

**INFLUENCE DE L'HISTOIRE PREALABLE
SUR LA RESISTANCE AU
GROSSISSEMENT DE GRAINS DANS UN
CUIVRE-OF.**

**THESE PRESENTEE A LA FACULTE DES SCIENCES DE
L'UNIVERSITE DE NEUCHATEL POUR L'OBTENTION
DU TITRE DE DOCTEUR ES SCIENCES**

PAR

PATRICK POULY

INGENIEUR PHYSICIEN EPFL

**Travail réalisé avec l'aide du Fonds National Suisse
de la Recherche Scientifique.**

IMPRIMATUR POUR LA THÈSE

Influence de l'histoire préalable sur la
résistance au grossissement de grains dans
un Cu-OF

de Monsieur Patrick Pouly

UNIVERSITÉ DE NEUCHÂTEL

FACULTÉ DES SCIENCES

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

Messieurs W. Form, D.G. Morris, H. Beck,

P. Isler (Reconvilier) et S. Steinemann

Université de Lausanne)

autorise l'impression de la présente thèse.

Neuchâtel, le 18 juin 1991

Le doyen:



Cl. Mermod

Forme réduite de la thèse présentée sous la forme d'une publication en deux parties. Le texte complet de la thèse est déposé chez le Prof. D.G. Morris, directeur de l'Institut de Métallurgie Structurale de l'Université de Neuchâtel.

P. Pouly et W.G. Form.

Etude de l'influence de l'histoire sur la résistance au frossissement de grains dans un Cu-OF (première partie).

Mémoires et Etudes Scientifiques Revue de Métallurgie, (Jan. 1992) 39-48.

P. Pouly et W.G. Form.

Etude de l'influence de l'histoire sur la résistance au frossissement de grains dans un Cu-OF (deuxième partie).

Mémoires et Etudes Scientifiques Revue de Métallurgie, (Fév. 1992) 73-82.

Etude de l'influence de l'histoire sur la résistance au grossissement de grains dans un Cu-OF (première partie)

P. Pouly, W.G. Form

Institut de Métallurgie Structurale, Université de Neuchâtel, Suisse

Bien des chercheurs admettent que la recristallisation précédant obligatoirement le grossissement de grains, efface toute antériorité par l'élimination des dislocations. Des échantillons, indépendamment des traitements mécaniques et thermiques subis préalablement, seraient donc mis sur un pied d'égalité quant à leur comportement durant le grossissement de grains. Or, nos propres recherches à ce sujet, exécutées sur un Cu-OF, montrent que tel n'est pas le cas. Afin de placer nos travaux dans le contexte de ce qui a été fait par d'autres chercheurs et de montrer la complexité d'un sujet qui paraît simple à première vue, nous avons consacré la première partie de cette publication à une analyse critique de la littérature. C'est dans la deuxième partie que nous illustrerons notamment l'effet du taux d'érouissage sur la cinétique du grossissement de grains.

■ INTRODUCTION

Lorsqu'on étudie le réarrangement d'un ensemble atomique à l'état solide, plusieurs questions appellent une réponse. Elles concernent notamment la définition de la force motrice du processus, de son énergie d'activation et du mécanisme qui permet son déroulement.

Le grossissement de grains est probablement le réarrangement atomique d'une structure la plus simple que l'on puisse trouver, en tout cas pour un métal pur ou pour un alliage monophasé. D'abord, il n'entraîne ni changement de composition, ni changement de phase, et l'énergie en excès qui est à réduire est essentiellement celle stockée dans les joints de grains. Ensuite, contrairement à d'autres changements structuraux (tels la précipitation) qui nécessitent en plus la diffusion, la migration des grains est contrôlée exclusivement par la facilité du saut atomique à l'endroit précis du joint.

Le grossissement de grains est un processus cannibale dans le sens qu'il se produit par la disparition de petits grains au profit des plus gros. On pourrait même être tenté de le décrire en forme de la cinétique de la disparition des petits grains.

On peut relever trois caractéristiques typiques pour le grossissement normal de grains :

- il procède dans une structure pratiquement libre de dislocations, donc soit dans une structure coulée, soit dans une structure recristallisée ;
- pour un instant donné, la forme et la taille des grains en évolution varient peu d'un grain à l'autre ;
- la distribution de tailles de grains d'un échantillon normalisée par rapport à la moyenne arithmétique, est la même à différents stades du recuit.

Le contrôle de la taille de grains n'est pas principalement d'intérêt académique mais surtout pratique. En fait, c'est par son contrôle que l'on conditionne souvent une microstructure, et que l'on obtient le comportement désiré.

Le travail que nous présentons ici concerne le grossissement de grains dans un Cu-OF pur à 99,99 %, préalablement étiré. Avant de décrire la partie expérimentale, il nous paraît utile, dans une première partie, de faire état des connaissances accumulées jusqu'ici en sortant, par une analyse de la littérature, les éléments essentiels des théories avancées. Ce qui nous importe dans ce contexte, c'est de relever l'idée de base de chaque théorie, le mécanisme implicite, ainsi que les lacunes éventuelles et la limite d'application. C'est dans la deuxième partie que nous rapporterons spécifiquement nos travaux.

Manuscrit reçu le 23 octobre 1991, bon à publier le 25 novembre 1991.

Influence of prior treatment on the grain growth behaviour in a Cu-OF (first part)

P. Pouly, W.G. Form

Institut de Métallurgie Structurale, Université de Neuchâtel, Suisse

All theories on grain growth kinetics assume that prior material history has no effect on it, since preceding recrystallization would wipe out all traces by the elimination of virtually all dislocations. Or, sundry experiments obtained at our institute some years ago and also by a few other researchers suggest that this is not necessarily so.

The present work has been undertaken in order to shed some light on as to whether and how prior treatments may influence grain growth behaviour.

In view of the close relation of this particular question to kinetics, we felt a need to first analyse thoroughly the literature on this subject so as to be in a better position to integrate our findings into existing knowledge. The first part of this publication has therefore been devoted entirely to critically assess the published literature on grain growth kinetics. Notably, pertinent information on the nature of driving force, activation energy and mechanism have been sought.

Whereas a number of models specify driving force in terms of reduction in free interfacial energy or decrease in curvature, less meaningful interpretation is offered, when it comes to activation energy or mechanism. Obviously, our comprehension on grain growth suffers from the same incompleteness as does our understanding of most processes in the condensed state: whereas many of the advanced models may reasonably well explain certain detail aspects of the process, they are totally unable to account for others or even lead to contradictory conclusions. Furthermore, none is even nearly capable of predicting quantitative results.

Our study was carried out on cold-drawn Cu-OF bars of 99.99 % purity. Our interest was focussed primarily on the influence which prior cold-work may exert on the behaviour of grain growth. As grain diameter we

selected $\overline{D}_{3/2} = \frac{\sum_1^N D_i^3}{\sum_1^N D_i^2}$. This diameter is inversely proportional to the grain boundary density per unit volume, i.e. it is inversely proportional to the density of interfacial free energy, whose variation can thus be directly ascertained by measuring $\overline{D}_{3/2}$.

When using the general equation for the kinetics of grain growth

$$D^n - D_0^n = kT$$

where n is assigned a value between 2 and 3 by most researchers, we found that in fact an excellent correlation between theory and experiment could be found for any value between 1 and 10 for samples deformed 20 or 60 % and annealed at 700 °C for times extending up to 168 h. Our results do therefore not permit to favor anyone of the hitherto advanced theories over another one. We also found that topological considerations which are related primarily to local equilibrium at grain boundary triple points are not appropriate to understand the effect of the amount of prior cold work on grain growth, since the results obtained on the number of nearest neighbours varies only slightly even during appreciable grain coarsening.

The fact that the kinetics curve for 20 % deformed bars intersect with that of 60 % deformed bars shows that equal average grain size (and equal grain size distribution) does not mean equal grain growth kinetics. Rather, one must conclude that during grain growth different mechanisms are involved, being most likely characterized by different textures and, therefore, different interface mobilities.

What has been believed at first to be an easy subject — grain growth being the simplest and most typical interface controlled structural rearrangement involving no diffusion at all — turned on a to be a very difficult one to handle quantitatively. This is mostly due to the extreme sensitivity of grain boundary motion to particle intersection or other obstacles because of the very small driving force involved, making reproducibility of results difficult.

■ LES PRINCIPALES THEORIES SUR LE GROSSISSEMENT DE GRAINS

Soulignons d'abord que, dans notre cas, « grossissement de grains » signifie l'agrandissement de la taille moyenne de grains recristallisés, contenant une densité globale de dislocations très faible. Ensuite, il faut insister sur le terme de la « taille moyenne » car — comme relevé ci-dessus — pendant que certains grains croissent, d'autres doivent obligatoirement se rétrécir, puisque le volume de l'échantillon sous étude reste constant. Les théories du grossissement de grains se réfèrent toutes à la variation de la taille moyenne, donc une taille fictive.

Il est d'usage de séparer ces théories en deux classes, à savoir celles dont la force motrice est la réduction de l'énergie libre interfaciale et celles dont la force motrice est la réduction de la courbure des joints.

Néanmoins, nous considérons cette séparation comme quelque peu artificielle étant donné qu'une diminution de la courbure durant le grossissement résulte toujours en une réduction de l'énergie libre interfaciale.

De plus, tandis que le grain en énergie libre interfaciale est un aspect thermodynamique, la courbure, elle, semble être associée à la cinétique du mouvement des joints ; elle paraît même être un élément nécessaire pour activer le déplacement des joints et pour contourner des obstacles tels que la connectivité des grains englobant des nœuds mobiles et moins mobiles ou même immobiles, ainsi que tout phénomène d'ancrage.

Nous préférons classer les théories de grossissement de gains selon les critères suivants (tabl. I) :

- considérations du mouvement d'un segment d'une sphère représentative pour tout grain,
- considérations topologiques impliquant essentiellement le nombre de voisins d'un grain,
- considération d'un champ moyen, représentant l'effet de l'évolution d'un grain isolé plongé dans un environnement représentant l'ensemble des grains,
- considération du mouvement des joints comme un effet stochastique.

Dans un premier temps, nous négligeons tout effet d'ancrage des joints.

Le mouvement d'un segment de joint a été traité par Burke et Turnbull (1). En admettant que le diamètre D du grain moyen est proportionnel au rayon de courbure du joint, et que l'énergie libre interfaciale γ est indépendante de la taille du grain et de l'orientation du joint, ils obtiennent un loi de croissance du type :

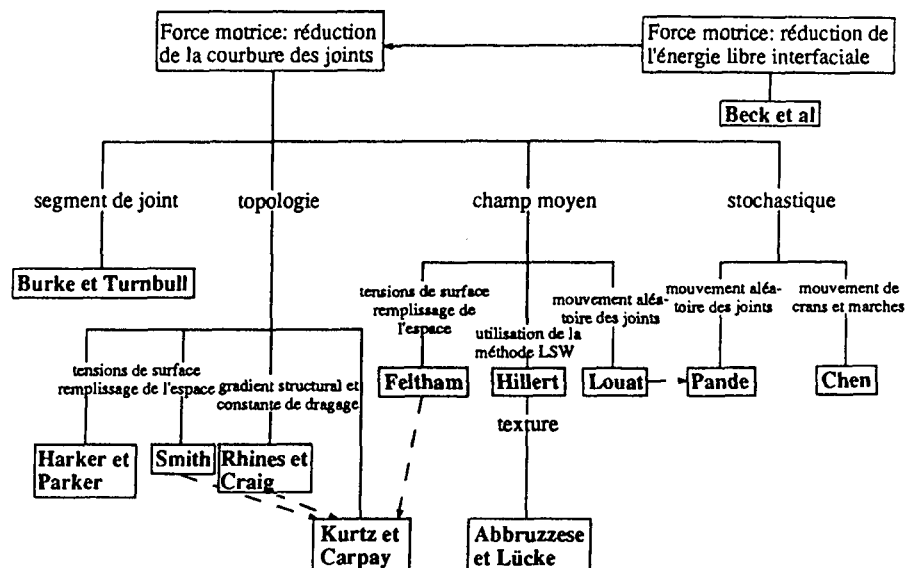
$$D^n - D_0^n = Kt \quad [1]$$

où D_0 représente la taille du grain au temps $t = 0$, K est une constante l'exposant n vaut 2.

