

M1530.024

République Algérienne Démocratique et Populaire
Ministère de l'enseignement supérieur
Université de Guelma
Faculté des Mathématiques et de l'Informatique et des Sciences de la Matière
Département des Sciences de la Matière



Mémoire du Projet de fin d'étude
2^{ème} année master

Spécialité : PHYSIQUE DE LA MATIERE CONDENSEE

Présenté par :

Imene Arbaoui

**L'effet du (Si) sur la cinétique des précipitations des alliages
Al-Mg- Si**

Sous la Direction de :
Dr. Mourad Daoudi

Juin 2013



Dédicace

Au nom de dieu le clément et le miséricordieux et en termes d'amour et de fidélité, je dédie ce présent mémoire :

Aux deux êtres les plus précieux au monde mon Père et ma Mère pour leur affection et leur amour qui n'ont pas cessé de me soutenir durant toute ma scolarité, ils m'ont éclairé, guidé et aidé à gravir les échelons, pour cela je leur dédie ce travail on leur disant

"Que dieu vous bénisse, je n'oublierais jamais ce que vous avez fait pour moi que le bon dieu me permette d'être toujours à la hauteur de vos espoirs"

A ceux qui m'ont entouré et soutenu ma Sœur Salima, mes Frères et mes Belles sœurs « Naima & Rima & Hadjer »

A Mes nièces « Sabrina & Farrah » et Mon neveu « Hani » qui ont toujours réussi à me faire éclater de rire. Je leurs souhaite une carrière scientifique pleine de succès.

A mes plus chères Wissem, Samar, Selma, Zineb, Wafa et Amel qui ont toujours m'encouragée et qui m'ont aidée vraiment à surmonter les moments les plus difficiles.

Ainsi qu'aux deux familles : Ramlia & Guernine

Et à tous ceux que j'aime

Imene Arbaoui

Remerciement

En premier, je remercie Dieu pour m'avoir donné la patience et le courage durant ces années d'étude. Merci Dieu

Je tiens d'abord à remercier Dr. Mourad Daoudi pour avoir dirigé ce mémoire.

J'adresse également ma gratitude à l'ensemble des membres du Jury d'avoir accepté de juger ce travail.

J'exprime mes plus sincères remerciements aux enseignants du département de Physique de l'Université de 8 mai 1945.

En fin, je tien à remercie tous ce qui ont contribué de près ou de loin à la réalisation de ce travail et l'élaboration de ce mémoire.

Résumé :

La présente contribution porte sur une investigation purement expérimentale, de l'effet de Si sur la cinétique de précipitation des alliages Al-Mg-Si (Si), et les différents changements des propriétés microstructurales et la présence des différentes phases de la séquence de précipitation de ces alliages.

Notre étude comprend essentiellement deux parties ; la première partie est de faire la caractérisation et l'étude microstructurale de notre alliage à son état de livraison ; différentes techniques ont été utilisées. Cette caractérisation, nous a permis de récolter des informations structurales et cristallographiques sur les phases constituant la microstructure de ce matériau. Il a été donc prouvé que la microstructure de cet alliage Al-Si-Mg contenant un excès de Si obtenu par fonderie est constituée par une structure dendritique elle-même composée par une matrice d'aluminium et des précipités de silicium de structures CFC et de paramètre de maille (paramètre) respectivement 4.046 et 5.394 Å. La deuxième partie quant à elle, a consisté à une étude dilatométrique de cet alliage. Des comparaisons avec d'autres études faites par DSC et dilatométrie ont été effectuées. Cette étude semble être prometteuse puisque aucune étude sur des alliages semblables (avec excès de Si) n'a été faite auparavant. Le peu de résultats qu'on a obtenu ici permet d'avancer le fait que le Si a un effet important sur la cinétique de précipitation et que la dilatométrie est capable de détecter les différentes transformations qui peuvent avoir lieu.

Abstract

The present contribution is about a experimental investigation, of the effect of Si on the kinetics of precipitation of the alloys Al–Mg–Si with Si excess, the different change of microstructural proprieties and the presence of different phases in the sequence precipitation of these alloys.

Our project consists two parts, the first is the characterization and microstructure study of our alloy in his delivery status; different techniques have been used. This characterization, allowed us collect the structural information and crystallographic on the phases constituting the microstructure of this material. It has been proven therefore that the microstructure of this alloy containing an excess of Si, gotten by foundry, is constituted respectively by a dendritic structure composed by a matrix of aluminum and silicon precipitate with CFC structures and lattice parameters respectively of 4.046 and 5.394 Å. The second part consisted to a dilatometric study of this alloy. Comparisons with other studies made by DSC and dilatométrie have been done. Comparisons with other studies made by DSC and dilatometry have been done. This study seems to be promising since no study on similar alloys (with excess of Si) has been made before. The few of results obtained here permits to advance the fact that the Si has an important effect on the kinetics of precipitation and that the dilatometry is capable to detect the different transformations that can take place.

Table des matières

	Introduction	1
Chapitre I	Rappel bibliographique	
	Introduction	3
	I. La séquence de précipitation de l'alliage Al-Mg-Si	4
	I.1. Alliage équilibré	4
	I.2. Alliage avec un excès de Si	6
	I.3. Influence de l'excès de Si	6
	I.4. Alliage binaire Al-Si	7
Chapitre II	Matériau utilisé et techniques expérimentales	
	II.1. Matériau utilisé	9
	II.2. Traitements thermiques	10
	II.2.1. L'homogénéisation	10
	II.3. Techniques expérimentales	11
	II.3.1. Microscope optique (MO)	11
	II.3.2. Microscopie électronique à balayage (MEB)	12
	II.3.3. Diffraction des rayons X.....	14
	II.3.4. Microscopie électronique à transmission (MET)	15
	II.3.4.1. Rappelle théorique	15
	II.3.4.2. Dépouillement des diagrammes de diffraction (clichés de diffraction)	16
	a) Indexation des taches de diffraction	17
	b) Détermination de la coupe de l'espace réciproque, représenté par le diagramme.....	18
	II.3.5. Dilatométrie	18
Chapitre III	Résultats et discussion	
	III.1. Etude microstructurale	22
	III.2. Etude de la cinétique de précipitation	31
	III.2.1. Détermination du coefficient de dilatation	32
	III.2.2. Cinétique de précipitation	32
	III.2.3. Comparaison des dilatogrammes Al-Mg-Si [équilibré -Excès de Si]	33
	Conclusion	35
	Annexe	
	Références	

Liste des figures

Figure I.3.1	8
Figure II.1.1	10
Figure II.2.1	11
Figure II.2.2	11
Figure. II.3.4	19
Figure. II.3.5	21
Figure. III.1	22
Figure. III.2	23
Figure. III.3	24
Figure. III.4	25
Figure. III.5	26
Figure. III.6	28
Figure. III.7	29
Figure. III.8	31
Figure. III.9	32
Figure. III.10	33
Figure. III.11	33

Liste des tableaux

Tableau. II.1	9
Tableau. III.1	27
Tableau. III.2	27
Tableau. III.3	30

Liste des équations

Equation I.1	7
Equation II.3.1	15
Equation II.3.2	17
Equation II.3.3	17
Equation II.3.4	18
Equation II.3.5	18
Equation II.3.6	18
Equation II.3.7	20
Equation II.3.8	20
Equation II.3.9	20
Equation II.3.10	21
Equation II.3.11	21

« Entre ce que je pense

Ce que je veux dire,

Ce que je crois dire,

Ce que je dis,

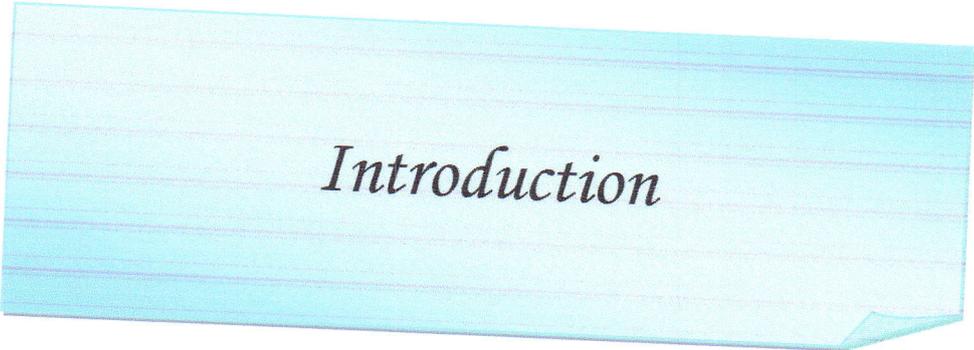
Ce que vous voulez entendre,

Ce que vous croyez comprendre,

Et ce que vous voulez comprendre,

Et ce que vous comprenez,

Il ya au moins neuf possibilités de ne pas
s'entendre »



Introduction

Introduction

Les matériaux ont de tout temps défini le niveau de développement de notre civilisation. L'utilisation des matériaux est tributaire non seulement disponible, mais aussi de leur coût, de leur facilité de leur mise en forme et compatibilité avec l'environnement (par l'intermédiaire de leurs propriétés mécaniques et chimiques).

Aujourd'hui, les matériaux jouent un rôle déterminant dans toutes les mutations technologiques, la plupart des cas, les métaux sont utilisés sous forme d'alliages dont les propriétés mécaniques dépendent de la microstructure déterminée par les caractéristiques des grains et des particules (nature, composition et arrangement atomique, quantité relative, morphologie et taille de grains, disposition et orientation ...) la microstructure reflète l'état de l'alliage et joue un rôle essentiel dans le comportement des matériaux induit des changements importants dans leurs propriétés. De ce fait, ce phénomène doit être absolument maîtrisé si on veut de ces matériaux les propriétés désirables.

Le développement de nouveaux alliages à base d'aluminium et d'éléments légers d'actualité Al-Mg-Si, a permis leur utilisation dans l'industrie. Leur utilisation est répandue dans divers secteurs d'activités tels que l'industrie aéronautique ou automobile. C'est pour une meilleure compréhension des transformations de phase de ce type d'alliage que le thème de ce mémoire 'L'effet du silicium sur la cinétique de précipitation des alliages Al-Mg-Si'. La majorité des transformations de phase qui se produisent à l'état solide ont lieu par diffusion, entre autre, nous trouvons le cas de précipitation sous l'effet de l'excès de silicium.

