

REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE
MINISTERE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR ET DE LA RECHERCHE
SCIENTIFIQUE

UNIVERSITE MOULOU D MAMMERI DE TIZI OUZOU

FACULTE DE GENIE DE LA CONSTRUCTION
DEPARTEMENT DE GENIE MECANIQUE



Mémoire

DE FIN D'ETUDES

En vue de l'obtention du diplôme de master en
Génie-Mécanique
Option : sciences Des Matériaux

THEME

**Elaboration du composite à matrice
de cuivre renforcée par
l'intermétallique FeAl**

Proposé et dirigé par :
M_r : AZEM SAID

Présenté par :
M^{elle} : AOUINE SOUHILA

Promotion: 2011-2012

Remerciements

Le travail présenté dans ce mémoire a été réalisé au laboratoire de SDM du département de Génie mécanique de l'université Mouloud Mammeri de Tizi-Ouzou. A travers ces quelques lignes, je voudrais remercier tous ceux qui, par leurs conseils, par leurs compétences, ont contribué à son bon déroulement.

Ma spéciale gratitude et mes remerciements sont adressés à Monsieur AZEM Saïd de m'avoir proposé ce sujet et pour tous les moyens mis à disposition pour mener à bien ce travail.

Sa disponibilité, sa pédagogie et son expérience m'ont été très précieux tous au long de ce travail et ce fut pour moi un plaisir de travailler à ses côtés pendant cette durée.

Je tiens à remercier vivement tous les membres de jury d'avoir accepté de lire, d'examiner et de juger ce mémoire. C'est un honneur pour moi qu'ils fassent part de cette soutenance.

Je remercie mes amies que j'ai eu le plaisir de côtoyer, par leur bonne humeur, de leur chaleureuse compagnie et de leur encouragement surtout ces derniers jours : Dalila M. Lynda A. Hafida I et S.D.

En fin, je finirais par remercier toutes personnes qui ont cru en moi.

DEDICACES

Au nom de Dieu le clément et le Miséricordieux et En termes d'amour et de fidélité, je dédie ce présent mémoire :

Aux deux êtres les plus précieux au monde

Ma MERE et mon PERE QUE DIEU LES PROTEGE

A ceux qui m'ont entourée et soutenue mes FRERES :

HOUCINE, MOHAMED, L'AHCENE et KAMEL

A mes belles sœurs mes nièces et mes neveux

A mon futur mari et belle famille.

Pour leur affection, leur soutien et leur compréhension qu'ils m'ont prodiguée durant toutes ces années d'études.

A mes amis (es)

A moi-même

Souhila.

Sommaire

- Introduction.....1

Première partie : Synthèse bibliographique

Chapitre I : Généralités sur la métallurgie des poudres

- I.1. Introduction3
- I.2. Elaboration des poudres.....3
 - I.2.1. Le procédé mécanique.....4
 - I.2.2. Le procédé physique.....4
 - I.2.3. Le procédé chimique.....4
- I.3. Mise en forme en métallurgie des poudres.....4
 - I.3.1. Compression uniaxiale.....5
 - I.3.2. Compression isostatique à froid.....6
 - I.3.3. Compression isostatique à chaud.....6
- I.4. Le frittage.....7
 - I.4.1 Définition du frittage.....7
 - I.4.2. Différents types de frittage.....8
 - I.4.3. Les différentes étapes de densification du frittage en phase solide.....9
- I.5. Energies motrice du frittage.....12
- I.6. Les paramètres influant sur le frittage.....12

Chapitre II : Généralités sur la combustion auto-propagée SHS.

- II.1. Introduction.....14
- II.2. Définition et description phénoménologique.....14
- II.3. Les différents échanges lors de procédé SHS.....16
- II.4. Les matériaux synthétisés.....17
 - II.4.1 Les céramiques.....17
 - II.4.1.1. Les différentes familles de céramique technique.....18
 - II.4.2. Les intermétalliques.....20
- II.5. Les paramètres influant sur une réaction de type SHS.....21

- II.6. Techniques associées au procédé SHS.....22.
- II.6.1. Broyage à haute énergie et activation mécanique des réactifs.....22
- II.6.2. Le procédé MASHS.....23
- II.6.3. Le procédé MAFAPS.....23.
- II.6.4. Procédé SHS sous champ.....24.
- II.6.5. SHS centrifugation.....25
- II.7. Influence de l'activation mécanique sur les réactions SHS.....26

Chapitre III : Généralités sur la combustion auto-propagée SHS.

- III.1. Introduction27
- III.2. Caractéristiques du fer et aluminium pur..... 28
- III.3. Système Fe-Al.....30
- III.3.1. Diagramme d'équilibre Fe-Al.....30
- III.3.2. Structure cristallographique31
- III.4. Les mécanismes de transformations de phases dans le système31
- III.5. Propriétés des alliages fer-aluminium.....33
- III.6. Elaboration du composé FeAl par frittage réactif SHS.....35
- III.7. Influence du broyage à haute énergie sur la réaction SHS dans le système Fe-Al

Chapitre IV : Généralités sur les matériaux composites à matrice métallique

- IV.1. Introduction40
- IV.2. Présentation des matériaux composites..... 40
- IV.2.1 Définition.....40
- IV.2.2. Classification des matériaux composites.....41
- IV.2.2.1. Classification suivant la forme des constituants41
- IV.2.2.2. Classification suivant la nature des constituants42
- V.3. Les composites à matrice métalliques43
- IV.4. Constituants des composites à matrice métallique (CMM)43
- IV.4.1. Renforts43
- IV.4.1.1. Renforts discontinus43
- IV.4.1.2. Renforts continus.....45
- IV.4.2. Matrice46
- IV.5 Elaboration des CMMp par métallurgie des poudres...47

- IV.5.1. Procédé général48
- IV.5.2 Incorporation des particules par alliage mécanique.....49

Chapitre V : Matières premières et techniques expérimentales

- V.1. Introduction51
- V.2. Matières premières..... 51
- V.3. Caractérisation et préparation des poudres51
- V.3.1. Préparation des mélanges51
- V.3.2 Préparation des pastilles52
- V.4 / Le four de traitement thermique de frittage52
- V.5/Dispositif de la réaction SHS53
- V.6/ Caractérisation des échantillons traités.....54
- V.6.1 Le polissage.....54
- V.6.2 Polissage de finition.....55
- V.6.3 Attaque chimique.....55
- V.6.4 Observation au microscope optique.....55
- V.6.5 Microscopie électronique à balayage (MEB).....57
- V.7.4 Analyse par diffraction des rayons X (DRX)58

Chapitre VI : Elaboration de composé FeAl par frittage réactif SHS

- VI.1. Caractérisation des poudres élémentaires.....60
- VI.2/ Elaboration du composé FeAl par frittage réactif..... 63
- VI.2.1 Frittage du mélange Fe1-50% Al en atomes.....63
- VI.2.1.1.a Analyse dilatométrique du mélange Fe1-50% Al en atomes....64
- VI.2.2.Frittage du mélange Fe2-50% Al en atomes.....66

Chapitre VII : Elaboration d'un composite à matrice de cuivre et renforts FeAl

- VII.1. Matière première69
- VII.2/ Elaboration du composite à matrice métallique et renfort FeAl... 70
- VII.2.1 Composite Cu-20%FeAl fritté à 800°C.....71
- VII.2.2 Composite Cu-20%FeAl broyé 10h fritté à 800°C.....73
- VII.2.3 Composite Cu-20%Fe Al cobroyé 20h fritté à 800°C.....74
- VII.2.4 Composite Cu-20%FeAl broyé 20h fritté à 1130°C.....76

• VII.3/ Analyses EDS-X de l'échantillon.....	77
Conclusion.....	82
Référence bibliographique.....	83
Annexe.....	85

Liste des figures et tableaux

- Figure I.1** : Schéma du cycle de compaction.
- Figure I.2** : Différents processus de la métallurgie des poudres.
- Figure I.3** : Evolution de la densification.
- Figure I.4** : les trois étapes du frittage en phase liquide.
- Figure I.5** : Réarrangement des particules.
- Figure I.6** : Les transferts chimiques après le réarrangement.
- Figure II.1** : Principe d'une réaction SHS initiée localement avec déplacement du front de Propagation.
- Figure II.2** : Divers types de propagation du front de réaction.
- Figure II.3** : Etat des poudres métalliques lors des différentes étapes du broyage à haute énergie.
- Figure II.4** : Schéma de principe de procédé MAFAPAS.
- Figure II.5** : Principe du procédé FACS.
- Figure II.6** : Schéma d'élaboration par SHS centrifugation.
- Figure III.1** : Représentation schématique de la maille élémentaire du fer α et γ .
- Figure III.2** : Représentation schématique de la maille élémentaire d'aluminium.
- Figure III.3** : Diagramme d'équilibre du système Fe-Al.
- Figure III.4** : Structures cristallographiques B_2 , $D0_3$ et A_2
- Figure III.5** : La partie riche en fer du diagramme de phase FeAl.
- Figure III.6** : Influence de la teneur en aluminium et de la structure cristallographique sur la limite d'élasticité d'alliages Fe-Al.
- Figure III.7** : Analyse thermique et dilatométrique du mélange Fe-40%Al chauffé à 850°C avec une vitesse de 5°C/min.
- Figure III.8** : Schéma réactif d'un mélange Fe-40%Al pour deux vitesses.
- Figure III.9** : Diffusion de l'aluminium dans le fer en fonction de la température de frittage.
- Figure III.10** : Spectre de diffraction en temps réel du mélange FeAl élaboré par MASHS
- Figure III.11** : Comparaison d'un profil thermique obtenu par une SHS classique activé mécaniquement (MASHS) et celui d'une SHS classique.
- Figure IV.1** : Evolution du module de Young en fonction de la densité par ajout de renfort.
- Figure IV.2** : Morphologie des renforts discontinus.
- Figure IV.3** : Morphologie des renforts continus.
- Figure IV.4** : Principe général de la fabrication des CMMP par métallurgie des Poudres.
- Figure IV.5** : schéma d'élaboration par infiltration.
- Figure V.1** : Schéma du four tubulaire.
- Figure V.2** : Dispositif de la réaction SHS.
- Figure V.3** : polisseuse à deux disques.
- Figure V.4** : Microscope métallographique.
- Figure V.5** : Microscope électronique à balayage Philips XL30.
- Figure V.6** : Diffractomètre à rayons-x type panalytical.
- Figure VI.1.a** : Courbe de répartition granulométrique de la poudre Fe1
- Figure VI.1.b** : Aspect de la poudre Fe 1.
- Figure VI.2.a** : Courbe de répartition granulométrique de la poudre Fe 2

Figure VI.2.b : Aspect de la poudre Fe 2

Figure VI.3.a : Courbe de la répartition granulométrique de la poudre d'aluminium

Figure VI.3.b : Aspect de la poudre d'aluminium Al.

Figure VI.4 : Echantillon fritté à 1100°C d'un mélange Fe1 et Al.

Figure VI.5 : Courbe dilatométrique de l'échantillon Fe1-50% Al.

Figure VI.6 : Diffractogramme de l'échantillon Fe1-50% Al.

Figure VI.7 : Courbe dilatométrique de l'échantillon Fe2-50% Al

Figure VI.8 : Diffractogramme de l'échantillon Fe2-50% Al

Figure VII.1 : Courbe de répartition granulométrique de la poudre de cuivre.

Figure VII.2 : Aspect des particules de la poudre de cuivre.

Figure VII.3 : Poudre Fe Al obtenue à partir de Fe2 broyé manuellement.

Figure VII.4 : Micrographie optique de l'échantillon Cu-20%Fe Al fritté à 800°C.

Figure VII.5 : Observation en électrons rétrodiffusés au MEB de l'échantillon Cu-20%Fe Al fritté à 800°C.

Figure VII.6 : Diffractogramme de l'échantillon Cu-20%Fe Al fritté à 800°C.

Figure VII.7 : Micrographie optique de l'échantillon Cu-20%Fe Al broyé 10h et fritté 800°C

Figure VII.8 : Diffractogramme de l'échantillon Cu-Fe Al broyé 10h fritté à 800°C

Figure VII.9 : Micrographie optique du composite Cu-20%Fe Al cobroyé 20h et fritté à 800°C.

Figure VII.10 : Diffractogramme du composite Cu-20%FeAl cobroyé 20h fritté 800°C.

Figure VII.11.a : Micrographie de l'échantillon Cu-20%Fe Al broyé 10h fritté à 1130°C (zone1)

Figure VII.11.b : Micrographie de l'échantillon Cu-20%Fe Al broyé 10h fritté à 1130°C (zone 2)

Figure VII.12.a : Micrographie et résultats des analyses EDS-X de l'échantillon fritté en phase liquide.

Figure VII.12.b : Micrographie et résultats d'analyses EDS-X d'un point de la matrice.

Figure VII.13.a : Micrographie et résultats d'analyses EDS-X d'une aire sur la matrice.

Figure VII.13.b : Micrographie et résultats d'analyses EDS-X d'une aire sur une particule FeAl.

Tableau III.1 : Propriétés physiques de fer et d'aluminium

Tableau III.2 : Mécanismes de transformations dans le système Fe Al.