Il est intéressant de noter que Beck et al (2), en invoquant le critère de la réduction de l'aire des joints de grains par unité de volume, développent une équation de croissance qui est pratiquement identique à l'équation [1]. Ceci confirme l'équivalence de la courbure et de l'énergie libre interfaciale quant à la définition de la force motrice comme suggéré ci-dessus, mais seule-

TABLEAU I. — Classification des théories sur le grossissement de grains selon les principes de base.

TABLE I. — Classification of theories of grain growth according to the basic principles involved.



ment sous l'hypothèse que le rayon de courbure soit proportionnel au diamètre du grain moyen. Ce point de vue est d'ailleurs général dans pratiquement toutes les théories et l'équation [1] peut être considérée comme la représentation générale de la loi de cinétique du grossissement de grains.

Tournons maintenant nos considérations vers les aspects topologiques. Il s'agit là des aspects concernant les propriétés microstructurales qui sont invariantes sous déformation continue. Comme exemple, mentionnons le nombre de grains par unité de volume, le nombre de voisins par grains ou bien la connectivité.

Dans le cadre qui nous concerne, c'est avant tout le nombre de voisins d'un grain qui nous intéresse, sachant bien entendu que le nombre de grains par unité de volume diminuera forcément avec la progression du grossissement de grains. Pour un nombre fixe de grains, la minimisation de l'énergie libre d'interface consiste à trouver cette configuration qui conduit à la longueur minimale des arêtes des joints de grains, dans l'hypothèse où tous les joints ont la même énergie libre interfaciale. C'est là que des considérations topologiques interviennent. Dans l'espace bidimensionnel, c'est le pavage hexagonal qui correspond à cette configuration, avec les angles entre les joints s'égalisant à 120° chacun.

Une des premières théories du grossissement de grains basée sur la topologie a été développée par Harker et Parker (3). Ils sont partis du fait que, localement, l'énergie libre interfaciale d'un joint peut être réduite par des mouvements atomiques à travers des distances peu importantes. Leur concept est alors le suivant : si un joint est courbe, les atomes du côté convexe du joint (ceux qui sont du côté du centre de courbure) ont en moyenne moins de proches voisins que ceux de l'autre côté du joint (fig. 1). Par conséquent, les atomes du côté convexe vont migrer plus facilement que ceux du côté concave, de sorte que le joint va tendre à devenir plan. Si ce dernier cas est atteint, le transfert d'atomes à travers le joint se fera à la même fréquence dans les deux sens et il n'y aura plus de mouvement du joint. A ce critère de la réduction de la courbure afin d'abaisser l'énergie interfaciale, se greffe celui qui minimise cette énergie en remplissant des conditions angulaires.

Comme nous l'avons déjà mentionné, dans un espace bidimensionnel, ce minimum est atteint lorsque trois joints se rencontrent à un nœud s'inclinant de 120° l'un par rapport à l'autre. Dans l'espace tridimensionnel, par contre, il n'existe pas de forme de grains standard qui soit telle que la structure granulaire ne grossisse pas. En effet, une troisième condition qui a d'ailleurs été omise par Harker et Parker, minimisant l'énergie interfaciale locale, est que les arêtes doivent se rencontrer aux nœuds des joints par groupe de quatre sous des angles de 109° 28' (Smith 4). Mais, dans ces conditions, il s'avère impossible d'avoir une structure polyédrique topologiquement stable vis-à-vis du grossissement de grains de sorte qu'on aura toujours grossissement, abstraction faite des obstacles qui ancrent le joint.

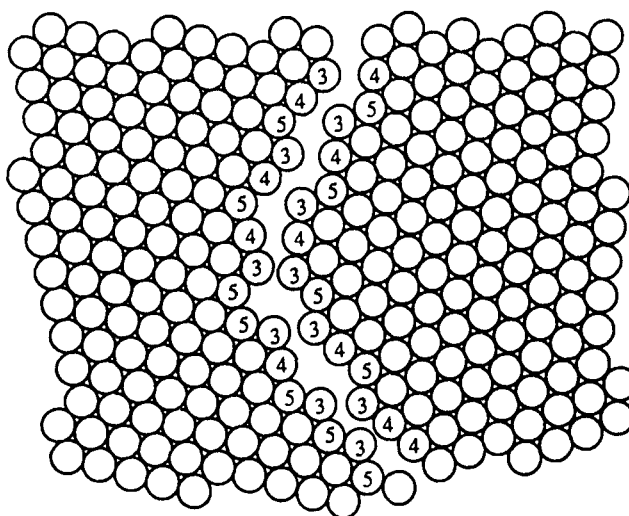


Figure 1. — Représentation schématique de l'encadrement des atomes dans le cas d'un joint courbe. Du côté convexe (à droite), on a en moyenne 3.93 plus proches voisins pour les atomes composant le joint et du côté concave, on en a 4.06.

Figure 1. — Model of curved grain boundary. On the convex side (right side), there are on the average 3.93 nearest neighbours for the atoms on the boundary, whereas there are 4.06 nearest neighbours on the concave side.

La forme polyédrique la plus proche du pavage régulier en trois dimensions correspond au tétracaïdécaèdre de Kelvin qui a 24 nœuds, 36 arêtes et 14 faces. Mais, pour remplir l'espace, les faces de ces polyèdres doivent cependant être légèrement incurvées ; ainsi le grossissement ne peut également pas être évité dans ce cas.

Les points de vue topologiques qui ont été évoqués jusqu'ici ne fournissent pas de loi de cinétique de croissance. Il est néanmoins possible de développer une telle loi en tenant compte de la topologie. En partant de l'argument que le volume d'un grain en voie de disparition est partagé entre tous les grains et que les plus gros grains doivent gagner proportionnellement plus de volume que les petits, afin de garder une distribution de tailles invariante, Rhines et Craig (5) introduisent deux nouveaux concepts, à savoir une constante de dragage, θ , et un gradient structural, σ . La constante de dragage θ est définie comme le nombre de grains perdus lorsque les grains en mouvement ont balayé l'équivalent d'un volume unitaire. Doherty (6) a modifié θ en θ^* , en définissant cette dernière constante comme le nombre de grains disparus lorsque les grains ont balayé un volume égal au volume moyen d'un grain. Bien que les arguments de chacun ne permettent pas de faire un choix définitif, les arguments en faveur de θ^* s'avèrent plus nombreux.

En ce qui concerne le gradient structural, σ , il est défini par Rhines et Craig comme étant la courbure par unité de volume M_v .

$$M_v = \int_{s_v} \frac{1}{2} \left(\frac{1}{r_1} + \frac{1}{r_2} \right) \quad [2]$$

où S_v correspond à l'aire des interfaces par unité de volume et où r_1 et r_2 sont les rayons de courbure principaux. Les auteurs ont trouvé expérimentalement que le produit $M_v S_v / N_v = \sigma$ était approximativement constant, N_v étant le nombre de grains par unité de volume. Cette constance paraît nécessaire pour que la distribution de taille de grains reste invariante. En tant que gradient structural, σ devrait refléter la tendance au grossissement de grains, mais la signification physique de σ n'est pas évidente ainsi que le relève Doherty (6).

A l'aide de ces deux concepts, Rhines et Craig développent alors une loi de croissance du type

$$\bar{V} = kt + \bar{V}_0 \quad [3]$$

où \bar{V} est le volume moyen des grains.

On obtient donc que le diamètre moyen \bar{D} croît en $t^{1/3}$. L'exposant dans l'équation cinétique de base [1] devient alors $n = 3$.

Une toute autre approche a été choisie par Feltham (7). Il traite le grossissement de grains comme le changement de taille d'un grain isolé plongé dans un environnement qui représente tous les grains, en faisant abstraction des conditions topologiques. C'est pour cette raison qu'on parle de l'approche de Feltham comme d'une théorie du champ moyen. La nature statistique du problème est prise en considération par l'introduction d'une distribution de taille f . Relevons dans ce contexte que Feltham constate expérimentalement que ces distributions sont toujours du type log-normal. En tenant compte des conditions imposées par la minimisation de l'énergie libre interfaciale et par le remplissage de l'espace, Feltham obtient une loi de croissance de type parabolique avec un terme exponentiel contenant l'énergie d'activation pour l'autodiffusion dans les joints :

$$\bar{D}^2 - \bar{D}_0^2 = K_0 \exp(-H/KT) \quad [4]$$

Dans son analyse, Feltham considère l'énergie libre interfaciale γ comme constante, estimant que la probabilité d'avoir des joints de coïncidence est très petite.

Kurtz et Carpay ont tenté de regrouper les approches de Smith, Rhines et Craig et Feltham (8). La principale innovation qu'ils apportent réside dans la répartition des grains en classes topologiques, chacune de ces classes ayant une distribution de tailles log-normale. Pour ce faire, ils établissent 7 postulats sur certaines caractéristiques de ces classes topologiques, postulats dont la justification n'apparaît pas toujours claire. La seule contrainte est celle liée au remplissage de l'espace.

Sur la base de ce modèle, la valeur moyenne de la taille de grains dans n'importe quelle classe topologique croît, les plus gros grains croissant plus rapidement. Cela reste valable même dans la plus petite classe topologique en trois dimensions, où tous les grains sont amenés à disparaître. Ceci s'explique par le fait que lors

du grossissement il y a transfert de grains d'une classe à l'autre et que les grains qui perdent une face passent dans la classe immédiatement inférieure, en ayant généralement une taille supérieure à la valeur moyenne de la classe dans laquelle ils entrent.

La loi de croissance pour la valeur moyenne de l'ensemble de la distribution qu'obtiennent Kurtz et Carpay s'écrit sous une forme identique à celle de l'équation [1], avec $n = 2$: la taille de grain moyenne de la distribution totale, de même que la taille moyenne de chaque classe topologique, suit donc une loi de croissance parabolique.

Hillert a fait un raisonnement analogue à celui de Feltham, mais dans le sens inverse, en partant d'une vitesse de migration et en déterminant la distribution de taille (9). Il part d'une expression de la vitesse de migration du joint qui est positive pour de grandes valeurs de D et négative pour de petites valeurs de D . Sur la base de considérations géométriques simples, il obtient alors

$$\frac{dD}{dt} = 4 \alpha \mu \gamma \left(\frac{1}{D_{cr}} - \frac{1}{D} \right) \quad [5]$$

α étant une constante qui vaut 0,5 dans le cas bi-dimensionnel et 1 dans le cas tridimensionnel. D_{cr} est une taille de grain critique qui varie avec le temps, définie telle que si $D > D_{cr}$ le grain va croître et si $D < D_{cr}$ le grain rétrécit. La mobilité du joint μ et l'énergie d'interface γ sont supposées indépendantes de D . En appliquant à cette équation le raisonnement de Lifshitz et Slyozov (10) pour la coalescence des particules, Hillert obtient aussi une loi de croissance parabolique et une fonction de distribution qui se distingue essentiellement de la distribution log-normale par un pic plus étroit.

Abbruzzese et Lücke (11), en se basant sur le modèle de Hillert, considèrent l'énergie libre interfaciale et la mobilité de joints comme étant dépendantes du degré de désorientation entre les grains voisins, pour tenir compte de la texture. Ainsi, ils obtiennent une taille critique pour chaque désorientation. En effet, le grossissement de grains conduit généralement à des changements importants de texture, et la dispersion des distributions de tailles peut varier fortement selon les orientations. Enfin, l'analyse prédit certaines particularités de la cinétique de croissance qui rendent cette cinétique impossible à décrire, même grossièrement, par une loi parabolique; L'approche d'Abbruzzese et Lücke souligne donc l'importance que la variation d'énergie libre interfaciale et la mobilité des joints doivent avoir sur la vitesse du grossissement de grains.