L'addition du silicium aux alliages Al-Mg-Si s'accompagne par des modifications importantes de microstructures qui influent sur leurs propriétés mécaniques.

Dans notre travail nous intéressons à l'étude de l'évolution microstructurale et l'évolution de la cinétique de précipitation.

Pour la caractérisation de notre d'alliages et l'étude de sa microstructure à l'état de livraison, des différentes techniques nous permettent d'aller tout doucement vers la découverte de notre matériau. Le microscope optique (MO) permet l'observation globale de la microstructure avec un faible grossissement (morphologie, taille, ...etc.). Le microscope électronique à balayage (MEB) permet de voir un peu plus clair (grossissement plus important), nous permet aussi de faire une analyse en rayons X pour voir la composition des phases observée. Les plus petits détails que le (MEB) ne peut révéler le (MET) peut les maîtriser en valeur de plus il permet de donner des informations structurales et cristallographiques des phases constituant la microstructure. La DRX permet de donner des informations structurales et cristallographiques de la microstructure.

Les alliages Al-Mg-Si (Si) font partie de la série d'alliages d'aluminium 6XXX qui sont les alliages à durcissement par précipitation. Ces alliages possèdent des propriétés thermodynamiques intéressantes. En effet ils présentent de bonnes propriétés mécaniques à hautes températures. Ces derniers sont obtenus après homogénéisation et trempe.

Introduction

Pour étudier l'évolution de la cinétique de précipitation après homogénéisation, notre alliage va subir une analyse dilatométrique qui caractérisera le comportement thermique de notre matériau.

Dans ce mémoire nous nous intéressons à un alliage Al-Si-Mg contenant un excès de Si. C'est un alliage industriel, que nous avons obtenu après fusion. La cinétique de cette famille d'alliages a été largement étudiée par DSC, mais rarement par dilatométrie.

La dilatométrie, est une technique réservée essentiellement aux aciers, alors que pour les alliages légers, les scientifiques préfèrent la DSC. Vu que cette dernière présente une sensibilité plus importante et une fiabilité assurée. La complexité réside dans le fait que pour les alliages légers tel que les alliages de la série 6XXX, la cinétique de précipitation passe par des phases métastables. En DSC le signal thermique de ces phases métastables est facilement discernable, alors qu'en dilatométrie se n'est pas du tout évident.

Toutefois, une étude par dilatométrie a été quand même initiée sur un alliage contenant très peu de silicium. Cette étude qui a fait l'objet d'un mémoire de master de physique à l'université de Guelma a débouché aussi sur un article scientifique qui est en cours de publication [Chihoui]. Cet étude a permis de mettre en évidence un simple protocole pour isoler le signal dilatométrique des phases métastables. Ces résultats ont été encourageants car ils étaient en concordances avec ceux obtenus par DSC sur le même alliage [5].

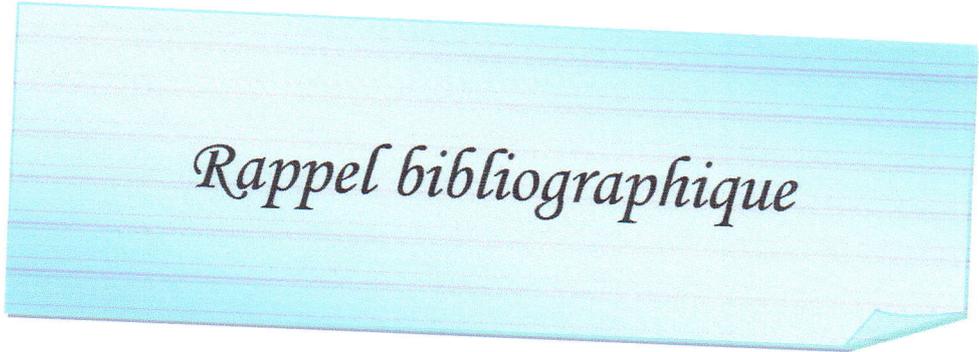
Et c'est dans cette voie, naturelle, que nous nous sommes intéressé dans ce mémoire à cet alliage contenant un excès de Si. Une analyse dilatométrique complète nous permettra de déterminer le signal de chaque phase en présence et comparer ces résultats à ceux obtenus pour le même alliage ne contenant que très peu de Si. Les résultats nous permettront de voir l'effet de cet excès de Si sur la cinétique de précipitation. Malheureusement, cette partie du travail n'a pas été achevée par manque de temps et suite à une panne subite du dilatomètre. Des résultats non négligeables ont été quand même obtenus et qui seront présentés dans ce mémoire.

Ce mémoire est présenté de manière suivante :

- ❖ Le premier chapitre (Rappel bibliographique) est consacré à un rappel sur, la cinétique de précipitation dans des alliages de la série 6XXX, ainsi que les différentes phases qui peuvent apparaître au cours d'un chauffage.
- ❖ Le deuxième chapitre décrit la procédure expérimentale et les techniques de caractérisations.
- ❖ Le troisième chapitre concerne la présentation des différents résultats et leurs discussions.

Et nous terminerons par une conclusion qui explicitera des perspectives.

Chapitre I



Rappel bibliographique

Chapitre I

Introduction

L'aluminium est peu utilisé à l'état pur, sauf en miroiterie, du fait de sa faible résistance mécanique (au maximum 20 kg/mm^2), 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 [1, 2].

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.

Dans ses principales applications, l'aluminium est utilisé sous forme d'alliages, ce qui augmente sa résistance mécanique, mais souvent au détriment d'autres propriétés telle que la ductilité. Pour trouver le meilleur compromis entre les propriétés pour un usage donné, les métallurgistes agissent sur la composition de l'alliage, mais aussi sur les traitements thermiques ou thermo- mécaniques [3].

On distingue deux grandes classes d'alliages d'aluminium:

- ✓ *Les alliages corroyés*: produits obtenus par des procédés de déformation plastique à chaud ou à froid tels que le filage, le laminage, l'extrusion, etc...
- ✓ *Les alliages de moulage*: obtenus par fonderie.

Dans notre travail nous nous intéressons à la série 6XXX qui contient des additions de magnésium et de silicium et parfois un peu de cuivre, de chrome, de fer et /ou de manganèse. Les alliages obtenues, présente de grands niveaux de durcissement grâce à la précipitation des phases métastables et la phase Mg_2Si . Leurs propriétés mécaniques sont proches de certains acers.

Chapitre I

Ces alliages d'aluminium ont un bon comportement à l'extrusion, bonne soudabilité et une bonne résistance à la corrosion (pour certains alliages même dans l'atmosphère marine). Ils sont bien appropriés à la plupart des processus de traitement de surface (anodisant, chromant, phosphatant, etc...) et ils ont des propriétés de résistance au dessus de 100°C. 80 % de la production annuelle mondiale des alliages extrudés sont des alliages de la série 6XXX [4]. Ces alliages sont connus pour avoir des séquences de précipitation.

I. La séquence de précipitation de l'alliage Al-Mg-Si

La séquence de précipitation de ces alliages a été largement étudiée [5]. Si ces alliages subissent un chauffage, différentes phases métastables se relayeront pour aboutir à la phase stable β (Mg_2Si) [5, 6]. La précipitation dans des alliages Al-Mg-Si et l'effet de durcissement dépend infiniment du rapport Mg/Si [7]. Justement, ces alliages sont distingués en fonction de ce rapport, et on a les alliages dit d'équilibre (ou équilibrés) et les alliages à excès de silicium.

I.1. Alliage équilibré

Le rapport Mg/Si pour ces alliages est proche de 1,73 [8]. Leurs séquences de précipitation est généralement la suivante :

α (SSS) \rightarrow Amas de solutés \rightarrow GP \rightarrow β'' en aiguilles \rightarrow β' en batonnets \rightarrow β (Mg_2Si) en plaquettes

- (SSS) : Solution solide sursaturée de la matrice α -aluminium de structure CFC
- GP : D'après Matsuda et al. [9], les zones GP sont un arrangement alternatif de colonnes d'atomes de Mg et de Si le long de la direction $\langle 100 \rangle_{Al}$, avec des proportions telles que Mg/Si = 1. Elles se présentent sous forme de disque d'épaisseur 2.5 nm et de longueur autour de 30 nm.

Chapitre I

- β'' : Les précipités de la phase β'' sont cohérents avec la matrice et sont considérés comme étant la phase qui joue un rôle majeure dans le durcissement structural [10]. Ils sont sous forme d'aiguilles alignées suivant $\langle 100 \rangle_{Al}$ [11, 12] qui peuvent atteindre quelques dizaines de nm. La composition stœchiométrique la plus consensuelle est la suivante : Mg_5Si_6 [13,14]. La structure cristalline de la phase la plus admise de β'' est monoclinique [14]. Mais des divergences sur les paramètres de mailles sont exprimées [15, 11, 16].
- ✓ Monoclinique bc, $a = 1.534 \text{ nm}$, $c = 0.689 \text{ nm}$, $b = 0.405 \text{ nm}$, $\beta = 106^\circ$, Edwards
 - ✓ Monoclinique $a = 0.30 \text{ nm}$, $c = 0.33 \text{ nm}$, $b = 0.40 \text{ nm}$, $\beta = 71^\circ$, Lynch
 - ✓ Monoclinique C2/m $a = 1.516 \text{ nm}$, $c = 0.674 \text{ nm}$, $b = 0.405 \text{ nm}$, $\beta : 105.3^\circ$, Andersen
 - ✓ Monoclinique (P2/m) $a = 0,770 \text{ nm}$, $c = 0,203 \text{ nm}$, $b = 0,670$, $\gamma = 75^\circ$, Edwards
- β' : Cette dernière phase est suivie par la précipitation de la phase β' , qui est semi-cohérente avec la matrice et moins durcissante. Elle est sous forme de bâtonnets. On admet généralement que sa structure est hexagonale avec les paramètres suivants $a = 7.05 \text{ \AA}$ et $c = 4.05 \text{ \AA}$ et une relation d'orientation $(001)_{\beta'} // (100)_{Al}$ [17, 18-21]. D'autres auteurs admettent la structure hexagonale mais avec des paramètres différents $a = 7.15 \text{ \AA}$ et $c = 12.15 \text{ \AA}$ et un groupe spatiale $P6_3/m$ [22]. Parmi les formules stœchiométriques proposées à cette phase, on peut citer Mg_9Si_5 [22]. Saga et al. [23] admettent qu'en plus d'une structure hexagonale, la phase β' peut avoir aussi une structure orthorhombique avec les paramètres $a = 6.72 \pm 0.03 \text{ \AA}$, $b = 7.87 \pm 0.03 \text{ \AA}$ et $c = 4.05 \text{ \AA}$, et une relation d'orientation $(100)_{\beta'} // (3\bar{1}0)_{Al}$. Le plan d'habitat de cette phase est du type $\{001\}_{Al}$
- ✓ $a = 0,705 \text{ nm}$ — $c = 0,405 \text{ nm}$, rapport Si/Mg : 1.73, A.Perovic et al
 - ✓ $a = b = 0,407 \text{ nm}$, $c = 0,405 \text{ nm}$, rapport Si/Mg : 1.54, Adersen
- β : Cette séquence de précipitation est terminée par la phase d'équilibre β , qui est sous forme de platelettes de plan d'habitat $\{100\}_{Al}$. Sa structure est de type CFC (anti-fluorite CaF_2), avec un paramètre de maille $a = 6.39 \text{ \AA}$ [18, 24].