Tableau IV.1 : Exemples de matériaux composites.

Tableau IV.2 : Les caractéristiques des divers types de renforts.

Tableau V.1 : Désignation, provenance et pureté des poudres.

Introduction

Introduction

Plusieurs techniques sont mises en œuvre pour produire des systèmes particuliers contenant des constituants de nature différentes, le choix de la technique dépend des matériaux en présence. On peut envisager de mélanger des particules dans des appareils appropriés. Néanmoins, l'opération peut s'avérer délicate lorsque les produits possèdent des masses volumiques ou des tailles différentes.

Les matériaux composites à matrice métallique (CMM) font partie des matériaux à fort potentiel mécanique. Bien que présent depuis les années 1960, ces matériaux connaissent une diffusion limitée malgré leurs aptitudes. La maîtrise des différents stades de mise en forme est impérative pour pérenniser une activité industrielle et économique techniquement innovante.

La politique industrielle s'oriente dans le sens non seulement d'une économie d'énergie, mais également vers moins de pollution. L'élaboration par métallurgie des poudres (MDP) suscite ainsi un grand intérêt vu ses avantages techniques qui remplace les méthodes classiques pour un bon nombre d'applications.

L'une des techniques les plus répandues en MDP, est la synthèse par combustion auto-propagée (Self-propagating High temperature Synthesis). La synthèse se fait à partir des mélanges de poudres, éventuellement compactés. Cette méthode ne demande qu'un faible apport d'énergie initiale, par la suite elle va s'auto-entretenir par la chaleur dégagée au cours du développement de la réaction qui se propage alors sous forme de front de combustion avec consommation des réactifs et formation d'un ou plusieurs produits.

Parmi ces produits, les composés intermétalliques du système fer-aluminium font l'objet de ce travail. Comme la plupart des intermétalliques, ils possèdent une résistance mécanique élevée, une température de fusion élevée et une bonne résistance à l'oxydation. Néanmoins, la synthèse de ces composés par SHS engendre une importante porosité qui est due à la violence de la réaction.

Des chercheurs ont associé à cette réaction des techniques complémentaires afin de densifier le matériau, comme l'activation mécanique des réactifs (MASHS).

Notre travail consiste à élaborer le composé intermétallique FeAl, qui sera broyé et utilisé comme renfort de particules dans un composite à matrice de cuivre. Le choix de cette combinaison Cu-FeAl revient aux excellentes propriétés offertes.

Introduction

Notre étude comporte sept chapitres répartis en deux grandes parties :

- Une première partie traitant une synthèse bibliographique
- Une seconde partie exposant les résultats expérimentaux et leur interprétation.

Le travail est terminé par une conclusion générale qui reprend les paramètres essentiels d'élaboration du composé intermétallique FeAl et le composite Cu-FeAl.

Première partie
Synthèse
bibliographique

Chapitre I

Généralités sur la métallurgie des poudres

Chapitre I

Généralités sur la métallurgie des poudres

I.1/ Introduction :

La métallurgie des poudres (MDP) se réfère à un ensemble de procédés de fabrication et de mise en forme qui sont utilisés pour produire de différentes formes de pièces mécaniques à partir de mélanges de poudres de métaux purs ou alliages. Cette filière permet la réalisation des pièces de précision sans encourir une grande perte de matière.

Elle repose sur le principe d'imprégner à la poudre la forme et dimensions désirées des pièces par compression des constituants initialement à l'état pulvérulent, couplé d'un phénomène de frittage entre particules permettant la consolidation par apport d'énergie.

Comme il n'y a pas de fusion, le frittage consiste globalement en un soudage des grains par diffusion et fusion locale, cette technique permet de moins chauffer (donc de faire des économies d'énergie), et d'avoir un retrait faible au refroidissement.

Ce qui caractérise les opérations de cette technique de fabrication est le pouvoir d'obtenir des surfaces fonctionnelles, ne nécessitant pas d'usinage ultérieur, ce qui économise de la matière et la main d'œuvre tout en réduisant le coût et l'impact environnemental. Egalement, une réduction considérable d'énergie en évitant les traitements thermomécanique par maîtrise de la microstructure des pièces.

I.2/ Elaboration des poudres :

Il est intéressant de connaître le procédé d'obtention des poudres à utiliser afin de prévoir son comportement physico-chimique et mécanique durant le processus d'élaboration et au cours d'utilisation des matériaux produits. Les poudres sont généralement produites par voie mécanique, physique et chimique. Chacune de ces méthodes a une influence sur la taille des grains, leur répartition, leur forme et leur microstructure.

I.2.1 Le procédé mécanique

Basé sur le choc (le broyage) qui permet de réduire la taille des particules par fragmentation, et utilise aussi la mécano synthèse.

Le broyage est un procédé dans le quel la production de choc conduit à une succession de fractures et de soudure des grains de poudres à des températures relativement modérées. Il en résulte un mélange à l'échelle atomique des différents constituants élémentaires des poudres initialement introduites dans les conteneurs de broyage [1].

Diverses formes de particules peuvent être produites, elles dépendent du métal de base. Cette étape procure à la poudre de fer une haute compressibilité.

I.2.2 Le procédé physique :

C'est une technique d'atomisation, dont les poudres peuvent être obtenues à partir d'un métal liquide dispersé en fines gouttelettes par pulvérisation d'un courant d'air ou de vapeur d'eau sous haute pression avant d'être solidifié dans un gaz ou liquide (eau, huile).

I.2.3 Le procédé chimique

On distingue une diversité de méthodes de préparation de poudres par voie chimique, qui consiste à faire intervenir un réactant et un réactif. L'une des méthodes chimiques la plus employée pour l'élaboration des poudres métalliques est la réduction des oxydes qui consiste à réduire les oxydes métalliques par chauffage à une température inférieure à la température de fusion du constituant en présence d'agent réducteur [7]. D'autres méthodes existent comme : l'électrolyse d'une solution liquide d'un sel de métal désiré, nous avons également la décomposition des complexes carbonyles de métaux.

I.3/ Mise en forme en métallurgie des poudres :

Le principe général de mise en forme des poudres consiste en l'élaboration d'un matériau compact, d'une bonne tenue mécanique et de forme définie à partir d'un matériau granulaire.

La phase compression vise deux buts, la densification par rapprochement et la déformation des grains solides à l'aide d'une pression externe et l'obtention d'un comprimé ayant la forme et dimensions désirées.

I.3.1 Compression uniaxiale :

C'est la méthode de compression la plus utilisée, le cycle de compaction est décrit (figure I.1) comme suit :

- Le remplissage de la matrice avec une quantité contrôlée de poudre

- La densification de la poudre : les deux poinçons se déplacent l'un vers l'autre en appliquant une pression, générant ainsi un comprimé conforme à la forme et à la taille de la matrice et des poinçons.
- L'extraction du comprimé de la matrice

Au court de la compression, la poudre est soumise à trois phénomènes physiques

- Le réarrangement des grains dus à la réduction d'espaces inter-granulaires accompagnés de fracturation ou fragmentation.
- La compression commence avec l'augmentation des zones de contact et apparition des surfaces planes sur les grains.
- Au delà d'une certaine pression, les déformations ne sont que plastiques ce qui diminue la porosité par création de soudures ou ponts.

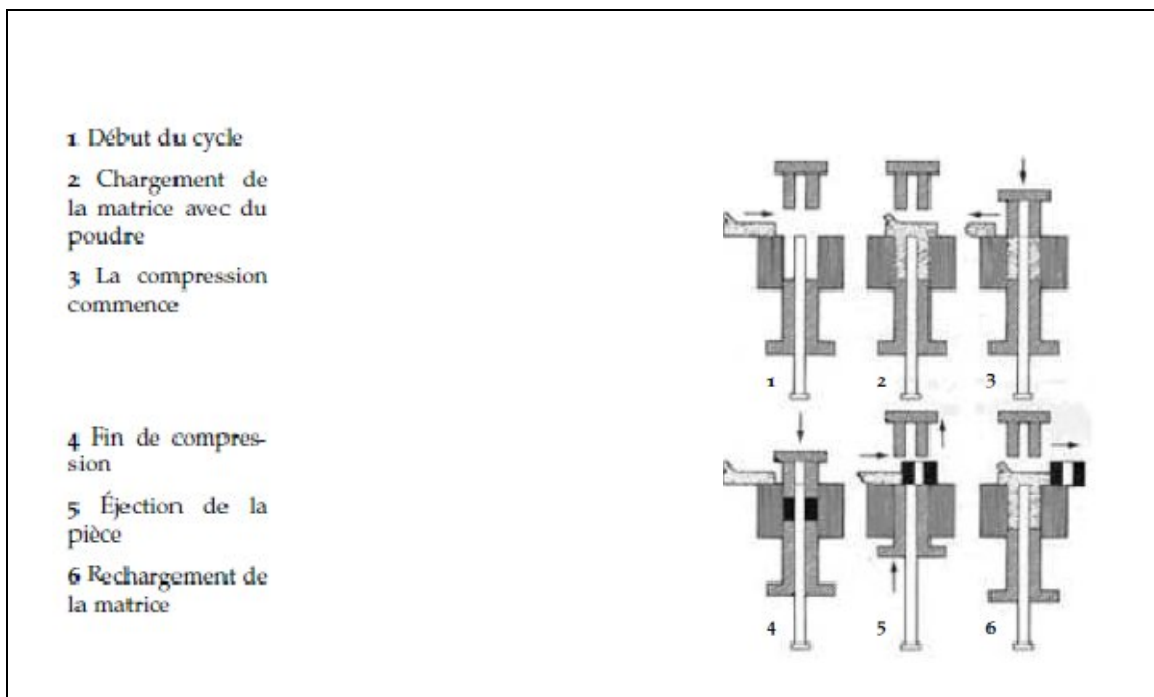


Figure I.1 : Schéma du cycle de compaction [2]

Pour un comprimé, l'état de compacité des matériaux est quantifié par la densité relative qui est égale à la densité obtenue par le comprimé rapportée à la densité théorique. Les comprimés ainsi obtenus, désignés par pièces à vert, possèdent la forme désirées mais leurs

propriétés mécaniques sont médiocres, l'amélioration de ces dernières nécessite l'opération de frittage.

I.3.2 Compression isostatique à froid (CIF) :

Le principe de ce procédé, dont les sollicitations sont purement mécaniques, consiste à immerger un conteneur souple rempli de poudre dans un liquide, habituellement de l'eau, qui est comprimé à une haute pression. La poudre est soumise à une pression approximativement identique dans toutes les directions.

I.3.3 compression isostatique à chaud (CIC) :

Ce procédé combine des sollicitations mécaniques et thermiques. Son principe est de placer la poudre dans un conteneur sur lequel est appliquée une pression isotrope. Celle-ci est portée à une température proche de celle de fusion du matériau. La méthode est utilisée pour la consolidation des superalliages à base de nickel, et composites à matrice d'aluminium, les pièces ainsi obtenues ont des propriétés physiques et mécaniques isotropes avec une porosité minime.

Les étapes de la métallurgie des poudres sont résumées par le schéma suivant :

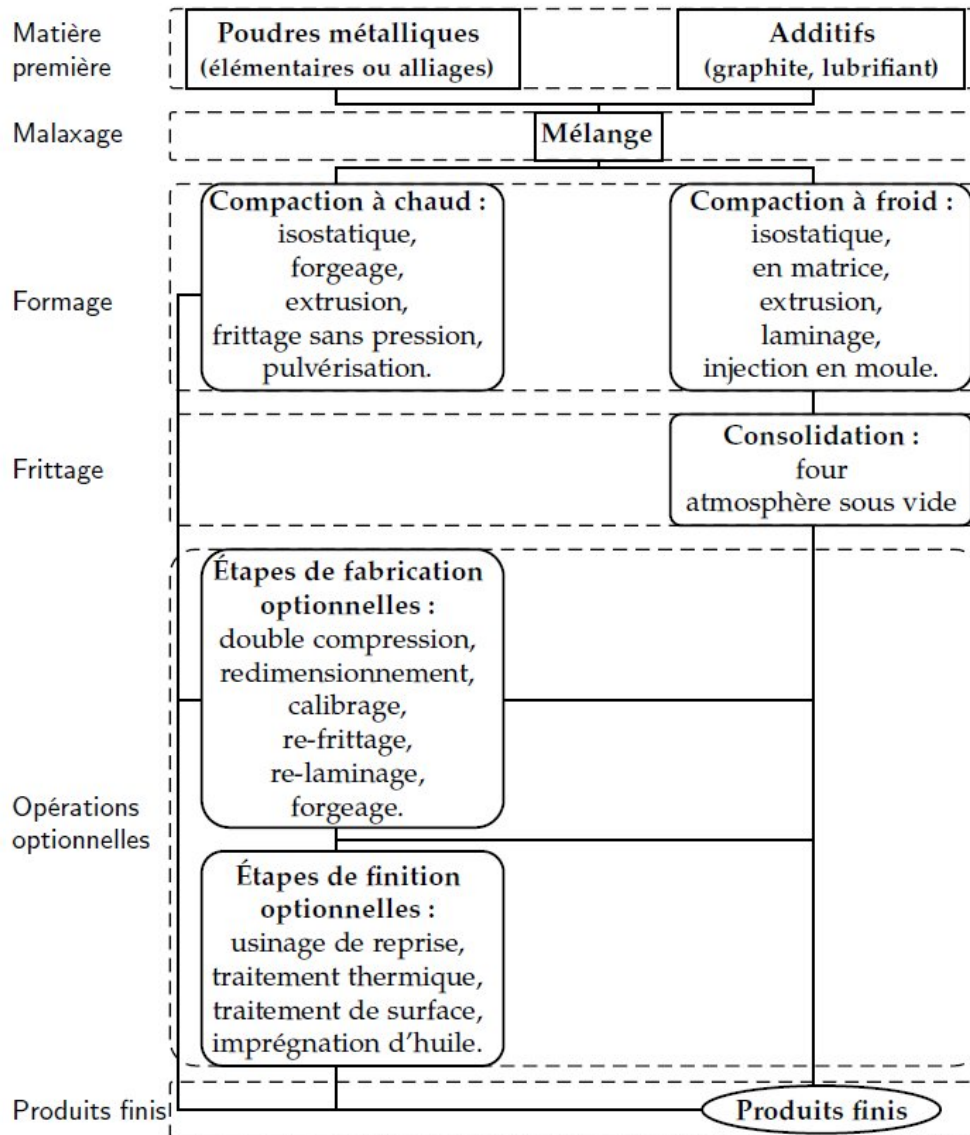


Figure I.2 : Différents processus de la métallurgie des poudres [2]

I.4/ Le frittage :

I.4.1 Définition du frittage :

Le frittage est un traitement thermique qui vise la consolidation par action de chaleur d'un agglomérat granulaire plus ou moins compact, avec ou sans fusion d'un ou de plusieurs de ses constituants. Le cycle de température imposé lors de l'opération implique des changements de la microstructure et la composition qui déterminent par la suite les propriétés physique et mécaniques du produit final.

