72 heures.

La figure (IV.15. (a)) montre la microstructure de l'échantillon vieilli 4 h à 160 °C ; on observe les tâches des précipités qui sont déjà formés au cours de ce vieillissement (c a d les phases métastables S', θ'' et θ') avec des quantités plus importantes, elles ne sont pas les mêmes pour les temps de vieillissement supérieurs à 4 h.

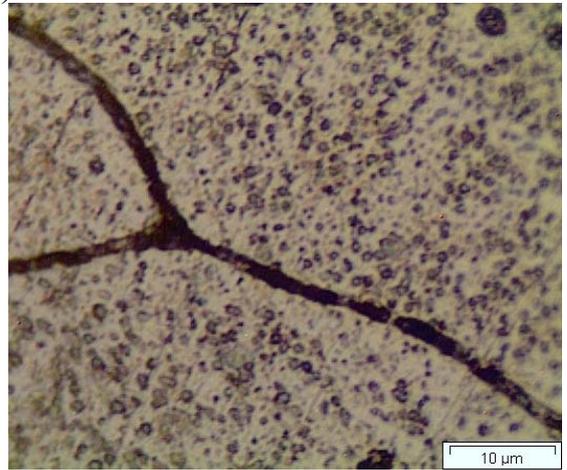
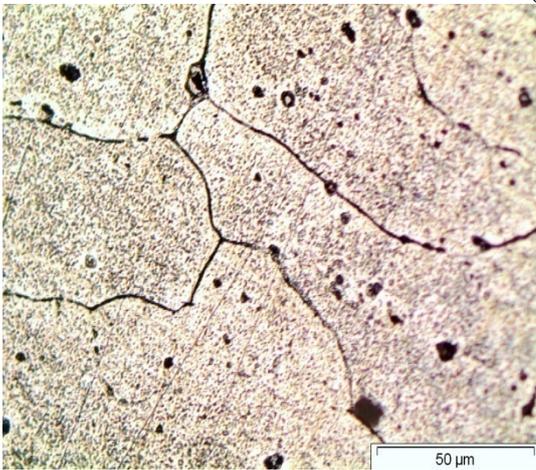
Concernant l'état revenu 12 h (Fig. IV. 15. (b)), la microstructure montre encore les précipités des phases métastables (S', θ'' et θ') correspondant aux variantes des pics de DSC enregistrées durant ce maintien à 160 °C ; ils étaient observés après que la vitesse rapide de durcissement initial ait ralenti peu avant l'augmentation maximale marquée du taux durcissant dans notre alliage. Les précipités de la phase S' sont moins présents tandis que les précipités métastable (θ'' et θ') sont majoritaires et distribués de façon homogène sur toute la surface d'échantillon.

Les deux figures (IV.15. (C, d)) montrent la présence de la phase dominante (θ' -Al₂Cu). Cette formation est associée en une grande partie au durcissement global. Cette phase dominante est distribuée d'une façon homogène avec une forte concentration dans l'état revenu 48 h (Fig. IV.15. (d)) par rapport à l'état précédent.

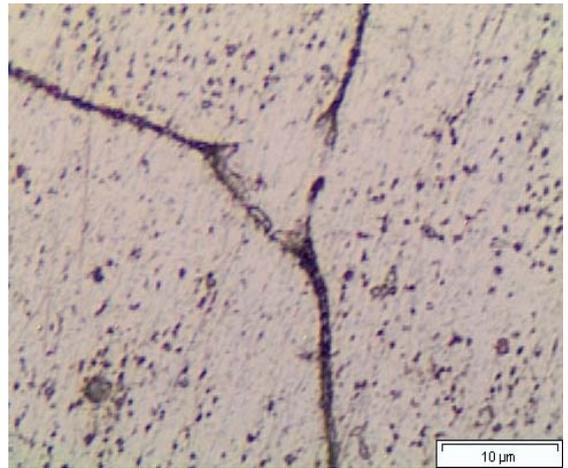
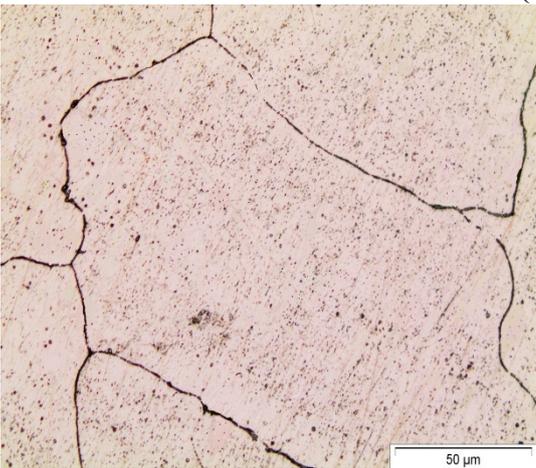
Dans la figure (IV.15. (e)), on observe une présence de beaucoup de précipités sur toute la surface de l'échantillon, parfois associée à la phase dominante (θ' -Al₂Cu). La prolongation du temps de vieillissement à T =160 °C, est directement liée à la diminution de la quantité des phases précipitées et en particulier, de la phase métastable θ' et à la précipitation des phases d'équilibre.