I.2. Alliage avec un excès de Si

Les alliages d'aluminium de la série 6xxx peuvent contenir un excès de silicium en plus de la quantité nécessaire pour former Mg_2Si . L'excès de Si ne modifie pas ; les paramètres de la séquence de précipitation, les structures et les paramètres de maille des différentes phases métastables, mais favorise plutôt la formation d'autres phases qui ne contribuent pas de manière significative au durcissement [25].

Des études ont montrées que la décomposition de la solution solide sursaturée dans les alliages Al-Mg-Si avec un excès de silicium entraîne des modifications dans la composition et la densité de la phase durcissante métastable β'' principalement [25, 26]. L'excès de Si semble favoriser la formation de phases additionnelles au cours des derniers stades de vieillissement [27-29], mais ne contribue pas de manière significative au durcissement [30]. Le rapport Mg / Si dans la phase β'' pour un alliage équilibré est proche de 1.74:1, alors que pour les alliages en excès de silicium il est d'environ 1:1 [31] et même plus bas [32, 33].

Les zones GP (Mg, Si) et la phase β'' sont des durcissant efficaces et participent aux processus de vieillissement naturel et artificiel [34].

Cette modification de la phase β'' peut avoir des conséquences sur la phase β' . On peut observer des variations dans le domaine d'existence dans cette dernière. Les températures; initiale T_i , du pic T_p et finale T_f seront décalées [31].

I.3. Influence de l'excès de Si

Pour les alliages qui contiennent un excès de Si, la quantité de Mg_2Si peut être trouvée par la relation [35] ; $\% Mg_2Si = 1.578 \times \% Mg(\% \text{ massique})$

Le système pseudo binaire, présente l'eutectoïde à 595°C et un maximum de solubilité solide de 1.85 % massique en Mg_2Si . L'excès de Si dans l'alliage Al-Si-Mg peut être calculé

Chapitre I

en utilisant la relation reportée par Dorward [36] et Gupta et al. [30], dans laquelle Daoudi et al [5] ont rajouté le Mn qui a un effet similaire au Fe [30] ;

$$\text{Excess Si} = (\text{wt\% in alloy}) - \left[\left(\frac{\text{wt\% Mg in alloy}}{1.73} \right) \right] - \left[\left(\frac{\text{wt\% Fe in alloy}}{4} \right) - \left(\frac{\text{wt\% Mn in alloy}}{4} \right) \right] \quad (I.1)$$

Matsuda et al [27, 28] ont montrés que la phase B' est l'une des phases métastables typique présente dans les alliages Al-Si-Mg contenant un excès de Si.

Si l'alliage contient un excès de Si en plus de la quantité nécessaire pour former la phase β (Mg_2Si), on enregistre la formation d'autres phases telles que les phases, B' (Type C), Type A [37], Type B [37, 38]. Ces deux dernières sont aussi appelées respectivement U_1 et U_2 .

D'autres phases métastables (M et type-C) similaires à Q', et possédant les mêmes ; système cristallin, relations d'orientations et forme en lattes que Q, peuvent être formées dans les alliages ternaires Al-Si-Mg ne contenant pas de Cu et renfermant un excès de Si [39].

I.3. Alliage binaire Al-Si

Le diagramme Aluminium-Silicium forme un système eutectique où les deux phases en équilibre sont l'aluminium et le silicium.

La température eutectique est égale à 595 °C et sa composition est de l'ordre de 12,5 % Si.

Le refroidissement lent d'un alliage aluminium silicium depuis la phase liquide conduit à des microstructures différentes selon que la teneur en silicium soit inférieure à la composition eutectique (alliages hypoeutectiques) ou supérieure à celle ci (hypereutectiques)

A partir de l'état liquide, la température de l'alliage diminue jusqu'à atteindre la température de liquidus (température à laquelle apparaît le premier cristal). A cette température les premiers cristaux de solution solide apparaissent. Au fur et à mesure que la température du mélange semi-solide (qui comporte donc les deux phases solide et liquide)

Chapitre I

diminue, la composition du mélange évolue. (Fig. I.1) représente le diagramme de phase qui situe l'évolution de la solidification qui passe par les deux frontières de phase.

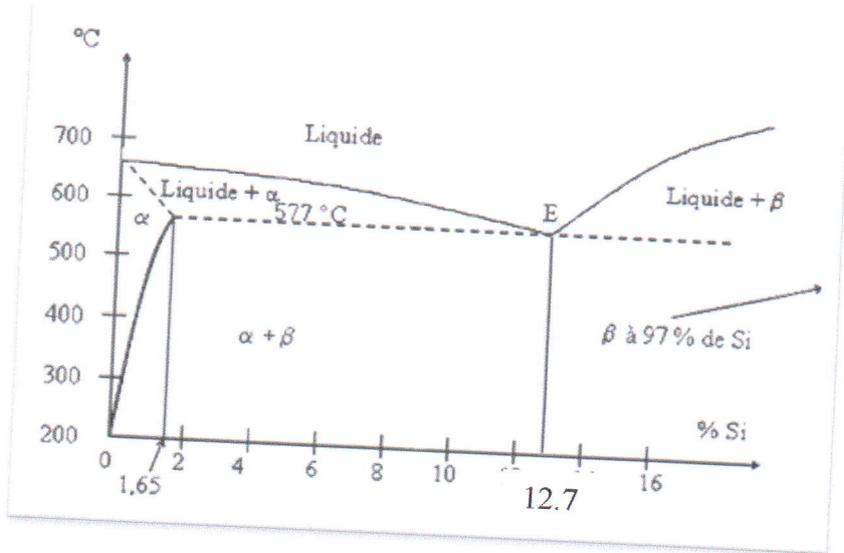


Figure. I.3.1 :
Diagramme de phase
Al-Si

Cette évolution est la première étape de la solidification, la croissance de la phase solide se fait par croissance des cristaux d'aluminium appelés dendrites. Lors de ce premier mode de changement de phase, il y a une contraction volumique (évolution de la masse volumique). Cette étape se poursuit jusqu'à la température eutectique. A cette température la fraction liquide restante se précipite sous une forme solide appelée eutectique. C'est lors de cette étape qu'apparaissent les microporosités de retrait. En effet, dans cette deuxième phase de solidification le changement de phase se fait à température constante : ce deuxième changement de phase est assimilable à un changement de phase de corps pur.

Chapitre II

Matériau utilisé
Et
Techniques expérimentales

Chapitre II

La caractérisation d'alliages comme le nôtre, des techniques expérimentales d'observations et d'analyses sont nécessaires. Parmi ces techniques on cite la microscopie optique (MO), la microscopie électronique à balayage (MEB), la microscopie électronique en transmission (MET), la diffraction des rayons X (DRX) et la dilatométrie. Le MO permet l'observation globale de la microstructure (morphologie, taille, ... etc.). Le MEB permet quant à elle d'affiner cette observation en plus de l'analyse de la composition des phases observée. Les plus petits détails que le MEB ne peut révéler le MET peut les maitre en valeur de plus il permet de donner des informations structurales et cristallographique des phases constituants la microstructure. La DRX permet de donner des informations structurales et cristallographiques de la microstructure. Ces techniques nous ont permis d'étudier la microstructure de notre matériau à l'état de livraison. La dilatométrie permet de suivre la cinétique des alliages et les différents intervalles de températures d'existences des phases apparaissant dans l'alliage au cours d'un chauffage. Nous partons avec l'idée principale qu'il faut se consacrer à la précipitation de notre alliage.

II.1. Matériau utilisé

Dans cette étude, nous avons utilisé un alliage d'aluminium de la série 6000, dont la composition chimique est présentée dans le tableau II.1. L'alliage a été réceptionné à l'état moulé.

Tableau II.1 : Composition chimique de l'alliage (en % massique)

	Si	Mg	Fe	Cu	Zn	Mn	Ni	Pb	Sn	Ti
En	6.5-	0.25-	≤0.30	≤0.10	≤0.10	≤0.20	≤0.10	≤0.10	≤0.05	≤0.20
Massique%	7.5	040								

D'après cette composition chimique, on peut voir que notre alliage contient un excès de silicium qui peut être estimé par la formule (I.1). $\bar{a} 6,15$ en masse .

Chapitre II

L'alliage que nous avons utilisé a été usiné sous une forme cylindrique de diamètre 4 mm, pour être par la suite découpé avec une micro-tronçonneuse suivant des longueurs qui approximent les 23 mm.

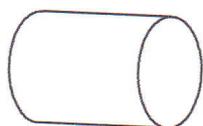


Figure II.1.1 : La forme de l'échantillon utilisé

II.2. Traitements thermiques

Les traitements thermiques ont pour but de modifier la nature et la répartition des constituants d'un matériau. Selon le domaine d'application du matériau les traitements peuvent améliorer ou détériorer les propriétés mécaniques de ce dernier. En général, les traitements thermiques utilisés en métallurgie sont : la trempe, le revenu, le recuit, le vieillissement et l'homogénéisation.