I.4.2 Différents types de frittage :

Le procédé peut se dérouler à l'état solide (le frittage en phase solide), ou mettre en jeu la formation de liquide, stable ou transitoire à la température de frittage : c'est le frittage avec phase liquide.

Après frittage, si le matériau obtenu a la même composition chimique que la poudre initiale alors il s'agit d'un frittage non réactif et si la composition diffère on parle de frittage réactif.

- **Frittage en phase solide :**

Ce type de frittage est utilisé pour les matériaux à haut point de fusion, il s'effectue à une température inférieure à celle de fusion des deux constituants avec un certain temps de maintien à cette température.

La densification se caractérise par un transport de matière par diffusion. Après traitement, on constate certaines évolutions telles que : la création d'une cohésion entre particules par formation des ponts de raccordement, augmentation de la densité du système par élimination plus au moins importante des pores.

Deux mécanismes ont été proposés à partir d'un modèle qui suppose que les particules de poudres sont de forme sphérique de rayon (r) uniforme et tangentes entre elles.

Les mécanismes avec retrait, si la matière diffuse par l'élargissement du pont de raccordement provient de la zone de contact entre les deux particules et de la surface globale des particules, celle-ci se rapprochent et on distingue un retrait volumique et élimination de porosité.

Les mécanismes sans retrait sont liés au rayon du raccordement qui augmente sans rapprochement des centres des sphères donc sans retrait apparent, autrement dit, la matière diffusée provient uniquement des parties convexes voisines du pore [3].

I.4.2 Les différentes étapes de densification du frittage en phase solide :

Les premiers travaux sur le frittage ont été développés à l'échelle de grain par Frenkel (1945), Coble (1961). Leurs travaux ont permis de le décomposer d'une manière phénoménologique en trois étapes [4].

- La première étape, commence par la formation des cous et soudures entre particules.
- Durant la seconde étape, la densification se poursuit et la porosité s'élimine progressivement.

- La dernière étape, c'est la plus lente, là les pores sphériques apparaissent isolés le long des joints de grains ainsi une élimination progressive de la porosité fermée (Figure I.3)

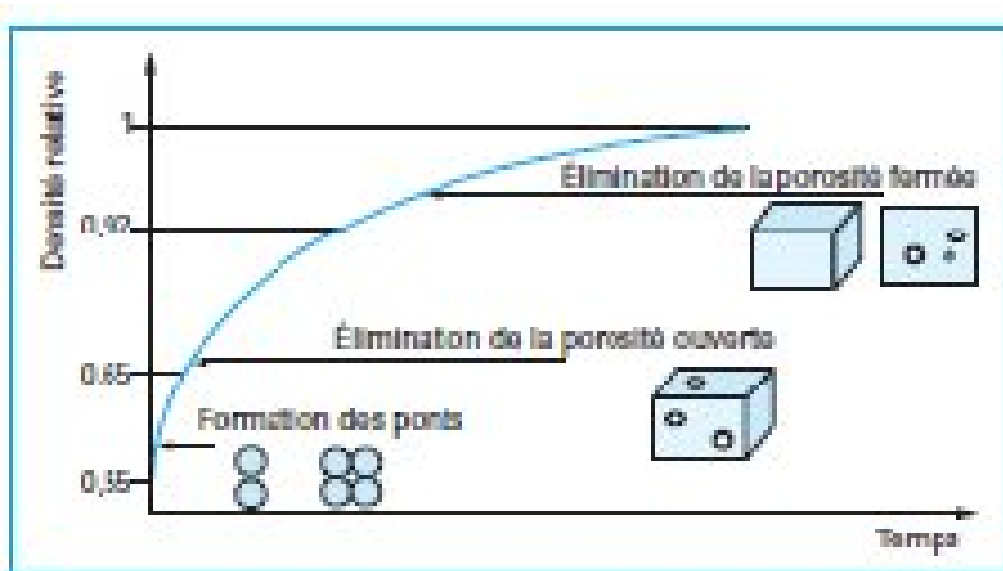


Figure I.3 : Evolution de la densification [6].

- **Frittage en phase liquide :**

C'est le frittage adéquat pour les poudres ayant au moins deux constituants. La température de fusion de l'un des deux doit être inférieure à celle du frittage, dans le but de permettre l'apparition de la phase liquide qui densifiera le matériau. La phase liquide peut être transitoire ou permanente. On distingue trois étapes (Figure I.4) :

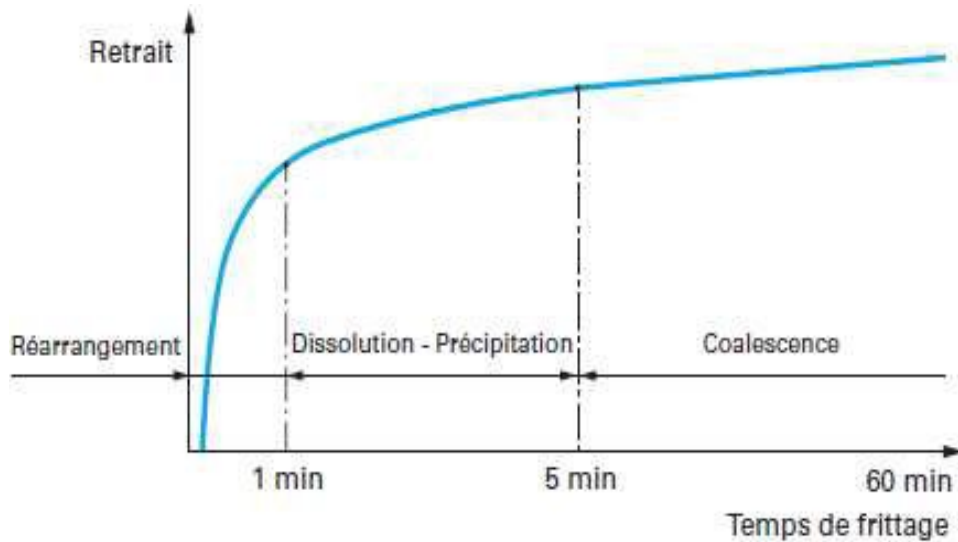


Figure I.4 : les trois étapes du frittage en phase liquide [7]

1) Réarrangement

La courte durée de cette étape n'empêche pas la densification due au retrait des particules solides induit par le déplacement des unes par rapport aux autres, ainsi générant effondrement des ponts sous l'action des forces capillaires. On peut expliquer ce réarrangement par un mouillage des grains par le liquide.

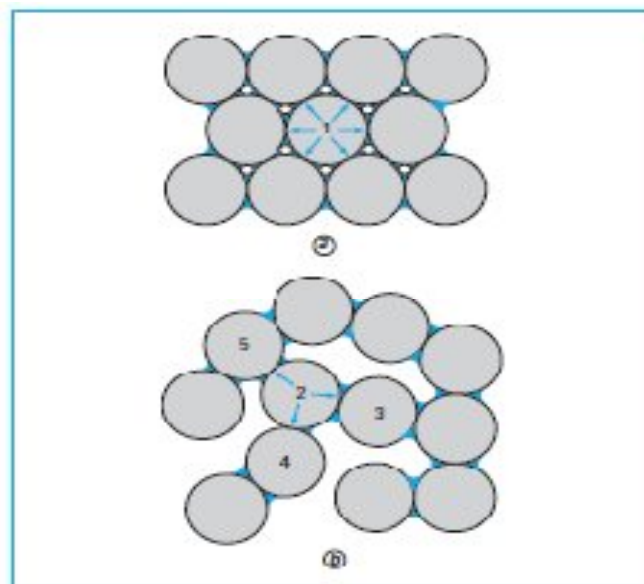


Figure I.5 : Réarrangement des particules [7]

2) Dissolution-précipitation

Un simple réarrangement ne suffit pas pour éliminer la totalité de la porosité, alors la densification se fait par les phénomènes dissolution-précipitation, par solubilité de la phase solide dans le liquide. Les forces capillaires naissent aux points de contact au sein des particules ce qui implique que la solubilité du solide dans le liquide est plus élevée que dans les parties éloignées. Ce qui provoque une dissolution du solide en contact, une diffusion dans le liquide et une précipitation sur les surfaces libres afin de rapprocher les centres des particules ce qui engendre une densification du matériau.

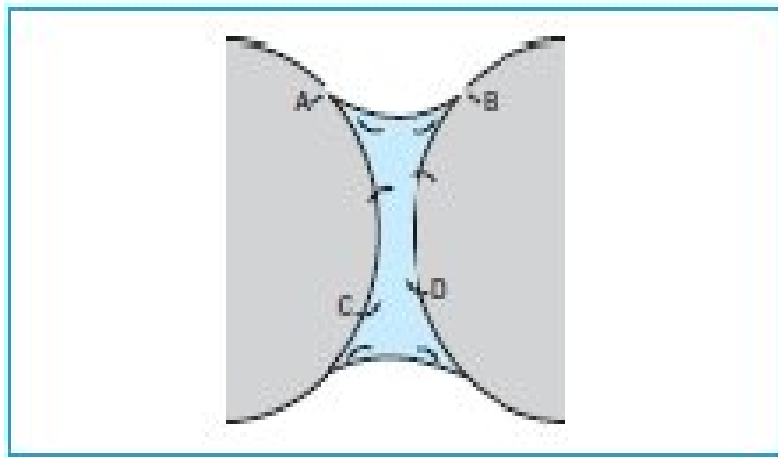


Figure I.6 : Les transferts chimiques après le réarrangement [7]

3) La coalescence

Autrement dit, évolution microstructurale supposée être plus lente que les deux autres étapes, elle se caractérise par :

- la disparition des pores résiduels par diffusion vers la surface.
- La formation de gros grains.

- **Le frittage réactif**

Le frittage est dit réactif si la composition du fritté diffère de la composition des poudres de départ. C'est un procédé nécessitant deux espèces différentes portées à une température favorable au déclenchement d'une réaction chimique.

- **L'effet Kirkendall**

Dans un système polyphasé, on peut s'attendre à avoir la mobilité ou des solubilités différentes entre les espèces différentes. Il en résultera des vitesses de diffusions inégales. C'est le cas des poudres ayant des températures de fusion très écartées. Cette inégalité dans les vitesses de diffusion engendre l'apparition de l'effet Kirkendall qui se manifeste par :

* le gonflement des granulés de l'espèce diffusant le plus lentement provoqué par l'intrusion des atomes de l'espèce qui diffuse plus rapidement.

* formation de porosité dans les granulés de l'espèce diffusant plus rapidement.

1.5 / Energies motrice du frittage

Comme tout mécanisme qui évolue, l'apport d'énergie est indispensable. L'énergie motrice du frittage assure le transport d'atomes par diffusion qui conduit à une diminution de l'enthalpie. Elle se manifeste sous diverses natures :

- **Energie de surface** : qui diminue par réduction de surface globale lors de formation des ponts entre les granulés de poudres
- **Energie liée à l'existence d'un gradient de défauts structuraux** : tels que les lacunes existantes dans les grains de poudres. L'excès de ces lacunes est due à l'existence de courbures de surfaces.
- **Energie liée aux équilibres entre les phases** : généralement les poudres de base présentent des parties saillantes où les contraintes mécaniques engendrent des dislocations.