Et si le grossissement de grains était un processus aléatoire ? C'est justement cette supposition que Louat a admise pour traiter le mouvement du joint lors d'une croissance (12). En considérant qu'un changement dans la population de grains doit intervenir par un flux des régions avoisinantes de la distribution des tailles, Louat

obtient une équation pour la vitesse de variation de la distribution f par le développement de $f(x, t)$, sous forme d'une série de Taylor

$$\frac{\partial f}{\partial t} = B\delta D^2 \frac{\partial^2 f}{\partial D^2} \quad [6]$$

Elle a la même forme qu'une équation de diffusion, dans laquelle $B\delta D^2$ correspond à un « coefficient de diffusion » D^* . Il faut bien préciser qu'en parlant ici de diffusion, il ne s'agit pas de la diffusion d'atomes dans une matrice, mais de la diffusion de grains dans notre espace taille-fréquence. Avec les conditions aux limites $f(0, t) = (\infty, t) = 0$ (aucun grain de taille nulle ou infinie, à n'importe quel instant), Louat obtient une solution sous forme d'une distribution de Rayleigh. Si on pose que D^* est indépendant du temps, on peut calculer l'évolution temporelle de la population totale, évolution qui, selon Louat, correspond à une loi de croissance parabolique. Il affirme néanmoins que des valeurs de $n > 2$ dans l'équation [1] sont dues à la dépendance temporelle du coefficient de diffusion. La difficulté avec la théorie de Louat réside justement dans cette comparaison du grossissement de grain avec un phénomène diffusif qui ne repose sur aucune base physique. Cependant, depuis quelques années, le point de vue stochastique du mouvement des joints fait des adeptes. Par exemple, Chen (13) a développé une théorie basée sur l'idée que la migration des crans et des marches provoque un mouvement brownien des joints de grains qui aurait pour résultat le grossissement de grains. La cinétique de croissance serait ainsi liée à celle des crans et des marches. En fonction des hypothèses de départ, Chen obtient une valeur pour n dans l'équation [1] variant entre 8/3 et 3.

Pande (14) avance également une théorie stochastique, au contraire des théories du champ moyen dans laquelle il tient compte du rôle joué par la topologie. Il se rallie à l'opinion de Smith (4) selon qui le grossissement de

grains résulte de l'interaction entre les conditions géométriques liées à l'équilibre des tensions de surfaces et celles, topologiques, imposées par le remplissage du volume.

En partant ainsi d'une équation déterministe de la vitesse de croissance, il y ajoute un terme stochastique sous la forme d'un bruit. Constatant par l'expérience que la vitesse de migration augmente quand les grains diminuent et en utilisant des arguments similaires à ceux développés par Hillert, Pande obtient une fonction de distribution à laquelle correspond une loi de croissance parabolique. Soulignons finalement que cette théorie peut être vue comme une généralisation de la théorie de Louat.

■ EFFETS S'OPPOSANT AU GROSSISSEMENT DE GRAINS

Jusqu'ici nous avons volontairement négligé les effets d'ancrage des joints et considéré seulement les théories qui supposent implicitement que la vitesse du mouvement des joints ne serait déterminée que par leur mobilité intrinsèque.

Or, une telle supposition est loin de la réalité dans la plupart des cas. Ceci est déjà démontré par le fait que les effets d'ancrage des joints sont presque toujours invoqués pour justifier les différences, souvent très grandes, entre théorie de base et expérience. La figure 2 illustre bien ce fait : Abbruzzese et Lücke (11) justifient la première variation de la cinétique de croissance ($n = 6,667$) par un effet de freinage dû à la texture et la seconde variation ($n = \infty$) par un blocage dû à la taille des échantillons.

L'importance de ces effets est aisément comprise lorsqu'on se rappelle que la pression motrice pour le grossissement de grains est de l'ordre de 10^2 à 10^5 Pa, tandis que pour la recristallisation elle est de l'ordre de

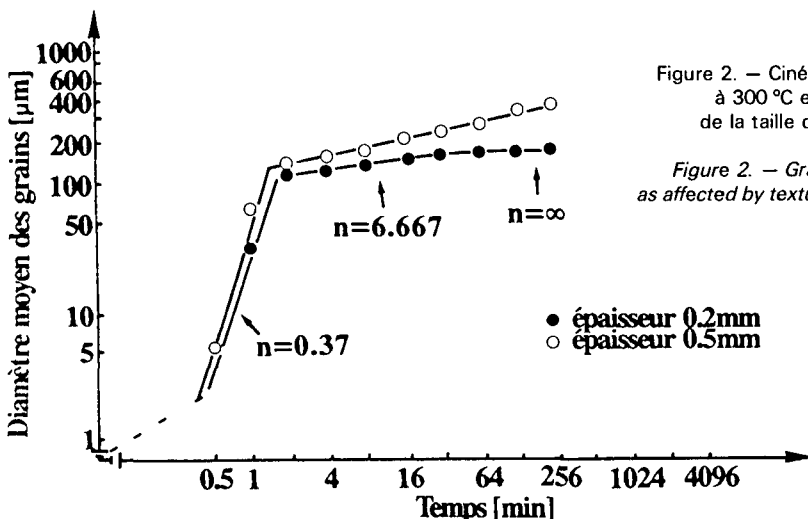


Figure 2. — Cinétique de croissance dans un laiton 70/30 recuit à 300 °C et subissant une influence de la texture et de la taille des échantillons (Abbruzzese et Lücke (11)).

Figure 2. — Grain growth kinetics of a 70/30 brass at 300 °C as affected by texture and specimen size (Abbruzzese and Lücke (11)).

10^7 à 10^8 Pa. Donc tout obstacle, aussi petit soit-il, peut avoir un effet démesuré sur le mouvement d'un joint lors du grossissement de grains. Les deux causes les plus importantes d'un ralentissement, voire d'un arrêt d'un joint, sont d'une part l'ancrage par des particules de seconde phase et d'autre part le freinage dû aux atomes en solution.

Zener (15) a été le premier à quantifier l'interaction entre des particules et les joints en déterminant la force d'ancrage maximale comme :

$$F = \pi r \gamma \quad [7]$$

dans le cas de particules sphériques de rayon r . Le grossissement de grains s'arrête dès que la taille de grain atteint le diamètre D_z donné par l'expression

$$D_z = \frac{4}{3} \frac{r}{f_v} \quad [8]$$

où f_v représente la fraction volumique de seconde phase. Cette relation est obtenue sur la base d'un modèle très simple, faisant en plus la supposition que le rayon de courbure des joints de grains est proportionnel à la taille de grain. Des modèles plus sophistiqués ont été développés par la suite (16, 17) mais n'ont que peu modifié la validité du critère de Zener qui s'avère adéquat comme première approximation.

Dans ce contexte, on peut aussi mentionner l'étude de Grey et Higgins (18) qui ont établi l'existence d'une taille de grain limite lors du grossissement de grains, taille qui varie en fonction de la température du recuit. Le terme de freinage qui est implicite, dépend de la concentration en impuretés.

Lorsqu'on étudie le freinage dû aux atomes en solution, on doit faire appel à une énergie d'interaction entre joints et atomes de soluté concernés, ainsi qu'à un coefficient de diffusion de ces atomes d'impureté dans la phase mère en question. Le modèle le plus connu à cet effet est celui de Cahn (19). Il détermine d'abord le profil de concentration des impuretés de part et d'autre d'un joint, profil qui s'avère asymétrique dans le cas où le joint est mobile. C'est de cette asymétrie que vient la force de freinage exercée par les impuretés. De par la complexité du problème, Cahn distingue deux cas. Pour de faibles vitesses des joints (cas du grossissement de grains), la force de freinage augmente avec la vitesse, et pour des vitesses élevées la force de freinage diminue à peu près inversement proportionnellement à la vitesse. De plus, Cahn montre dans ce dernier cas que les impuretés ayant une diffusivité élevée ont un effet d'ancrage plus grand.

Ce modèle pour expliquer cet effet d'ancrage par les atomes en solution tel qu'il a été développé par Cahn n'est valable que pour de petites concentrations d'impuretés (quelques ppm). Aussi, comme l'ont montré Aust et Rutter (20), cet effet se manifeste peu sur les joints de coïncidence.

Les deux théories mentionnées, c'est-à-dire celle de Zener et celle de Cahn, décrivent les deux effets s'opposant au grossissement de grains les plus importants et ont fait l'objet d'études poussées. Mais il y a encore d'autres effets dont nous ne relevons ici que les deux plus connus, à savoir l'effet de la surface libre (21, 22) et celui de la texture (23). En ce qui concerne la surface libre, son effet peut être négligé si la taille de l'échantillon est un large multiple de la taille de grain. Quant à la texture, certaines expériences ont montré que le grossissement de grains pouvait cesser à des tailles étonnamment petites dans des matériaux ayant une texture prononcée. On admet que cet effet, en pareil cas, est dû à la densité très élevée de joints de coïncidence, caractérisés par une énergie libre interfaciale très faible et, par conséquent, par une force motrice très basse.

■ REFLEXION D'ORDRE GENERAL

Un des problèmes fondamentaux concernant l'étude du grossissement de grains réside dans la détermination de la cause du phénomène. S'il est généralement admis que c'est la tendance à diminuer la courbure des joints de grains qui provoque le grossissement de gains, ce point de vue est néanmoins loin de faire l'unanimité. Par exemple, Czocharlski (24) a suggéré que c'est l'énergie de déformation résiduelle qui serait à la base du grossissement de grains. Burke a cependant démontré par une série d'expériences que cette déduction était fautive (25). La troisième idée, qui a plusieurs adeptes quant à la cause du grossissement de grains, est que la force motrice est fournie par l'aire des joints de grains par unité de volume qui est proportionnelle à la densité d'énergie interfaciale. Il est intéressant de constater que Beck et al (2), qui partent de ce point de vue, développent une équation de croissance pratiquement identique à celle développée par Burke (25) qui prend comme critère le rayon de courbure des joints pour expliquer la croissance. Plus précisément, Beck part du fait que l'aire des joints par unité de volume est inversement proportionnelle à la taille de grain moyenne et, en admettant que la vitesse de croissance instantanée est proportionnelle à l'énergie interfaciale instantanée, il obtient une loi de croissance parabolique. Comme indiqué tout au début de notre analyse, une réduction de la courbure des joints correspond à une réduction de l'aire interfaciale. Par conséquent, la réduction de la courbure des joints de grains, liée aux conditions de rencontre des joints, contribue aussi à la force motrice. Mais, si l'on admet que la réduction de la courbure des joints est la seule force motrice, le pavage hexagonal est stable (espace bi-dimensionnel). Cela sera valable, que la taille des grains hexagonaux soit de $1 \mu\text{m}$ ou de 1mm , bien que le rapport des densités d'énergie entre ces deux cas soit de 10^6 .

Ce dernier résultat souligne que stabilité ou métastabilité ne veut pas dire état énergétique minimal, mais énergie d'activation insuffisante pour continuer vers cet état. Comme nous l'avons également relevé au début,

il paraît que la courbure du joint aide à activer son mouvement et que son rôle ne consiste donc pas seulement à contribuer à la réduction de l'énergie interfaciale libre lorsqu'elle diminue.

On peut par ailleurs se demander s'il est vraiment opportun de se référer aux modèles bi-dimensionnels pour comprendre la nature de la force motrice à la base de la croissance. Car, tandis qu'il est possible de trouver une configuration d'équilibre en deux dimensions, il n'y a pas d'état d'équilibre en trois dimensions, et le grossissement de grains ne va pas s'arrêter avant que les forces de freinage et d'ancrage compensent la force motrice, ceci représentant la condition nécessaire pour que la croissance s'arrête.

Ces réflexions nous amènent à conclure que la force motrice pour le grossissement de grains est la réduction de la densité d'énergie libre interfaciale dans le matériau. La réduction de la courbure des joints de grains étant synonyme de diminution de l'aire interfaciale y contribue mais de façon moins prononcée. La réduction de la courbure nous apparaît surtout liée à la cinétique de la migration du joint (mobilité et énergie d'activation), la courbure et le non-respect des conditions topologiques d'équilibre (angles entre faces de 120° et angles aux nœuds de 109°28' dans le cas de joints de même énergie) étant nécessaires au mouvement des joints de grains et aussi à la croissance.