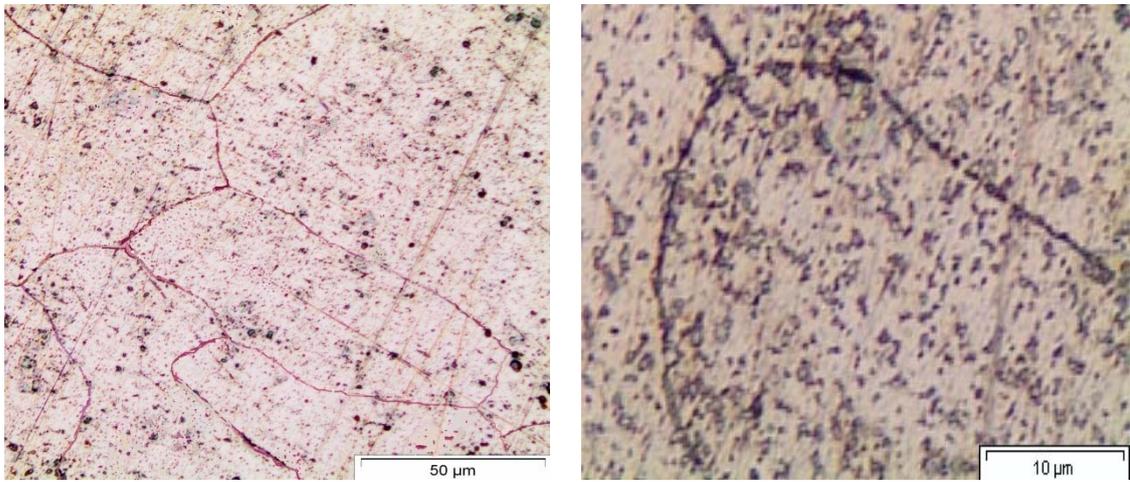
(a)



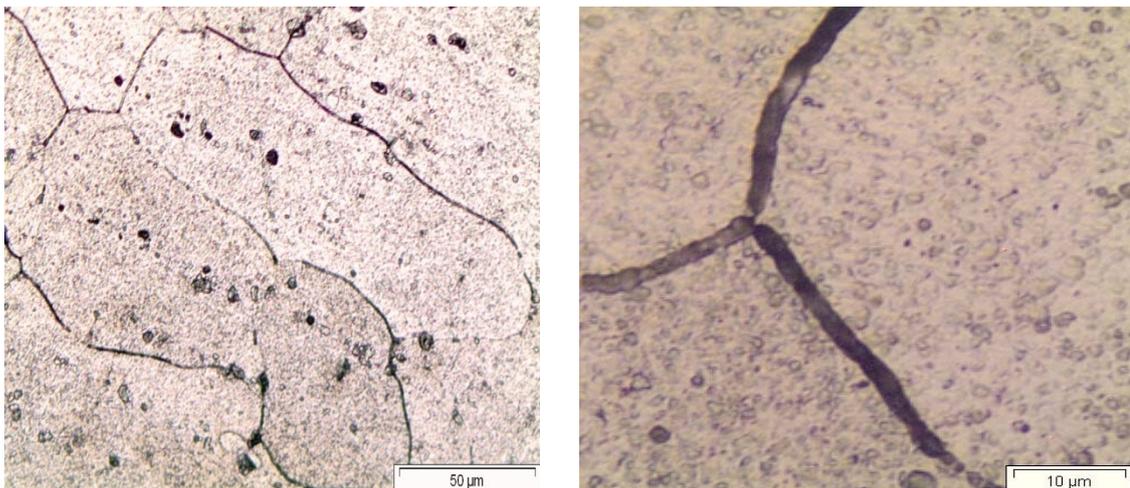
(b)