I.6 / Les paramètres influant sur le frittage

1- densité à cru : la densité s'améliore par une densité à cru faible. En effet, une grande densité à cru favorise la formation d'une structure rigide et diminue ainsi l'effet de réarrangement du premier stade.

2- la durée du frittage : c'est le temps nécessaire pour atteindre une densification complète. Elle est liée à la température de frittage, qui à son augmentation, la durée du frittage diminue. Cependant un long frittage grossit le grain et augmente la taille du pore.

3- La température de frittage : La température idéale est de l'ordre de 2/3 ou 3/4 de la température de fusion. Comme de nombreux phénomènes faisant appel à des mouvements

d'atomes, la température fait augmenter rapidement la vitesse de frittage que l'on peut caractériser par la valeur du retrait [5].

4- L'atmosphère de frittage : dans la métallurgie des poudres le pire ennemi c'est l'oxydation, comme quoi travailler sous atmosphère neutre, sous vide ou atmosphère réductrice réduit ce risque.

Chapitre II

Généralités sur la combustion auto-propagée SHS

Chapitre II

Généralité sur la combustion auto-propagée SHS.

II.1/ Introduction :

Pour que le progrès technologique et industriel n'ait pas d'impact néfaste sur l'environnement, la recherche et l'innovation sont les premières clés qui attirent l'attention. En effet, pouvoir concevoir des produits compétitifs à bas prix et économie d'énergie devient une piste à explorer et un terrain à gagner pour de nombreuses nations.

C'est dans ce contexte qu'un nouveau procédé de synthèse des matériaux a vu le jour, combustion auto-propagée SHS, qui grâce à son faible cout, sa facilité et rapidité d'exécution lui ont permis de devancer les méthodes conventionnelles. Il a été mis en évidence en 1825 par Berzelius et en 1860 l'importance de la nature pulvérulente des matériaux utilisés est évoquée par St Deville et Troues, par suite des modifications ont été apportés, jusqu'a 1895 ou un front de combustion était décrit par Goldschmidt.

Il ya 50 ans, des équipes soviétiques se sont intéressées à cette technique dont un grand nombre de matériaux sont synthétisés et seulement depuis 20 ans que des équipes européennes, américaines et japonaises s'y sont mises.

II.2/ Définition et description phénoménologique de la réaction SHS

Le procédé SHS (acronyme anglo-saxon pour Self-propagation High température Synthèses), appelé souvent synthèse par combustion solide, ou synthèse par combustion auto-entretenu consiste à mélanger intimement les réactifs (généralement sous forme de poudre), éventuellement à les compacter, puis à amorcer la réaction par un apport brutal et locale d'énergie [8]. C'est une nouvelle technique potentielle de production, étudiée depuis 1960.

Cette synthèse entraine une réaction suffisamment exothermique qui lui permet de s'auto-entretenir, de se propager comme une onde de combustion et de fournir un potentiel considérable permettant le développement des moyens accessibles et énergétiquement efficaces aptes à produire des matériaux avancés. En effet, quelques auteurs ont espéré que les matériaux produits par ce type de réaction aient des propriétés meilleures que celles des matériaux fabriqués par les méthodes conventionnelles [9].

Les différents avantages de ce procédé sont : son faible cout en énergie, son temps d'élaboration très court, l'utilisation d'un équipement réduit et la simplicité du processus. Comme il permet d'aboutir à des produits avec une pureté élevée, des phases complexes et métastables ainsi qu'une formation et densification simultanée du matériau . Ces avantages ont permis beaucoup d'applications telles que : l'abrasif, les outils de coupe, les éléments résistants au chauffage et les alliages à mémoires de forme. Par conséquent, ce procédé se présente comme une technique efficace d'énergie avec une capacité de production très élevée.

Pour s'initier, un compact pressé avec des composants en poudres de métal et amorcer localement et brutalement à une de ses extrémités. La chaleur, exigée pour commencer la réaction, peut être fournie par une flamme, une impulsion de laser, une résistance électrique.

Une fois que la température atteint une certaine valeur, la réaction se déclenche et à cause de son exo thermicité, elle produit une énergie suffisante qui lui permet de se propager à travers l'échantillon sous forme d'une vague jusqu'à consommation complète des réactifs.

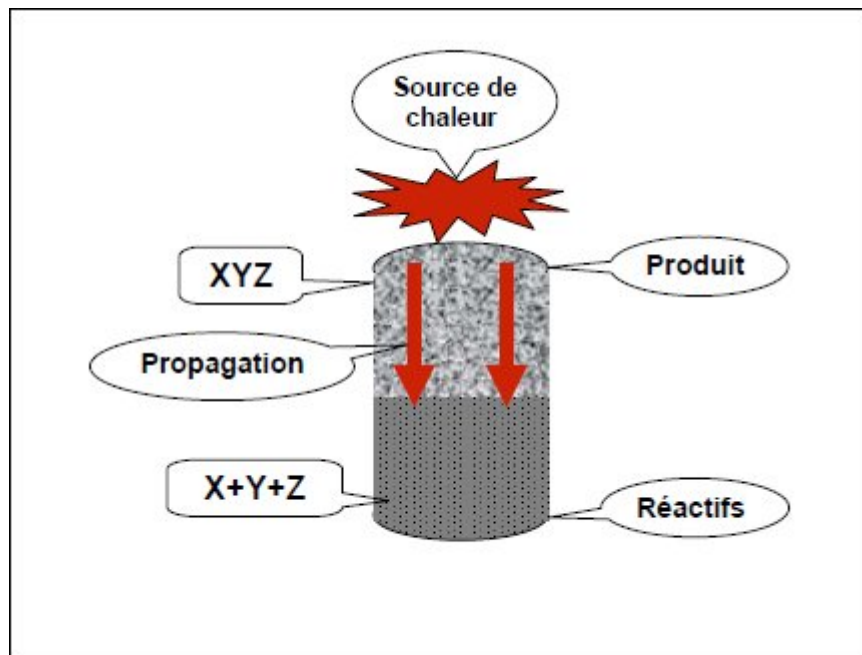


Figure II.1 : Principe d'une réaction SHS initiée localement avec déplacement du front de propagation [10].

Une fois la température d'amorçage atteinte, les réactions d'auto combustion mettent en jeu des processus complexes (transport d'énergie et de masse), en effet, l'énergie fournie provoque un désordre et une diffusion .

Dans ce genre de réaction, le paramètre le plus important est la température maximale atteinte par le système, souvent bien supérieure aux températures de fusion des réactifs, cette chaleur permet d'éliminer certaines impuretés sous forme gazeuse.

Expérimentalement, on peut recenser trois types de propagation :

- La propagation du front de réaction est dite stable, c'est que quelque soient les valeurs choisies des paramètres, la vitesse d'avancée est constante (figure II.2.a).
- Une propagation pulsée (figure II.2.b)
- Une propagation de type spin c'est une forme hélicoïdale de propagation d'un point chaud de la surface de l'échantillon (figure II.2.c).

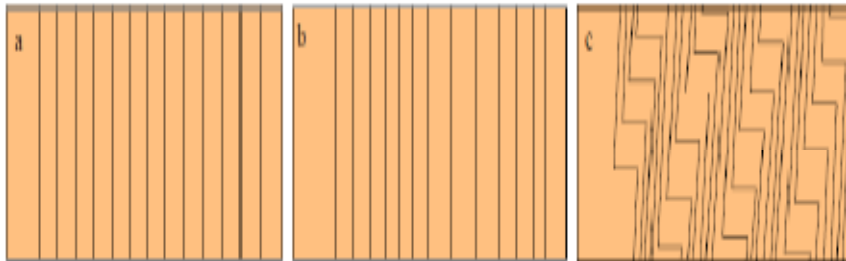


Figure II.2 : Divers types de propagation du front de réaction [1].

Malgré tous les avantages que ce procédé procure, il reste encore mal contrôlé et conduit à des matériaux très poreux. Néanmoins, il reste possible d'obtenir des pièces denses par application d'une pression mécanique après ou pendant la réaction SHS [11].

II.3/ Les différents échanges lors de procédé SHS

La réaction peut être décrite par trois phénomènes :

- ✓ L'échange de chaleur entre l'échantillon et son environnement
 - ✓ Le transport de chaleur au sein de l'échantillon
 - ✓ La cinétique chimique en phase hétérogène.
-
- **Les échanges avec l'environnement** : on a trois modes de transmission de chaleur, soit par conduction, convection ou rayonnement. La réduction des points de contacts entre l'échantillon et le porte échantillon minimise la conduction. Dès que la température dépasse les 400°C, les

échanges par rayonnement prennent le dessus sur les échanges par convection à pression constante.

- **Le transport de chaleur au sein de l'échantillon** : est décrit par l'équation de la chaleur (pour les réactif et les produits) dont les paramètres sont la capacité calorifique à pression constante C_p , la densité de l'échantillon ρ et sa conductivité thermique λ . L'enthalpie de formation du produit ΔH_f° et l'avancement de la réaction α régissent l'exothermicité de la réaction.
- **Enfin, la cinétique chimique en phase hétérogène**, est certainement la plus difficile à approcher car il n'existe pas d'équation décrivant correctement dans le cas général de la cinétique chimique d'une réaction se déroulant en phase hétérogène. La réaction même n'est pas dans le cas général limitée par la cinétique chimique, mais par d'autres phénomènes de transport, diffusion en phase liquide, convection en phase liquide, évaporation-condensation, capillarité d'un réactif liquide au sein d'un solide (mouillage réactif). Tous ces phénomènes peuvent avoir lieu simultanément, et il s'y ajoute même des phénomènes liés à des impuretés, qui peuvent temporairement jouer le rôle de barrière de potentiel (oxydes ralentissant la réaction).

II.4/ Les matériaux synthétisés par SHS

La synthèse par combustion a attiré une attention particulière pour la production des différents matériaux réfractaires à points de fusion élevés tels que les céramiques, les intermétalliques et les composites.

II .4.1. Les céramiques

Le terme céramique signifie souvent des objets rustiques comme des poteries, des briques et des tuiles mais généralement, signifie un solide qui n'est ni un métal ni un polymère.

Une céramique est un matériau solide de synthèse qui nécessite souvent des traitements thermiques pour son élaboration. La plupart des céramiques modernes sont préparées à partir de poudres consolidées (mise en forme) et sont densifiées par traitement thermique (le frittage).

Les céramiques possèdent une structure à l'échelle atomique comme les métaux (cristalline ou amorphe), se caractérisent par la nature des liaisons chimiques : ioniques ou covalentes entre les éléments et leurs structures cristallines. La force de ces liaisons confère à ces matériaux des modules de Young, des contraintes de ruptures et des duretés assez élevés. Les

céramiques présentent par ailleurs une bonne résistance à l'oxydation et à la corrosion à hautes températures, comme elles présentent de faibles coefficients de dilatation.

On distingue deux types de céramiques :

- Les céramiques traditionnelles : elles sont issues de matières naturelles (argile, kaolin, quartz) et généralement mise en œuvre par coulée, comme la faïence, terre cuite (briques de construction), porcelaines (vaisselle, objets décoratifs).
- Les céramiques techniques : regroupent les matériaux récemment développés dans les laboratoires de recherches en raison de leurs propriétés chimiques ou physiques exceptionnelles. Elles sont obtenues souvent par frittage.

II.4.1.1. Les différentes familles de céramiques techniques

Les familles de céramiques les plus importantes sont les oxydes tel les dioxydes de zirconium ZrO_2 , les nitrures tel le nitrure d'aluminium AlN , les carbures tel le carbure de silicium SiC , et tous les composés entre les métaux et les métalloïdes. Parmi les céramiques binaires, les oxydes métalliques sont les plus importantes.

La céramique peut être aussi composée d'un seul élément chimique, tel le bore B.

- **Les carbures** : ont un point de fusion élevé, une haute stabilité, une grande dureté et une très conductivité thermique et électrique, mais sont très fragiles. De plus, de nombreux carbures réfractaires sont disposés à subir l'attaque de l'atmosphère
- **Les nitrures** : sont des éléments de transition, dont le bore, le silicium et l'aluminium qui forment des nitrures à haut point de fusion. Les nitrures réfractaire ont un point de fusion plus élevé que les oxydes et les sulfures. Toutefois, le Si_3N_4 et le BN connaissent un intérêt grandissant, ils sont stables dans l'air et résistent assez bien aux attaques chimiques.
- **Les borures** : ont un point de fusion compris entre 1900 et 3000°C, et sont peu volatiles. Ils ont une basse résistivité électrique, une haute stabilité et une dureté élevée. A des températures supérieures à 1200°C, ils sont très peu résistants à l'oxydation.
- **Les sulfures métalliques** : sont thermodynamiquement stables à haute température et possèdent un point de fusion élevé.