Si nous avons parlé jusque là de joints présentant tous la même énergie libre interfaciale, nombreux sont ceux qui, à l'image de Gjostein et Rhines (26), ont montré que l'énergie des joints de grains dépend de l'orientation mutuelle des réseaux cristallins de part et d'autre du joint, ainsi que de son orientation propre. Rappelons que les conditions d'équilibre au point de rencontre des joints en deux dimensions sont données par :

$$\frac{\gamma_1}{\sin \alpha_1} = \frac{\gamma_2}{\sin \alpha_2} = \frac{\gamma_3}{\sin \alpha_3} \quad [9]$$

où γ_1 , γ_2 et γ_3 représentent les énergies libres des joints de grains qui se rencontrent à un point triple et α_1 , α_2 et α_3 les angles diédraux correspondants. Dans ces conditions, il est clair que les angles d'équilibre aux points de rencontre vont différer de ceux calculés sur la base de joints de grains ayant tous la même énergie libre et le pavage hexagonal régulier ne représente plus la configuration stable. Il est même possible d'imaginer obtenir une structure d'équilibre tridimensionnelle, puisque les angles de rencontre des joints sont différents sur chaque arête et chaque nœud. L'anisotropie de l'énergie intergranulaire peut également provoquer une augmentation de l'aire intergranulaire, si des joints à faible énergie peuvent croître au profit de joints à l'énergie élevée. Dans un tel cas, on n'aura pas forcément déplacement des joints vers leur centre de courbure, et la loi de croissance de Burke et Turnbull (1), développée pour un petit segment de joint seulement, ne sera alors pas du tout valable. Il nous paraît donc inapproprié d'envisager le grossissement de grains au niveau d'un petit segment de joint uniquement ; il faut

en tout cas tenir compte de l'environnement du grain considéré.

Examinons maintenant la validité de certaines suppositions utilisées dans les théories que nous avons décrites.

Commençons avec celle du rapport que plusieurs auteurs admettent entre la taille du grain et le rayon de courbure du joint. Les théories partent souvent de l'hypothèse que le rayon de courbure r_c est proportionnel au diamètre du grain moyen D ; on assimile donc le grain à une sphère de volume équivalent. Mais cela signifie entre autres que le rayon de courbure est invariant le long d'un joint et, en fait, est le même pour tous les joints du grain, ce qui manifestement ne correspond pas à la réalité. D'autre part, dans le cas particulier de la structure hexagonale régulière, on aura croissance pour n'importe quelle taille de grain puisque dans l'espace bi-dimensionnel le grain hexagonal sera alors assimilé à un disque de diamètre équivalent. Et pourtant la croissance d'un tel grain est démentie par les lois topologiques. Ce n'est qu'en ignorant les contraintes imposées par la topologie qu'on peut remplacer un grain quelconque par une sphère de volume équivalent lorsqu'on étudie son évolution durant le grossissement de grains. Cependant, c'est justement dans les théories où la force motrice est liée au rayon de courbure du joint (5) que la topologie peut être un critère important, et son aspect ne peut pas être négligé.

Un autre problème commun à plusieurs théories vient de la définition et de l'utilisation de certaines quantités considérées comme importantes mais qui ne reposent sur aucune base physique. Nous relevons en particulier le gradient structural défini par Rhines et Craig (5). La signification physique du produit d'une courbure moyenne par grain avec l'aire de joints moyenne par unité de volume n'apparaît pas évidente. De même, la définition d'un coefficient de diffusion dans les théories de Louat et Pande ne semble pas claire. Rappelons qu'il ne s'agit pas de la diffusion au niveau atomique, mais d'une diffusion dans un espace taille de grain-fréquence où les grains diffuseraient sous l'effet d'un « gradient de concentration » df/dD . A nouveau, cette définition, bien qu'arrangeante, n'a pas de base physique.

Finalement, on peut s'interroger sur la validité générale de la supposition d'une constance de la mobilité et de l'énergie interfaciale, admise par pratiquement tous les auteurs. En effet, Abbruzzese et Lücke (11), en partant du point de vue de Hillert (9) et en y incorporant l'effet de la texture et ainsi la dépendance orientationnelle de ces deux paramètres mentionnés, ont obtenu des résultats très différents de ceux de Hillert.

En résumé, on peut dire que toutes les théories principales sur le grossissement de grains développent au moins une idée intéressante, mais qu'aucune ne s'avère vraiment satisfaisante pour clairement interpréter les résultats obtenus et encore moins pour prédire le mouvement des joints implicite dans le grossissement de grains.

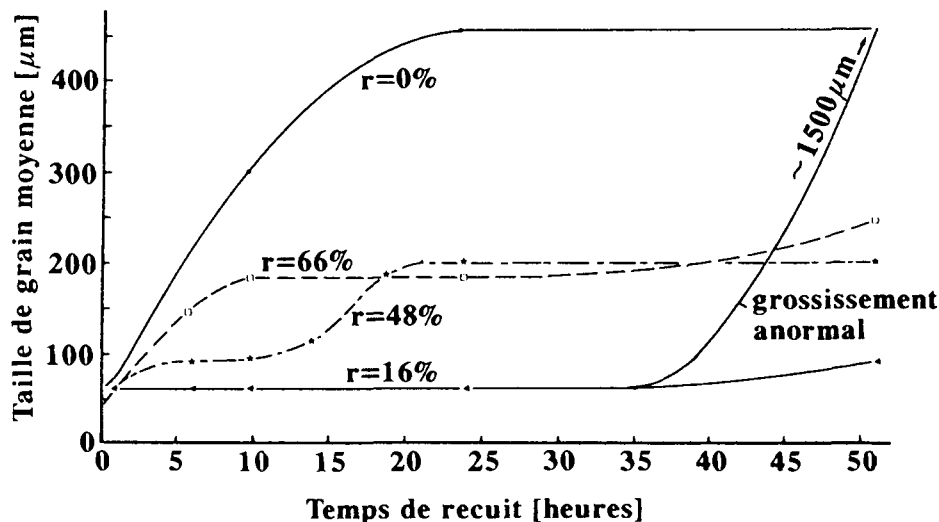


Figure 3. — Influence du taux de déformation sur le grossissement de grains d'un Cu-OF à 720 °C (d'après Comte (30)).

Figure 3. — Effect of amount of deformation on grain growth of a Cu-OF at 720 °C (Comte (30)).

Ceci souligne la complexité réelle du phénomène du grossissement qui, à première vue, paraît être un des plus simples qui existent dans le domaine de la modification structurale.

■ EFFET DE L'HISTOIRE PREALABLE SUR LE GROSSISSEMENT DE GRAINS

Le grossissement de grain que nous avons analysé ici suit le recuit de recristallisation. On admet en général que la structure granulaire est pratiquement vide de dislocations, ou bien même que tout ce qui se passait avant la recristallisation était tout simplement effacé par celle-ci. Avant d'être si affirmatif, il vaut néanmoins la peine d'examiner ce qui est connu quant à l'effet de l'histoire préalable sur le grossissement de grains.

En parcourant la littérature on constate que les études sur les effets de l'histoire sont peu nombreuses. Relevons cependant celle de Rhines et Patterson (27) qui ont vérifié dans l'aluminium que le taux de déformation à froid permettait de contrôler l'écart-type de la distribution log-normale des tailles de grains. D'après leurs résultats, le grossissement de grains est plus rapide pour une distribution de taille étendue. Ceci confirme les résultats de Walker (28) obtenus préalablement sur un laiton 70-30 dans ce sens que pour une taille de grain quelconque, la vitesse de croissance est toujours plus grande après une faible qu'après une forte déformation. Rhines et Patterson justifient cela par l'argument suivant : il s'avère expérimentalement que pour de faibles déformations la distribution des tailles, ainsi que du nombre de côtés, est plus étendue que pour de grandes déformations. Vu que le grossissement de grains se produit par la disparition des faces triangulaires dont la

proportion est plus élevée pour de petites déformations, la vitesse de croissance dans ce cas sera plus élevée que pour de fortes déformations. Ces résultats montrent que la vitesse de croissance dépend fortement de la fraction de faces de grains possédant 3, voire 2 côtés, mettant ainsi en évidence l'importance du facteur topologique par l'intermédiaire duquel la vitesse de croissance se trouve liée au taux de déformation préalable.

Dans une étude menée sur l'étain (pureté de 99,9999 %), Laforte et Galibois (29) ont examiné l'effet du pourcentage et du mode de déformation. Dans leur expérience, ils ont déformé deux groupes d'échantillons, un par laminage et l'autre par martelage, à différents taux de déformation. Ils constatent que le mode de déformation influence fortement la taille des grains recristallisés, mais pas celle des grains grossis après 100 h à 220 °C. De plus, cette taille ne dépend pas du taux d'écroissage. Ces derniers résultats paraissent en contradiction avec ceux de Comte (30) qui a obtenu différentes courbes de croissance dans le cas d'un Cu-OF (99,99 %) lors d'un recuit isotherme à 720 °C pour différents taux de déformation (fig. 3). Ces résultats n'ont malheureusement pas été approfondis et la cause de la forte influence des taux d'écroissage préalable observée lors de son étude n'a pas été étudiée. Néanmoins, les résultats de Comte sont à l'origine de notre travail que nous allons présenter dans la deuxième partie de cette publication.

bibliographie

- 1 BURKE (J.E.), TURNBULL (D.). — *Prog. Metal Phys.*, 3 (1952), 220.
- 2 BECK (P.A.), KREMER (J.C.), DEMER (L.J.), HOLZWORTH (M.L.). — *Trans. AIME*, 175 (1948), 372.
- 3 HARKER (D.), PARKER (E.R.). — *Trans. AIME*, 34 (1945), 156.
- 4 SMITH (C.S.). — « Metal Interfaces », ASM, Cleveland (1952), 65.
- 5 RHINES (F.N.), CRAIG (K.R.). — *Met. Trans.*, 5A (1974), 413.
- 6 DOHERTY (R.D.). — *Met. Trans.*, 6A (1975), 588.
- 7 FELTHAM (P.). — *Acta Met.*, 5 (1957), 97.
- 8 KURTZ (S.K.), CARPAY (F.M.A.). — *J. Appl. Phys.*, 51 (1980), 5725.
- 9 HILLERT (M.). — *Acta Met.*, 13 (1965), 227.
- 10 LIFSHITZ (I.M.), SLYOZOV (V.V.). — *J. Phys. Chem. Solids*, 19 (1961), 35.
- 11 ABBRUZZESE (G.), LÜCKE (K.). — *Acta Met.*, 34 (1986), 905.
- 12 LOUAT (N.P.). — *Acta Met.*, 22 (1974), 721.
- 13 CHEN (I.-W.). — *Acta Met.*, 35 (1987), 1723.
- 14 PANDE (C.S.). — *Acta Met.*, 35 (1987), 2671.
- 15 ZENER (C.). — Communication privée à C.S. Smith, *Trans. AIME*, 175 (1949), 15.
- 16 GLADMAN (T.). — *Proc. Roy. Soc.*, 294A (1966), 298.
- 17 HILLERT (M.). — *Acta Met.*, 36 (1988), 3177.
- 18 GREY (E.A.), HIGGINS (G.T.). — *Acta Met.*, 21 (1973), 309.
- 19 CAHN (J.W.). — *Acta Met.*, 10 (1962), 789.
- 20 AUST (K.T.), RUTTER (J.W.). — *Trans. AIME*, 215 (1959), 119 et 820.
- 21 MULLINS (W.W.). — *Acta Met.*, 6 (1958), 414.
- 22 BURKE (J.E.). — *Trans. AIME*, 185 (1949), 881.
- 23 CAHN (R.W.). — « Physical Metallurgy », R.W. Cahn and P. Haasen eds, 3ème édition, Elsevier Science Publishers BV (1983).
- 24 CZOCHRALSKI. — *J. Int. Z. Metallogr.*, 6 (1914), 289.
- 25 BURKE (J.E.). — *Trans. AIME*, 180 (1949), 73.
- 26 GJOSTEIN (N.A.), RHINES (F.N.). — *Acta Met.*, 7 (1959), 319.
- 27 RHINES (F.N.), PATTERSON (B.R.). — *Met. Trans.*, 13A (1982), 985.
- 28 WALKER (H.L.). — Univ. Illinois Eng. Exp. Sta. Bull. n° 359, Univ. of Illinois (1945).
- 29 LAFORTE (J.-L.), GALIBOIS (A.). — *Mém. Sci. Rev. Mét.*, 67, n° 4 (1970), 303.
- 30 COMTE (P.). — Thèse de doctorat, Institut de Métallurgie Structurale de l'Université de Neuchâtel (1975).

