

# IMPRIMATUR POUR LA THÈSE

Analyse des propriétés mécaniques des composites  
fibreux *in-situ* à matrice cuivreuse obtenus à partir de  
billettes solidifiées rapidement

de M. Claude Biselli

---

UNIVERSITÉ DE NEUCHÂTEL

FACULTÉ DES SCIENCES

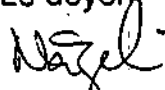
La Faculté des sciences de l'Université de  
Neuchâtel sur le rapport des membres du jury,

Mme et MM. D. Morris, M. Morris, B. Ilchner (Lausanne) et  
J. Gil Sevillano (San Sebastian)

autorise l'impression de la présente thèse.

Neuchâtel, le 30 juin 1995

Le doyen:



H.-H. Nägeli

## Table des matières

<b>1. Préambule et justification du travail</b>	<b>1</b>
<b>2. Introduction et revue de la littérature</b>	<b>4</b>
2.1. Alliages cuivreux classiques de forte contrainte maximale et de haute conductivité	4
2.1.1. Durcissement par l'écroutissage à froid	7
2.1.2. Alliages précipitables	8
2.1.3. Durcissement par dispersoïdes	9
2.2. Composites <i>in-situ</i>	10
2.3. Comportement des métaux durant un fort écroutissage	12
2.3.1. Matériaux à forte et moyenne énergie de défauts d'empilement	14
2.3.2. Matériaux à faible énergie de défauts d'empilement	18
2.4. Modèles décrivant la contrainte maximale des composites <i>in-situ</i>	19
2.4.1. Modèles dérivés de l'équation de Hall-Petch	19
2.4.2. Modèle basé sur les dislocations géométriquement nécessaires	21
2.4.3. Modèle basé sur le mouvement de dislocations entre deux barrières impénétrables	23
2.5. Coalescence des fibres	24
<b>3. Procédure expérimentale et méthodes d'analyse</b>	<b>29</b>
3.1. Matériaux	29
3.1.1. Matériaux de la première série	30
3.1.2. Matériaux de la seconde série	32
3.2. Procédés d'atomisation des poudres et de déposition Osprey	32
3.3. Compaction isostatique à chaud	34
3.4. Extrusion	34
3.5. Étirage	34
3.6. Préparation et observation des échantillons	35
3.6.1. Métallographie optique	35
3.6.2. Métallographie électronique à balayage	35
3.6.3. Métallographie électronique en transmission	36

3.7. Métallographie quantitative	36
3.7.1. Mesure de la distance interparticulaire entre particules sphériques	37
3.7.2. Mesure de la distance interparticulaire entre rubans	38
3.8. Essais mécaniques	39
3.8.1. Essais de traction	39
3.8.2. Essais de compression	39
3.9. Mesures par rayons-x	40
3.9.1. Évolution de la texture	41
3.9.2. Mesures des contraintes internes	42
3.9.3. Mesures des microcontraintes	43
<b>4. Résultats et analyses</b>	<b>44</b>
4.1. Microstructures initiales	44
4.1.1. Poudres atomisées	44
4.1.2. Poudres atomisées compactées à chaud et billettes Osprey	51
4.2. Évolution de la microstructure en fonction du taux d'écrouissage	52
4.2.1. Comportement lors de l'extrusion	52
4.2.2. Comportement des alliages de chrome et de niobium lors de l'étirage	55
4.2.3. Comportement des alliages de fer lors de l'étirage	59
4.2.4. Évolution de la texture lors de l'extrusion et de l'étirage	69
4.3. Analyses quantitatives de la microstructure	71
4.4. Propriétés mécaniques	75
4.4.1. Essais de traction à vitesse de traverse constante	75
4.4.2. Surfaces de rupture	83
4.4.3. Essais de compression à vitesse de traverse constante	83
4.4.4. Essais de traction à différentes vitesses de déformation	87
4.5. Mesures effectuées par rayons-x	88
4.5.1. Mesures des macrocontraintes	88
4.5.2. Mesures des microcontraintes	92
4.6. Stabilité thermique	97
4.6.1. Évolution de la microstructure après traitements thermiques	97
4.6.2. Propriétés mécaniques en traction	100

<b>5. Discussion et interprétation des résultats</b>	<b>102</b>
5.1. Interprétation de l'évolution de la microstructure lors de l'érouissage	102
5.2. Propriétés mécaniques de l'alliage Cu15Fe	108
5.2.1. Comparaison des essais de traction avec les résultats de la littérature	108
5.2.2. Comparaison avec le modèle basé sur les dislocations géométriquement nécessaires	111
5.2.3. Comparaison avec les modèles basés sur la propagation des dislocations	112
5.3. Nouveau modèle décrivant les propriétés mécaniques de l'alliage Cu15Fe	114
5.3.1. Durcissement de la matrice de cuivre	116
5.3.2. Durcissement des rubans	120
5.3.3. Comportement du composite	121
5.4. Saturation de la diminution de l'épaisseur des rubans	125
5.5. Différence entre le point d'écoulement en traction et en compression	128
5.5.1. Aux faibles valeurs du taux d'érouissage	128
5.5.2. Aux valeurs élevées du taux d'érouissage	132
5.6. Rôle de l'usinage sur les propriétés mécaniques	135
5.7. Volume d'activation	136
5.8. Stabilité thermique de la microstructure	139
<b>6. Conclusions</b>	<b>141</b>
<b>7. Références</b>	<b>145</b>

## **Remerciements**

## **Chapitre 1**

=====

# **Préambule et justification du travail**

## 1. Préambule et justification du travail

La gamme d'utilisation des alliages de cuivre (et du cuivre pur) est relativement large, mais essentiellement basée sur l'intérêt que l'on porte à leurs bonnes conductivités électriques et thermiques, leurs bonnes usinabilité et formabilité, leurs résistances à la corrosion ainsi que leurs propriétés esthétiques et acoustiques.

Un nombre croissant d'applications industrielles en électronique et électricité, par exemple, requiert des alliages présentant une relativement haute conductivité et une haute résistance mécanique, tout en conservant une certaine ductilité. Certaines des applications exigent souvent aussi des alliages conservant des propriétés mécaniques importantes après exposition à haute température (extrusion, brasage, soudage, ...) ainsi qu'une résistance mécanique élevée à moyenne température (jusqu'à 400°C environ).

Le cuivre pur présente un point d'écoulement assez bas (inférieur à 450 MPa) même fortement écroui. Les éléments d'addition que l'on utilise pour augmenter la résistance mécanique du cuivre ont généralement pour conséquence de faire chuter sa conductivité électrique. Ceux-ci ont un effet plus ou moins néfaste sur la conductivité électrique des alliages de cuivre dépendant de leur type, de leur fraction atomique en solution solide et dans une moindre mesure de leur fraction volumique sous forme d'une autre phase.

Les méthodes de fabrication qui permettent d'obtenir un compromis intéressant sont basées sur le durcissement par dispersoïdes ou précipités, sur l'écrouissage et le raffinement de la microstructure. Les alliages de cuivre de forte résistance mécanique sont traditionnellement obtenus par une fine précipitation (Cu-Ni-Be, Cu-Co-Be, Cu-Cr, Cu-Cr-Zr, Cu-Cd, ...) permettant d'aboutir à un bon compromis résistance mécanique-conductivité à basses et moyennes températures. Cependant, leurs résistances mécaniques commencent à chuter à partir d'environ 300°C.

Pour des applications à plus haute température, les propriétés intéressantes des alliages dont le durcissement est obtenu par des oxydes très stables ( $Al_2O_3$ ,  $TiO_2$ , ...) et plus grossiers sont bien connues. Par contre, ces alliages ODS (Oxide Dispersion Strengthening) présentent à basses températures des résistances mécaniques parfois insuffisantes et sont difficiles à fabriquer car les technologies utilisées demandent beaucoup de soin.

Un autre type de matériaux de conductivité élevée et de résistance mécanique extrêmement intéressante a été étudié pour la première fois dans les années septante. Basés sur les technologies de fabrication des supraconducteurs à basses températures, des composites constitués d'un mélange de deux phases ductiles montrent après un très fort écrouissage des propriétés mécaniques et électriques excellentes. Ainsi, des composites à matrice de cuivre contenant une deuxième phase cubique centrée, dont la microstructure nécessaire est obtenue après un important travail à froid, peuvent présenter des résistances mécaniques très élevées. Durant l'écrouissage la microstructure se raffine fortement et la phase cubique centrée se transforme en rubans de taille submicronique, alignés dans l'axe d'étrépage ou parallèles au plan de laminage. Comme les microstructures nécessaires aux bonnes propriétés de ces composites sont obtenues après un très important travail mécanique à froid et que les filaments se forment naturellement dans la matrice durant celui-ci, on parle de composites *in-situ*.

D'autre part, la solubilité limitée des éléments cubiques centrés dans la matrice du cuivre permet à ces alliages de conserver une bonne conductivité. A cause de leurs combinaisons uniques de haute résistance et de conductivité élevée, les composites *in-situ* présentent un attrait considérable du point de vue fondamental aussi bien que du point de vue de leurs applications potentielles. En effet, les résistances mécaniques obtenues s'approchent parfois de la limite théorique pour des alliages cuivreux. De telles valeurs ont déjà été observées, mais dans des cas bien spécifiques de fils monocristallins, de diamètres proches du micron, que l'on appelle "whiskers".

Les applications potentielles des composites *in-situ* se trouvent dans les domaines où une très bonne conductivité électrique ou thermique est requise ainsi qu'une grande résistance mécanique, ceci plutôt à basse température. La température limite d'utilisation dépend de la finesse de la microstructure et donc de la résistance mécanique ainsi que de la durée de vie exigée du composite. On peut citer par exemple, les fils nécessaires pour le bobinage des grands électro-aimants, les fils à électro-érosion, les électrodes de soudage, les échangeurs de chaleur, etc.

Le grand intérêt que représente ces matériaux est limité industriellement par le très important taux d'écrouissage nécessaire pour obtenir une finesse de microstructure suffisante. Ainsi, pour que le composite présente des dimensions finales acceptables, des procédés faisant intervenir de nombreuses manipulations complexes, utilisées pour la production de fils supraconducteurs conventionnels, sont généralement employés.

Le principal but du présent travail est d'étudier la possibilité d'obtenir de tels composites à partir d'une microstructure de départ plus fine permettant de diminuer le taux d'écroutissage nécessaire. En effet, c'est beaucoup moins la quantité de travail à froid que les dimensions de la microstructure qui joue le rôle prépondérant sur la résistance mécanique finale, donc en partant d'une microstructure plus fine, les taux d'écroutissage pour obtenir une même résistance mécanique sont réduits.

La motivation industrielle de ce travail se trouve dans le fait que l'avenir en production de ces matériaux résidera probablement dans le développement de procédés de fabrication moins coûteux que ceux envisagés jusqu'alors. Ainsi, les méthodes de la solidification rapide telle que la métallurgie des poudres et la déposition de billettes par spray ont été utilisées car elles permettaient de raffiner la microstructure de départ. Des alliages cuivreux contenant différents éléments cubiques centrés de diverses fractions volumiques obtenus par ces deux méthodes ont donc été étudiés.

D'un point de vue plus fondamental, ce travail tente principalement de faire le lien entre l'évolution de la microstructure et les propriétés mécaniques (principalement la limite conventionnelle d'élasticité) après différents taux d'écroutissage. L'évolution de la microstructure durant le travail à froid des différents alliages a été observée. Il est scientifiquement d'un grand intérêt de voir dans quelle mesure les différents modèles proposés dans la littérature pour décrire le comportement de ce type d'alliages peuvent être utilisés pour des matériaux obtenus par une solidification plus rapide possédant une microstructure extrêmement fine et dont la morphologie et la distribution des rubans est différente. L'utilisation de ces modèles pour décrire le comportement des composites *in-situ* étudiés dans ce travail est apparue discutable. Un modèle modifié de façon à permettre de mieux prendre en compte la taille nanocrystalline des rubans de la phase cubique centrée est proposé et confronté aux différents résultats expérimentaux obtenus dans le cadre de cette étude.

## **Chapitre 2**

=====

# **Introduction et revue de la littérature**

## 2. Introduction et revue de la littérature

Ce chapitre se compose principalement de cinq parties. Dans le cadre de cette étude, il est important de rappeler brièvement les développements effectués afin d'obtenir des alliages cuivreux de hautes résistances et hautes conductivités permettant ainsi de situer les composites *in-situ* par rapport à ces autres alliages. Dans une deuxième phase, un bref historique de la découverte des composites *in-situ* ainsi qu'un résumé de l'évolution des propriétés mécaniques observées sur ces différents alliages en fonction du taux d'écroutissage seront présentés. Dans la troisième partie, une revue de la littérature concernant l'évolution de la microstructure et des propriétés mécaniques des métaux lors de l'écroutissage (principalement de l'étirage) sera présentée. Nous passerons en revue, ensuite, les différents modèles utilisés pour décrire l'évolution du point d'écoulement (ou de la contrainte maximale) en fonction du taux d'écroutissage des composites *in-situ*. Dans la dernière partie de cette introduction, la stabilité thermique de la microstructure sera discutée et les différents mécanismes permettant de décrire son évolution lors des traitements thermiques seront présentés.

Le terme composite *in-situ* n'est pas toujours très clairement défini dans la littérature si bien qu'il est utilisé parfois pour décrire toute une grande gamme de matériaux dont la microstructure souhaitée est développée soit à partir d'une transformation de phase (par exemple du liquide lors de la solidification), soit lors des procédés antérieurs de formage mécanique. Mais dans tous les cas un fort écroutissage est nécessaire pour réduire les dimensions de la microstructure et obtenir les résistances mécaniques escomptées. Comme la microstructure fibreuse est obtenue après un très important travail mécanique à froid et qu'elle se forme naturellement dans la matrice durant celui-ci, on parle de composites *in-situ*. On peut faire la distinction entre les microstructures lamellaires qui proviennent d'une solidification eutectique et celles qui ne proviennent pas directement d'une telle décomposition, et sont constituées originellement d'une phase  $\alpha$  primaire dendritique ou sphéroïdale, cubique centrée, distribuée dans la matrice. Même si l'évolution de la résistance mécanique ou du point d'écoulement en fonction de l'écroutissage peut être parfois assez semblable entre ces deux types de composites *in-situ*, la microstructure lamellaire n'est obtenue pour les systèmes non-eutectique que par un effet de texture lors de l'écroutissage.

### 2.1. Alliages cuivreux classiques de forte résistance mécanique et de haute conductivité

Le cuivre et les alliages de cuivre sont utilisés dans beaucoup de domaines où une bonne combinaison de haute conductivité thermique ou électrique et une résistance mécanique élevée ainsi que des propriétés intéressantes en corrosion sont recherchées. Parmi les multiples

applications de ces alliages, on peut citer [1, 2] par exemple : les commutateurs haute tension, les électrodes de soudage, les "leadframes" pour les semi-conducteurs, les connecteurs électriques, les fils de haute conductivité pour le bobinage, les câbles haute puissance, les brides de serrage de fusibles, etc. Dans les domaines concernés essentiellement par la conductivité thermique, les applications sont par exemple [1, 3] : les lingotières pour la coulée continue, les échangeurs de chaleur, les pistons pour le pressage des polymères, les chambres de combustion dans les systèmes de propulsion, etc. Les alliages de cuivre ont en plus l'avantage de posséder un module d'élasticité assez faible qui minimise les contraintes thermiques liées à la dilatation dans les systèmes électriques et électroniques.

La grande majorité des applications nécessitent l'utilisation d'alliages cuivreux de haute conductivité conventionnels. Cependant, les technologies modernes ont créé le besoin de matériaux très spécifiques utilisés dans des conditions extrêmes qui nécessitent l'utilisation de nouveaux alliages. Il est bien clair, que non seulement, la conductivité et la résistance mécanique sont nécessaires, mais que d'autres propriétés comme l'usinabilité, la formabilité, la résistance à la corrosion, le comportement mécanique à moyenne température, la relaxation thermique des contraintes et la résistance en fatigue doivent être suffisantes. Le standard par lequel les conducteurs électriques sont comparés est souvent le cuivre pur recuit auquel on a donné arbitrairement en 1913 une valeur de 100% IACS (International Annealed Copper Standard) correspondant à une résistivité électrique de  $1.7241 \cdot 10^{-6} \Omega \cdot \text{cm}$ . Il faut noter cependant que dû aux progrès de l'élaboration, le cuivre pur et certains alliages faiblement alliés présentent actuellement des conductivités qui dépassent 100% IACS.

Une comparaison des différents compromis possibles entre conductivité et contrainte maximale des alliages cuivreux peut être faite en s'inspirant de la figure 2.1. Le problème de base est tout à fait évident, l'augmentation de la contrainte maximale se fait souvent au détriment de la conductivité par l'adjonction d'éléments d'alliage.

Les composites *in-situ* contenant du fer présentent une plus faible conductivité électrique que ceux contenant du niobium car le fer a une solubilité plus élevée dans la matrice de cuivre et un effet plus néfaste sur la conductivité électrique pour la même fraction atomique en solution. L'effet des éléments d'addition et des impuretés sur la conductivité électrique dépend très fortement du type d'élément et de la concentration en solution solide. Ceci est illustré par la figure 2.2 où l'augmentation de résistivité en  $\mu\Omega \cdot \text{cm}$  pour une concentration d'élément de 0.02% atomique est donnée. Mais la conductivité des alliages dépend aussi d'autres paramètres comme la densité de dislocations et de défauts ponctuels, la fraction volumique et la distribution de la deuxième phase, la densité d'interfaces et la nature de ceux-ci.

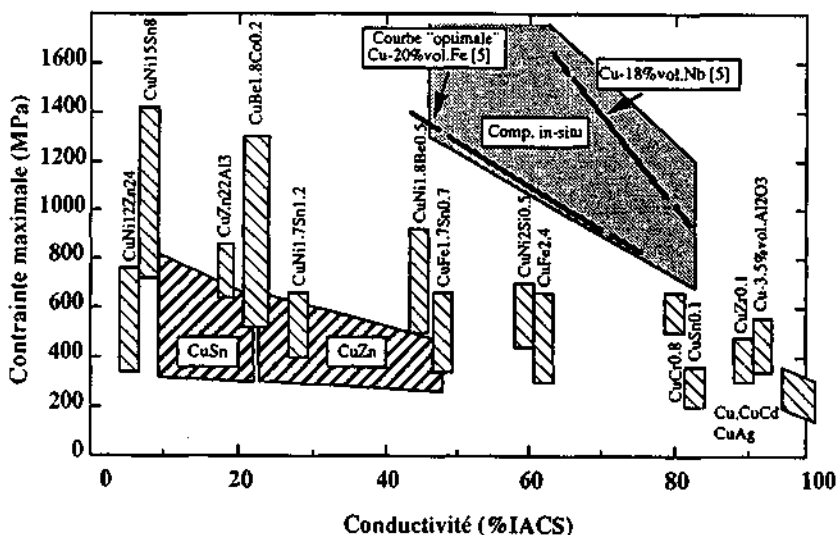


Figure 2.1 : Représentation schématique de la contrainte maximale des alliages cuivreux en fonction de leurs conductivités d'après [4, 5]. Les composites *in-situ* permettent d'obtenir toute une gamme très intéressante de compromis contrainte maximale-conductivité.

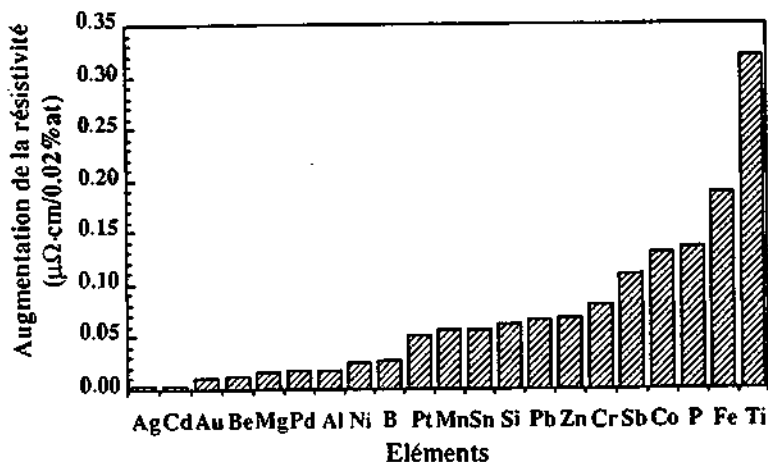


Figure 2.2 : Augmentation de la résistivité du cuivre pur pour 0.02% atomique en solution de différents éléments. D'après [6].

La solidification rapide et le broyage mécanique ont permis d'obtenir, grâce à l'extension de la solubilité et au raffinement de la microstructure des alliages cuivreux, durcis par précipités et/ou dispersoïdes, dont les propriétés sont extrêmement intéressantes (voir par exemple les travaux effectués par Morris and Morris [7 à 9]). Cependant, un des problèmes limitant la présence de tels matériaux sur le marché est souvent la stabilité thermique de la microstructure lors des procédés classiques de consolidation (extrusion, compaction isostatique à chaud, forgeage,...) [10]. D'autre part, si le matériau obtenu est constitué d'une fine dispersion stable de particules (oxydes, carbures, borures,...), comme on peut l'atteindre par exemple lors d'un broyage mécanique, la consolidation même et les premiers stades de fabrication sont difficiles à cause des propriétés mécaniques élevées du matériau notamment à haute température.

Dans ce contexte-là, les composites *in-situ* à matrice cuivreuse sont extrêmement intéressants car ils permettent de couvrir toute une gamme de couples conductivité-contrainte maximale pratiquement sans concurrence, comme on peut le voir sur la figure 2.1. La difficulté principale est que leurs propriétés sont fortement dépendantes du taux et du procédé d'écroutissage ainsi que de la composition et de la finesse de la microstructure de départ.

### 2.1.1. Durcissement par l'écroutissage à froid

Le rôle de l'écroutissage sur les propriétés mécaniques du cuivre pur est important et permet d'augmenter la contrainte maximale d'un facteur deux et la limite conventionnelle d'élasticité d'un facteur cinq environ [4] par rapport à l'état recuit. La conductivité est réduite par l'écroutissage, mais cette diminution est en général seulement de l'ordre de 3% IACS [11]. La gamme de contraintes maximales qui peut être obtenue par l'écroutissage est indiquée à la figure 2.1 pour chaque alliage individuel par une surface hachurée. Le cas des composites *in-situ* est particulier dans la mesure où le rôle de l'écroutissage est très important car il contribue fortement à la réduction de la taille de la microstructure. Mais il joue aussi dans ce cas un rôle indirect sur la résistivité au travers des effets liés aux interfaces.

De manière générale, le travail à froid est donc un bon moyen pour augmenter la contrainte maximale sans trop influencer la conductivité des alliages cuivreux.

Les propriétés mécaniques du cuivre pur écroui sont cependant très rapidement perdues lorsque l'on élève la température. Lorsque le cuivre est utilisé dans un état écroui, on préfère faiblement l'allier de façon à augmenter les températures de restauration et de recristallisation. La stabilisation de la microstructure déformée peut être faite soit par solution solide soit par une fine dispersion de particules. Les alliages stabilisés par solution solide contiennent typiquement de faibles teneurs de cadmium ou d'argent. L'utilisation de cadmium et d'argent comme élément

d'addition est tout à fait justifiée car ces deux éléments donnent les meilleurs compromis de conductivité (voir figure 2.2) et de stabilisation de la microstructure. En général, il semble qu'il n'y ait pas de grands bénéfices à combiner plusieurs éléments en solution solide. Les exceptions à cette règle semblent être les alliages contenant du sélénium ou du tellurium, ainsi que du magnésium ou de l'étain. La stabilité des propriétés mécaniques est parfois meilleure pour les alliages ternaires de ce type, mais le contrôle très précis de la teneur en oxygène et en élément d'alliage est nécessaire pour obtenir les propriétés désirées, ce qui rend difficile la fabrication industrielle.

Beaucoup d'alliages cuivreux de haute conductivité possèdent une seconde phase finement dispersée qui, dépendant de sa nature, sa fraction volumique, sa taille et son espacement moyen, peut jouer un rôle plus ou moins stabilisateur sur la microstructure. Ainsi les particules d'oxydes présentes dans un cuivre ETP ("Electrolytic Touch Pitch", 99.9% cuivre) présentent un frein au grossissement de grains, mais jouent un faible rôle sur la température de recristallisation et le durcissement.

### 2.1.2. Alliages précipitables

Beaucoup d'alliages cuivreux de forte résistance et de haute conductivité sont obtenus par durcissement structural. Le traitement de solutionnement se fait aux environs de 1000 °C dépendant de l'alliage et des dimensions du matériau, suivi par une trempe à l'eau qui permet aux éléments d'alliage d'être retenus en solution. Dans cet état, le matériau peut être facilement mis en forme. Le vieillissement peut ensuite être effectué en général à une température proche de 500 °C. Un écrouissage après le traitement de vieillissement permet d'atteindre les résistances mécaniques les plus élevées. Quelques exemples d'alliages de conductivité élevée ou moyenne sont présentés ci-après :

#### *Cuivre-béryllium*

Les alliages cuivre-béryllium les plus fréquents contiennent de 1.5 à 2.7% poids de béryllium. L'adjonction de nickel ou de cobalt améliore la sursaturation possible par la trempe et la résistance mécanique de ces alliages augmente lors du traitement de précipitation par rapport à l'alliage binaire cuivre-béryllium [12]. Ces alliages sont utilisés à cause de leur haute contrainte maximale qui est obtenue par une combinaison de traitements thermiques et de travail à froid (des valeurs de plus de 1200 MPa peuvent être obtenues). Cependant leurs conductivités électriques sont assez faibles (inférieures à 30% IACS). La résistance mécanique de ces alliages à moyenne et haute température est bonne ainsi que leur résistance en fatigue. Pour certaines applications, des alliages nettement moins concentrés en béryllium (environ 0.4% poids) mais

contenant du cobalt et/ou du nickel sont préférés car bien que leurs contraintes maximales soient plus faibles (de l'ordre de 750 MPa), l'amélioration de la conductivité, qui peut dépasser 50% IACS [12], joue un rôle déterminant.

#### *Cuivre-chrome*

Le chrome a une solubilité de 0.89% at. à 1077°C qui chute à moins de 0.04% at. à 400°C [13] dans le cuivre. La teneur en chrome des alliages précipitables coulés conventionnellement est donc généralement inférieure à 0.9% at. La faible solubilité du chrome à température ambiante dans le cuivre et son effet modéré sur l'augmentation de la résistivité font que ces alliages conservent une bonne conductivité électrique de l'ordre de 80% IACS. Cependant la limite supérieure de la contrainte maximale pour ces alliages est de l'ordre de 600 MPa.

L'addition d'autres éléments au système binaire cuivre-chrome a été envisagée afin de raffiner la microstructure ou de favoriser l'usinabilité. L'addition de silicium, magnésium, zirconium, par exemple augmente le durcissement possible par précipitation. L'addition de zirconium (de 0.02 à 0.2% poids) contribue au durcissement par une précipitation supplémentaire de particules riches en zirconium. La présence de ces deux éléments provoque une précipitation plus fine que pour les alliages binaires cuivre-chrome ou cuivre-zirconium [14]. L'adjonction de magnésium aux alliages cuivre-chrome augmente leur résistance au fluage tout en conservant leurs propriétés mécaniques.

#### *Cuivre-nickel-silicium/phosphore*

Un alliage précipitable contenant environ 2.5% poids de nickel et 0.5% poids de silicium est utilisé pour sa bonne conductivité électrique et sa contrainte maximale raisonnable (environ 60% IACS et 700 MPa). Pour des applications où une meilleure conductivité est requise un alliage précipitable contenant 1% poids de nickel et 0.2% poids de phosphore est utilisé bien que sa contrainte maximale soit plus faible.

### 2.1.3. Durcissement par dispersoïdes

Des alliages cuivreux de conductivité élevée à haute température sont requis pour des applications spécifiques. Les méthodes conventionnelles de durcissement telles que l'érouissage ou la précipitation ne sont pas utilisables. En effet à haute température, la recristallisation, la dissolution et la croissance des particules ont lieu et provoquent une chute des propriétés mécaniques. Une grande variété d'alliages durcis par dispersoïdes a été étudiée, les particules durcissantes sont soit des céramiques, comme les oxydes ou les carbures, soit des composés intermétalliques produits par oxydation interne, par broyage mécanique, par solidification rapide, etc. Les alliages durcis par dispersoïdes les plus connus contiennent de

0.5 à 3.5% volumique d'alumine et sont produits par le procédé d'oxydation interne. Ce procédé utilise des poudres préallées de cuivre-aluminium afin de minimiser le temps d'oxydation et de permettre un contrôle aussi précis que possible de la réaction de désoxydation de la matrice de cuivre après formation de l'alumine. La stabilité thermique de ces alliages est excellente, par exemple : la contrainte maximale d'un alliage contenant 3.5% volumique d'alumine passe d'environ 530 à 500 MPa après un traitement thermique de 1h à 1000°C [15]. Par contre leurs contraintes maximales sont assez faibles et diminuent assez fortement à haute température (d'environ 150 MPa à 650°C pour les alliages les plus concentrés). La conductivité électrique de l'alliage contenant 3.5% volumique d'alumine est d'environ 80% IACS.

Les composites *in-situ* peuvent présenter des propriétés mécaniques après écrouissage bien meilleures à température ambiante que les alliages durcis par dispersoïdes et des conductivités électriques du même ordre de grandeur; par contre leur stabilité thermique est beaucoup moins grande. A résistance mécanique égale, les alliages durcis par précipitation présentent des conductivités électriques nettement inférieures à celles obtenues avec les composites *in-situ*, par contre, ils présentent l'avantage d'un écrouissage nécessaire plus faible ainsi que la possibilité d'effectuer le traitement de vieillissement à la fin du procédé de fabrication. Les alliages de cuivre très faiblement alliés durcis par écrouissage présentent des conductivités électriques supérieures aux composites *in-situ* mais une contrainte maximale beaucoup plus faible.

## 2.2. Composites *in-situ*

Les décompositions eutectiques, eutectoïdes et monotectiques orientées, développées dans les années 1960 pour obtenir des matériaux présentant de bonnes propriétés à hautes températures (voir par exemple [16, 17]) pourraient produire des matériaux de départ pour la manufacture des composites *in-situ*. Cependant, c'est essentiellement à cause des faibles vitesses nécessaires pour conserver un front de décomposition plane et les restrictions de compositions que la fabrication industrielle de ces matériaux a été abandonnée.

Ce n'est qu'au milieu des années 1960, lorsque les résistances mécaniques élevées des fils en acier perlitique écrouis ont été démontrées [18], que le terme composites *in-situ* peut être véritablement utilisé. Au début de l'écrouissage, les lamelles de cémentite ont tendance à s'aligner dans l'axe de la déformation. Ce qui provoque une certaine fragmentation des lamelles de cémentite originales mal orientées, suivie par une réduction de l'espacement interlamellaire, permettant à ces matériaux de présenter parfois des contraintes maximales impressionnantes de l'ordre de 4200 MPa [18]. De telles résistances correspondent à environ 2% du module

d'élasticité de l'acier et sont proches de la contrainte théorique maximale équivalente à celle nécessaire pour rompre les liaisons atomiques par cisaillement. Il est à noter cependant que le module d'élasticité envisagé ici est celui d'un polycristal non texturé et que de fortes textures de déformation, influençant le module d'élasticité, sont produites généralement dans les composites *in-situ*.

Ce n'est que dans les années 1970 que les premières expériences furent menées à bien sur d'autres alliages par Wasserman [19-21] et Bevk [22, 23]. Un grand nombre de combinaisons de différents éléments ont déjà été étudiées et l'augmentation de la contrainte maximale observée est souvent impressionnante. Comme nous l'avons déjà mentionné, on peut faire la distinction entre les microstructures lamellaires qui proviennent d'une solidification eutectique comme les systèmes cuivre - argent, argent - nickel etc. et celles qui ne proviennent pas directement d'une telle décomposition, comme les systèmes cuivre - chrome, cuivre - tantale, cuivre - fer, cuivre - niobium, etc. et sont constituées originellement d'une phase  $\alpha$  primaire dendritique ou sphéroïdale, cubique centrée, distribuée dans la matrice. La microstructure lamellaire n'est obtenue dans les systèmes non-eutectiques que par un effet de texture de la phase cubique centrée lors de l'écrasement (voir détails au § 4.2.4. *Évolution de la texture lors de l'extrusion et de l'étirage*). Après écrasement, ces deux types de microstructure peuvent être assez semblables, cependant, il semble que dans les systèmes binaires de phases cubiques à faces centrées - cubiques centrées, l'augmentation de la contrainte maximale est plus importante lors de l'écrasement que celle obtenue à partir des systèmes cubiques à faces centrées - cubiques à faces centrées [24].

Comme nous l'avons déjà noté, des valeurs exceptionnelles de contrainte maximale peuvent être obtenues lors de l'écrasement des composites *in-situ*. La figure 2.3 illustre la variation de la contrainte maximale en fonction du taux d'écrasement pour un composite Cu-20%vol.Nb [24]. Les variations de la contrainte maximale des deux différents constituants (cuivre et niobium) sont aussi données. Dans les composites conventionnels, les propriétés peuvent être souvent reliées à celles des composants individuels au travers de la loi des mélanges. Celle-ci décrit les propriétés des composites comme étant simplement la somme des propriétés de chacun des composants individuels fois leurs fractions volumiques. La figure 2.3 illustre le fait que très rapidement lors de l'écrasement, les composites *in-situ* présentent des contraintes maximales qui sont meilleures que celles prédites par la loi des mélanges ne tenant compte que des composants individuels. Pour ce type de composites, la contrainte maximale présente une dépendance approximativement exponentielle avec le taux d'écrasement.

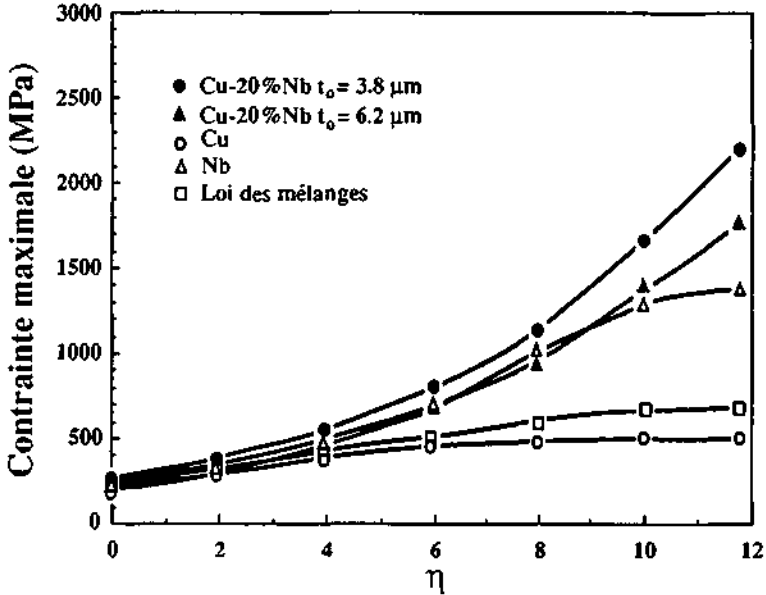


Figure 2.3 : Variation de la contrainte maximale en fonction du taux de déformation de l'alliage Cu-20%vol.Nb de deux différentes tailles dendritiques initiales de niobium,  $t_0$ , ainsi que de ces composants individuels. Les valeurs de contrainte maximale calculées à partir de la loi des mélanges des composants individuels figurent aussi sur ce graphique (d'après [24]).

On observe aussi que le raffinement de la microstructure de départ provoque une augmentation de la contrainte maximale pour un même écrouissage. Les valeurs connues concernant la ductilité de composites *in-situ* sont limitées. L'allongement à la rupture diminue avec le taux d'écrouissage et augmente avec la finesse de la microstructure de départ [25]. Cependant une valeur limite proche de 3% est atteinte pour des taux d'écrouissage élevés.

### 2.3. Comportement des métaux durant un fort écrouissage

Le travail à froid change les propriétés des métaux. Ceux-ci présentent généralement un durcissement et deviennent anisotropes; ces comportements sont liés à l'évolution de la microstructure et de la texture accompagnant la déformation plastique. Le taux de déformation impliqué dans la majorité des procédés d'écrouissage est élevé et bien supérieur à celui que l'on peut généralement obtenir à partir des essais de traction par exemple. En fait seul les essais de

torsion de tubes minces et courts sont susceptibles de permettre d'observer de façon continue le comportement des matériaux pour des taux de déformation élevés [26].

D'un point de vue métallurgique, les métaux subissent un écrouissage à froid si ils sont déformés à une température et à une vitesse de déformation où la contribution des procédés de diffusion est négligeable. C'est-à-dire qu'à ces vitesses de déformation et ces températures, la déformation se fait par le glissement de dislocations parfois accompagné par le maillage.

Le fait qu'il n'y ait pas de test simple pour déterminer le comportement des matériaux durant un fort écrouissage est responsable de la quantité restreinte d'informations concernant les déformations élevées. Cependant, si le travail à froid se fait par étapes successives, la limite d'écoulement du matériau peut être mesurée par les moyens conventionnels. En reportant l'évolution de la limite d'écoulement en fonction du taux global de déformation subi par l'échantillon, on peut tracer une enveloppe des courbes de contrainte-déformation successives. Pour que les résultats soient significatifs, il faut que l'échantillon subisse une déformation uniforme. L'étirage des fils et le laminage peuvent permettre par un choix approprié de la géométrie des conditions de déformation homogènes, c'est-à-dire une déformation uniforme et un travail inutile négligeable [27]. Mais comme le durcissement observé n'est généralement pas indépendant du mode de déformation, la validité de l'enveloppe décrite auparavant dépend de la similitude des modes de déformation. Dans le cas où la déformation se fait par étirage et les essais individuels en traction, les deux états de contraintes sont axisymétriques et l'enveloppe de la limite d'écoulement peut être significative de l'écrouissage global, comme observé par Langford [28]. Le test utilisé pour mesurer de façon successive la limite d'écoulement devrait donc idéalement conserver exactement le mode et la vitesse de déformation.

Le paramètre qui joue le rôle le plus important sur l'aspect de la sous-structure après écrouissage est l'énergie de défaut d'empilement. On peut faire une séparation entre les matériaux à haute et moyenne énergie de défaut d'empilement et ceux à faible énergie. D'après Gil Sevillano [29], la limite de cette séparation se trouve à des valeurs d'énergie de défaut d'empilement d'environ  $20 \text{ mJ/m}^2$  et les métaux ayant une énergie entre  $20$  et  $2 \text{ mJ/m}^2$  présentent une sous-structure de type laiton ("brass-type"). A titre d'exemple, les énergie de défaut d'empilement du cuivre, de l'argent et du laiton Cu-25%at. Zn sont d'environ  $40$ ,  $25$  et  $7 \text{ mJ/m}^2$  respectivement [30]. Dans la suite de ce chapitre, nous ne présenterons essentiellement qu'un résumé du comportement des matériaux présentant une énergie de défaut d'empilement élevée et moyenne lors de l'écrouissage et n'aborderons que très brièvement le comportement des alliages à faible énergie de défaut d'empilement. Ceci, afin de nous concentrer sur le comportement individuel des éléments présents dans les composites *in-situ* à matrice de cuivre.

### 2.3.1. Matériaux à forte et moyenne énergie de défaut d'empilement

La plupart des métaux développent une sous-structure cellulaire lorsque le taux d'écroutissage augmente, cette tendance est directement liée à l'énergie de défauts d'empilement et donc à la tendance qu'ont les dislocations à se séparer en dislocations partielles. Dans les conditions de glissement multiples, la déformation plastique est accompagnée par la multiplication importante du nombre de dislocations. L'arrangement tridimensionnel de dislocations des structures cubique centrée et cubique à faces centrées de haute énergie de défauts d'empilement devient rapidement non-uniforme lors de l'écroutissage à froid. Ces arrangements deviennent interconnectés et progressivement forment une sous-structure cellulaire. Ainsi lorsque le taux d'écroutissage devient élevé, la densité de dislocations n'est plus directement mesurable. Elle peut être estimée à partir des valeurs expérimentales mesurées de la taille et de la désorientation des cellules, en supposant que les parois sont des joints faibles angulaires parfaits. Mais les parois peuvent contenir des dislocations redondantes, c'est-à-dire qui ne contribuent pas à la mésorientation des cellules et certaines dislocations peuvent parfois se trouver à l'intérieur de celles-ci. De plus, lorsque la déformation devient très élevée, les joints ont tendance à devenir grand angulaire. La taille des cellules décroît rapidement lorsque l'écroutissage augmente mais à une vitesse qui diminue progressivement. La mésorientation entre les cellules passe de moins de  $1^\circ$  lors de la formation des parois à quelques degrés ( $\sim 5^\circ$ ) lors de forts écroutissages [29]. L'intérieur des cellules présente, au fur et à mesure de l'augmentation de l'écroutissage, de moins en moins de dislocations et l'épaisseur des parois devient de plus en plus mince.

Qualitativement, la réduction de la vitesse de diminution de la taille cellulaire apparaît d'autant plus tard lors de la déformation que l'énergie de défauts d'empilement est plus faible. La structure initialement équiaxiale de cellules évolue de façon à suivre le changement de forme global. Ainsi, lors de l'étrirage les cellules ont tendance à s'allonger dans l'axe de la déformation. Mais qualitativement, ce changement de forme ne se fait pas de façon homologue avec le changement macroscopique. En comparant l'évolution des dimensions des cellules de l'aluminium lors du laminage avec la réduction macroscopique, Gil Sevillano [29] constate que :

- au début de la déformation, la diminution des dimensions des cellules est plus rapide que la diminution des dimensions macroscopiques, ce qui montre que la création de nouvelles parois est le phénomène prépondérant au début de l'écroutissage,
- la sous-structure cellulaire est partiellement stable à la déformation, c'est-à-dire que les dimensions ne diminuent pas dans les proportions macroscopiques lorsque l'écroutissage devient plus important,
- pour les taux de déformation élevés, le fait qu'il n'y ait plus de diminution des dimensions cellulaires doit pouvoir être expliqué par l'annihilation continue de parois préexistantes ou

alternativement, en partie, par l'accommodation de la déformation par le glissement aux parois de cellules. De plus il est fréquent qu'une localisation importante de la déformation ait lieu lors de fort écrouissage, empêchant une diminution importante et homogène des dimensions cellulaires.

Gil Sevillano [29] a regroupé les résultats d'un grand nombre d'auteurs concernant l'évolution de la taille moyenne minimum des cellules,  $d$ , pour différents métaux lors d'un fort écrouissage. On parle de taille moyenne minimum car les cellules ne se déforment pas de façon équiaxiale lors des procédés d'écrouissage. Cependant, comme les parois des cellules sont des obstacles aux mouvements des dislocations, ce sont principalement les dimensions transversales minimales qui sont les dimensions microstructurales responsables du durcissement. La figure 2.4 montre l'évolution de la taille moyenne minimum des cellules pour le cuivre et le fer en fonction du taux d'écrouissage.  $\eta$  représente la vraie déformation (voir définition au § 3.5. *Étirage*). On voit que la taille moyenne minimum des cellules décroît jusqu'à des taux de déformation d'environ  $\eta = 4$  (98.2 %) pour le cuivre et que la dimension minimale observée est de l'ordre de 100 nm. Tandis que la taille moyenne des cellules de fer ne montre aucune tendance à atteindre une valeur constante jusqu'à  $\eta = 6$  (99.8 %).

Il est clair que la taille minimum qui peut être obtenue après un fort écrouissage est fonction de nombreux paramètres, comme le type de matériaux et la teneur en soluté (rôle de l'énergie de défauts d'empilement) ainsi que de la taille de grains initiale, les méthodes d'écrouissage, etc.

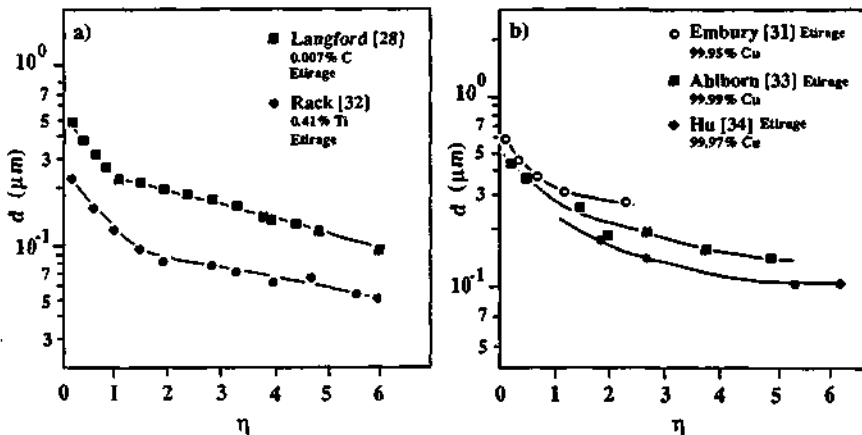
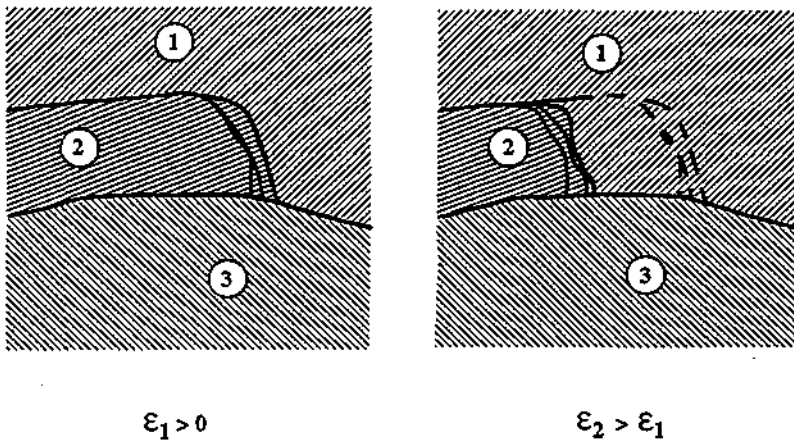


Figure 2.4. : Variations de la taille moyenne minimum des cellules,  $d$ , en fonction du taux d'écrouissage,  $\eta$ , pour a) le cuivre et b) le fer.