Tableau II.1 : Caractéristiques des familles de céramique

Eléments	Désignation	Struct.cristal.couleurs	Caractéristiques	Utilisation
Borures	<ul style="list-style-type: none"> • TiB_2 • ZrB_2 • Ti, Nb • Zr, V • B_aB_6 	<p>-hexagonale</p> <p>-hexagonale</p> <p>-cubique</p>	<p>-Résistance mécanique et au fluage.</p> <p>-Résistance au choc thermique.</p> <p>-résistance à la corrosion à haute température.</p>	-Pièce de réacteurs nucléaire.
Carbures	<ul style="list-style-type: none"> • Tic • Sic • Zrc • B_4C 	<p>-hexagonale ou cubique</p> <p>Incolore-noir</p> <p>-cubique</p> <p>-rhomboédrique noir</p>	<p>-Faible résistance à l'endommagement.</p> <p>-durs, réfractaires, résistance aux chocs</p>	<p>-outils de coupes, abrasion.</p> <p>-éléments de réacteur nucléaire.</p> <p>-résistance électrique.</p>
Oxydes métalliques	<ul style="list-style-type: none"> • Al_2O_3 • ZrO_2 • TiO_2 	<p>-hexagonale incolore</p> <p>-monoclinique en dessous de $1000^\circ C$</p> <p>blanc</p>	-	<p>-abrasifs, porte échantillon dans le four.</p> <p>-pièces des réacteurs, couronnes dentaires.</p> <p>-matière fluorescente.</p>

Nitrures	<ul style="list-style-type: none"> • Si_2N_4 • TiN • TaN • AlN • TiN • Si_3N_4 	-poudre amorphe	<p>- essentielleme nt durs, réfractaires et stables chimiquemen t.</p> <p>-abrasif. -électrodes et matériau de mesure à haute T°.</p>
Siliciures	<ul style="list-style-type: none"> • Mo_5Si_3, MoSi_3 • TiSi_3, TiSi_3 		Faibles densités, résistance à l'oxydation à haute T° .

II.4.2. Les intermétalliques

Les intermétalliques sont parmi les matériaux pour lesquels l'avenir du procédé SHS est le plus prometteur, ces composés deviennent une nouvelle orientation d'études et une nouvelle tendance de développement [12], car Ils présentent certaines propriétés spécifiques très intéressantes. Toutefois, des chercheurs travaillent l'amélioration des paramètres d'élaboration. Parmi le grand nombre de composés intermétalliques existant, ceux basés sur des aluminures de métaux de transition comme le nickel, le fer ou le titane ont été largement étudiés durant les dernières décennies pour leur application comme éléments structuraux à hautes températures.

Les aluminures sont les plus utilisés pour leur grande stabilité chimique, leur résistance à la corrosion, leur propriétés mécaniques et résistance à l'oxydation à haute température.

Les composés Ti-Al, notamment le TiAl et le Ti_3Al , ont fait l'objet de nombreuses recherches et sont envisagés pour les applications à hautes températures [13].

Les composés du système FeAl sont aussi intéressants que ceux des systèmes Al-Ni et Ti-Al. Grâce à leur faible coût et leurs propriétés (résistance mécanique et résistance à l'oxydation), ils sont envisagés pour les pièces de structures et carcasse d'avions. Les températures d'ignition se situent entre 550 et 660°C, avec des températures de synthèses supérieures à 700°C. Le mécanisme réactionnel est une diffusion à l'état solide laissant souvent des quantités non négligeables de phases transitoires (par exemple Fe_2Al_5 , $\text{Fe}_4\text{Al}_{13}$) et une importante porosité.

Les alliages à mémoire de forme (AMF) synthétisés par SHS sont principalement les intermétalliques du système Ti-Ni, certains chercheurs estiment que l'effet mémoire de forme d'un alliage élaboré par SHS est comparable à celui d'un alliage élaboré par la méthode classique [14].

II.5/ Les paramètres influant sur une réaction de type SHS

Il y a un certain nombre de paramètres qui affectent les réactions SHS, la température par exemple, la taille des particules de réactif, la stœchiométrie, densité verte. Plusieurs de ces paramètres sont interdépendants et ont un effet significatif sur la morphologie et les propriétés finales des produits.

- **Granulométrie des réactifs**

Les caractéristiques des poudres de départ sont décisives sur l'état final des produits, car la taille des particules de poudres réactives affecte considérablement l'ignition et la propagation du front de combustion. Selon certaines recherches, il existe une relation entre la vitesse de propagation du front et les principaux paramètres influants : plus les poudres réactives sont fines, plus la réaction de combustion est plus rapide et complète [15].

- **Densité des compactés de réactifs**

La conductivité thermique est essentielle pour la réaction. Le compactage augmente le contact entre particules ce qui assure une grande conductivité thermique. Lorsque cette dernière est assez élevée, elle favorise une dissipation de chaleur trop rapide au risque de voir la réaction s'arrêter pour insuffisance d'énergie, tout comme une faible conductivité peut empêcher la chaleur de se propager. Ce qui met en évidence l'importance de la densité à vert.

- **Mode d'amorçage**

Les différents modes d'amorçage influent considérablement sur l'homogénéité du produit. Dans la plus part des cas l'amorçage se fait par résistance chauffante, laser. Un chauffage par flux uniforme, ou par microondes permettrait d'obtenir de meilleur densité et une bonne homogénéité.

- **Vitesse de propagation**

La vitesse de propagation de la réaction, sa stabilité et la température de combustion maximale réalisée lors d'une réaction SHS dépend essentiellement de la quantité de chaleur générée par la réaction. La dissipation thermique du front de la réaction et la perte de chaleur à l'environnement et le transfert thermique au mélange adjacent du réactif qui est toujours au – dessous de la température d'ignition ou d'amorçage de la réaction. Par conséquence, n'importe quelle perturbation de ces facteurs peut avoir comme conséquence un changement de la vitesse et la stabilité du front de réaction.

II.6/ Techniques associées au procédé SHS

En guise d'amélioration du procédé SHS et de faire croître les chances d'amorcer la réaction à des températures suffisamment réduites et d'obtenir des produits purs, homogènes et denses, plusieurs techniques ont été proposées.

II.6.1 Broyage à haute énergie et activation mécanique des réactifs

Le broyage à haute énergie est un procédé dans lequel la production de chocs conduit à une succession de fractures et de soudures des grains des poudres à des températures relativement modérées . Sous l'effet des collisions, les particules de poudres sont déformées plastiquement puis fracturées et recollées. Cette opération augmente les surfaces de contact entre les réactifs élémentaires et améliore la qualité de surface en détruisant la couche d'oxyde [16]. Ainsi, les conditions d'ignition et de propagation de la réaction SHS sont modifiées.

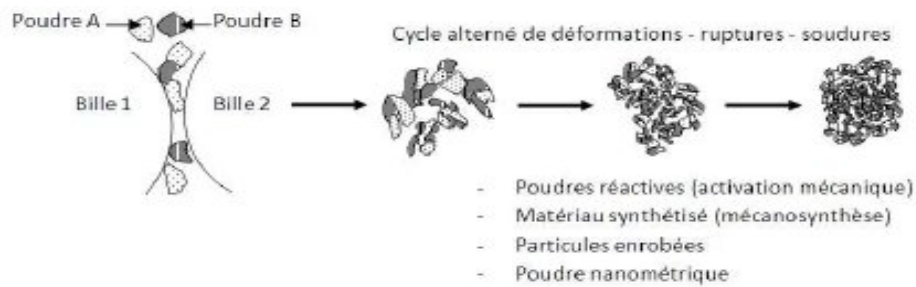


Figure II.3 : Etat des poudres métalliques lors des différentes étapes du broyage à haute énergie.

Il existe plusieurs types de broyeurs :

- **Le broyeur planétaire :** dans lequel une dizaine de billes de 1 ou 2 cm de diamètre sont placées avec les poudres dans une enceinte, solidaire d'un disque qui tourne en sens opposé à elle.
- **L'attriteur :** dans lequel plus de 1000 billes de 0,2 à 1 cm de diamètre, mélangées à la poudre dans un caisson vertical et sont agitées par des éléments fixés à l'axe qui tourne.
- **Le broyeur à vibration :** dans lequel le mouvement de l'enceinte de broyage et des billes est vibratoire et aléatoire dans toutes les directions de l'espace.

II.6.2 Le procédé MASHS

Le MASHS (Mechanically Activated Self-propagating High-temperature Synthèses) a été développé par Bernard et al. C'est une technique qui permet de produire des matériaux purs et nanostructurés. Ce procédé est composé d'une courte étape de co-broyage qui permet d'uniformiser le mélange de réactifs à l'état pulvérulent, de diminuer la taille des grains, de favoriser certaines réactions qui ne s'auto-entretiennent pas dans le mode « SHS classique » suivie d'une réaction auto-propagée dans le mélange activé, préalablement compacté .

II.6.3 le procédé MAFAPS

Ce procédé développé conséquemment à MASHS qui n'élimine pas la porosité, des mélanges de poudres activées sont synthétisés et consolidés à la fois, en appliquant un champ électrique et une pression. Ce procédé a été appliqué avec succès au cas FeAl. Le produit élaboré présente une bonne distribution nanométrique mais conserve un état de contraintes résiduelles induites par la pression appliquée en cours de la réaction. Le principe du procédé est illustré sur la figure II.4.

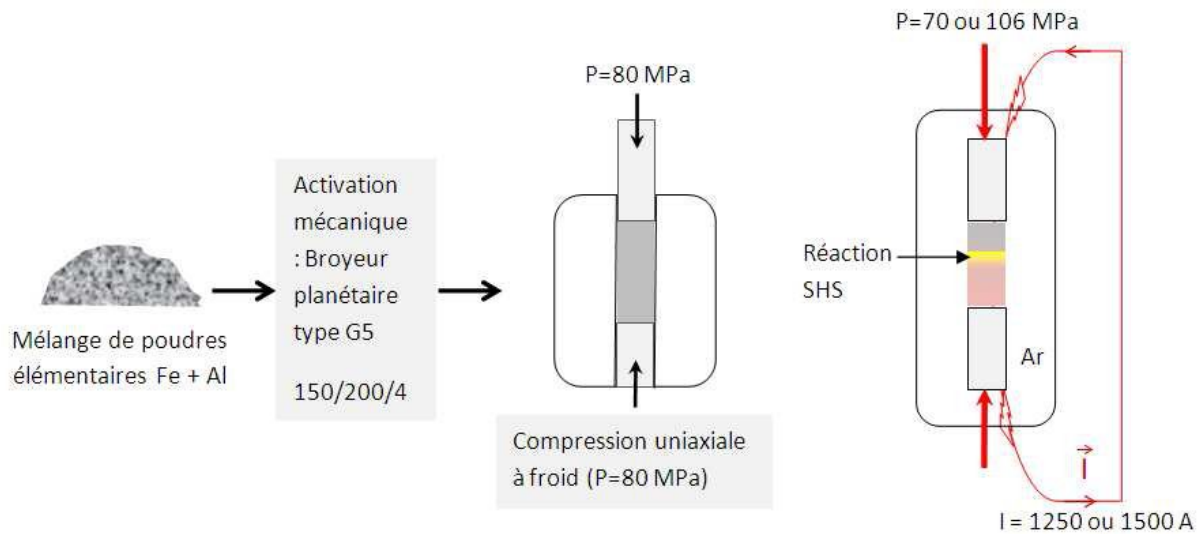


Figure II.4 : Schéma de principe de procédé MAFAPAS [3]

II.6.4 Procédé SHS sous champ

Le procédé SHS sous champ, appelé aussi FACS « Field-Assisted Combustion Synthesis » est destiné à des synthèses dont l'exothermicité est trop faible pour que la réaction soit naturellement autoentretenu, ou dont la propagation est instable. La figure II.5 schématise le principe de ce procédé, dont un compacté de poudres éventuellement conducteur, est placé entre deux électrodes en graphite et subit un échauffement par passage du courant électrique. Si l'échantillon est trop important et l'intensité est importante, il peut subir une explosion thermique. Dans le cas contraire, la réaction risque de ne pas s'enclencher et nécessite l'utilisation d'une source de chaleur. La facilité de varier le courant permet le contrôle et l'optimisation des paramètres de la réaction.

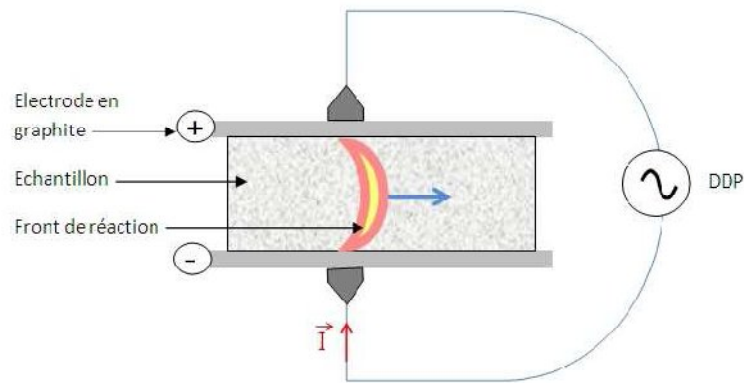


Figure II.5 : Principe du procédé FACS [3]

II.6.5 SHS centrifugation

C'est la technique utilisée industriellement dans la fabrication des tubes et tuyauteries résistant à l'oxydation et à la corrosion à haute température. Cela, par formation d'une couche protectrice d'alumine et du fer qui adhère sur le tube par réaction thermite. Le tube d'acier est fixé sur un dispositif lui communiquant un mouvement de rotation à grande vitesse et d'y mettre à la surface intérieure du tube les poudres d'oxyde de fer (Fe_2O_3) et d'aluminium. Lorsque le mouvement est enclenché, la réaction est amorcée à l'extrémité de tube au moyen d'un chalumeau oxyacétylénique.