(c)



————— (d) —————



————— (e) —————

Fig. IV. 15 : *Microstructure des échantillons homogénéisés pendant 16 heures à 525 °C, trempé et vieillis à la température 160 °C pendant ;(a) 4 h, (b) 12 h, (c) 24 h, (d) 48 h, (e) 72 h.*

Conclusion

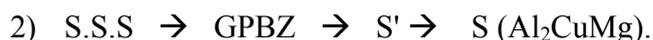
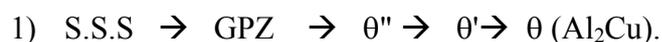
Conclusion générale

L'objectif de la thèse était d'étudier la séquence de précipitation et d'élucider les mécanismes de durcissement d'un alliage Al- Cu-Mg-Si de composition Al- 4,65 % Cu- 1,077 % Mg- 0,702 % Si- 0,691 % Mn- 0,412 % Fe (% massique). En particulier, on a essayé de comprendre l'effet de la maturation à l'ambiante après trempe sur le durcissement de l'alliage étudié, d'une part, et l'étude de l'effet du vieillissement isotherme à la température intermédiaire (160 °C) sur la microstructure et par conséquent les propriétés mécaniques de l'alliage étudié, d'autre part.

Pour cela, nous avons principalement utilisé plusieurs méthodes expérimentales simples, mais rigoureuses et adaptées à ce genre de travaux scientifiques, plus particulièrement l'analyse calorimétrique différentielle à balayage (DSC), l'analyse dilatométriques différentielle, la diffraction des rayons X à l'ambiante (DRX) et à haute température (DRXHT), les mesures de la microdureté et l'observation métallographique par le microscope optique.

Les principaux résultats de la thèse peuvent se résumer de la manière suivante :

- Les séquences de précipitation qui peuvent se produire au cours du chauffage continu de l'alliage étudié sont celles des phases S (Al_2CuMg) et θ (Al_2Cu), donc deux séquences de précipitation peuvent se produire séparément ou simultanément pour ces alliages:



- La maturation à la température ambiante conduit au durcissement de l'alliage étudié ; les cinétiques du durcissement sont rapides au début puis elles restent presque constantes au profil du temps.

Les essais de DSC ont permis de donner une explication qualitative de ce phénomène :

-le durcissement relativement rapide qui se produit pendant la maturation à l'ambiante, dès les premiers instants suivant la trempe, peut être expliqué par les cinétiques rapides de formation des zones GP + GPB, à cause de la présence d'une forte concentration de lacunes de trempe qui a été conservée par la présence des atomes Si (formation préférentielle des complexes Si-lacunes).

-avec la prolongation du temps de la maturation à l'ambiante, les lacunes en sursaturation sont éliminées sur les puits (dislocations et joints de grain), diminuant ainsi la diffusivité des atomes Mg et Si et, par conséquence, la formation des zones GP + GPB, ce qui explique l'augmentation avec un taux moins important, des cinétiques de durcissement pour les grands temps de la maturation à l'ambiante.

➤ Nous avons montré, d'après les résultats expérimentaux obtenus, que cet alliage donne un durcissement structural appréciable durant le vieillissement à 160 °C.

-Le revenu entre 20 et 48 heures à 160 °C est la meilleure combinaison des facteurs temps et température, elle conduit à la dureté maximale jusqu'à ($H_v = 162 \text{ N/mm}^2$).

-A la lumière des résultats de l'analyse calorimétrique différentielle nous avons essayé de comprendre les mécanismes du durcissement enregistré durant ce vieillissement, en effet:

le durcissement rapide et maximum observé après différentes durées de maintien à 160 °C, est premièrement, dû à la formation des phases dont la dissolution donne le pic endothermique situé entre 150 et 240 °C et sont responsables aussi de la diminution puis la disparition du pic exothermique IV représentant la formation de la phase S'; deuxièmement à la précipitation de la phase durcissant, qui est le responsable du durcissement maximal obtenu dans ce type d'alliage et l'augmentation de leur quantité durant des maintien ultérieurs.