Les échantillons qui vont subir la dilatométrie doivent au préalable subir un traitement d'homogénéisation.

On applique ce dernier pour obtenir des analyses et des résultats exacts de la caractérisation d'un matériau à leur état stable ceux-ci nécessitent de supprimer les phases qui sont déjà précipités et transformés dans notre alliage alors il faut que nous le rendre homogène.

II.2.1. L'homogénéisation

Dans ce présent travail un traitement thermique d'homogénéisation a été effectué sur un échantillon qui par la suite a été analysé par dilatométrie. Cette homogénéisation a consisté en un chauffage à 540 °C pendant une heure. Le maintien à cette température permet la mise en solution des éléments d'alliage par leur diffusion d'une manière homogène dans tout l'échantillon. Ce traitement conduira aussi à augmenter la concentration des lacunes et d'homogénéiser la composition des éléments. L'homogénéisation a été suivie d'une trempe à l'eau, pour figer la microstructure et obtenir une solution solide sursaturée.

Chapitre II

Ce traitement a été réalisé dans le laboratoire LM2S de Annaba, grâce à un four tubulaire (fig. II.2.2)

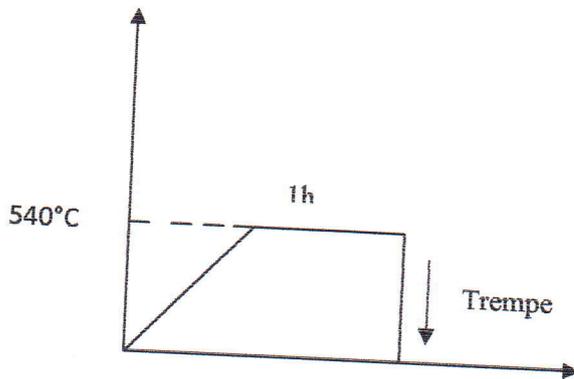


Figure II.2.1 : Cycle du traitement thermique.



Figure II.2.2 : Four (tubulaire) qui a servi au traitement thermique.

II.3. Techniques expérimentales

II.3.1. Microscopie optique (MO)

L'étude métallographique permet de donner une idée sur la structure de l'échantillon étudié (la morphologie globale avec une faible grossissement).

Le microscope optique, est un appareil optique muni de lentilles qui permettent le grossissement de l'image pour déterminer la microstructure du matériau étudié (sert à déterminer ou observer la microstructure de l'échantillon ; taille et forme des grains,...),

Chapitre II

ainsi que l'évolution microstructurale des échantillons ayant subi des traitements thermiques.

Le principe de microscope optique est basé sur l'augmentation du pouvoir séparateur de l'œil. Il permet l'observation par réflexion d'une surface métallique parfaitement plane, obtenue par polissage mécanique.

La métallographie optique, par grossissement permet d'appréhender la morphologie des grains et des précipités avec leurs tailles et formes. Pour une meilleure observation donc un meilleur contraste, nous faisons subir à l'échantillon poli une attaque chimique. Cette dernière met en valeur les contours constituant la microstructure et certaines attaques colorent préférentiellement et différemment certains précipités et certains grains.

Cette présente étude métallographique a été menée grâce à un microscope optique de marque Reichert, équipé d'objectifs permettant un grossissement pouvant aller jusqu'à 1000 fois. Avant observation, les échantillons ont subi un polissage mécanique avec du papier abrasif de différentes granulométries (500, 800, 1000, 1200 et 2400), suivi d'un polissage à la pate diamantée de 1 μm . La finition a été obtenue par un polissage électrolytique dans un bain composé de 18 % d'acide perchlorique, 18 % de glycérol et 64 % d'éthanol, sous une tension de 20 V et à la température ambiante.

Afin de les différentes phases contenues dans notre alliage une attaque chimique a été utilisée. Cette solution appelée solution de Weck est composée de 4 g de permanganate de potassium (KMnO_4) et 1 g hydroxyde de sodium (NaOH), dilués dans 100 ml d'eau distillée. Cette solution colore différemment la matrice et les autres phases présentes.

II.3.2. Microscopie électronique à balayage (MEB)

La microscopie électronique à balayage (MEB) est une technique de microscopie basée sur le principe des interactions électrons-matière. Un faisceau d'électrons balaie la surface de l'échantillon à analyser qui, en réponse, réémet certaines particules. Lorsque un faisceau d'électrons entre en collision avec un matériau solide, des électrons accélérés pénètrent à l'intérieur et des phénomènes physiques bien connus se produisent comme : les d'électrons secondaires, les électrons rétrodiffusés ou les rayons X. Ces interactions peuvent être

Chapitre II

utilisées pour former une image si l'on possède le détecteur qui permettra de capter le résultat de l'interaction et obtenir des informations (morphologiques, structurales,...) sur l'échantillon étudié. Différents détecteurs permettent d'analyser ces particules et de reconstruire une image de la surface.

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

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

Le détecteur d'électrons rétrodiffusés est généralement placé à la verticale de l'échantillon dans l'axe du faisceau (afin de récolter le maximum d'électrons rétrodiffusés) et donc la vision du relief ne sera pas très bonne avec ce détecteur. Par contre les éléments chimiques possédant un numéro atomique élevé (charge positive du noyau plus grand) produisent d'avantage d'électrons rétrodiffusés que ceux ayant un numéro atomique faible. Les zones de l'échantillon avec numéro atomique élevé seront donc plus blanches que celles ayant un numéro atomique faible. On appelle cela le contraste de phase. Cette particularité est fortement appréciée pour juger de l'homogénéité chimique d'un échantillon avant par exemple de l'analyser.

Lorsqu'un faisceau d'électrons tombe sur l'échantillon à analyser, un électron d'une couche interne est éjecté. Ce dernier est remplacé par un électron d'une couche supérieure et par conséquent un rayon X d'énergie correspondante à la différence d'énergie entre les deux couches est émis et il est lui-même remplacé. Et un autre photon est émis, alors chaque un de ces rayons X porte des informations de l'atome qui le produit. Le microscope possède un

Chapitre II

détecteur de rayons X qui permet de récolter les photons produits par le faisceau d'électron primaire. La zone analysée sera donc celle qui est parcourue par le faisceau. On est en mode balayage (formation d'une image) alors l'analyse sera celle de toute la surface de l'image. Il est possible de stopper le balayage et donc d'analyser en un point de l'image de notre choix. C'est de cette manière que nous pourrions obtenir une information sur la composition chimique du matériau, par ce qu'on appelle généralement le spectre d'émission X, le profil de concentration ou la cartographie X.

La cartographie est un outil qui peut s'avérer très utile car elle permet d'appréhender d'un seul coup d'œil la distribution d'un élément donné ou les corrélations entre plusieurs éléments. Il est possible de stocker le spectre de chaque point de l'image pour pouvoir y revenir ensuite et faire par exemple des quantifications.

Dans ce travail, un MEB de marque Philips XL 30S. Cet appareil est équipé d'un spectromètre à rayons X permettant de faire des analyses qualitatives et quantitative de la composition chimique des échantillons analysés. Les différentes microanalyses ont été obtenues en mode très long, des acquisitions qui ont pris douze heures en moyenne.

II.3.3. Diffraction des rayons X

La diffraction de rayons X (DRX) est une technique fondamentale pour l'étude des matériaux cristallisés. Elle permet de déterminer la nature du corps étudié et sa structure (les distances interatomiques et l'arrangement des atomes dans les réseaux cristallins). Comme les rayons X sont diffractés de façon différente par les constituants du réseau suivant la construction de ce dernier, l'irradiation de la matière par rayons X permet de connaître sa nature cristallographique. L'étude des structures cristallines est effectuée avec des échantillons monocristallins, par contre pour la caractérisation des matériaux on utilise plus souvent des échantillons polycristallins ou des poudres. Cette technique permet de confirmer l'obtention de transformation de phase ou de précipitation après traitement thermique. La détermination des distances interréticulaires d_{hkl} caractéristiques du matériau permet l'identification des phases et les structures cristallines.

En faisant interagir sous un angle θ , avec un cristal qui peut être composé d'une famille des plans atomiques parallèles situés à la même distance réticulaire.

Chapitre II

Le rayonnement diffracté par un cristal ayant subi un faisceau parallèle de rayons X monochromatique de longueur d'onde λ , doit vérifier la condition de Bragg :

$$2d_{hkl} \sin \theta = n\lambda \quad (\text{II.3.1})$$

Où ; d_{hkl} : distance interréticulaire

n : ordre de la diffraction

λ : longueur d'onde du faisceau de rayons

θ : angle d'incidence des rayons X (angle de Bragg).

Cette relation est fondamentale dans toutes les techniques de diffraction.

La diffractométrie donne des pics de diffraction, ou encore un diffractogramme. Le diffractogramme obtenu est composé d'une série de pics avec des maxima à des intensités variables, correspondant à l'angle de diffraction.

La caractéristique fondamentale de la diffractométrie est qu'elle donne directement une information numérique sur l'intensité de diffraction. Le diffractomètre donne donc deux grandeurs pour chaque pic l'angle de diffraction 2θ du pic et l'intensité de diffraction $I(2\theta)$. La première permet de déterminer la distance interréticulaire de diffraction de la famille de plans responsable de l'apparition de ce pic, par application directe de la relation de Bragg.

Le diffractomètre utilisé est de marque Brukker D500 siemens équipé d'un goniomètre à géométrie Bragg-Brentano. La source des rayons X, est un tube muni d'une anode de cobalt et alimenté d'un courant de 34 KV pour une intensité de 21 mA. La longueur d'onde utilisée est donc $\lambda_{Co} = 1.788965 \text{ \AA}$. Le temps d'acquisition du diffractogramme obtenu est de 3 heures.