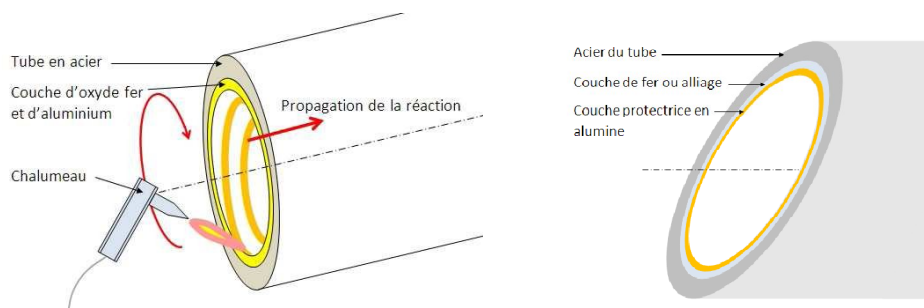


Figure II.6 : Schéma d'élaboration par SHS centrifugation [3]

II .7/ Influence de l'activation mécanique sur les réactions SHS**• Importance de l'interface réactive :**

L'activation mécanique permet la création de poly-interfaces à l'échelle nanométrique entre les réactifs. L'étude menée sur différents systèmes (Mo/Si, Fe/Al, Nb/Al) montre que l'activation mécanique est capable de dynamiser la réactivité sous forte sollicitation thermique. En se basant sur la définition microstructurale de l'activation mécanique, trois paramètres apparaissent essentiels :

- La formation de contacts à l'échelle nanométrique.
- L'augmentation de l'aire de contact entre les réactifs.
- La destruction de la couche superficielle d'oxyde à la surface des poudres commerciales.
- Lors de la combustion, la nanostructure des poudres activées joue le rôle actif dans les premiers instants de la réaction car les contacts entre les réactifs sont plus nombreux, la distance de diffusion est diminuée, le gradient chimique, moteur du transport de matière, est mieux distribué.

• L'énergie accumulée lors du broyage

Les réactifs après broyage à haute énergie sont en fait dans un état d'excitation qui serait la résultante :

- des défauts stockés dans la structure.
- la multiplication des interfaces et l'augmentation de l'énergie de surface par rapport à celle du volume
- la présence d'un volume de joints de grains plus important.

Chapitre III

Elaboration des intermétalliques Fe-Al par le procédé SHS

Chapitre III

Elaboration des intermétalliques Fe-Al par le procédé SHS.

III.1. Introduction

Sur le plan technologique, les alliages à base de fer sont toujours d'une importance capitale puisqu'on les retrouve, sous une forme ou sur une autre, dans tous les domaines. Cette importance repose sur plusieurs facteurs, Ils sont bon marché et peuvent acquérir des propriétés très variées notamment en recourant aux traitements thermiques et à l'addition d'éléments d'alliages ce qui permet de les adapter aux exigences de fabrication et d'utilisation [17]

Les aluminures de fer ont attiré l'attention de beaucoup de chercheurs depuis qu'une excellente résistance à la corrosion a été observée en 1930 dans les alliages avec une composition de plus de 18% at. Al [18]

Les composés intermétalliques sont, au sens strict, des composés ordonnés formés par deux éléments métalliques ou plus avec une stœchiométrie précise. Les propriétés spécifiques des composés intermétalliques sont fortement liées au contrôle de leur microstructure, car la structure cristallographique ordonnée du composé permet de situer ses caractéristiques mécaniques et physico-chimiques intermédiaires entre celles des métaux et des céramiques [19] Ils ont une excellente résistance mécanique à haute température, un faible cout et une faible densité.

Des milliers d'intermétalliques existent et font l'objet de nombreuses études, les aluminures de fer et les alliages ordonnés/désordonnés Fe-Al sont très intéressants pour des applications à haute température, à cause de leurs propriétés favorables. Ces alliages sont à faible cout, à faible poids spécifique, de bonne résistance à l'oxydation aux températures élevées et facilité de fabrication [20]. Cependant, ils présentent deux inconvénients qui nécessitent d'être corrigés avant de pouvoir être produits industriellement : fragilité à température ambiante et faible résistance au fluage à températures élevées.

III.2. Caractéristiques du fer et aluminium purs

Le fer est un élément métallique blanc argenté, de symbole Fe, magnétique et malléable. Il est l'élément de transition de numéro atomique $Z = 26$ et de masse atomique de 55,845. Sa température de fusion est de 1538°C , d'une densité de $7,875\text{g/cm}^3$. Le fer le plus pur qui peut s'obtenir actuellement contient 99,999% Fe.

Le fer peut exister sous différentes formes selon la température :

➤ Fer α : c'est la forme stable dans les conditions ordinaires de température et de pression, il existe aux températures inférieures à 910°C et supérieures à 1392°C dans un réseau cubique centré (CC) de distance réticulaire $2,8606\text{\AA}$.

Dans l'intervalle de 1392°C et 1539°C , le fer α est désigné par la lettre δ .

➤ Fer γ : se trouve entre 910°C et 1392°C . il est paramagnétique d'un réseau cubique à faces centrées (CFC) dont l'équidistance vaut $3,6\text{\AA}$.

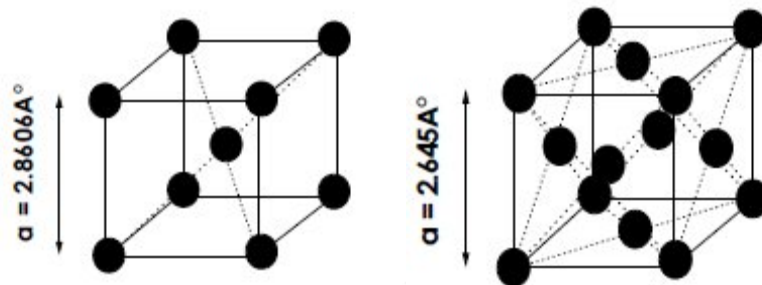


Figure III.1 : Représentation schématique de la maille élémentaire du fer α et γ [17]

L'aluminium est un métal blanc, malléable et bon résistant à la corrosion grâce à la fine couche d'alumine qui se forme au contact de l'air. De masse atomique de 26,980. L'aluminium possède un réseau cubique à face centré (CFC).

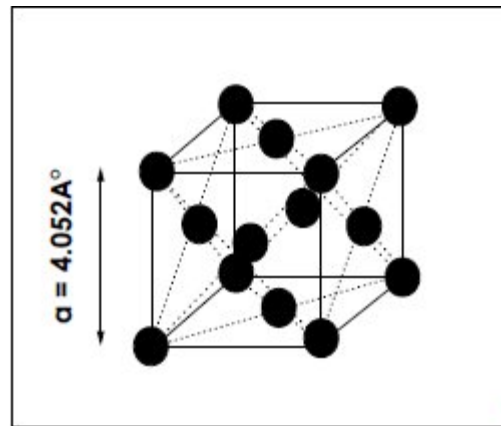


Figure III.2 : Représentation schématique de la maille élémentaire d'aluminium [17]

Nous résumons les propriétés physiques d'éléments purs du fer et d'aluminium dans le tableau suivant III.1

Tableau III.1 : Propriétés physiques de fer et d'aluminium [17].

Propriétés physiques	Fer	Aluminium
Température de fusion (°C)	1540	660
Masse volumique (kg/m ³)	8000 à 8100	2700
Conductibilité électrique (X 10 ⁶ . Ω .cm ⁻¹)	0.0993	0.377
Conductibilité thermique (w.cm ⁻¹ .K ⁻¹)	0.802	2.37
Densité (g.cm ⁻³)	7.87	2.7
Électronégativité	1.8	1.90

III.3. Système Fe-Al

III.3.1 Diagramme d'équilibre Fe-Al

Les relations entre les phases dans le système Fe-Al sont difficiles à déterminer aux basses températures, ce qui a retardé la mise au point d'un diagramme de phases (Figure 3.3) jusqu'aux années 70 [21].

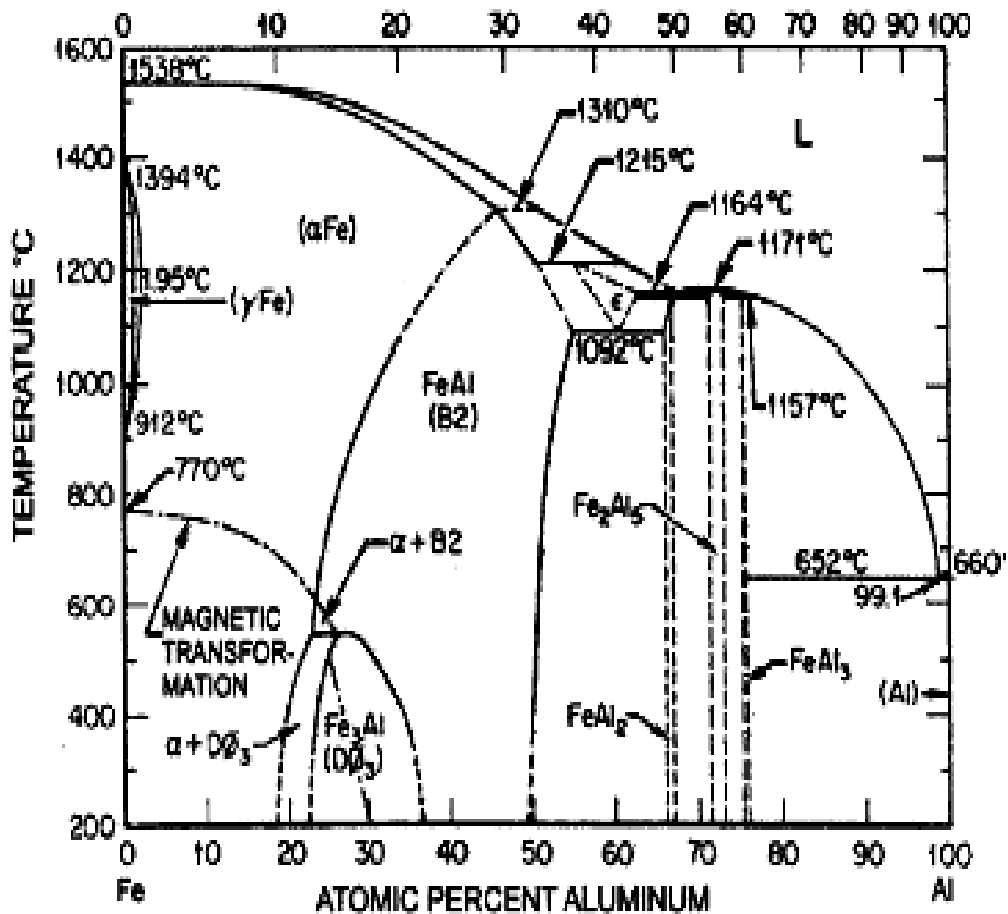


Figure III.3 : Diagramme d'équilibre du système Fe Al [21]

Les phases intermétalliques commencent à se former dans les régions riches en fer, la phase α subit des transformations ordre/désordre avec modification des propriétés mécaniques et magnétiques [12]. D'après le diagramme, le système Fe-Al possède un large domaine d'existence de la solution (CC) jusqu'à 51% at. Al. Dans ce domaine, on rencontre trois types de réseaux cubiques centrés.

Dans le sens des concentrations croissantes en aluminium, on trouve un large domaine de solution solide entre 0 et 34% en masse d'Al. A l'intérieur de ce large domaine, on peut distinguer trois phases ayant chacune un sous-domaine d'existence : une solution solide désordonnée d'aluminium dans le fer α notée α_{Fe} , une phase appelée β_1 ou Fe_3Al de structure $D0_3$ (stable pour des températures inférieurs à $550^\circ C$) et une solution solide ordonnée d'aluminium dans le fer α « Fe Al » notée β_2 .

Du côté riche en aluminium, on rencontre des phases notées θ - $FeAl_3$ qui contiennent trois phases ($FeAl_2$, Fe_2Al_5 et Fe_4Al_{13}) et qui sont stables dans un grand domaine de température incluant la température ambiante [22].

III.3.2. Structure cristallographique

Pour la structure désordonnée type A_2 , les atomes de Fe et Al se répartissent de façon aléatoire (Figure III.4.a). Pour la première structure ordonnée $D0_3$, elle possède 16 atomes, 12Fe dont 4 occupent les sites octaédriques et les 8 sites tétraédriques, par contre les 4 atomes d'aluminium sont placés aux sommets et aux milieux des faces (Figure III.4.c). La seconde structure ordonnée B_2 est (CC) avec un paramètre de maille a , se présente avec les atomes de fer aux sommets et ceux d'aluminium au centre de la maille (Figure III.4.b).

