

**EFFET DE LA DEFORMATION SUR LES MECANISMES
DE LA PRECIPITATION DISCONTINUE
DANS LE CAS DE L'ALLIAGE Cu-4,6At.-%In**

***THE EFFECT OF DEFORMATION ON THE MECHANISM
OF THE DISCONTINUOUS PRECIPITATION IN CASE ALLOY Cu-4,6At.-%In***

S. Bensaada, Z. Boumerzoug

Laboratoire des matériaux semi-conducteurs et métalliques (LMSM)

Université Mohamed Khider BP 145 - 07000 BISKRA (ALGERIE)

e-mail : Bensaada52@yahoo.fr

Tel/Fax: 213(33)743125

RESUME

L'étude de la réaction de précipitation discontinue dans les alliages à base de cuivre a suscité un intérêt considérable et a fait l'objet de nombreuses investigations théoriques et expérimentales. La spécificité de ce travail est la mise en évidence de l'effet de la déformation sur les mécanismes gouvernant la réaction de précipitation discontinue tels que la germination, la croissance et la coalescence des lamelles.

Les résultats obtenus par les différentes techniques d'analyse utilisées dans ce travail sont cohérents entre eux et confirment plusieurs travaux consacrés à ce domaine.

MOTS CLÉS

Précipitation, discontinue, déformation, germination, lamelles, coalescence

ABSTRACT

The study of the discontinuous precipitation reaction in alloys at basis of brass provoke a considerable benefit and done the objekt of many theoretical and experimental investigations. Precised description of this work is to make clear the effect of the deformation on the mechanism ruling the discontinuous precipitation reaction like the germination, the growth and the coalescence of thin lamellar. The obtained results by different methods used in this work are coherent between them and confirm various consacred works in this domain.

KEY WORDS

Discontinuous, precipitation, deformation, germination, lamellar, coarsening

1 INTRODUCTION

Les phénomènes de précipitation prennent une place considérable dans les solutions métalliques, car elle modifie profondément les propriétés des alliages, parfois dans un sens favorable conduisant à des élévations de la charge de la rupture et de la dureté. Contrairement aux transformations de phases ou la totalité de la matière passe d'une phase à une autre, dans le processus de précipitation

l'état final est à plusieurs phases.

Généralement la réaction de précipitation consiste en la décomposition d'une solution solide sursaturée α_0 (phase mère) en un mélange de deux phases de compositions différentes [1], selon la réaction suivante : $\alpha_0 \rightarrow \alpha + \delta$ où α est la phase fille, appauvrit en élément d'alliage et ayant le même réseau de structure que la phase mère α_0 et δ est la phase précipitée riche en élément d'alliage et peut-être :

- Un cristal mixte avec la même structure, le cas de la précipitation discontinue dans le système d'alliages Au-Ni [2]
- Un cristal mixte avec une structure différente, le cas du système d'alliages Pb-Sn [3]
- Une phase intermétallique, le cas du système d'alliage Cu-Zn [4]
- Une phase liquide, le cas du système d'alliage Pb-Bi [5]

La précipitation discontinue dans le système d'alliage Cu-In a fait l'objet de plusieurs travaux de recherche [6, 7, 8] et les solutions solides sursaturées de ce système d'alliage se décomposent suivant les modes continus et discontinus, intervenant respectivement à haute et à basse température. Le mode discontinu est moins rapide que le mode continu. La partie intéressante du diagramme d'équilibre du système d'alliage Cu-In selon Hansen et Anderko [9] est représentée par la figure 1, avec un domaine de transition de la précipitation discontinue en précipitation continue selon Bohm [10], Predel et Gust [11], lequel est caractérisé par une réaction de grossissement lamellaire conduisant à une distance interlamellaire de 2 à 5 fois.

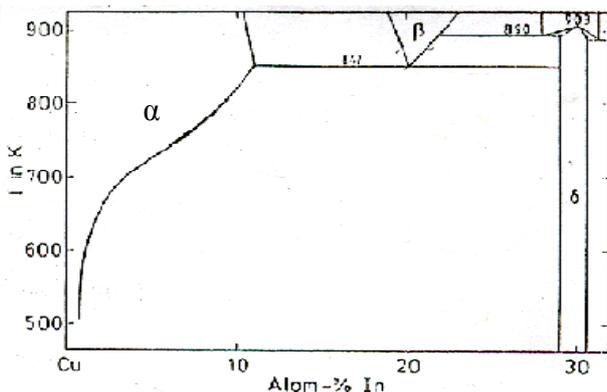


Figure 1 : Partie du diagramme d'équilibre du système d'alliage Cu-In [9,10,11]

Parmi les places préférentielles favorisant l'apparition du précipité cellulaire sont les joints de grains à forte désorientation, même la croissance cellulaire est inhibée quand le paramètre de désorientation des joints de grains est inférieur à 15° [12,13], la taille moyenne des grains initiaux possède aussi une influence considérable sur la morphologie du précipité.