La distinction entre une période initiale liée à la multiplication des parois des cellules suivie par des phénomènes d'annihilation de parois a été proposée pour la première fois par Langford [28] à partir d'observations faites avec un fer  $\alpha$  écroui par étirage. Cette transition est assez nette pour tous les métaux à énergie de défaut d'empilement élevée ou moyenne et se situe entre  $\eta = 1.0$  et  $1.5$  (63.2 et 77.7 %) [29]. Il est bien clair cependant, que la multiplication des cellules continue dans la période dominée par l'annihilation. Lorsque la déformation devient prononcée, l'épaisseur des parois diminue et le volume des cellules devient progressivement exempt de dislocation, ce procédé de restauration dynamique peut être appelé polygonisation. Cet amincissement des parois des cellules conduit à la création de sous-grains avec des parois bidimensionnelles bien définies. A température ambiante, les premières transitions de cellules à sous-grains apparaissent pour des déformations équivalentes à celles observées lors de la transition de la période de multiplication à celle de l'annihilation. Cette transition commence dans le cuivre pour des valeurs de  $\eta$  proches de  $1.2$  (69.9 %) d'après Cairns [35] et Wingrove [36], c'est-à-dire que l'on passe progressivement, à partir de  $\eta = 1$  dans le cuivre, d'un arrangement de dislocations tridimensionnel aux parois des cellules à des sous-grains présentant des joints bidimensionnels bien définis. Le déplacement des parois responsables de la perte de cellules durant la déformation reflète la tendance du système à diminuer son énergie d'interface, mais ce mécanisme ne peut pas être un procédé thermiquement activé classique puisque les sous-grains sont résistants à l'augmentation de la température après l'étirage. Ainsi les conditions plastiques de la déformation du fer  $\alpha$  durant l'écroutissage doivent être un facteur important lors du mécanisme dans lequel le mouvement des parois de cellules peut se faire avec une faible force motrice. D'après Langford [28], le mécanisme d'annihilation se fait par le mouvement des parois de dislocations aux jonctions en forme de "h", résultant dans la graduelle absorption d'un sous-grain au travers d'une rotation cristallographique locale. La figure 2.5 montre un exemple de ce mécanisme, donné par Langford [28], qui indique que la cellule 2 est progressivement absorbée par la cellule 1 grâce à une rotation locale liée au déplacement de la jonction en forme de "h". La densité de dislocations à l'intérieur des parois peut, durant ce mécanisme, rester plus ou moins constante car très localement des annihilations de dislocations de signes opposés doivent être possible lors du déplacement de la jonction.

Le fait de diminuer la température lors de l'écroutissage ou d'augmenter la vitesse de déformation provoque une distribution de dislocations plus uniforme, une apparition retardée vers des taux de déformation plus élevés de la formation de cellules, une diminution de la taille moyenne des cellules et une augmentation de la mésorientation entre celles-ci. De plus la densité de macles a tendance à augmenter. Progressivement, lors de l'écroutissage, la mésorientation entre les sous-grains devient si importante que les parois deviennent des joints grands angulaires. Si bien que les sous-grains ne peuvent plus être distingués des grains initiaux.

Quelques auteurs (voir par exemple Nutting [37] et Bourelier [38]) ont observé la présence de grains recristallisés dans le cuivre après écrouissage. Ils attribuent ce phénomène à un procédé de recristallisation dynamique. Les grains observés étaient non seulement fortement mésorientés par rapport aux cellules environnantes, mais avaient des tailles nettement supérieures à celles des cellules. Ils apparaissaient totalement exempts de dislocations et présentaient des macles rectilignes dont l'origine provient sans aucun doute de la recristallisation. Il est clair que lorsque le taux d'écrouissage devient élevé, des joints grands angulaires mobiles sont formés. Mais le fait que ces grains soient totalement exempt de dislocations et que les macles soient droites peut aussi suggérer que la croissance du germe se soit effectuée au moins en partie, juste après la déformation, aidée par l'augmentation de la température due à la dissipation de chaleur liée à l'écrouissage et par la forte densité de défauts ponctuels. Il est donc difficile d'avoir une position univoque concernant l'origine statique ou dynamique de ces grains recristallisés.



**Figure 2.5.** : Représentation schématique du mouvement des parois de dislocations à une jonction en forme de "h" (d'après [28]), illustrant l'absorption de la cellule 2 par la cellule 1.

La présence de joints de grains dans les matériaux de haute et moyenne énergie de défauts d'empilement joue un rôle indirect sur leur durcissement car leurs présence augmente la vitesse d'accumulation des dislocations (voir par exemple, Hansen [39]). Ceci a pour conséquence que

la déformation nécessaire pour former la sous-structure de dislocations décroît avec la taille de grains. Mais le rôle des joints de grains diminue fortement lorsque le taux de déformation augmente. Cependant, si la taille de grains est très faible, c'est-à-dire plus petite que  $1\ \mu\text{m}$  environ, la présence de joints de grains peut inhiber la formation de cellules (voir Thompson [40]).

### 2.3.2. Matériaux à faible énergie de défauts d'empilement

Si le comportement principal de la microstructure des matériaux de haute énergie de défauts d'empilement est la formation de cellules de dislocations, les matériaux à faible énergie de défauts d'empilement (entre 20 et  $2\ \text{mJ}/\text{m}^2$  [29]) présentent une microstructure plus complexe à cause de la présence simultanée d'une sous-structure de dislocations, de micromacles et souvent d'une forte proportion de bandes de cisaillement. Cette complexité fait que l'évolution de la microstructure de ce type de matériaux est rarement quantifiée.

Au début de l'écroutissage, les dislocations forment des arrangements planaires et restent sur leurs plans de glissement. La formation de cellules est fortement inhibée tandis que la distribution de dislocations apparaît très uniforme. Lorsque l'énergie de défauts d'empilement diminue, la tendance des dislocations à se dissocier augmente et les caractéristiques décrites précédemment sont encore plus marquées. Lorsque le taux de déformation augmente, les arrangements de dislocations se densifient mais maintiennent un fort degré d'uniformité et la densité de dislocations augmente rapidement avec le taux de déformation [41]. A partir d'un certain taux de déformation, mais dépendant clairement de la température, de la vitesse de déformation et de l'énergie de défaut d'empilement, la déformation se fait en partie par maclage. Le matériau à faible énergie de défaut d'empilement le plus étudié est le laiton 70/30. Après un fort écroutissage, la sous-structure est composée de sous-grains contenant des macles de déformation [42]. En fait, la microstructure est séparée en régions qui se déforment par le mouvement de dislocations et en régions qui en plus du glissement de dislocations se déforment par maclage. Lors du laminage par exemple, des bandes de cisaillement intenses apparaissent dans les régions mixtes se déformant par glissement et maclage, comme l'a observé Duggan [43] par exemple.

## 2.4. Modèles décrivant la contrainte maximale des composites *in-situ*

### 2.4.1. Modèles dérivés de l'équation de Hall-Petch

Les aciers perlitiques présentent une très forte augmentation de la résistance en fonction du taux d'écroutissage. Durant celui-ci, les lamelles de cémentite se réorientent parallèlement à l'axe d'étirage et la déformation plastique de la ferrite et de la cémentite peut apparaître. En effet, comme a observé Embury [18], les lamelles de cémentite sont capables de se déformer plastiquement de façon importante et ne présentent généralement pas un comportement fragile. Cependant, si la cémentite est mal orientée par rapport à l'axe d'étirage, un pliage et une fragmentation des lamelles apparaît. Embury [18] observe que la variation de la limite d'écoulement peut être reportée comme une fonction linéaire de l'inverse de la racine carrée du diamètre du fil.

Dans le cas de la perlite, il semble que la structure cellulaire allongée dans l'axe d'étirage est réduite lors de l'écroutissage par une quantité proportionnelle à la réduction du diamètre du fil. Embury [18], après avoir observé que l'augmentation de la résistance de la perlite écroutie par étirage ne peut pas être expliquée par les modèles simples basés sur une dispersion de seconde phase, explique le comportement des aciers perlitiques en se basant sur les dimensions des cellules créées dans la ferrite. Il observe que la limite d'écoulement peut être reliée à la taille cellulaire à la puissance  $-1/2$ .

La variation de la distance entre les barrières aux mouvements des dislocations dans la ferrite peut être décrite par l'équation :

$$D(\eta) = D_0 \exp(-\eta / 2) \quad (2.1)$$

Avec  $\eta$ , la vraie déformation et  $D_0$  la taille cellulaire initiale.

En supposant que les parois des cellules sont responsables du durcissement de manière analogue aux joints de grains dans la relation de Hall-Petch [44, 45] et en insérant dans cette relation, l'équation (2.1), Embury [18] obtient la relation suivante :

$$\sigma_{0,2} = \sigma_1 + \frac{k}{\sqrt{2} \sqrt{D_0}} \exp\left(\frac{\eta}{4}\right) \quad (2.2)$$

Avec  $\sigma_{0,2}$ , la limite d'écoulement de la perlite;  $\sigma_1$ , la contrainte de friction apparente de la ferrite

et  $k$ , une constante équivalente à la constante de Hall-Petch. Le facteur  $\sqrt{2}$  est un facteur géométrique lié à la distance moyenne parcourue par les dislocations entre les obstacles.

L'hypothèse principale de ce modèle réside dans le fait que la distance entre les barrières aux mouvements des dislocations se réduit dans les proportions du diamètre du fil, c'est-à-dire que la somme des nouvelles barrières créées et celles détruites durant l'écroutissage est constante. Si le nombre de parois est parfois approximativement constant dans le cas de la perlitite, dans les autres systèmes des phénomènes de restauration dynamique, qui réduisent le nombre de parois, ont lieu d'une manière comparable aux comportements des métaux purs. La présence importante de phénomènes de restauration à l'intérieur des composites n'est pas une fonction indépendante de la fraction volumique et de la distribution de la deuxième phase, ce qui limite la validité de l'équation (2.2).

Nous avons vu que dans les aciers perlitiques, la limite d'écoulement peut être décrite par une équation de type Hall-Petch avec comme dimension critique la taille cellulaire, Spitzig [25, 46] observait aussi une même dépendance dans l'alliage Cu-20%vol.Nb, mais les dimensions microstructurales critiques étaient les distances moyennes entre les filaments. Les valeurs quantitatives de ces distances ont été mesurées à partir de micrographies prises au microscope électronique à balayage.

La distance moyenne,  $\lambda$ , entre les rubans de phase cubique centrée semble donc être la source du durcissement des composites *in-situ*. En remplaçant dans l'équation (2.2) la valeur de  $D_0$  par  $\lambda_0$ , la distance moyenne initiale entre les particules de phase cubique centrée et en tenant compte de l'évolution de  $\lambda$  en fonction de  $\eta$ , Spitzig [46] obtient la relation suivante pour l'alliage Cu-20%vol.Nb :

$$\sigma_{\max.} = 65 + \frac{k}{\sqrt{\lambda_0}} \exp\left(\frac{\eta}{5.6}\right) \quad (2.3)$$

Il est à noter qu'il est souvent utilisé pour des raisons de simplicité la valeur de la contrainte maximale,  $\sigma_{\max.}$ , plutôt que la limite d'écoulement, en supposant que leur dépendance en fonction de  $\eta$  est similaire. Les valeurs de  $k$  obtenues par Spitzig sont très élevées et montrent que l'augmentation de la limite d'écoulement des composites *in-situ* en fonction de l'écroutissage est une conséquence de la difficulté de transmettre la déformation entre les deux phases. Les valeurs de  $k$  sont d'autant plus élevées que le module d'élasticité de la phase cubique centrée est important par rapport à la matrice de cuivre.

Quelques observations expérimentales sont difficiles à justifier à l'aide de ce modèle. En effet, différentes valeurs de  $k$  ont été obtenues pour le même alliage dépendant du mode de déformation. De plus certains composites ne présentent pas un comportement de type Hall-Petch, par exemple, le Cu-20%vol.Nb produit par laminage [47] montre une dépendance de la contrainte maximale en fonction de  $\lambda^{-1/4}$ .

#### 2.4.2. Modèle basé sur les dislocations géométriquement nécessaires

Funkenbusch et Courtney (voir par exemple [48, 49]) ont développé un modèle élaboré pour décrire le comportement des composites *in-situ* à partir de l'accumulation de dislocations géométriquement nécessaires selon le concept de Ashby [50]. Celui-ci est basé sur l'incompatibilité inhérente de la déformation simultanée de phases différentes. Dans chacune des phases, des dislocations doivent être stockées pour permettre une certaine déviation de l'isodéformation parfaite. Dans les matériaux polyphasés, l'incompatibilité résulte des différences d'orientations cristallographiques et du comportement de l'écoulement entre les deux phases. En suivant ce concept, le gradient de déformation entre une particule non-déformable et la matrice environnante peut être accommodé par des dislocations géométriquement nécessaires, une boucle d'Orowan en est un exemple simple. En modifiant le modèle de Ashby pour tenir compte du fait que la distance varie entre les obstacles aux mouvements des dislocations lors de forts taux de déformation, Funkenbusch [48] obtient, pour des taux de déformation élevés, une densité de dislocations géométriquement nécessaires,  $\rho_g$ , égale à :

$$\rho_g = \frac{2k'}{D_0} \exp(\eta/2) \quad (2.4)$$

avec  $k'$ , une constante géométrique de dimension (longueur)<sup>-1</sup> qui prend en compte l'inhérente incompatibilité de la déformation entre les phases ( $k' = 0$  pour un matériau monophasé),  $D_0$ , la distance entre les phases à un taux de déformation nul et  $\eta$ , la vraie déformation.

Lors de la déformation d'un matériau monophasé, la densité de dislocations augmente. Mais la description du stockage statistique de dislocations doit tenir compte de la présence de restauration dynamique. Funkenbusch et Courtney font l'hypothèse que l'ensemble des dislocations (statistiques et géométriques) subissent les phénomènes de restauration et utilisent une relation donnée par Kocks [51] pour décrire la variation de la densité de dislocations en fonction de la déformation :

$$d\rho/d\eta = C_1 \rho^{1/2} - C_2 \rho \quad (2.5)$$

Le premier terme de cette équation décrit le fait que la multiplication de dislocations est proportionnelle à la distance moyenne entre les dislocations de la forêt. Le second terme représente la restauration dynamique. En introduisant le concept de dislocations géométriquement nécessaires dans la relation (2.5), l'augmentation totale de dislocations dans la phase A, peut être décrite par la relation :

$$d\rho_{\text{tot.A}}/d\eta = C_{1A}(\rho_{\text{tot.A}})^{1/2} - C_{2A}\rho_{\text{tot.A}} + P_A K/f_A D(\eta) \quad (2.6)$$

Dans cette équation  $\rho_{\text{tot.A}}$  est la densité totale de dislocations;  $P_A$  est le coefficient de partition des dislocations entre les deux phases en présence,  $K$  est une constante géométrique tenant compte de la différence d'orientation des deux phases;  $f_A$  est la fraction volumique;  $C_{1A}$  et  $C_{2A}$  sont des constantes qui peuvent être estimées en ajustant leurs valeurs pour que la relation suivante soit respectée pour la phase en question :

$$\sigma = \sigma_0 + \alpha \mu b(\rho)^{1/2} \quad (2.7)$$

Où  $\alpha$  est une constante,  $\mu$  est le module de cisaillement,  $b$  est le vecteur de Burgers,  $\rho$  est la densité moyenne de dislocations dans la phase considérée et  $M$  est le facteur de Taylor. Si le modèle de Funkenbusch et Courtney est capable de décrire le comportement des composites *in-situ* pour des taux de déformation intermédiaires à élevés, il est clair que lorsque la déformation devient très importante, la microstructure n'évoluera plus de la même manière qu'à faible taux de déformation. L'utilisation de l'équation (2.7) pour estimer les valeurs des constantes  $C_{1A}$  et  $C_{2A}$  devient très discutable par exemple. Il est probable aussi que le coefficient de partition varie en fonction du taux d'écroutissage dans la mesure où le durcissement des deux phases est différent.

Séparer les modèles de durcissement des composites *in-situ* en deux classes distinctes comprenant les modèles de Hall-Petch modifiés et le modèle basé sur les dislocations géométriquement nécessaires, est arbitraire dans la mesure où leurs prédictions sont comparables. Il est important de noter que le modèle proposé par Funkenbusch décrit aussi une dépendance de type Hall-Petch. Cependant d'un point de vue physique, les modèles basés sur l'interaction des dislocations avec les barrières microstructurales diffèrent fortement de celui basé sur les dislocations géométriquement nécessaires dans le sens que le durcissement n'est pas stocké sous la forme d'interactions élastiques entre dislocations mais déterminé sur la base de l'échelle microstructurale. Ces différents modèles décrivent une croissance continue de la densité de dislocations nettement plus élevée que l'augmentation de la densité de dislocations

observée au microscope en transmission pour des taux de déformation élevés (voir par exemple [25, 52]). De plus les dernières observations quantitatives de l'évolution de la microstructure faites au microscope électronique en transmission montrent que la limite d'écoulement ne peut pas être reliée à la distance entre les rubans à la puissance  $-1/2$  [53].

#### 2.4.3. Modèle basé sur le mouvement de dislocations entre deux barrières impénétrables

Verhoeven [53] a observé que la dépendance de la contrainte maximale des composites *in-situ* ne dépendait pas à la puissance  $-1/2$  de la distance moyenne entre les rubans, lorsque la microstructure était quantifiée soigneusement; c'est-à-dire en tenant compte de toute la dispersion en taille des rubans. Il propose un modèle initialement utilisé par Gil Sevillano [54] pour décrire le comportement de la perlite. Une dislocation se déplaçant sur son plan de glissement entouré par deux parois impénétrables, doit se courber de façon à dépasser une configuration critique. En considérant que la tension de ligne est constante, la forme critique est semi-circulaire et la contrainte à atteindre est :

$$\sigma_{0,2} = \sigma_i + \frac{MA\mu b}{2\pi t} \ln \frac{t}{b} \quad (2.8)$$

avec  $\sigma_{0,2}$  et  $\sigma_i$ , les contraintes d'écoulement et de friction, respectivement; M, le facteur de Taylor; A, une constante géométrique dépendant du caractère des dislocations ( $\sim 1.21$  pour les dislocations mixtes);  $\mu$ , le module de cisaillement; b le vecteur de Burgers et t, la distance entre les lamelles.

Cette équation décrit la contrainte maximale nécessaire aux mouvements des dislocations lorsqu'il n'y a pas d'interaction avec d'autre dislocations et que les sources sont actives. Verhoeven [53] obtient, en considérant que les dislocations se déplacent aussi bien dans la matrice de cuivre que dans les rubans de niobium, la relation finale suivante pour un alliage cuivre-niobium :

$$\sigma_{\text{comp.}} = f_{\text{Cu}} \left[ \sigma_0 + \frac{MA\mu b}{2\pi t} \ln \frac{t}{b} \right]_{\text{Cu}} + f_{\text{Nb}} \left[ \sigma_0 + \frac{MA\mu b}{2\pi t} \ln \frac{t}{b} \right]_{\text{Nb}} \quad (2.9)$$

où  $\sigma_{\text{comp.}}$  représente la contrainte maximale du composite;  $f_{\text{Cu}}$  et  $f_{\text{Nb}}$  sont les différentes

fractions volumiques;  $\sigma_0(\text{Cu})$  et  $\sigma_0(\text{Nb})$  sont les contraintes maximales du cuivre et du niobium pur déformé à la même valeur de  $\eta$ ;  $M$ ,  $A$ ,  $\mu$ ,  $t$  et  $b$  ont une signification identique à celle mentionnée à l'équation (2.8).

Cette équation présente une bonne correspondance avec les résultats obtenus de l'alliage Cu-20%vol. Nb, elle décrit une dépendance de type exponentielle de l'augmentation de la contrainte maximale en fonction du taux d'écroutissage lorsque la microstructure devient très fine.

### 2.5. Coalescence des fibres

Les faibles chutes du point d'écoulement et de la contrainte maximale des composites *in-situ* moyennement écroutis après traitement thermique à basse température (proche de 150°C) sont attribuées dans la littérature aux mécanismes de restauration de la matrice de cuivre [55]: migration et combinaison des défauts ponctuels créés lors de l'écroutissage et réarrangement des dislocations à l'intérieur des parois.

Les études de la recristallisation d'alliages écroutis contenant une dispersion de deuxième phase ont montré que, tandis que la présence de deux phases provoque la génération additionnelle de dislocations géométriquement nécessaires, l'influence de cette seconde phase sur la cinétique de recristallisation est complexe et dépend de l'aspect de la distribution ainsi que de sa fraction volumique. Il est observé généralement que les grosses particules accélèrent la recristallisation alors qu'une fine dispersion de particules la retarde. Un tel comportement est expliqué en termes d'homogénéisation de la distribution des dislocations.

Il a été observé que la distribution de la deuxième phase sous la forme de rubans que l'on trouve dans les composites *in-situ* a tendance à retarder les phénomènes de recristallisation [56]. Il faut noter que ces observations ont été faites par exemple avec un composite Cu-15%vol.Fe obtenu par coulée et écrouti, dont la microstructure était encore relativement grossière (distance moyenne entre les fibres  $\sim 1 \mu\text{m}$ ).

La troisième instabilité thermique des composites *in-situ* est la sphéroïdisation de la microstructure fibreuse dont la force motrice est liée à la capillarité. Dans le cas de fibres cylindriques sans défaut, la sphéroïdisation procède par le développement de perturbations longitudinales stables. Une fibre cylindrique de rayon initial  $r_0$ , présentant une telle perturbation, possède deux rayons de courbure principaux, voir figure 2.6 a) : le premier,  $r_1$ , est le rayon perpendiculaire à l'axe du cylindre et le second,  $r_2$ , est donné par la perturbation.

La courbure moyenne de la surface peut ainsi être définie par  $Z = 1/2 [(1/r_1 + 1/r_2)]$ . Celle-ci affecte la concentration de soluté de la matrice proche de l'interface avec la fibre de la manière décrite par l'équation de Gibbs-Thompson [57] :

$$C = C_0 + \alpha (1/r_1 + 1/r_2) \quad \text{avec} \quad \alpha = \frac{C_0 \gamma W}{kT} \quad (2.10)$$

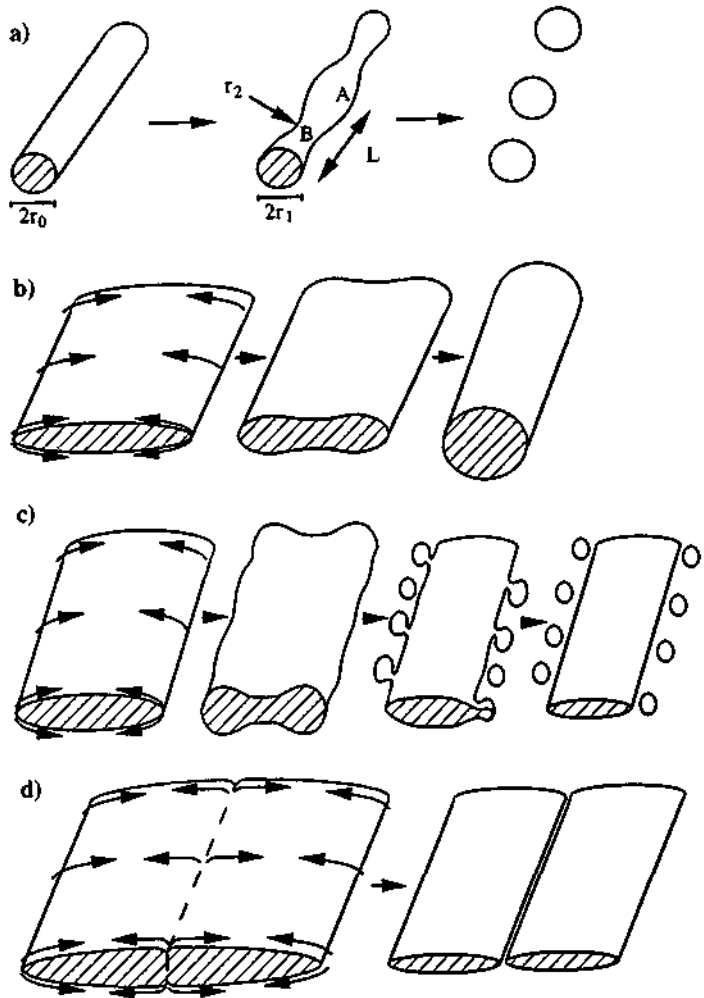
Dans cette équation,  $C_0$  est la concentration d'atomes solutés dans la matrice pour une interface plane,  $\gamma$  est l'énergie interfaciale,  $W$  est le volume atomique de la phase fibreuse,  $k$  est la constante de Boltzmann et  $T$  est la température.

Cette équation tient compte du fait que le changement du rayon  $r_1$ , entre les endroits A et B de la figure 2.6 a) induit un transport de matière de B vers A tandis que le changement du rayon  $r_2$  de A à B induit un phénomène de transport inverse s'opposant au grossissement de la perturbation. Lorsque la longueur d'onde,  $L$ , de la perturbation augmente, cette opposition diminue et à partir d'une longueur d'onde critique,  $L_{crit.}$ , la perturbation peut croître.

Le calcul de la valeur de  $L_{crit.}$  nécessite certaines hypothèses et différentes valeurs ont été proposées. La modélisation [58] de ce procédé pour des eutectiques dont la morphologie est cylindrique - pour lesquels le transport de matière se fait le long des fibres - a montré que les perturbations dont la longueur d'onde est inférieure à la circonférence de la fibre sont instables tandis que celles dont la longueur d'onde est 1.5 fois la circonférence vont croître le plus rapidement.

Pour qu'une forme donnée soit instable, celle-ci doit posséder un rayon de courbure non-nul dans l'état non-perturbé. Ainsi une plaque de dimension infinie est stable à la variation d'épaisseur. En dépit de cette stabilité de la morphologie des plaques, les structures lamellaires présentent parfois des phénomènes de globularisation. L'instabilité des fibres dans les composites *in-situ* est liée soit à des facteurs géométriques des rubans (dimensions finies et irrégularités de la surface), soit à des facteurs microstructuraux comme la présence de joints et de parois de dislocations.

Nous présenterons ici un survol des principales instabilités qui peuvent apparaître dans les composites *in-situ* :



**Figure 2.6 :** Modes d'instabilités primaires pour : a) un cylindre instable aux perturbations longitudinales, b) un ruban de dimensions finies qui se transforme en cylindre sous l'effet de la capillarité des extrémités, c) un ruban de dimensions finies dont les extrémités se globularisent sous l'effet combiné de la capillarité et de l'instabilité aux perturbations longitudinales, d) un ruban possédant des joints peut se séparer sous l'effet du sillon thermique (longitudinal ou transversal) en plusieurs rubans.

### *Phénomène de cylindrisation*

La cylindrisation d'un ruban isolé est induite par la capillarité liée au rayon de courbure des extrémités du ruban. Un flux de matière allant des extrémités du ruban vers le centre provoque des excroissances à proximité des extrémités qui peuvent aboutir à la formation d'un cylindre. Ce mécanisme est schématisé à la figure 2.6 b). Comme nous l'avons déjà discuté, le cylindre est instable aux perturbations longitudinales et des sphéroïdes peuvent ainsi se former. La cylindrisation peut apparaître pour des rubans de faible rapport largeur sur épaisseur ( $w/t$ ).

### *Phénomène de sphéroidisation des extrémités*

Le phénomène de sphéroidisation des extrémités, illustré à la figure 2.6 c), commence par la formation des crêtes près des extrémités comme lors de la cylindrisation. Les crêtes formées, qui présentent un rayon de courbure primaire, ne sont pas stables envers les perturbations de longueurs d'ondes suffisantes. La croissance en amplitude de telles perturbations est augmentée aussi bien par le flux continu venant des extrémités que par le flux latéral associé à la présence de perturbations. En d'autres termes, c'est essentiellement la variation du flux venant des extrémités le long des crêtes qui permet éventuellement au ruban de former des sphéroïdes proches des extrémités. Ce mécanisme est très semblable à la cylindrisation mais n'exige pas la présence d'un cylindre bien défini.

### *Phénomène de séparation liée aux sillons thermiques*

Si des joints à travers l'épaisseur des rubans sont présents, des instabilités peuvent apparaître liées aux sillons thermiques (thermal grooving). Lorsque la température est suffisante pour permettre une certaine diffusion, un sillon peut se former le long de la ligne d'intersection du joint avec la surface du ruban. Un équilibre statique est établi à la jonction triple de façon à ce que les tensions associées avec le joint du ruban ( $\gamma_b$ ) soient contrebalancées par les tensions liées à l'énergie d'interface entre le ruban et la matrice ( $\gamma_i$ ). Le sillon formé est bordé par deux crêtes qui provoquent un transport de matière du sillon vers les surfaces planes. Un tel mécanisme peut aboutir à la rencontre des points triples des deux faces du ruban et à la disparition des joints. Ce phénomène peut provoquer la fragmentation des rubans comme illustré à la figure 2.6 d). On peut remarquer que la séparation liée aux sillons thermiques est en compétition avec la cylindrisation car les flux de matière sont antiparallèles.

Des effets secondaires peuvent influencer la sphéroidisation des rubans dans les composites *in-situ*. En effet, par exemple, la cylindrisation des rubans aboutira directement à la formation de cylindres de taille et de surface irrégulières qui seront autant de perturbations instables si la longueur d'onde des irrégularités dépasse  $L_{crit}$ . Les sillons thermiques liés à la présence de joints transverses par rapport à l'axe du cylindre facilitent aussi la sphéroidisation. Dans ces deux cas, on parle de phénomènes secondaires d'ovulation.

La sphéroïdisation des rubans se fait essentiellement grâce aux mécanismes de diffusion à l'interface entre les rubans et la matrice. Au travers des différents phénomènes liés à la globularisation que nous avons décrits, il apparaît que deux facteurs jouent un rôle très important sur le choix du mécanisme de globularisation : le rapport d'énergie d'interface entre les joints internes et le ruban avec la matrice ( $\gamma_b/\gamma_i$ ) ainsi que le rapport de la largeur sur l'épaisseur du ruban ( $w/t$ ). Dans ces matériaux, la dimension critique pour la résistance à la globularisation semble donc être l'épaisseur des rubans, ainsi un ruban de faible épaisseur globularisera plus rapidement et avec une longueur d'onde plus courte qu'un ruban plus épais. La prévision théorique [59] des mécanismes responsables de la globularisation des rubans abouti aux conclusions suivantes : la cylindrisation ne peut apparaître que lorsque le rapport  $w/t$  est faible ( $< 8$ ) tandis que la sphéroïdisation des extrémités n'est possible que lorsque le rapport  $w/t$  est grand ( $> 8$ ) et que le rapport  $\gamma_b/\gamma_i$  est plutôt faible. Lorsque le rapport  $\gamma_b/\gamma_i$  est élevé ( $> 0.8$ ) et que  $w/t$  est grand ( $> 8$ ), la séparation liée aux sillons thermiques devient possible.

## **Chapitre 3**

=====

# **Procédure expérimentale et méthodes d'analyse**

### 3. Procédure expérimentale et méthodes d'analyse

Les matériaux étudiés dans ce travail ont été produits à partir de poudres ou à partir de billettes déposées par atomisation Osprey. Ce principe de déposition est breveté par la maison Osprey Metals Ltd. à Neath dans le pays de Galles (GB). On peut résumer les deux différents chemins utilisés pour produire les fils par la figure 3.1.

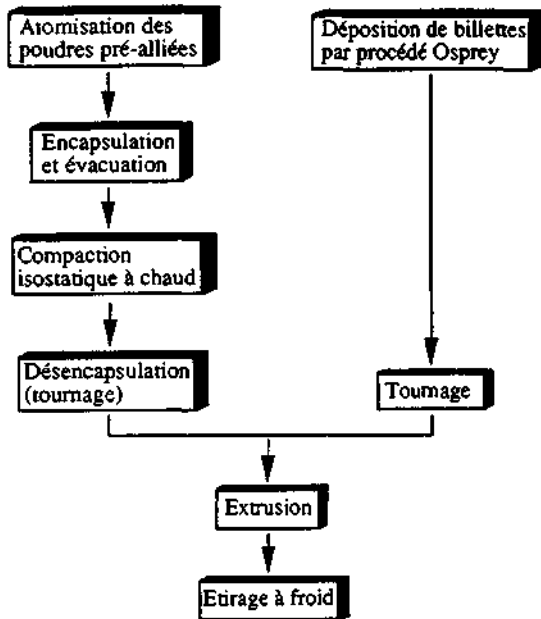


Figure 3.1. : Schéma illustrant les principales séquences des deux chemins utilisés pour fabriquer les fils.

#### 3.1. Matériaux

Le choix des éléments cubiques centrés intéressants pour la formation de composites *in-situ* à matrice de cuivre est dicté par des raisons métallurgiques : la solubilité de ces éléments dans la matrice et leurs effets sur la conductivité électrique doivent être faibles, ils ne doivent pas former de phases stables avec la matrice et doivent être susceptibles de s'allonger lors de l'écroutissage. Mais les raisons les plus limitantes sont liées à des problèmes technologiques et de coût de fabrication. En effet, dans cette étude, la température de liquidus des alliages était limitée, par les fours à disposition, à environ 1500°C. Les trois éléments cubiques centrés

satisfaisant les critères susmentionnés et présentant des températures de liquidus les moins élevées dans le domaine de composition concerné sont le Fe, le Cr et le Nb. Ainsi, ce sont donc ces trois éléments qui ont été sélectionnés.

Les différents alliages utilisés dans cette étude sont nommés à partir de la fraction volumique nominale des éléments ajoutés au cuivre, ainsi le Cu15Fe est un alliage qui contient 15% volumique (nominal) de Fe.

### 3.1.1. Matériaux de la première série.

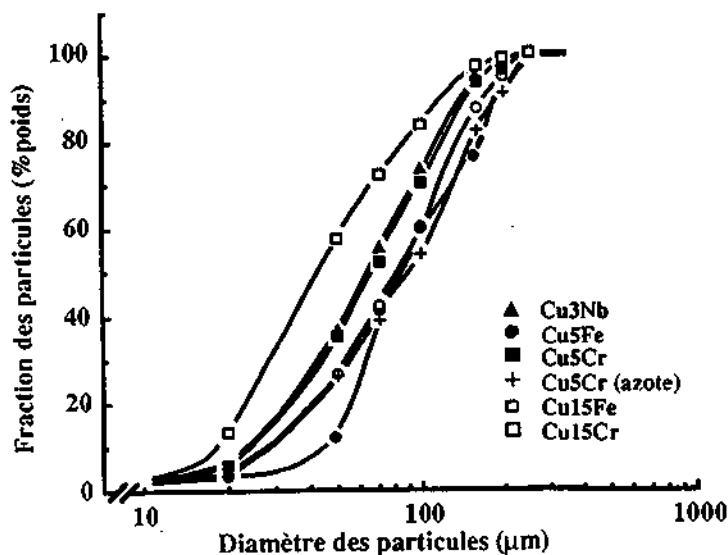
Dans le but d'avoir un choix maximal de matériaux tout en évitant dans un premier temps les problèmes technologiques liés à la déposition d'une billette, nous avons commandé chez Osprey Metals à Neath, l'atomisation d'alliages de cuivre contenant différentes fractions volumiques de phases cubiques centrées. Les alliages ont été atomisés dans des conditions très proches et sur le même type d'installations que celles utilisées pour produire des billettes afin d'obtenir après compaction des microstructures aussi proches que possible de celles des billettes Osprey. Des fractions volumiques de 5 et 15% de Cr et de Fe ont été commandées ainsi qu'une fraction volumique de 3% seulement de Nb afin de rester dans un domaine de température de liquidus inférieur à 1500 °C. Tous les alliages, à une exception près, ont été atomisés avec de l'argon pour éviter la formation possible de nitures. Un alliage contenant 5% de Cr a été atomisé avec de l'azote et son comportement a été comparé au même alliage atomisé avec de l'argon. Nous avons commandé 25 kg de poudre pour les alliages peu concentrés et 50 kg pour les alliages concentrés. Les matériaux ont été produits à partir de Cu électrolytique HC ("High Conductivity") et d'éléments cubiques centrés de pureté supérieure ou égale à 99.8%.

Les teneurs réelles en éléments cubiques centrés des poudres atomisées sont données dans le tableau 3.1. On remarque que la teneur des poudres en éléments cubiques centrés est très proche de la valeur nominale pour les alliages de Fe et de Nb, par contre, pour les alliages de Cr, la composition est moins bien respectée et est inférieure d'environ 1% volumique à celle demandée. Les quantités d'oxygène et d'azote ont été mesurées après compaction et extrusion. Elles figurent dans le tableau 3.1. La teneur en azote est très faible (< 10 ppm) et ne semble pas être fonction du gaz d'atomisation. La formation de niture de Cr, lors de l'atomisation de l'alliage Cu5Cr atomisé avec de l'argon doit donc être très faible. La teneur en oxygène est nettement dépendante de la fraction volumique de la phase cubique centrée et augmente avec celle-ci.

**Tableau 3.1 :** Composition nominale des différents alliages de la première série et résultats des analyses chimiques.

Alliages	Gaz d'atomisation	Composition nominale [% volumiques]	Composition mesurée [% volumiques]			Contaminant [µg/g]	
			Fe	Cr	Nb	O	N
Cu3Nb	Ar	3	-	-	2.9	810	8
Cu5Fe	Ar	5	5.1	-	-	430	2
Cu15Fe	Ar	15	15.2	-	-	730	2
Cu5Cr	Ar	5	-	4.2	-	230	8
Cu5Cr	N <sub>2</sub>	5	-	4.2	-	235	10
Cu15Cr	Ar	15	-	13.7	-	1590	-

Une fraction des poudres a été tamisée avec des tamis de 20, 70, 100, 160, 200 et 250 µm. La figure 3.2. illustre l'aspect général de la distribution de tailles des poudres. C'est l'alliage Cu15Cr qui présente une distribution de taille la plus fine. Toutes les poudres étaient inférieures à 250 µm et leurs tailles moyennes variaient entre environ 40 µm et 90 µm suivant l'alliage.



**Figure 3.2 :** Distribution en taille des particules des différents alliages. Les points indiqués donnent la fraction de particules ayant une taille inférieure à la valeur correspondante sur l'axe x.

### 3.1.2. Matériaux de la seconde série

Au vu des résultats obtenus à partir des matériaux de la première série, trois alliages ont été choisis pour être déposés : le Cu15Fe, le Cu15Cr et le Cu15Cr0.7Zr. Finalement, seules les dépositions de quatre billettes de Cu15Fe ayant un diamètre et une hauteur d'environ 150 mm ont pu être obtenues. Toutes les billettes ont été déposées avec de l'azote comme gaz d'atomisation. Celles-ci ont été numérotées de la façon suivante :

Cu15Fe N° 7

Cu15Fe N° 10

Cu15Fe N° 12

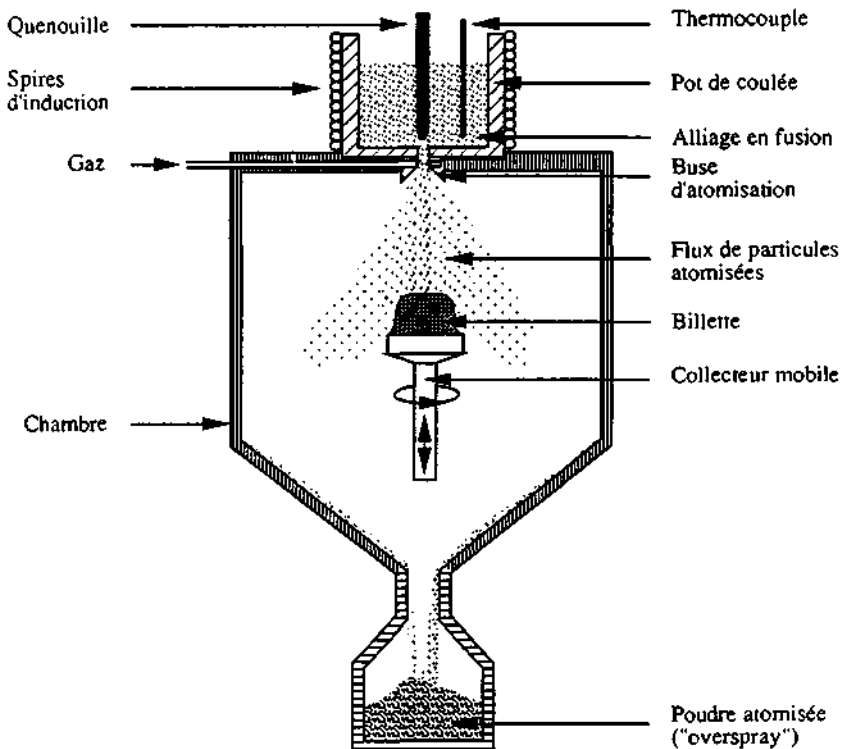
Cu15Fe N° 13

Le nombre indiqué donne le numéro de l'essai de déposition réussi. Pour produire la billette N° 7, l'alliage a dû être refondu plusieurs fois et la contamination était devenue très importante. Les billettes N° 12 et 13 ont été produites dans les meilleures conditions obtenues et sont très semblables.

### 3.2. Procédés d'atomisation de poudre et de déposition Osprey

Les deux procédés ont en commun l'atomisation d'un flux de métal liquide en une fine dispersion de gouttelettes par un gaz à haute vitesse (argon ou azote). Le principe général de la déposition Osprey est de projeter ces gouttelettes vers un substrat où celles-ci adhèrent et forment progressivement un dépôt. La figure 3.3 montre un schéma du principe de la déposition Osprey d'une billette qui illustre aussi le principe de l'atomisation si on y enlève le collecteur. Pour un alliage et un gaz d'atomisation donné, la vitesse de refroidissement des particules en vol est déterminée essentiellement par leurs tailles. La taille moyenne des gouttelettes est inférieure à 150 µm.

La rotation du collecteur lors d'une déposition Osprey assure une déposition homogène et pratiquement cylindrique. Dans les conditions de déposition correctes, les petites particules sont entièrement solidifiées lorsqu'elles atteignent le substrat, tandis que les plus grosses sont dans un état liquide ou semi-liquide. Les conditions de déposition sont contrôlées afin qu'une fine épaisseur définie de métal semi-liquide soit maintenue à la surface de la billette durant toute la durée de la déposition. Les dendrites apparaissant dans certaines particules lors du vol, sont fragmentées lors de l'impact sur la billette. Les fines particules solides ainsi que les fragments de dendrites sont en partie refondus à la surface de la billette, aidés partiellement par la chaleur latente de solidification.



**Figure 3.3 :** Schéma de principe d'une installation d'atomisation de poudres et de déposition de billette Osprey.

La solidification se fait rapidement, initiée par les fragments de dendrites et de particules solides encore présent dans la couche liquide. La surface liquide de la préforme subit le transfert de moment du flux de gaz et des particules. Les turbulences ainsi provoquées ainsi que les courants de convection classiques assurent une homogénéisation de la température et de la composition rendant difficile la croissance dendritique. Le résultat est une solidification rapide non-dendritique d'une phase plus ou moins sphérique entourée par du liquide enrichi en soluté qui se solidifie plus lentement et plus tard. Une fois solidifié, le matériau se refroidit assez lentement jusqu'à la température ambiante. Le résultat est une microstructure homogène avec une petite taille de grains et sans macroségrégation. Par contre, il y a une microségrégation à très petite échelle aux joints de grains.

### 3.3. Compaction isostatique à chaud

Pour la consolidation, les poudres de la première série ont été placées dans des containers en acier et évacuées à 400°C pendant 24 h puis, les containers ont été soudés de façon hermétique. Les containers avaient un diamètre et une hauteur d'environ 140 mm. Les différentes poudres ont ensuite été compactées isostatiquement à chaud à 750°C pendant 3h et à une pression de 110 MPa. Après compaction isostatique à chaud, les matériaux de la première série ont été tournés à un diamètre et une hauteur d'environ 110 mm afin d'éliminer l'acier du container et d'obtenir un cylindre.

### 3.4. Extrusion

Les billettes de la deuxième série ont été tournées de façon à obtenir un cylindre d'environ 140 mm de diamètre et de hauteur. Pour les deux séries, les cylindres tournés ont été chassés dans une billette de cuivre de 157 mm de diamètre et d'environ 250 mm de hauteur. La co-extrusion a été effectuée entre 770 et 820°C à un diamètre de 22 mm, permettant ensuite un fort écrouissage à froid. Comme les cylindres des différents alliages étudiés se trouvaient du côté de la filière lors de l'extrusion et que leurs dimensions étaient suffisantes, au moins un mètre de matériau extrudé ne contenait que les alliages étudiés et pas de cuivre de la billette de co-extrusion. Nous n'avons donc utilisés pour l'écrouissage à froid postérieur qu'environ le premier mètre des barres extrudées.

### 3.5. Étirage

Les matériaux extrudés ont été étirés à froid et sans recuit intermédiaire du diamètre d'extrusion de 22 mm à un diamètre pouvant aller jusqu'à 0.09 mm. L'étirage s'est fait à l'aide de filières présentant un angle d'entrée de 7° au maximum (variant entre 5 et 7° suivant leur taux d'usure). Du diamètre de 22 mm à 0.6 mm, les filières étaient en métal dur, et de 0.55 à 0.09 mm en diamant naturel. Le taux de déformation par passe augmentait d'environ 10% entre le diamètre extrudé et un diamètre de 12 mm, à un maximum de 18% pour des diamètres de 6 à 2 mm. A partir d'un diamètre de 2 mm, le taux de déformation diminuait progressivement jusqu'à environ 12% à un diamètre de 0.09 mm. Les vitesses de déformation utilisées étaient généralement inférieures à 40 s<sup>-1</sup> et supérieures à 10 s<sup>-1</sup>. Ces vitesses de déformation sont bien inférieures (facteur de 100 à 1000) à celles utilisées dans l'industrie.

Nous définissons le taux d'écrouissage de la façon suivante :

$$\eta = \ln\left(\frac{A_0}{A_f}\right) \quad (3.1)$$

avec  $A_0$  la section initiale avant étirage et  $A_f$  la section finale du fil.

Nous n'avons donc pas tenu compte du taux de réduction lors de l'extrusion dans la définition de  $\eta$ . La raison en est que la structure fibreuse n'est pas encore établie après la presse et que l'extrusion n'a qu'un très faible effet sur la réduction de la taille de la microstructure.

### 3.6. Préparation et observation des échantillons

#### 3.6.1. Métallographie optique

La microstructure dans l'état initial et après de faibles taux d'écouissage a été observée par microscopie optique. Les poudres atomisées et les matériaux denses ont été enrobés dans de la bakélite, polis mécaniquement sur des disques abrasifs, puis à l'alumine 300 et 20 nm et parfois vibrés dans une suspension d'alumine de 20 nm. L'attaque chimique des échantillons s'est faite avec une solution de 100 ml d' $H_2O$ , 8 ml de  $H_2SO_4$ , 1.5 g de NaCl et 2 g de  $K_2 Cr_2 O_2$ .

En raison de la finesse des microstructures obtenues après étirage, nous avons relativement peu utilisé la microscopie optique. En effet, la résolution optique est de l'ordre de 200 nm ce qui est largement supérieur à l'échelle des microstructures obtenues après un important écouissage.

#### 3.6.2. Métallographie électronique à balayage

Nous avons utilisé un microscope électronique à balayage (MEB) Cambridge Stereoscan 360 équipé d'un détecteur d'électrons secondaires, d'un détecteur semi-conducteur d'électrons rétrodiffusés et d'un détecteur de rayons-x (EDS = "Energy Dispersive Spectroscopy") pouvant travailler sans fenêtre de protection, permettant de détecter les éléments légers tels que l'oxygène et le carbone.

Nous avons utilisé le MEB pour observer l'évolution de la microstructure après différents taux d'écouissage en coupes longitudinales et transversales, pour faire des analyses rayons-x ponctuelles et observer les surfaces de rupture obtenues après les essais de traction. Pour faire les observations sur les coupes, les échantillons ont été enrobés dans de la bakélite conductrice puis polis mécaniquement et vibrés de la même manière que pour la microscopie optique. Afin

d'obtenir un bon contraste chimique, les échantillons ont ensuite été généralement polis électrochimiquement dans une solution de 570 ml de H<sub>2</sub>O, 285 ml de H<sub>3</sub>PO<sub>4</sub>, 285 ml de méthanol, 57 ml de propanol et 3g d'urée.