-L'explication de ces résultats est faite à l'aide de la diffraction des rayons X à travers les mesures du paramètre cristallin de la matrice. En effet, la variation de ce dernier en fonction du temps de vieillissement à 160 °C confirme que le pic endothermique apparaissant entre 150 et 240 °C est dû à la dissolution de la phase θ'' . Ainsi, la diminution puis la disparition du pic exothermique IV (qui a été lié à la formation de la phase S') implique que la formation de cette phase s'est éliminée progressivement par l'augmentation de la quantité de la phase θ'' durant ce maintien. La diminution de la surface du pic endothermique situé entre 150 et 240 °C (lié à la dissolution de la phase θ'') et celle du pic exothermique dû à la précipitation de la phase θ' , observée pour les temps de vieillissement supérieurs à 4h, trouve son explication dans le fait que la phase θ'' est transformé en phase θ' au cours de ces traitements.

➤ L'observation au microscope optique montre que :

-Approximativement les tailles des grains observées après différents temps de vieillissement à 160 °C est le même, car la grosseur des grains est presque identique, que soit après un maintien de 4 h ou de 72 heures.

-La quantité des précipités des phases métastables (θ'' , S' et θ') qui sont déjà formées au cours de vieillissement à 160 °C est plus importante pendant 4h de maintien; puis elle diminue ensuite progressivement pour les temps de vieillissement ultérieurs.

-L'état de revenu 20 h à 160 °C montre la présence de la phase dominante (θ' -Al₂Cu) qui est associée à une grande partie du durcissement global, avec des quantités plus importantes à l'état de revenu 48 h à 160 °C.

-La prolongation du temps de vieillissement à 160 °C, est directement attribuée à la diminution de la quantité des phases précipitées et en particulier, de la phase métastable θ' et à la précipitation des phases d'équilibre.

Perspectives

Le travail entrepris a abouti à un certain nombre de résultats accompagnés des interprétations, mais il n'en demeure pas moins que cette étude demande des affinements qui font l'objet de nos perspectives de recherche.

- Utiliser le MET et le MEB pour mieux appréhender la nature de la tâche observée par le microscope optique.
- Rechercher une façon fiable de décomposer les pics non symétriques sur les courbes dilatométrique et DSC.

Références

Références bibliographiques

- [1]. G.W. Lorimer, K. C. Russel et M. I. Aaronson, Eds the Metallurgical Society of Aime, vol. 19, p. 87- 119, (1978).
- [2]. A. Belahcene, Thèse de Docteur, Laboratoire de Fonderie/ Département de Métallurgie et Génie des Matériaux/ Université de Annaba 23000, (2000).
- [3]. L. F. Mondolfo, Aluminum Alloys, Structures and Properties, Butterworth, London, vol. 12, p. 14-18, (1976).
- [4]. B. Dubost, p. Sain fort, Techniques de l'ingénieur, traité Matériaux métalliques, Paris, vol. 240, p. 2-37, (1994).
- [5]. R. Develay, Technique l'ingénieur, Traité de métallurgie, Paris, vol. 240, p. 11-18, (1994).
- [6]. J. Idrac, Thèse de Docteur, Institut Nation Polytechnique de Toulouse, (2005).
- [7]. X. Pan, J.E. Morral, and H.D. Brody, Journal of Phase Equilibria and Diffusion, vol. 10, p. 1547-7037, (2009).
- [8]. S. Mecheri, Mémoire de magister, Université de Constantine, Algérie, (2007).
- [9]. M. E. Redjaimia, 3eme année génie mécanique CL, Université Mohamed Khider Biskra, (2007/2008).
- [10]. V. Castelhana, Examen Probatoire, Conservatoire National des Arts et Metiers Centre Regional de Champagne-Ardenne, vol. 34, p. 123, (2001).
- [11]. C. Augustin, Doctorat de L'université de Toulouse, (2008).
- [12]. R. Develay, technique l'ingénieur, Traité de métallurgie, Paris, vol. 240, p. 23, (1994).
- [13]. P. Ouellet, Mémoire présenté à du Québec à Chicoutimi, (1997).
- [14]. F. Serradj, Mémoire de magister, Université de Constantine, (2005).
- [15]. A. AZIZI, Mémoire de magister, Université de Constantine, Algérie, (2007).
- [16]. S. P. Ringer, K. Hono. I. J. Polmear. T. Sakurai, Acta Mater, vol.44, p. 1883, (1996).
- [17]. R. Kaibyskov, F. Musin, D. Gromov, T. G. Nieh and D. R. Lesuer, Metals. Trans, vol. 43-10, p. 2392, (2002).
- [18]. M. J. Starink, A. Cerezo, J. L. Yan, N. Gao, Phil Mater, vol. 39, p. 243, (2006).
- [19]. S. P. Ringer, S. K. Caralrer, I. J. Polmear, Scripta Mater, vol. 39, p. 1559, (1998).
- [20]. V. Laaksonen, D. W. talanquer, osctaby : Nucleation, measurements theory, and tomspharic application. Annu. Rev. Phys. Chim, vol. 46, p. 489, (1995).
- [21]. S. C. Wang, M. J. Starink, N. Gao, Scripta Mater, vol. 54, p. 287-291, (2006).