Les mécanismes d'initiation de la précipitation discontinue proposés par Fournelle et Clark [14], puis par Tu et Turnbull [12] sont les plus plausibles dans ce système d'alliage, c'est-à-dire c'est une transformation liée à la dynamique du joint de grain.

Le modèle de croissance le plus rencontré dans ce système d'alliage est celui proposé par Frebel et Schenk [15] et dont la vitesse de croissance des lamelles précipitées dépend essentiellement de la vitesse du recuit de vieillissement et de la teneur du soluté dans ce système d'alliage (figure 2) [11]

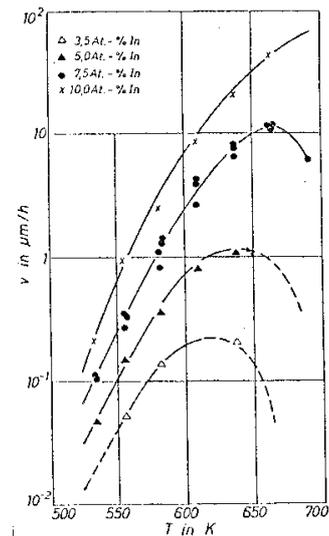


Figure 2 : Vitesse de croissance du précipité en fonction de la température de la température de vieillissement dans le système d'alliage Cu-In [11]

Deux types de réactions cellulaires ont été observés par Spenger et Mack [16] dans ce système d'alliage, l'une fine et l'autre grossière et dans les deux cas les lamelles sont réparties uniformément. Predel et Gust [17] ont aussi fait les mêmes observations (figure 3), dont la formation des lamelles épaisses se déroule principalement entre deux lamelles fines très proches et dans les deux cas le processus est contrôlé par la diffusion aux joints de grains. Les lamelles fines sont réparties uniformément, par contre la répartition des lamelles épaisses est désordonnée, donc il y a compétition entre la réaction primaire de précipitation et la coalescence des lamelles.



Figure 3 : Morphologie du précipité lamellaire dans l'alliage Cu-7,5At.-%In, homogénéisé, trempé, ensuite vieilli pendant 3,5 heures à 392°C [17]

Dans les anciens travaux on n'a pas pu observer les lamelles épaisses, car vraisemblablement elles apparaissent seulement après de longues durées de recuit et en plus elles nécessitent des outils d'observation performants.

Ce même phénomène a été observé dans plusieurs alliages tels que Al-Ag [18], Al-Cu [19], Au-Fe [20], Cu-Ag [21,22], Fe-Zn [23], Fe-Ni-Ti [24], Ni-Sn [25], Pb-Na [26], Cu-Ga [27], Cu-In [28] et Zn-Al [29].

Les types de précipité dans ce système d'alliage sont de la forme d'ourlet [30], quadratique et fissurée [31].

Expérimentalement, il a été démontré qu'une prédéformation au recuit de vieillissement influe considérablement sur le mécanisme et la cinétique de la précipitation [32]. D.B. Williams [33] affirma que sous l'influence de la déformation, la vitesse de précipitation continue d'augmenter par conséquent, le degré de sursaturation en atome de soluté diminue, ce qui implique une diminution de la force motrice de la réaction cellulaire.

2 METHODES EXPERIMENTALES

L'alliage Cu-4,6At.-%In à l'état trempé a une structure polycristalline surstructurée. La partie importante du diagramme d'équilibre du système Cu-In pour le traitement de vieillissement est qui correspond au faible pourcentage en indium est représentée par la figure.1. La solubilité maximale de la phase cubique centrée α est de 18,1 At.-%In à 574°C. La phase δ (Cu_9In_4), phase précipitée à partir de la phase sursaturée α a une composition de l'ordre de 29 à 30,6 At.-%In à toutes les températures au dessous de 613°C. La probabilité de changement du mécanisme discontinu en continu augmente avec l'élévation de la température.