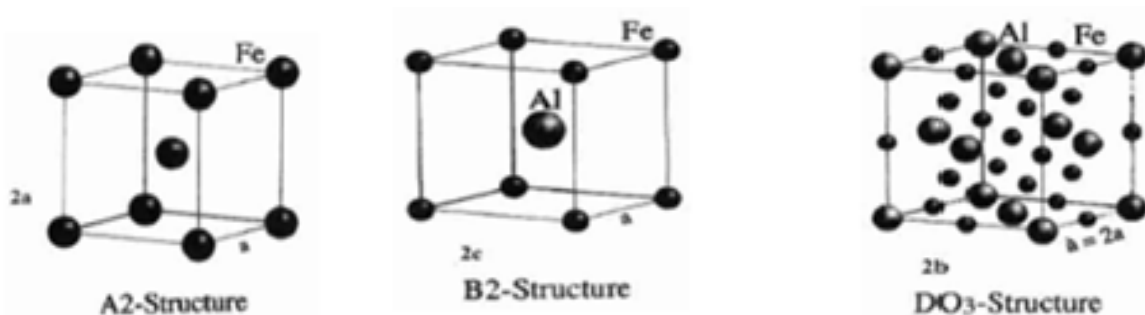


Figure III.4 : Structures cristallographiques B_2 , $D0_3$ et A_2 [12]

III.4 Les mécanismes de transformations de phases dans le système FeAl

On peut facilement remarquer que les transformations commencent à partir de la phase α qui se situe dans la partie gauche du diagramme riche en fer, cette phase subit des transformations ordre-désordre et les phases intermétalliques prennent forme (Figure III.5).

La figure montre les extensions des lignes des transformations qui sont faites à partir des règles développées des lois de stabilité des phases [23]

Les transformations se font en suivant différents chemins, à grande ou à petite distance. Selon la ligne(ab), la phase B2 se forme à partir de la phase α , suivant (bj) la phase D03 va naitre d'une transformation de B2 à basse température

Le tableau ci-après résume les différents mécanismes de transformations de phases dans le système Fe-Al.

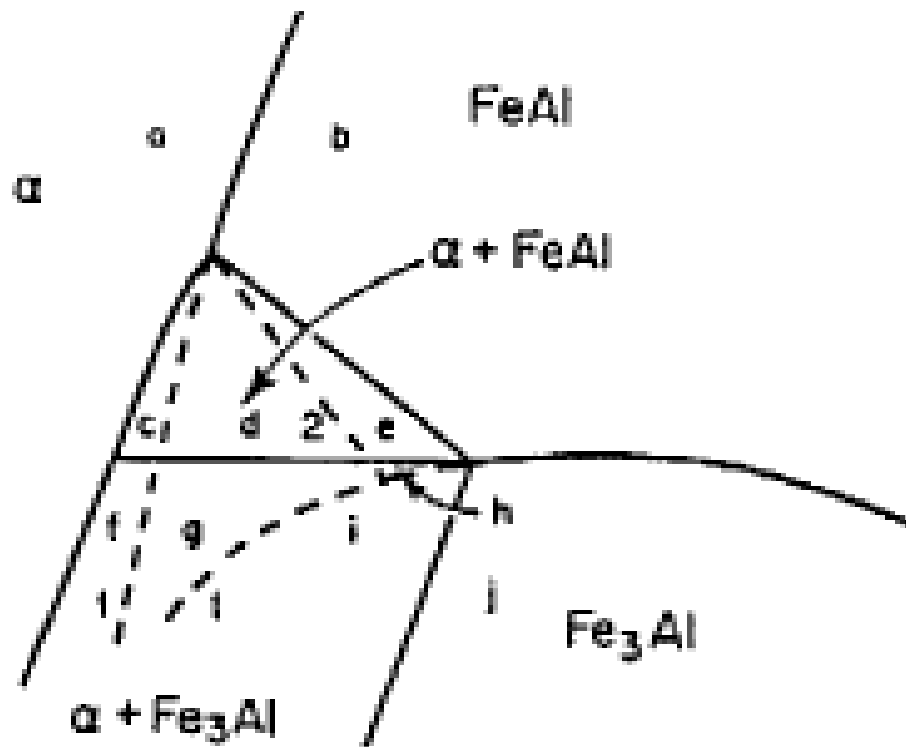


Figure III.5 : La partie riche en fer du diagramme de phase FeAl [17]

Tableau III.2 : Mécanismes de transformations dans le système Fe Al

<i>TYPE DE TRANSFORMATION</i>	<i>CHEMIN SUIVI</i>
$B2 \rightarrow D0_3$	$b \rightarrow j$
$B2 \rightarrow B2 + D0_3$	$b \rightarrow d$
	$b \rightarrow e$
$B2 \rightarrow \alpha + D0_3$	$b \rightarrow g$
	$b \rightarrow h$
	$b \rightarrow i$
$\alpha \rightarrow B2$	$a \rightarrow b$
$\alpha \rightarrow \alpha + B2$	$a \rightarrow c$
	$a \rightarrow e$ et $a \rightarrow h$
$\alpha \rightarrow \alpha + D0_3$	$a \rightarrow f$
	$a \rightarrow g$ et $a \rightarrow h$
	$a \rightarrow i$
$\alpha \rightarrow D0_3$	$a \rightarrow b \rightarrow j$

III.5 Propriétés des alliages fer-aluminium

Les aluminures de fer basés sur le composé ordonné FeAl présentent une excellente résistance en environnement oxydant, sulfurant ou carburant jusqu'à 1000°C. Ces propriétés associées à la densité relativement faible et au coût réduit, leur procure un grand intérêt. Si leur utilisation est retardée jusqu'à présent ça revient à la fragilité à température ambiante et faible résistance au fluage [24].

Nombreuses sont les hypothèses sur les origines de la fragilité des alliages Fe-Al, notamment les composés FeAl et Fe₃Al. Elle peut se traduire par la structure cubique ordonnée qui facilite les mouvements des dislocations, par la fragilité des joints de grains à température ambiante. L'attaque environnementale peut conduire aussi à la fragilisation par présence de l'atome d'hydrogène généré par la réaction avec la vapeur d'eau.

Dans ce contexte, plusieurs résultats sont obtenus. Car il a été montré qu'une plasticité limitée peut être obtenue en réduisant la teneur en aluminium et ça contrairement aux alliages stœchiométriques Fe-50%Al qui sont complètement fragiles [24]. L'ajout de faibles quantités de bore et une diminution de la taille des grains peuvent aussi remédier à ce problème de fragilité [25].

L'amélioration de la ductilité des aluminures de fer à l'ambiante était la principale cause pour laquelle l'addition du chrome dans ces alliages a été faite, quant à la limite d'élasticité qui représente une caractéristique d'un grand sens pratique pour déterminer la résistance du matériau contre la déformation plastique, des augmentations significatives ont été enregistrées par addition de Si, Ta, Mo, Nb ou Cr dans les alliages binaires Fe-Al [26], comme elle augmente avec la teneur en aluminium.

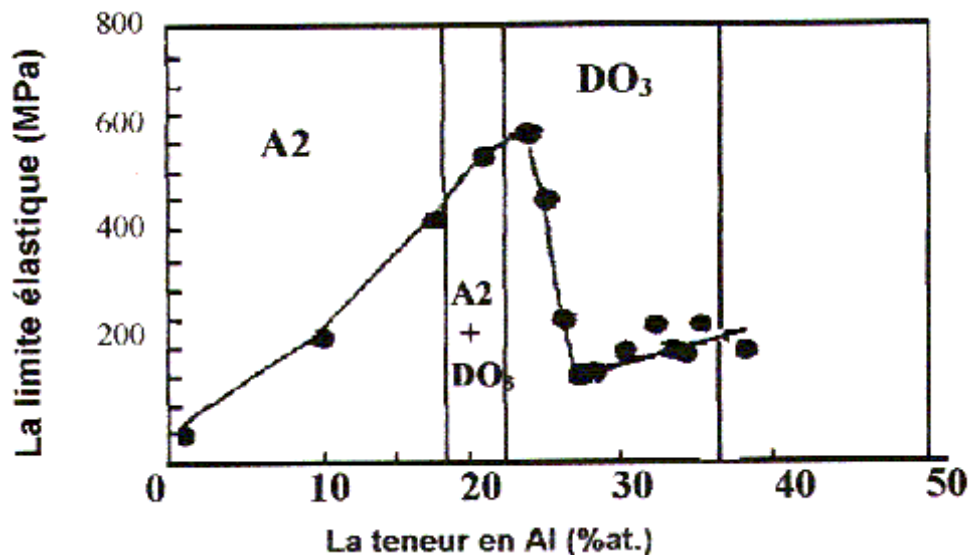


Figure III.6 : Influence de la teneur en aluminium et de la structure cristalllographique sur la limite d'élasticité d'alliages Fe-Al.

Un autre soucis est la résistance à la corrosion. De ce côté, les alliages Fe-Al ont une résistance qui peut être égale ou supérieure à celle des alliages contenant du Cr et Al en combinaison. C'est que les alliages Fe₃Al sont supposés avoir un faible taux d'oxydation sous air ou sous oxygène. D'autres résultats viennent confirmer ces dires, à titre d'exemple les alliages Fe-28%Al contenant 0.07 %Zr, 2% et 5% Cr.

Ce qui caractérise les intermétalliques fer-aluminium à haute température est la faible résistance au fluage comparée à celle des aciers et alliages métalliques. Ce comportement est le résultat des dislocations qui facilitent les ruptures inter-granulaires. En effet, les alliages Fe Al présente une forte concentration de lacunes même avec un long refroidissement. Une diminution de la taille des grains par élaboration par métallurgie des poudres et une fine et stable dispersion de particules aux joints de grains sont des chemins à emprunter pour mettre fin à ce problème [26]. Des travaux récents ont conduit à optimiser la fabrication et la composition de cet alliage Fe-24%Al-0,11% Zr désignés par Fe Al40 grade 3, qui sont choisis pour donner le maximum de renforcement aux joints des grains.

III.6 Elaboration du composé FeAl par frittage réactif SHS

Pour mettre en évidence les mécanismes intervenant lors de la formation de la phase ordonnée FeAl, de nombreuses expériences ont été menées. Les auteurs ont décrit l'opération selon deux réactions exothermiques qui se déroulent en chauffant un mélange de poudre de fer et d'aluminium compacté et fritté. A 560°C, la réaction de synthèse auto-propagée débute par la formation d'une phase transitoire Fe₂Al₅ générée par diffusion d'aluminium dans le fer ce qui engendre une expansion volumique brutale « gonflement » de l'échantillon. Quand à la phase FeAl, elle résulte de l'interaction entre le fer et la phase transitoire Fe₂Al₅ à la température 655°C (Figure 3.7)

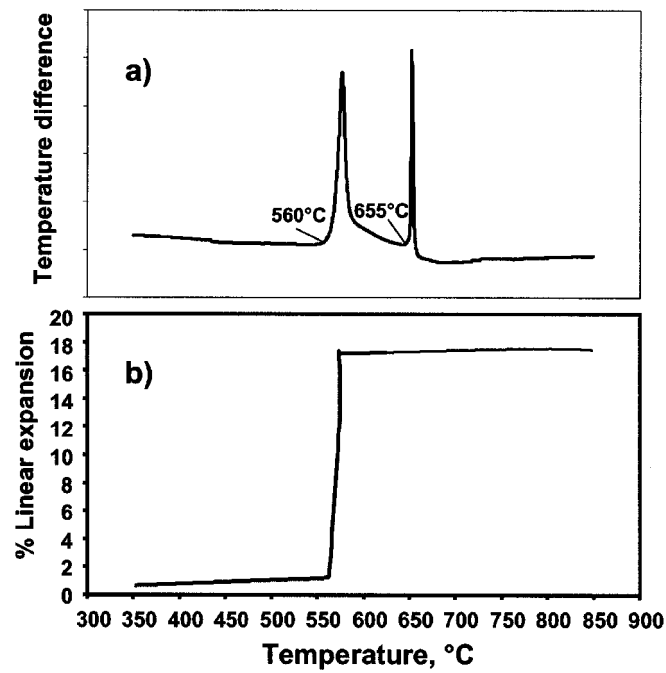


Figure III.7 : Analyse thermique et dilatométrie du mélange Fe-40%Al chauffé à 850°C avec une vitesse de 5°C/min [27]

Pour ces expériences, le paramètre étudié est la vitesse de chauffe qui influe considérablement sur les phases formées. En effet, pour une vitesse de 5°C/min la réaction s'amorce à partir de 670°C, tandis qu'à 0,5°C/min, elle débute à une température inférieure (540°C). Les échantillons frittés à faible vitesse sont moins poreux qu'à vitesse importante. La figure 3.8 met en évidence la réaction de synthèse pour les deux vitesses.