### 3.6.3. Métallographie électronique en transmission

Nous avons utilisé la microscopie en transmission (MET) pour observer et quantifier l'évolution de la microstructure en fonction du taux d'écroutissage. Le microscope utilisé était un Philips CM12. Pour les fils de diamètre supérieur à 3 mm, un usinage mécanique jusqu'à 3 mm était nécessaire. Afin de pouvoir observer la microstructure de fils de diamètre inférieur (jusqu'à 0.25 mm), les fils ont été recouverts électrochimiquement, après dégraissage, par une couche de cuivre de façon à obtenir un diamètre global proche de 3 mm. La solution utilisée était essentiellement un mélange de sulfate de cuivre et d'acide sulfurique. Tous les fils, recouverts ou non, ont été découpés mécaniquement à l'aide d'une scie diamantée de façon à obtenir un disque d'une épaisseur d'environ 300 µm. Les lames minces ont été préparées par polissage électrolytique avec une solution de 25% HNO<sub>3</sub>, 65% de méthanol et 5% de Butoxyl à environ -30°C et 7V.

Le MET était équipé d'un système d'analyse par rayons-x (EDS) permettant de détecter les éléments légers jusqu'au carbone.

### 3.7. Métallographie quantitative

La quantification précise de l'évolution des paramètres microstructuraux après différents taux d'écroutissage a été effectuée à partir d'images obtenues au MET à fort grossissement soit en champ clair soit en champ noir. Les mesures ont été effectuées sur des coupes transversales et les grandeurs suivantes ont été quantifiées :

- Le diamètre moyen, égal à la moyenne de la somme du plus grand ferret et du plus court divisé par deux.
- La fraction de phase cubique centrée qui se trouve sous la forme de rubans.
- La fraction d'interface (joint de grains) occupée par des rubans de phase cubique centrée.
- Le nombre de petites particules de phase cubique centrée se trouvant à l'intérieur des grains de la matrice.

- La valeur de l'épaisseur moyenne des rubans,  $t$ , et de leur largeur moyenne,  $w$ , tandis que leur longueur moyenne,  $l$ , a été estimée à partir du diamètre moyen des particules après compaction ou déposition.

Les valeurs de l'épaisseur moyenne des rubans et de leur largeur ont été mesurées à partir de mesures individuelles faites à la main sur les photos MET à fort grossissement. Les autres grandeurs mesurées ont été obtenues par un analyseur d'images Cambridge Quantimet 970 à partir de transparents sur lesquels étaient reportés les parties de la microstructure à mesurer.

Les microstructures initiales des poudres atomisées (tailles de grains du cuivre et diamètres moyens des particules de phase cubique centrée) ont été quantifiées de façon similaire à partir de micrographies provenant du microscope optique ou du MEB.

### 3.7.1. Mesure de la distance interparticulaire entre particules sphériques

La fraction volumique,  $f_v$ , de particules sphériques de diamètre moyen,  $\phi$ , est reliée au nombre de particules par unité de volume,  $N_v$ , par la relation:

$$f_v = \frac{4}{3} \pi \left(\frac{\phi}{2}\right)^3 N_v \quad (3.2)$$

Le nombre de particules par unité de surface,  $N_s$ , est donné par [60] :

$$N_s = \phi N_v \quad (3.3)$$

La distance moyenne entre les particules dans le volume  $\lambda_v$  peut être décrite par :

$$\lambda_v = \frac{1}{\sqrt[3]{N_v}} \quad (3.4)$$

Tandis que la distance moyenne entre particules dans un plan,  $\lambda_p$ , peut être estimée par la relation :

$$\lambda_p = \frac{1}{\sqrt{N_v \phi}} \quad (3.5)$$

La relation (3.5) permet en connaissant le nombre de particules par unité de volume ainsi que le diamètre moyen de calculer la distance interparticulaire.

L'épaisseur de la lame, nécessaire pour la mesure de la fraction volumique de particules a été estimée en utilisant les franges de contraste aux joints de grains, dans les conditions de diffraction proches de celles de Bragg [61] avec des vecteurs de diffraction de type 111.

### 3.7.2. Mesure de la distance interparticulaire entre rubans

Dans les analyses de l'augmentation du point d'écoulement par une dispersion de particules, ce n'est souvent pas la distance interparticulaire moyenne, mais la distance libre entre les deux particules, supposées sphériques, qui joue le rôle important ( $\lambda_p - \phi$ ). Il faut noter que la forme des particules joue un rôle important sur le durcissement par dispersion. Ainsi, une dispersion de particules sous forme de rubans est plus efficace du point de vue du durcissement qu'une distribution sphérique de particules.

Du fait que l'épaisseur des rubans est très petite par rapport aux distances considérées, la distance moyenne entre les centres des extrémités des rubans,  $\lambda'$ , peut être considérée comme la distance libre entre les rubans. Un schéma illustrant les différences entre  $\lambda'$  et  $\lambda_p$  en fonction de la morphologie des particules de la distribution est donné à la figure 5.4 dans le chapitre § 5.3. *Nouveau modèle décrivant les propriétés mécaniques de l'alliage Cu15Fe*. Le calcul de cette distance pour des obstacles allongés distribués de façon aléatoire n'a pas encore été publié à notre connaissance, mais le cas simple d'obstacles parallèles d'épaisseur nulle a été approximé par Kelly [62].

Les différents résultats obtenus peuvent être exprimés en première approximation par la relation :

$$\lambda' = \frac{\lambda_p^2}{(\lambda_p + w)} \quad (3.6)$$

où  $\lambda_p$  est la distance moyenne centre à centre dans le plan,  $w$  est la largeur des rubans et  $\lambda'$  est la distance moyenne d'extrémité à extrémité. Cette équation ne s'applique rigoureusement qu'à des obstacles linéaires parallèles.

### 3.8. Essais mécaniques

Des essais de traction et de compression ont été effectués sur les matériaux extrudés et après différents taux d'écroutissage.

L'évaluation des propriétés mécaniques a été effectuée sur une machine universelle Schenck équipée avec un extensomètre pour la mesure précise de la déformation.

#### 3.8.1. Essais de traction

De manière générale, les échantillons de traction dont le diamètre était supérieur à 3 mm ont été usinés à un diamètre de jauge de 3 mm. La longueur de jauge était de 20 mm et la longueur totale de l'éprouvette était au minimum de 56 mm. Après usinage, les éprouvettes ont été polies mécaniquement au papier abrasif. Afin de juger de l'effet de l'usinage sur les propriétés mécaniques, certains échantillons de diamètre supérieur à 3 mm ont été testés sans usinage et des échantillons de diamètre inférieur à 3 mm ont été usinés avant d'être testés. La vitesse de déformation (estimée à partir de la vitesse de la traverse) était d'environ  $2.5 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$  pour tous les essais exceptés ceux effectués pour déterminer le volume d'activation.

Pour les fils de diamètres les plus petits, l'extensomètre était soutenu, afin d'éviter une trop grande déflexion du fil ainsi qu'une influence sur la charge mesurée, et des mors plats pratiquement lisses ont été utilisés afin d'éviter autant que possible la formation d'entailles dans le fil.

Pour la détermination du volume d'activation, des sauts de vitesse de déformation ont été effectués. Cela a été possible en faisant passer la vitesse de déplacement de la traverse de 0.1 à 1.1 mm/min. Pour ces deux vitesses de traverse, la vitesse de déformation réelle des éprouvettes en fonction de la déformation a été mesurée.

#### 3.8.2. Essais de compression

De la même manière que pour les essais de traction et de façon générale, les échantillons de diamètre supérieur à 3 mm ont été usinés à 3 mm puis polis mécaniquement. Pour les fils de diamètre inférieur, les échantillons n'ont généralement pas été tournés. Les échantillons de compression ont été découpés après tournage et polissage à l'aide d'une scie diamantée, puis polis mécaniquement à l'aide de différents papiers abrasifs. La hauteur de tous les échantillons de compression a été choisie de façon à ce qu'elle soit égale à environ deux fois le diamètre. La vitesse de déformation pour les échantillons de 3 mm de diamètre était égale à celle utilisée pour

les essais de traction ( $2.5 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ ). Par contre, pour les échantillons de diamètre plus petit que 3 mm, la vitesse de déformation augmentait progressivement. Elle était environ égale à  $8 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$  pour les échantillons d'environ 1 mm de diamètre.

### 3.9. Mesures par rayons-x

Nous avons utilisé un diffractomètre Philips avec une anticathode de cuivre ( $\lambda_{\alpha} = 1.54060 \text{ \AA}$ ) pour toutes les mesures effectuées par rayons-x. Le diffractomètre utilisé possède une fente de divergence variable, augmentant l'intensité aux grands angles. Du fait que les données étalon et les diverses relations décrivant l'intensité diffractée sont basées sur des systèmes à fente de divergence fixe, une correction des valeurs mesurées est parfois indispensable.

Afin de tenir compte de la largeur instrumentale liée à la divergence du faisceau de rayons-x, lors des mesures de largeur des pics et de l'intensité, nous avons utilisé un standard de poudres de silicium agglomérées. Un tel standard doit être pur, exempt de microcontrainte, non texturé et présenter une grande taille de grain afin d'éviter un élargissement des pics liés à la microstructure et aux contraintes. Pour les pics de diffraction très étroits, l'élargissement instrumental est essentiellement du type Gaussien. Par contre, les pics larges sont mieux décrits par des courbes du type Lorentzien.

Nous avons soustrait la largeur instrumentale,  $\beta_{\text{inst}}$ , à la largeur mesurée du pic  $\beta_{\text{mes}}$ , en supposant que les deux pics pouvaient être décrits par des courbes du type Gaussien.

Dans ce cas, la relation suivante doit être utilisée :

$$\beta_{\text{éch.}}^2 = \beta_{\text{mes.}}^2 - \beta_{\text{inst.}}^2 \quad (3.7)$$

avec  $\beta_{\text{éch.}}$ , la largeur du pic de diffraction due à l'échantillon lui-même.

Ce choix se justifie par le fait que lorsque le pic devient large, la contribution de la largeur instrumentale devient très faible et l'erreur commise devient négligeable, tandis que lorsque les pics sont étroits et peuvent être décrits assez précisément par une Gaussienne, cette contribution joue un rôle plus important.

### 3.9.1. Évolution de la texture

L'évolution de la texture de la matrice du cuivre et des particules de phase cubique centrée après extrusion et différents taux d'étrirage a été examinée sur des coupes transversales. Seuls les échantillons de Cu15Fe de la première série ont été étudiés. Les échantillons ont été découpés de façon à obtenir de petits cylindres qui ont été disposés verticalement puis enrobés dans une colle à deux composants (Araldit).

Afin de tenir compte de la fente variable et de pouvoir comparer les intensités des différents pics, nous avons calibré la variation d'intensité en prenant comme standard non-texturé, les poudres atomisées et compactées de Cu15Fe. Les valeurs d'intensité obtenues ont été comparées avec celles données comme standard pour le cuivre et le fer (fichier de standards JCPDS).

Nous avons mesuré à l'aide d'un planimètre, l'intensité des différents pics de diffraction traités pour éliminer les contributions du rayonnement  $K_{\alpha 2}$ . Pour quantifier l'évolution de la texture, nous avons utilisé le développement donné par Barrett et Massalski [63] page 204 :

Soit,  $P_{hkl}$ , la fraction des cristaux qui ont un plan  $\{hkl\}$  normal à l'axe du fil. On définit  $P_{hkl}$  de façon que pour un échantillon non-texturé, l'intégrale de tous les  $P_{hkl}$  sur tout l'angle solide soit égale à  $\bar{P} = 1$ .

Le rapport de l'intensité d'un pic d'un échantillon texturé,  $I_{hkl}$  et d'un pic d'un échantillon non-texturé,  $I_{n.t.,hkl}$  peut être exprimé par :

$$\frac{I_{hkl}}{I_{n.t.,hkl}} = \frac{C}{C_{n.t.}} P_{hkl} \quad (3.8)$$

avec  $C_{n.t.}$  et  $C$  constantes pour un échantillon donné.

Si l'on applique cette équation à un grand nombre de réflexions  $n$  :

$$\frac{1}{n} \sum \frac{I_{hkl}}{I_{n.t.,hkl}} = \frac{C}{C_{n.t.}} \frac{\sum P_{hkl}}{n} \quad (3.9)$$

et comme le terme  $\frac{\sum P_{hkl}}{n} \approx 1$  pour  $n$  grand :

$$\frac{C}{C_{n.t.}} = \frac{1}{n} \sum \frac{I_{hkl}}{I_{n.t.,hkl}} \quad (3.10)$$

L'équation (3.10) permet d'éliminer le facteur  $\frac{C}{C_{n.t.}}$  de l'équation (3.8). On obtient ainsi:

$$P_{hkl} = \frac{\frac{I_{hkl}}{I_{n.t.,hkl}}}{\frac{1}{n} \sum \frac{I_{hkl}}{I_{n.t.,hkl}}} \quad (3.11)$$

Nous avons normé ensuite les valeurs de façon à ce que la somme des  $P_{hkl}$  soit égale à 100 quelque soit le nombre de pics.

### 3.9.2. Mesures des contraintes internes

Les contraintes internes uniformes à l'intérieur des grains causent un déplacement des pics de diffraction. Nous avons mesuré le déplacement des pics de diffraction à partir de coupes longitudinales. Les différents fils ont été placés longitudinalement dans une colle à deux composants (Araldite) et polis mécaniquement jusqu'à l'alumine 20 nm. Après chaque polissage, une attaque chimique a été effectuée à l'aide de la même solution que pour la métallographie optique (§ 3.6.1. *Métallographie optique*) afin d'éliminer les couches de déformation. Les mesures ont été faites avec le Cu15Fe pour différents taux d'étirage, ainsi qu'après des essais de compression sur les fils plus ou moins écrouis.

Nous avons utilisé une méthode basée sur un état de contraintes uniaxiales pour estimer l'évolution des contraintes internes en fonction du taux d'étirage. Nous avons mesuré par rayons-x, la variation d'espacement entre différents plans cristallographiques parallèles à l'axe de la barre. Les contraintes internes parallèles à l'axe de la barre sont données par la relation [64] :

$$\sigma_{int.} = \frac{-E}{\nu} \left( \frac{d_n - d_0}{d_0} \right) \quad (3.12)$$

Avec  $d_n$ , l'espacement interplanaire sous charge,  $d_0$ , l'espacement des mêmes plans en l'absence de contraintes, E le module d'élasticité et  $\nu$  le coefficient de Poisson.

### 3.9.3. Mesures des microcontraintes

L'évolution des microcontraintes des grains de cuivre et des rubans de la phase cubique centrée en fonction du taux d'étirage a été mesurée à partir de coupes longitudinales. La largeur à mi-hauteur des pics de diffraction a été mesurée sur les pics après soustraction du doublet  $K_{\alpha 2}$ . Afin de tenir compte de l'élargissement instrumental, nous avons utilisé la relation (3.7). Lors de l'étirage, les tailles de grains des deux phases diminuent et les microdéformations varient. Afin de séparer ces deux contributions à l'élargissement des pics de diffraction, nous avons utilisé la relation de Hall-Williamson [65]:

$$\beta_{\text{exp.}} \cos \theta = \frac{K \cdot \lambda}{\phi} + 2 \varepsilon \sin \theta \quad (3.13)$$

avec  $\beta_{\text{exp.}}$  la largeur à mi-hauteur corrigée de l'élargissement instrumental,  $\theta$  l'angle de diffraction,  $K$  la constante de Scherrer (considérée égale à 0.9),  $\varepsilon$  les microdéformations,  $\phi$  la taille moyenne des cristallites diffractants et  $\lambda$  la longueur d'onde.

La représentation de  $\beta_{\text{exp.}} \cos \theta$  en fonction de  $\sin \theta$  donne une droite dont la pente est égale à  $2\varepsilon$  et dont l'ordonnée à l'origine est égale à  $(K \cdot \lambda) / \phi$ . Ainsi, les valeurs des microcontraintes peuvent être obtenues à partir des valeurs de  $\varepsilon$  à l'aide de la loi de Hooke et les valeurs de la taille des cristallites peuvent être obtenues à partir de l'ordonnée à l'origine.

## 4. Résultats et analyses

Nous présenterons d'abord l'évolution des microstructures lors de l'étirage ainsi que la quantification de celle-ci. Par la suite, nous présenterons les résultats des essais mécaniques ainsi que des mesures de contraintes internes obtenues à l'aide de rayons-x. Nous terminerons par une description qualitative du comportement de la microstructure lors de traitements thermiques.

### 4.1. Microstructures initiales

#### 4.1.1. Poudres atomisées

Les poudres atomisées de chacun des alliages avaient une taille inférieure à  $250\ \mu\text{m}$  et une taille moyenne variant entre  $40$  et  $90\ \mu\text{m}$ . La figure 4.1 présente deux exemples illustrant les différents aspects des distributions de particules atomisées pour les alliages Cu5Fe et Cu15Fe.

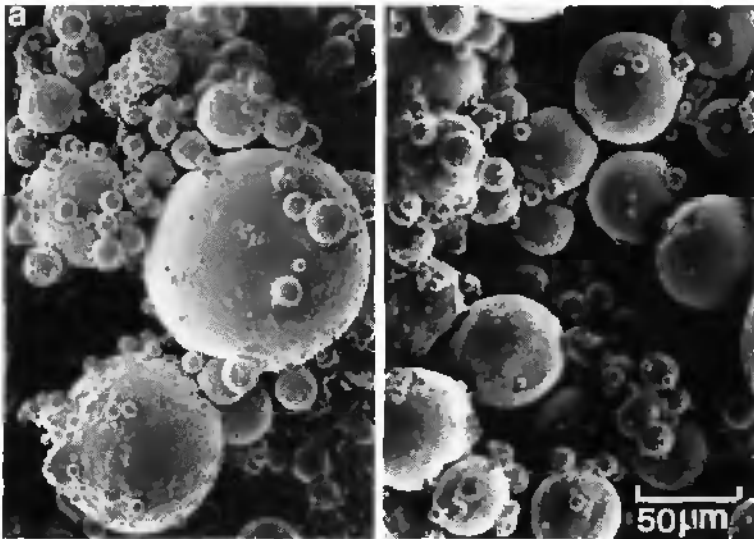


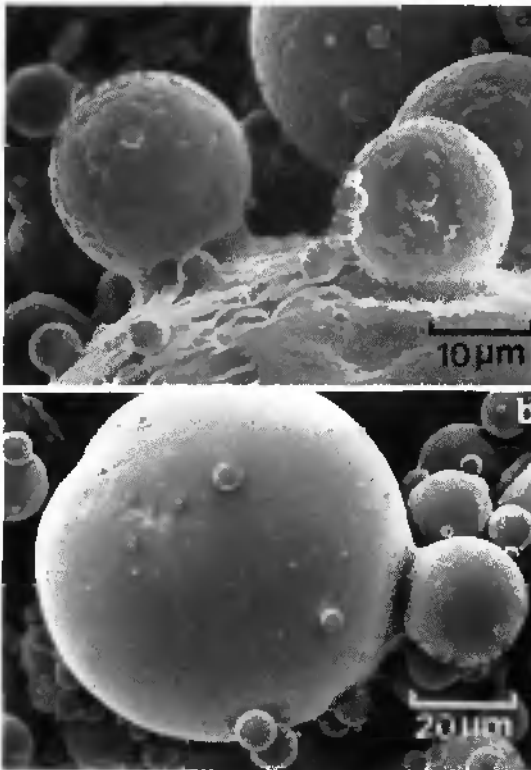
Figure 4.1. : Aspects de la distribution en taille des poudres atomisées des alliages : a) Cu15Fe et b) Cu5Fe en électrons secondaires au MEB.

## **Chapitre 4**

=====

### **Résultats et analyses**

Les grosses particules de poudre de chacun des alliages étaient entourées d'un très grand nombre de plus petites particules. Ces satellites sont dus aux collisions entre les grandes particules semi-liquides et de plus petites particules solides qui se collent sur la surface grâce à la fraction de liquide attirée par capillarité à l'interface. La présence d'un grand nombre de petites particules rigidement liées aux grosses provoque un décalage vers les grandes dimensions de la distribution en taille des particules tamisées (données dans le § 3.1.1. *Matériaux de la première série*). Les poudres présentent une surface irrégulière liée à la sous-structure de solidification du cuivre. La figure 4.2 montre la morphologie de la surface des poudres atomisées de Cu15Fe et de Cu3Nb. Les cellules de solidification de la matrice de cuivre présentent des tailles plus petites pour les alliages concentrés que pour les alliages dilués, si bien que les surfaces des poudres provenant d'alliages concentrés ont un aspect "rugueux" ce qui n'est pas le cas des alliages dilués comme le Cu3Nb où la taille des cellules est proche des dimensions des particules de poudre.



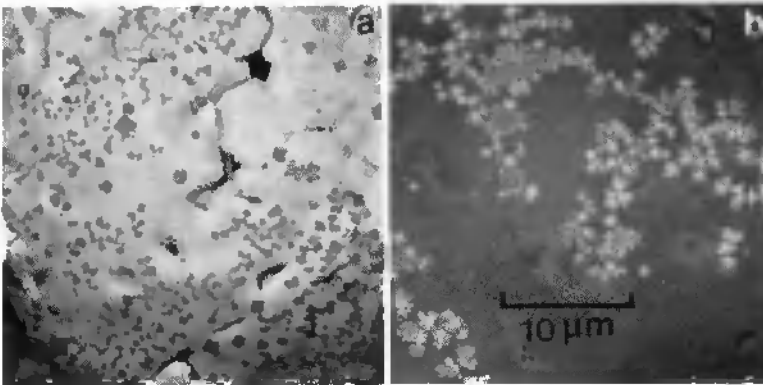
**Figure 4.2 :** Détails de la distribution des poudres atomisées des alliages : a) Cu15Fe et b) Cu3Nb au MEB.

Dans les grandes particules de poudre, nous avons parfois observé des pores et ceci spécialement dans l'alliage Cu5Fe. Pour des tailles de poudre atomisée inférieure à 50  $\mu\text{m}$ , ces pores avaient complètement disparu. L'aspect des surfaces intérieures créées par la présence de pores était très similaire à celui des surfaces extérieures et présentait aussi une morphologie liée à la sous-structure de solidification. La présence de poches de gaz à l'intérieur de particules atomisées sous des conditions subsoniques est liée au fait que les ligaments de métal liquide se transforment en gouttes sphéroïdales par différents mécanismes qui vont permettre parfois à la gouttelette de capturer du gaz d'atomisation. Après compaction et extrusion, des pores avec du gaz emprisonné n'étaient plus visibles.

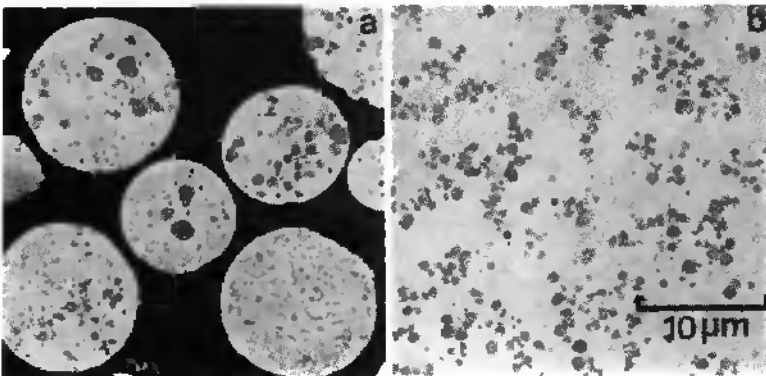
La phase cubique centrée est visible à la surface des particules de poudres atomisées et l'on observe qu'il n'y a pas de ségrégation liée à la morphologie de surface des poudres. La phase cubique centrée est généralement présente sous la forme de sphéroïdes, mais l'on remarque aussi parfois de petites dendrites. La figure 4.3 illustre la dispersion et la morphologie de la phase cubique centrée à la surface de poudres atomisées des alliages Cu15Cr et Cu3Nb; les deux particules considérées avaient une taille proche de 80  $\mu\text{m}$ . La tendance à la formation de dendrites augmente avec la concentration de l'alliage, mais c'est l'alliage de niobium qui forme le plus fréquemment des dendrites malgré sa faible concentration. Le fer se solidifie le moins facilement sous la forme de dendrites. Un des paramètres influençant cette tendance est évidemment l'intervalle de solidification qui augmente avec la concentration mais de façon plus ou moins importante suivant les alliages. Ainsi, d'après [66], l'intervalle de solidification du Cu3Nb est d'environ 300°C, celui du Cu15Fe est de 260°C et celui du Cu15Cr est de 310°C.

D'importantes variations de taille des sphéroïdes de phase cubique centrée dans les plus fines particules de poudres atomisées sont observées. Ceci particulièrement dans l'alliage Cu15Fe. La figure 4.4 montre la distribution typique des particules de fer dans les poudres atomisées les plus fines (< 20  $\mu\text{m}$ ) et à titre de comparaison, dans une particule de poudre > 200  $\mu\text{m}$ .

On peut s'attendre à des différences de microstructure importantes en fonction de la taille des particules de poudres si celles-ci subissent une très forte surfusion due à l'absence de germe. On suppose dans ce cas, qu'il en existe dans le liquide une certaine quantité favorisant la germination hétérogène et que la probabilité d'avoir de tels germes dans les particules diminue avec le volume.



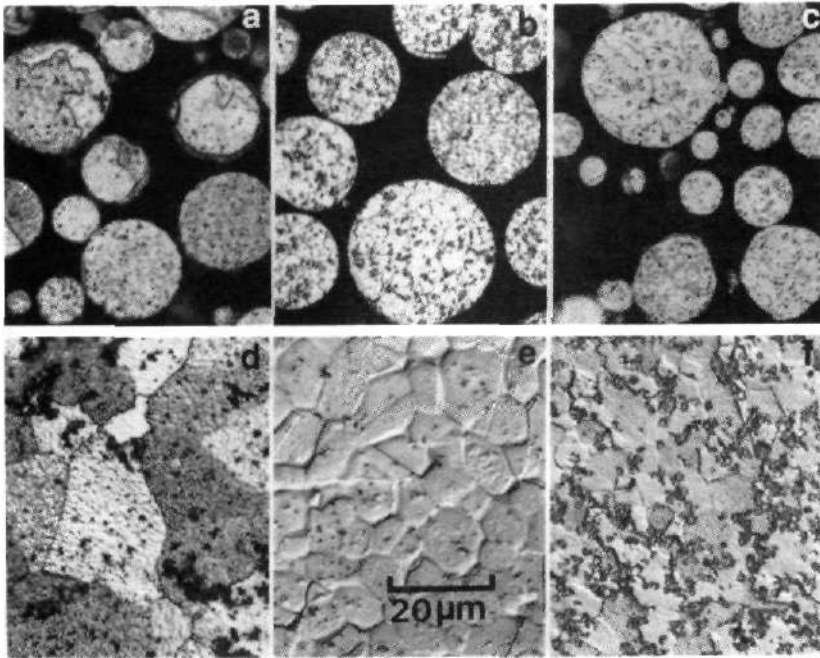
**Figure 4.3 :** Aspect de la distribution et de la morphologie de la phase cubique centrée à la surface des poudres atomisées : a) Cu15Cr et b) Cu3Nb.



**Figure 4.4 :** Aspect de la distribution du fer dans la matrice de cuivre :  
a) Cu15Fe particules de poudres < 20  $\mu\text{m}$ .  
b) Cu15Fe particules de poudres > 200  $\mu\text{m}$ .

L'alliage Cu5Fe est intéressant dans ce contexte. En effet, le fer est de loin l'élément le plus soluble dans la matrice de cuivre des trois éléments considérés. Sa solubilité chute avec la température de 2.5% poids à 1025°C à 0.5% poids à 700°C [67]. Si la surfusion des petites particules (inférieures à 20  $\mu\text{m}$ ) lors de l'atomisation était importante, on pourrait s'attendre à une sursaturation élevée du fer dans la matrice de cuivre et à une réduction de la densité des sphéroïdes de fer. Cependant, ceux-ci sont bien visibles dans la grande majorité des petites particules de poudres atomisées, même en microscopie optique, comme on peut le voir à la figure 4.5 b). Verhoeven [68] a observé une réaction monotéctique métastable aboutissant à la formation de sphéroïdes biphasés présentant une structure de type eutectique dans des alliages de cuivre contenant 15 et 20% poids de niobium qui avaient été contaminés avec de l'oxygène. Mais des hautes vitesses de solidification peuvent aussi favoriser cette séparation de la phase liquide [69]. C'est le système cuivre-niobium qui semble le plus sensible à cette réaction et ceci pour des concentrations relativement élevées. Cette réaction ne joue donc aucun rôle sur l'aspect de la microstructure de nos alliages.

Les deux classes extrêmes de taille de chacune des poudres atomisées ont été observées au microscope optique afin de permettre la quantification de la variation de la taille de grains entre les différents alliages et les différentes tailles de poudres. La figure 4.5 montre un aperçu des micrographies obtenues. La taille de grains de la matrice de cuivre est d'autant plus petite que la taille des particules de poudre est fine et que la concentration de l'alliage est élevée. Nous avons quantifié les différentes tailles de grains à partir des microstructures obtenues optiquement et la taille des sphéroïdes de phase cubique centrée à partir des microstructures obtenues aux MEB. Le diamètre moyen,  $\Phi_{\text{moyen}}$ , et le diamètre maximal,  $\Phi_{\text{max}}$ , des grains de cuivre et des sphéroïdes de la phase cubique centrée ont été mesurés à l'aide d'un analyseur d'images (§ 3.7. *Métallographie quantitative*). Le Tableau 4.1 résume les résultats quantitatifs que nous avons obtenus.



**Figure 4.5.** : Micrographies optiques montrant la variation de la taille de grains et de la distribution de la phase cubique centrée entre différents alliages et différentes tailles de particules de poudre :

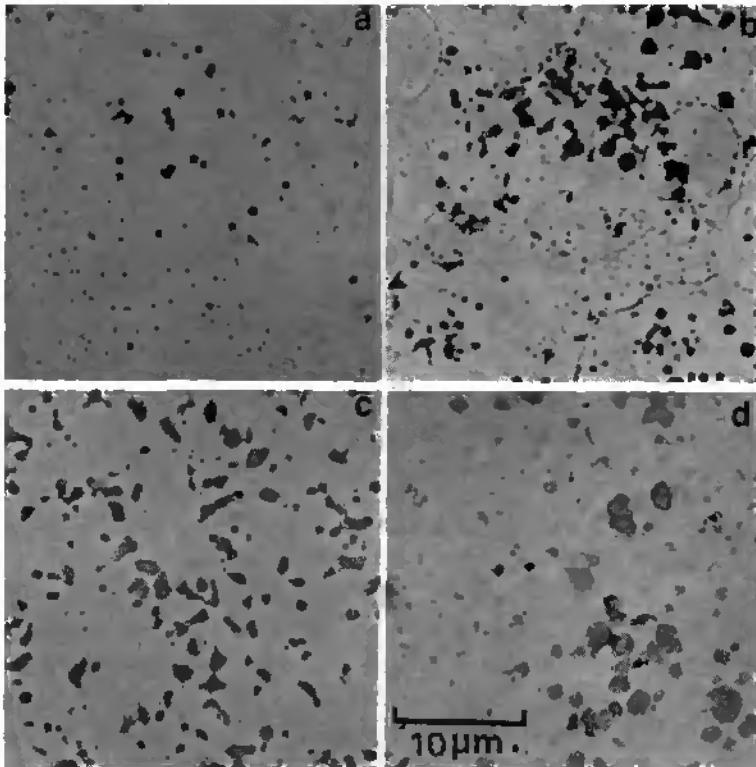
- a) et d) Cu<sub>3</sub>Nb poudres < 20 μm et > 200 μm, respectivement.
- b) et e) Cu<sub>5</sub>Fe poudres < 20 μm et > 200 μm, respectivement.
- c) et f) Cu<sub>15</sub>Fe poudres < 20 μm et > 200 μm, respectivement.

**Tableau 4.1 :** Résultats de l'analyse quantitative de la microstructure des poudres atomisées des alliages de la première série.

Alliages	Gaz d'atomisation	Taille grains de Cu < 20 $\mu\text{m}^*$	Taille grains de Cu > 160 $\mu\text{m}^*$	Taille des sphéroïdes < 20 $\mu\text{m}^*$		Taille des sphéroïdes > 160 $\mu\text{m}^*$	
		[ $\mu\text{m}$ ]	[ $\mu\text{m}$ ]	$\phi_{\text{max}}$	$\phi_{\text{moyen}}$	$\phi_{\text{max}}$	$\phi_{\text{moyen}}$
Cu5Cr	N <sub>2</sub>	2.2	10.8	0.5	0.4	1.0	0.5
Cu5Cr	Ar	3.3	11.6	0.6	0.4	1.0	0.5
Cu5Fe	Ar	2.2	6.3	0.8	0.5	1.5	0.7
Cu3Nb	Ar	5.8	15.2	0.3	0.2	0.5	0.3
Cu15Fe	Ar	1.9	6.1	2.0	0.6	2.0	0.7
Cu15Cr	Ar	2.6	6.1	1.0	0.8	4.0	1.5

\* Les tailles moyennes des sphéroïdes des phases cubiques centrées et des grains de cuivre de la matrice sont données pour deux classes extrêmes de chacun des différents alliages atomisés < 20  $\mu\text{m}$  et > 160  $\mu\text{m}$ .

Comme nous l'avons vu, nous n'avons pas de changement de la microstructure autre que dimensionnel. De plus, au vu de la distribution de taille et de la variation des dimensions de la microstructure en fonction du diamètre des particules de poudres atomisées, les dimensions de la microstructure qui vont jouer un rôle sont proches de celles des particules de poudre > 160  $\mu\text{m}$ .



**Figure 4.6 :** Comparaison de la microstructure après compaction des alliages :  
a) Cu5Cr, b) Cu15Cr, c) Cu15Fe et d) Cu15Fe N°12 spray-déposé.

#### 4.2. Évolution de la microstructure en fonction du taux d'écroutissage

##### 4.2.1. Comportement lors de l'extrusion

Le comportement lors de l'extrusion des particules des phases cubiques centrées est complexe et dépend de nombreux paramètres comme le type d'éléments considérés, la température, la taille des particules, leur fraction volumique et leur contamination. Lors de l'extrusion des alliages de la première série, seules les particules de l'alliage concentré contenant du fer se sont allongées de façon significative. Les particules de chrome ne se déforment pratiquement pas

#### 4.1.2. Poudres atomisées compactées à chaud et billettes Osprey

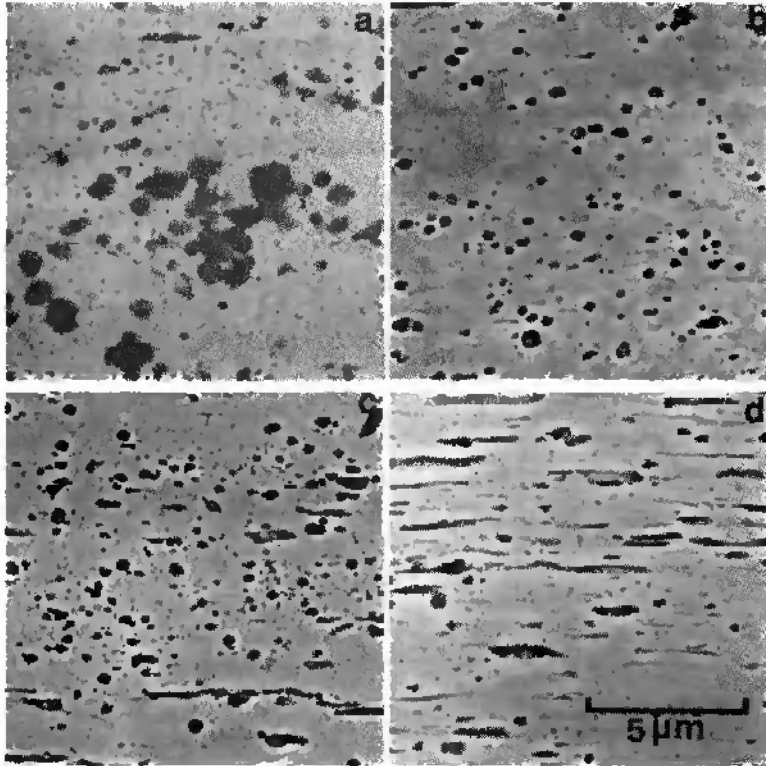
Après compaction, les poudres préallliées montraient une fine dispersion de la phase cubique centrée dans la matrice de cuivre. Dans les poudres compactées, la phase cubique centrée, se trouve sous la forme d'un mélange de petites dendrites et de sphéroïdes. La figure 4.6 a), b) et c) montre l'aspect de la distribution des particules de phase cubique centrée pour les alliages Cu5Cr, Cu15Cr et Cu15Fe, respectivement.

La mesure de la taille moyenne des particules de fer à l'intérieur de l'alliage Cu15Fe compacté, produit à partir des poudres préallliées, est égale à celle mesurée sur les poudres atomisées de taille supérieure à 160  $\mu\text{m}$ . Ceci provient de la contribution de deux facteurs opposés : la faible coalescence des particules lors de la compaction isostatique à chaud et la diminution de la taille moyenne apparente liée au fait que l'on ne compacte pas seulement les poudres de taille supérieure à 160  $\mu\text{m}$  mais toute la gamme de tailles des particules.

La taille de la phase cubique centrée dans les billettes Osprey est légèrement plus élevée que celle obtenue après la compaction des poudres atomisées du même alliage. En effet, le diamètre moyen du fer est d'environ 1.1  $\mu\text{m}$  pour l'alliage Cu15Fe N° 12 tandis qu'il est de 0.7  $\mu\text{m}$  pour les poudres compactées. L'aspect de la distribution des particules des particules de fer de l'alliage spray-déposé Cu15Fe N°12 est montré à la figure 4.6 d). Bien que la distribution du fer soit un mélange de petites dendrites et de sphéroïdes dans les deux cas, le nombre de dendrites visibles est nettement moins grand dans l'alliage déposé. Les particules de fer présentes dans la billette Osprey ont une forme plus ou moins sphérique. Celle-ci est due à la forte convection et à l'importante turbulence à la surface de la billette Osprey lors de la déposition qui assurent une homogénéisation de la température et de la composition autour du germe limitant ainsi la croissance dendritique.

La fraction de surface occupée par les particules de fer dans les alliages Cu15Fe a été mesurée à environ 14% dans les deux cas (alliages compactés à chaud et billettes Osprey), ce qui correspond pratiquement à la valeur nominale et à la valeur mesurée par les analyses chimiques.

durant l'extrusion et le niobium de l'alliage Cu3Nb ne s'allonge que très peu. La figure 4.7 a), b) et c) montre à partir des coupes longitudinales la microstructure après extrusion des alliages Cu15Cr, Cu5Fe et Cu15Fe de la première série, tandis que la figure 4.7 d) montre l'aspect de la microstructure de l'alliage spray-déposé Cu15Fe N°12 après extrusion.



**Figure 4.7 :** Micrographies électroniques illustrant le comportement de la phase cubique centrée lors de l'extrusion de différents alliages produits à partir des poudres atomisées : a) Cu15Cr, b) Cu5Fe et c) Cu15Fe, ainsi que d) de l'alliage spray-déposé Cu15Fe N°12.

Le rôle de la contamination sur l'aptitude à la déformation de la phase cubique centrée lors de l'extrusion (et de l'écroutissage à froid ultérieur) est ressorti clairement lors de l'extrusion des alliages Cu15Fe de la deuxième série. En effet, dans les deux alliages contenant le moins de contamination, le fer s'allongeait fortement lors de l'extrusion, ce qui n'était pas le cas, par exemple, de l'alliage N° 7 qui était fortement contaminé.

Nous avons effectué quelques extrusions supplémentaires à partir des différentes poudres atomisées de cuivre-chrome, cuivre-niobium et cuivre-fer, ceci après compaction à chaud. Ces essais ont été faits à partir de petites quantités de poudre sur une presse de laboratoire. Les gammes de températures d'extrusion utilisées étaient de 500 à 800°C pour les alliages de chrome et de niobium et de 200 à 800°C pour les alliages de fer. Les résultats qualitatifs étaient les suivants :

- Le chrome s'allongeait plus facilement à basse qu'à haute température, mais cet allongement était généralement très faible et n'était nettement visible que pour les alliages concentrés extrudés à basses températures.
- Les particules de fer s'allongeaient passablement à haute température, mais nettement moins à basse température. Les alliages dilués ne présentaient qu'un allongement faible.
- L' alliage de niobium montre peu de différence de comportement en fonction de la température d'extrusion. Cependant sa concentration en élément cubique centré (3% volumique) était trop faible pour permettre une comparaison directe avec les alliages concentrés.

Il est apparu aussi clairement que la tendance des particules à se déformer augmente avec leur taille. Un tel comportement est illustré par la figure 4.7 c) et d) où la majorité des petites particules sphériques de fer de l'alliage Cu15Fe ne se sont pas fortement déformées. La déformation de la phase cubique centrée ne peut se faire que lorsque la contrainte agissant sur les plans de glissement dépasse la limite d'écoulement sur ceux-ci. Cette contrainte augmente avec l'incompatibilité de la déformation entre les deux phases et est donc une fonction croissante de la taille des particules. De plus, il est possible que les impuretés influencent de façon variable avec la taille des particules cette contrainte critique.

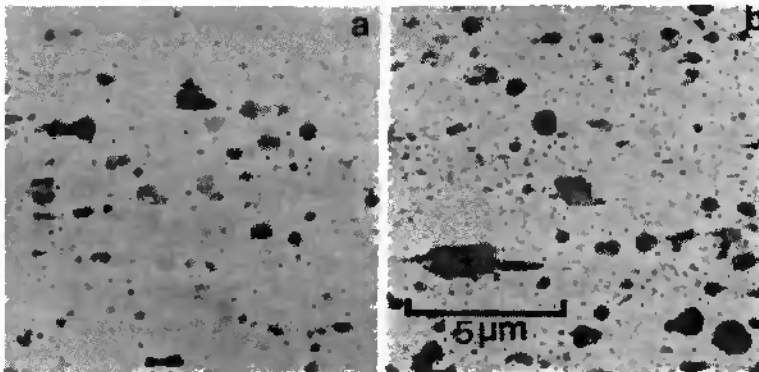
On remarque que, après extrusion, l'allongement des particules de fer des alliages Cu15Fe est nettement plus important pour l'alliage spray-déposé que pour l'alliage compacté. L'explication qualitative de ce comportement doit être liée à la taille initiale plus grossière des particules de fer, à la température d'extrusion qui était d'environ 25°C plus élevée ainsi peut-être qu'au taux

de contamination plus faible de l'alliage spray-déposé. Étant donné, que le taux d'allongement des phases cubiques centrées était toujours assez faible après extrusion, nous n'avons pas tenu compte de ces déformations pour calculer les valeurs du taux d'écroutissage défini par  $\eta$  (§ 3.5. Étirage).

#### 4.2.2. Comportement des alliages de chrome et de niobium lors de l'étirage

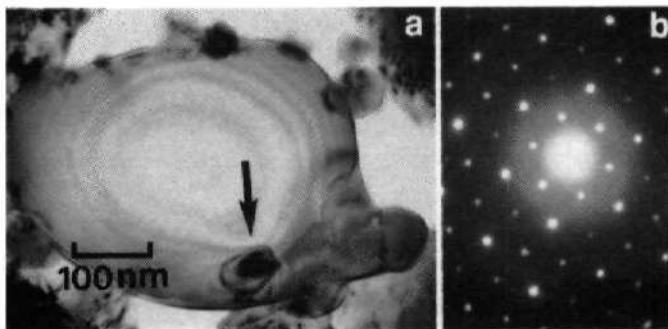
Dans l'alliage Cu3Nb, une partie des particules de niobium se transforme en rubans durant l'étirage. Cependant, la fraction volumique de deuxième phase est trop faible pour que l'augmentation des propriétés mécaniques (§ 4.4. Propriétés mécaniques) soit intéressante. Ainsi, nous avons choisi de limiter l'étude de la microstructure de cet alliage pour nous intéresser davantage aux alliages de chrome et de fer.

Lors de l'étirage des alliages Cu5Cr et Cu15Cr, les particules de chrome ne s'allongent que très peu. La figure 4.8 illustre l'aspect de la distribution et de la morphologie des particules de chrome après étirage à  $\eta = 1.21$  (70.2 %). Quelque soit le taux d'étirage, la majorité des particules de chrome ne s'est pas déformée.



**Figure 4.8.** : Coupes longitudinales des alliages a) Cu5Cr et b) Cu15Cr après étirage à  $\eta = 1.21$  (70.2 %).

La microstructure de l'alliage Cu5Cr après étirage à  $\eta = 4.0$  (98.2 %) et  $\eta = 6.2$  (99.8 %) a été observée en coupes transversales au MET. Un exemple d'une particule de chrome sphéroïdale après étirage ( $\eta = 4.0$ ) est donné à la figure 4.9. Les particules de chrome étaient souvent entourées par de plus petites particules qui contenaient des proportions importantes d'oxygène et/ou de carbone (analyse EDS). La figure 4.9 b) montre un axe de zone d'une de ces particules d'oxyde. Les distances interréticulaires obtenues montraient que la particule analysée était probablement  $\text{Cr}_3\text{O}_8$ . Cependant, une analyse systématique de ces oxydes et de ces carbures complexes n'a pas été effectuée car la composition chimique variait fortement et suggérait ainsi une grande variété de composés. Il faut noter cependant que la majorité du chrome se trouve sous la forme de grandes particules métalliques comme le montraient les figures de diffractions typiques.



**Figure 4.9 :** Exemple d'une particule de chrome à l'intérieur de l'alliage Cu5Cr étiré à  $\eta = 4.0$  (98.2 %). La particule de chrome est entourée par des oxydes ou des carbures complexes. Une figure de diffraction d'une des particules de contamination indiquée par une flèche est donnée à la figure b).

La figure 4.10 montre l'aspect de la microstructure de l'alliage Cu5Cr en coupes transversales obtenues au MET après un important étirage de  $\eta = 6.2$  (99.8 %). La taille moyenne des grains de cuivre après cet écrouissage est approximativement de 500 nm. La densité de dislocations à l'intérieur des grains est élevée et ces dislocations se trouvent souvent ancrées sur de petits précipités de chrome apparus lors de la solidification ou de l'extrusion. Quelques rares particules de chrome se transforment en rubans lors de l'étirage. Un exemple est donné à la figure 4.10 a).