L'alliage en question est préparé par fusion sous atmosphère inerte (argon), à partir du cuivre (5N5Cu) et de l'indium (5N5In) très purs. Les échantillons destinés aux travaux expérimentaux sont homogénéisés pendant 27 jours à la température de 600°C, ensuite trempé dans l'eau. Pour la mise en évidence de l'effet de la déformation sur les mécanismes de la précipitation discontinue on a utilisé 3 échantillons dans deux déformés par laminage à froid (voir tableau 1).

Tableau 1 : Etat des échantillons utilisés dans l'expérimentation

Echantillon	Etat	HV _{0,1}
1	Trempé	45
2	déformé $\epsilon_2=20\%$	52
3	déformé $\epsilon_2=70\%$	71

Les traitements de vieillissement sont effectués à une température relativement basse et qui est de l'ordre de 400°C, suffisante pour provoquer uniquement la précipitation discontinue. Afin que les échantillons ne subissent pas d'oxydation lors du recuit, un ensemble sous vide a été utilisé à cet égard. L'évolution structurale et celle de la microdureté (HV_{0,1}) lors des différents stades du recuit ont été suivi par différentes techniques notamment : la microscopie optique, la microdureté (HV_{0,1}) et l'analyse thermique différentielle.

3 RESULTATS ET DISCUSSION

Les résultats obtenus correspondent à ceux déjà envisagés dans la partie précédente. La température de vieillissement choisi est relativement basse (400°C), elle favorise uniquement la précipitation discontinue (lamellaire) et pas d'autre précipité à autre morphologie et quelque soit le taux de la prédéformation des échantillons. Les précipités sont du type à double ourlets fig 4 b, fig 5 b et fig 6 b avec des fronts de réaction possédant une allure ondulée. Donc la prédéformation n'a aucun effet sur la morphologie du précipité pendant le processus de germination qui s'effectue en premier lieu sur les joints de grains et surfaces libres et le mécanisme de plissement cité par les auteurs [12,14] a été observé, c'est-à-dire dans les premiers temps de germination le joint se plisserait localement pour absorber le précipité fig 5 d, ce qui confirme une précipitation due à une dynamique du joint de grain.

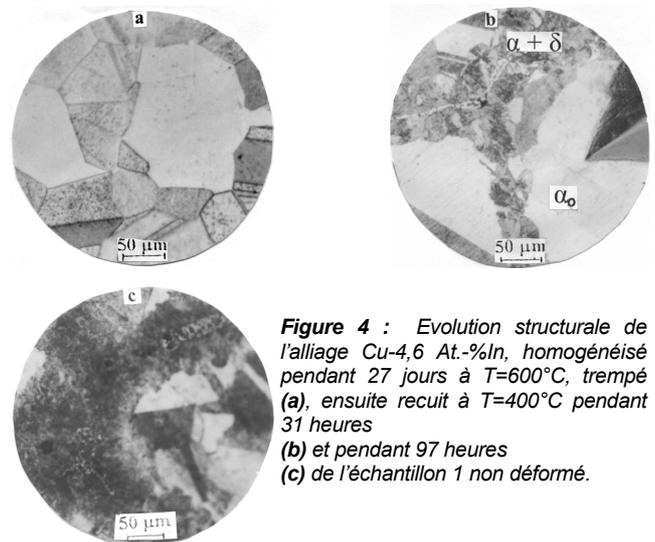


Figure 4 : Evolution structurale de l'alliage Cu-4,6 At.-%In, homogénéisé pendant 27 jours à $T=600^\circ\text{C}$, trempé (a), ensuite recuit à $T=400^\circ\text{C}$ pendant 31 heures (b) et pendant 97 heures (c) de l'échantillon 1 non déformé.

Cependant la précipitation s'effectue uniquement dans certaines zones et d'autres non, cela est dû vraisemblablement au gradient de l'érouissage et de la concentration du soluté existant dans l'échantillon. Par contre la vitesse de précipitation est beaucoup plus importante dans le cas des échantillons déformés (fig. 4c, fig. 5c et fig. 6c), où on peut remarquer que la quantité du précipité est beaucoup plus importante pour des taux de déformation importants. La taille moyenne des grains avant l'initiation de la précipitation discontinue influe sur les mécanismes de la précipitation discontinue, car la germination est beaucoup plus lente sur un joint de grain de petite taille que sur un joint de grain de taille plus importante, une taille critique moyenne des joints de grains mérite d'être mise en évidence pour tels cas. Le mécanisme de la précipitation est différent pour les divers joints de grains et cela est dû vraisemblablement à l'influence de la cinétique de germination qui dépend essentiellement de l'énergie spécifique interfaciale du joint de grain, même la dynamique du joint de grain est liée aussi à cette énergie.