Etude de l'influence de l'histoire sur la résistance au grossissement de grains dans un Cu-OF (deuxième partie)

P. Pouly, W.G. Form

Institut de Métallurgie Structurale, Université de Neuchâtel, Suisse

Nos résultats, obtenus sur un Cu-OF, montrent que l'histoire préalable subie par un matériau peut avoir une influence marquée sur son comportement lors du grossissement de grains. La cinétique de ce grossissement n'est pas aussi simple qu'exprimée par la loi de $D^n = Kt$. Dans le cas d'échantillons étirés de 60 %, nous constatons même trois cinétiques lors de l'évolution des grains à 700 °C. Il paraît que les variations en taille de grain, parfois abruptes, sont principalement dues à des variations de la texture et, dans une bien moindre mesure, à la variation des paramètres topologiques.

■ INTRODUCTION

Dans la première partie *, nous avons vu que le grossissement de grains est généralement caractérisé par une loi de croissance du type

$$D^n - D_0^n = Kt \quad [1]$$

où D représente la taille de grain, D_0 la taille de grain initiale, K une constante et n un exposant dont la valeur la plus courante est 2, voire 3. Cette loi ne tient toutefois pas compte des effets d'ancrage ou de freinage, dus essentiellement aux impuretés, qui se manifestent,

* Publiée dans le numéro de janvier (n° 1) 1992 des Mémoires et Etudes Scientifiques, p. 39 à 48.

selon les principales théories, par une modification de la valeur de l'exposant. Les divers points de vue (topologie, segment de joint, champ moyen, mouvement stochastique) sur lesquels sont basées ces théories ne tiennent par ailleurs aucun compte de l'histoire du matériau précédant sa recristallisation. En effet, il y a peu de travaux sur le grossissement de grains qui tiennent compte de l'histoire précédant le recuit de grossissement (1, 2). Nous présentons maintenant les résultats expérimentaux que nous avons obtenus à cet égard dans le cadre de notre étude.

■ PROCEDURE EXPERIMENTALE

Nous avons travaillé avec un Cuivre-OF (pureté > 99,99 %) qui nous a été livré sous forme de barre de \varnothing 15 mm. Ces barres ont toutes subi un recuit de conditionnement sous argon à 800 °C pendant 4 h, qui a conduit à un grain équiaxial de taille moyenne de 650 μ m. L'exécution d'un plan d'expérimentation factoriel (PEF) (3) nous montre que le mode de déformation ne joue aucun rôle sur la résistance au grossissement de grains, au contraire de paramètres tels que la taille de grain avant la déformation ou le taux de déformation. Nous avons alors décidé de diriger notre travail principalement sur l'étude de l'influence du taux de déformation sur le grossissement de grains. La déformation est faite par étirage, à des réductions en section variant entre 14 et 84 %. Les recuits de croissance, généralement effectués dans un four à moufle sous atmosphère d'argon, sont à des températures comprises entre 600 et 800 °C. Après traitement, les échantillons sont coupés transversalement, polis, puis attaqués pour l'observation par microscopie optique. Un analyseur d'image Quantimet 920 a servi pour déterminer la taille de grain ainsi que la distribution du nombre de voisins. Des observations sur un microscope électronique à transmission de type Philips CM 12 ont également été faites, les lames minces étant obtenues par électropolissage à - 40 °C sous une tension de 11 V dans une solution de 33 % de HNO_3 et 67 % de méthanol. Finalement, des analyses de texture en réflexion ont été réalisées sur un diffractomètre à rayons X de type Philips. Nous avons effectué des figures de pôle {111}, {200} et {220} pour différents états. Les échantillons ont été prélevés selon des coupes perpendiculaires à l'axe de déformation, quelques coupes longitudinales ayant été utilisées pour contrôler certains résultats.

Manuscrit reçu le 23 octobre 1991, bon à publier le 24 décembre 1991.

Influence of prior treatment on the grain growth behaviour in a Cu-OF (second part)

P. Pouly, W.G. Form

Institut de Métallurgie Structurale, Université de Neuchâtel, Suisse

All theories on grain growth kinetics assume that prior material history has no effect on it, since preceding recrystallization would wipe out all traces by the elimination of virtually all dislocations. Or, sundry experiments obtained at our institute some years ago and also by a few other researchers suggest that this is not necessarily so.

The present work has been undertaken in order to shed some light on as to whether and how prior treatments may influence grain growth behaviour.

In view of the close relation of this particular question to kinetics, we felt a need to first analyse thoroughly the literature on this subject so as to be in a better position to integrate our findings into existing knowledge. The first part of this publication has therefore been devoted entirely to critically assess the published literature on grain growth kinetics. Notably, pertinent information on the nature of driving force, activation energy and mechanism have been sought.

Whereas a number of models specify driving force in terms of reduction in free interfacial energy or decrease in curvature, less meaningful interpretation is offered, when it comes to activation energy or mechanism. Obviously, our comprehension on grain growth suffers from the same incompleteness as does our understanding of most processes in the condensed state: whereas many of the advanced models may reasonably well explain certain detail aspects of the process, they are totally unable to account for others or even lead to contradictory conclusions. Furthermore, none is even nearly capable of predicting quantitative results.

Our study was carried out on cold-drawn Cu-OF bars of 99.99 % purity. Our interest was focussed primarily on the influence which prior cold-work may exert on the behaviour of grain growth. As grain diameter we selected $\overline{D}_{3/2} = \frac{N}{\sum D_i^3 / \sum D_i^2}$. This diameter is inversely proportional to the grain boundary density per unit volume, i.e. it is inversely proportional to the density of interfacial free energy, whose variation can thus be directly ascertained by measuring $\overline{D}_{3/2}$.

When using the general equation for the kinetics of grain growth

$$D^n - D_0^n = kT$$

where n is assigned a value between 2 and 3 by most researchers, we found that in fact an excellent correlation between theory and experiment could be found for any value between 1 and 10 for samples deformed 20 or 60 % and annealed at 700 °C for times extending up to 168 h. Our results do therefore not permit to favor anyone of the hitherto advanced theories over another one. We also found that topological considerations which are related primarily to local equilibrium at grain boundary triple points are not appropriate to understand the effect of the amount of prior cold work on grain growth, since the results obtained on the number of nearest neighbours varies only slightly even during appreciable grain coarsening.

The fact that the kinetics curve for 20 % deformed bars intersect with that of 60 % deformed bars shows that equal average grain size (and equal grain size distribution) does not mean equal grain growth kinetics. Rather, one must conclude that during grain growth different mechanisms are involved, being most likely characterized by different textures and, therefore, different interface mobilities.

What has been believed at first to be an easy subject — grain growth being the simplest and most typical interface controlled structural rearrangement involving no diffusion at all — turned out to be a very difficult one to handle quantitatively. This is mostly due to the extreme sensitivity of grain boundary motion to particle intersection or other obstacles because of the very small driving force involved, making reproducibility of results difficult.

Les réflexions sur la nature de la force motrice (énumérées dans la première partie de cet article) nous ont amenés à utiliser le diamètre volume-surface plutôt que les diamètres arithmétique ou géométrique, généralement choisis de par leur simplicité de calcul, pour caractériser la taille de grain. Ce diamètre est défini par :

$$D_{3/2} = \frac{\sum_{i=1}^N D_i^3}{\sum_{i=1}^N D_i^2} \quad [2]$$

où les D_i sont les diamètres individuels des N grains de l'échantillon considéré, calculés par le biais de l'analyseur d'image.

■ RESULTATS EXPERIMENTAUX

Des recuits de 10 et 100 h à 700 °C pour différents taux de déformation ont permis de distinguer, qualitativement, deux types de comportements : le premier type se situe dans la gamme de 14 à 26 % d'étirage et le second entre 46 et 84 %. Suite à ces observations, nous avons étudié plus en détail la cinétique de croissance pour des déformations préalables de 20 à 60 % par des recuits à 700 °C variant entre 15 min et 168 h. Les résultats sont représentés à la figure 1. Le phénomène le plus remarquable au sujet de ces courbes de cinétique est le point de croisement entre les deux courbes. En effet, par rapport à l'idée que c'est l'énergie libre en excès stockée dans les joints de grains qui est la cause du grossissement de grains, on s'attendrait plutôt à deux courbes restant distantes l'une de l'autre ou éventuellement se rejoignant. Ce graphique permet de plus de constater que la notion de taille de grain limite introduite par Grey et Higgins (4) ne paraît pas justifiée dans notre cas, puisque la stabilisation de la taille de grain n'a pas encore été atteinte après 168 h de recuit.

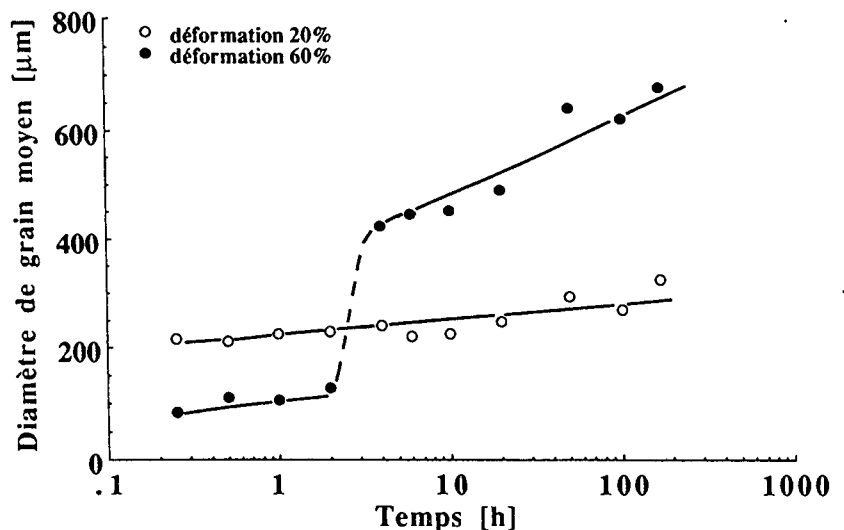
La figure 2, qui représente les microstructures des échantillons déformés à 20 ou à 60 % après des temps de recuit de 15 min et 100 h, permet de visualiser le phénomène décrit par la figure 1. La comparaison des micrographies 2a et 2b permet de plus d'apprécier la difficulté de caractériser une structure. En effet, ces deux structures ont une taille de grain moyenne — que l'on considère le diamètre arithmétique ou le diamètre volume-surface qui diffère peu —, mais l'observation visuelle permet de constater que ces deux structures sont très peu semblables, le contour des grains après 100 h étant beaucoup plus lisse qu'après 15 min.

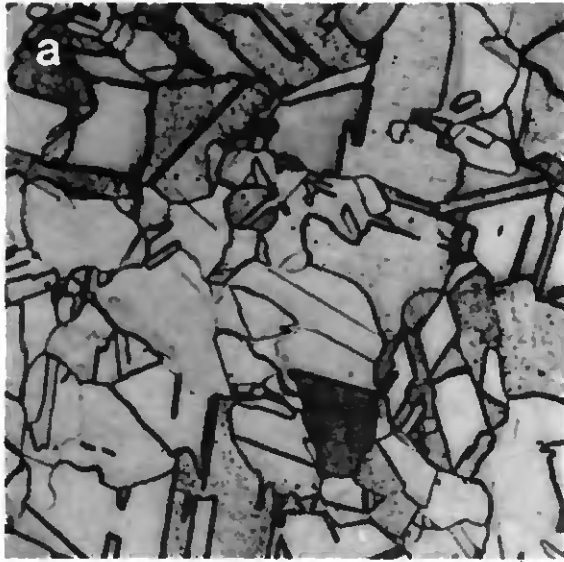
L'observation des échantillons déformés à 60 % a montré qu'on a un grossissement de grains local pendant les deux premières heures, mais qu'ensuite certains grains semblent croître plus rapidement que les autres. Afin de voir si une répartition des grains en deux distributions superposées peut permettre de trouver des résultats sur la cinétique justifiables par un ou des modèles de la littérature, les distributions de tailles de grain obtenues ont été séparées en deux distributions log-normales pour les échantillons recuits 4 h et plus. Le caractère d'une telle opération est très subjectif, étant donné que nos histogrammes de tailles de grain ne manifestent aucunement une tendance bimodale. Bien que les résultats obtenus aient montré une certaine cohérence entre eux, ils n'ont pas permis de mettre en évidence un éventuel phénomène caché par la prise en considération des grains dans leur ensemble.