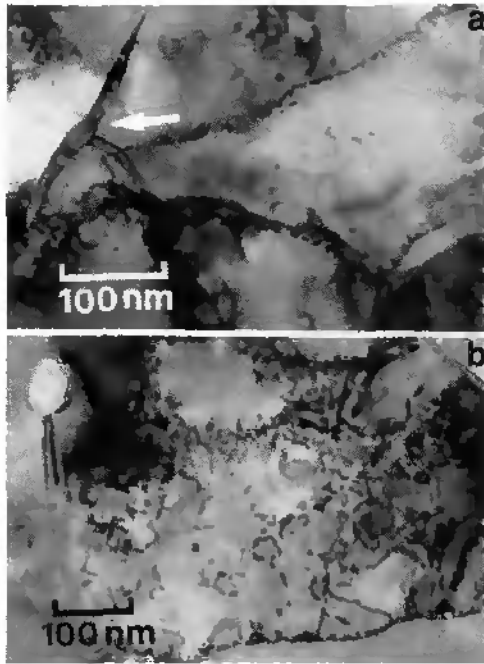


Figure 4.10. : Coupes transversales obtenues au MET (champ clair) de l'alliage Cu<sub>5</sub>Cr à  $\eta = 6.2$  (99.8 %). a) Un des rares rubans de chrome observés est indiqué par une flèche et b) aspect d'un grains de cuivre contenant une forte densité de dislocations.

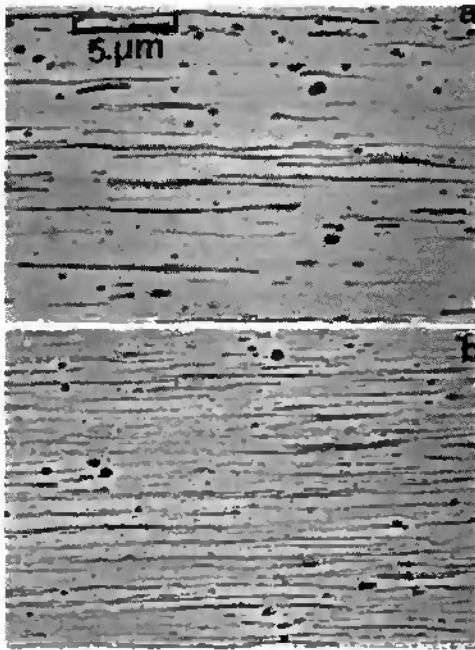
En accord avec le principe qu'il faut que la contrainte appliquée sur les plans de glissement des particules cubiques centrées dépasse la limite d'écoulement sur ces plans, la déformation des particules de chrome peut être empêchée lors de l'écrasement par l'augmentation du point d'écoulement lié au durcissement provoqué par des atomes contaminants en solution. Cet effet de durcissement est fortement fonction de la température et ne devrait pas jouer de rôle significatif lors de l'extrusion. Il est à noter que des composites *in-situ* d'alliages cuivre-chrome [70] dans lesquels la phase cubique centrée s'allongeait ont été obtenus à partir de lingots coulés.

Les effets cumulés du durcissement par solution solide et de la finesse de la distribution sont donc supposés être responsables du fait que les particules de chrome restent pratiquement sphériques dans nos alliages. Des travaux antérieurs [71] avec un alliage Cu-1.6%vol.Cr-0.2%vol.Zr obtenu par spray-déposition ont montré qu'après un fort étirage les particules de chrome s'allongeaient. Ceci confirme qu'un contrôle précis du taux d'impureté (par l'adjonction d'un désoxydant comme le zirconium ou par une atomisation plus propre) peut jouer un rôle prépondérant sur l'aptitude à la déformation du chrome.

L'effet du durcissement par solution solide de l'oxygène, empêchant l'allongement des particules de phase cubique centrée, a été aussi observé par Verhoeven [70] avec des alliages cuivre-tantale et cuivre-chrome produits par fusion par arcs.

#### 4.2.3. Comportement des alliages de fer lors de l'étirage

La fraction de particules de fer qui reste sphéroïdale lors de l'augmentation du taux d'étirage diminue. Un tel comportement a aussi été observé par Pourrahimi [72] avec des particules essentiellement monocristallines de niobium atomisées, mélangées avec des particules de cuivre atomisées puis compactées et étirées. Les particules de fer ne vont donc se déformer que lorsqu'un compromis optimal entre l'augmentation de la contrainte et la réorientation par rapport à l'axe d'étirage est atteint. La figure 4.11 montre l'évolution de la microstructure sur des coupes longitudinales de l'alliage Cu15Fe après deux différents taux d'étirage.



**Figure 4.11.** : Micrographies obtenues au MEB de coupes longitudinales de l'alliage Cu15Fe illustrant l'évolution de la microstructure après deux différents taux d'étirage : a)  $\eta \approx 1.21$  (70.2 %) et b)  $\eta = 4.0$  (98.2 %).

Durant la déformation, les sphéroïdes de fer s'allongent sous la forme de rubans. Mais pour accommoder les contraintes locales, ces rubans doivent se plier dans la direction transversale. Un tel comportement est illustré à la figure 4.12 où une section transversale de l'alliage Cu15Fe est montrée. Évidemment, cette tendance est d'autant plus grande que le rapport largeur sur épaisseur,  $w/t$ , des rubans est élevé.

Il est à noter que les rubans formés lors de l'écroutissage des composites *in-situ* formés à partir de lingots coulés présentent un rapport  $w/t$  plus élevé que ceux produits par spray-déposition pour des contraintes maximales semblables. Ceci provient évidemment de la taille initiale de la microstructure qui est plus importante pour les lingots coulés.

Comme on peut le voir sur les figures 4.11 et 4.12 une fraction des particules riches en fer ne se déforme pas, même après un fort éurage. Ces particules ont été analysées au MEB et au MET. Leur morphologie présentait des facettes et l'analyse EDS a montré que toutes ces particules contenaient une fraction importante mais variable d'oxygène et/ou de carbone.

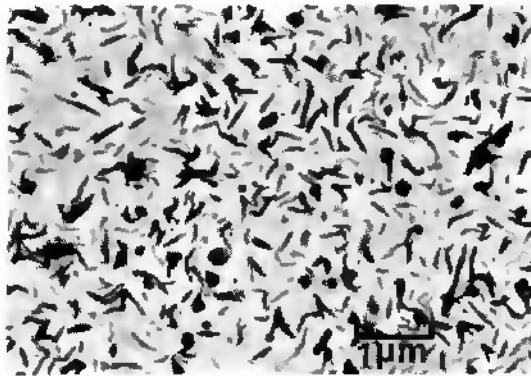


Figure 4.12. : Micrographie obtenue au MEB d'une coupe transversale de l'alliage Cu15Fe.

Certaines de ces particules ont été examinées par diffraction d'électrons au MET, la figure 4.13 montre l'aspect typique de l'une de ces particules ainsi que deux différents axes de zone. Les distances interplanaires ainsi que les symétries montrent dans la majorité des cas que ces particules ne sont pas des oxydes ou des carbures simples, mais probablement plutôt des composés complexes de fer, de carbone et d'oxygène. Cependant, une étude précise des différents composés n'a pas été faite au vu du faible intérêt que cela représentait dans le cadre de ce travail et de la diversité des particules présentes.

Le comportement lors de l'étirage de l'alliage Cu5Fe est très semblable à celui du Cu15Fe et la fraction volumique de particules riches en fer qui ne se déforme pas est semblable, si bien que la fraction de rubans est très faible dans cet alliage. Il est clair que durant le procédé de spray-déposition, les alliages ont pu être contaminés par de l'oxygène et du carbone. La fraction volumique des particules qui ne se déforment pas a été mesurée à environ 4% dans les deux alliages. En fait, les teneurs en oxygène mesurées après extrusion et étirage dans ces deux alliages (430 et 730  $\mu\text{g/g}$  respectivement) sont trop faibles pour permettre la formation de 4% volumique d'oxydes. C'est probablement la teneur en carbone qui est responsable du reste de la formation de composés.

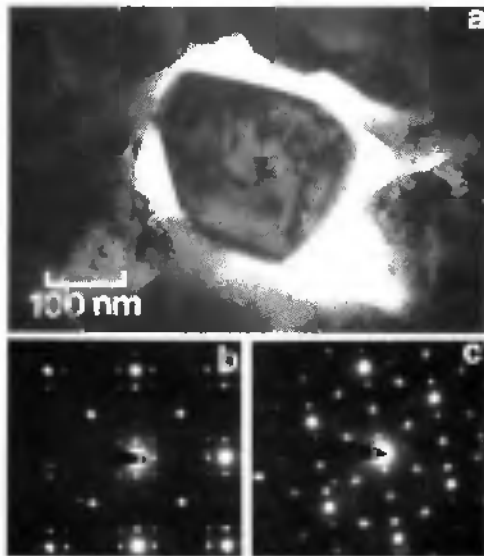
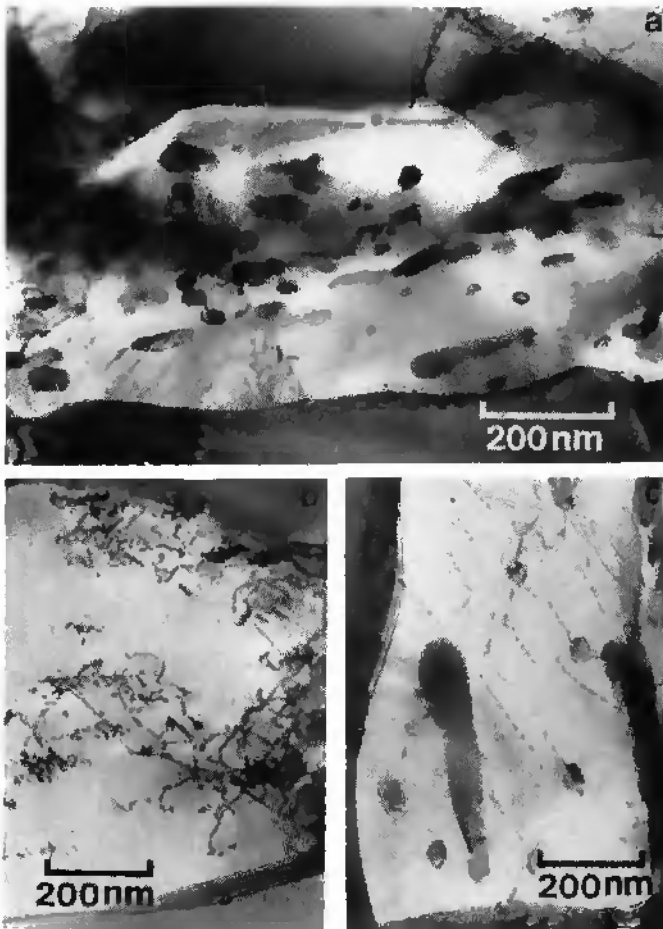


Figure 4.13. : Micrographies obtenues au MET de l'alliage Cu15Fe montrant : a) une particule de contamination présentant des facettes, b) et c) deux différents axes de zone de la particule.

La suite de la description de l'évolution de la microstructure après étirage ne concernera que l'alliage Cu15Fe, car c'est lui qui présentait les meilleures résistances mécaniques (§ 4.4. *Propriétés mécaniques*).

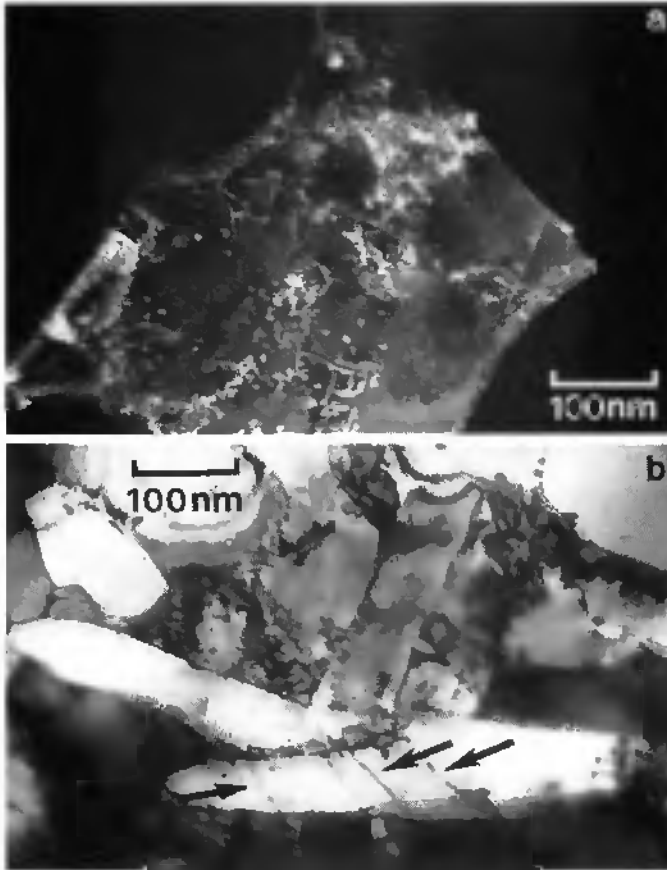
Après extrusion, les particules de fer sont dispersées à l'intérieur des grains de cuivre dont la taille moyenne est d'environ 5  $\mu\text{m}$ . Ceux-ci se sont allongés lors de l'extrusion tout comme la majorité des grandes particules de fer. La distribution du fer à l'intérieur des grains de cuivre n'est pas très homogène et certains grains sont exempts de grosses particules, comme on peut le voir à la figure 4.14 b). La matrice de cuivre présente une densité moyenne de dislocations relativement élevée montrant qu'une fraction de l'écroutissage est retenue après l'extrusion. Certaines particules de fer ancrent les joints de grains, mais la majorité ne se trouve pas aux interfaces, comme on peut le voir à la figure 4.14 a). D'autres grains ou sous-grains présentent une densité élevée de particules de fer déjà allongées dans l'axe d'extrusion. Celles-ci ancrent les dislocations comme on peut le voir à la figure 4.14 c).

Après les premières passes d'étirage, les grains de cuivre sont constitués de cellules avec des parois souvent localisées sur des particules de fer qui présentent progressivement une morphologie de rubans. La densité de dislocations est élevée à l'intérieur des grains où celles-ci sont généralement ancrées aux petits précipités de fer apparus lors de la déposition ou lors du refroidissement après l'extrusion, comme illustré à la figure 4.15 a), pour un étirage à  $\eta = 2.6$  (92.6 %). Après un tel écroutissage, la distribution de l'épaisseur des rubans est encore très large et des dislocations sont visibles à l'intérieur des rubans épais comme on peut le voir à la figure 4.15 b).



**Figure 4.14.** : Coupes transversales obtenues au MET montrant différents aspects de la microstructure après extrusion de l'alliage Cu<sub>15</sub>Fe :

- Des particules de fer allongées sont présentes à l'intérieur de la matrice de cuivre.
- Des dislocations sont visibles à l'intérieur d'un grain de cuivre ne présentant pas de grandes particules de fer.
- Des dislocations sont ancrées sur des particules de fer.



**Figure 4.15.** : Coupes transversales de l'alliage Cu15Fe après étirage à  $\eta = 2.6$  (92.6 %).

a) Micrographie obtenue par faisceau faible au MET montrant la distribution des dislocations à l'intérieur d'un grain ainsi que la présence d'une fine dispersion de précipités de fer.

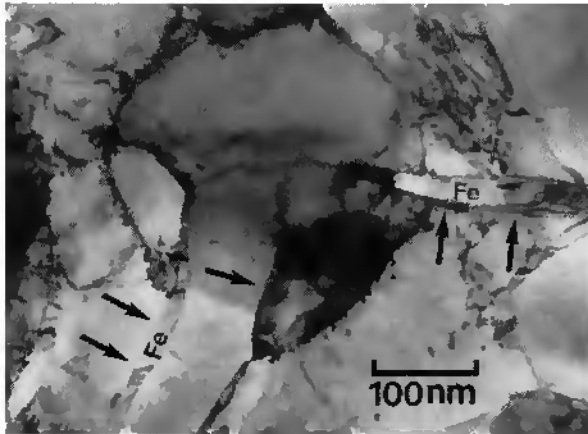
b) Micrographie en champ clair illustrant la présence de dislocations à l'intérieur des épais rubans de fer (indiquées par des flèches).

La taille des grains de cuivre devient très petite à  $\eta = 4.0$  (98.2 %) et est d'environ 200 nm tandis que les rubans de fer ont une épaisseur moyenne de l'ordre de 20 nm. Pour des déformations supérieures à  $\eta = 4.0$  (98.2 %), lorsque l'échelle de la microstructure diminue progressivement, la densité de dislocations à l'intérieur des grains de cuivre de la matrice devient faible comme on peut le voir en comparant les figures 4.16, 4.17 et 4.18. Cependant, des dislocations sont encore clairement présentes à l'intérieur des grains de cuivre lorsque ceux-ci ont des dimensions inférieures à 100 nm, comme on peut le voir à la figure 4.18 a). Il est clair que la présence d'une fine dispersion de précipités de fer ancrant les dislocations stabilise la structure de dislocations.

Les rubans de fer occupent essentiellement les interfaces entre les différents grains de cuivre, mais parfois lors de la déformation, pénètrent à l'intérieur des grains et initient la création d'un arrangement de dislocations qui va progressivement provoquer une désorientation entre deux parties du grain. Un exemple d'intrusion de rubans de fer à l'intérieur d'un grain de cuivre est présenté à la figure 4.16.

Après un écrouissage intermédiaire ( $\eta \sim 6$ ), le composite est constitué de grains de cuivre plus ou moins rectangulaires entourés par des rubans de fer. Cette microstructure de grains de cuivre présentant des interfaces avec des angles aigus est typique de ce type de composites et est présentée aux figures 4.17 et 4.18.

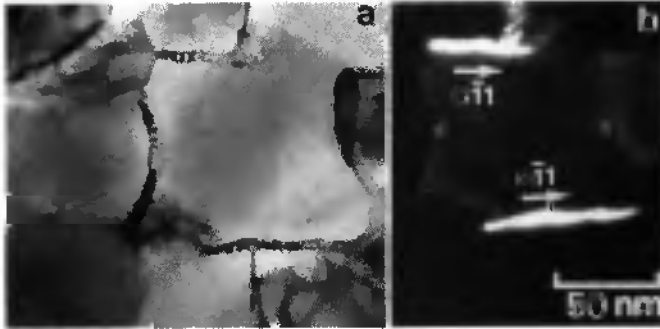
Les rubans de fer en coupes transversales restent souvent assez rectilignes car leurs largeurs sont assez faibles. En fait, la morphologie des grains de cuivre est essentiellement imposée par les rubans. La figure 4.17 montre un exemple typique de l'aspect de la microstructure après étirage à  $\eta = 6.2$  (99.8 %). Les rubans de fer sont orientés en coupes transversales de façon à avoir une direction de type  $\langle 011 \rangle$  parallèle à la largeur et une direction de type  $\langle 001 \rangle$  parallèle à l'épaisseur du ruban. Le champ noir visible à la figure 4.17 b) a été obtenu en sélectionnant deux taches de diffraction  $0\bar{1}1$ .



**Figure 4.16 :** Micrographie obtenue au MET de l'alliage Cu15Fe après étirage à  $\eta = 4.0$  (98.2 %) illustrant l'intrusion de rubans de fer à l'intérieur d'un grain de cuivre. Les flèches indiquent la présence de rubans.

Comme nous l'avons indiqué durant les premiers stades de l'écroutissage, la distribution en taille des rubans est très large en partie à cause de la distribution initiale mais aussi à cause de l'orientation non favorable de certaines particules par rapport à l'axe d'étirage. Cependant, lorsque le taux d'écroutissage devient important toutes les particules de fer s'allongent sous la forme de rubans à l'exception des oxydes et/ou de carbures et la distribution apparaît progressivement beaucoup moins large.

La figure 4.18 montre l'aspect général de la microstructure après un fort écroutissage ( $\eta = 6.6$ ). La taille moyenne des grains de la matrice de cuivre est d'environ 90 nm et l'épaisseur des rubans est d'environ 6 nm. La microstructure est maintenant homogène et très fine. Les rubans de fer occupent une importante fraction des interfaces, si bien que chaque grain, plus ou moins rectangulaire de cuivre, est entouré approximativement par trois interfaces contenant du fer. On observe encore la présence de particules riches en fer qui ne se sont pas allongées (un exemple indiqué par une flèche est donné à la figure 4.18 b)). Les défauts visibles à l'intérieur des rubans de fer sont transverses à la largeur des rubans. Ils peuvent être soit des dislocations transverses isolées comme montrées à la figure 4.15, soit des parois de dislocations permettant aux rubans de conserver la nécessaire compatibilité avec les cristaux voisins en provoquant des variations d'orientations et ainsi le "pliage" transverse de rubans.



**Figure 4.17 :** Coupes transversales de l'alliage Cu15Fe obtenues au MET après étirage à  $\eta = 6.2$  (99.8 %) : a) micrographie en champ clair  $\vec{g} \langle 200 \rangle$ , b) micrographie en champ noir obtenue après sélection de deux  $\vec{g} \langle 011 \rangle$ .

Nous avons observé que pour des valeurs élevées du taux d'écroissage, la diminution de la taille de la microstructure devenait plus faible. Cette saturation est clairement marquée à partir de  $\eta = 7.5$  pour trois valeurs de  $\eta$  différentes de 7.5 (99.945 %), 8.0 (99.966 %) et 9.0 (99.988 %). Des lames minces ont pu être obtenues jusqu'à des fils de 0.25 mm correspondant à un taux d'écroissage d'environ 9.

La figure 4.19 montre l'aspect de la microstructure après l'écroissage observé le plus élevé où la taille des grains de cuivre est proche de 60 nm et l'épaisseur des rubans proche de 4 nm. Si la réduction de l'épaisseur des rubans continuait au même rythme que pour les valeurs du taux de déformation entre 2 et 7, l'épaisseur moyenne des rubans de fer serait d'environ 1 nm à  $\eta = 9.0$  (99.988 %). La taille moyenne des grains de cuivre serait quant à elle égale à environ 30 nm. On voit clairement à la figure 4.19 que la microstructure ne continue pas à diminuer à ce rythme.

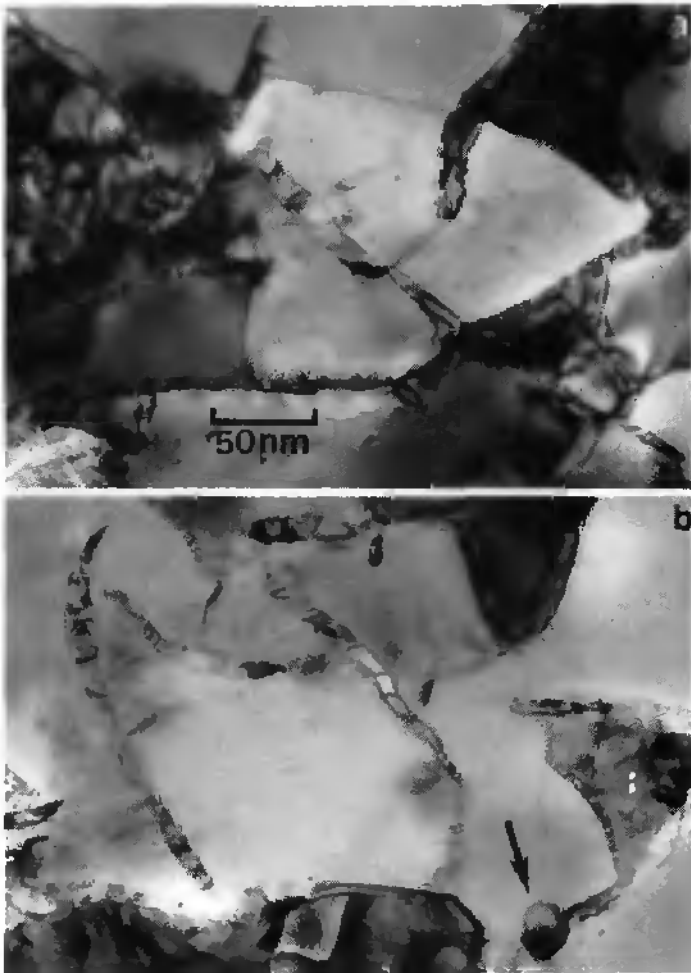
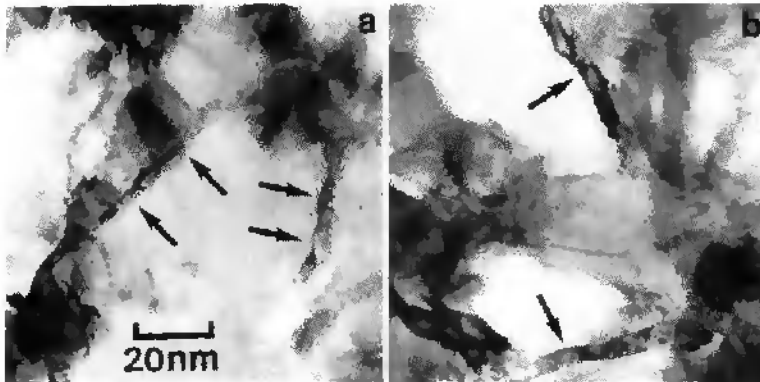


Figure 4.18. : Micrographies transversales obtenues au MET de l'alliage Cu15Fe après étirage à  $\eta = 6.6$  (99,864 %) montrant a) et b) deux exemples de microstructure observée. Une particule riche en fer qui ne s'est pas déformée est indiquée par une flèche à la figure 4.18b).



**Figure 4.19 :** Micrographies transversales de l'alliage Cu15Fe obtenus au MET montrant l'aspect de la microstructure après fort étirage  $\eta = 9.0$  (diamètre du fil 0.25 mm). Les flèches indiquent la présence de rubans de fer.

#### 4.2.4. Évolution de la texture lors de l'extrusion et de l'étirage

La symétrie de la déformation lors de l'extrusion ou de l'étirage est en principe de révolution si le matériau initial est sans orientation préférentielle ou présentant une texture de fibre de même axe. Les analyses de texture après extrusion à chaud ont montré que la matrice de cuivre présentait un mélange de texture  $\langle 100 \rangle$  et  $\langle 111 \rangle$  avec une nette préférence pour  $\langle 100 \rangle$ . Durant l'étirage, cette texture mixte persiste mais la tendance à avoir une orientation préférentielle de type  $\langle 100 \rangle$  diminue fortement avec l'augmentation de la valeur de  $\eta$ . Un tel comportement est souvent observé dans les matériaux cubiques à faces centrées [73], où la préférence pour une texture de type  $\langle 100 \rangle$ , obtenue après extrusion, change graduellement pour  $\langle 111 \rangle$  après les différentes passes d'étirage. De manière générale, lorsque l'on élève la température soit directement, soit en augmentant la vitesse d'étirage, on favorise la composante  $\langle 100 \rangle$ . L'équilibre entre les orientations  $\langle 111 \rangle$  et  $\langle 100 \rangle$  dans les matériaux cubiques à faces centrées fortement étirés à froid est aussi une fonction complexe de l'énergie de défaut d'empilement et la valeur que nous observons après un très fort écrouissage est proche (cf. Tableau 4.2) de celle observée dans un cuivre pur [74] ( $-35\%$  de  $\langle 100 \rangle$ ,  $65\%$  de  $\langle 111 \rangle$ ). Lorsque le rapport  $\gamma/\mu$  de l'énergie de défaut d'empilement divisé par le module de cisaillement croît, le pourcentage de

la composante  $\langle 100 \rangle$  s'élève, passe par un maximum élevé proche de l'argent pur, puis redécroit en passant par le cuivre, l'or et le nickel [74].

Le Tableau 4.2 donne l'évolution de la texture de la matrice de cuivre et des rubans de fer après extrusion et étirage. Nous avons utilisé l'équation (3.11) normée de façon que la somme des valeurs soit égale à 100 quelque soit le nombre de pics mesurés.

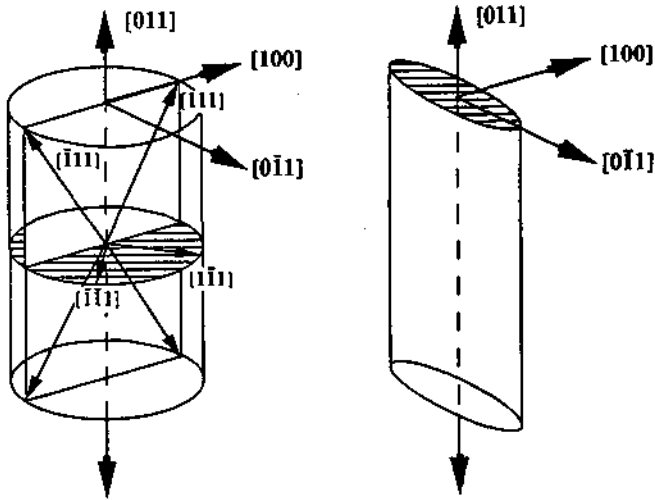
**Tableau 4.2 :** Évolution de la texture de la matrice de cuivre et des rubans de fer après extrusion et différents taux d'étirage (section transverse).

$\phi$  = diamètre du fil.

État	$\phi$	$\eta$	$P_{hkl}$ normé à 100%				$P_{hkl}$ normé à 100%		
			Cu 111	Cu 200	Cu 220	Cu 311	Fe 110	Fe 200	Fe 211
	[mm]		[%]	[%]	[%]	[%]	[%]	[%]	[%]
Extrudé	22.0	0.0	7	91	1	1	81	10	9
Ex.+ étiré	12.0	1.2	6	90	1	3	99	1	1
Ex.+ étiré	8.0	2.0	19	74	1	6	99	0	1
Ex.+ étiré	4.6	3.1	53	42	1	4	98	1	1
Ex.+ étiré	3.0	4.0	65	30	1	4	98	0	2
Ex.+ étiré	1.0	6.2	62	29	1	8	100	0	0

La morphologie en forme de rubans du fer est le résultat de la texture  $\langle 110 \rangle$  observée après extrusion à chaud et travail à froid. Durant l'écroutissage, les cristaux cubiques centrés développent une texture de fibres  $\langle 110 \rangle$  dans laquelle seulement deux des quatre directions de glissement  $\langle 111 \rangle$  sont orientées de façon favorable pour provoquer l'allongement du ruban. La présence de cette texture de fibre a été expliquée pour la première fois par Hosford [75] en calculant que la quantité de glissement nécessaire pour avoir une déformation axisymétrique est 1.5 fois plus importante que pour une déformation planaire. La figure 4.20 montre les positions des quatre directions de glissement. Indirectement, le glissement dans les deux directions  $[1\bar{1}1]$  et  $[\bar{1}11]$  provoque une contraction parallèle à la direction  $[100]$  et pas de déformation dans la direction  $[0\bar{1}1]$ . Pour obtenir une déformation symétrique en section, le glissement dans les deux autres directions devrait être actif, mais de tels glissements ne participent pas à l'allongement du ruban. La texture forte des rubans de fer et la texture mixte de la matrice de cuivre montre qu'il est peu probable qu'il y ait une forte épitaxie entre les rubans de fer et la matrice de cuivre. Ainsi l'interface entre les rubans et la matrice doit être incohérente.

Il faut cependant tenir compte du fait que l'étréage introduit des tensions compressives latérales. Celles-ci sont d'autant plus importantes que le demi-angle d'entrée des filières est grand. Même si l'étréage produit essentiellement une déformation en tension pure, les tensions compressives latérales ainsi que la compatibilité de la déformation entre les différents grains doivent provoquer tout de même une certaine déformation dans les quatre directions de glissement mentionnées.



**Figure 4.20 :** Représentation de la position des directions de glissement  $\langle 111 \rangle$  dans un cristal cubique centré et de la morphologie des rubans obtenus après une déformation planaire.

#### 4.3. Analyses quantitatives de la microstructure

La quantification précise de l'évolution de la microstructure a été faite à partir d'images MET sur plusieurs lames minces pour chaque valeur de  $\eta$ . La fraction de fer sous forme de rubans reste constante à partir de  $\eta = 3.5$  (97.0 %) et a été mesurée à  $10.1 \pm 1.5\%$  volumique. Le restant du fer (par rapport au 15% volumique) se trouve essentiellement sous la forme d'oxydes ou de carbures complexes, comme nous l'avons déjà vu (§ 4.2.3. *Comportement des alliages de fer lors de l'étréage*), mais une faible proportion reste soit en solution solide soit se trouve sous la forme de très petits précipités qui sont apparus lors de la compaction ou de l'extrusion.

Ils ont une taille moyenne estimée à environ 3 nm et leur nombre a été mesuré à  $4.6 \cdot 10^{22} \text{ m}^{-3}$ . Ces particules de fer n'occupent que 0.07 pour-cent volumique.

Un point très intéressant est le fait que la fraction d'interface occupée par les rubans de fer reste pratiquement constante à partir de  $\eta = 4.5$  (98.9 %). Cette fraction a été mesurée et la valeur obtenue est de  $68 \pm 4\%$ . Le Tableau 4.3 résume toutes les analyses quantitatives de la microstructure concernant l'épaisseur moyenne,  $t_{Fe}$ , la largeur moyenne des rubans de fer,  $w_{Fe}$ , ainsi que la taille moyenne des grains de cuivre,  $t_{Cu}$ .

**Tableau 4.3 :** Résumé des résultats de l'analyse quantitative de la microstructure.

n = nombre de mesures effectuées.

$\phi$  = diamètre du fil.

$\phi$	$\eta$	$t_{Fe}$	n	$t_{Cu}$	n	$w_{Fe}$	n
[mm]		[nm]		[nm]		[nm]	
0.25	8.95	4.4	58	59.0	119	46	81
0.40	8.01	4.3	48	63.0	99	72	56
0.52	7.50	4.0	31	74.1	70	87	34
0.80	6.63	6.1	85	89.0	138	155	41
0.97	6.24	6.3	23	109.8	34	127	11
1.50	5.37	7.4	63	149.9	47	202	63
3.00	3.98	18.6	96	224.9	52	288	61
5.95	2.62	42.0	51	-	-	424	44

Nous avons représenté à la figure 4.21 les variations du logarithme naturel des dimensions de la microstructure en fonction de  $\eta$ . Ce type de représentation est linéaire s'il y a un rapport constant entre la réduction de la microstructure et la diminution géométrique du fil. La réduction du diamètre du fil durant l'éurage se fait avec une pente de -0.5. Le logarithme du diamètre du fil diminue avec une pente de -0.5 en fonction de  $\eta$ . La pente de la diminution de la taille des grains de cuivre entre  $\eta = 2$  et  $\eta = 7$  est de -0.34. On voit clairement à la figure 4.21 que la diminution de l'épaisseur des rubans en fonction de  $\eta$  sature à une valeur proche de 7. Approximativement à la même valeur de  $\eta$ , la diminution du diamètre moyen des grains de cuivre devient plus faible. Par contre, on remarque une légère augmentation de la variation de la largeur des rubans ( $w_{Fe}$ ) en fonction de  $\eta$ .

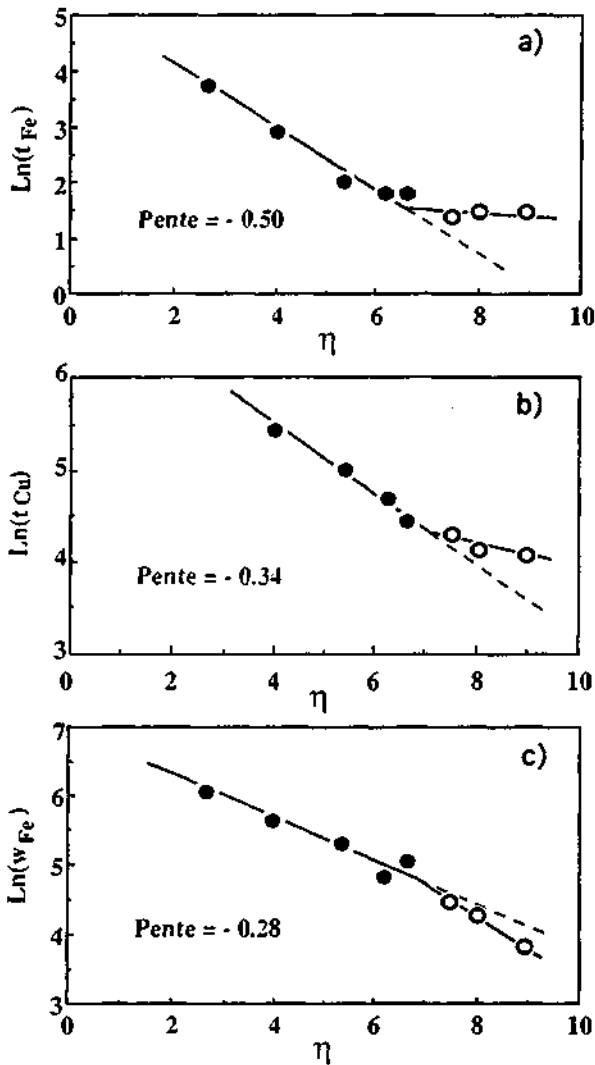


Figure 4.21 : Réduction des dimensions de la microstructure :

- a) Variation du logarithme de l'épaisseur des rubans,  $t_{\text{Fe}}$  (nm), en fonction de  $\eta$ .
- b) Variation du logarithme de la taille moyenne des grains de cuivre,  $t_{\text{Cu}}$  (nm), en fonction de  $\eta$ .
- c) Variation du logarithme de la largeur des rubans,  $w_{\text{Fe}}$  (nm), en fonction de  $\eta$ .

La figure 4.22 montre la variation du logarithme de  $t_{Fe} \cdot w_{Fe}$  et du rapport  $w_{Fe}/t_{Fe}$  en fonction de  $\eta$ . Il est tout à fait clair que pour des rubans dont la longueur est la dimension nettement la plus grande, la réduction moyenne de la section des rubans (donnée par  $t_{Fe} \cdot w_{Fe}$ ) doit être d'une quantité équivalente à la réduction géométrique du fil après l'étréage. La décroissance observée de la section des rubans de fer en fonction de  $\eta$  est seulement de  $-0.78$  entre  $\eta = 2$  et 7 au lieu de  $-1$ . On voit à la figure 4.22 a) que la réduction de la surface moyenne des rubans en fonction de  $\eta$  montre une diminution moins importante à partir d'environ  $\eta = 7$  (99.909 %). Le rapport  $w_{Fe}/t_{Fe}$  augmente progressivement avec le taux de déformation tant que les épaisseurs des rubans diminuent linéairement avec  $\eta$  (jusqu'à environ  $\eta = 7$ ). On voit à la figure 4.22 b) que ce facteur diminue nettement ensuite, ce qui montre que la déformation des rubans ne se fait jamais de façon essentiellement axisymétrique.

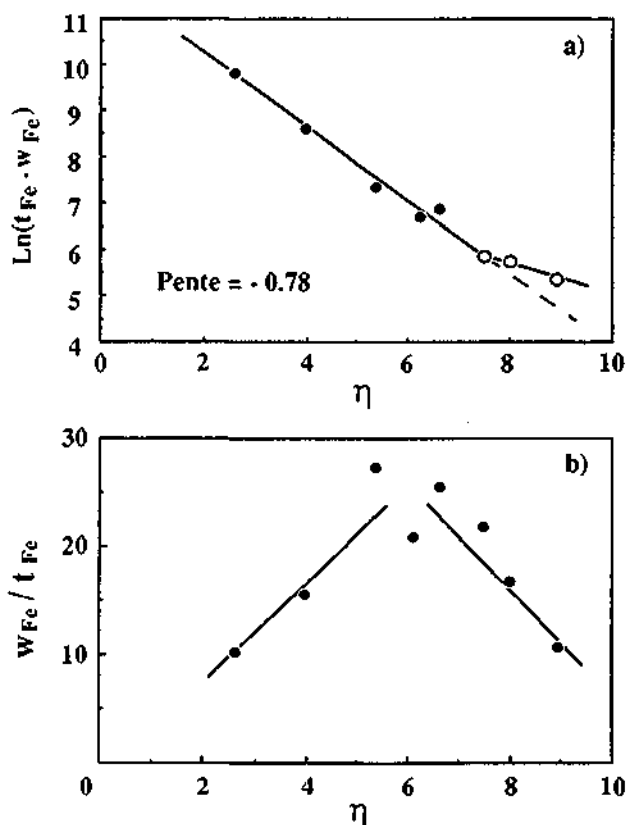


Figure 4.22 : Variations de : a) la surface moyenne  $t_{Fe} \cdot w_{Fe}$  et b) du rapport  $w_{Fe}/t_{Fe}$  des rubans en fonction du taux d'écroutissage.

#### 4.4. Propriétés mécaniques

Tous les alliages de la première série, à l'exception du Cu5Fe et du Cu15Cr, ont pu être étirés jusqu'à des diamètres nettement inférieurs à 1 mm. L'alliage Cu5Fe avait une forte tendance à se casser lors de l'étirage, nous avons attribué ce comportement au fait que c'est dans cet alliage que la densité de pores était la plus importante. Dans l'alliage Cu15Cr, les particules de chrome ne se sont pas allongées lors de l'extrusion et celui-ci n'a pas pu être étiré.

Les différents alliages de Cu15Fe de la deuxième série présentaient un comportement lors de l'étirage à mettre directement en relation avec le taux de contamination. Les alliages provenant des billettes N°12 et N°13 qui étaient les moins contaminées ont pu être étirées jusqu'aux diamètres les plus petits. Tandis que les alliages plus contaminés ne pouvaient pas être écrouis de la même manière.

##### 4.4.1. Essais de traction à vitesse de traverse constante

Nous décrivons pour commencer le comportement global des différents alliages de la première série lors des essais de traction, puis plus en détail les propriétés mécaniques mesurées en traction de l'alliage le plus intéressant, le Cu15Fe, provenant de la première série ou de billettes spray-déposées.

Les variations de la contrainte maximale ( $\sigma_{max}$ ) des alliages Cu5Fe, Cu15Fe, Cu5Cr et Cu3Nb peuvent être comparées à la figure 4.23. Seul l'alliage Cu15Fe présente une forte augmentation de la contrainte lors de la réduction de section. Le taux d'étirage maximum obtenu pour l'alliage Cu5Fe était d'environ  $\eta = 4$  (98.2 %). Celui-ci ne possède qu'une trop faible fraction de fer en forme de rubans (le reste se trouve essentiellement sous la forme d'oxydes et/ou de carbures) pour que le durcissement devienne important. L'alliage Cu3Nb présente une faible augmentation continue du point d'écoulement et de la contrainte maximale en fonction de  $\eta$ . Dans l'alliage Cu5Cr, le chrome reste sous la forme de sphéroïdes durant l'étirage et l'on ne remarque pratiquement plus d'augmentation de la contrainte à partir de  $\eta = 2.5$  (91.8 %) environ. L'alliage Cu5Cr présente un comportement proche de celui du cuivre pur avec une rapide saturation de l'augmentation de la contrainte maximale. Le durcissement est cependant plus marqué durant les premières passes du à la finesse de la taille de la microstructure et à la présence des grandes particules de chrome qui augmente l'écrouissage de la matrice de cuivre. Les résultats obtenus montrent clairement que le durcissement observé en fonction de  $\eta$  est directement dépendant de la fraction de la phase cubique centrée qui se transforme en rubans.

L'alliage Cu15Fe de la première série a été le plus étudié. La figure 4.24 montre la variation de la contrainte d'écoulement en traction à 0.2% de déformation ( $\sigma_{0.2}$ ) et de la contrainte maximale ( $\sigma_{max}$ ) de l'alliage Cu15Fe obtenu à partir de poudres préallliées. Après extrusion, le durcissement de l'alliage est significatif car la microstructure n'est pas fortement écroûie, si bien que la valeur de  $\sigma_{0.2}$  est assez éloignée en déformation de  $\sigma_{max}$ . et l'on observe une déformation d'environ 15% avant que la valeur de la contrainte maximale soit atteinte. Pour des faibles taux de déformation, la valeur de  $\sigma_{0.2}$  est très proche de la valeur de  $\sigma_{max}$ . puis s'en éloigne progressivement à partir de  $\eta = 3$  (95.0 %).

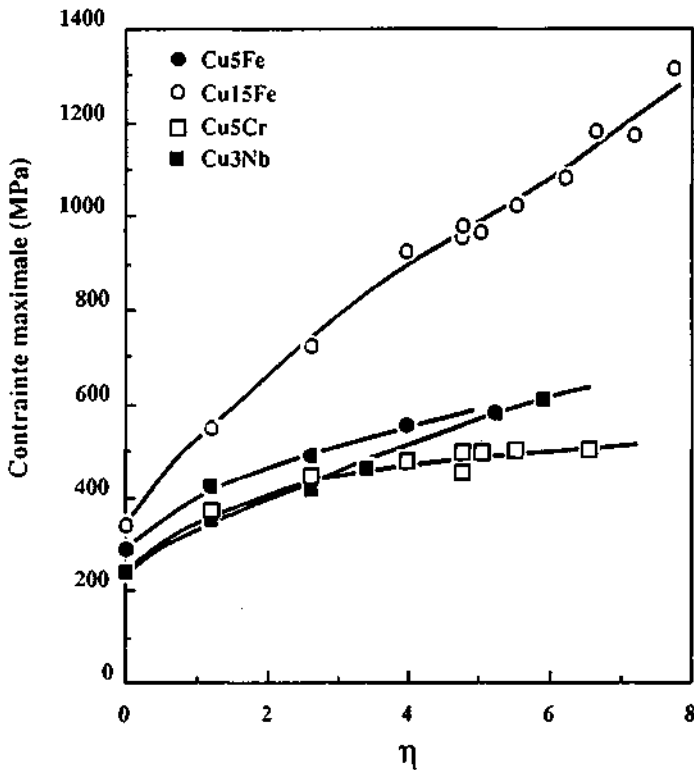


Figure 4.23. : Variation de la contrainte maximale en fonction du taux d'écroûissage des alliages de la première série.

Pour des taux d'écroutissage très élevés de  $\eta = 8$  (99.966 %) à 11 (99.998 %), on remarque très nettement une saturation de l'augmentation des propriétés mécaniques. La dépendance de la contrainte maximale avec  $\eta$  semble linéaire dès que  $\eta$  dépasse une valeur de 1 (63.2 %) environ, puis présente une saturation pour des valeurs de  $\eta$  supérieures à 7.5 (99.945 %). La valeur de 1300 MPa environ pour  $\sigma_{\max}$  est atteinte pour un fil d'environ 0.5 mm de diamètre et semble être le maximum pour cet alliage. Il faut cependant remarquer que la limite conventionnelle d'élasticité est plus faible que la contrainte maximale, la différence est de l'ordre de 190 MPa pour l'alliage Cu15Fe après  $\eta \geq 4$  ( $\geq 98.2$  %). Le Tableau 4.4 donne un résumé des résultats des essais de traction de l'alliage Cu15Fe. La valeur de  $\epsilon_{\max}$  correspond à la déformation à la contrainte maximale tandis que  $\epsilon_{\text{rupt}}$  représente l'allongement à la rupture.

La valeur de la contrainte d'écoulement a été mesurée à différentes valeurs de déformation (de 0.005 à 0.5%) sur les courbes de traction afin de voir si l'augmentation de la contrainte maximale est une augmentation réelle du point d'écoulement ou simplement un artefact dû à l'augmentation du durcissement. Il a été observé que l'augmentation du point d'écoulement est bien réelle. C'est-à-dire que l'augmentation de la résistance mécanique en fonction de  $\eta$  est présente quelque soit la quantité de déformation plastique au point d'écoulement considéré.