II.3.4. Microscopie électronique à transmission (M.E.T)

II.3.4.1 Rappels théoriques

Le microscope électronique à transmission est un instrument particulièrement important pour l'étude structurale locale des matériaux. Il fournit en particulier des informations sur les défauts, déformations, limites des grains, précipités et formes de nouvelles phases aux

Chapitre II

premiers stades de leurs formations. Dans la microscopie électronique à transmission, seuls les électrons traversant l'échantillon sont analysés. On distingue à la sortie de l'échantillon trois types d'électrons (les électrons transmis, les électrons diffusés élastiquement, les électrons diffusés inélastiquement).

- ✓ Les électrons transmis n'ayant pas interagi avec l'échantillon.
- ✓ Les électrons diffusés élastiquement (sans perte d'énergie) résultant de l'interaction des électrons incidents avec les atomes de l'échantillon. Dans le cas où ce dernier est cristallin, les électrons sont diffractés par les plans réticulaires selon la loi de Bragg.
- ✓ les électrons diffusés inélastiquement (avec perte d'énergie) provenant de l'interaction des électrons incidents avec les cortèges électroniques des atomes de l'échantillon.

La distinction entre les électrons transmis et les électrons diffusés permet de créer le contraste des images en MET. Il est à noter que la diffusion inélastique des électrons est essentiellement concentrée autour de la direction incidente, alors que la diffusion élastique est beaucoup plus étalée.

Le M.E.T utilise comme rayonnement des électrons et un système de lentilles magnétiques permet de focaliser le rayonnement des électrons sur un échantillon extrêmement fin. L'image(ou le cliché de diffraction) obtenue peut être vue sur un écran fluorescent ou enregistrée sur un film photographique.

La diffraction électronique permet l'identification de phases et la détermination de relations d'orientation entre plusieurs cristaux. Cette technique présente un avantage majeur par rapport aux techniques de diffraction des rayons X et des neutrons. Elle permet d'obtenir des clichés de diffraction, à une échelle microscopique, en corrélation avec l'image.

II.3.4.2. Dépouillement des diagrammes de diffractions (Clichés de diffraction)

Le diagramme de diffraction électronique est un ensemble de taches de diffraction, ces taches de diffraction sont les projections centrales des nœuds de l'espace réciproque contenus dans un plan passant par l'origine de cet espace et perpendiculaire à la direction de

Chapitre II

propagation des électrons. Un diagramme de diffraction électronique n'est donc rien d'autre que la projection centrale d'une coupe plane de l'espace réciproque [40].

La tache centrale, en général la plus intense, est l'intersection du faisceau transmis et de la plaque photographique. Elle est choisie comme origine et est indexée (0 0 0). Les autres taches sont à l'intersection des faisceaux diffractés et de la plaque photographique. Chacune de ces taches représente un nœud de l'espace réciproque.

a) Indexation des taches de diffraction

On cherche pour chaque tache les coordonnées (h, k, l) du nœud de l'espace réciproque qui lui sont associés. (h, k, l) sont également les indices de Miller du plan diffractant correspondant à une tache [40].

La formule fondamentale qui permet de dépouiller les diagrammes de diffractions observés expérimentalement est :

$$R_{hkl} \cdot d_{hkl} = \lambda L \quad \longrightarrow \quad d_{hkl} = \frac{\lambda L}{R_{hkl}} \quad (\text{II.3.2})$$

R_{hkl} : La distance mesurée en mm sur la plaque photographique entre la tache centrale du diagramme et la tache de diffraction associée au nœud (h,k,l) de l'espace réciproque.

d_{hkl} : est la distance interréticulaire de la famille de plan (h,k,l) .

λ : est la longueur d'onde des électrons du canon dans notre cas $\lambda = 0.0034 \text{ \AA}$.

L : dépend de la distance focale de l'objectif et du grandissement du système de grandissement (condition d'utilisation du microscope électronique). C'est la longueur de caméra, une constante qui dépend du microscope.

Après avoir calculé les distances interréticulaires, on cherche les (hkl) :

$$\frac{d_2}{d_1} = \frac{\sqrt{N_1}}{\sqrt{N_2}} \quad \longrightarrow \quad \left(\frac{d_2}{d_1}\right)^2 = \frac{N_2}{N_1} \quad (\text{II.3.3})$$

Chapitre II

De cela on pourrait déterminer les (hkl), puis on détermine les paramètres de mailles correspondant à chaque plan d'après la relation suivantes :

$$d_{hkl} = \frac{a}{\sqrt{N}} \longrightarrow a = d_{hkl} \cdot \sqrt{N} \quad (\text{II.3.4})$$

b) Détermination de la coupe de l'espace réciproque, représentée par le diagramme :

Lorsque les indices généraux (h, k, l) des taches des diagrammes ont été déterminés, il faut tenir compte du fait que ces taches correspondent à des nœuds de l'espace réciproque situés dans une coupe plane de cet espace. Soient [u, v, w] les indices de Miller du vecteur perpendiculaire à cette coupe dans le système d'axe de l'espace réciproque. Ce vecteur représente l'axe de coupe de cette zone. Ce système d'axe est bien évidemment celui du réseau réciproque puisque les nœuds de l'espace réciproque sont les nœuds du réseau réciproque de facteur de structure non nul [40]. Donc, pour une coupe d'axe de zone [u, v, w] d'un cliché de diffraction contenant les plans (h_i, k_i, l_i) on a :

$$uh_i + vk_i + wl_i = 0 \quad (\text{II.3.5})$$

Le produit scalaire est nul cela est du au fait que le faisceau électronique incident et perpendiculaire à la surface de notre alliage.

Pour ce travail un microscope électronique conventionnelle de marque Philips opérant à 120 KV à été utilisé.

D'après la relation suivante (II.3.6), on peut estimer la longueur d'onde du faisceau électronique à $\lambda = 0.0034 \text{ \AA}$ [41].

$$\lambda = \frac{1.2236}{\sqrt{V(1+0.9788 \cdot 10^{-6}V)}} \quad (\text{II.3.6})$$

II.3.5. Dilatométrie

L'analyse dilatométrique consiste à enregistrer les variations d'un échantillon en fonction de la température ou du temps. La dilatométrie différentielle consiste à amplifier la

Chapitre II

déférence de dilatation entre un échantillon que l'on étudie et un étalon dont on connaît les propriétés. Elle permet de détecter les changements de phases (transformations allotropiques, phénomène de précipitation, les points de Curie, les transformations ordre désordre des alliages). Egalement, elle permet d'étudier la variation du coefficient d'expansion thermique en fonction de la température.

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

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

Elle sert à détecter et suivre les transformations de phases par mesure des variations dimensionnelles relatives $\Delta L/L_0$ en fonction de la température.

- ❖ Si on chauffe un échantillon, la température varie, une augmentation régulière de sa longueur est détectée si on n'a pas de transformation.
- ❖ Par contre si une transformation se produit à température T , il en résulte une augmentation irrégulière de sa longueur, une anomalie apparaît sur la courbe ($\Delta L/L_0, T$).

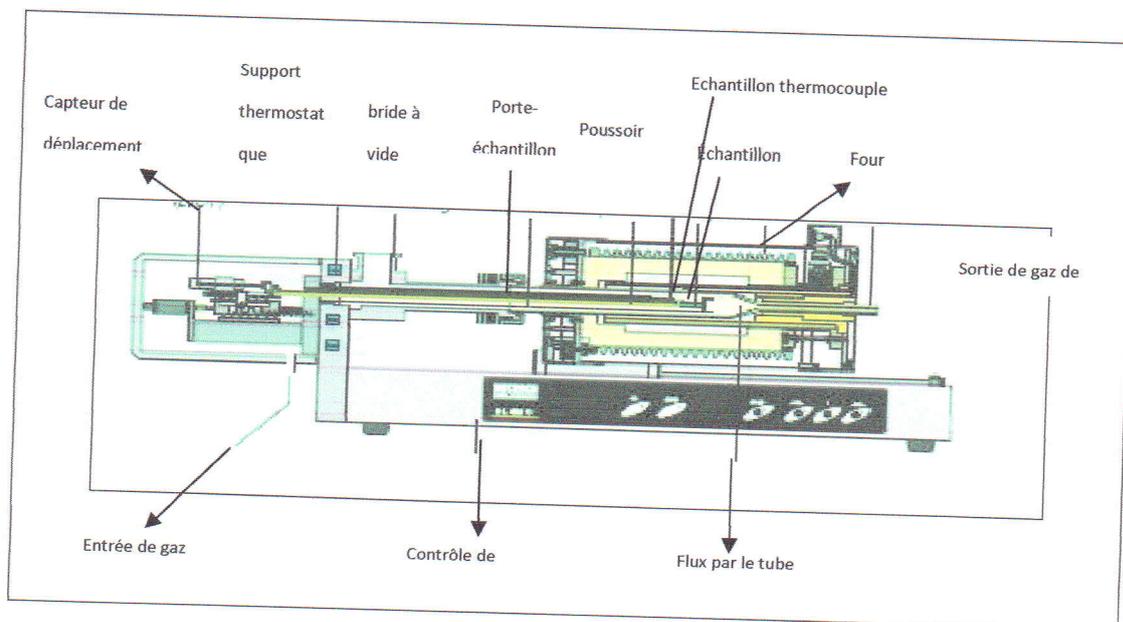


Figure. II.3.4 : Schéma du principe d'un dilatomètre

Chapitre II

Le fait de chauffer un matériau accroît son énergie interne: les atomes possèdent une énergie thermique et vibrent autour de leur position moyenne. Cette vibration dépend de la température mais aussi du potentiel créé par les atomes voisins. Les amplitudes d'oscillations des atomes augmentent et de ce fait leur inter-distance moyenne devient plus notable. Cet accroissement de leur écartement moyen est relié à la température par un facteur de proportionnalité qui est le coefficient de dilatation. Par suite, le comportement thermique d'un matériau quelconque peut être caractérisé par les valeurs que prennent les grandeurs mécaniques.

La dilatométrie permet de déterminer les températures de transformations de phase en fonction du changement de volume du matériau considéré. Si une transformation se produit à une certaine température, on constate un changement de dimensions au niveau de l'échantillon, ainsi qu'une variation du coefficient de dilatation qui se traduit par une anomalie (expansion ou contraction) sur la courbe dilatométrique.

Le coefficient de dilatation thermique α qui exprime le degré de la variation de la longueur en fonction de la température présente une propriété thermique propre à chaque matériau.