La déformation n'a aucun effet aussi sur le croissane de la précipité, mais cependant on a pu observer deux réactions cellulaires, l'une donnant des lamelles fines et l'autre coalescées fig 5 d, ce qui implique une compétition entre la réaction primaire de précipitation et la coalescence des lamelles. La formation des lamelles coalescées s'effectue principalement entre deux lamelles fines très proches, ce grossissement commence vraisemblablement lorsque la totalité ou plus moins la grande partie de la structure est précipitée. Pour les lamelles coalescées, il s'agit toujours de la même phase comme celle de la précipitation discontinue. Les lamelles conservent au cours de leur croissance leur anisotropie de morphologie, la croissance des lamelles est plus remarquable dans les échantillons déformés que dans l'échantillon non déformé, c'est une croissance en largeur aboutissant à des ourlets étroits.

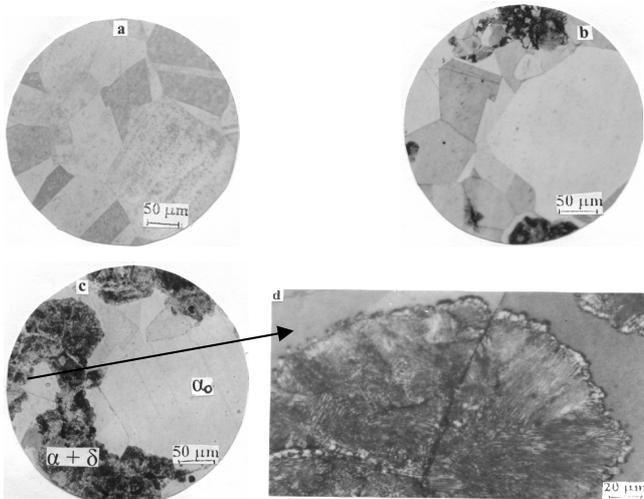


Figure 5 : Evolution structurale de l'alliage Cu-4,6 At.-%In, homogénéisé pendant 27 jours à T=600°C, trempé (a), ensuite recuit à T=400°C pendant 21 heures (b) et pendant 67 heures (c) de l'échantillon 2 déformé ($\epsilon=20\%$).

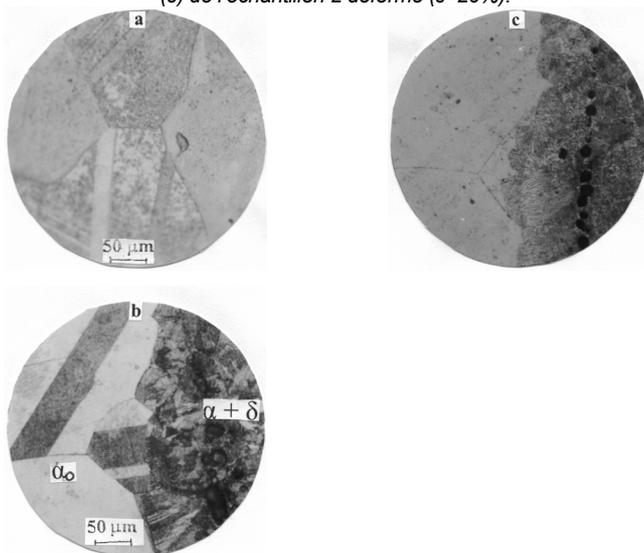


Figure 6 : Evolution structurale de l'alliage Cu-4,6 At.-%In, homogénéisé pendant 27 jours à T=600°C, trempé (a), ensuite recuit à T=400°C pendant 11 heures (b) et pendant 53 heures (c) de l'échantillon 3 déformé ($\epsilon=70\%$).

L'analyse thermique différentielle (fig.7), dont la courbe est caractérisée par une variation de l'énergie lors de l'élévation de la température et dont le pic exothermique confirme la précipitation d'une nouvelle phase et qui correspond à la phase intermétallique $Cu_9 In_4$. L'évolution de la microdureté ($HV_{0,1}$) (fig.8) confirme le durcissement structural de tous les échantillons lors de la précipitation discontinue. Cependant, ce durcissement est relativement important avec l'élévation du taux d'érouissage.