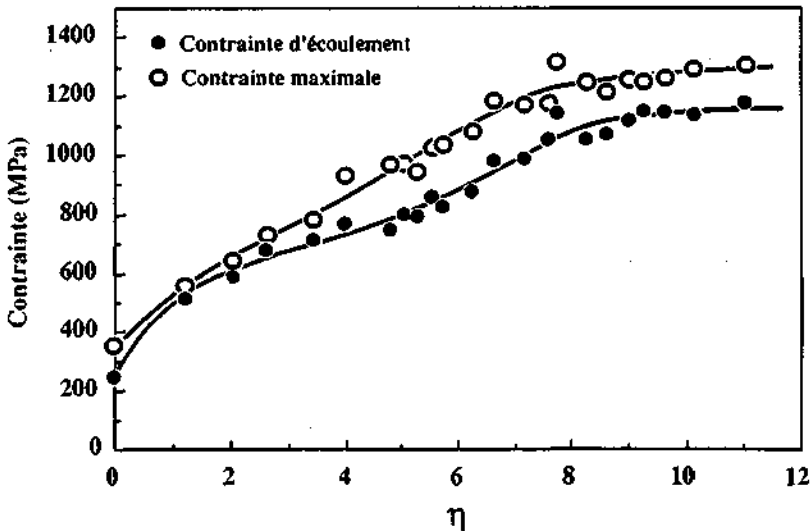


Figure 4.24 : Variation de la contrainte d'écoulement en traction à 0.2% de déformation ( $\sigma_{0.2}$ ) et de la contrainte maximale ( $\sigma_{\max}$ ) de l'alliage Cu15Fe en fonction de  $\eta$ .

L'aspect des courbes de traction varie évidemment fortement de l'état extrudé au premier état écroui testé ( $\epsilon = 70\%$ ). L'allongement à la rupture diminue environ de moitié pour l'alliage concerné, la valeur de la déformation à  $\sigma_{\max}$  diminue très fortement (de 16 à 1% environ) tandis que le durcissement augmente à 0.2% de déformation. Après que la contrainte maximale soit dépassée, la courbe de traction reste très plate montrant que la contrainte ne se localise pas fortement, la striction n'apparaît visiblement sur l'éprouvette que nettement plus tard. Les courbes de traction pour des taux d'écroissage de  $\eta = 2$ ,  $\eta = 4.0$  et  $\eta = 6.2$  sont présentées en comparaison avec les courbes obtenues lors des essais de compression à la figure 4.31.

Ceci ressort bien des valeurs de la déformation à la contrainte maximale et de la déformation maximale illustrées graphiquement à la figure 4.25 et données dans le Tableau 4.4. On voit que la ductilité du matériau décroît fortement après les premiers stades de l'écroissage, puis a tendance à augmenter pour des valeurs de  $\eta$  plus grandes que 2.5 (91.8 %). La valeur de la déformation à la contrainte maximale chute de 15% après l'extrusion à environ 1% pour une valeur de  $\eta = 1.2$  (70.2 %), puis augmente progressivement jusqu'à une valeur d'environ 3% pour les taux d'étirage élevés. De manière générale, la ductilité de ces composites reste assez importante même lorsque la résistance devient très élevée.

Nous avons comparé les résultats obtenus entre les alliages spray-déposés et l'alliage obtenu à partir des poudres compactées. Des essais de traction ont été effectués sur les fils étirés des quatre différentes billettes reçues. Deux des billettes ont été produites à partir d'un préalliage refondu plusieurs fois, si bien que la contamination était devenue plus importante et la contrainte maximale aussi bien que l'allongement à la rupture étaient un peu plus faible.

En nous limitant au composite présentant la meilleure résistance maximale, la figure 4.26 montre la comparaison de la contrainte maximale et de la limite d'écoulement à 0.2% de déformation de l'alliage Cu15Fe produit à partir de poudres préallliées et de l'alliage Cu15Fe N°12 (billette Osprey). On voit que le comportement est très similaire entre les deux types d'alliages. En fait, bien que la microstructure soit plus grossière après la déposition qu'après la compaction des poudres préallliées, après extrusion la finesse de la microstructure de l'alliage déposé devient comparable à celle obtenue avec les poudres. Ce point expliquerait le fait que les propriétés mécaniques sont aussi bonnes dans l'alliage déposé que dans l'autre et que la saturation de celles-ci à des valeurs de  $\eta$  élevées semble repoussée vers des taux de déformation plus importants.

Tableau 4.4. : Résumé des résultats des essais de traction.

° = Moyenne de plusieurs essais

\* usiné à  $\varnothing$  3 mm

$\eta$	$\sigma_{0.2}$ [MPa]	$\sigma_{max.}$ [MPa]	$\Delta\sigma$ [MPa]	$\epsilon_{max.}$ [%]	$\epsilon_{rupt.}$ [%]
0.00 <sup>°*</sup>	266 ± 33	340 ± 3	74	15.6	35
1.21 <sup>°*</sup>	514 ± 13	549 ± 1	35	1.0	20
2.02*	591	639	48	1.1	>1
2.62*	685	727	42	1.1	9
3.35	663	695	32	1.2	5
3.41*	717	780	63	1.4	7
3.50	676	732	56	1.5	6
3.98*	769	926	158	1.6	7
4.80 <sup>°</sup>	749 ± 30	969 ± 10	220	2.0	9
5.02	802	966	164	2.1	12
5.27	792	944	152	>2.0	>3
5.52	854	1023	169	2.3	11
5.74	828	1034	206	2.2	>3
6.23	875	1080	205	2.2	8.0
6.63	978	1180	202	2.5	>3
7.18	986	1170	184	2.2	>2.5
7.58	1052	1179	127	2.8	3.5
7.74	1144	1315	171	3.0	4
8.26 <sup>°</sup>	1049	1246	197	-	>2
8.59 <sup>°</sup>	1069	1217	148	3.0	4
9.00 <sup>°</sup>	1114	1251	137	-	>0.5
9.26 <sup>°</sup>	1148	1245	97	-	>0.4
9.63 <sup>°</sup>	1140	1260	120	-	>0.7
10.13 <sup>°</sup>	1139	1290	151	-	>1.0
11.02 <sup>°</sup>	1177	1302	125	-	>1.0

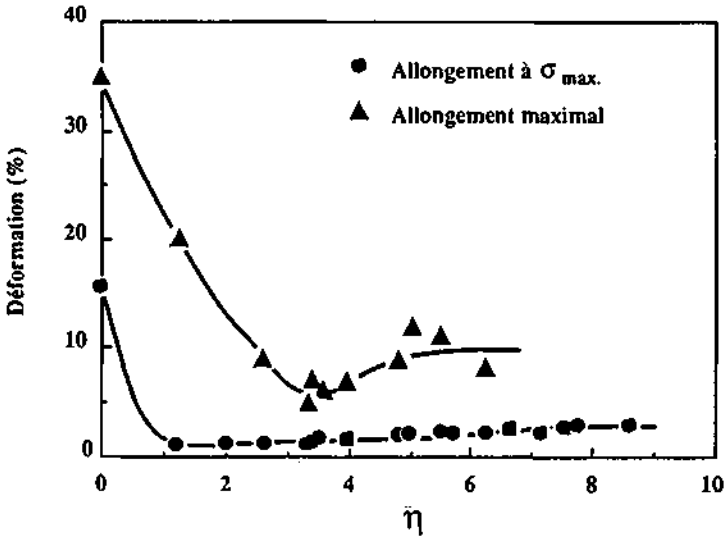


Figure 4.25 : Variations de l'allongement à la contrainte maximale et de l'allongement maximal obtenus lors des essais de traction en fonction du taux d'écroutissage. Alliage Cu15Fe de la première série.

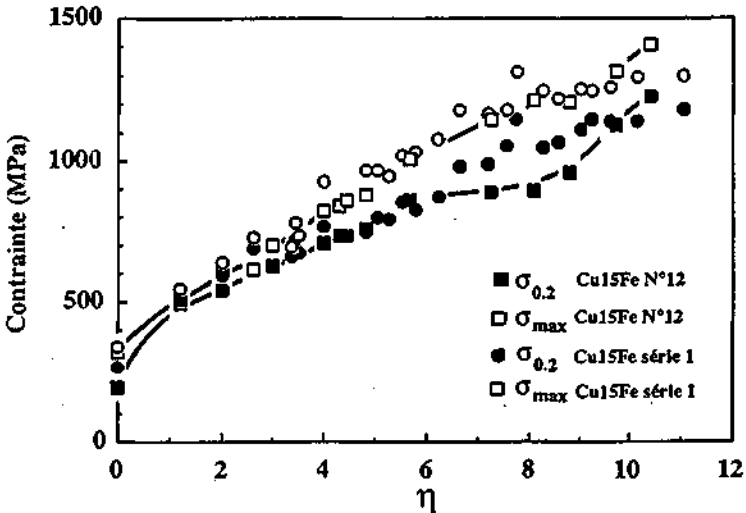


Figure 4.26 : Comparaison du point d'écoulement ( $\sigma_{0.2}$ ) en traction et de la contrainte maximale ( $\sigma_{max}$ ) en fonction de  $\eta$  des alliages Cu15Fe produits par compaction et spray-déposé (Cu15Fe N°12).

En principe, jusqu'à  $\eta = 4$  (98.2 %) y compris, les échantillons sont usinés avant les essais de traction, tandis que pour des valeurs plus élevées de  $\eta$  ceux-ci ne le sont pas. Nous avons effectué quelques essais de traction supplémentaires pour juger du rôle de l'usinage sur la limite d'écoulement et la contrainte maximale. Les résultats obtenus sont illustrés à la figure 4.27 pour l'alliage Cu15Fe spray-déposé.

Le rôle de l'usinage sur la contrainte maximale,  $\sigma_{\max}$ , est faible et pratiquement négligeable. Mais il est un peu plus important sur les valeurs de la limite d'écoulement à 0.2% de déformation,  $\sigma_{0.2}$ . La différence entre les échantillons non-usinés et les échantillons usinés est environ constante entre  $\eta = 2.6$  (92.6 %) et 4.8 (99.2 %). Les échantillons non-usinés ont une limite d'écoulement en moyenne plus élevées de 25 MPa.

D'un point de vue industriel, il est parfois favorable de laminier rond plutôt que d'étirer. Cependant, le laminage rond crée des états de contraintes complexes et pas axisymétriques. Ainsi, pour juger du rôle joué par le mode de déformation sur l'aptitude des rubans de fer à s'allonger, nous avons effectué quelques essais de laminage rond. Nous avons utilisé l'alliage Cu15Fe N°12 spray-déposé, extrudé à  $\varnothing 22$ , étiré à  $\varnothing 12$ , puis de  $\varnothing 12$  à  $\varnothing 8$  mm (c'est-à-dire de  $\eta = 1.2$  à  $\eta = 2.0$ ) l'alliage a été laminé rond puis à nouveau étiré.

La comparaison de la limite élastique et de la contrainte maximale entre l'alliage entièrement étiré et l'alliage partiellement laminé est montrée à la figure 4.28. On voit que le laminage ne provoque pas le même durcissement que l'étirage mais qu'une partie de celui-ci peut être récupérée lors des passes d'étirage ultérieures.

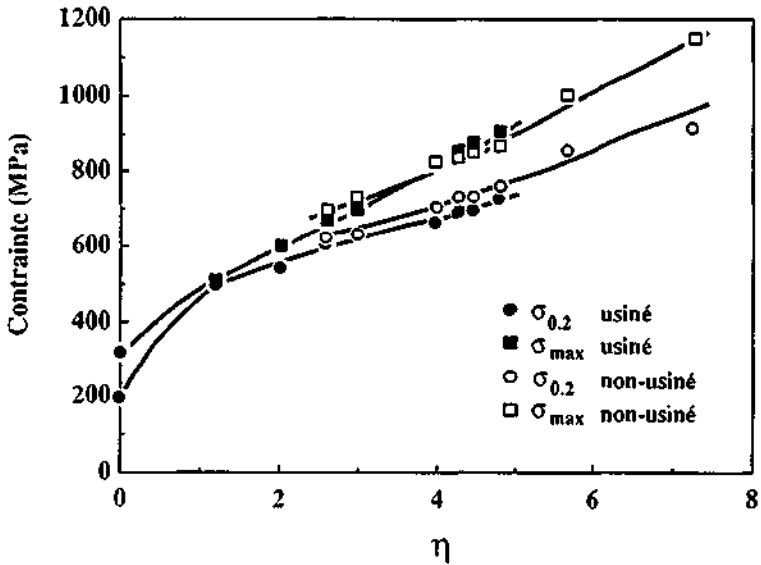


Figure 4.27 : Effet de l'usinage des éprouvettes de traction sur la variation du point d'écoulement ( $\sigma_{0.2}$ ) et de la contrainte maximale ( $\sigma_{max}$ ) en fonction de  $\eta$  de l'alliage Cu15Fe N°12 spray-déposé.

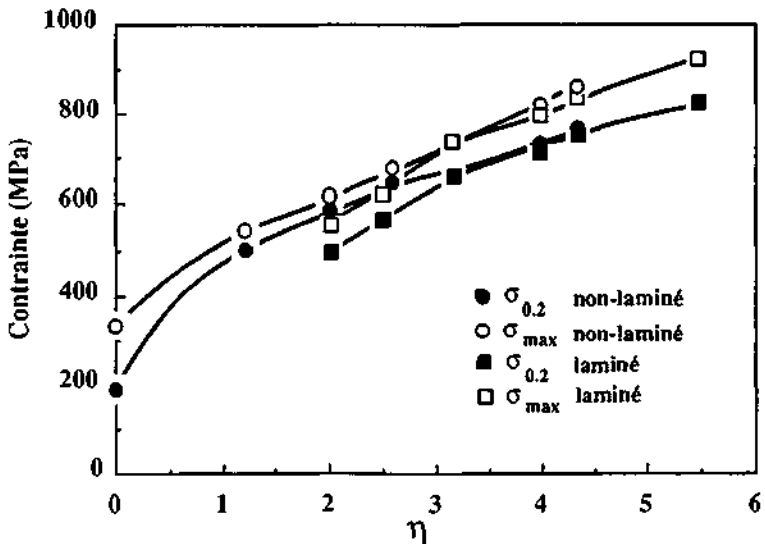


Figure 4.28 : Effet du laminage sur la limite d'écoulement ( $\sigma_{0.2}$ ) et la contrainte maximale ( $\sigma_{max}$ ) de l'alliage Cu15Fe N°12 produit à partir d'une bille.

#### 4.4.2. Surfaces de rupture

La figure 4.29 montre une comparaison de l'aspect des surfaces de rupture des alliages Cu15Fe et Cu5Cr après extrusion ( $\eta = 0.0$ ) et après étirage à  $\eta = 6.6$  (99.864 %). On remarque que toutes les ruptures présentent un aspect ductile et que l'on ne reconnaît pas une morphologie fibreuse. Le composite Cu15Fe présente un grand nombre de particules sphéroïdales à l'intérieur des cupules. Ces particules ont une taille visiblement totalement indépendante du taux d'écroutissage et contiennent d'après les analyses EDS en plus du fer, de l'oxygène et parfois du carbone. Ces particules sont donc des oxydes et/ou des carbures, formés à partir des contaminants de l'alliage, que nous l'avons déjà observé préalablement. C'est essentiellement cette distribution de particules qui est responsable de l'aspect global de la surface de rupture. En effet, le raffinement de la taille des cupules est faible entre le matériau extrudé et le fil fortement étiré. Cependant, on remarque tout de même passablement de très petites cupules ( $\leq 100$  nm) dans le fil fortement écroui qui ne sont pas visibles dans l'état extrudé.

L'alliage Cu5Cr ne présente pas un grand nombre de particules sphéroïdales dans les cupules. Cette observation confirme l'analyse de la microstructure de cet alliage en coupe transversales au MEB et au MET : les alliages de chrome ne présentent pas de grandes particules d'oxyde ou de carbure. Les contaminants se trouvent soit sous la forme de petites particules de l'ordre de 50 nm (voir figure 4.9) soit sous la forme de soluté. La taille moyenne des cupules est légèrement plus grande que celle observée avec l'alliage Cu15Fe de section équivalente.

#### 4.4.3. Essais de compression à vitesse de traverse constante

Des essais de compression ont été effectués sur les fils de diamètre supérieur à 1 mm. Des mesures de la limite conventionnelle d'élasticité à 0.2% de déformation ont été faites. Les courbes de compression montrent un très net palier après quelques pour-cent de déformation. Il est apparu clairement que ce palier provenait du fait que la microstructure fibreuse présentait des instabilités en compression. La présence de "kinks" est visible au microscope optique pour des valeurs de déformation supérieures à 3% et des taux d'écroutissage supérieur à 2, ceux-ci sont visibles à la limite de la zone morte proche de la surface en contact avec l'outil où le cisaillement est maximal. La figure 4.30 montre un exemple de "kink" observé après 6% de déformation d'un échantillon étiré à  $\eta = 5.1$  (99.4 %), la surface en contact avec l'outil se trouve en haut de la figure. Ce phénomène ainsi que le flambage des échantillons de compression est responsable du palier que nous avons observé sur les courbes contrainte-déformation pour une déformation supérieure à 3 % environ (à partir de  $\eta > 2$ ). L'aspect de quelques courbes de compression est présenté à la figure 4.31 en comparaison avec les courbes obtenues lors des essais de traction. La valeur de la contrainte d'écoulement à 0.2% de déformation ne doit cependant pas être

influencée par ces phénomènes car la déformation plastique est trop faible. Des essais de compression transverse par rapport à l'axe d'étirage ont été effectués sur des fils de diamètres 12 et 8 mm, les valeurs obtenues de  $\sigma_{0.2}$  sont très proches de celles des échantillons longitudinaux, mais les courbes de contrainte-déformation ne montrent pas de palier, ce qui confirme le rôle joué par les instabilités des rubans de phase cubique centrée alignés dans l'axe de la compression sur les instabilités observées.

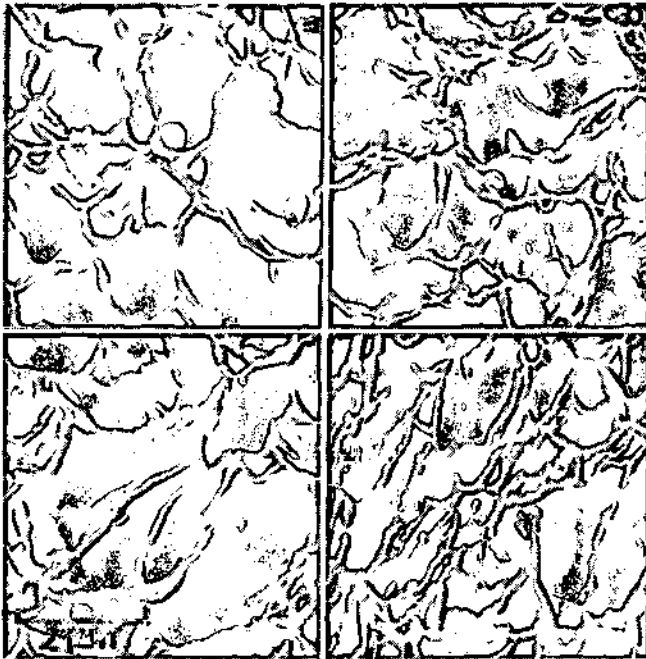


Figure 4.29. : Surfaces de rupture des alliages formés à partir des poudres atomisées :  
 Cu15Fe après a) extrusion et b) et étirage à  $\eta = 6.6$  (99.864 %).  
 Cu5Cr après c) extrusion et d) et étirage à  $\eta = 6.6$  (99.864 %).

Les valeurs obtenues de la limite d'écoulement  $\sigma_{0.2}$  en compression figurent dans le Tableau 4.5 avec, à titre de comparaison, quelques mesures représentatives effectuées en traction. La figure 4.32 illustre la comparaison entre les valeurs de  $\sigma_{0.2}$  en traction et en compression de l'alliage Cu15Fe obtenu à partir de poudres préallées. On voit que rapidement après les premières passes d'étirage, la valeur du point d'écoulement en traction devient beaucoup plus élevée que celle obtenue pour les essais de compression. Cet écart entre les valeurs de  $\sigma_{0.2}$  reste pratiquement constant à environ  $180 \pm 55$  MPa jusqu'à  $\eta = 4.0$  (98.2 %).

Pour des valeurs de  $\eta$  plus élevées, les deux valeurs de  $\sigma_{0.2}$  deviennent beaucoup plus proches l'une de l'autre et l'écart devient environ égal à 50 MPa.

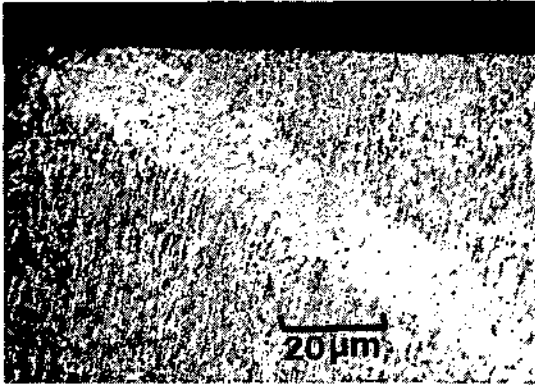


Figure 4.30. : Micrographie optique en lumière polarisée montrant un "kink" après un essai de compression de 6% sur un fil de Cu15Fe étiré à  $\eta = 5.1$  (99.4 %).

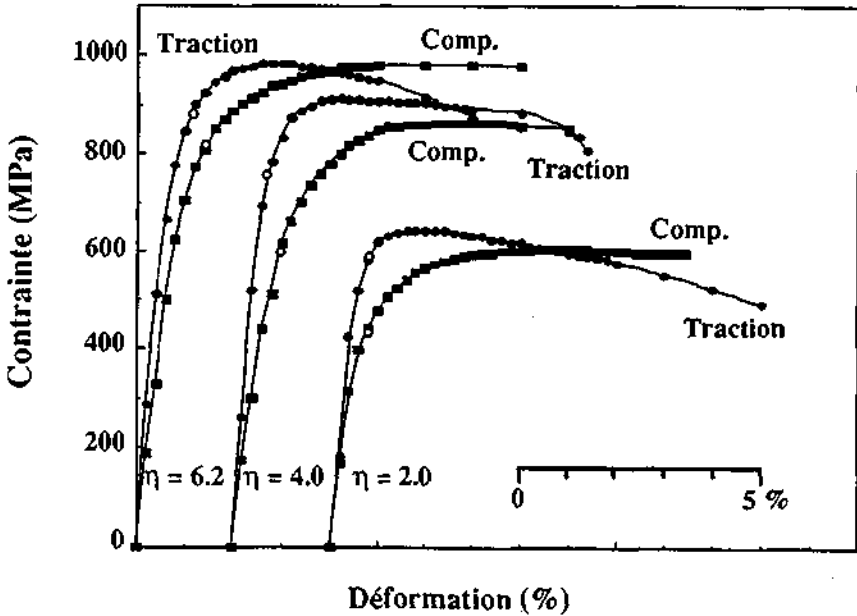


Figure 4.31. : Aspect des courbes de traction et de compression de l'alliage Cu15Fe après différents taux d'écroutissage. Les points blancs présentent les positions des limites d'écoulement.

Afin de juger le rôle de la distribution des contraintes internes en section provoquées par l'étréage sur les différences de point d'écoulement en traction et en compression, des essais sur des échantillons usinés ou non-usinés à la même valeur de taux d'étréage ont été effectués. Les différences obtenues sont faibles et pas systématiques (voir figure 4.32 et Tableau 4.5).

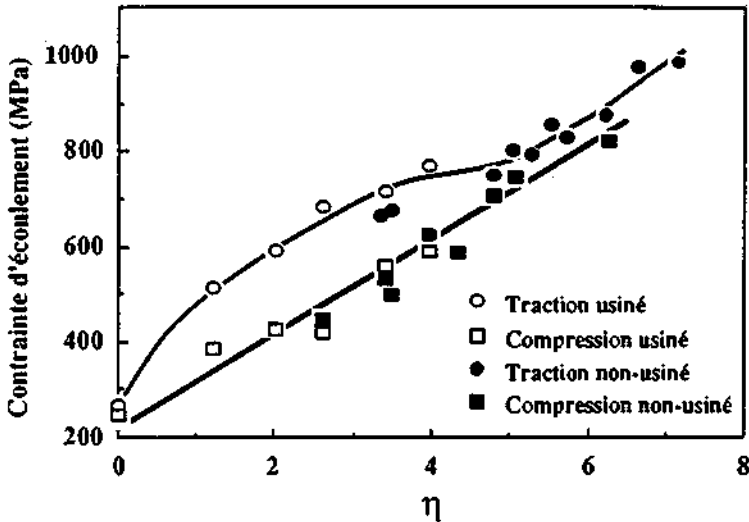


Figure 4.32. : Comparaison de la limite d'écoulement à 0.2 % de déformation, ( $\sigma_{0.2}$ ), en traction et en compression de l'alliage Cu15Fe produit à partir de poudres.

Tableau 4.5. : Résumé des résultats des essais de compression.

\* usiné à  $\phi$  3 mm ou à  $\phi$  2 mm pour les fils étréés à  $\phi$  3 mm.

$\eta$	Traction $\sigma_{0.2}$ [MPa]	Compression $\sigma_{0.2}$ [MPa]	$\eta$	Traction $\sigma_{0.2}$ [MPa]	Compression $\sigma_{0.2}$ [MPa]
0.00*	266±33*	247±18*	4.35	-	586±23
1.21*	514±13*	396±5*	4.80	749±30	708±37
2.02*	591*	425±30*	5.02	802	-
2.62*	685*	420±32*	5.07	-	748±11
2.62	-	444±16	5.27	792	-
3.41*	717*	558±23*	5.52	854	-
3.41	-	532	5.74	828	-
3.48	-	498	6.23	875	-
3.98*	769*	590±29*	6.28	-	821±26
3.98	-	627±13	-	-	-

#### 4.4.4. Essais de traction à différentes vitesses de déformation

L'analyse des mécanismes thermiquement activés qui rentrent en compte dans l'équation décrivant le mouvement de dislocations sous l'effet de l'activation thermique peut se faire sur la base du concept du volume d'activation [76]. Les processus de multiplication des dislocations, de restauration de la sous-structure de dislocations, de mobilité des atomes, etc. qui conditionnent l'évolution de la structure de dislocations sont fortement sensibles à la température, au temps (c'est-à-dire à la vitesse de déformation) et à la contrainte appliquée.

Le but des essais de traction présentant des sauts de vitesses de déformation est de conserver une structure de dislocations identique pour des vitesses de déformation différentes. Il est possible pour des domaines restreints de température et de déformation, d'établir une équation d'état qui peut se réduire à une équation entre trois variables indépendantes : le cisaillement,  $\tau$ , la vitesse de déformation,  $\dot{\epsilon}$ , et la température,  $T$ , sous la forme d'une équation d'Arrhénius :

$$\dot{\epsilon} = \dot{\epsilon}_0 \exp\left(\frac{-\Delta G}{kT}\right) \quad (4.1)$$

Avec  $\Delta G = Q - \Delta\tau V$

Où  $\dot{\epsilon}_0$  est un paramètre qui dépend de la fréquence de vibration du segment ancré, de la distance entre les points ancrés et de l'aire balayée au cours et après l'activation thermique;  $\Delta G$ , est le changement de l'énergie libre de Gibbs lorsque le segment de dislocation se déplace d'une longueur sur laquelle l'activation thermique intervient;  $k$  est la constante de Boltzmann;  $T$  est la température,  $\Delta\tau$  est le cisaillement effectif aidant la dislocation à surmonter l'obstacle et  $V$  est le volume d'activation.

Le volume d'activation est défini thermodynamiquement par :

$$V = - \left( \frac{\delta \Delta G}{\delta \tau} \right)_T \quad (4.2)$$

A partir des équations (4.1) et (4.2), on peut obtenir le volume d'activation en fonction de la variation de la contrainte  $\Delta\sigma$  :

$$V = 3kT \frac{\Delta \ln \dot{\epsilon}}{\Delta \sigma} \quad (4.3)$$

Des essais de traction ont été effectués avec l'alliage Cu15Fe produit à partir de poudres atomisées afin de déterminer le volume d'activation. Celui-ci peut donc être obtenu à partir des écarts de la limite d'écoulement,  $\Delta\sigma$ , provoqués par des sauts de vitesse de déformation.

Les volumes d'activation ont été calculés à partir des sauts de vitesse de déformation pour cinq taux d'érouissage différents,  $\eta \geq 2.6$  (92.57%) et  $\eta \leq 7.4$  (99.94%). Les volumes ont été mesurés après différents taux de déformation en traction. En fait, le volume d'activation n'a pas de sens physique, il s'agit plutôt d'une aire d'activation multipliée par le vecteur de Burgers. L'aire d'activation peut être considérée comme la surface que la dislocation franchit en étant thermiquement activée. Les mesures du volume d'activation ne sont évidemment possibles uniquement après que l'éprouvette ait dépassé nettement la limite élastique et tant que celle-ci se déforme sans striction. Cet intervalle est relativement faible (voir § 4.4.1. *essais de traction à vitesse de déformation constante*) dans notre cas.

Les variations du volume d'activation en fonction du taux de déformation en traction étaient très faibles et ne montraient aucune tendance systématique. Si bien que nous donnons dans le Tableau 4.6. les résultats moyens, obtenus entre 0.5 et 2.2 % de déformation, du volume et de l'aire d'activation ainsi que les écarts types correspondants aux différentes mesures.

Tableau 4.6. : Résumé des volumes et des aires d'activation obtenus.

$\eta$	2.6 (92.57%)	3.0 (95.02%)	4.4 (98.77%)	5.7 (99.67%)	7.4 (99.94%)
V (b <sup>3</sup> )	100 ± 18	101 ± 19	45 ± 2	33 ± 4	27 ± 2
Aire (b <sup>2</sup> )	100 ± 18	101 ± 19	45 ± 2	33 ± 4	27 ± 2
Aire (nm <sup>2</sup> )	6.6	6.6	3.0	2.2	1.8

Le vecteur de Burgers utilisé est celui du cuivre ( $b = 0.256$  nm).

#### 4.5. Mesures effectuées par rayons-x

##### 4.5.1. Mesures des macrocontraintes

Nous avons mesuré les contraintes internes uniaxiales à partir de l'équation (3.12) (§ 3.9.2. *Mesures des contraintes internes*). De façon à permettre une mesure précise du déplacement des pics en évitant le décalage mécanique du goniomètre, les pics à proximité des raies du cuivre et

du fer d'un étalon de nickel ont été utilisés. Nous avons essayé de mesurer le déplacement des pics 311, 400 du cuivre et du pic 211 du fer après différents taux d'écroutissage.

Les mêmes mesures ont été faites trois fois sur l'alliage Cu15Fe produit à partir de poudres préallées après extrusion, après différents taux d'étirage,  $\eta = 4.0$  (98.17%) et 6.3 (99.82%) et après un taux d'écroutissage  $\eta = 5.7$  (99.67%)+ traité thermiquement 2h à 160 °C. L'échantillon extrudé a été recuit 30 min à 600°C puis refroidi lentement dans le four afin d'éliminer les éventuelles contraintes résiduelles.

Plusieurs contributions peuvent jouer un rôle sur la précision des valeurs mesurées. La première est évidemment le pas minimum effectué par le goniomètre lors des déplacements, celui-ci est de 0.005° dans notre cas. La détermination précise du sommet par le programme du diffractomètre se fait sur les pics lissés en calculant le maximum d'une parabole ajustée sur les valeurs d'intensité proches du sommet. Cette erreur est nettement inférieure à 0.005° et peut être négligée. Les pics de diffraction présentent une morphologie qui varie du fait que le taux d'écroutissage est fortement différent. En effet, la symétrie des pics convolués  $K_{\alpha 1} + K_{\alpha 2}$  varie si les deux pics du doublet sont élargis par l'écroutissage et la diminution de la taille des cristaux diffractants. Pour éliminer cet effet, il faut soustraire la contribution du doublet  $K_{\alpha 2}$  sur les pics de diffraction. Il est clair que cette soustraction (algorithme de Ladell [77]) augmente le bruit de fond et peut quelque peu fausser la morphologie du pic  $K_{\alpha 1}$ . L'erreur maximale provenant de cette soustraction est d'environ 0.015°. En fait, cette valeur a été obtenue en comparant des pics harmoniques d'un étalon de silicium avec et sans soustraction du doublet  $K_{\alpha 2}$ . Pour permettre une estimation de l'erreur globale, il faut encore tenir compte de l'intensité des pics par rapport au bruit de fond. Ce rapport augmente avec le temps de comptage. Comme l'intensité des pics de fer est plus faible que celle des pics de cuivre, cette source d'erreur est donc plus importante pour le fer.

En tenant compte de toutes ces contributions, nous estimons que globalement l'erreur est au maximum de 0.035° pour le cuivre et de 0.060° pour le fer, ce qui correspond dans la gamme des angles de diffraction utilisés (41 à 59°) au maximum à environ 400 MPa pour le fer et 170 MPa pour le cuivre. Les résultats que nous avons obtenus peuvent être résumés de la façon suivante :

- Les valeurs mesurées des macrocontraintes dans les rubans de fer varient autour de  $0 \pm 150$  MPa quelque soit le taux d'écroutissage.
- Les valeurs mesurées des macrocontraintes dans la matrice de cuivre ne varient pas de façon systématique avec le taux d'écroutissage, elles se situent toutes entre + 70 et - 200 MPa.

On peut donc dire qu'à l'erreur expérimentale près nous ne mesurons pas de contraintes internes dans les rubans de fer et que la matrice de cuivre semble parfois présenter de faibles contraintes en compression mais sans que l'on puisse observer de variations avec le taux d'écroutissage. Il faut noter aussi que nous avons fait l'hypothèse que l'état de tension était essentiellement monoaxial en utilisant l'équation (3.12) ce qui est probablement assez correct pour les rubans de fer mais discutable pour la matrice de cuivre fortement déformée.

Une façon d'augmenter la précision est de mesurer le déplacement entre des pics dont la morphologie est la même afin d'éviter le problème lié à la soustraction du doublet  $K_{\alpha 2}$ . Nous avons mesuré les contraintes internes à l'intérieur de la matrice de cuivre pour l'alliage Cu15Fe extrudé après déformations de 2, 5 et 10% en traction et en compression.

La figure 4.33 montre un exemple de déplacement des pics de diffraction (400) du cuivre. On voit bien que, même si, les intensités relatives sont différentes, la morphologie des deux pics est très semblable.

En reprenant le calcul d'estimation des erreurs effectué précédemment, on voit que celles-ci sont au maximum de  $0.02^\circ$  pour le cuivre, ce qui correspond à environ 70 MPa. Nous avons mesuré le déplacement des pics 311, 222 et 400 du cuivre pour chacun des échantillons déformés 2, 5 et 10%. La figure 4.34 montre la variation des différences de macrocontraintes entre la traction et la compression pour différentes déformations effectuées. L'erreur indiquée correspond à l'écart type entre les trois mesures et l'on voit qu'elle est toujours inférieure à celle estimée. Bien que nous n'ayons pas pu dépasser le taux de 10% de déformation du fait de la striction lors des essais de traction, il semble que les macrocontraintes s'approchent d'une valeur maximale lorsque le taux de déformation augmente.

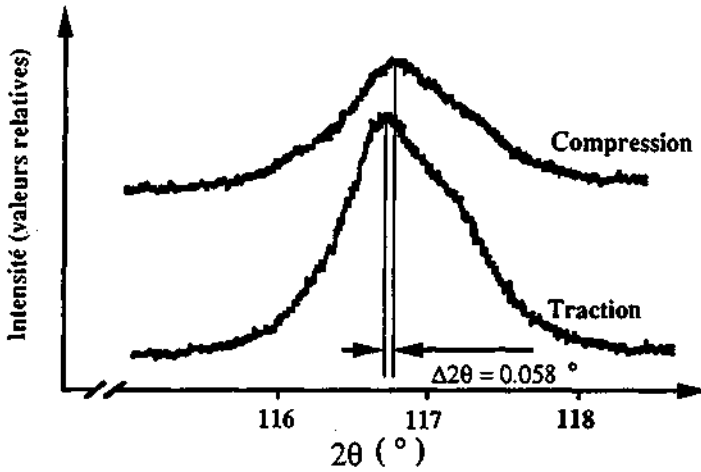


Figure 4.33 : Exemple de déplacement du pic 400 du cuivre. Alliage Cu15Fe, extrudé et déformé 10% soit en compression soit en traction.

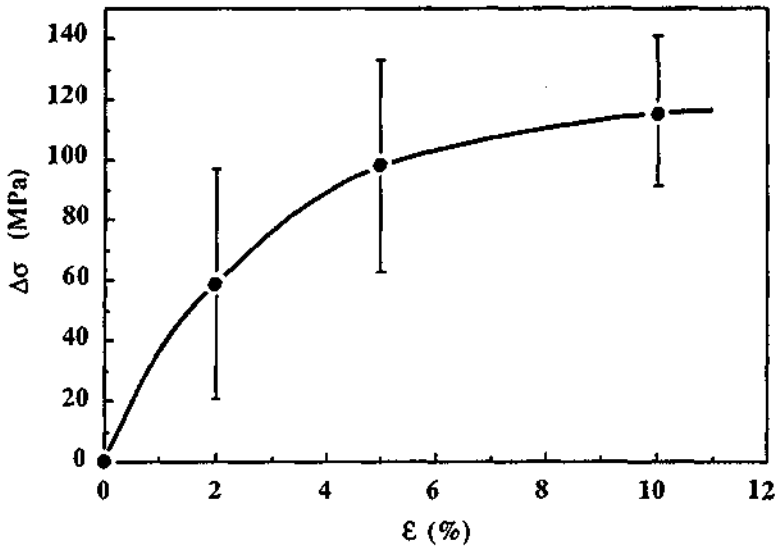


Figure 4.34 : Différence de macrocontrainte mesurée par le déplacement des pics de rayons-x entre les échantillons de traction et de compression après 2, 5 et 10% de déformation.

#### 4.5.2. Mesures des microcontraintes.

Nous avons utilisé la relation de Hall-Williamson (3.13) (§ 3.9.3. Mesures des microcontraintes), pour séparer le rôle des microdéformations et de la taille des cristallites sur l'élargissement des pics de diffraction. Nous avons enregistré les pics de diffraction entre 20 et 60°, mesuré leurs largeurs à mi-hauteur et soustrait à partir de l'équation (3.7), (§ 3.9. Mesures par rayons-x), l'élargissement instrumental. Le résultat de la représentation graphique de  $\beta \cos \theta$  en fonction de  $\sin \theta$  est présenté à la figure 4.35 pour la matrice de cuivre. Les droites présentées ont été obtenues par les moindres carrés.

Afin de permettre une mesure aussi précise que possible des microdéformations dans la matrice de cuivre, nous avons ajouté les points à  $\sin \theta = 0$  lié à la taille des cristallites diffractants en tenant compte de la taille de grains de la matrice mesurée au MET. Il faut noter que les mesures quantitatives des dimensions des cristallites de cuivre ont été obtenues au MET sur des coupes transversales et que les mesures aux rayons-x ont été faites sur des coupes longitudinales si bien que l'épaisseur des cristallites diffractantes correspond aux dimensions transversales mesurées au MET.

Il ressort très clairement de la figure 4.35 a) que l'élargissement des pics 200 et 400 du cuivre est nettement plus important que l'élargissement des pics 111 et 222. Il est intéressant de séparer les différentes raies harmoniques, ce que nous avons fait à la figure 4.35 b) et c). Bien que le nombre de points soit très limité, on voit que la relation de Hall-Williamson est bien suivie pour les raies harmoniques.

Le Tableau 4.7 donne les valeurs obtenues pour les microdéformations et les microcontraintes mesurées et calculées à partir de tous les pics ainsi que pour les raies harmoniques  $\langle 111 \rangle$  et  $\langle 200 \rangle$  séparément. Pour calculer les microcontraintes à partir des microdéformations liées aux raies harmoniques, nous avons utilisé les valeurs du module d'élasticité anisotrope. Il ressort très clairement de ce tableau, ainsi que de la figure 4.35, que la relation de Hall-Williamson est suivie pour les raies harmoniques du cuivre et que les microcontraintes mesurées à partir des microdéformations liées aux différents types de raies deviennent de plus en plus proches lorsque le taux de déformation augmente.

De manière générale, lors d'un très fort écrouissage il est observé que les raies de diffraction des plans perpendiculaires aux directions de module d'élasticité faible s'élargissent plus que les autres. Ainsi, Benghalem [78] a montré la très nette dépendance de l'élargissement des raies, de différents matériaux fortement écrouis (par "mechanical alloying"), en fonction du coefficient d'anisotropie élastique.

Nous avons pu expliquer la présence de microdéformations anisotropiques en fonction du type de plans diffractants sur la base de l'anisotropie élastique. Il est intéressant de relever aussi que dans le travail de Eastman [79] un fort élargissement des pics de diffraction des plans dont la direction normale présente la plus grande compliance a été mesuré, ceci sur des échantillons de palladium nanocristallins.

Tableau 4.7 : Résultats des mesures des microcontraintes de la matrice de cuivre.

État	Diamètre (mm)	$\bar{\epsilon}$ [%]	$\epsilon_{\langle 111 \rangle}$ [%]	$\epsilon_{\langle 200 \rangle}$ [%]	$\bar{\epsilon}_{iso}$ [MPa]	$\epsilon_{\langle 111 \rangle} E_{\langle 111 \rangle}$ [MPa]	$\epsilon_{\langle 200 \rangle} E_{\langle 200 \rangle}$ [MPa]
Extrudé	22.00	0.19	0.11	0.21	230	210	145
$\eta = 3.4$	4.00	0.24	0.15	0.32	290	280	230
$\eta = 4.1$	2.90	0.36	0.18	0.49	430	330	340
$\eta = 6.2$	0.95	0.51	-	0.60	610	-	410
$\eta = 5.7 TT^*$	1.25	0.41	-	0.44	490	-	300

$TT^*$  correspond à un traitement thermique de 2h à 160°C.

Les valeurs des modules d'élasticité dans les directions  $\langle 111 \rangle$  et  $\langle 200 \rangle$ ,  $E_{\langle 111 \rangle}$  et  $E_{\langle 200 \rangle}$ , ont été calculées à partir des compliances données par Dieter [80] page 58.  $\bar{\epsilon}$  représente les microdéformations moyennes obtenues à partir de tous les pics de diffraction et  $\epsilon_{\langle 111 \rangle}$  ainsi que  $\epsilon_{\langle 200 \rangle}$  correspondent aux microdéformations mesurées dans les directions  $\langle 111 \rangle$  et  $\langle 200 \rangle$ , respectivement.

On voit qu'un traitement thermique de 2h à 160°C fait chuter une partie des microcontraintes. Nous verrons (§ 4.6. *Stabilité thermique*) que c'est à partir de cette température de traitement thermique que la contrainte maximale et la limite élastique des composites Cu15Fe fortement écrouis commencent à chuter et que les phénomènes de restauration commencent.

La figure 4.36 montre l'évolution moyenne des microcontraintes, calculées à partir des valeurs des pentes des représentations de Hall-Williamson pour les raies harmoniques, en fonction du taux d'écrouissage des fils. On voit que les microcontraintes du cuivre augmentent plus ou moins linéairement avec  $\eta$ . Les barres d'erreur sur les points correspondent à l'écart type.

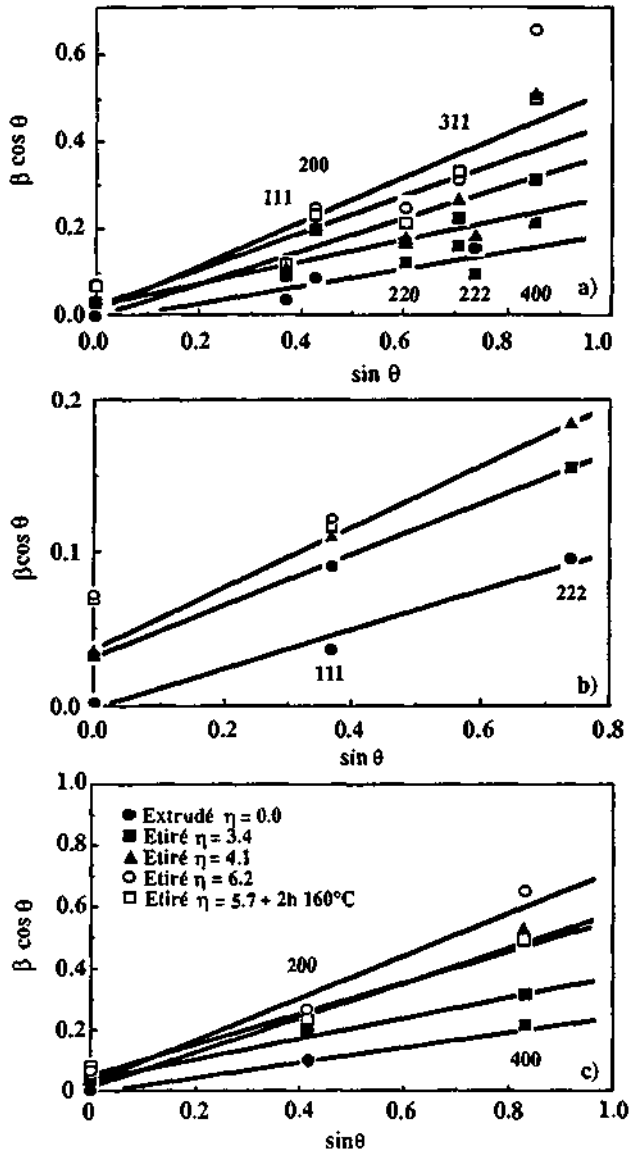


Figure 4.35. : Relation de Hall-Williamson du cuivre appliquée a) à toutes les raies, b) aux raies harmoniques 111 et c) aux raies harmoniques 200. Les légendes sont les mêmes pour les trois figures.

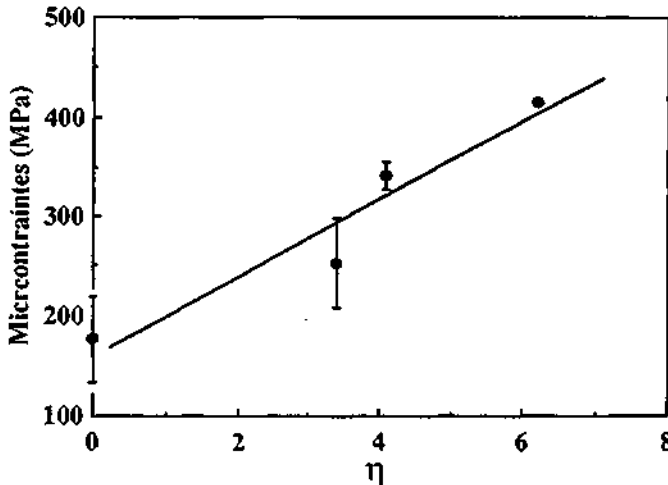


Figure 4.36 : Évolution moyenne des microcontraintes des raies harmoniques de type 111 et 200 du cuivre en fonction de  $\eta$ .