En dilatométrie, on mesure la variation de la longueur ΔL en fonction de la température de chauffage ΔT et du temps Δt . Ces deux dernières quantités sont liées à la vitesse ϕ ;

$$\Delta T = \Phi \cdot \Delta t \quad (\text{II.3.7})$$

Pour un corps pur on a :

$$\frac{\Delta l}{l_0} = \alpha \Delta T \quad (\text{II.3.8})$$

$$\text{Où} \quad \Delta l = l_T - l_0 \quad (\text{II.3.9})$$

l_T : est la longueur de l'échantillon à la température T

l_0 : est la longueur initiale de l'échantillon

α : est le coefficient de dilatation du matériau.

Chapitre II

Le coefficient de dilatation dépend de la vitesse de chauffage, on peut trouver cette dépendance, la combinaison de ces deux relations (II.3.6) et (II.3.7) nous donne :

$$\alpha = \frac{dL}{dt} \frac{1}{L_0} = \frac{dt}{dT} \frac{1}{L_0} \frac{dL}{dt} = \frac{1}{\Phi} \frac{1}{L_0} \frac{dL}{dt} \quad (\text{II.3.10})$$

Pour un alliage composé de plusieurs phases 1,2, 3, ..., qui existent simultanément on aura :

$$\frac{\Delta l}{l_0} = (\alpha_1 + \alpha_2 + \alpha_3 + \dots) \Delta T \quad (\text{II.3.11})$$

$\alpha_i = 1, 2, 3 \dots$: Les coefficients de dilatation du matériau dans la phase correspondante.

Le dilatomètre utilisé dans ce travail est de type DIL L75HS1550 (fig. II.5), dans une gamme de température allant de : 25⁰C à 1600⁰C. Les vitesses de chauffage et de refroidissement peuvent être de 0.01⁰C/min à 50⁰C/min. La résolution des mesures est $\Delta L = 8 \text{ nm}$.

Le DIL 402 C fonctionne avec un logiciel qui inclut toutes les données nécessaires pour effectuer une mesure et en évaluer les résultats. En générale, il permet aisément le traitement des courbes de dilatations $\Delta L/L_0$ en fonction du temps " t " ou de la température " T " et le coefficient d'expansion thermique.

Quant à nos essais dilatométriques, le cycle thermique imposé à nos échantillons qui sont homogénéisés consiste en un chauffage jusqu'à une température de 540⁰C, avec une vitesse 8⁰C/min.

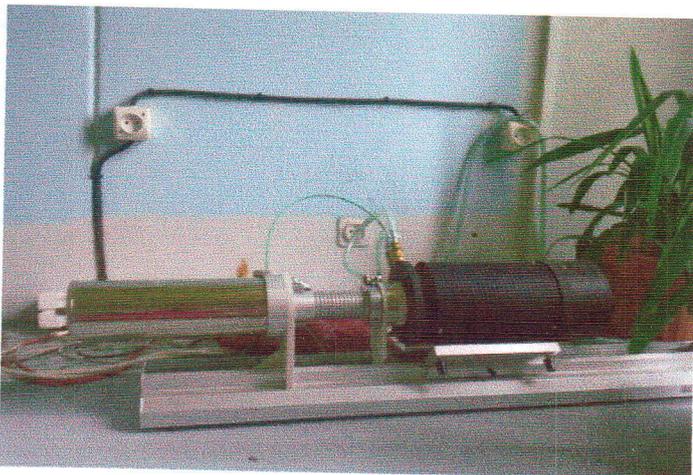


Figure. II.3.5 : Dilatomètre de type DIL L75HS1550

Chapitre III

L'observation de cet alliage au MET confirme les résultats obtenus par la diffraction des rayons X. La figure III.4, montre une matrice et des précipités que nous avons nommés "pavés". Des clichés de diffraction sur la matrice et sur les pavés ont été obtenus (fig. III.7b-d).

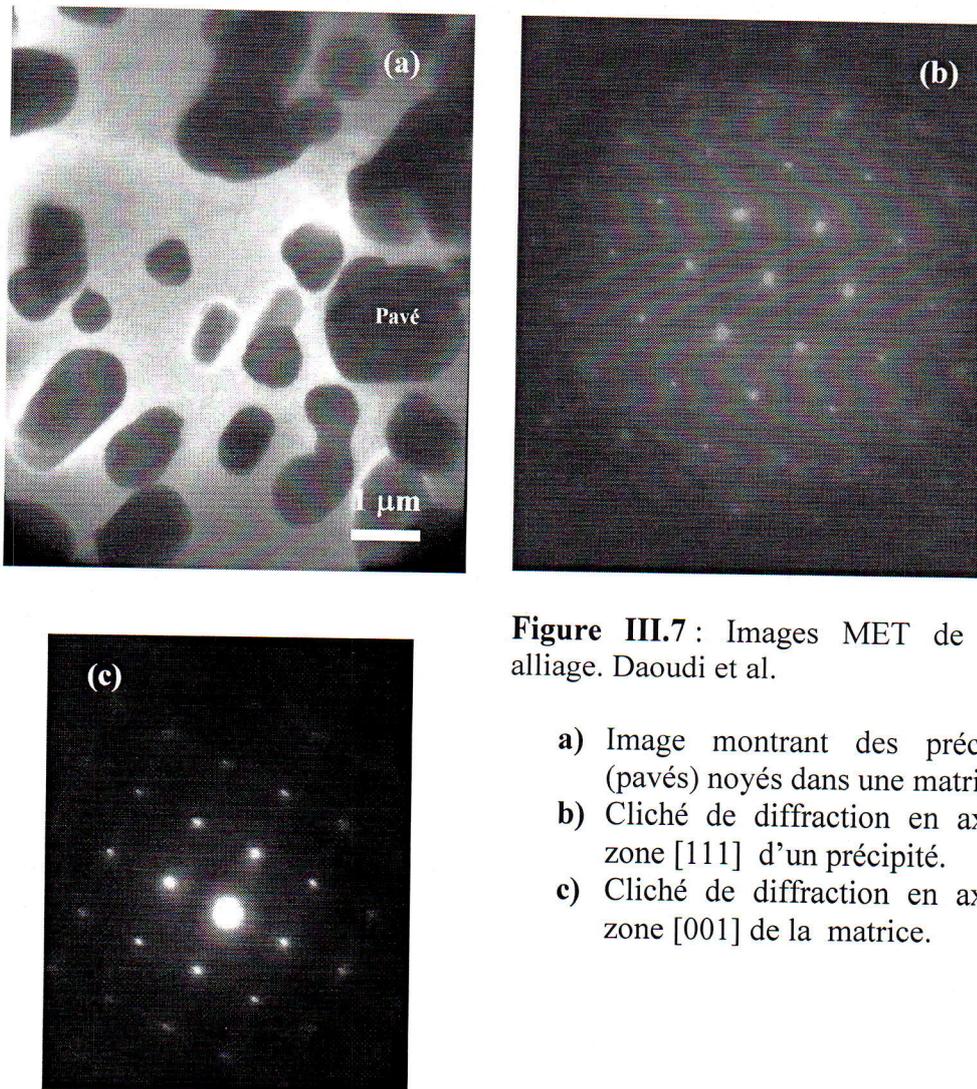


Figure III.7: Images MET de notre alliage. Daoudi et al.

- a) Image montrant des précipités (pavés) noyés dans une matrice.
- b) Cliché de diffraction en axe de zone [111] d'un précipité.
- c) Cliché de diffraction en axe de zone [001] de la matrice.

Le dépouillement de ces clichés de diffraction en suivant la procédure présentée au chapitre précédent conduit aux résultats résumés au tableau III.3.

Chapitre III

Tableau III.3- Résumé des calculs de dépouillement des deux clichés de diffraction obtenus par MET.

	R_{hkl} (mm)	d_{hkl} (Å)	N	hkl	a (Å)	Valeur moyenne (Å)	Axe de zone
Cliché de diffraction du précipité (fig.III.7.b) L=770 mm	7,91	3,40708	8	022	5,90124	5.914203	[001]
	9,1	2,96154	16	044	5,92308		
	15	1,79667	20	224	5,95887		
	20	1,3475	56	246	5,87362		
Cliché de diffraction de la matrice (fig.III.7.c) L=53 mm	8.5	2,18235	4	200	4,36471	4,368495	[111]
	12	1,54583	8	220	4,37228		

Les paramètres de mailles obtenus concordent avec ceux obtenus par DRX, en tenant compte du fait qu'en MET la longueur de caméra indiquée sur le cliché ne correspond pratiquement jamais à la valeur réelle. Ceci est dû aux différentes manipulations de mise au point. D'après la bibliographie les paramètres de maille de l'aluminium et du silicium sont respectivement 4,04963 et 5.431 Å [38].

On a donc, un alliage Al-Si-Mg contenant plus de 6% de Si en excès obtenu par fonderie présentant une structure dendritique avec une matrice d'aluminium de structure CFC et de paramètre de maille (~~paramètre de maille~~) 4.046 Å et des précipités de silicium de structure CFC et de paramètre de maille 5.394 Å.

Chapitre III

III.2. Etude de la cinétique de précipitation

III.2.1. Détermination du coefficient de dilatation

Des mesures dilatométriques ont été effectuées pour une vitesse de chauffage $8^{\circ}\text{C}/\text{min}$.

L'analyse des résultats obtenues, montre que la variation de $\frac{\Delta L}{L_0}$ en fonction de la température (T) n'est pas tout à fait linéaire (fig.III.8).