- [22]. S. C. Wang, M. J. Starink, *Mater Sci Eng A*, vol. 386, p. 156-163, (2004).
- [23]. L. Reich, S. P. Ringer, K. Hono, *Phil. Mag Letters*, vol. 79, p. 639, (1999).
- [24]. J. Barralis, G. Maeder, Thèse de Docteur, Précis de métallurgie. Élaboration, structures-propriétés et normalisation 3eme édition, Nathan B Paris, (1986).
- [25]. A. Deschamps, Thèse de Docteur, Institut National Polytechnique de Grenoble, (1997).
- [26]. CH. De Sansal, Grade de Docteur, École Centrale des arts et Manufactures. « École Centrale Paris », (2007).
- [27]. N. J. Petch, *Iron Steel Inst, London*, vol. 25, p. 174, (1953).
- [28]. D. Tabor, *Academic press New York*, vol. 11, p. 1-3, (1975).
- [29]. Yucel Birol, *Scripta Materialia*, vol. 52, p. 169-173, (2005).
- [30]. M. F. Ashby ET D. R. H. Jones, *Matériaux*, tome 2: microstructure et mise en œuvre, Ed. Dunod, vol. 23, p. 12, (1991).
- [31]. M. Verdier, I. Groma, L. Flandin, J. Lendvai, Y. Brkhet, P. Guyot, *Scripta Materialia*, vol. 31-4, p. 449-454, (1991).
- [32]. I. Dutta, C. P. Harper, G. Dutta, *Metallurgical and Materials Transaction A*, vol. 25, p. 1591-1602, (1994).
- [33]. S. Senouci, Mémoire de magister, USTHB, (2009).
- [34]. V. GEROLD, H. Haberkom, *Physica Status Solidi*, vol. 16, p. 675, (1966).
- [35]. K. C. Russel, L. M. Brown, *Acta Metall*, vol. 12, p. 20-969, (1972).
- [36]. H. Gleiter, *Zeitung Agnew. Physic*, vol. 76, p. 23-108, (1967).
- [37]. C. Genevois, Thèse de Docteur, Institut National Polytechnique de Grenoble, (2004).
- [38]. B. Dubost et p. Sain fort, technique l'ingénieur, *Traité de Métallurgie*, Paris, vol. M230, p. 32, (1994).
- [39]. A. Gaber, A. Mossad Ali, K. Matsuda, T. Kawabata, T. Yamazaki, S. Ikeno, *Journal of Alloys and Compounds*, vol. 432, p. 149-155, (2007).
- [40]. A. Pineau, M. Clavel, *Materials Science and Engineering*, vol. 55, p. 157-171, (1982).
- [41]. Y. A. Bagaryatskii, *Doklody Akademii nauk S. S. S. R*, vol. 87, p. 397, (1952).
- [42]. Y. A. Bagaryatskii, *Doklody Akademii nauk S. S. S. R*, vol. 87, p. 559-562, (1952).
- [43]. D. Kent, G.B. Schaffer, J. Drennan, *Materials Science and Engineering*, vol. 405, p. 65-73, (2005).
- [44]. D. A. Hughes, *Acta Metall Mater*, vol. 14, p. 14-1421, (1993).
- [45]. A. Charai, T. Walther, C. Alfonso, AM. Zahra, CY. Zahra, *Acta Mater*, vol. 48, p. 2751, (2000).