Afin de connaître l'évolution de la taille de grain en fonction de la température pour de longs temps de recuit, nous avons effectué une série de recuits de 168 h pour des taux d'écroissage de 20 et 60 % et des températures comprises entre 600 et 800 °C. La représentation de la taille de grain finale en fonction de la température de recuit permet de constater que les courbes pour les deux déformations choisies, de même que les courbes de la figure 1, se croisent (fig. 3).

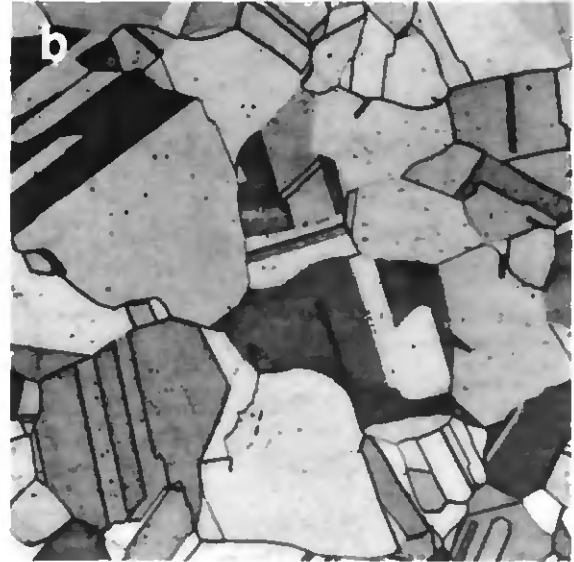
Figure 1. — Evolution de la taille de grain en fonction du temps de recuit à 700 °C pour des déformations préalables de 20 et 60 %.

Figure 1. — Grain size as a function of heating time at 700 °C for deformations of 20 and 60 %.

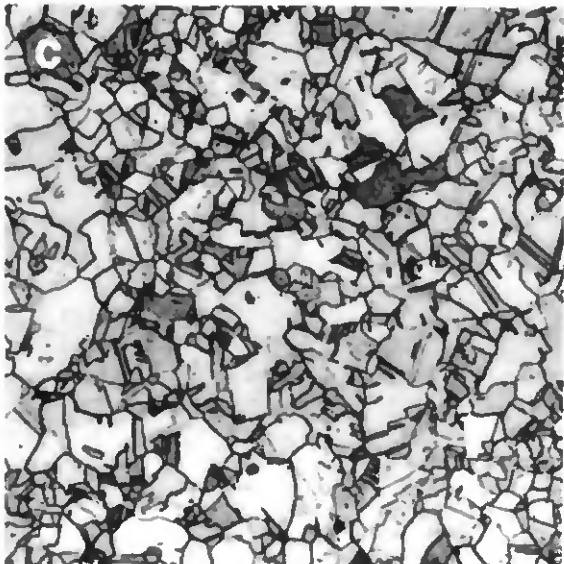




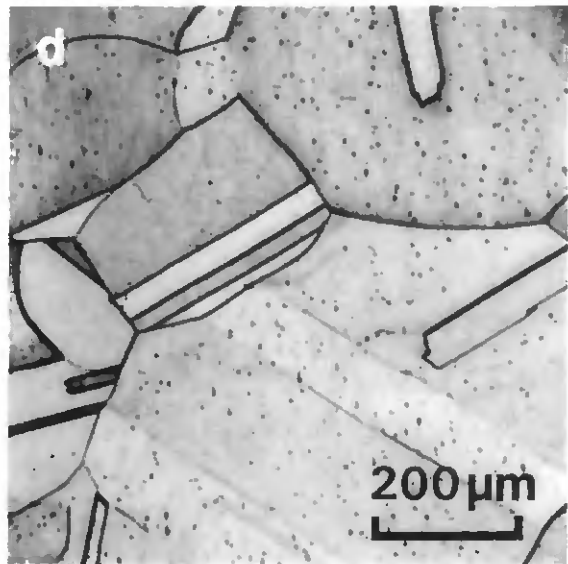
a) Déformé à 20 % et recuit 15 min.
a) Deformed 20 % and heated for 15 min.



b) Déformé à 20 % et recuit 100 h.
b) Deformed 20 % and heated for 100 h.



c) Déformé à 60 % et recuit 15 min.
c) Deformed 60 % and heated for 15 min.



d) Déformé à 60 % et recuit 100 h.
d) Deformed 60 % and heated for 100 h.

Figure 2. — Micrographies optiques montrant l'évolution de la microstructure lors du recuit à 700 °C.

Figure 2. — Optical micrographs showing the evolution of the microstructure during heating at 700 °C.

La normalisation des distributions de tailles de grain par rapport à leur moyenne a seulement permis de vérifier le caractère homologue des distributions de tailles de grain, dans les domaines temporels où les distributions restent unimodales, mais n'a apporté aucun élément nouveau à notre étude.

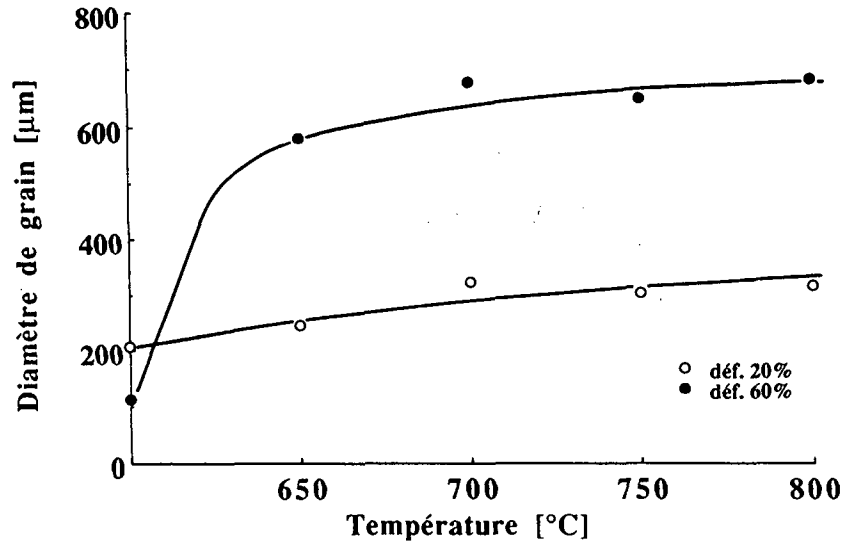
Si la topologie joue un rôle important lors du grossissement de grains par les conditions qu'elle impose, ainsi que le relève Smith (5), au réseau des joints, les analyses faites dans le cadre de notre étude donnent des résul-

tats trop peu significatifs pour que l'on puisse en tirer quelque conclusion que ce soit.

Certains chercheurs (6) considérant que la désorientation entre grains peut jouer un rôle important sur la cinétique de croissance, il a paru intéressant de faire des mesures de texture sur certains de nos échantillons, dans l'espoir de pouvoir éventuellement déceler une différence qui serait à même de pouvoir justifier le croisement des deux courbes de cinétique (fig. 1).

Figure 3. — Taille de grain après recuit de 168 h en fonction de la température de recuit, pour des déformations de 20 et 60 %.

Figure 3. — Grain size after annealing for 168 h at various temperatures for prior deformation of 20 and 60 %.



Les analyses de textures se sont révélées difficiles à cause de la grande taille de grain de nos échantillons. Les différentes textures obtenues sont énumérées dans le tableau I. Les textures secondaires caractérisent environ 10 % du matériau et paraissent désorientées de quelques degrés (~ 5°) par rapport aux textures indiquées.

■ DISCUSSION

Choix du diamètre de grain

Comme indiqué ci-dessus, le choix du diamètre volume-surface s'est fait sur la base de considérations énergétiques. Ce diamètre est inversement proportionnel à la densité de joints de grains par unité de volume, donc à la densité d'énergie libre interfaciale sous l'hypothèse que celle-ci est la même pour tous les joints de

grains. De la sorte, pour autant qu'un seul et même mécanisme agisse lors du grossissement de grains des échantillons considérés, les courbes de cinétiques ne peuvent pas se croiser si la force motrice est la réduction de la densité d'énergie libre interfaciale. Cela n'est évidemment valable que si l'énergie interfaciale est la même pour tous les joints et si l'énergie liée aux dislocations dans le matériau est négligeable. Le comportement statistique de ce diamètre volume-surface $D_{3/2}$ pour une distribution log-normale sera

$$D_g \cdot \exp(2,5 \cdot \ln^2 \sigma_g),$$

où σ_g représente l'écart-type de la distribution par rapport à la moyenne géométrique D_g . Le diamètre $D_{3,2}$ est donc un paramètre caractérisant la taille de grain qui tient compte de la largeur de la distribution. C'est la raison principale qui nous a amenés à choisir ce diamètre, bien qu'aucune différence notable n'ait été observée lors de contrôles effectués par le biais du diamètre arithmétique.

TABLEAU I. — Textures présentes dans le matériau suivant le taux de déformation et le temps de recuit.

TABLE I. — Textures produced for different amounts of deformation and annealing times.

	Temps de recuit à 700°C	Texture principale	Texture(s) secondaire(s)
matériau conditionné	--	<111>	--
déformation 20%	--	<111>	--
	5 min. - 50 heures	<111>	<100>
déformation 60%	--	<111>	--
	5 min. - 2 heures	<111>	<210>
	4 heures. - 50 heures	<111>	<210> + <100>

Cinétique de croissance

Nombreux sont ceux qui écrivent l'équation [1] sous la forme

$$D^n = Kt \quad [3]$$

prétextant que le terme D_0 est négligeable par rapport à D pour des temps de recuit pas trop courts. Il s'ensuit qu'en représentant les résultats sur un graphique log-log on obtient, par régression linéaire, une droite dont la pente vaut n^{-1} . Dans notre cas, D_0 ne peut pas être négligé, la variation de taille de grains étant relativement faible. Nous avons alors procédé en vérifiant la variation du coefficient de corrélation des droites de régression pour des valeurs de n comprises entre 1 et 10 (tabl. II).

TABLEAU II. — Coefficient de corrélation (r) en fonction de la valeur de l'exposant n de la loi de croissance.

TABLE II. — Correlation coefficient (r) as a function of the exponent n in the general growth law.

n	D_0 [μm]	r
1	227	0.901
2	226	0.909
3	226	0.915
4	224	0.918
5	224	0.919
6	222	0.918
7	219	0.915
8	214	0.911
9	205	0.907
10	157	0.902

Pour la cinétique de croissance des échantillons déformés à 20 %, tous les points obtenus lors des différents essais ont été pris en considération. Il s'avère que ces résultats sont tels qu'il est impossible de trancher pour une valeur de n plutôt qu'une autre et qu'on ne peut de ce fait pas faire pencher la balance en faveur de l'une ou l'autre des théories existantes.

L'observation de la figure 1 montre qu'il convient d'aborder la cinétique de croissance pour les échantillons déformés à 60 % différemment : il semble que trois cinétiques de croissance différentes interviennent pour ces échantillons. Dans cette optique, nous avons considéré la croissance pour des temps compris entre 15 min et 2 h d'une part (1ère cinétique) et des temps variant

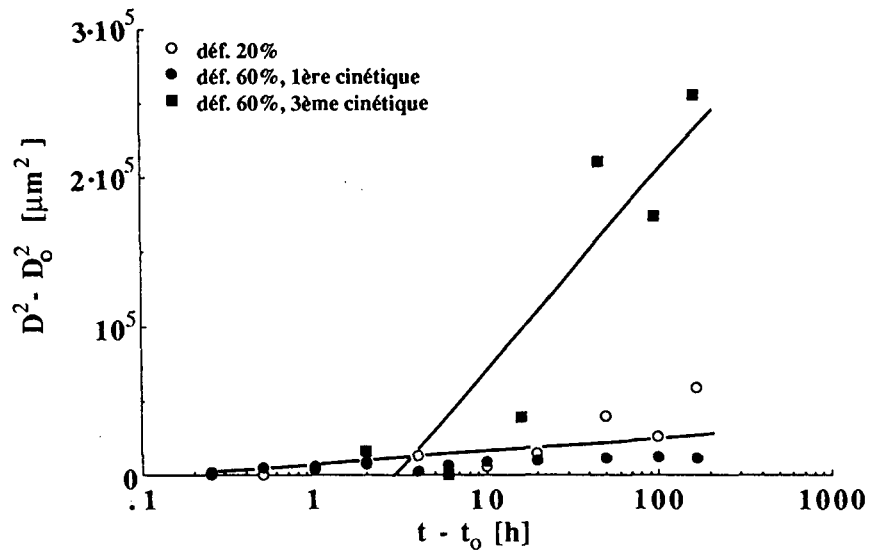
entre 4 et 168 h d'autre part (3ème cinétique). La seconde cinétique se situant entre 2 et 4 h de recuit ne comporte pas de points pour pouvoir la quantifier. Les résultats que l'on obtient pour n pour les deux cinétiques considérées sont du même type que ceux pour les échantillons déformés à 20 %.