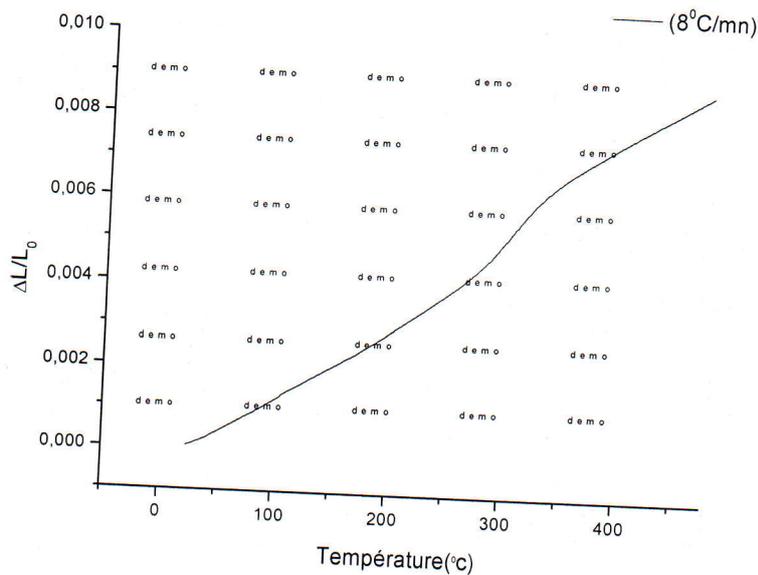


Figure.III.8 : La courbe de dilatation $\frac{\Delta L}{L_0} = f(T)$ d'un échantillon chauffé par une vitesse $8^{\circ}\text{C}/\text{min}$

Le coefficient de dilatation de cet alliage, peut être déterminé par le fit linéaire de cette courbe. Celui-ci peut être obtenu aisément en utilisant le logiciel Origin.

L'équation (II.3.9) montre bien que si la vitesse de chauffage augmente, le coefficient de dilatation diminue.

D'après le fit linéaire de la courbe (fig.III.8) la valeur du coefficient de dilatation :

$$\alpha = 3.09996 \cdot 10^{-5} \text{ (K}^{-1}\text{)}.$$

Pour un même alliage équilibré Chiaoui y. [42] a trouvé pour la même vitesse de chauffage ($8^{\circ}\text{C}/\text{min}$) un coefficient de $2.17569 \cdot 10^{-5} \text{ (K}^{-1}\text{)}$.

Chapitre III

L'augmentation du coefficient de dilatation pour notre alliage est probablement due à l'excès de Si contenu dans notre alliage.

La courbe (fig.III.8) montre que la variation n'est pas tout à fait linéaire, il existe certaines anomalies dans la courbe, qui se traduisent par l'existence de transformations de phases, se produisant après 250°C .

III.2.2. Cinétique de précipitation de l'alliage

Les anomalies détectées sur la courbe de la figure III.8 reflètent mathématiquement l'existence de points d'inflexion où la fonction change de direction. Ces points d'inflexion peuvent être bien mis en valeur si on détermine la dérivée de cette courbe (fig. III.9).

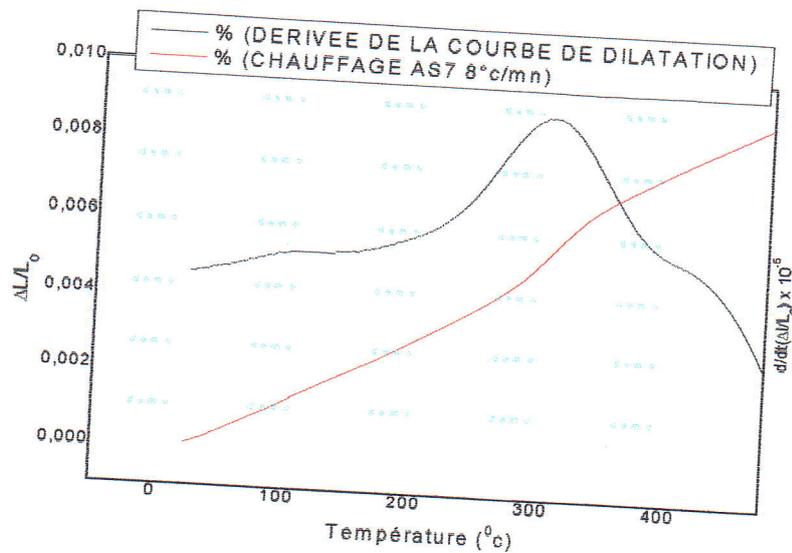


Figure.III.9 : La courbe de dilatation $\frac{\Delta L}{L_0} = f(T)$ et la dérivée du segment d'un échantillon chauffé par une vitesse $8^{\circ}\text{C}/\text{min}$

Sur un plan mathématique un point d'inflexion renseigne sur le début ou la fin d'une variation. Ceci, peut donc nous informer sur le début ou la fin d'une transformation de phase qui a eu lieu au cours du chauffage.

Chapitre III

III.2.3. Comparaison des dilatogrammes Al-Mg-Si [équilibré – excès de Si]

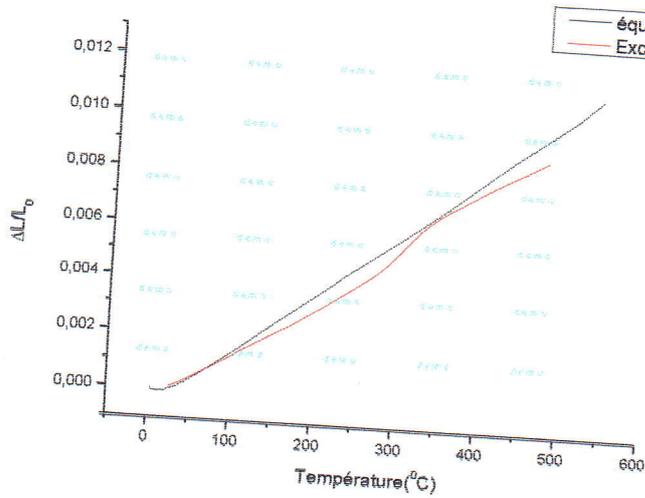


Figure.III.10 : Les courbes de dilatation $\frac{\Delta L}{L_0} = f(T)$ des échantillons (équilibré et avec un excès de Si) chauffé par une vitesse $8^{\circ}\text{C}/\text{min}$

La variation n'est pas tout à fait linéaire, il existe certaines anomalies dans la courbe de l'alliage avec un excès de Si ; ces anomalies (transformations de phases), se produisent après 140°C jusqu'à 250°C par contre dans l'alliage équilibré la variation est presque linéaire mais contient aussi certaines anomalies.

Les anomalies apparaissent dans la courbe de dilatation de notre alliage est due à l'excès de silicium qui contenant ce dernier.

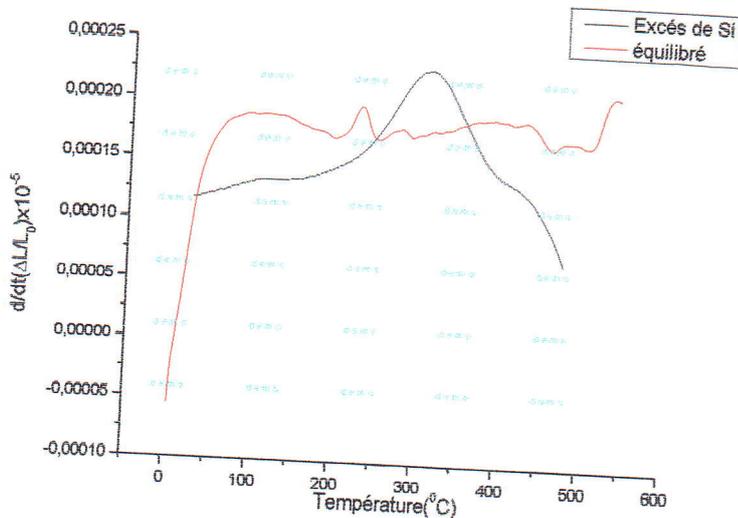
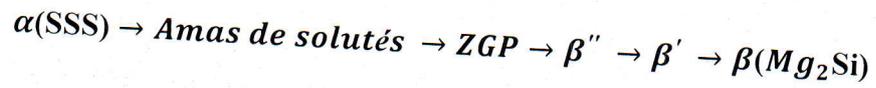


Figure.III.11 : Les dérivées des courbes de dilatation des échantillons (équilibré et avec un excès de Si) par rapport au temps.

Chapitre III

D'après l'étude menée par Chihaoui Y. [42] sur un alliage Al-Mg-Si (équilibré) par dilatométrie, et après comparaison avec une autre étude faite par DSC [5] sur un même alliage la cinétique de précipitation est la suivante :



Sur le dilatogramme qu'on a obtenu, on voit essentiellement deux pics. Le premier peut être attribué aux zones GP, alors que le deuxième peut refléter un processus complexe qui peut s'expliquer par le chevauchement des intervalles de formations des phases β'' , β' et probablement d'autres phases que d'autres auteurs ont signalées dans la littérature. Des observations en microscopie électronique sont nécessaires pour clarifier cette question.

Conclusion

Conclusion

Le travail que nous avons réalisé dans le cadre de ce mémoire avait pour objectif essentiel l'étude dilatométrique de l'alliage Al-Mg-Si (Si). Une caractérisation microstructurale de cet alliage à l'état de livraison est nécessaire pour avoir une idée sur la constitution de cet alliage après élaboration par fonderie.

Cette caractérisation a été faite par différentes techniques, et les résultats suivants ont été obtenus :

- ❖ Le (MO) nous a permis l'observation globale de la microstructure avec un faible grossissement. Cette observation a montré que notre microstructure est constituée par des dendrites (type transformation eutectique Al-Si). Ces dendrites sont constituées par une matrice et des précipités.
- ❖ Le (MEB) nous a permis de voir un peu plus clair, une analyse en rayons X nous a permis de voir la composition des différentes phases observées, et que notre alliage contenant essentiellement deux phases : une matrice d'aluminium et des précipités de silicium.
- ❖ La DRX nous a permis de déterminer les paramètres de mailles de la matrice (Al) et les précipités (Si), et qui sont respectivement
- ❖ Le (MET) nous a permis de confirmer les différents résultats obtenus par les autres techniques.

Pour étudier l'évolution de la cinétique de précipitation de notre alliage, nous avons utilisé principalement une technique expérimentale très peu utilisée pour ce genre d'alliage, c'est la dilatométrie.

L'un des premiers résultats de cette analyse dilatométrique est le coefficient de dilatation linéaire. Il a été estimé à $3.09996 \cdot 10^{-5} \text{ (K}^{-1}\text{)}$. Cette valeur est légèrement supérieure à celle obtenue par d'autres auteurs pour des alliages contenant beaucoup moins de Si. Le deuxième résultat est l'intervalle de température du pic, qui présente un domaine d'existence d'une ou plusieurs phases métastables.