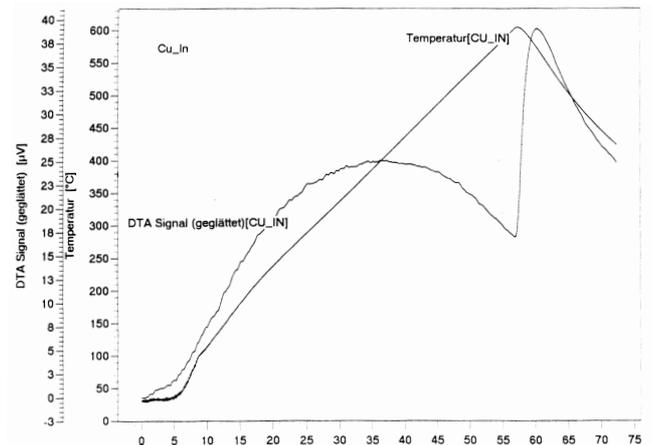
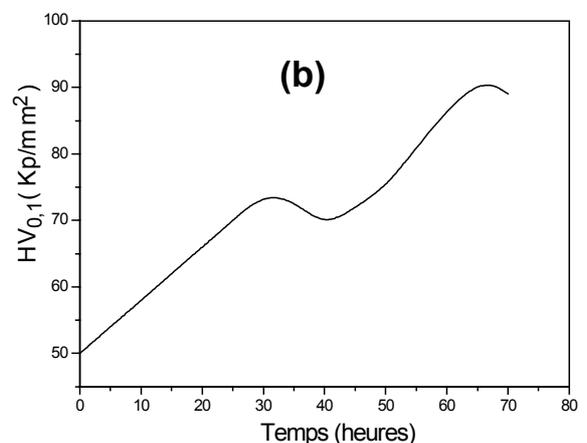
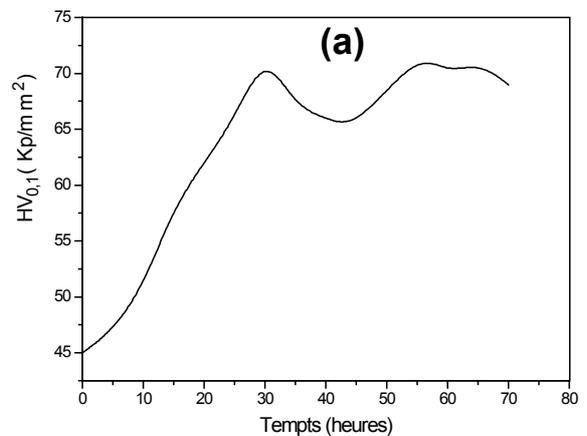


Figure 7 : Courbes de l'analyse thermique différentielle de l'alliage Cu-4,6 At.-%In, homogénéisé pendant 27 jours à T=600°C, trempé de l'échantillon 1 non déformé.



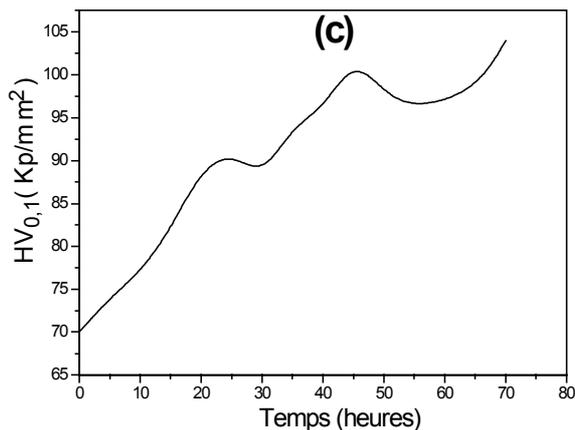


Figure 8 : Evolution de la microdureté $HV_{0,1}$ en fonction de la durée de recuit de vieillissement de l'alliage Cu-4.6 At.-%In, homogénéisé pendant 27 jours à $T= 600^{\circ}C$, trempé à l'eau, ensuite recuit à $T= 400^{\circ}c$,
 (a) échantillon 1 non déformé,
 (b) échantillon 2 déformé ($\epsilon=20\%$)
 (c) échantillon 3 déformé ($\epsilon=70\%$)