- [46]. C. R. Hutchinson and S. P. Ringer, *Metall. Mater. Trans*, vol. 31, p. 2722-2733, (2000).
- [47]. D. G. Eskin, *Journal of Materials Science*, vol. 38, p. 279– 290, (2003).
- [48]. G. Riontino, A. Zanada, *Materials Letters*, vol. 37, p. 241–245, (1998).
- [49]. M. J. Starink, N. Gao, L. Davin, J. L. Yan, A. Cerezo, *Phil Mag*, vol. 85, p. 1395, (2005).
- [50]. D. E. Laughlin and W. F. Miao, *Automotive Allous II*. Edited by S. K. Das. *The Minerals, Metals and Materials Society*, vol. 43, p. 63-80, (1998).
- [51]. M. Murayama, K. Hono, W. F. Miao and D. E. Laughlin, *metallurgical and Materials Transactions*, vol. 32, p. 239-246, (2001).
- [52]. W. F. Miao and D. E. Laughlin, *Metal. Mater. Trans*, vol. 31, p. 361, (2000).
- [53]. H. Lu, P. Kadolkar, K. Nakazawa, T. Ando, and C. A. Blue, *Metallurgical and Materials Transactions A*, vol. 38, p. 2379-2388, (2007).
- [54]. A. Touil, *Memoire de magister, Université de Constantine*, (2007).
- [55]. F. de Geuser, *Thèse de doctorat, Université de Rouen*, (2005).
- [56]. I. N. A. Oguocha, S. Yannacopoulos, *Journal of Materials Science*, vol. 34, p. 3335-3340, (1999).
- [57]. C. Badini, F. Marino, E. Verné, *Materials Science and Engineering*, vol. 54, p. 185-191, (1995).
- [58]. S. P. Ringer, K. Hono, T. Sakurai, *Acta Mater*, vol. 36, p. 517, (1997).
- [59]. F. Bardi, M. Cabibbo, E. Evangelista, *Mater, Sci. Eng*, vol. 339, p. 43, (2003).
- [60]. B. P. Huang, Z.Q. Zheng, *Acta mater*, vol. 46, p. 4381–4393, (1998).
- [61]. S. P. Ringer, T. Sakurai, I. J. Polmear, *Acta Mater*, vol. 45, p. 3731, (1997).
- [62]. S. Abis, M. Massazza, P. Menegucci and G. Riontino, *Scripta Materialia*, vol. 45, p. 685-691, (2001).
- [63]. R. D. Schueller, F. E. Wawner, *Journal of Materials Science*, vol. 29, p. 239-249, (1994).
- [64]. I. J. Polmear, *Thèse de Docteur, London: Arnold*, (1995).
- [65]. P. Bassani, E. Gariboldi et G. Vimercati, *Journal of Thermal Analysis and Calorimetry*, vol. 91-1, p. 29–35, (2008).
- [66]. A. M. Zahra, C. Y. Zahra: *Journal of thermal analysis*, vol. 36, p. 1465-1470, (1990).
- [67]. S. C. Wang, M. J. Starink: *Int Mater*, vol. 50, p. 193-215, (2005).
- [68]. A. Ayadi, *Mémoire de magister, Université de Constantine, Algérie*, (2006).
- [69]. P. Bassani, E. Gariboldi et G. Vimercati, *Journal of Thermal Analysis and Calorimetry*, vol. 87-1, p. 247–253, (2007).
- [70]. G. K. Quainoo and S. Yannacopoulos, *Ghana Journal of Science*, vol. 47, p. 91-100, (2007).
- [71]. I. C. Barlow, W. M. Rainforth, H. Jones, *Journal of Materials Science*, vol. 35, p. 1413-1418,