La conclusion qui s'impose quant à la détermination des lois de croissance pour nos échantillons est qu'il n'est pas possible — vu l'indétermination de n — de caractériser le grossissement de grains par une loi de croissance univoque du type [1]. Il paraît quand même vraisemblable que n soit supérieur à 2 et à 3, valeurs les plus courantes fournies par les modèles théoriques. La question qui se pose alors est de savoir d'où vient cette variation de n par rapport aux théories. Il est intéressant de relever que tous ceux qui ont obtenu des résultats expérimentaux portant sur la cinétique de croissance pour des métaux purs obtiennent des valeurs de n supérieures à 2, souvent inférieures à 3, mais qui peuvent aller jusqu'à 11, cette valeur étant obtenue dans de l'aluminium (7). En général, ces valeurs de n sont justifiées par l'influence des impuretés (8, 9) ou encore de la texture (6). L'étendue de la gamme des valeurs de n données dans la littérature s'avère surprenante, mais illustre bien l'impossibilité de favoriser une théorie aux dépens d'une autre.

Si on peut considérer qu'un seul mécanisme de croissance agit significativement sur les échantillons déformés à 20 %, au moins deux, si ce n'est trois, mécanismes de grossissement de grains prennent place lors du recuit des échantillons déformés à 60 %. L'indétermination de l'exposant n pour les différentes cinétiques observées a pour conséquence qu'il n'est pas possible de connaître précisément le nombre de mécanismes intervenant lors du recuit. Si l'on admet qu'un seul et même mécanisme agit sur tous nos échantillons (laissons pour l'instant de côté celui qui provoque la deuxième cinétique sur les échantillons déformés à 60 % et recuit entre 2 et 4 h), on peut toutefois tenter d'y voir plus clair en représentant l'évolution de la quantité ($D^n - D_0^n$) en fonction du temps pendant lequel le mécanisme a agi ($t - t_0$) (fig. 4). t_0 vaut 0 pour les échantillons déformés à 20 % et pour la première cinétique (de 0 à 2 h) des échantillons déformés à 60 %. Dans le cas de la troisième cinétique de croissance (échantillons déformés à 60 % et recuits plus de 4 h), on choisit $t_0 = 4$ h. Le diamètre D_0 a été égalé au plus petit diamètre de chaque cinétique concernée. Une représentation de ($D^n - D_0^n$) en fonction de ($t - t_0$) doit fournir une droite de pente K (équation [1]), ce paramètre dépendant du mécanisme et de son énergie d'activation. Que l'exposant n soit égal à 1, 2 (comme dans la figure 4) ou 3, il apparaît que les points correspondant aux échantillons déformés à 20 % ainsi qu'aux petits grains des échantillons déformés à 60 % se situent à peu près sur une même courbe. Par contre, les grands grains des échantillons déformés à 60 % donnent une courbe de pente plus élevée, de sorte que l'énergie d'activation est différente. Il semble donc vraisemblable que trois mécanismes agissent lors du recuit suivant une déforma-

Figure 4. — Représentation graphique de l'évolution de la différence du carré de la taille de grain, t_0 étant le temps à partir duquel un mécanisme particulier agit ($D^2 - D_0^2 = f(t - t_0)$).

Figure 4. — Difference of the squares of the grain sizes D and D_0 , as a function of annealing time, t_0 being the starting time of the particular mechanism under consideration.



tion de 60 %. S'il est communément admis que le mécanisme de migration d'un joint de grain est le saut atomique à l'interface, on peut noter que Gleiter (10) a proposé un raffinement de ce mécanisme à partir d'une structure des joints en gradins en proposant un mécanisme de migration au niveau atomique lié à ces gradins, alors que Smith et Rae (11) suggèrent un mécanisme de migration par le mouvement de réseaux de dislocations.

Etant entendu que nous avons en tout cas deux, si ce n'est trois, mécanismes de croissance, le point d'intersection que l'on peut observer sur la figure 1 entre les deux courbes de croissance paraît dès lors compréhensible. Deux échantillons ayant à un certain moment du recuit une densité d'énergie libre interfaciale égale (sous l'hypothèse que γ est la même pour tous les joints), les courbes de cinétiques peuvent se comporter différemment l'une de l'autre si le mécanisme de croissance n'est pas le même pour les deux échantillons. On peut donc affirmer que les mécanismes de croissance des deux séries d'échantillons sont différents au moment où la force motrice est la même (lorsque leur diamètre volume-surface est identique) et que l'énergie d'activation est également différente.

Bien qu'on ne puisse distinguer un caractère bimodal sur les histogrammes des distributions de tailles de grain, l'observation par microscopie optique montre clairement que certains grains croissent soudainement après environ 4 h alors que la taille des autres reste très stable. Ce phénomène ressemble en de nombreux points à celui du grossissement de grains « anormal » ou « discontinu ». Le grossissement anormal est un processus qui provoque la croissance soudaine et très rapide de quelques grains, les autres restant petits. Deux des caractéristiques connues de ce processus (9) sont les suivantes :

- la texture après grossissement anormal est parfois prononcée et diffère alors toujours de la texture primaire ;

- le grossissement anormal n'a lieu qu'au-dessus d'une certaine température bien définie, les plus gros grains étant obtenus juste au-dessus de cette température et leur taille pouvant être de l'ordre du centimètre.

Certains définissent plus simplement le grossissement de grains anormal comme l'apparition d'une deuxième distribution de grains de taille nettement plus élevée que la distribution primaire et très nettement distincte de celle-ci, ces gros grains absorbant les petits.

Si l'on se base sur la première définition, certains éléments vont à l'encontre de l'idée que la seconde cinétique corresponde à du grossissement anormal. Les distributions de taille de grain de nos échantillons ne montrent à aucun moment un caractère manifestement bimodal : les séparations de distribution que nous avons faites reposent uniquement sur l'observation. D'autre part, la taille de nos gros grains augmente continuellement avec la température, même au-dessus de 700 °C (fig. 3) sans apparition d'un maximum, comme l'exigerait la seconde caractéristique citée ci-dessus, infirmant ainsi l'idée que du grossissement anormal prenne place lors du recuit à 700 °C de ces échantillons. Toutefois, il est intéressant de constater que les deux courbes représentées sur cette figure se croisent, tout comme celles de la figure 1, ce qui permet de dire que des recuits à 600 °C n'auraient pas donné deux courbes de cinétique de croissance se croisant. Il est difficile de savoir si cela s'explique par le fait que le ou les mécanismes provoquant la croissance des grains pour les échantillons déformés à 60 % ne sont pas activés à cette température ou, si la cinétique à 600 °C est tellement lente, qu'un recuit de 168 h n'est pas suffisant pour que les grains aient assez évolué pour que leur taille devienne supérieure à celle des échantillons déformés à 20 %. Finalement, les analyses de texture, sur lesquelles nous reviendrons, vont également à l'encontre d'un phénomène de grossissement « anormal ».

En se référant à la deuxième définition du grossissement anormal citée ci-dessus, nous sommes également amenés à conclure que nous n'avons pas du grossissement anormal au sens où on l'entend généralement : en effet, nous avons déjà dit que nous n'avons manifestement pas un caractère bimodal au niveau des distributions de tailles de grain pour les échantillons concernés. Distl et al (12) ont également relevé des anomalies de croissance sur des alliages AlMn1, sans pour autant les assimiler à du grossissement anormal, les pics des deux distributions n'étant pas assez distincts. Ils lient ce comportement à des changements intervenant dans la texture.

S'il sort de ce qui précède que deux mécanismes différents, dont la nature nous est inconnue, interviennent, il est intéressant de revenir sur les micrographies illustrant les différentes évolutions de nos échantillons lors du recuit (fig. 2). Si l'on compare la taille de grain pour les échantillons déformés à 20 % après 15 min ou 100 h (fig. 1), on constate qu'il n'y a presque pas de variation. L'observation de la microstructure montre par contre une certaine évolution de la morphologie : la structure granulaire dans les premiers instants se distingue par des formes très compliquées, les joints étant difficiles à discerner, alors qu'après 100 h, la structure granulaire est devenue beaucoup plus simple. D'un point de vue général, d'après ces microstructures, il nous paraît qu'il faut voir le grossissement de grain comme débutant par un grossissement local, puis continuant par un grossissement global, ainsi que Comte l'a établi (13). Le premier stade (à ne pas confondre avec le premier mécanisme de croissance) serait caractérisé par un réarrangement local des joints sous la pression due à la courbure des joints et aux contraintes de rencontre des joints aux arêtes et aux nœuds du réseau et correspondrait essentiellement à un « lissage » de la structure, sans que l'évolution de la taille de grain soit très significative et sans réduire significativement la courbure des joints. Le deuxième stade correspondrait au grossissement de grains proprement dit. Il serait d'ailleurs intéressant de pouvoir étudier l'évolution de la vraie densité d'interface en fonction du temps de recuit : plutôt que de caractériser l'évolution de la structure par une taille moyenne de grain en fonction du temps, il serait souhaitable de pouvoir appliquer une loi du type (1) à la densité réelle de joints de grains dans le matériau.

Texture

Jusqu'à présent, nous avons souvent parlé de l'énergie interfaciale comme étant constante. Il est cependant bien connu que cette hypothèse, qui permet de simplifier le problème du grossissement de grains, ne peut pas être invoquée dans toute considération, en tout cas pas pour celles portant sur les joints de coïncidence. En effet, la mobilité et l'énergie libre interfaciale d'un joint dépendent de la désorientation entre les réseaux cristallins des deux grains de part et d'autre du joint (par exemple Gjostein et Rhines (14)). Si un matériau est

fortement texturé, il peut fournir des amas de grains faiblement désorientés, cette faible désorientation ayant pour conséquence que les joints de grains peuvent avoir une faible énergie (15).

Il a déjà été mentionné que la principale difficulté de nos analyses de texture réside dans la grande taille de grains de nos échantillons. Bien que le faisceau de rayons X balayait l'essentiel de la surface des échantillons, on peut dire que le nombre de grains analysés ($\sim 500-1000$) était inférieur d'un facteur $10-10^3$ au nombre idéal pour le tracé d'une figure de pôles, ce qui explique les difficultés d'interprétation des figures de texture obtenues. Pourtant, des tendances peuvent y être décelées.

Durant les deux premières heures de recuit des échantillons déformés à 60 %, c'est-à-dire lorsque la taille de grain est petite et homogène, il y a une texture de type $\langle 111 \rangle$ ne faisant pas apparaître de texture mineure $\langle 100 \rangle$ comme c'est le cas pour une déformation de 20 %. Il semble par contre que nous ayons une texture mineure de type $\langle 210 \rangle$ ou $\langle 110 \rangle$, mais la détermination de ces textures est sujette à caution, les divers pics observés indiquant des angles d'inclinaison différant de 5 à 10° de ceux auxquels on pourrait s'attendre. La texture principale $\langle 111 \rangle$ est maintenue lorsque les gros grains apparaissent après 4 h, mais une deuxième composante mineure de type $\langle 100 \rangle$ apparaît alors à côté de la texture $\langle 210 \rangle$. Par contre, la texture de type $\langle 110 \rangle$ n'est manifestement pas ou plus présente.