Nous avons essayé de déterminer les microcontraintes présentes dans les rubans de fer en utilisant la relation de Hall-Williamson. Le résultat est présenté à la figure 4.37. Lorsque le taux d'écroutissage augmente, on observe une très forte dispersion des résultats ne permettant pas d'obtenir avec une certaine précision les microdéformations. Le problème ne peut pas être approché d'une façon aussi simple que pour le cuivre. Le nombre de raies harmoniques n'est pas suffisant pour permettre d'estimer les microcontraintes en tenant compte de l'anisotropie élastique.

De plus, un autre facteur lié à la texture et à la morphologie des rubans joue un rôle important. En effet, les diffractogrammes ont été enregistrés longitudinalement sur les fils si bien que tous les plans diffractants des rubans de fer avaient comme axe de zone  $[011]$ . Ainsi seuls les plans  $(0\bar{1}1)$ ,  $(200)$ ,  $(2\bar{1}1)$  et  $(0\bar{2}2)$  pouvaient diffracter dans l'intervalle d'angles  $\theta$  que nous avons utilisé. Une telle configuration a un effet direct sur l'élargissement des pics car leur élargissement est inversement proportionnelle à l'épaisseur du cristal diffractant. Si bien que lorsque les plans  $(200)$  diffractent l'épaisseur du cristal correspond à l'épaisseur des rubans: on s'attend donc à une forte augmentation de l'élargissement de ce pic. En regardant la position de tous les plans diffractants par rapport à la morphologie des rubans, on peut conclure qu'il y aura un faible élargissement dû à l'effet de taille du pic  $0\bar{1}1$ , un élargissement plus important du pic  $2\bar{1}1$  et un très fort élargissement du pic  $200$ . De plus, ces élargissements

liés à l'épaisseur des cristaux diffractants sont fonction du taux d'écroutissage puisque la taille de la microstructure en est fonction.

Il est à noter que les directions  $\langle 200 \rangle$  sont aussi les directions où le module élastique anisotrope est le plus faible (125 GPa). On peut s'attendre donc à ce que l'élargissement de la raie de diffraction 200 soit aussi influencé par l'anisotropie élastique. Ce qui n'est pas le cas de l'élargissement des raies de diffraction  $0\bar{1}1$ ,  $2\bar{1}1$  et  $0\bar{2}2$  qui est peu influencé par l'anisotropie élastique car le module d'élasticité est le même dans toutes les directions perpendiculaires à ces plans (212 GPa). Ainsi la seule façon d'obtenir une grossière estimation des microcontraintes internes dans les rubans de fer est de n'utiliser que les raies de diffraction  $0\bar{1}1$  et  $2\bar{1}1$  qui présentent un élargissement identique lié à l'anisotropie élastique et un effet de taille relativement comparable. Les microcontraintes obtenues à partir de la pente du graphique  $\beta \cos \theta$  en fonction de  $\sin \theta$  sont probablement trop élevées car l'effet de taille est plus grand pour le pic  $2\bar{1}1$  que pour le pic  $0\bar{1}1$ .

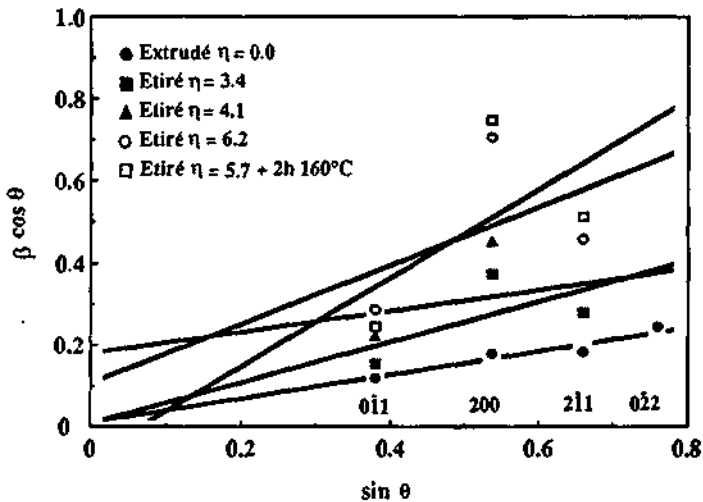


Figure 4.37 : Relation de Hall-Williamson du fer appliquée sur tous les pics mesurés.

Le Tableau 4.8 donne les résultats des mesures des microcontraintes estimées de la façon décrite. Bien que la précision de ces mesures soit mauvaise, on voit que, comme dans la matrice de cuivre, les microcontraintes présentes dans les rubans augmentent très probablement avec le taux d'écroutissage.

Tableau 4.8. : Résultats des mesures des microcontraintes de la matrice de fer.

État	Diamètre [mm]	$\bar{\epsilon}$ [%]	$\epsilon_{[011] \cdot [2\bar{1}1]}$ [%]	$\bar{\epsilon}E_{iso}$ [MPa]	$\epsilon_{[0\bar{1}1] \cdot [2\bar{1}1]} E_{anis}$ [MPa]
Extrudé	22,00	0.15	0.21	300	445
$\eta = 3,4$	4,00	0.25	0.37	500	785
$\eta = 4,1$	2,90	0.14	0.24	280	510
$\eta = 6,2$	0,95	0.36	0.54	720	1145
$\eta = 5,7 TT^a$	1,25	0.54	0.76	1080	1611

$TT^a$  correspond à un traitement thermique de 2h à 160°C.

$\bar{\epsilon}$  représente les microdéformations moyennes obtenues à partir de tous les pics de diffraction et  $\epsilon_{[011] \cdot [2\bar{1}1]}$  correspondent aux microdéformations mesurées à l'aide des pics de diffraction  $0\bar{1}1$  et  $2\bar{1}1$  et  $E_{iso}$ , ainsi que  $E_{anis}$ , sont les modules d'élasticité isotrope et anisotrope calculé selon Dieter [80] page 53.

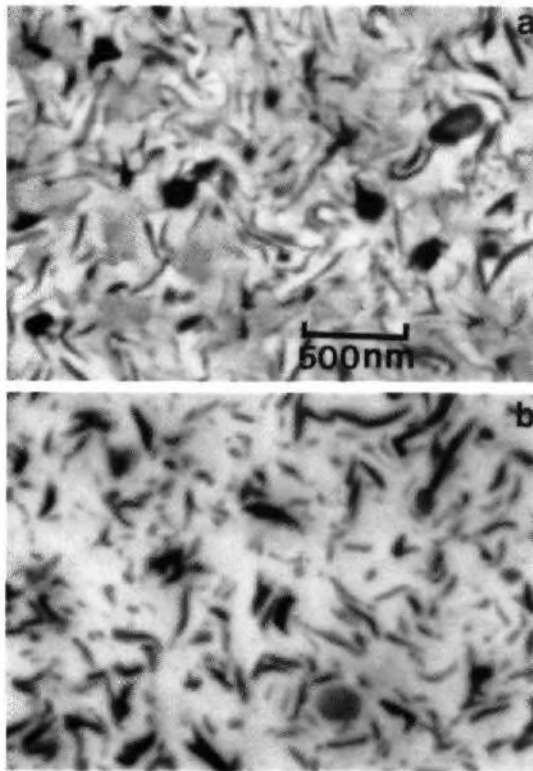
#### 4.6. Stabilité thermique

Nous avons effectué quelques traitements thermiques de 2 et de 100h à des températures variant entre 100 et 340°C sur des fils de l'alliage Cu 15Fe produit à partir des poudres compactées. Le taux d'écroutissage des fils était de 5.8. Quelques traitements thermiques supplémentaires ont été effectués sur des fils écrouis à  $\eta = 2.6$  (92.5 %) et 4.0 (98.2 %) pendant 1h à 400 et 600°C. Pour tous les traitements thermiques, les fils ont été encapsulés sous vide. Nous avons étudié l'évolution de la microstructure après traitement thermique et observé l'effet de ces traitements sur les propriétés mécaniques des fils en traction.

##### 4.6.1. Évolution de la microstructure après traitements thermiques

L'aspect de la microstructure des fils après les traitements thermiques entre 100 et 340 °C a été observé au MEB sur des coupes transversales. Nous avons observé que les premiers effets de la globularisation des fibres de fer sont plus facilement décelables sur les coupes transversales. La figure 4.38 montre la variation de la microstructure pour un fil non-traité thermiquement et un fil traité thermiquement à 220 °C pendant 100h. Nous avons remarqué que le traitement thermique de 2h à 220 °C induit une forte

globularisation. Seuls les rubans les plus épais présentent encore une morphologie typique, les plus fins se sont globularisés.



**Figure 4.38.** : Coupes transversales de l'alliage Cu15Fe  $\eta = 5.8$  (99.7 %) obtenues au MEB.  
a) Non-traité thermiquement.  
b) Après traitement thermique à 220 °C pendant 100h.

La figure 4.39 présente des micrographies obtenues au MET prises en champ clair et permet de comparer la microstructure d'un fil non-traité thermiquement et d'un fil traité pendant 2h à 220°C. On observe que les rubans semblent globalement conserver leur morphologie. Cependant, les premiers signes de globularisation sont déjà perceptibles après un traitement thermique de 2h à 220°C, comme on peut le voir à la figure 4.39 c ) où les rubans les plus fins commencent à globulariser.

La figure 4.40 montre, sur une coupe longitudinale observée au MEB, la variation de la microstructure du fil de  $\phi$  6 mm ( $\eta = 2.6$ ) après traitement à 600°C pendant 1h. On voit que la globularisation est très importante à 600°C. Il faut noter que visiblement l'instabilité des rubans n'est pas seulement dépendante longitudinalement d'instabilités proches des extrémités car tous les rubans coupés présentent des instabilités sur toute leurs longueurs. Si bien que la globularisation doit apparaître sur toute la surface du ruban plus ou moins simultanément.

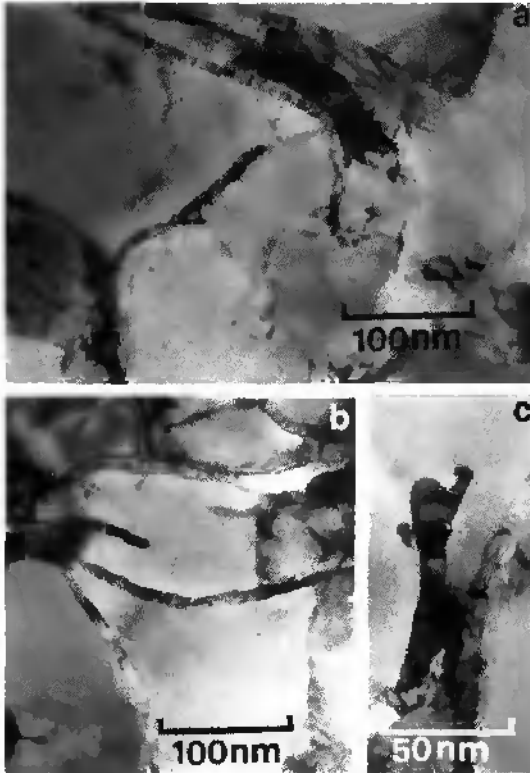


Figure 4.39 : Coupes transversales de l'alliage Cu15Fe  $\eta = 5.8$  (99.7 %) obtenues au MET.  
 a) Non-traité thermiquement.  
 b) et c) Après traitement thermique à 220 °C pendant 2h.

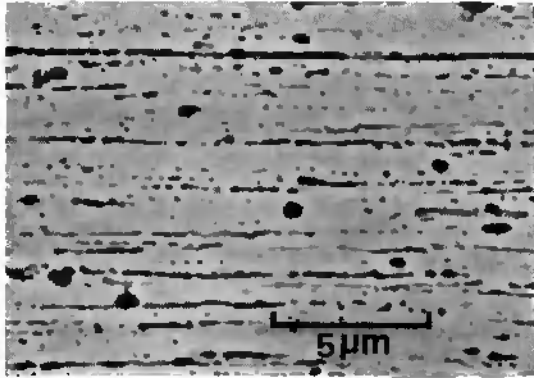


Figure 4.40. : Coupe longitudinale de l'alliage Cu15Fe  $\eta = 2.6$  (92.6 %), après un traitement thermique à 600 °C pendant 1h.

#### 4.6.2. Propriétés mécaniques en traction.

Le résumé des résultats des essais mécaniques figure dans le Tableau 4.9 pour des fils étirés à  $\eta = 2.6$  (92.6 %), 4.0 (98.2 %) et 5.8 (99.7 %). Ces résultats sont illustrés à la figure 4.41 où nous avons représenté la variation de la contrainte maximale et du point d'écoulement en fonction de la température des traitements thermiques pour des traitements de 2 et de 100 h, ceci pour le fil étiré à une valeur de  $\eta = 5.8$  (99.7 %). On voit que jusqu'à environ 150°C, la contrainte maximale et le point d'écoulement ne montrent pas de diminution. Par contre, dès que cette température est dépassée, la chute des propriétés mécaniques devient importante, ceci d'autant plus que la durée du traitement est longue.

Un autre résultat est le fait que l'écart entre la contrainte maximale et le point d'écoulement reste pratiquement constant en fonction de la température des traitements thermiques. Ceci montre que le durcissement durant l'essai de traction après différents traitements thermiques est toujours environ le même. On peut voir sur les courbes présentées à la figure 4.41 que le Cu15Fe semble présenter un phénomène de durcissement proche de 100 °C. Ceci doit probablement être dû à la précipitation d'une petite quantité de fer à partir de la matrice de cuivre sursaturée. La sursaturation de la matrice de cuivre provient probablement du refroidissement à l'eau suivant l'extrusion. On peut observer aussi à partir du Tableau 4.9 en comparant les résultats obtenus pour les fils étirés à  $\eta = 2.6$  (92.6 %) et 4.0 (98.2 %), que la chute des propriétés mécaniques est d'autant plus importante que le taux d'écroutissage est élevé.

Tableau 4.9 : Résumé des résultats des essais de traction sur des fils traités thermiquement.

$\eta$	T.T. [°C]	$\sigma_{0.2}$ [MPa]	$\sigma_{max.}$ [MPa]	$\eta$	T.T. [°C]	$\sigma_{0.2}$ [MPa]	$\sigma_{max.}$ [MPa]
5.8	-	828	1055	5.8	100h 100 °C	869	1053
5.8	2h 100 °C	855	1050	5.8	100h 160 °C	821	1035
5.8	2h 130 °C	855	1051	5.8	100h 220 °C	693	938
5.8	2h 160 °C	821	1047	4.0	-	769	926
5.8	2h 190 °C	828	1042	4.0	1h 400 °C	522	727
5.8	2h 220 °C	807	1036	4.0	1h 600 °C	399	529
5.8	2h 250 °C	781	1000	2.6	-	687	727
5.8	2h 280 °C	760	975	2.6	1h 400 °C	539	615
5.8	2h 310 °C	746	950	2.6	1h 600 °C	370	453
5.8	2h 340 °C	648	857	-	-	-	-

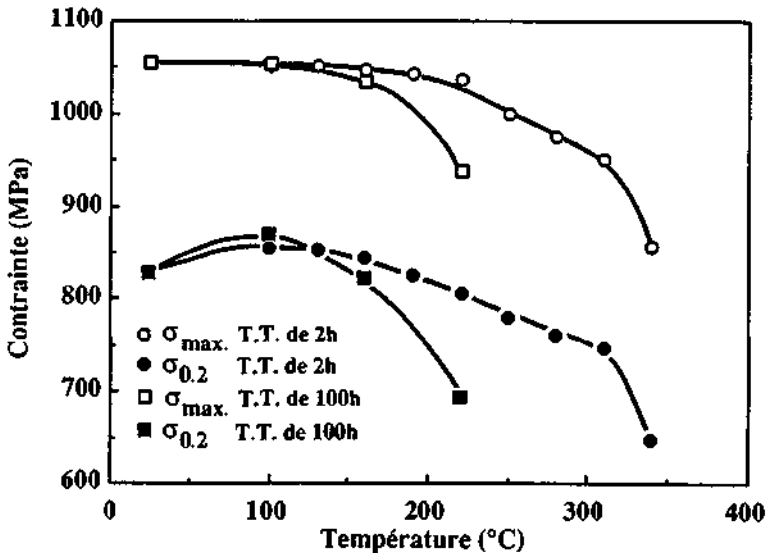


Figure 4.41 : Variation de la contrainte maximale et du point d'écoulement en fonction de la température des traitements thermiques.

## **Chapitre 5**

=====

# **Discussion et interprétation des résultats**

## 5. Discussion et interprétation des résultats

### 5.1. Interprétation de l'évolution de la microstructure lors de l'écroutissage

Durant les premiers stades de l'écroutissage à froid, les grains de cuivre sont constitués de cellules avec des parois souvent localisées sur des particules de fer qui commencent à avoir une morphologie de ruban. Les parois des cellules de dislocations se réarrangent lors de l'écroutissage pour produire des parois plus stables. Ainsi, progressivement, celles-ci se convertissent en des joints grands angulaires et de nouveaux grains sont formés, entourés en grande partie par des rubans de fer si bien que les interfaces sont fréquemment des joints de phases. Ce mécanisme est responsable de l'importante diminution de la taille de grains durant le début de l'écroutissage. La taille des grains était initialement, après l'extrusion, d'environ  $5\ \mu\text{m}$  et devient à  $\eta = 4$  (98.2 %), par exemple, proche de 200 nm. En fait, cette diminution de la taille des grains est supérieure à celle espérée sur la base de la réduction géométrique de la section durant l'étréage. En effet, la taille de grains devrait passer de  $5\ \mu\text{m}$  à  $5 \cdot \exp(-0.5 \cdot \eta)\ \mu\text{m}$ , c'est-à-dire environ 700 nm à  $\eta = 4$  (98.2 %). Les dimensions données ici sont transversales et donc minimales du fait que les cellules de cuivre sont allongées dans l'axe d'étréage. La diminution initiale de la taille de grains de la matrice de cuivre résulte donc de la multiplication des parois de cellules observées au début de l'écroutissage, de la même manière que dans les matériaux monophasés [29] ainsi que de l'incompatibilité de la déformation liée à la présence d'une deuxième phase.

A partir d'une valeur du taux d'écroutissage d'environ 3, progressivement l'intérieur des grains de cuivre ne présente plus de sous-structure de dislocations. Cependant, la présence de précipités de fer ancrant les dislocations, stabilise leur présence à l'intérieur des grains de la matrice, comme on peut le voir à la figure 4.18a). Il faut noter que l'observation de cellules pratiquement exemptes de dislocations à l'intérieur est typique du stade IV de la déformation du cuivre pur [81]. Ce stade est caractérisé en plus par une structure de dislocations de faible énergie (sous-joint) et par des sous-grains de cuivre qui deviennent équiaxes dans la section transverse et très allongés dans la section longitudinale si l'écroutissage s'est fait par étréage.

Cairns [35] a montré dans un cuivre pur étré à température ambiante, que des nouveaux grains sont présents après un taux d'écroutissage de 3 environ, si bien qu'après une forte déformation, la taille de grains et le durcissement restent pratiquement constants. Le terme de grains recristallisés est utilisé par Cairns lorsque la mésorientation entre les cellules polygonisées

devient plus importante que  $5^\circ$ . Ce mécanisme progressif de désorientation est un procédé de restauration qui aboutit à la formation de nouveaux grains. En utilisant la définition proposée par Cairns, le terme de grains de cuivre dynamiquement recristallisés est souvent mentionné dans le domaine des composites *in-situ* (voir par exemple [46]). Il faut noter cependant, que ces grains dynamiquement recristallisés ne requièrent pas la présence d'un mécanisme de germination suivi de la croissance des grains. Cependant, quelques auteurs (Nutting [37] par exemple) ont observé des grains dynamiquement recristallisés de dimensions plus grandes que les cellules de la matrice dans laquelle ils ont grossi, qui apparaissent totalement exempt de dislocations et qui présentaient parfois des macles droites apparues donc sans équivoque lors de la recristallisation. Du fait que le très fort écrouissage doit générer une forte densité de défauts ponctuels et que lors de celui-ci la température peut augmenter localement assez fortement, la vitesse de recristallisation peut être considérablement augmentée et favoriser aussi une recristallisation statique. La matrice de cuivre dans les composites *in-situ* se comporte donc de façon comparable à un cuivre pur, mais la présence de la fine dispersion des rubans de fer dans l'alliage Cu15Fe empêche une recristallisation selon l'approche décrite par Nutting [37].

Après un taux d'écrouissage intermédiaire ( $\eta$  proche de 4 environ), les grains de cuivre ont une taille moyenne inférieure à la taille minimale des cellules de dislocations induites par étirage d'un fil de cuivre pur [28]. Les rubans de fer présentent, lors de l'étirage, une réduction de section proche de celle des grains de cuivre mais légèrement supérieure. Cette réduction de la section des rubans de fer ne se fait essentiellement pas de façon axisymétrique si bien que l'épaisseur des rubans se réduit plus rapidement et la largeur plus faiblement que la réduction moyenne des grains de cuivre, comme on peut le voir en comparant les figures 4.21 et 4.22. Ceci a pour conséquence que la fraction d'interface cuivre-ruban de fer va augmenter plus rapidement que dans le cas d'une déformation axialement isotropique. Ce comportement a deux conséquences directes : les rubans doivent se courber transversalement sur eux-mêmes afin de s'adapter à la déformation globale du composite imposée par les filières et participent à la réduction des dimensions de la matrice de cuivre en découpant les grains, comme nous l'avons observé par exemple à la figure 4.16.

Le flux de matériaux dans la filière lors de l'étirage provoque la courbure des rubans de la phase cubique centrée dans la section transverse. Étant donné que les dimensions initiales de la phase cubique centrée sont faibles dans l'alliage Cu15Fe, les rubans obtenus restent souvent droits dans la section transverse. Ce comportement est clairement illustré à la figure 4.18 par exemple et est différent de celui observé dans les composites *in-situ* produits à partir de lingots coulés. En effet, dans ces composites, la phase cubique centrée présente un rapport largeur sur

épaisseur des rubans beaucoup plus grand et est forcée de se courber davantage dans la section transverse durant l'étréage (voir par exemple [24]). De plus, la structure dendritique de la phase cubique centrée dans les alliages coulés, fait que différents rubans se développent à partir des bras cristallographiques et leurs comportements ne peuvent pas être indépendants les uns des autres. En effet, ces bras cristallographiques auront la même texture et se trouvent proches les uns des autres, si bien qu'ils se comporteront de façon similaire lors de l'étréage.

Le mécanisme de découpe des grains de cuivre rend possible une décroissance continue de leur taille moyenne lors de l'étréage, même en dessous de la taille minimum de cellules obtenues dans un cuivre pur étré. Par exemple, une taille de grains de la matrice de cuivre d'environ 60 nm a été observée après un taux d'étrouissage de 8 environ. Durant ce stade de réduction de la taille de grains (de  $\eta = 4$  à  $\eta = 7.5$  environ), la diminution de la taille est plus faible que celle prédite par la réduction de section et dépend essentiellement de la diminution de dimensions transverses des rubans de fer. Etant donné que la fraction d'interface occupée par des rubans de fer est, à l'erreur expérimentale près, constante (68%) pour des taux de déformation supérieur à 4.5, la réduction de la section des rubans lors de l'étréage doit être identique, à l'erreur expérimentale près, à la réduction de la section de grains de la matrice. La surface des rubans de fer diminue avec une pente de -0.78 avec le taux de déformation (voir figure 4.22 a)  $\ln(t_{Fe} \cdot W_{Fe})$  en fonction de  $\eta$ ) et la surface des grains de cuivre avec une pente de -0.68 (= 2 fois -0.34, -0.34 étant la pente de la représentation  $\ln(t_{Cu})$  en fonction de  $\eta$ , voir figure 4.21 b)). Ces deux valeurs sont à l'erreur expérimentale près identiques.

D'un autre côté, la longueur des rubans de fer doit assurer une réduction de la section des rubans pratiquement identique à la réduction géométrique des dimensions du fil. Cependant, la pente de la diminution de la section des rubans de fer est seulement de -0.78 au lieu de -1. L'explication de ce comportement doit être que les rubans nanocristallins de fer ne sont chargés qu'élastiquement au début de la déformation plastique du composite dans la filière. Le comportement élastique des rubans de fer au début de la déformation plastique du composite est discuté plus en détails au § 5.3 *Nouveau modèle décrivant les propriétés mécaniques de l'alliage Cu15Fe*. La déformation plastique subie par le composite dans la filière est d'environ 16% par passe. Cependant, à  $\eta = 6.2$  (99.8%), les rubans de fer ont une épaisseur de  $t_{Fe} = 6$  nm et une limite d'écoulement d'environ 2700 MPa (voir relation (5.6) § 3.2. *Durcissement des rubans*). La résistance des rubans de fer est d'environ 1800 MPa supérieure pour cette valeur d'étrouissage à la résistance du composite. Ainsi, les rubans de fer ne peuvent subir une déformation élastique supplémentaire par rapport à la matrice de cuivre, que l'on peut estimer très grossièrement à environ 1% (=  $1800 \text{ MPa} / E_{Fe}$ ). Ce comportement provoque donc une

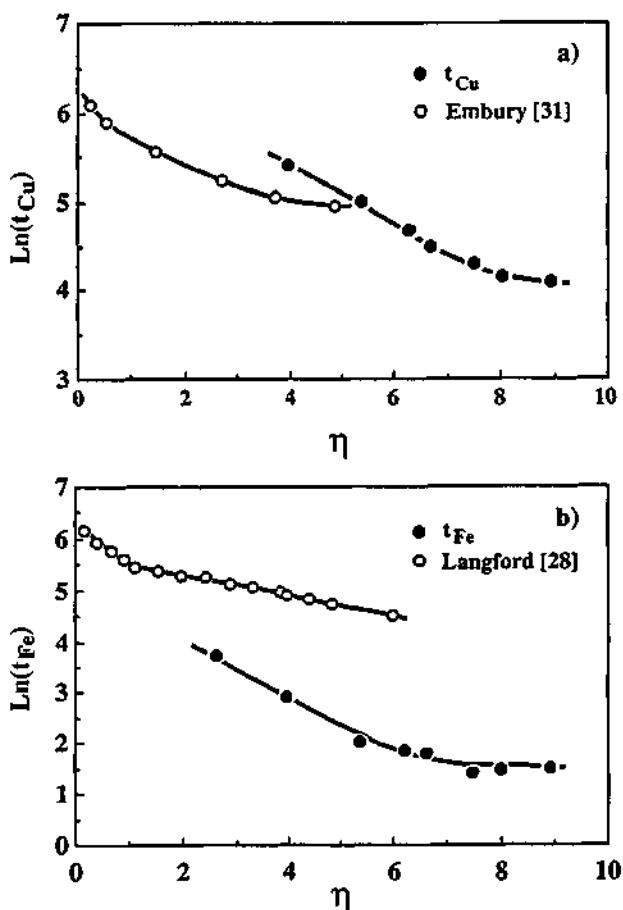
différence de déformation plastique entre le composite et les rubans de fer et doit contribuer à la faible valeur de la pente de la réduction de la section des rubans en fonction du taux d'écrouissage.

Nous avons observé une saturation de la diminution de l'épaisseur des rubans de fer et de la section de ceux-ci pour des valeurs élevées du taux d'écrouissage (voir figures 4.21 et 4.22 respectivement). Cette saturation doit évidemment avoir une répercussion directe sur la variation de la taille des grains de cuivre lors de l'étirage dans la mesure où c'est le mécanisme de découpe des grains qui rend possible la décroissance continue de leur taille pour les taux d'écrouissage élevés. Nous observons en effet (figure 4.21) une diminution de cette variation. Nous discuterons plus en détail le comportement des rubans de fer après un fort taux d'écrouissage au § 5.4. *Saturation de la diminution de l'épaisseur des rubans* ainsi que le rôle joué par ceux-ci sur les propriétés mécaniques.

Il est très intéressant de comparer les dimensions microstructurales du composite *in-situ* Cu15Fe avec les dimensions cellulaires induites sur les composants individuels purs (le cuivre et le fer) par étirage. Les deux éléments considérés se trouvent donc sous des conditions où la structure cellulaire n'est pas influencée par une deuxième phase. La figure 5.1 montre la comparaison de la variation des dimensions cellulaires du cuivre et du fer pur en fonction du taux d'écrouissage ainsi que les variations des dimensions microstructurales du cuivre et du fer à l'intérieur du composite Cu15Fe.

Il ressort très clairement de la figure 5.1 a), qu'aucune sous-structure de dislocations ne devrait pouvoir se développer librement à l'intérieur des grains de la matrice de cuivre pour des taux d'écrouissage supérieur à environ 4. Cependant, la présence de précipités de fer dans la matrice de cuivre doit repousser cette limite à des valeurs un peu plus élevées de  $\eta$ . La figure 5.1 b) montre que, même si les dimensions cellulaires du fer pur semblent diminuer de façon continue avec le taux d'écrouissage, l'épaisseur moyenne des rubans devient si faible (même pour des valeurs intermédiaires du taux de déformation) que raisonnablement aucune sous-structure de dislocations ne peut être stable, si bien que seules des dislocations et des parois de dislocations transverses à la largeur des rubans semblent possibles.

Comme observé par Langford [28] avec du fer pur, du fait de la texture de fibre qui se développe lors de l'étirage, le fer présente des parois de cellules très étendues approximativement parallèles aux plans {100} et des parois dont l'orientation est beaucoup moins cristallographiques qui divisent les sous-grains, plus ou moins rectangulaires en coupe



**Figure 5.1 :** Réduction de la taille moyenne des cellules en fonction du taux d'écroutissage obtenu par étirage du cuivre et du fer pur à comparer avec la variation des distances microstructurales observées dans le composite Cu15Fe.

a) Comportement du cuivre et b) comportement du fer.

transversale, en cellules plus équiaxes. Lorsque l'épaisseur des rubans de l'alliage Cu15Fe diminue, les parois étendues parallèles aux plans {100} disparaissent, probablement par la migration des jonctions en forme de h ("h-jonctures") selon le mécanisme de restauration dynamique décrit par Langford [28]. La présence de dislocations ou de parois de cellules parallèles à l'axe d'étirage et plus ou moins perpendiculaire à la largeur des rubans a été observée dans les coupes transversales au MET (voir par exemple la figure 4.18). Au vu de ces observations, il semble que rapidement lors de l'écroutissage, les interactions entre les dislocations à l'intérieur des rubans de fer doivent être très limitées par rapport aux interactions avec les interfaces. L'épaisseur des rubans devient si faible aux valeurs élevées du taux d'écroutissage que les mécanismes classiques de durcissement ne peuvent pas s'appliquer.

Comme nous l'avons mentionné précédemment (§ 4.2.3. *Comportement des alliages de fer lors de l'étirage*), durant les premiers stades de l'étirage, la distribution en taille des rubans de fer en coupes transverses est encore très large, en partie à cause de la distribution initiale mais aussi à cause de l'orientation non favorable de certaines particules par rapport à l'axe d'étirage. Cependant lorsque le taux d'écroutissage devient important, toutes les particules de fer s'allongent sous la forme de rubans à l'exception des oxydes et/ou des caibures et progressivement la distribution en taille des rubans devient beaucoup moins large.

Le fait que l'épaisseur des différents rubans devient progressivement homogène durant l'étirage est attribué par Pourrahimi [72] à la transition de la déformation plane que nous avons présentée au § 4.2.4. *Évolution de la texture lors de l'extrusion et de l'étirage à une déformation axialement symétrique des rubans de fer*. Cette transition devrait apparaître après que la déformation planaire des rubans ait été fortement écourie et que la déformation axialement symétrique deviendrait favorisée. Ainsi progressivement, les rubans les plus fins devraient commencer à se déformer de façon axialement symétrique et conserver un rapport de l'épaisseur sur la largeur constant, tandis que les rubans de dimensions plus grandes devraient continuer de se déformer de façon planaire. Basé sur l'analyse quantitative des variations des dimensions des rubans lors de l'étirage, nous n'avons pas observé un facteur limite du rapport largeur sur épaisseur des rubans, ( $w_F/l_F$ ), mais plutôt une chute de celui-ci pour des valeurs élevées du taux d'écroutissage comme on peut le voir à la figure 4.22 b). Ceci montre que cette hypothèse n'est pas respectée pour les rubans de fer. Nous pensons que le fait que l'épaisseur des rubans devienne progressivement plus homogène en coupes transversales, lors de l'écroutissage, est liée au fait qu'ils deviennent très fins et atteignent progressivement une taille critique (voir § 5.4. *Saturation de la diminution de l'épaisseur des rubans*) où leur déformation plastique devient impossible.

## 5.2. Propriétés mécaniques de l'alliage Cu15Fe

### 5.2.1. Comparaison des essais de traction avec les résultats de la littérature

Il faut noter pour commencer que les résultats figurant dans la littérature concernent principalement les composites *in-situ* à matrice de cuivre ayant comme seconde phase le niobium et que concernant les alliages contenant du fer, du chrome, du tantale, etc., les résultats sont beaucoup plus succincts. En fait, la grande majorité des résultats concerne l'alliage Cu20Nb fabriqué de diverses façons et l'étude des propriétés mécaniques se concentre principalement sur les valeurs de la contrainte maximale en traction.

La figure 5.2 a) montre la comparaison entre la contrainte maximale de notre alliage Cu15Fe et l'alliage Cu20Nb produit soit à partir d'un lingot coulé par fusion par arcs dans une lingotière refroidie (Spitzig [25]), présentant une taille de dendrites de 3.8  $\mu\text{m}$ , soit à partir de poudres atomisées préallées puis compactées à chaud contenant une distribution de la phase cubique centrée plus fine dont la taille moyenne est inférieure à 1  $\mu\text{m}$  (Ellis [82]). La figure 5.2 b) présente, quant à elle, la comparaison entre la contrainte maximale de notre alliage Cu15Fe et l'alliage Cu15Fe ayant les contraintes maximales les plus élevées obtenu par Jerman [63] à partir de poudres de cuivre et de fer pur, compactées puis extrudées à basse température (environ 500°C).

Il ressort de ces comparaisons que des contraintes maximales très élevées ont été obtenues à partir de l'alliage Cu15Fe de la première série. Il faut se rappeler aussi que des contraintes maximales très semblables ont été observées avec les alliages Cu15Fe produits à partir des billettes Osprey et donc que ces comparaisons sont valables pour les deux séries d'alliages. Nous avons obtenu, par exemple, pour l'alliage Cu15Fe une contrainte maximale d'environ 1000 MPa après un taux d'écroutissage de seulement 5. Ce qui est très nettement meilleur que le comportement de l'alliage Cu20Nb produit à partir d'un lingot coulé. De plus, il faut tenir compte du fait que la fraction volumique de rubans est faible dans notre cas, puisque seulement 11% volumique environ de fer se transforme en rubans lors de l'écroutissage.

L'augmentation de la contrainte maximale en fonction du taux d'écroutissage de notre alliage Cu15Fe est aussi nettement supérieure, si l'on tient compte de la fraction volumique de phase cubique centrée, à celle observée par Ellis [82] pour un alliage Cu20Nb produit aussi à partir de poudre préallée atomisée. En effet, si la fraction de rubans de phase cubique centrée augmente

et que les particules ou les dendrites ont des dimensions équivalentes après l'atomisation, la distance moyenne entre ceux-ci sera plus faible dans l'alliage concentré et les propriétés mécaniques meilleures.

Une des raisons des relatives faibles contraintes maximales pour cet alliage par rapport au Cu15Fe réside probablement dans le fait que les alliages de niobium solidifiés rapidement sont sensibles à une réaction monotéctique métastable (voir § 4.1.1. *Poudres atomisées*) aboutissant à la formation de sphéroïdes biphasées riches en élément cubique centré, dont l'allongement lors des premières passes d'étirage doit être beaucoup plus difficile. La fraction de sphéroïdes biphasées augmente en fonction de la vitesse de solidification et donc avec la finesse des particules atomisées ainsi que le taux d'impureté. Une présentation de l'évolution de la microstructure en fonction de la taille des particules atomisées de l'alliage Cu20Nb est donné par Zeik [84].

La fine taille de la microstructure initiale des alliages Cu15Fe obtenus en utilisant la solidification rapide associée probablement au fait que la réaction monotéctique observée parfois dans les alliages de niobium n'est pas présente pour ces alliages de fer, conduit à la formation d'une très fine dispersion de rubans qui sont responsables des bonnes propriétés mécaniques observées après un taux d'écroutissage relativement faible. Il faut relever aussi que la variation de la contrainte maximale avec le taux d'écroutissage observé dans les composites *in-situ* produits à partir de lingots coulés (voir par exemple [85]) présente nettement un comportement de type exponentiel. Ceci ne semble pas être le cas pour les composites produits à partir de poudres atomisées préallliées, comme nous l'avons observé avec l'alliage Cu15Fe. Cette différence de comportement de la contrainte maximale et de la limite d'écoulement entre les matériaux obtenus à partir de lingots coulés et à partir de poudre préallliées est discutée au § 5.4. *Saturation de la diminution de l'épaisseur de rubans.*

Bien que nous n'ayons jamais cherché à optimiser la conductivité électrique du Cu15Fe, nous pouvons cependant mentionner que des conductivités d'environ 50% IACS pour des contraintes maximales de l'ordre de 1000 MPa ont été mesurées sur cet alliage. La conductivité électrique des composites *in-situ* diminue progressivement lorsque le taux d'écroutissage augmente, comme observé par Verhoeven [5]. Pour l'alliage Cu15Fe, le compromis conductivité électrique-contrainte maximale doit pouvoir être optimisé par des traitements thermiques et une conductivité de 60% IACS pour une contrainte maximale de 1100 MPa semble, par exemple, être un compromis atteignable.

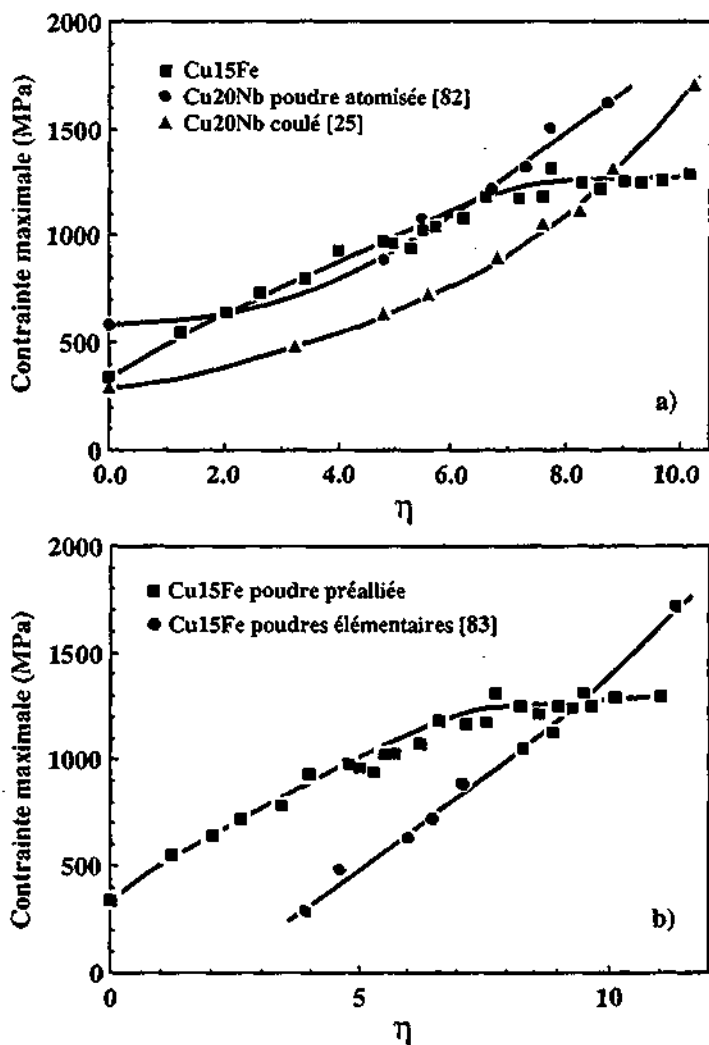


Figure 5.2. : Variation de la contrainte maximale en fonction du taux d'érouissage de l'alliage Cu15Fe de la première série et a) d'alliages Cu20Nb produits à partir d'un lingot coulé [25] ainsi que de poudre préalliée atomisée [82] et b) d'un alliage Cu15Fe produit à partir de poudres élémentaires [83].

### 5.2.2. Comparaison avec le modèle basé sur les dislocations géométriquement nécessaires

Les mécanismes de durcissement des composites *in-situ* ont été passablement discutés et différents modèles ont été proposés comme nous l'avons vu au § 2.4. *Modèles décrivant la contrainte maximale des composites in-situ*. Funkenbusch et Courtney [48] ont utilisé un modèle basé sur les dislocations géométriquement nécessaires pour accommoder les incompatibilités de déformation lors de l'écroutissage de matériaux biphasés.

Les résultats de ce modèle, donné par l'équation (2.6), permettent de reproduire la forme de la variation de la contrainte maximale en fonction du taux d'écroutissage de différents composites *in-situ*, mais les paramètres P et K de cette équation ne peuvent pas être prédits. Ces paramètres concernent la répartition des dislocations géométriquement nécessaires entre les deux phases et l'incompatibilité de la déformation entre elles, respectivement.

La principale critique de ce modèle réside dans le fait que, dans les composites dont les deux phases se déforment plastiquement, les arguments de compatibilité produisant les dislocations géométriquement nécessaires, selon l'approche de Ashby [50], doivent être utilisés avec précaution car durant la déformation des deux phases, l'accumulation des dislocations, la restauration dynamique et les gradients de déformation doivent dépendre de l'échelle de la microstructure. Aux faibles taux de déformation, il est certain que les deux phases provoquent l'accumulation de dislocations additionnelles réparties entre elles selon des coefficients de partition, comme décrit par Funkenbush et Courtney et provoquent ainsi une augmentation du durcissement. Cependant, comme les deux phases se comportent de façon différentes en fonction de l'augmentation de la densité de dislocations, il est raisonnable de penser que ces coefficients de partition doivent être fonction du taux d'écroutissage. En fait, ce modèle ne tient pas compte de l'évolution morphologique de la sous-structure de dislocations avec le taux de déformation.

Dans une certaine mesure, on peut considérer le problème du stockage de dislocations sous un point de vue différent. Le modèle de Funkenbusch et Courtney prédit une densité de dislocations qui peut devenir très élevée pour les composites les plus résistants. Si des densités de l'ordre de  $10^{16}$  à  $10^{18} \text{ m}^{-2}$  sont accumulées, comme le prédit le modèle pour les taux de déformations élevés, l'espace moyen entre celles-ci est de l'ordre de 10 à 1 nm. Ces distances deviennent si faibles que les forces s'appliquant entre les dislocations de signes opposés deviennent suffisantes [86] pour que l'annihilation puisse se faire même à basse température.

Il est clair que l'augmentation de la limite d'écoulement de composites contenant deux phases ductiles ne peut pas être décrite par un mécanisme simple sur toute la gamme de l'écroutissage. La limite d'écoulement doit donc être décrite par la superposition de différents mécanismes dont l'importance varie en fonction de la taille initiale de la microstructure et de son évolution en fonction du taux d'écroutissage. Comme nous l'avons vu au § 5.1. *Interprétation de l'évolution de la microstructure lors de l'écroutissage*, la finesse de la microstructure de départ de l'alliage Cu15Fe fait qu'après un taux d'écroutissage proche de 4 pour la matrice de cuivre et après un taux encore plus faible pour le fer, les interactions dislocations-dislocations deviennent impossibles. On aura donc une transition d'un état où l'augmentation de la limite d'écoulement est contrôlée par des interactions entre dislocations à un mécanisme contrôlé par les dimensions de la microstructure pour des valeurs du taux d'écroutissage encore relativement faibles, probablement inférieures à 4.

Il semble donc que ce modèle ne puisse pas être appliqué à l'alliage Cu15Fe du fait de la finesse de la microstructure qui élimine les interactions entre dislocations comme mécanisme responsable de l'augmentation du point d'écoulement lors de l'écroutissage.

### 5.2.3. Comparaison avec les modèles basés sur la propagation des dislocations

Comme nous l'avons vu dans l'introduction (§ 2.4. *Modèles décrivant la contrainte maximale des composites in-situ*), les modèles basés sur l'équation de Hall-Petch, utilisée parfois pour décrire le comportement des composites *in-situ*, ne semblent pas respectés puisque la contrainte maximale ne dépend pas à la puissance  $-1/2$  de la taille des grains de cuivre de la matrice lorsque la microstructure est quantifiée avec soin [53]. De plus, les mêmes remarques peuvent être faites concernant la finesse de la microstructure que pour les modèles basés sur les dislocations géométriquement nécessaires. En effet, comme nous l'avons vu, la finesse de la taille de la microstructure de l'alliage Cu15Fe empêche que les interactions dislocations-dislocations jouent un rôle prépondérant sur les mécanismes responsables de l'augmentation de la limite d'écoulement du composite. Il apparaît donc clairement que les empilements de dislocations ne peuvent pas être présents dans l'alliage Cu15Fe.

Verhoeven [53] utilise un modèle précédemment décrit par Gil Sevillano [54] pour prédire le comportement d'aciers perlitiques écroutis. La contrainte critique pour mouvoir les dislocations entre deux barrières interfaciales est considérée. En tenant compte du fait que les deux phases participent au point d'écoulement, la loi des mélanges est utilisée pour prédire l'augmentation de

la contrainte maximale du composite et la contrainte totale peut être alors décrite pour l'alliage Cu15Fe à partir de l'équation (2.9) donnée dans l'introduction :

$$\sigma_{\text{comp.}} = f_{\text{Cu}} \left[ \sigma_0 + \frac{MA\mu b}{2\pi t} \ln \frac{t}{b} \right]_{\text{Cu}} + f_{\text{Fe}} \left[ \sigma_0 + \frac{MA\mu b}{2\pi t} \ln \frac{t}{b} \right]_{\text{Fe}} \quad (2.9)$$

avec :  $f_{\text{Cu}}$  et  $f_{\text{Fe}}$ , les fractions volumiques de cuivre et de fer, respectivement;  $\sigma_0(\text{Cu})$  et  $\sigma_0(\text{Fe})$ , les contraintes du cuivre et du fer pur déformé à la même valeur de  $\eta$ ; M, le facteur de Taylor (égal à 3 pour les phases cubiques à faces centrées et égal à 2 pour les phases cubiques centrées); A, une constante géométrique dépendant du caractère des dislocations (~1.21 pour les dislocations mixtes);  $\mu(\text{Cu})$  et  $\mu(\text{Fe})$ , les modules de cisaillement;  $b(\text{Cu})$  et  $b(\text{Fe})$  les vecteurs de Burgers; et  $t_{\text{Cu}}$  et  $t_{\text{Fe}}$ , la taille moyenne des grains de cuivre et l'épaisseur des rubans de fer, respectivement.

En insérant dans cette équation les valeurs de  $t_{\text{Cu}}$  et  $t_{\text{Fe}}$  figurant dans le Tableau 4.3 ainsi que les valeurs respectives du vecteur de Burgers ( $b(\text{Cu}) = 0.256$  nm,  $b(\text{Fe}) = 0.248$  nm), du module de cisaillement ( $\mu(\text{Cu}) = 48.5$  GPa,  $\mu(\text{Fe}) = 81.6$  GPa), du facteur de Taylor et la valeur de la contrainte maximale de chacune des deux phases séparément ( $\sigma_0(\text{Cu})$  et  $\sigma_0(\text{Fe})$ ) donnée par des fils purs écrouis à des valeurs correspondantes de  $\eta$  [87], l'évolution de la contrainte maximale du composite en fonction du taux d'écrouissage peut être calculée pour l'alliage Cu15Fe.