4 CONCLUSION

Les résultats obtenus par les différentes techniques d'analyse utilisées à cet égard sont cohérents entre eux et confirment plusieurs travaux consacrés à l'étude de la réaction de précipitation discontinue dans le système d'alliage Cu-In. Cependant, la température de $400^{\circ}C$ favorise uniquement la précipitation discontinue et pas d'autres précipités à autre morphologie. Les lamelles sont du type à double ourlet avec une allure ondulée. La présence des lamelles fines et coalescées confirme la compétition existante entre la précipitation et la coalescence des lamelles. Les joints de grains sont caractérisés par un plissement pour absorber le précipité lors de leur mouvement. L'effet du taux de déformation est remarquable sur la vitesse de la précipitation durant le stade initial. Par contre, aucun effet n'a été constaté sur la coalescence du précipité. La précipitation s'effectue uniquement dans certaines zones et dans d'autres non, cela est du vraisemblablement aux gradients de concentration du soluté et de la déformation. La taille moyenne initiale des grains possède aussi une influence sur les mécanismes de la précipitation. L'apparition de la nouvelle phase intermétallique Cu_9In_4 conduit finalement au durcissement de l'alliage dont les valeurs de $HV_{0,1}$ obtenues sont influencées principalement par l'état structural de chaque échantillon.

BIBLIOGRAPHIE

[1] Z. Boumerzoug. Précipitation discontinue dans les alliages binaires, thèse de Magistère, (1992)
 [2] W. Gust, B. Prebel et I. Nguyen, Z. Metallk., (1976)

[3] Y.C. Liu et H.I. Aaronson, Acta. Met., (1968)
 [4] B. Prebel et W. Gust, Mater. Sci. Eng, (1975)
 [5] Y.S. Kouchavenko, Phys. Met. Metall, (1975)
 [6] R.A. Fournelle, J.B. Clark, Met. Trans, (1972)
 [7] H. Bohm, Z. Metallk, (1959)
 [8] Z. Boumerzoug et D. Hamana, Mater. Chem. Phys, (2001)
 [9] M. Hansen et K.Anderko, constitution of binary alloys, M.C.Graw-Hill, New York, (1958)
 [10] H. Bohm, Z. Metallk, 50,87, (1959)
 [11] B. Predel, M. Frebel et W.Gust, untersuchungen zur DP in metallischen systemen, west deutscher verlag, Opladen, (1977)
 [12] K.N. Tu et D. Turnbull, Acta. met, 15, (1972)
 [13] Y.C. Liu et H.I. Aaronson, Acta. met, 16, (1971)
 [14] J.B. Clark, High temperature, High resolution metallography, Gordon and Beach, New York, (1976)
 [15] M. Frebel et J. Schenk, Z. Metallk., (1997)
 [16] C.W. Spenger et D.J. Mack, J. Inst. Metals, 8 ; 53-54, (1981)
 [17] B. Predel et W. Gust, Mater. Sci. Eng. 16, 239, (1974)
 [18] B. Predel et W. Gust, Mater. Sci. Eng. 10, 211, (1972)
 [19] P. Barrand, C.R.Tottle, D. Driver et A.B. Michelle, Acta. Met. 15, 1553, (1967)
 [20] M. Frebel et B. Prebel, Z. Metallk. (1971)
 [21] H. Borchers, W. Scharfenberg et R. Zurstege, Acta. Met, 22, 405, (1968)
 [22] W. Leo, Z. Metallk, 58, 456, (1967)
 [23] B. Predel et M. Frebel, Acta. Met, 20, 1259, (1972)
 [24] G.R. Speich, Trans. Aime, 227, 754, (1963)
 [25] M. Frebel, B. Predel et W. Klisa, Z. Metallk., 65, 311, (1974)
 [26] J. Petermann et E. Hornbogen, Z. Metallk.,59, 814, (1968)
 [27] C.W.Spenger et D.J.Mack, J.Inst.Metals, 84, , (1972)
 [28] C.W. Spenger et D.J. Mack, , J. Inst. Metals, 81, (1972)
 [29] D. Chethaum et N. Ridley, J. Inst. Metals, 99, 371 , (1971)
 [30] W. Gust, M.B. Hintz, B. Predel et V. Roll, Acta. Met, 28, 1235, (1980)
 [31] W. Gust, B. Predel et V. Roll, Acta. Met, 28, 1395, (1980)
 [32] H.I. Subakino, Metallography, 17, 371, (1984)
 [33] D.B. Williams et E.P. Buthler, Int. Met. Rev., 26, 153, (1981)