La proportion de la surface présentant l'une ou l'autre des deux textures mineures étant relativement faible, il ressort clairement que la plupart des grands grains ne sont pas orientés dans les directions correspondant de ces textures mineures. Il en sort que les grands grains ne sont pas dus à du grossissement anormal, ce dernier devant provoquer l'apparition d'une nouvelle texture principale, comme déjà mentionné. On peut tout de même s'interroger sur la nature des grains présentant une texture $\langle 100 \rangle$, c'est-à-dire celle qui est apparue lors de l'activation du second mécanisme de croissance : sont-ce quelques-uns des grands grains ou alors des petits grains qui en sont responsables ? Dans cette dernière hypothèse, ces petits grains étaient-ils présents dès le début du recuit ou sont-ils apparus en même temps que les premiers grands grains ? A ce stade de nos travaux, nous ne pouvons pas apporter une réponse à ces problèmes.

Les échantillons des deux séries (20 % et 60 %) différant au niveau de la texture, on pourrait chercher là une cause du grossissement observé après 60 % de déformation. Novikov (16), dans une simulation du développement de la texture lors du grossissement de grains, montre que la composante principale de la texture peut se renforcer ou s'affaiblir au cours de la croissance selon la dispersion et la microstructure initiale. Il obtient une accélération de la croissance lorsqu'il se produit un renforcement des composantes mineures de la texture. S'il s'avérait que la composante $\langle 100 \rangle$ que nous n'avons pas décelée avant 4 h de recuit est présente avant la brusque croissance observée, le fait de la voir

apparaître correspondrait à un renforcement de cette composante et irait en parallèle avec l'accélération de la croissance observée. Nos résultats pourraient donc aller dans le sens des prédictions de Novikov.

Considérations générales

Tout au long de nos travaux, nous nous sommes demandé si les impuretés présentes dans notre matériau d'étude pouvaient avoir un effet de freinage important, bien que leur taux soit de l'ordre de 50 ppm. Nos observations par microscopie électronique à transmission nous ont appris que le nombre de particules en interaction avec les joints de grains est trop faible pour que l'effet d'ancrage consécutif soit significatif. De plus, ces particules se trouvent en nombre à peu près égal dans les échantillons déformés à 20 et 60 %, alors que ces échantillons ont des comportements fort différents. Et pourtant, il faut relever que le cuivre utilisé dans le cadre de nos expériences est étonnant de par la résistance qu'il oppose à la recristallisation et au grossissement de grains. En effet, la recristallisation de ce cuivre pur à 99,99 % n'est pas complète après un recuit de 40 min à 400 °C alors que Huang (17), pour un autre cuivre à 99,99 %, obtient une recristallisation complète en quelques minutes à 330 °C (observations par MEB).

Le microscope électronique à transmission a également montré des zones à relativement forte densité de dislocations. Ainsi, la micrographie de la figure 5 caractérise une région de $15 \mu\text{m}^2$ où la densité locale de dislocations est de $\sim 10^{13} \text{m}^{-2}$, alors que le temps de recuit est de 100 h à 700 °C. D'une manière générale, en faisant

abstraction de ces régions à forte densité de dislocations et en se basant sur le fait que l'énergie d'une dislocation est donnée par $\alpha G b^2$ où α vaut $\sim 0,5$, $G = 50 \text{ GPa}$ et $b = 0,255 \text{ nm}$, on obtient, pour une densité de dislocation de 10^{10}m^{-2} (matériau recristallisé), une énergie liée aux dislocations de l'ordre de 30 J/m^3 . Pour l'énergie libre interfaciale, avec une taille de grain de $100 \mu\text{m}$ et une énergie de 1 J/m^2 , on a une énergie des joints de grains de $3 \cdot 10^4 \text{ J/m}^3$, soit supérieure d'un facteur 10^3 à celle des dislocations dans un matériau bien recristallisé. S'il apparaît clairement que l'énergie liée à ces dislocations est globalement négligeable par rapport à l'énergie liée aux joints de grains, il n'en demeure pas moins que localement elle n'est plus forcément insignifiante. S'il est généralement admis que c'est l'énergie libre interfaciale des joints de grains qui fournit la force motrice de la croissance, il ne faut pas perdre de vue que cette énergie est répartie de façon très irrégulière dans le matériau et qu'en de nombreux endroits — par exemple à l'intérieur des grains — cette énergie est nulle. Il est donc tout à fait concevable, voire probable, que l'énergie liée aux dislocations puisse intervenir dans le processus de croissance locale si leur densité s'y avère suffisamment élevée. Du fait que la proportion du volume du matériau présentant une densité de dislocations élevée est très petite dans un matériau recristallisé, l'influence de ces zones à forte densité de dislocations sur la cinétique globale de croissance doit être insignifiante. On peut en effet imaginer qu'a priori ces dislocations pourraient contribuer de manière significative au mouvement d'un joint sur quelques microns seulement, jusqu'à ce que le joint en mouvement puisse s'éloigner de ces dislocations et ne plus interagir avec elles ou qu'il puisse les absorber.

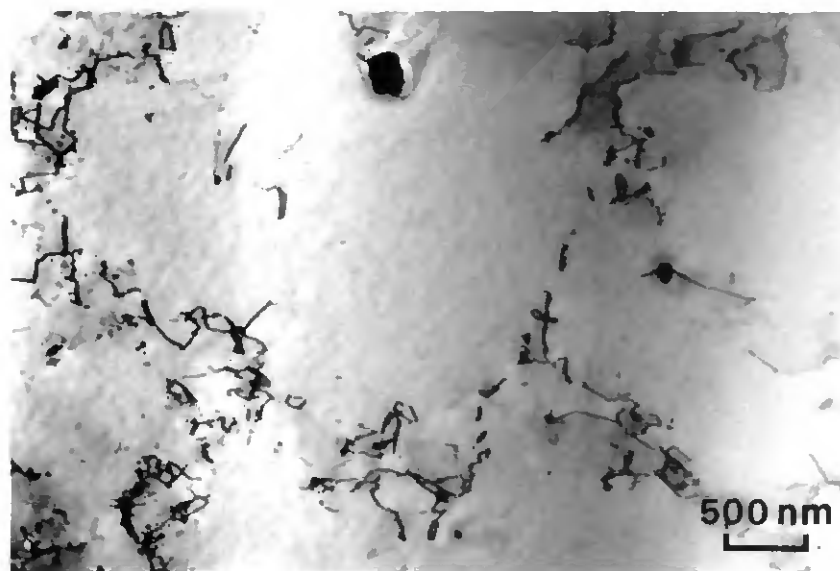


Figure 5. — Micrographie électronique en transmission d'un échantillon déformé à 60 % et recuit à 700 °C pendant 100 h (MET).

Figure 5. — Transmission electron micrograph of a specimen deformed 60 % and annealed for 100 h at 700 °C.

■ CONCLUSION

Les résultats obtenus dans le cadre de cette étude montrent que l'histoire préalable au grossissement de grains, et en particulier le taux de déformation, peut modifier le comportement du matériau vis-à-vis du grossissement de grains. Dans ce contexte, il n'est plus possible de parler de la croissance granulaire sans tenir compte de l'état avant le recuit de grossissement. D'une manière ou d'une autre, il importe de caractériser le matériau par l'histoire qu'il a subie et il ne suffit pas de considérer que le matériau recristallisé se distingue par une absence pratiquement totale de dislocations; de sorte que l'histoire préalable n'a aucun effet sur la croissance. Il faut considérer que le matériau a une « mémoire » de son histoire, ainsi que les travaux de Rhines et Patterson (1) ou Comte (2) l'ont mis en évidence. Nos travaux préliminaires semblent par ailleurs indiquer que la taille de grains initiale modifie également la résistance au grossissement de grains, mais cet aspect n'a pas été approfondi dans notre travail.

La texture paraît jouer un rôle primordial dans le comportement vis-à-vis du grossissement de grains, l'énergie des joints de grains dépendant de la désorientation entre grains et de l'orientation du joint et la première approximation qui est généralement faite de considérer l'énergie libre interfaciale comme étant la même pour tous les joints est manifestement incorrecte et peut donner des résultats fort variables.

Trois cinétiques de croissance différentes semblent intervenir sur les différents types d'échantillons que nous avons traités. Cependant, aucune de ces cinétiques n'ayant pu être caractérisée par une loi de croissance du type [1] avec un exposant n de valeur univoque, nous n'avons pas pu caractériser les lois de croissance de nos échantillons ni savoir de manière certaine le nombre de mécanismes intervenant lors du recuit de nos échantillons. Il nous paraît toutefois y en avoir trois. Un de ces mécanismes est commun aux trois séries d'échantillons traitées, les deuxième et troisième n'intervenant que sur des échantillons déformés à plus de 26 % et recuits à une température supérieure à 650 °C. De plus, le second mécanisme, qui provoque la croissance brusque de quelques grains aux dépens du reste de la matrice, présente plusieurs similitudes avec le grossissement de grains anormal, mais certaines caractéristiques de ce type de grossissement n'ont pas été vérifiées dans notre cas. Ce second mécanisme a en tout cas un effet suffisant pour provoquer un croisement des courbes de cinétique des échantillons déformés à 20 et 60 %.

La force motrice provoquant le grossissement de grains doit être la diminution de l'énergie libre interfaciale, tandis que la réduction de la courbure nous apparaît avant tout comme une condition nécessaire pour l'activation du mécanisme de migration du joint (et par conséquent du grossissement de grains) et, dans une moindre mesure, comme une force motrice en soi.

Finalement, la microscopie électronique à transmission nous a permis de constater qu'un matériau recristallisé n'est pas si vide de défauts qu'on le laisse imaginer. Bien que l'énergie des dislocations par unité de volume dans le matériau soit négligeable par rapport à celle des joints de grains, nous avons trouvé en quelques endroits des densités de dislocations très élevées ($\sim 10^{13} \text{ m}^{-2}$). Ces endroits sont cependant très rares, si bien que la densité globale de dislocations reste insignifiante. Ces dislocations peuvent donc interagir localement avec des joints de grains et jouer un effet ancreur ou catalyseur en interagissant avec quelques joints de grains, mais elles ne peuvent pas jouer un rôle significatif sur la cinétique globale de croissance.

Remerciements

Cette étude a pu être effectuée grâce à un soutien financier du Fonds National Suisse de la Recherche Scientifique auquel les auteurs expriment leurs vifs remerciements. Le présent article constitue un résumé du travail de thèse soumis par P. Pouly à la Faculté des Sciences de l'Université de Neuchâtel pour l'obtention du titre de docteur ès sciences.

bibliographie

- 1 RHINES (F.N.), PATTERSON (B.R.). — *Met. Trans.*, 13A (1982), 985.
- 2 COMTE (P.). — Thèse de doctorat, Institut de Métallurgie Structurale de l'Université de Neuchâtel (1975).
- 3 LÜTHY (H.), OBERLY (A.), FORM (W.G.). — *Material und Technik*, 71 (1982).
- 4 GREY (E.A.), HIGGINS (G.T.). — *Acta Met.*, 21 (1973), 309.
- 5 SMITH (C.S.). — « Metal Interfaces », ASM, Cleveland (1952), 65.
- 6 ABBRUZZESE (G.), LÜCKE (K.). — *Acta Met.*, 34 (1986), 905.
- 7 BECK (P.A.), KREMER (J.C.), DEMER (L.J.), HOLZWORTH (M.L.). — *Trans AIME*, 175 (1948), 372.
- 8 BURKE (J.E.). — *Trans. AIME*, 180 (1949), 73.
- 9 CAHN (R.W.). — « Physical Metallurgy », R.W. Cahn and P. Haasen eds, 3ème édition, Elsevier Science Publishers BV (1983).
- 10 GLEITER (H.). — *Acta Met.*, 17 (1969), 565.
- 11 SMITH (D.A.), RAE (C.M.F.). — *Met. Sci.*, 13 (1979), 101.
- 12 DISTL (J.S.), WELCH (P.I.), BUNGE (H.J.). — *Scripta Met.*, 17 (1983), 975.
- 13 COMTE (P.), FORM (W.). — *Prakt. Metallogr.*, 13 (1976), 9.
- 14 GJOSTEIN (N.A.), RHINES (F.N.). — *Acta Met.*, 7 (1959), 319.
- 15 COULOMB (P.). — « Les textures dans les métaux de réseau cubique », Dunod, Paris (1972).
- 16 NOVYKOV (V.Y.). — *Acta Met.*, 27 (1979), 1461.
- 17 HUANG (K.P.). — Thèse de doctorat, Institut de Métallurgie Structurale de l'Université de Neuchâtel (1988).