La figure 5.3 montre que l'accord entre les valeurs mesurées de la contrainte maximale et le modèle décrit par l'équation (2.9) est mauvais aux valeurs élevées de  $\eta$ , ce qui provient du fait que la dépendance de la contrainte maximale avec l'écrouissage ne présente pas, dans notre cas, une dépendance de type exponentielle marquée. Le problème est qu'en considérant que c'est la difficulté du mouvement des dislocations dans les deux phases qui est responsable de la limite d'écoulement du composite, le terme de l'équation (2.9) concernant les rubans de fer devient extrêmement élevé. En considérant la microstructure de l'alliage Cu15Fe après  $\eta = 8$  ( $t_{\text{Fe}} = 4$  nm,  $\sigma_0 = 1500$  MPa [87]), ce terme entre parenthèses carrées présente une valeur de l'ordre de 7000 MPa. Cette valeur est très nettement supérieure à la résistance maximale théorique du fer (~5500 MPa, voir § 5.4. *Saturation de la diminution de l'épaisseur de rubans.*). On voit donc que vu la finesse de la microstructure de l'alliage Cu15Fe, l'équation (2.9) ne peut pas être utilisée telle quelle. Cependant, le modèle montre une très nette diminution de l'augmentation de la contrainte maximale en fonction du taux d'écrouissage lorsque les valeurs quantitatives de la microstructure,  $t_{\text{Fe}}$  et  $t_{\text{Cu}}$ , montrent une dépendance plus faible en fonction du taux d'écrouissage.

### 5.3. Nouveau modèle décrivant les propriétés mécaniques de l'alliage Cu15Fe

En général, la contrainte maximale est utilisée dans la littérature pour définir le comportement de ces matériaux. Ceci est dû en partie à des raisons de simplicité; en effet la contrainte maximale est facile à mesurer et est bien reproductible. De plus, l'utilisation de la contrainte maximale peut se justifier pour décrire l'enveloppe de l'augmentation de la résistance du matériau pendant l'écroutissage. Cependant, il nous a semblé plus judicieux de considérer le point d'écoulement à 0.2% de déformation, ceci afin d'éviter les instabilités géométriques présentes à la contrainte maximale et permettant de décrire le comportement du matériau dans des conditions plus proches de son utilisation. De plus tous les différents modèles utilisés pour décrire le comportement de ces matériaux sont basés sur la description de la limite élastique. Dans la suite de ce travail, nous utiliserons la valeur de  $\sigma_{0.2}$  pour faire le lien entre les résultats expérimentaux et la théorie.

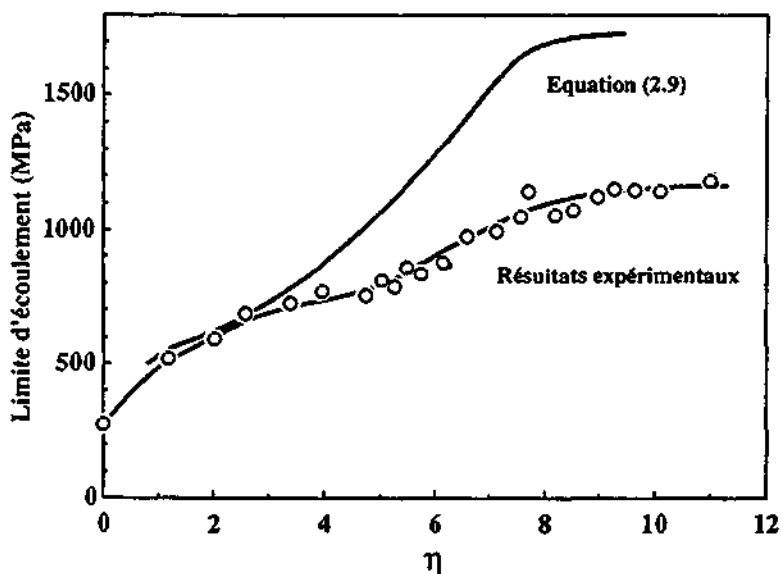


Figure 5.3 : Comparaison entre les valeurs expérimentales de la limite d'écoulement et celles calculées à partir de l'équation (2.9).

Dans le but d'expliquer le comportement du point d'écoulement de l'alliage Cu15Fe, différentes observations ont été faites. Il est clair que la matrice de cuivre et les rubans de fer participent au durcissement de cet alliage en fonction de leurs fractions volumiques et donc qu'une loi des mélanges doit être utilisée. La loi des mélanges pour un matériau biphasé peut être exprimée par la relation :

$$\sigma(\eta) = f_1\sigma_1 + (1-f_1)\sigma_2 \quad (5.1)$$

Où  $\sigma_1$  et  $\sigma_2$  représentent la limite d'écoulement des deux phases du composite pour le même taux de déformation. La structure fibreuse qui est créée lors de l'écroutissage de l'alliage Cu15Fe est parallèle à l'axe de traction ou de compression et assure la validité de l'approximation de l'iso-déformation du composite. Nous avons vu (§ 2.2. *Composites in-situ*), que cette loi n'est pas respectée si l'on utilise pour  $\sigma_1$  et  $\sigma_2$  les limites d'écoulement des phases individuelles ayant subi le même taux de déformation. En fait, les valeurs de  $\sigma_1$  et  $\sigma_2$  doivent correspondre au comportement de deux phases dont les dimensions deviennent très faibles, présentant une fraction d'interface importante et souffrant de la compatibilité de la déformation entre les deux phases de structures différentes. Ainsi les modèles décrivant le comportement des composites *in-situ* doivent tenir compte d'une résistance augmentée des deux phases individuelles. Il est très clair cependant que l'équation (5.1) doit être valable sur toute la gamme des fractions volumiques et donc que si celle-ci tend vers 0 ou vers 1, la valeur de  $\sigma(\eta)$  doit correspondre aux comportements des composants individuels écroutis au même taux.

Afin de permettre la description des valeurs de  $\sigma_1$  et  $\sigma_2$  de l'équation (5.1), les différentes remarques suivantes doivent être faites. La contribution au durcissement liée à la matrice de cuivre doit dépendre dans un premier temps de l'augmentation de la densité de dislocations durant l'étirage, mais cette contribution doit devenir faible, comme nous l'avons vu au § 5.1. *Interprétation de l'évolution de la microstructure lors de l'écroutissage*, lorsque le taux d'écroutissage dépasse 4 environ. Ensuite, la contribution de la matrice de cuivre doit dépendre des interactions entre les dislocations et les rubans ainsi que les fins précipités de fer apparus lors de la compaction ou de l'extrusion. Tout au début de l'étirage, la contribution au durcissement des particules de fer qui commencent à avoir un aspect de rubans doit aussi être dépendante de l'augmentation de la densité de dislocations et de la structure cellulaire formée, mais rapidement ensuite, les dimensions transverses des rubans deviennent suffisamment faibles pour que ce soit celles-ci qui jouent le rôle prépondérant.

### 5.3.1. Durcissement de la matrice de cuivre

Le durcissement de la matrice de cuivre,  $\sigma_0(\text{Cu})$ , peut être relié à sa densité de dislocations. Il est bien établi [24, 87] que le durcissement du cuivre pur atteint une saturation lors de l'écroutissage et que ce comportement est dû à la restauration et à la recristallisation dynamique. Dans l'équation (2.9) proposée par Spitzig, la valeur du durcissement de la matrice de cuivre,  $\sigma_0(\text{Cu})$ , a été estimée à partir de résultats obtenus sur un fil de cuivre pur écrouti de façon équivalente. Dans notre cas, nous avons estimé la valeur de  $\sigma_0(\text{Cu})$  à partir de la limite d'écoulement à 0.2% de déformation obtenue à partir de l'alliage Cu5Cr. Ceci se justifie par le fait que cet alliage présente un comportement identique à celui du cuivre pur après les premières passes d'étirage. Le comportement de la contrainte maximale du cuivre pur étiré d'après Spitzig [24] est donné à la figure 2.3, tandis que celui de l'alliage Cu5Cr est illustré à la figure 4.23. En effet, tout au début de l'écroutissage, le durcissement doit être plus élevé que dans le cuivre pur, ce qui est dû essentiellement aux incompatibilités de la déformation entre les particules de chrome et la matrice de cuivre et à la fine taille de grains imposée par la distribution de particules. Mais très rapidement, à partir de  $\eta = 2$  (86.5 %) environ, les valeurs obtenues de la contrainte maximale correspondent à celles du cuivre pur. Une telle augmentation de la limite d'écoulement due à l'écroutissage est considérée similaire à celle de la matrice de cuivre dans le composite Cu15Fe.

La fine dispersion de précipités de fer dans le cuivre est une autre source de durcissement de la matrice. Il est connu (voir par exemple Kato [88]), que, dans le système cuivre-fer, la phase qui précipite en premier est composée de particules de fer cohérentes dont la structure est donc cubique à faces centrées. Des particules cohérentes de plus d'une centaine de nanomètres ont été obtenues [88], celles-ci peuvent, par une transformation de type martensitique et sous l'effet de la contrainte appliquée, devenir cubiques centrées.

Etant donné la très petite taille (environ 3 nm) des particules de fer dans la matrice de cuivre de l'alliage Cu15Fe, celles-ci ont et peuvent probablement garder une structure cubique à faces centrées et ainsi pourraient être découpées par les dislocations de la matrice. Afin d'estimer quelle pourrait être la contribution au durcissement de la matrice de cuivre liée à la découpe des particules de fer, nous avons analysé la force d'obstacle,  $F$ , qu'une petite particule cohérente peut imposer sur la dislocation. Cette estimation de  $F$  s'est faite en considérant la force produite sur la dislocation par la différence de module d'élasticité entre la particule et la matrice et par la déformation de la matrice induite par la cohérence (voir Gerold [89]). Ces deux contributions sont celles qui jouent nettement le plus grand rôle sur la valeur de  $F$ . Si  $F/2T < 1$  où,  $T = 0.5\mu b^2$ , est la tension de ligne de la dislocation, les particules de fer sont découpées.

Nous obtenons d'après les relations données par Gerold [89] une valeur de  $F/2T$  faiblement supérieure à 1 en tenant compte de la contribution de la différence de module d'élasticité sur la force agissant sur la dislocation et de la contribution de la déformation liée à la cohérence. Le calcul montre que, principalement à cause du module d'élasticité élevé du fer par rapport à celui du cuivre, les petits précipités ne doivent pas être découpés par les dislocations lors de la déformation.

Dans ce cas le modèle d'Orowan (voir par exemple [8] et [90]) doit être utilisé pour calculer la contrainte. Pour un alliage cuivreux, la relation d'Orowan est donnée par [8] :

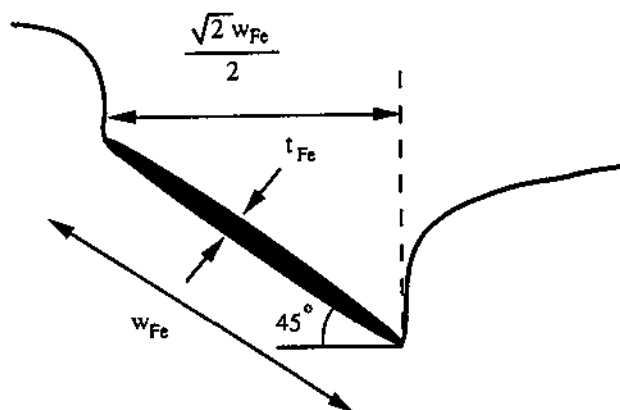
$$\sigma_{\text{part.}} = 5.86 \frac{\ln(\phi/2b)}{\lambda \cdot \phi'} \quad (5.2)$$

avec

$$\lambda = 1/(N_V \phi)^{1/2} \quad (5.3)$$

où :  $\sigma_{\text{part.}}$  est exprimé en Pa et  $\lambda$ ,  $\phi$ ,  $b$  sont exprimés en m;  $N_V$  est le nombre de particules par unité de volume ( $N_V = 4.6 \cdot 10^{22} \text{ m}^{-3}$ , voir page 71 et 72);  $\phi$  est le diamètre moyen des particules (3 nm) et  $\phi' = \sqrt{2/3} \cdot \phi$  est le diamètre moyen effectif de particules selon [60];  $\lambda$  est la distance interparticulaire et  $b$  est le vecteur de Burgers (0.256 nm). La valeur calculée à partir de l'équation (5.2) est 110 MPa.

La contrainte critique pour mouvoir une dislocation dans la matrice de cuivre est augmentée évidemment par les obstacles qui intersectent son plan de glissement. Comme décrit par Pourrahimi [72] cette contrainte peut être formulée à partir d'une modification de la relation d'Orowan. Il faut tenir compte de l'effet de la morphologie des rubans de fer sur le nombre de rubans traversant le plan de glissement et l'effet de celle-ci sur la facilité qu'a la dislocation à dépasser l'obstacle. La section coupée des rubans par le plan de glissement est approximativement rectangulaire et en première approximation a les dimensions  $w_{Fe}$  fois  $t_{Fe}$ . Pour des valeurs de  $w_{Fe} \gg t_{Fe}$ , la dimension effective qui interagit en moyenne avec la dislocation est approximativement  $\sqrt{2}/2$  fois la largeur. Ainsi la valeur de  $\phi/2b$  dans l'équation (5.2) devient égale à  $\sqrt{2}/(4b) \cdot w_{Fe}$ . La figure 5.4 illustre schématiquement le comportement d'une dislocation au passage d'un ruban de fer.



**Figure 5.4 :** Schéma illustrant le comportement d'une dislocation lorsqu'elle atteint un ruban de fer. La section du ruban est d'environ  $w_{Fe} \cdot t_{Fe}$  et si  $w_{Fe} \gg t_{Fe}$ , la dimension effective d'interaction est  $\sqrt{2} w_{Fe} / 2$ .

Le problème du calcul de la distance moyenne entre des particules allongées aléatoirement dispersées dans deux directions n'a pas encore été résolu à notre connaissance. Une approximation a cependant été proposée par Kelly [62] pour des obstacles alignés, comme nous l'avons discuté au § 3.7.2. *Mesure de la distance interparticulaire entre rubans :*

$$\lambda' = \frac{\lambda_p^2}{(\lambda_p + w)} \quad (3.6)$$

où  $\lambda'$  est la moyenne des espacements entre les extrémités les plus proches des rubans premiers voisins,  $w$  est la longueur de l'obstacle et  $\lambda_p$  est la distance moyenne centre à centre.

Les grandeurs  $\lambda'$  et  $\lambda_p$  sont illustrées à la figure 5.5 dans le cas de particules allongées et sphériques. Il faut noter que l'équation (3.6) est une approximation assez générale qui ne

nécessite pas un arrangement particulier des particules allongées, mais la limitation importante est que celles-ci doivent être alignées. Le fait que les particules ne soient pas alignées devrait diminuer encore la valeur de  $\lambda'$ . Dans notre cas et en première approximation,  $\lambda'$  représente le terme  $(\lambda - \phi')$  dans l'équation (5.2). La valeur de  $\lambda_p$  peut alors être estimée à partir de la taille moyenne des grains de cuivre  $t_{Cu}$  divisée par la fraction d'interface cuivre-fer (= 0.68). Quelques valeurs de  $\lambda'$  obtenues à partir de l'équation (3.6) pour l'alliage Cu15Fe sont données dans le Tableau 5.1, avec à titre de comparaison les valeurs de la taille moyenne des grains de cuivre provenant du Tableau 4.3.

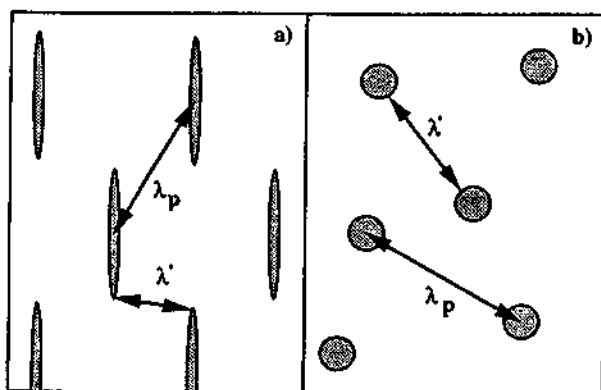


Figure 5.5. : Illustration schématique des variations de  $\lambda_p$  et  $\lambda'$  en fonction de la morphologie des particules. a) Particules allongées et b) particules sphériques.

Tableau 5.1 : Comparaison de la variation de  $\lambda'$  et  $t_{Cu}$  en fonction du taux d'écroissage.

$\eta$	3.98	5.37	6.24	7.5	8.95
$t_{Cu}$ (nm)	225	150	110	74	59
$\lambda'$ (nm)	177	115	90	56	57

En substituant les termes  $(\phi/2b)$  et  $(\lambda - \phi')$  par les valeurs correspondantes dans l'équation (5.2), on obtient :

$$\sigma_{\text{rubans}} = 5.86 \left[ \frac{1.47 t_{Cu} + w_{Fe}}{(1.47 t_{Cu})^2} \right] \ln \left( \frac{\sqrt{2}/2 \cdot w_{Fe}}{2b} \right) \quad (5.4)$$

Où  $\sigma_{\text{rubans}}$  est exprimé en Pa et  $t_{Cu}$ ,  $w_{Fe}$  et  $b$  sont en m.

Cette équation ne dépend que des paramètres microstructuraux et de la valeur de la contrainte, si bien que,  $\sigma_{\text{rubans}}$  peut donc être calculé à partir des résultats de l'analyse quantitative de la microstructure.

### 5.3.2. Durcissement des rubans

Le durcissement d'un métal pur recristallisé après un faible taux d'écroutissage est bien connu et peut être estimé à partir de la densité de dislocations de la façon suivante [91]:

$$\Delta\sigma = \alpha\mu b\rho^{1/2} \quad (5.5)$$

où  $\mu$  est le module de cisaillement,  $b$  est le vecteur de Burgers et  $\rho$  est la densité moyenne de dislocations. Pour les métaux cubiques centrés  $\alpha \sim 0.4$  [91]. Cette équation est valable dans le cas où la densité de dislocations est plutôt faible et lorsque les obstacles aux mouvements des dislocations sont les dislocations de la forêt réparties en un réseau aléatoire. Lorsque l'épaisseur des rubans devient petite, la distance moyenne d'équilibre entre les dislocations devient plus grande que l'épaisseur du ruban. Il faut noter aussi, que dans les nanocristaux, les dislocations à l'intérieur des grains peuvent être en partie absorbées par les interfaces (voir par exemple [92]). Classiquement, on remplace alors le terme de densité de dislocations par un terme fonction des dimensions de la microstructure. L'équation (5.5) peut alors être reformulée en supposant que l'espace entre les dislocations est remplacé par l'épaisseur entre les rubans :

$$\Delta\sigma(Fe) = \frac{\alpha M \mu b}{t_{Fe}} \quad (5.6)$$

En insérant les valeurs souhaitables de  $\alpha$ ,  $\mu$ ,  $b$  et  $M$  ( $\alpha = 0.4$ ,  $\mu = 81.6$  GPa,  $b = 0.248$  nm,  $M = 2$ ) ainsi que les valeurs données dans le Tableau 4.3 pour  $t_{Fe}$  dans l'équation (5.6), celle-ci prédit un très fort durcissement des rubans de fer après un fort taux d'écroutissage.

L'équation (5.6) décrit la résistance des rubans de fer complètement indépendamment de la matrice de cuivre et des contraintes locales évidemment présentes, si bien qu'elle ne donne qu'une information qualitative de l'augmentation de la résistance des rubans. Mais, le fait important est que le point d'écoulement des rubans de fer devient extrêmement élevé après un fort écrouissage.

### 5.3.3. Comportement du composite

Le composite présente un comportement élastique jusqu'à ce qu'un mouvement conséquent de dislocations se fasse. Ce point est considéré comme le point d'écoulement du composite. Cependant, il est important de noter que le point d'écoulement du composite peut être atteint sans que l'une des deux phases ne se déforme plastiquement. Ainsi durant les essais de traction et l'étréage trois stades peuvent être distingués :

- i) la matrice de cuivre et les rubans de fer sont tous deux élastiquement cocontraints,
- ii) la matrice de cuivre se déforme plastiquement tandis que les rubans sont encore élastiquement contraints,
- iii) les deux phases se déforment plastiquement.

Il est évident que dans les composites considérés, la déformation plastique sera initiée dans la matrice de cuivre vu la résistance élevée atteinte par les rubans de fer. La figure 5.6 illustre schématiquement les courbes de contrainte-déformation présumées des rubans de fer, de la matrice de cuivre et du composite Cu15Fe. La déformation élastique subie par les rubans de fer à 0.2% de déformation du composite correspond à la somme  $\varepsilon_1 + \varepsilon_2$ .  $\varepsilon_1$  est égale à 0.2% de déformation et  $\varepsilon_2$  correspond à la valeur de la limite d'écoulement du composite à 0.2% de déformation plastique divisée par le module d'élasticité du composite.

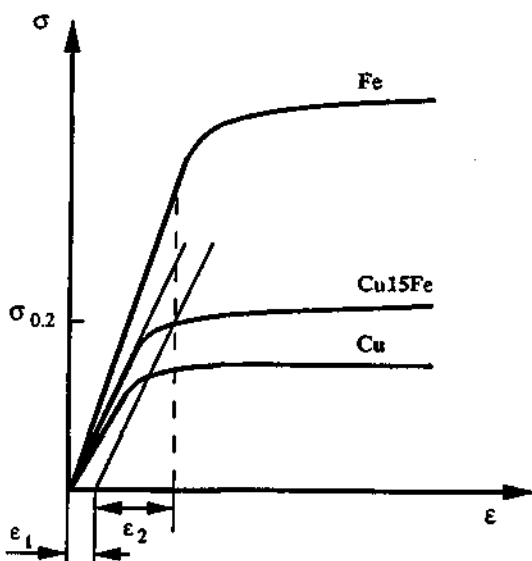
On peut donc écrire la relation qui donne la contrainte dans le domaine élastique agissant sur les rubans de fer au point d'écoulement du composite,  $\sigma_0(\text{Fe})$ , de la manière suivante :

$$\sigma_0(\text{Fe}) = \left( \frac{\sigma_{0.2}}{E_{\text{comp.}}} + 0.2\% \right) E_{\text{Fe}} \quad (5.7)$$

où  $\sigma_{0.2}$  est le point d'écoulement du composite,  $E_{\text{Fe}}$  est le module d'élasticité du fer ( $E_{\text{Fe}} = 200 \text{ GPa}$ ),  $f_{\text{Fe}}$  et  $f_{\text{Cu}}$  sont les fractions volumiques et  $E_{\text{comp.}} = f_{\text{Cu}}E_{\text{Cu}} + f_{\text{Fe}}E_{\text{Fe}}$  est le module d'élasticité du composite ( $E_{\text{comp.}} = 140 \text{ GPa}$ ,  $E_{\text{Cu}} = 130 \text{ GPa}$  et  $E_{\text{Fe}} = 210 \text{ GPa}$ ).

Cette relation est donc simplement la loi de Hooke appliquée aux rubans de fer en considérant que la déformation élastique des rubans est égale à la déformation élastique de tout le composite plus les 0.2% du point d'écoulement.

Cette approche peut être justifiée en comparant les valeurs de  $\Delta\sigma(\text{Fe})$  obtenues en insérant les valeurs mesurées de  $t_{\text{Fe}}$  dans l'équation (5.6) avec la limite d'écoulement du composite,  $\sigma_{\text{comp}}$ , et la contrainte appliquée sur les rubans de fer à 0.2% de déformation du composite,  $\sigma_0(\text{Fe})$ . Le Tableau 5.2 donne ces valeurs pour différents taux d'écroutissage. On observe qu'après avoir dépassé une valeur de  $\eta$  de 3.5 environ, le point d'écoulement des rubans de fer devient très nettement supérieur à celui du composite et ce qui est plus important à partir de  $\eta = 4.5$ , à la limite d'écoulement du composite, les rubans de fer n'ont pas encore dépassé leur limite élastique. On peut donc conclure que, en mesurant le point d'écoulement du composite à 0.2% de déformation et pour des taux d'écroutissage supérieur à  $\eta = 4$ , les rubans de fer ne sont qu'élastiquement contraints et que leur comportement doit suivre une relation de Hooke.



**Figure 5.6 :** Courbes contrainte-déformation présumées des rubans de fer, de la matrice de cuivre et du Cu15Fe lors d'un essai de traction.  $\epsilon_1$  correspond conventionnellement à 0.2% de déformation,  $\epsilon_2$  à la valeur de  $\sigma_{0.2}$  du composite divisée par son module d'élasticité et  $\epsilon_1 + \epsilon_2$  à la déformation élastique subie par les rubans de fer à 0.2% de déformation du composite.

**Tableau 5.2 :** Valeurs de :  $\Delta\sigma(\text{Fe})$  : données à partir de l'équation (5.6)  
 $\sigma_0(\text{Fe})$  : données à partir de l'équation (5.7)  
 $\sigma_{0.2}$  : valeurs interpolées à partir des résultats expérimentaux de la limite d'écoulement.

$\eta$	$t_{\text{Fe}}$ [nm]	$\Delta\sigma(\text{Fe})$ [MPa]	$\sigma_0(\text{Fe})$ [MPa]	$\sigma_{0.2}$ [MPa]
2.6	42.0	390	1400	653
4.0	18.6	870	1510	726
5.4	7.4	2190	1665	830
6.2	6.3	2570	1790	911
6.6	6.1	2650	1840	948
7.5	4.0	4050	1960	1026
8.0	4.3	3770	2020	1066
9.0	4.4	3680	2100	1120
10.0	-	-	2145	1151
11.0	-	-	2170	1168

Le point d'écoulement de tout le composite résultant de la loi des mélanges peut alors être écrit de la manière suivante :

$$\sigma_{\text{comp.}} = f_{\text{Cu}} (\sigma_0(\text{Cu}) + \sigma_{\text{rubans}} + \sigma_{\text{part.}}) + f_{\text{Fe}} \sigma_0(\text{Fe}) \quad (5.8)$$

en considérant que les rubans de fer ont un comportement élastique (à 0.2% de déformation plastique du composite) et que la matrice de cuivre est durcie par écrouissage, par la présence des rubans comme obstacles et par la fine dispersion de précipités de fer.

En regroupant ces deux dernières équations, on obtient la relation :

$$\sigma_{\text{comp.}} = \frac{f_{\text{Cu}} (\sigma_0(\text{Cu}) + \sigma_{\text{rubans}} + \sigma_{\text{part.}}) + f_{\text{Fe}} 0.2\% E_{\text{Fe}}}{1 - \frac{f_{\text{Fe}} E_{\text{Fe}}}{E_{\text{comp.}}}} \quad (5.9)$$

En insérant les différentes contributions discutées auparavant et les fractions volumiques, le point d'écoulement du composite peut être calculé. Les valeurs que nous avons obtenues figurent dans le Tableau 5.3 ainsi que les différentes contributions de chacun des termes de l'équation (5.9).

Tableau 5.3. : Valeurs des différents termes de l'équation (5.9).

$E_{Fe} = 200 \text{ GPa}$

$E_{Cu} = 130 \text{ GPa}$

$E_{comp.} = 140 \text{ GPa}$

$f_{Fe} = 0.11$

$f_{Cu} = 0.89$

$\eta$	$\sigma_0(\text{Cu})$ [MPa]	$\sigma_{part.}$ [MPa]	$\sigma_{rubans}$ [MPa]	$0.2\%E_{Fe} \cdot f_{Fe}$ [MPa]	$\sigma_{comp.}$ [MPa]
2.6	406	110	133	44	737
4.0	438	110	197	44	838
5.4	442	110	287	44	938
6.2	450	110	336	44	998
6.6	454	110	418	44	1090
7.5	455	110	482	44	1157
8.0	455	110	500	44	1176
9.0	455	110	439	44	1112

La comparaison entre les résultats expérimentaux et les valeurs calculées par l'expression (5.9) pour l'alliage Cu15Fe est montrée à la figure 5.7. La concordance entre les valeurs expérimentales et celles calculées est bonne, soutenant ainsi la théorie proposée. Ceci est lié au fait que la contribution des rubans de fer suit une relation de Hooke (dépendance linéaire) qui réduit la forte dépendance exponentielle en  $\eta$  observée dans les autres modèles. Il est clair que les valeurs expérimentales introduites dans ce modèle sont basées sur la quantification de la microstructure et que les résultats obtenus sont directement dépendants de ces mesures. Nous discuterons dans le paragraphe suivant (§ 5.4. *Saturation de la diminution de l'épaisseur des rubans*) le comportement des composites lorsque la réduction de l'épaisseur des rubans avec le taux d'écroutissage diminue ainsi que le comportement observé des résultats provenant de l'équation (5.9) aux valeurs très élevées de  $\eta$ . Le fait que la valeur de  $\sigma_{comp.}$  décrite par l'équation (5.9) soit plus élevée que celle observée est probablement liée au fait que la valeur de  $\sigma_{part.}$  ne devrait pas être ajoutée à la contribution de la matrice de cuivre lorsque le taux d'écroutissage devient important. En effet, la distance entre les particules de fer est de l'ordre de 85nm, c'est-à-dire du même ordre de grandeur que la taille de grain.

Une autre remarque peut être faite concernant la valeur de  $\sigma_0(\text{Fe})$ , qui reste d'après l'équation (5.7) assez faible à 0.2% de déformation même pour les valeurs élevées des taux d'écroutissage (moins de 2200 MPa). En fait, la contribution directe des rubans au durcissement est relativement faible (environ 250 MPa au maximum).

Cette analyse montre que le rôle des rubans de fer est d'être essentiellement une barrière aux mouvements des dislocations dans la matrice et de permettre la réduction de la taille des grains de cuivre.

Dans tous les calculs que nous avons effectués, nous avons considéré que les modules d'élasticité étaient les modules isotropes. Cette supposition se justifie dans la mesure où la texture de la matrice de cuivre n'est pas très élevée et qu'elle est un mélange variable, en fonction du taux d'écroutissage, de  $\langle 111 \rangle$  et  $\langle 100 \rangle$ . En ce qui concerne le fer dont la texture est très marquée de type  $\langle 110 \rangle$ , il faut noter que le module anisotrope dans cette direction (environ 210 GPa) est très proche du module isotrope (environ 200 GPa). On peut donc en conclure que cette hypothèse ne doit pas avoir d'influence marquée sur les valeurs calculées.

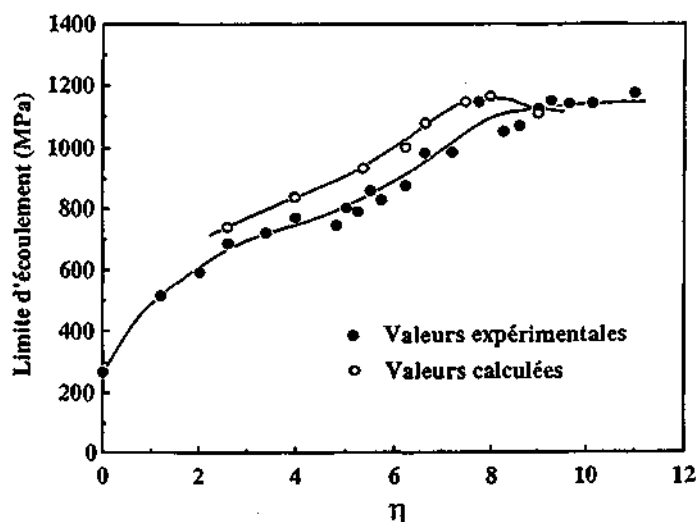


Figure 5.7 : Comparaison entre la limite d'écoulement du composite Cu15Fe de la première série et celle calculée à partir de la relation (5.9).

#### 5.4. Saturation de la diminution de l'épaisseur des rubans

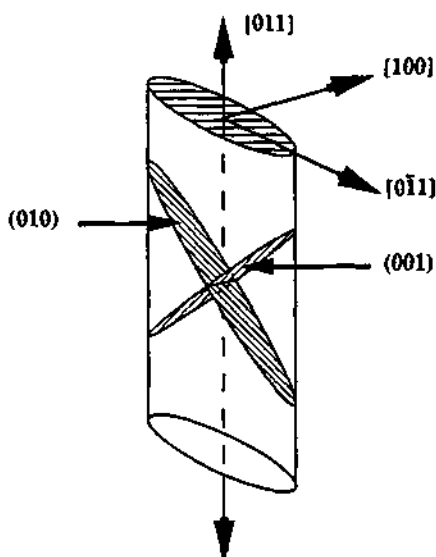
En introduisant dans la relation (5.6) décrivant la résistance des rubans de fer, les valeurs mesurées de  $\tau_{Fe}$ , nous avons montré que la résistance de ces rubans devenait extrêmement élevée, si bien qu'ils devaient être chargés élastiquement à 0.2% de déformation du composite. La résistance décrite par cette équation est proche de 4500 MPa pour des rubans de fer d'une épaisseur de 4 nm.

Différentes estimations de la résistance maximale théorique des matériaux cristallins ont été présentées. Elles sont très sensibles aux détails du potentiel interatomique. Mais cependant, une estimation raisonnable a été donnée par Mackenzie [93],  $\tau_m \geq \mu/30$ . Cette approximation de la résistance maximale est très peu précise mais donne des valeurs de l'ordre de 5500 MPa ( $M\mu/30$ ) pour le fer. Il apparaît donc que la résistance des rubans de fer devient très élevée lorsque le taux d'écroutissage est proche de  $\eta = 7$ , comme nous l'avons présenté au Tableau 5.2 et qu'elle s'approche de la limite théorique. Pour des valeurs élevées du taux d'écroutissage ( $\eta > 8$ ), Pourahimi [72] observe aussi une saturation de la contrainte maximale en fonction du taux d'écroutissage dans un alliage cuivre-niobium.

Il est intéressant de noter aussi que les plans  $\{001\}$  du fer, qui sont les plans de clivage [63], se trouvent à  $45^\circ$  de l'axe du fil. Ainsi la texture des rubans de fer est favorable au clivage. Nous attribuons donc la saturation de la diminution de la taille des rubans au fait qu'ils atteignent une taille critique où la résistance devient comparable à celle maximale théoriquement prédite et que probablement, ils se rompent par clivage sur les plans  $(010)$  et  $(001)$ . La figure 5.8 illustre la position de ces deux plans par rapport à l'axe d'étrépage et de traction. Ce comportement doit apparaître lors de l'étrépage et aboutit à des microstructures dont la taille ne diminue plus de la même façon avec le taux d'écroutissage. Du fait de la morphologie des rubans qui leur impose une déformation équivalente à celle des composites, ceux-ci doivent se rompre à de nombreux endroits sur la longueur lors de l'étrépage afin de conserver la nécessaire compatibilité de la déformation.

La saturation que nous observons sur les valeurs de la limite d'écoulement provient donc essentiellement du fait que les rubans de fer se rompent lors de l'étrépage et ne participent plus à la diminution de la taille de la microstructure. En effet, comme nous l'avons vu, la contrainte appliquée sur les rubans à 0.2% de déformation est nettement inférieure à la contrainte critique et les rubans ne doivent donc pas se rompre à la limite d'écoulement du composite.

Nous avons décrit l'évolution de la microstructure et avons présenté un modèle permettant de décrire la limite d'écoulement à 0.2% de déformation de l'alliage Cu15Fe. En introduisant dans la relation (5.9) les valeurs mesurées lors de la quantification de la microstructure, dans le domaine où l'on remarque une saturation ( $\eta > 7$ ), nous obtenons les valeurs calculées de la limite d'écoulement illustrées à la figure 5.7 et données dans le Tableau 5.3. On voit que le modèle décrit aussi une saturation. Ceci est lié au fait que, bien que la taille des grains de cuivre diminue encore à partir de  $\eta = 7$  (99.909 %) et devrait provoquer une augmentation des propriétés mécaniques, d'un autre côté, la diminution de la distance moyenne d'extrémités à



**Figure 5.8.** : Positions des plans de clivage (010) et (001) des rubans de fer par rapport à l'axe d'étirage et de traction.

extrémités des rubans a tendance à se stabiliser (voir Tableau 5.1) car le rapport de la largeur sur l'épaisseur des rubans de fer ( $w_{Fe}/t_{Fe}$ ) diminue. De plus la dimension effective des rubans qui interagit avec les dislocations dépend de la largeur de ceux-ci et la réduction de cette largeur en fonction du taux d'écroutissage augmente lorsque la réduction en épaisseur de ceux-ci s'arrête.

La contribution de tous ces facteurs fait que l'efficacité des rubans comme obstacles aux mouvements des dislocations diminue, comme on peut le voir à la colonne 4 du Tableau 5.3. Il est clair cependant que si le principe d'une saturation ou d'une diminution de la limite d'écoulement basée sur ces commentaires est plausible, les erreurs expérimentales sur les dimensions quantifiées de la microstructure et le faible nombre de points ne permet pas une discussion plus approfondie.

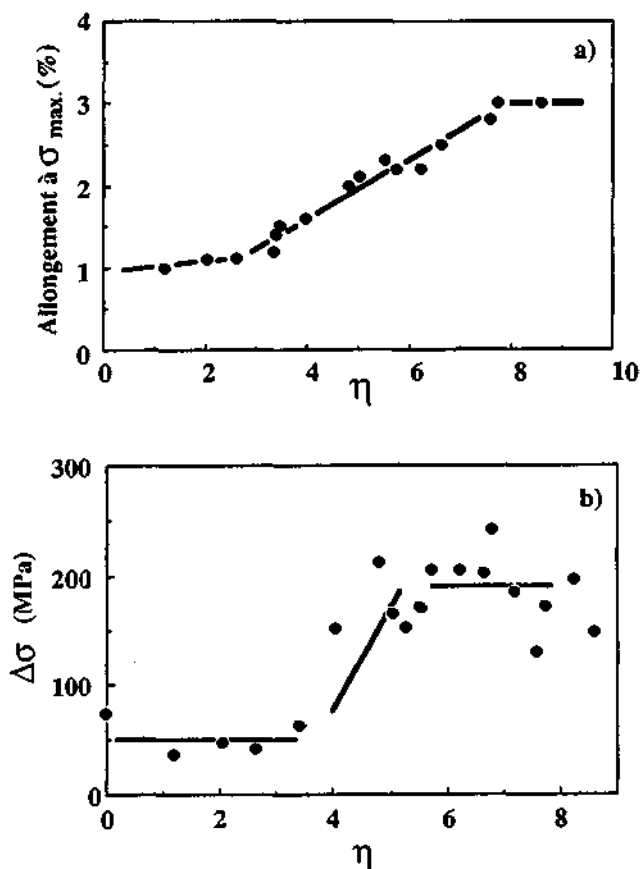
Le fait que les rubans soient chargés élastiquement alors que le composite présente un comportement plastique doit provoquer un durcissement supplémentaire apparent sur les courbes contrainte-déformation du composite. En effet, comme on peut le voir à partir des valeurs du tableau 5.2, l'écart entre la limite d'écoulement des rubans de fer  $\Delta\sigma(\text{Fe})$  et celle du composite augmente progressivement à partir de  $\eta = 4$  jusqu'à  $\eta = 7.5$ , donc la quantité de déformation élastique que subissent les rubans de fer augmente. Comme le durcissement de la matrice de cuivre et des rubans de fer doit être faible lors des essais de traction, il est raisonnable de penser qu'aussi bien l'allongement à la contrainte maximale que la différence de contrainte entre la limite d'écoulement du composite et la contrainte maximale doit augmenter lorsque l'écart entre la limite d'écoulement du ruban et celle de la matrice augmente. Un tel comportement semble qualitativement respecté comme on peut le voir à la figure 5.9. Le comportement de l'allongement à la contrainte maximale semble bien suivre ce point de vue tandis que la différence de contrainte présente une assez grande dispersion. Le fait que pour de faibles valeurs de taux d'écroutissage, l'augmentation est très faible doit être lié à l'établissement de la structure fibreuse résistante.

## 5.5. Différence entre le point d'écoulement en traction et en compression

### 5.5.1. Aux faibles valeurs du taux d'écroutissage

La différence entre la valeur de  $\sigma_{0.2}$  en traction et  $\sigma_{0.2}$  en compression dans la gamme de  $\eta = 0$  à  $\eta = 4$  (98.2 %) peut être expliquée semi-quantitativement sur la base de l'effet de Bauschinger. Celui-ci peut être défini comme la réduction de la résistance mécanique d'un matériau lorsqu'il est chargé au-delà de sa limite d'écoulement dans une direction puis chargé dans la direction opposée.

Les procédés de formage mécanique introduisent des tensions compressives latérales afin d'augmenter les cissons. Lors de l'étirage, ces tensions sont d'autant plus importantes que le demi-angle d'entrée des filières est élevé. Dans notre cas, cet angle était d'environ  $6^\circ$  pour toutes les filières et le taux de réduction d'environ 16%. L'étirage peut permettre une déformation homogène et uniforme, de manière que la quantité de travail inutile soit limitée pour les fortes déformations et puisse être négligée en première approximation (voir Backofen [27]).



**Figure 5.9 :** Variations a) de l'allongement à la contrainte maximale et b) de la différence entre la contrainte maximale et la limite d'écoulement en fonction de  $\eta$  de l'alliage Cu15Fe de la première série.

Ainsi Langford et Cohen [28] ont testé des échantillons en traction, en corrigeant les courbes pour tenir compte de la striction, après différents taux d'écroutissage obtenus par étirage. Ils ont ainsi obtenu, en traçant le point d'écoulement en fonction de la déformation totale du matériau (fer pur, Fe-Si, Fe-Co, Fe-Mn, ...) l'enveloppe de la limite d'écoulement. En fait, cette enveloppe décrit la variation de la limite d'écoulement en fonction du taux d'écroutissage,

pratiquement indépendamment du fait que la déformation soit produite lors d'un essai de traction ou lors de l'étirage. De plus, ils ont observé que le changement du mode de déformation peut altérer le comportement du durcissement lors de l'écroutissage. Ainsi, un essai de compression effectué après étirage produit un adoucissement, si bien que la limite d'écoulement se trouve nettement en dessous de l'enveloppe décrite auparavant.

Les barrières efficaces au mouvement des dislocations permettent la formation d'empilements de dislocations ou de manière plus générale, le stockage d'énergie élastique sous la forme d'interactions dislocations-dislocations, dislocations-particules ou d'interactions dislocations-interfaces. Si ces arrangements de dislocations possèdent une certaine stabilité lors de la décharge, ils peuvent aboutir lors de l'inversion de contrainte à un comportement de type Bauschinger. De manière générale, lors de l'étirage des microcontraintes résiduelles sont formées. Elles sont liées à l'anisotropie élastique des grains, à la distribution hétérogène des dislocations (formation de cellules ou de sous-grains), à la présence d'empilements de dislocations aux joints de grains, à la présence d'une deuxième phase, etc. Les contraintes observées peuvent être appelées, par analogie avec le comportement observé lors des essais de traction et de compression, contraintes inverses (back-stress) car elles favorisent la déformation dans la direction opposée à la charge initialement appliquée.

Les matériaux cubiques à faces centrées, et de manière générale, les métaux cubiques monophasés purs présentent un faible effet Bauschinger. Wilson [94] a démontré que l'amplitude de l'effet Bauschinger est fortement plus élevée dans les matériaux présentant des précipités incohérents et que celle-ci augmente pratiquement linéairement avec la fraction volumique. Pederson [95] a cependant montré avec un monocristal de cuivre que l'effet Bauschinger est fonction du taux de déformation préalable et a suggéré que ce phénomène était lié au fait que la distribution des dislocations est hétérogène et constituée de régions dont la résistance aux mouvements des dislocations est élevée (parois de cellules) ou faible (intérieur des cellules). Ungár [96] a démontré, à partir de l'asymétrie des pics de diffraction de rayons-x, l'existence de telles contraintes internes. En supposant que les cellules des dislocations se comportent comme un composite constitué de parois de cellules dures et d'intérieur de cellules moins résistant, Ungár a observé des contraintes internes en compression à l'intérieur de cellules et en traction dans les parois pour un échantillon préalablement chargé en traction. Ces contraintes internes augmentent avec le taux de déformation en traction, en compression, ou après étirage et semblent saturer après un taux de déformation par étirage d'environ  $\eta = 0.2$  (20 %). Ainsi, l'intérieur des cellules d'un fil de cuivre pur étiré subit une contrainte inverse après décharge d'environ 70 MPa.

De façon générale, les instabilités géométriques (striction, kinks) empêchent toute mesure précise de la différence du point d'écoulement, pour cette gamme d'écroutissage ( $0 \leq \eta \leq 4$ ), après environ 1.0% de déformation. Mais l'écart entre les valeurs du point d'écoulement en traction et compression est relativement constant entre 0.2% et 1.0% de déformation. Les différences de valeurs de  $\sigma_{0.2}$  entre la traction et la compression donnent donc de façon assez précise une information sur l'effet Bauschinger.

Ces différences de valeurs de  $\sigma_{0.2}$  (cf. figure 4.32) sont pratiquement constantes entre  $\eta = 0.5$  (39.3 %) et  $\eta = 4.0$  (98.2 %) et la moyenne est d'environ  $180 \pm 55$  MPa. Le rapport moyen entre cette valeur et la valeur de  $\sigma_{0.2}$  dans le domaine considéré est de  $0.29 \pm 0.05$ . Une valeur identique a été obtenue par Wilson [94] pour un acier contenant 0.74% de C et une distribution de particules sphériques de cémentite très semblable à celle que nous avons pour les particules de fer dans l'alliage Cu15Fe après extrusion. En effet, la distance entre les particules de fer était de 1.4  $\mu\text{m}$  dans les deux cas et le diamètre de la cémentite était de 0.5  $\mu\text{m}$  alors que le diamètre des particules de fer dans le cuivre était d'environ 0.7  $\mu\text{m}$ .

Les différences de contraintes internes inverses à la direction de charge que nous avons obtenues par la mesure du déplacement des pics de rayons-x de l'alliage Cu15Fe extrudé après différents taux de déformation en traction et en compression montrent une saturation à environ 115 MPa, comme on peut le voir à la figure 4.34. Mais il est clair que les mesures par rayons-x sous-estiment la valeur des tensions internes parce qu'une partie des contraintes sera relaxée à proximité de la surface libre qui doit être utilisée.

Wilson [94] a comparé les contraintes internes inverses mesurées par rayons-x avec l'effet Bauschinger pour toute une gamme d'alliages mono- et biphasés. La valeur mesurée par rayons-x était de façon systématique environ 1.9 fois inférieure à celle mesurée par les essais mécaniques. En utilisant le même coefficient pour nos résultats et la valeur de  $\sigma_{0.2}$  en compression devrait être inférieure d'environ 200 MPa par rapport à celle obtenue en traction. En effet, les contraintes internes créées lors de l'étrépage s'opposent à la déformation en traction tandis qu'elles favorisent la déformation en compression. Cette valeur est, à l'erreur expérimentale près, identique à celle obtenue par la mesure des propriétés mécaniques.