- (2000).
- [72]. S. C. Wang, M. J. Starink, *Acta Materialia*, vol. 55, p. 933–941, (2007).
- [73]. G. C. Weatherly, A. Perovic, N. K. Mukhopadhyay, D. J. Lloyd, and D. D. Perovic, *Metallurgical and Materials Transactions A*, vol. 32, p. 213-218, (2001).
- [74]. I. Dutta, C .P. Harper, G. Dutta, *Metallurg. Mater. Trans*, vol. 25, p. 1591, (1994).
- [75]. G. W. Smith, *Thermochimica Acta*, vol. 317, p. 7-23, (1998).
- [76]. R. D. Doherty, *Physical Metallurgy*, R. W. Cahn, P. Haasen, Eds, Elsevier Science BV, vol. 123, p. 1363-1505, (1996).
- [77]. D.G. Eskin, *Z. Metallkd*, vol. 83, p. 762–765, (1992).
- [78]. D. J. Chakrabarti and D. E. Laughlin, *Progr. Mater. Sci*, vol. 49, p. 389, (2004).
- [79]. A. Hayoune, D. Hamana, *Journal of Alloys and Compounds*, vol. 474, p. 118-123, (2009).
- [80]. A. Guinier, *Journal de physique et de Radium*, vol. 6, p. 124, (1938).
- [81]. G. D. Preston, *Proc. R. Soc*, vol. 167, p. 526, (1938).
- [82]. H. Perlitz, A. Westgren: *Arkiv. Kem. Mineral. Geol*, vol. 32, p. 16-13, (1943).
- [83]. C. Wolverton: *Acta mater*, vol. 49, p. 3129-3142, (2001).
- [84]. J. Silcock, *J. Inst. Met*, vol. 89, p. 203, (1960-1961).
- [85]. Sanjib. Banerjee, P. S. Robi and A. Srinivasan, *Met. Mater. Int*, vol. 16-4, p. 523-531, (2010).
- [86]. A. Hayoune, *Thèse de doctorat, Université de Constantine, Algérie*, (2009).
- [87]. Z. Zhu, M. J. Starink, *Material Science and Engineering A*, vol. 489, p. 138–149, (2008).
- [88]. H. Djaaboube, *Mémoire de magister, Université de Constantine, Algérie*, (2008).
- [89]. W. J. Poole, D. J. Lloyd et J. D. Embury, *Mater. Sci. Engng*, vol. 234-236, p. 306-309, (1997).
- [90]. Y. Nagai, M. Murayama, Z. Tang, T. Nonaka, K. Hono, M. Hasegawa, *Acta Mater*, vol. 49, p. 913, (2001).

Résumé

دراسة الصلابة البنيوية لسبائك الألمنيوم لنظام

Al-Cu-Mg-Si

ملخص

رغم الاستعمالات و الدراسات منذ بداية هذا القرن، تبقى الخصائص الميكانيكية لسبائك الألمنيوم ذات التصليد البنيوي مخفية دائما. ما يؤكد ذلك الاجتهادات التي يقوم بها علماء المعادن بشكل دائم.

اعتنينا خلال عملنا في هذه المذكرة بحالة السبائك *Al-Cu-Mg-Si* , و أكثر خصوصا السبيكة ذات التركيبة

(% mass) Al-4,65 % Cu-1,08 % Mg -0,7 % Si-0,7 % Mn

العمل الذي انجزناه، من اجل هدف أساسي هو دراسة تأثير الترسيب لمختلق الأطوار الناتجة عن مختلف المعالجات الحرارية علي صلادة السبيكة .

من اجل هذا استعملنا عدة طرق تجريبية بسيطة لكن دقيقة و تتوافق مع هذا النوع من الأبحاث العلمية، نذكر منها أساسا: التمدد الحراري الطولي، التحليل الحراري التفاضلي، حيود الأشعة السينية في درجات الحرارة العادية (DRX) و العالية (DRXHT)، قياس الصلادة و المجهر الضوئي.

تحليل النتائج التجريبية المتحصل عليها بهذه الطرق، سمح لنا تفسير و تأكيد أن السبائك *Al-Cu-Mg-Si* تعطي صلادة بنيوية يمكن تقديرها:

التقسية السريعة نسبيا التي تبدأ من اللحظات الأولية بعد السقاية خلال التعتيق في درجة الحرارة العادية يتم تفسيرها ب:

الحركية السريعة لتكوين مناطق GP + GPB بسبب التركيز الفجوي العالي المحصل عليه بعد السقاية و المحفوظ بوجود ذرات Si (تكوين التشكيلة فجوة - Si).