D'après l'analyse dilatométrique, le silicium influe énormément sur la cinétique de précipitation.

Conclusion

D'autres analyses à différentes vitesses sont nécessaires pour pouvoir déterminer les paramètres thermodynamiques (tels que : l'énergie d'activation, le paramètre d'Avrami,..) des différentes phases contenues dans la cinétique. Des caractérisations en MET sont aussi nécessaires pour caractériser les phases présentes aux différentes températures incluses dans l'intervalle.

Références bibliographiques

Références bibliographiques

- [1] L. F. Mondolfo, Aluminum Alloys, Structures and Properties, Butterworth, London, vol. 12, p.14-18, (1976).
- [2] B. Dubost, p. Sain fort, Techniques de l'ingénieur, traité Matériaux métalliques, Paris, vol. 240, p. 2-37, (1994).
- [3] www.histalu.org/iha-rubrique-article.php.
- [4] Marc- Jan de Haas. Université de Groningen (2002).
- [5] Daoudi et al. DSC study of the kinetic parameters of the metastable phases formation during non-isothermal annealing of an Al-Si-Mg alloy. 2010
- [6] Dutta I and AllenSM. A Calorimetric Study of Precipitation in Commercial Aluminium Alloy 6061. J Mater Sci Let. 1991;10:323-26
- [7] D. G. Eskin, *J.Mate.Sci.*, **38**, 2003,pp. 279-290.
- [8] N. Murayama, R. Uemori, N. Hashimoto, M. Saga, M. Kikuchi, *Scr. Mater.* 36 (1) (1997).
- [9] Matsuda K, Gamada H, Fujii K, Uetani Y, Sato T, Kamio A and Ikeno S. High Resolution Electron Microscopy on the Structure of Guinier Preston Zones in Al-1.6Mass Pct Mg₂Si Alloy. *Metall Mater Trans A.* 1998;29A:1161-68.
- [10] Takeda M., Ohkuba F, Shirai T and Fukui K. Stability of Metastable Phases and Microstructures in the Ageing Process of Al-Mg-Si Ternary Alloys. *J Mater Sci.* 1998;33:2385-90.
- [11] Matsuda K, Naoi T, Fujii K, Uetani Y, Sato T, Kamio A and Ikeno S. Crystal Structure of the β'' phase in Al-1.0 wt% Mg₂Si-O.4 wt% Si Alloy. *Mater Sci Eng.* 1999;A262: 232-237.
- [12] Miao WF and LaughlinDE. Precipitation hardening in aluminum alloy 6022. *Scripta Mater.* 1999;40(7):873-78.
- [13] AndersonSJ, ZandbergenHW, JansenJ, TraeholtC, TundalUand Reiso O. The Crystal Structure of the β'' Phase in Al-Mg-Si Alloys. *Acta Mater.* 1998;46(9):3283-98.
- [14] Derlet PM, Andersen SJ, Marioara CD, and Frøseth A. A First-Principles Study of the β'' -Phase in Al-Mg-Si Alloys. *J Phys Cond Matter.* 2002; 14:4011-24.
- [15] SagalowiczL, HugG, BechetD, Sainfort P and LapassetG. A Study of the Structural Precipitation in the Al-Mg-Si-Cu System. In: Sanders Jr TH, Starke Jr EA, editors. *Proceeding of the 4th Intern Conf on Al Allo (ICAA4)*, Vol. 1. Atlanta: Georgia Institute of Technology; 1994, 644-651.
- [16] Zandbergen HW, Andersen SJ, Jansen J. Structure Determination of Mg₅Si₆ Particles in Al by Dynamic Electron Diffraction Studies. *Science.* 1997;277:1221-25.
- [17] Edwards GA, Stiller K, Dunlop GL, Couper MJ. The Precipitation Sequence in Al-Mg-Si Alloys. *ActaMater.* 1998;6(11):3893-904.
- [18] Jacobs MH: The Structure of the Metastable Precipitate Formed During Aging of a Al-Mg-Si Alloy. *Phil Mag.* 1972 ;26:1-13
- [19] LynchJP, Brown LM and Jacobs MH. Microanalysis of Age-Hardening Precipitates in Aluminium Alloys. *Acta Metall.* 1982;3:1389-
- [20] MatsudaK, UetaniY, AnadaH, Tada S and IkenoS. *AluminiumAlloys: Their Physical and Mechanical Properties (Vol 1)*, L. Arnberget *al.*, NorwegianInstitute of Technology and SINTEF Metallurgy, Trondheim, 1992:220.
- [21] WahiRP and von Heimendahl M. Occurrence of the Metastable Phase β'' in an Aluminum-Silicon-Magnesium Alloy. *Phys Sat Sol (a)*, 1974;24:607-12

- [22] Vissers R, van Huis MA, Jansen J, Zandbergen HW, Marioara CD, Andersen SJ. The Crystal Structure of the β' Phase in Al-Mg-Si Alloys. *Acta Materialia*. 2007; 55:3815-23.
- [23] Saga M and Maruyama N. Characterization of Nano-Scale Fine Precipitates in Al-Mg-Si Alloys for Automotive Applications. *Nip Steel Tech Report*. 2005;91:38-42.
- [24] Geisler AH, Hill JK. Analyses and Interpretations of X-ray Diffraction Effects in Patterns of Aged Alloys. *Acta Crystallogr* 1948;1:238-52.
- [25] K. Matsuda, Y. Sakaguchi, Y. Miyata, Y. Uteni, T. Sato, A. Kamio, S. Ikeno, J. Mater. Sci. 35 (2000) 179.
- [26] M.F. Miao, D.E. Laughlin, *Scr. Mater.* 40 (7) (1999) 873..
- [27] Matsuda K, Sakaguchi Y, Miyata Y, Uetani Y, Sato T, Kamio A, and Ikeno S. Precipitation Sequence of Various Kinds of Metastable Phases in Al-1.0mass% Mg-2Si-0.4mass% Si Alloy. *J Mater Sci.* 2000.
- [28] K. Matsuda, Y. Uteni, H. Anada, S. Tada, S. Ikeno, in: L. Arnberg, et al. (Eds.), *Aluminum Alloys: Their Physical and Mechanical Properties*, vol. 1, Norwegian Institute of Technology and SINTEF Metallurgy, Trondheim, 1992.
- [29] M.F. Miao, D.E. Laughlin, *Scr. Mater.* 40 (7) (1999) 873.
- [30] Gupta AK, Lloyd DJ, Court SA. Precipitation Hardening in Al-Mg-Si Alloys with and without Excess Si. *Mater Sci Eng A*. 2001.
- [31] N. Murayama, R. Uemori, N. Hashimoto, M. Saga, M. Kikuchi, *Scr. Mater.* 36 (1) (1997) 89.
- [32] J.P. Lynch, L.M. Brown, M.H. Jacobs, *Acta Metall.* 30 (1982) 1389.
- [33] P. Barczy, F. Trante, *Scand. J. Met.* 4 (1975) 284
- [34] Murayama M. and Hono K. (1999): *Acta Materialia*, vol. 47, pp1537-1548.
- [35] Austen PR and Williamson M. The Effect on Non-Standard Ageing Treatments on the Fracture Properties of Al-Mg-7 wt%Si Alloys. *J Austral Inst Met.* 1975; 20:39-43.
- [36] Dorward RC. Preaging Effect in Al-Mg-Si Alloys Containing 0.6 to 0.9 Pct Mg₂Si. *Metall Trans.* 1973:507-12.
- [37] Frøseth AG, Høier R, Derlet PM, Andersen SJ, Marioara CD. Bonding in MgSi and Al-Mg-Si Compounds Relevant to Al-Mg-Si alloys. *Phys Rev B* 2003; 67:224106.
- [38] Andersen SJ, Marioara CD, Frøseth AG, Vissers R, Zandbergen HW. Crystal Structure of the Orthorhombic U₂-Al₄Mg₄Si₄ Precipitate in the Al-Mg-Si Alloy System and its Relation to the β' and β'' Phases. *Mater Sci Eng A*. 2005;390:127.
- [39] Chakrabarti DJ and Laughlin DE. Phase Relations and Precipitation in Al-Mg-Si Alloys with Cu Additions. *Prog In Mater Sc.* 2004;49:389-410
- [40] Cours de cristallographie « Microscopie électronique en transmission et diffraction des électrons par les lames cristallines »; école nationale supérieure des Mines De Paris ; Jean-Marc Haudin ; 1987.
- [41] Daoudi M. Deuxième école sur les techniques de caractérisation des matériaux, Biskra, 16-19 Mars 2013.
- [42] Chihaoui Y.. Mémoire de Master, sous la direction de Mr Daoudi M.. Université de Guelma, 2012. Et article en voie de publication.

Annexe

Annexe

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).

Durcissement structural

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 ; 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. Les précipités peuvent être cohérents, semi-cohérents ou incohérents avec la matrice.

Alliages corroyés

En métallurgie, les familles d'alliages d'aluminium de corroyage se divisent en deux groupes très distincts tant par la gamme de fabrication que par certaines propriétés comme : les alliages à durcissement structural, et les alliages sans durcissement structural.

Alliages de fonderie

On distingue les alliages de première fusion, élaborés à partir de l'aluminium primaire issu de l'électrolyse et de seconde fusion (appelé aussi alliages d'affinage). Ils sont élaborés par refusions des déchets récupérés. Ils sont surtout utilisés pour la fabrication des pièces d'automobiles.

Un groupe spatial

Le groupe d'espace 'spatial' d'un cristal est constitué par l'ensemble des symétries d'une structure cristalline, c'est-à-dire l'ensemble des isométries affines laissant la structure invariante. Il s'agit d'un groupe au sens mathématique du terme. Tout groupe d'espace résulte de la combinaison d'un réseau de Bravais et d'un groupe ponctuel de symétrie : toute symétrie de la structure résulte du produit d'une translation du réseau et d'une transformation du groupe ponctuel.

Vieillessement thermique

Le terme vieillissement désigne l'évolution (généralement défavorable) des propriétés d'un matériau au cours du temps par interaction en volume avec un facteur physique environnant.