Pour conclure cette partie, nous pouvons donc dire que la faible valeur de  $\sigma_{0.2}$  obtenue en compression par rapport à celle obtenue en traction dans la gamme de  $\eta = 0.5$  à 4 est liée à un phénomène fréquent lors d'un changement du mode de déformation. De plus, la valeur de la différence peut être raisonnablement comprise sur la base des contraintes internes mesurées par

rayons-x. Ces contraintes internes doivent être liées à la présence des particules de fer et des cellules de dislocations et sont très proches de celles observées dans la littérature pour une distribution de particules semblables. En effet, après extrusion, l'allongement des rubans est encore faible. Cependant, la comparaison qualitative est limitée par nos conditions d'étréage qui ne provoquent pas un état de tension pur et par le fait que l'écart est mesuré très proche du domaine élastique.

### 5.5.2. Aux valeurs élevées du taux d'écroutissage

Dans la gamme de  $\eta > 4$  (98.2 %), nous avons observé que la différence de limite d'écoulement entre la traction et la compression devient beaucoup plus faible et est de l'ordre de 50 MPa. Il est intéressant de se rappeler que proche de  $\eta = 4$  (98.2 %), la diminution de la taille des grains de cuivre dépasse nettement la taille minimum des cellules de dislocations dans le cuivre pur [28]. A ces valeurs de  $\eta$ , la présence d'une sous-structure de dislocations à l'intérieur des grains de cuivre n'est plus stable. On passe progressivement d'un état où les dislocations ou éventuellement les empilements de dislocations, conservent localement une certaine partie des contraintes appliquées à un état où il n'y a plus de sous-structure stable de dislocations. En d'autres termes, lorsque la taille de grains devient très fine, le stockage d'énergie élastique directionnel provoquant le "back-stress" diminue fortement.

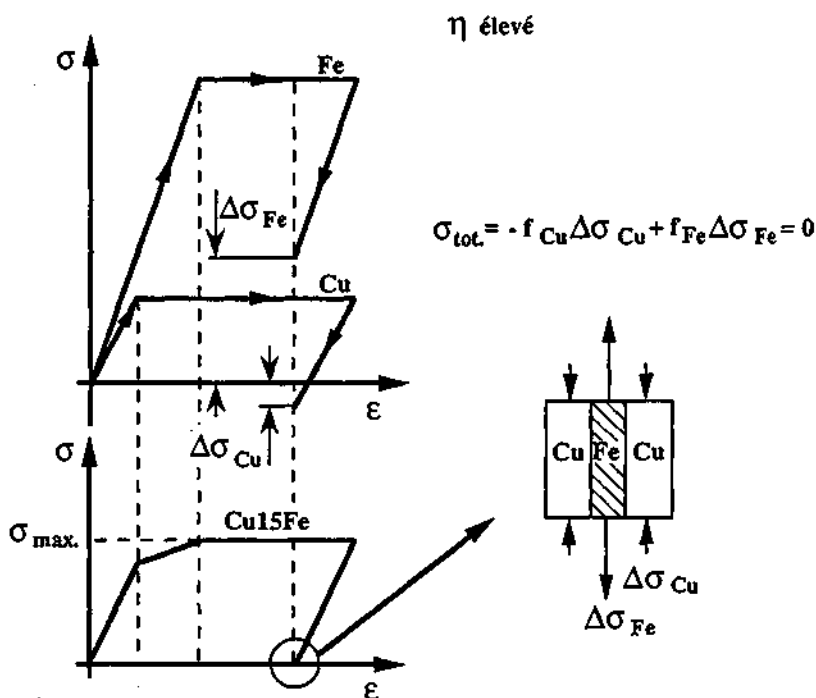
Par contre, des microcontraintes élevées ont été observées à partir des mesures faites par rayons-x (voir tableaux 4.7 et 4.8), dans la matrice de cuivre aussi bien que dans les rubans, qui augmentent avec le taux de déformation même au-delà de  $\eta = 4$  (98.2 %). Bien que les valeurs des microcontraintes que nous avons obtenues sont entachées d'une importante marge d'erreur, il est tout à fait clair que même au-delà de  $\eta = 4$  (98.2 %), celles-ci ont tendance à augmenter. La présence de microcontraintes élevées, spécialement dans des cristaux dont les dimensions sont d'une centaine de nanomètres ou inférieures, peuvent provenir en partie de la nécessaire compatibilité de la déformation entre les différents grains. Localement ces interactions peuvent aboutir aussi bien à des contraintes en compression qu'en traction qui vont provoquer les deux un élargissement des pics de rayons-x.

Le fait que le fer soit chargé élastiquement au début de la déformation plastique du composite, lors des essais de traction et lors de l'étréage, doit provoquer lors de la décharge la présence de contraintes internes. En effet, c'est entre les valeurs de  $(95.0 \%) = 3$  à  $\eta = 4$  (98.2 %) que la résistance des rubans de fer donnée par l'équation (5.6) dépasse la valeur du point

d'écoulement du composite à 0.2% de déformation (voir Tableau 5.2). Lors de l'essai de traction le fer est chargé à des valeurs de contrainte nettement plus élevées que la matrice. Si l'on applique pour les deux phases du composite, le principe de l'iso-déformation présenté au § 5.3. *Nouveau modèle décrivant les propriétés mécaniques de l'alliage Cu15Fe*, les rubans doivent se trouver après décharge dans un état de traction alors que la matrice est dans un état de compression. Le principe schématique de l'apparition des contraintes internes après décharge du composite Cu15Fe est illustré à la figure 5.10. Afin de simplifier la représentation, nous avons considéré que le comportement du cuivre et du fer à l'intérieur du composite ne présente pas de durcissement. Cette hypothèse, pour des valeurs de  $\eta$  élevées, doit être respectée, comme nous l'avons vu au § 5.1. *Interprétation de l'évolution de la microstructure lors de l'écroutissage*, aussi bien pour la matrice de cuivre que pour les rubans de fer. De plus, le durcissement ne change en rien le principe de l'apparition des contraintes internes lors de la décharge mais varie leurs valeurs absolues, tant que celui-ci n'est pas trop différent entre les deux phases.

Si l'on effectue un essai de compression après que ce type de contraintes soit créé, le cuivre, qui comme nous l'avons vu est responsable de la limite d'écoulement du composite, commence à se déformer plastiquement à des charges plus faibles qu'en traction. Ces contraintes auront tendance à augmenter en fonction de  $\eta$  jusqu'à ce que les rubans atteignent leur limite de réduction en épaisseur. Une partie de l'augmentation des microcontraintes observées à l'aide de rayons-x doit être due à ce comportement car, vu les dimensions de la microstructure à des valeurs de  $\eta > 4$  (98.2 %), il est probable que le champ de contraintes ne soit pas uniforme conduisant à un important élargissement des pics de diffraction, peut être associé avec un faible déplacement difficilement mesurable. Une partie de ces contraintes peut probablement être relaxée après la décharge.

Les contraintes compressives à l'intérieur de la matrice de cuivre restent faibles en raison de la faible fraction volumique de fer sous forme de rubans. Ainsi en tenant compte simplement de la fraction volumique, la variation de la limite d'écoulement d'environ 50 MPa observée entre les essais de traction et de compression pour des valeurs de  $\eta > 4$  (98.2 %) est attribuée à des contraintes compressives dans le cuivre et aboutit à des contraintes compressives d'environ 25 MPa dans la matrice de cuivre et à des contraintes en traction de l'ordre de 225 MPa dans les rubans de fer. Il faut noter que la précision expérimentale de la mesure des macrocontraintes (§ 4.5.1. *Mesure des macrocontraintes*) est de cet ordre de grandeur et ne permet donc pas de détecter de telles valeurs.



**Figure 5.10.** : Schéma montrant le comportement du composite Cu15Fe en considérant que la déformation est strictement identique dans les deux composants et que ceux-ci ne présentent pas de durcissement. L'apparition de contraintes internes compressives dans le cuivre et en traction dans les rubans de fer résulte de la limite d'écoulement plus élevée du fer par rapport à la matrice de cuivre.

Nous attribuons donc, le faible écart entre les limites élastiques conventionnelles en traction et en compression pour des valeurs de  $\eta$  proches de 4 (98.2 %), à la présence de faibles contraintes compressives dans la matrice de cuivre. Celles-ci doivent augmenter pour des taux d'écroutissage plus importants, comme le font les microcontraintes. Cependant, une partie de l'augmentation des microcontraintes doit aussi être liée à la difficile compatibilité de la déformation entre des cristaux de taille progressivement plus petite. Cette augmentation des microcontraintes liée à la compatibilité, ne va pas créer des contraintes internes axiales de la même manière que la différence de point d'écoulement entre les rubans de fer et la matrice. Pour des raisons évidentes de dimensions des fils obtenus, nous n'avons pas pu effectuer des essais de compression à des valeurs de  $\eta$  plus élevées que 4 (98.2 %) environ.

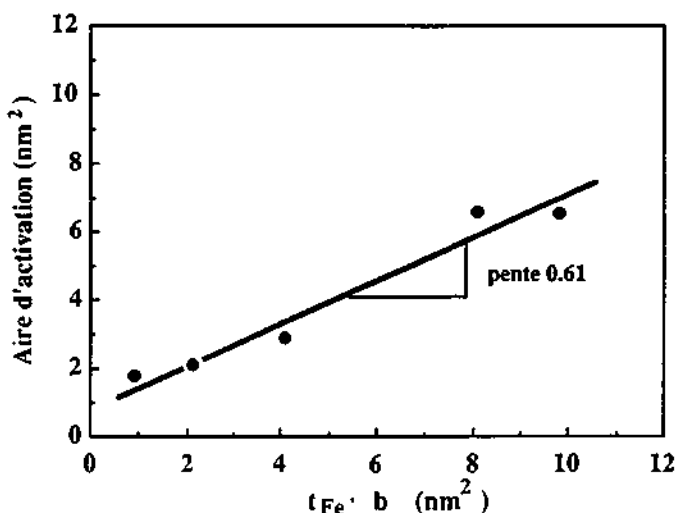
#### 5.6. Rôle de l'usinage sur les propriétés mécaniques

Lors de l'étréage, des distributions de contraintes internes macroscopiques peuvent être créées Dieter [80] page 248, à l'intérieur des fils. Pour des taux de réduction élevés, les contraintes résiduelles longitudinales sont généralement en tension à la surface du fil et compressives à l'intérieur. Plus l'angle d'entrée des filières est grand, plus les contraintes résiduelles sont importantes et après avoir passé par un maximum à environ 20% de réduction, les contraintes internes ont tendance à diminuer avec le taux d'écroutissage [97]. Si une distribution importante de contraintes internes est présente dans les fils étréés de l'alliage Cu15Fe, le comportement de la limite d'écoulement doit varier si les échantillons sont usinés ou non. Si des contraintes internes en traction sont présentes à la surface du fil, un essai de traction sur un échantillon non-usiné doit présenter un point d'écoulement plus faible qu'un échantillon usiné, en supposant que l'usinage ne perturbe pas trop la distribution de contraintes internes. Les résultats que nous avons obtenus (voir figures 4.27 et 4.32) ont montré que la distribution des contraintes internes macroscopiques devait être faible car les valeurs des limites d'écoulement des échantillons usinés et non-usinés sont très proches.

### 5.7. Volume d'activation

Le volume d'activation que nous avons déterminé diminue fortement avec  $\eta$  et est très faible puisqu'il diminue d'environ  $100b^3$  à  $27b^3$  pour des valeurs de  $\eta$  passant de 2.6 (92.6 %) à 7.4 (99.939 %). Il est clair que le mécanisme thermiquement activé est extrêmement localisé et le fait qu'il soit fortement fonction de  $\eta$  montre qu'il dépend des dimensions moyennes de la microstructure. Il est important de noter que dans les domaines de déformation où les volumes d'activation ont été mesurés, les rubans de fer doivent essentiellement se déformer plastiquement.

On remarque une dépendance linéaire de l'aire d'activation en fonction de l'épaisseur des rubans fois le vecteur de Burgers,  $t_{Fe} \cdot b$ , comme on peut le voir à la figure 5.11. Comme il y a une dépendance linéaire entre la diminution de l'épaisseur des rubans et la diminution de la taille de grains du cuivre (voir la figure 4.21), la dépendance linéaire de l'aire d'activation est aussi respectée en fonction de la taille des grains de cuivre.



**Figure 5.11.** Variation de l'aire d'activation en fonction de  $t_{Fe} \cdot b$  de l'alliage Cu15Fe. La droite présentée sur cette figure est la droite de régression et présente une pente de 0.61.

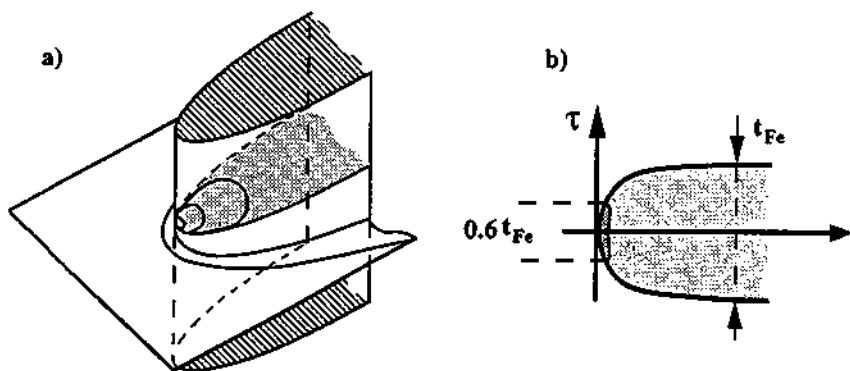
Le fait que le mécanisme thermiquement activé soit extrêmement localisé et fonction de  $\eta$  (dans la mesure où l'épaisseur des rubans diminue avec  $\eta$ ) élimine tous les mécanismes agissant sur les segments de dislocations comme l'atmosphère de Cottrell, les dissociations, etc. ainsi que les mécanismes liés à la présence d'une fine dispersion de particules de fer ou au durcissement par solution solide. De plus, au vu des observations effectuées au MET et de la finesse de la microstructure, il est possible d'éliminer les mécanismes liés aux interactions dislocations-dislocations. Il faut noter aussi que le mécanisme d'Orowan permettant à la dislocation de la matrice de cuivre de franchir les rubans n'est évidemment pas thermiquement activé et que vu les dimensions de ceux-ci, les mécanismes de montée de dislocations ne peuvent pas jouer un rôle non plus.

Si l'on tient compte du fait que le volume d'activation est mesuré lorsque la matrice de cuivre et les rubans de fer se déforment plastiquement et que les microstructures sont fines et très fortement écrouies, le volume d'activation ne doit pas varier en fonction du taux de déformation lors des essais de traction. C'est-à-dire évidemment qu'il ne dépend pas de la structure de dislocations ni de son évolution puisque celle-ci ne peut plus se développer. Ceci est confirmé par les observations que nous avons faites qui montrent clairement que le volume d'activation ne varie pas, à l'erreur expérimentale près, avec le taux de déformation en traction (voir les faibles valeurs des écarts type données dans le Tableau 4.6).

En considérant que la largeur de l'aire d'activation n'est que d'un vecteur de Burgers, on suppose un obstacle extrêmement localisé et l'aire d'activation ne peut avoir qu'une longueur inférieure à l'épaisseur des rubans. Le mécanisme thermiquement activé semble donc lié à la propagation de la déformation dans les rubans de fer. On peut envisager soit un mécanisme de germination de dislocations à partir de l'interface cuivre-fer soit la découpe des rubans de fer par les dislocations de la matrice. En principe, ce dernier mécanisme n'est envisageable que si l'interface est cohérente ou semi-cohérente [89] sinon, géométriquement, des segments de dislocations non-glissiles à l'interface doivent être créés. Il est clair au vu des textures que nous avons observées (voir Tableau 4.2) : - type mixte 111 et 100 pour le cuivre et de type 110 pour les rubans de fer qu'il n'y a pas une épitaxie systématique entre les plans {111} de la matrice de cuivre et le plan {100} des rubans de fer. En effet, le plan de la matrice de cuivre qui est en contact avec les rubans de fer ne peut pas être un plan {111}, car il n'y a pas de plan de ce type là parallèles aux directions préférentielles observées ( $\langle 100 \rangle$  et  $\langle 111 \rangle$ ). Cependant du fait des très faibles dimensions de la microstructure et des contraintes locales très élevées, le mécanisme de découpe ne peut pas être totalement exclu.

Les joints de grains, les interfaces incohérentes entre la matrice et les précipités ou les dispersoïdes peuvent agir comme source de dislocations [98, 99] sous l'effet de la concentration de contrainte à l'interface. En principe, du fait du nombre élevé d'atomes concernés, l'activation thermique ne réduit pas de façon significative la contrainte critique des sources de dislocations. D'après la figure 5.11, si la longueur de l'aire d'activation est seulement d'environ un vecteur de Burgers, la longueur moyenne du segment de dislocation concerné n'est que d'environ 0.6 fois l'épaisseur des rubans,  $t_{Fe}$ . Le mécanisme très localisé d'émission de dislocations semble donc possible à l'intérieur d'un ruban de fer.

Nous avons illustré schématiquement à la figure 5.12 le mécanisme thermiquement activé d'émission de dislocations à l'intérieur des rubans de fer sous l'effet des contraintes locales. Pour que l'interface soit à proprement parler une source continue de dislocations, il faut que celles-ci soient émises de façon concentriques à partir d'un segment actif ancré aux extrémités. La cisssion locale n'est pas suffisante pour permettre l'émission d'une dislocation. Par contre, si l'activation thermique agissant sur une largeur d'environ un vecteur de Burgers, permet de dépasser la cisssion maximale l'émission d'une dislocation devient possible.



**Figure 5.12.** Schéma montrant a) globalement l'émission thermiquement activée d'une dislocation à l'intérieur d'un ruban de fer sous l'effet des contraintes locales et b) le plan de glissement actif dans le ruban de fer ainsi que le segment de dislocation émis.

### 5.8. Stabilité thermique de la microstructure

La microstructure des composites *in-situ* fortement écrouis est instable et la chute des propriétés mécaniques se fait rapidement lors des traitements thermiques. Celle-ci se fait évidemment d'autant plus tôt que la microstructure est fine. Le choix du matériau de la phase cubique centrée joue plutôt un rôle indirect sur la limite élastique dans l'état écroui non-traité thermiquement, comme nous l'avons vu au § 5.3. *Nouveau modèle décrivant les propriétés mécaniques de l'alliage Cu15Fe*. C'est-à-dire que c'est essentiellement les dimensions de la microstructure qui sont déterminantes.

La diffusion se fait localement à l'interface entre le ruban et la matrice de cuivre. Le coefficient de diffusion du cuivre et de l'élément cubique centré à l'interface n'est pas connu mais peut être estimé en supposant que l'énergie d'activation de la diffusion à l'interface entre deux éléments (cubique à faces centrées et cubique centré) est comparable à celle d'une interface incohérente à l'intérieur d'une seule phase. Il est probable que la largeur effective du joint soit similaire quelque soit l'élément cubique centré et ainsi que l'erreur relative entre les différents coefficients soit faible. Les valeurs du coefficient de diffusion aux joints de grains pour le cuivre, le chrome, le fer, le niobium et le tantale sont données dans le Tableau 5.4.

Tableau 5.4 : Énergie d'activation de la diffusion aux joints d'après [100].

$Q_{inter}$  = énergie d'activation de la diffusion à l'interface.

Élément	Cu	Fe	Cr	Ta	Nb
$Q_{inter}$ , [kJ.mol <sup>-1</sup> ]	110	160	190	230	240

Il est clair que la globularisation est dépendante des couples de diffusion cuivre et élément cubique centré. D'après le Tableau 5.4, la cinétique de globularisation est directement liée à l'élément cubique centré choisi et celle-ci ne doit être influencée que faiblement par la diffusivité du cuivre qui est nettement plus élevée que celle des éléments cubiques centrés. La globularisation des rubans est donc d'autant plus faibles que l'énergie d'activation de la diffusion à l'interface est grande et peut donc se classer dans l'ordre : Nb < Ta < Cr < Fe. Cet ordre correspond aussi à celui des points de fusion des éléments considérés, comme mentionné par Hardwick [101].

Il est intéressant de constater que les phénomènes de relaxation se passant à une température

inférieure à 150°C semblent assez limités dans l'alliage Cu15Fe  $\eta = 5.8$  (99.7 %). En effet, à l'erreur expérimentale près, la contrainte maximale et la limite élastique restent constantes jusqu'à 160°C 2h au moins (voir figure 4.38). On ne détecte pas non plus, au vu des propriétés mécaniques, la présence d'une précipitation importante de fer. Les phénomènes de restauration sont donc limités à ces températures. Ceci provient du fait qu'à  $\eta = 5.8$  (99.7 %), il n'y a plus une importante densité de dislocations à l'intérieur des grains.

Pour l'alliage Cu15Fe  $\eta = 5.8$  (99.7 %), il est clair que la recristallisation de la matrice de cuivre ne joue pas un rôle déterminant. Ceci est dû à la finesse de la microstructure qui empêche l'accumulation des dislocations dans les grains de cuivre. La recristallisation a cependant déjà été observée dans les composites *in-situ* mais lorsque la microstructure était encore grossière [55]. Dans ces matériaux (Cu15Nb), à une température donnée, la chute se faisait au début du traitement mais ensuite la contrainte maximale et le point d'écoulement restaient pratiquement constants. Pour les phénomènes de globularisation, on ne s'attend pas à observer une telle stabilisation des propriétés mécaniques après quelques heures de traitement. Nous avons observé que dès que la chute des propriétés mécaniques devenait significative après un traitement thermique à 220°C pendant 2 heures, les premiers indices de la globularisation des rubans étaient décelés (voir figure 4.38). Nous avons observé que la différence entre la contrainte maximale et la limite conventionnelle d'élasticité en traction, illustrée à la figure 4.41 est environ constante, ce qui implique que le durcissement est environ toujours le même lors des essais de traction. Ceci implique encore une fois que ce n'est pas un mécanisme de restauration et encore moins de recristallisation qui explique la diminution des propriétés mécaniques après traitement thermique.

La globularisation des rubans de fer sous l'effet de la capillarité semble se faire de façon complexe et implique beaucoup de mécanismes discutés dans le § 2.5. *Coalescence des fibres.* C'est le phénomène de cylindrisation (formation de crêtes proche des extrémités) qui rend les rubans sensibles aux perturbations. Expérimentalement, il a été observé au MEB et au MET que les rubans présentaient souvent des crêtes proches des extrémités après traitement thermique. De plus la présence longitudinale ou transversale de parois permettant la formation de sillons thermiques doit être parfois responsable de la division des rubans. Ceci réduit les rapports longueur/épaisseur et largeur/épaisseur des rubans et accélère la globularisation. Si ces rapports sont élevés la sphéroïdisation des extrémités est aussi possible.

## **Chapitre 6**

=====

## **Conclusions**

## 6. Conclusions

Les matériaux que nous avons obtenus soit à partir des poudres préallées atomisées ou des billettes Osprey nous ont permis d'obtenir, après l'extrusion, des alliages présentant des microstructures fines et homogènes. Les alliages obtenus à partir des poudres préallées compactées ont une microstructure qui est proche de celle des billettes Osprey et nous ont permis ainsi une bonne évaluation initiale du comportement de celles-ci.

Du point de vue de la résistance mécanique, le fait de partir d'une microstructure fine est très favorable et nous permet d'obtenir des matériaux présentant une résistance mécanique élevée après un faible taux d'étirage. En effet, nous avons obtenu, par exemple, pour l'alliage Cu15Fe une résistance mécanique d'environ 1000 MPa après un taux d'écroissage de seulement 5. Cette résistance mécanique est bien meilleure que celles obtenues pour les composites *in-situ* fabriqués à partir de lingots coulés dont la fraction volumique de phase cubique centrée se déformant durant l'écroissage et pourtant nettement plus importante. La présence d'une deuxième phase cubique centrée non-dendritique n'est donc pas pénalisante pour les propriétés mécaniques.

Nous avons observé que l'aptitude des particules de phase cubique centrée à se déformer lors de l'extrusion et de l'étirage est très sensible à la contamination et à la taille des particules. Ainsi les effets cumulés du durcissement par solution solide et de la finesse de la distribution dans les alliages cuivre-chrome ont empêché les particules de chrome de s'allonger lors de l'écroissage. Dans les composites contenant du fer, des particules d'oxydes ou de carbures plus ou moins sphériques ont été observées, tandis que les particules de fer métallique s'allongeaient lors de l'étirage. Une fraction non-négligeable du fer ne participe donc pas au durcissement du matériau car elle se trouve sous la forme de grosses particules d'oxyde ou de carbure. Aucun des matériaux faiblement concentrés que nous avons étudiés ne présentait une quantité de deuxième phase fibreuse suffisante pour que l'augmentation des propriétés mécaniques soit importante.

Ce travail se caractérise, entre autre, par l'effort qui a été porté sur la quantification précise de l'évolution de la microstructure. Ainsi, nous avons observé des microstructures qui devenaient extrêmement fines lors de l'étirage, si bien que la limite d'écoulement des rubans de fer doit devenir très élevée même après un écroissage intermédiaire  $\eta \approx 4 - 8$  (98.2 - 99.97%). Le mécanisme de découpe des grains de cuivre par les rubans de fer que nous avons observé rend possible une décroissance continue de la taille moyenne de grains de cuivre lors de l'étirage, même en dessous de la taille minimum de cellules obtenues dans un cuivre pur étiré. Ainsi,

nous avons obtenus pour les valeurs élevées du taux d'écroutissage,  $\eta \geq 7$  (99.91%), des tailles de grains de cuivre inférieures à 75 nm et des épaisseurs des rubans de l'ordre de 4 nm.

En tenant compte des dimensions de la microstructure, nous avons conclu, qu'après avoir dépassé une valeur de  $\eta$  de 3.5 (97.0%) environ, le point d'écoulement des rubans de fer devenait très nettement supérieur à celui du composite et ce qui est plus important, à partir de  $\eta = 4.5$  (98.9%), à la limite d'écoulement du composite, les rubans de fer n'avaient pas encore dépassé leurs limites élastiques. Ainsi, en mesurant le point d'écoulement du composite à 0.2% de déformation et pour des taux d'écroutissage supérieur à  $\eta \approx 4$  (98.2%), les rubans de fer n'étaient qu'élastiquement contraints. Le point d'écoulement du composite peut être atteint sans que l'une des deux phases ne se déforme plastiquement. Ainsi, au début des essais de traction et de l'étrépage la matrice de cuivre se déforme plastiquement tandis que les rubans sont encore élastiquement contraints.

En utilisant une version modifiée du modèle de durcissement, basé sur la difficulté de mouvoir des dislocations au travers d'une dispersion de barrières, qui tient compte de la taille nanométrique des rubans de fer, nous avons pu décrire la variation de la limite d'écoulement de l'alliage Cu15Fe. De plus les hypothèses à la base de ce modèle permettent d'expliquer qualitativement les observations des variations des microcontraintes que nous avons mesurées au rayons-x et sont en accord avec les observations des différences entre les limites d'écoulement en traction et en compression. Dans ce modèle, la contribution de la matrice de cuivre à la résistance mécanique du composite dépend des interactions entre les dislocations et les rubans ainsi que les fins précipités de fer apparus lors de la compaction ou de l'extrusion. Nous avons tenu compte, dans ce modèle de l'effet de la morphologie des rubans de fer sur le nombre de rubans traversant le plan de glissement et l'effet de celle-ci sur la facilité qu'a la dislocation à dépasser l'obstacle. Les valeurs expérimentales introduites dans ce modèle sont basées sur la quantification de la microstructure, si bien que les résultats obtenus sont directement dépendants de ces mesures et décrivent donc aussi la saturation de l'augmentation de la limite d'écoulement.

Il est apparu clairement qu'une saturation de la diminution de la taille de la microstructure était observée lorsque le taux d'écroutissage devenait très important et provoquait ainsi une saturation de l'augmentation de la limite élastique et de la résistance mécanique. Nous attribuons cette saturation au fait que les rubans de fer atteignent des résistances proches de la limite théorique et du fait qu'ils sont orientés favorablement se rompent probablement par clivage sur les plans {100}. Ceci a pour conséquence que, pour une fraction volumique et une distribution données

de phase cubique centrée qui se transforme en rubans, une limite de la résistance mécanique doit être atteinte lorsque l'épaisseur des rubans est telle que leur résistance mécanique atteint une valeur limite. Donc l'affinement de la microstructure initiale permet de diminuer la fraction volumique de la deuxième phase ou de réduire le taux d'écroissage nécessaire pour obtenir les propriétés mécaniques escomptées, mais ceci n'est possible que si l'on atteint pas la taille critique des rubans.

Nous n'avons pas observé un comportement clairement exponentiel de la contrainte avec  $\eta$ , ce qui est généralement le cas des composites *in-situ* fabriqués à partir de lingots coulés. Nous attribuons ce comportement au fait que, bien que les dimensions critiques de la microstructure diminuent proportionnellement (jusqu'à  $\eta = 7.5$ ) avec la réduction de la section du fil, aboutissant à une dépendance exponentielle des propriétés mécaniques en fonction de  $\eta$ , la contribution des rubans de fer qui atteignent progressivement lors de l'étirage une taille critique et ne participent plus à l'augmentation des propriétés mécaniques, font que cette dépendance exponentielle est réduite. La dépendance exponentielle apparente de la limite élastique est donc réduite parce qu'elle se trouve entre les faibles valeurs de  $\eta$ , où la microstructure fibreuse apparaît et les valeurs élevées de  $\eta$ , où la réduction de la taille des rubans présente une saturation.

Des contraintes internes inverses (back-stress) sont observées après les premières passes d'étirage et elles conduisent à une diminution de la limite d'écoulement en compression par rapport à celle obtenue en traction. Ces contraintes sont formées lors de l'étirage car la déformation se fait principalement en tension et sont liées à la présence des particules de fer et des cellules de dislocations. Mais ce type de contraintes internes disparaît en très grande partie lorsque la valeur du taux de déformation devient élevée. La faible valeur de la limite d'écoulement obtenue en compression par rapport à celle obtenue en traction dans la gamme de  $\eta = 0.5$  à 4 (39.4 à 98.2%) est liée à un phénomène fréquent lors d'un changement du mode de déformation. De plus, cette différence peut être raisonnablement comprise sur la base des contraintes internes mesurées par rayons-x. Ces contraintes internes sont très proches de celles observées dans la littérature pour une distribution de particules semblables. Nous avons attribué le faible écart entre les limites élastiques conventionnelles en traction et en compression pour des valeurs de  $\eta$  supérieures ou égale à 4 (98.2%), à la présence de faibles contraintes compressives dans la matrice de cuivre. Celles-ci augmentent pour des taux d'écroissage plus importants, comme le font les microcontraintes. Cependant, pour des raisons évidentes de dimensions des fils obtenus, nous n'avons pas pu effectuer des essais de compression à des valeurs de  $\eta$  plus élevées qu'environ 4 (98.2%). Toutefois, une partie de l'augmentation des

microcontraintes est aussi être liée à la difficile compatibilité de la déformation entre des cristaux de taille progressivement plus petite.

Les mesures des valeurs des volumes d'activation, ont montré que ceux-ci étaient très faibles et diminuaient linéairement avec les dimensions de la microstructure. Le mécanisme thermiquement activé d'émission de dislocations à l'intérieur d'un ruban de fer semble le mécanisme responsable de l'augmentation de la limite d'écoulement lorsque la vitesse de déformation augmente.

La stabilité thermique de la microstructure est assez faible, en effet lorsque le matériau présente une résistance mécanique supérieure à 1000 MPa, des traitements thermiques de quelques heures à 200°C provoquent déjà une chute des propriétés mécaniques. La microscopie électronique en transmission nous a montré que les rubans présentaient souvent des crêtes proches des extrémités après traitement thermique et que la présence longitudinale ou transversale de parois de dislocations permettant la formation de sillons thermiques est parfois responsable de la division des rubans.

Si l'intérêt de ce travail est en partie d'ordre fondamental, il n'en revêt pas moins un grand intérêt industriel. En effet, le développement d'alliages de haute résistance mécanique et de haute conductivité électrique est d'un très grand intérêt industriel. Dans ce sens, cette étude a permis de démontrer la possibilité de fabriquer des composites *in-situ* à partir d'une microstructure de départ fine obtenue par la solidification rapide. De plus, nous avons démontré que des composites *in-situ* présentant des résistances mécaniques très intéressantes peuvent être fabriqués aussi bien à partir de poudre préalliée atomisée qu'à partir de billettes déposées par la méthode Osprey. Cette dernière méthode revêt un intérêt économique particulier puisqu'elle permet d'éviter la compaction des poudres.

## **Chapitre 7**

=====

## **Références**

## 7. Références

- [1] Grant N. J., Lee A. and Lou M., High Conductivity Copper and Aluminium Alloys, Ed. Ling E. and Taubenblat P. W., Metall. Soc. AIME, N. Y., 103 (1985).
- [2] Shumay W. C. Jr., Advanced Materials and Processes, 12, 55 (1987).
- [3] Groza J., J. Mat. Engineering and Performance, 1, 113 (1992).
- [4] Hutchinson B., Sundberg R. and Sundberg M., Proc. of Copper '90 Refining Fabrication market, Västeras Congress Centre, The Institute of Metals, 245 (1990).
- [5] Verhoeven J. D., Chueh S. C. and Gibson E. D., J. Mat. Sci., 24, 1748 (1989).
- [6] Pollock D. D., Electrical Conduction in Solids : An Introduction, American Society For Metals, Metals Park, Ohio 44073, 121 (1985).
- [7] Morris D. G. and Morris M. A., Acta Met., 39, 1763 (1991).
- [8] Morris M. A. and Morris D. G., Mat. Sci. and Eng., A111, 115 (1989).
- [9] Morris D. G. and Morris M. A., Acta Met., 35, 2511 (1987).
- [10] Morris D. G. and Morris M. A., Proc. of DGM Conference, New Materials by Mechanical Alloying Techniques, Ed. Artz E. and Schultz L., Calw-Hirsau, 143 (1991).
- [11] Smart J. S., Smith A. A. and Phillips A. J., Trans. Met. Soc. AIME, 143, 272 (1941).
- [12] Guba A., High Conductivity Copper and Aluminium Alloys, Ed. Ling E. and Taubenblat P. W., Metall. Soc. AIME, N. Y., 133 (1985).
- [13] Chakrabarti D. J. and Laughlin D. E., Bulletin Alloy Phase Diagrams, 5, 59 (1984).
- [14] Suzuki H., Kanno M. and Kawakaba I., J. Jap. Inst. Met., 53, 628 (1969).
- [15] Preston D. and Grant N. J., Trans. AIME, 221, 164 (1961).
- [16] Kraft R. W. and Albright D. L., Trans. Met. Soc. AIME, 221, 95 (1961).
- [17] Rhodes C. G. and Garmong G., Met. Trans., 3, 1861 (1972).
- [18] Embury J. D. and Fisher R. M., Acta Met., 14, 147 (1966).
- [19] Liesner C. and Wassermann G., Metall., 23, 414 (1969).
- [20] Wassermann G., Proc. 2nd Int. Conf. on Strength of Metals and Alloys, (Asilomar, Cal.), vol. III, ASM, Cleveland, Ohio, 1188, (1972).
- [21] Wassermann G., Z. Metallkde., 64, 844 (1973).
- [22] Bevk J., Harbison J. P. and Bell J. L., J. Appl. Phys., 49, 6031 (1978).

- [23] Bevk J. and Karasek K. R., *New Development and Applications in Composites*, Eds. Kühlmann D.-Wilsdorf and Harrigan W. C., The Metallurgical Society of AIME, Warrendale, 101 (1979).
- [24] Spitzig W. A. and Krotz P. D., *Scripta Met.*, 21, 1143 (1987).
- [25] Spitzig W. A. and Krotz P. D., *Acta Met.*, 36, 1709 (1988).
- [26] Hecker S. S. and Stout M. G., *Deformation Processing and Structure*, ASM, Metal Park, OH, 1 (1982).
- [27] Backofen W. A., *Deformation Processing* ch.7, Addison-Wesley, Reading Mass, 135 (1972).
- [28] Langford G. and Cohen M., *Trans. ASM*, 62, 623 (1969).
- [29] Gil Sevillano J., Van Houtte P. and Aernoudt E., *Prog. Mat. Sci.*, Ed. Christian J. W., Haasen P., Massalski T. B., 25, 69 (1980).
- [30] Honeycombe R. W. K., *The Plastic Deformation of Metals*, Edward Arnold Ltd, London, 74 (1984).
- [31] Embury J. D., Keh A. S. and Fisher R. M., *Trans. AIME*, 236, 1252 (1966).
- [32] Rack H. J. and Cohen M., *Mat. Sci. Eng.*, 6, 320 (1970).
- [33] Ahlborn H. and Sauer D., *Z. Metallkde.*, 59, 658 (1968).
- [34] Hu H., *Textures in Research and Practice*, Grewen J. and Wassermann G. Eds., Springer-Verlag, Berlin FRG, 200 (1969).
- [35] Cairns J. H., Clough J., Dewey M. A. P. and Nutting J., *J. of the Institute of Metals*, 92, 93 (1971).
- [36] Wingrove A. L., *J. Inst. Metals*, 100, 313 (1972).
- [37] Nutting J., *Proc. Eighth Int. Congress on Electron Microscopy*, Canberra, 1, 580 (1974).
- [38] Bourelier F. and Montuelle J., *Mém. Sci. Rev. Mét.*, 65, 65 (1968).
- [39] Hansen N., *Acta Met.*, 25, 863 (1977).
- [40] Thompson A. W., *Acta Met.*, 25, 83 (1977).
- [41] Murr L. E. and Grace F. I., *Trans. AIME*, 245, 2225 (1969).
- [42] Ratuszek W. and Karp J. *Met. Sci.*, 10, 214 (1976).
- [43] Duggan B. J., Hatherly M., Hutchinson W. B. and Wakefield P. T., *Met. Sci.*, 12, 343 (1978).
- [44] Hall E. O., *The Deformation and Ageing of Mild Steel*, 747 (1951).

- [45] Petch N. J., *J. Iron Steel Inst.*, **174**, 25 (1953).
- [46] Spitzig W. A., Pelton A. R. and Laabs F. C., *Acta Met.*, **35**, 2427 (1987).
- [47] Trybus C. L. and Spitzig W. A., *Acta Met.*, **37**, 1971 (1989).
- [48] Funkenbusch P. D. and Courtney T. H., *Acta Met.*, **33**, 913 (1985).
- [49] Funkenbusch P.D., Lee J. K. and Courtney T. H., *Met. Trans.*, **18A**, 1249 (1987).
- [50] Ashby M. F., *Phil. Mag.*, **21**, 399 (1970).
- [51] Kocks U. F., *J. Eng. Mater. and Technol.*, **98**, 76 (1976).
- [52] Krotz P. D., Spitzig W. A. and Laabs F. C., *Mat. Sci. and Eng.*, **A110**, 37 (1989).
- [53] Verhoeven J. D., Chumbley L. S., Laabs F. C. and Spitzig W. A., *Acta Met.*, **39**, 2825 (1991).
- [54] Gil Sevillano J., *Proc. 5th Int. Conf. on The Strength of Metals and Alloys (ICSMA 5)* vol. 2, Haasen P., Gerold V. and Kostorz G. Eds., Pergamon Press, Oxford, 819 (1980).
- [55] Krotz P. D., Fint J. A. Yuen J. L. and Paton N. E., *Mat. Sci. and Eng.*, **A149**, 225 (1992).
- [56] Malzahn Kampe J. C. and Courtney T. H., *Scripta Met.*, **20**, 285 (1986).
- [57] Malzahn Kampe J. C., Courtney T. H. and Leng Y., *Acta Met.*, **37**, 1735 (1989).
- [58] Marinis T.F. and Sekerka R.F., *Prof. Conf. In -situ Composites*, Elsevier Science Publishing Co, **3**, 89 (1979).
- [59] Courtney T. H. and Malzahn Kampe J. C., *Acta Met.*, **37**, 1747 (1989).
- [60] Martin J. W., *Micromechanisms in particle-bardened alloys*, Cambridge University Press, 44 (1980).
- [61] Hirsch P., Howie A., Nicholson R, Pashley D. W. and Whelan M. J., *Electron Microscopy of Thin Crystals*, E. Krieger, 415 (1977).
- [62] Kelly P. M., *Scripta Met.*, **6**, 647 (1972).
- [63] Barrett C. S. and Massalski T. B., *Structure of Metals*, Pergamon Press, (1992).
- [64] Cullity B. D. , *Elements of X-ray Diffraction*, Addison-Wesley, 451 (1978).
- [65] Hall W. H., *J. Inst. Metal.*, **75**, 1127 (1948).
- [66] *Binary Alloy Phase Diagrams*, Ed. Massalski T. B., Murray J. L., Bennett L. H. and Baker H., ASM, Metal Park, Ohio, (1986).
- [67] Hansen M., *Constitution of Binary Alloys*, Second Edition, McGraw-Hill, 580 (1958).
- [68] Verhoeven J. D. and Gibson E. D., *J. Mat. Sci.*, **13**, 1576 (1978).

- [69] Verhoeven J. D., Spitzig W. A., Schmidt F. A., Krotz P. D. and Gibson E. D., *J. Mat. Sci.*, **24**, 1015 (1989).
- [70] Verhoeven J. D., Spitzig W. A., Jones L. L., Downing H. L. et al., *J. Mater. Eng.*, **12**, 127 (1990).
- [71] Morris D. G., Biselli C. and Isler P., 2nd Japan International SAMPE Symposium, Tokyo (1991).
- [72] Pourrahimi S., Nayeb-Hashemi H. and Foner S., *Met. Trans.*, **23A**, 573 (1992).
- [73] Coulomb P., *Les textures dans les matériaux de réseau cubique*, Dunod, Paris, 93 (1972).
- [74] English A. T. and Chin G. Y., *Acta Met.*, **13**, 1013 (1965).
- [75] Hosford W. F., *Trans. Met. Soc. AIME*, **230**, 12 (1964).
- [76] Schoeck G., *Phys. Stat. Sol.*, **8**, 499 (1965).
- [77] Ladell D., Zagofski A. and Pearlman S., *J. Appl. Cryst.*, **8**, 499 (1975).
- [78] Benghalem A., Thèse, Université de Neuchâtel, Institut de Métallurgie, (1994).
- [79] Eastman J.A., Fitzsimmons M.R. and Thompson L.J., *Phil. Mag. B*, **66**, 667 (1992).
- [80] Dieter G. E., *Mechanical Metallurgy*, McGraw-Hill, (1988).
- [81] Gil Sevillano J. and Aernoudt E., *Mat. Sci. and Eng.*, **86**, 35 (1987).
- [82] Ellis T. W., Anderson I. E., Downing H. L. and Verhoeven J. D., *Met. Trans.*, **24A**, 21 (1993).
- [83] Jerman G. A., Anderson I. E. and Verhoeven J.D., *Met. Trans.*, **24A**, 35 (1993).
- [84] Zeik K. L., Koss D. A., Anderson I. E. and Howell P. R., *Met. Trans. A*, **23A**, 2159 (1992).
- [85] Verhoeven J. D., Spitzig W. A., Schmidt F. A. and Trybus C. L., *Mat. & Manufacturing Processes*, **4(2)**, 197 (1989).
- [86] Basinski Z. S. and Basinski S. J., *Proc. of Conference On Strength Of Metals and Alloys*, Helsinki, Pergamon Press, 13 (1988).
- [87] Funkenbusch P. D. and Courtney T. H., *Scripta Met.*, **15**, 1349 (1981).
- [88] Kato M., Monzen R. and Mori T., *Acta Met.*, **26**, 605 (1978).
- [89] Gerold V., *Dislocations in solids*, vol. 4, (edited by FRN Nabarro), North-Holland, Amsterdam, (1979).
- [90] Kocks U. F., *Phil. Mag.*, **13**, 541 (1966).

- [91] Kelly A. and Nicholson R. B., *Strengthening Methods in crystals*, Elsevier, New York, 3 (1971).
- [92] Morris D. G. and Morris M. A., *Proc. ASM Conference On Structural Applications of Mechanical Alloying 26-29 March 1990*, Eds. F.H. Froes and J.J. deBarbadillo, ASM, Metal Park, Ohio, 265.
- [93] Mackenzie J. K., Thesis (Bristol, 1949) Unpublished, see : *Dislocations and Plastic Flow in Crystals*, Cottrell A. H., Clarendon, Oxford, 9 (1959).
- [94] Wilson D.V., *Acta Met.*, 13, 807 (1965).
- [95] Pedersen O.B., Brown L.M. and Stobbs W.M., *Acta Met.*, 29, 1843 (1981).
- [96] Ungar T., Biermann H. and Mughrabi H., *Mat. Sci. and Eng.*, A164, 175 (1993).
- [97] Lincius W. and Sachs G., *Mitt. Dtsch. MaterialPrüfungs*, 16, 38 (1932) see : Dieter G. E., *Mechanical Metallurgy*, McGraw-Hill, 649 (1988).
- [98] Li P. C. M., *Trans. AIME*, 227, 239 (1963).
- [99] Murr L. E., *Met. Trans. A.*, 6A, 505 (1975).
- [100] Landolt-Bornstein, *Diffusion in Solid Metals and Alloys*, Editor H. Mehrer, Springer-Verlag Berlin, III/26, 136 (1990).
- [101] Hardwick D. A., Rhodes C. G. and Fritzmeier L. G., *Met. Trans.*, 24A, 27 (1993).

## **Remerciements**

## **Remerciements**

Le présent travail a été effectué à l'Institut de Métallurgie Structurale de l'Université de Neuchâtel sous la direction de Monsieur le Professeur D. G. Morris. Je tiens à le remercier sincèrement pour la confiance qu'il m'a témoignée et à lui exprimer toute ma reconnaissance pour sa très grande compétence ainsi que pour l'enthousiasme qu'il a toujours porté à ce travail.

J'aimerais aussi remercier particulièrement Madame le Professeur M. A. Morris pour sa participation au jury de thèse ainsi que pour son dynamisme et les nombreux conseils qu'elle m'a apportés tout au long de ce travail.

J'aimerais également remercier vivement Monsieur le Professeur B. Iischer de l'Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne et Monsieur le Professeur J. Gil Sevillano de l'Universidad de Navarra, País Vasco, d'avoir accepté d'examiner ce travail et pour tout l'intérêt qu'ils ont bien voulu y porter.

Je tiens aussi à remercier sincèrement Monsieur le Dr. P. Isler et Monsieur J.- P. Tardent de Swissmetal pour l'intérêt qu'ils ont porté à cette étude et l'importante assistance technique industrielle qu'ils y ont apportée.

Je remercie aussi Osprey Metals (Wales) pour l'intérêt et la persévérance dont ils ont fait part lors de la déposition des billettes.

Je tiens encore à remercier tous mes amis et collègues de l'institut qui par leur aide, leur compétence, leur soutien ainsi que leur bonne humeur m'ont permis de travailler dans d'excellentes conditions.

Il me faut encore relever que cette étude n'a été possible que grâce au soutien financier de la société Swissmetal et de la Commission d'Encouragement à la Recherche Scientifique (CERS).