فيما يخص حركيات التقسية خلال التعتيق في درجة الحرارة 160°C , وجدنا أن التعتيق ما بين 20 إلي 48 ساعة هو أحسن تركيبة لمعاملي الوقت و درجة الحرارة، هذه المعاملات تؤدي إلي صلابة عالية للسبيكة المدروسة متناضره تماما مع تزايد كمية الأطوار المترسبة و بشكل خاص الأطوار الأكثر صلابة في هذا النوع من السبائك (بمعني الطور الشبه المستقر (θ')).

الكلمات الدالة : الترسيب , السبائك Al-Cu-Mg-Si , HTDRX , DSC.

Study of the age hardening in Al-Cu-Mg-Si system.

Abstract

Although used and studied since the beginning of the century, the mechanical properties of age hardened aluminum alloys, always conceal certain secrets which the metallurgists endeavor to put at the day. In this work, we interested to Al-Cu-Mg-Si system and more particularly in Al-4, 65 % Cu-1, 077 % Mg-0, 702 % Si-0, 7 % Mn (Wt %) alloy. The work that we carried out, had a key objective, the study of the influence of the various phases precipitation produced by various heat treatments, on the hardening of this alloy. For that, we used several experimental methods adapted to this kind of scientific work. We focus primarily: thermal analysis (dilatometric tests and DSC), the X-rays diffraction with ambient (DRX) and high temperature (DRXHT), the microhardness measurements and metallographic observation by the optical microscope.

The obtained experimental results, can show that this alloy, gives appreciable age hardening: the relatively fast hardening which occurs during maturation at ambient, as the first moments following hardening can be explained by the fast kinetics of the GP + GPB zones formation due to the presence of a strong concentration of hardening vacancies which was preserved by the presence of the Si atoms (preferential formation of the complexes Si-gaps). In the case of hardening during ageing at 160 °C, we showed that 20 and 48 hours ageing at 160 °C is the best factors combination of the time and temperature. These values lead to the maximum hardness of the studied alloy due to the increase in quantity of the precipitated phases and in particular, the more hardening phase in this type of alloy (i.e. the metastable semi-coherent phase θ' -Al₂Cu).

Keywords: *Precipitation, Al-Cu-Mg-Si alloys, DSC, HTDRX.*

Etude du durcissement structural de l'alliage

Al-Cu-Mg-Si.

Résumé

Bien qu'utilisées et étudiées depuis le début du siècle, les propriétés mécaniques des alliages à durcissement structural à base d'aluminium, recèlent toujours certains secrets que les métallurgistes s'efforcent de mettre au jour. Dans ce travail, nous nous sommes intéressés au cas du système Al-Cu-Mg-Si et plus particulièrement à l'alliage Al-4,65 % Cu-1,08 % Mg -0,7 % Si-0,7 % Mn (% massique). Le travail que nous avons réalisé avait pour objectif essentiel d'étudier l'influence de la précipitation des différentes phases produites par différents traitements thermiques, sur le durcissement de cet alliage. Pour cela, on a utilisé plusieurs méthodes expérimentales adaptées à ce genre de travaux scientifiques. On cite essentiellement : l'analyse thermique (essais dilatométriques et DSC), la diffraction des rayons X à l'ambiante (DRX) et à haute température (DRXHT), les mesures de la microdureté et l'observation métallographique par le microscope optique.

L'analyse des résultats expérimentaux obtenus par ces méthodes, nous ont permis, d'expliquer et d'affirmer que l'alliage étudié présente un durcissement structural appréciable : le durcissement relativement rapide qui se produit pendant la maturation à l'ambiante, dès les premiers instants suivant la trempe, peut être expliqué par les cinétiques rapides de formation des zones GP + GPB, à cause de la présence d'une forte concentration de lacunes de trempe conservées par la présence des atomes Si (formation préférentielle des complexes Si-lacunes) ; en ce qui concerne les cinétiques de durcissement durant le vieillissement à 160 °C, on a montré que le revenu entre 20 et 48 heures à 160 °C est la meilleure combinaison des facteurs temps et température. Ces valeurs conduisent à la dureté maximale de l'alliage étudié correspondant à l'augmentation de la quantité des phases précipitées et en particulier, de la phase la plus durcissante dans ce type d'alliage (c-à-d la phase métastable semi-cohérent θ' -Al₂Cu).

Mots clés: Précipitation, Système Al-Cu-Mg-Si, DSC, HTDRX.