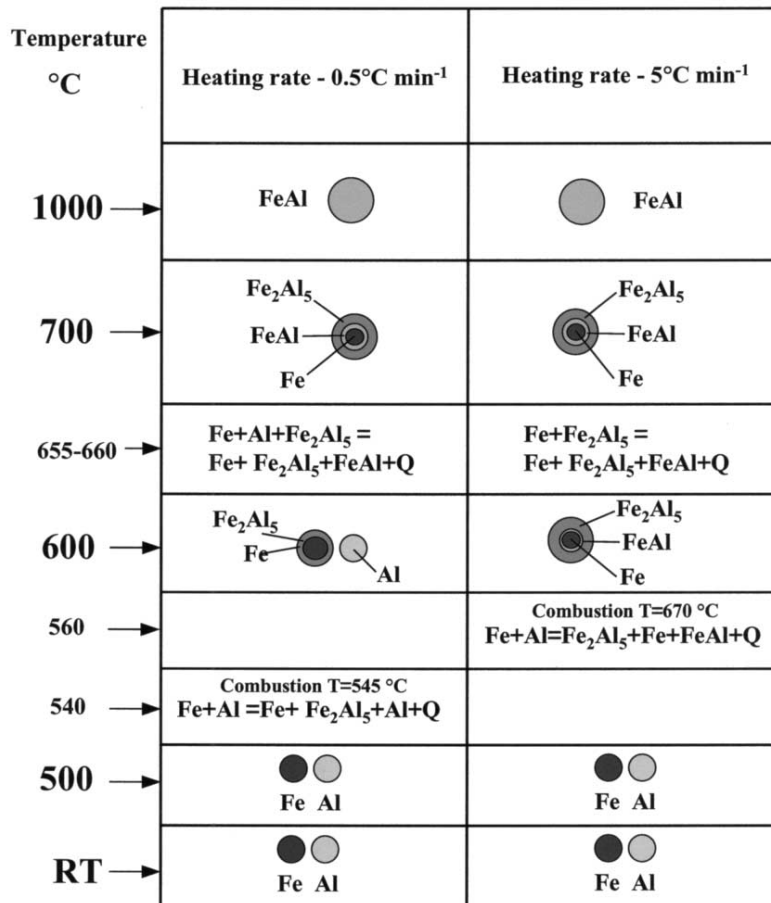


Figure III.8 : Schéma réactif d'un mélange Fe-40%Al pour deux vitesses [27].

Un autre paramètre d'une grande influence sur le déroulement de la réaction SHS, et qui commande les mécanismes de formation des phases. Les composés FeAl se forment suivant deux mécanismes. L'un repose sur la formation des phases transitoires à haute teneur en aluminium telles que Fe_2Al_5 et FeAl_3 , qui compte sur la diffusion de l'aluminium dans le fer (Figure 3.9). Au début, la diffusion de l'aluminium dans le fer se fait lentement (zone 1). Entre $300\text{-}500^{\circ}\text{C}$ (zone 2), la teneur en aluminium augmente dans le fer avec une vitesse relativement faible. Au delà de 500°C , la diffusion se fait rapidement (zone 3).

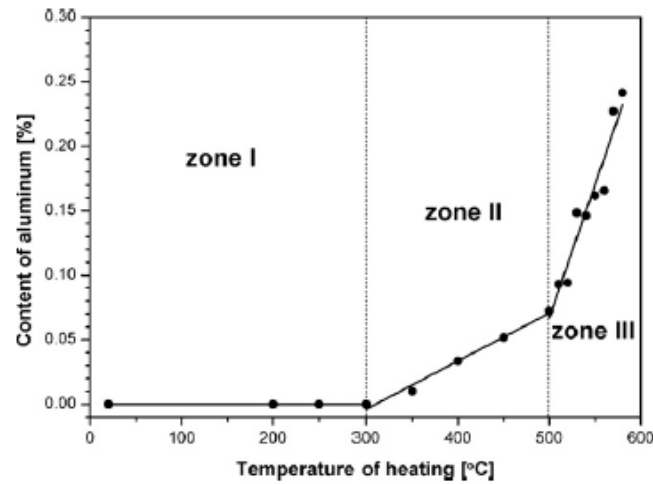


Figure III.9 : Diffusion de l'aluminium dans le fer en fonction de la température de frittage [12].

A haute température au-delà de 615°C, la synthèse auto propagée s'enclenche, grâce à une grande énergie dégagée, la phase FeAl_2 à haute teneur en aluminium et une phase ordonnée FeAl se forme.

III.7 Influence du broyage à haute énergie sur la réaction SHS dans le système Fe-Al :

Cette étape est un procédé utilisé pour l'élaboration des composés nanostructurés et repose sur la combinaison de deux étapes principales : l'activation mécanique et synthèse par combustion. L'activation mécanique consiste en un pré-broyage énergétique de courte durée jusqu'à l'obtention des poudres sous forme micronique et à déclencher ensuite la réaction SHS par un apport de chaleur locale.

Ces opérations ont permis de diminuer la température d'ignition, alors qu'elle était toujours à 550°C sans activation, aujourd'hui elle atteint les 400°C. La vitesse de propagation augmente jusqu'à $12 \text{ mm}\cdot\text{s}^{-1}$. Le spectre de diffraction obtenue (Figure 3.10) montre la formation d'un composé intermédiaire qui disparaît en fin de réaction pour avoir un composé FeAl pur.

Dans le cas de l'étude l'activation des réactions SHS, il a été montré que l'activation mécanique modifie le comportement des échantillons lors de l'auto combustion (Figure 3.11) grâce à une augmentation des surfaces de contacts entre les réactifs élémentaires à l'échelle nanométrique et, améliorer les qualités d'interfaces [28]. De plus, ce traitement à haute énergie rend possible l'autopropagation dans des cas thermodynamiquement moins favorable Fe/Si ou Cu/Si [29]

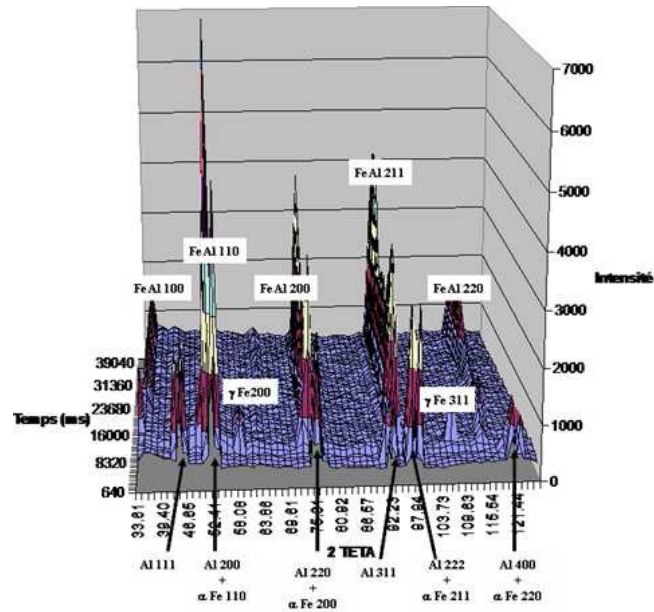


Figure III.10 : Spectre de diffraction en temps réel du mélange FeAl élaboré par MASHS [12]

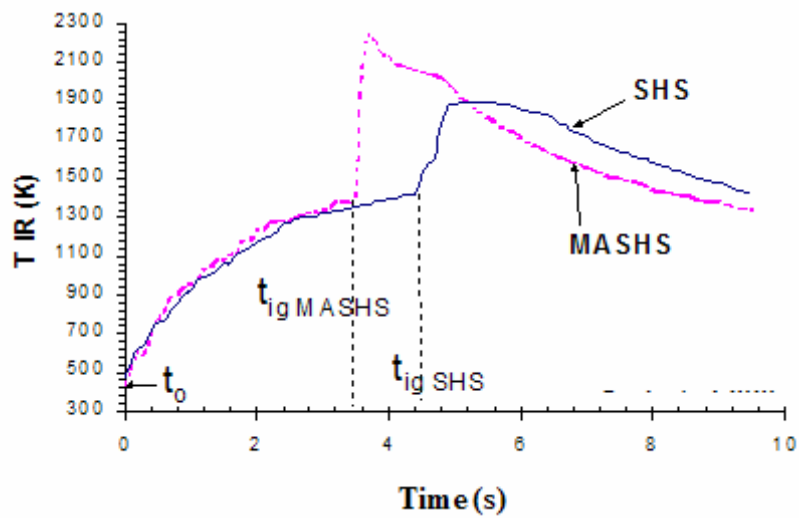


Figure III.11 : Comparaison d'un profil thermique obtenu par une SHS classique activé mécaniquement (MASHS) et celui d'une SHS classique [29]

Chapitre IV

Généralités sur les matériaux composites à matrice métallique

Chapitre IV

Généralités sur les matériaux composites à matrice métallique

IV.1/ Introduction

Le développement technologique est toujours accompagné par des progrès dans le domaine des matériaux. Au cours de ces dernières années, la préoccupation majeure de l'industrie est le développement de nouvelles applications dans divers domaines (mécanique, électronique, optique).

Dans ce contexte, l'élaboration et la synthèse de matériaux sont l'objet d'un intérêt grandissant qui consiste à avoir un matériau performant en maximisant sa résistance tout en réduisant le coût de fabrication. Progressivement, les matériaux composites s'imposent en offrant des avantages par rapport aux matériaux métalliques conventionnels.

Les matériaux composites forment un assemblage comportant deux ou plusieurs éléments qui permettent d'obtenir certaines propriétés. Couramment, un composite désigne des arrangements de fibres ou de particules noyées dans une matrice.

De nombreux avantages propulsent l'utilisation de ces matériaux composites comme matériaux de structures aéronautiques, transport automobile, constructions navales ou de bâtiment. Citons en premier lieu leur apport raideur/masse, qui permet un allongement conséquent des structures dans les domaines précités, une bonne résistance à la fatigue et à la corrosion et une bonne adaptabilité de leurs propriétés mécaniques aux sollicitations qu'ils rencontrent au cours de leur utilisation.

Dans notre étude, on rappellera la définition et la classification de ces matériaux par la suite l'exploration des techniques d'élaboration.

IV.2 Présentation des matériaux composites

IV.2.1. Définition

Un matériau composite se présente comme l'assemblage de plusieurs matériaux de nature différente à l'échelle microstructurale. Plus souvent, les composites sont constitués d'une matrice dans laquelle des renforts (fibres) sont dispersés d'une façon contrôlée ou non [30]. Cette association conduit à un matériau dont l'ensemble des performances est supérieur à celui des composants pris séparément, la matrice maintient les renforts et assure les transferts

de charge, tandis que les renforts apportent principalement leurs caractéristiques mécaniques élevées (modules et limites d'élasticité, résistance mécanique...), à titre d'exemple, la figure V.1 montre l'évolution du module de Young en fonction de la densité de plusieurs matériaux. Lors de l'ajout du renfort à une matrice d'aluminium, le module de Young du composite est égal à celui de l'acier pour une densité deux fois plus faible [30].

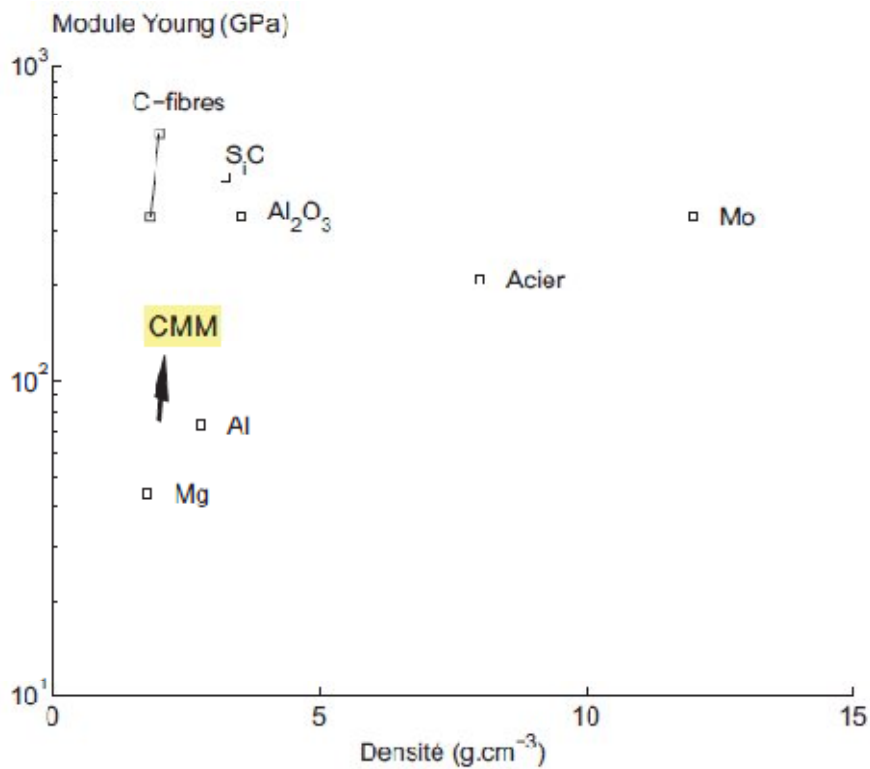


Figure IV.1 : Evolution du module de Young en fonction de la densité par ajout de renfort

[31]

IV.2.2 Classification des matériaux composites

La classification des composites se fait suivant la nature et la forme des composants.

IV.2.2.1. Classification suivant la forme des constituants

- **Composites à fibres** : si le renfort se trouve sous forme fibreuse, le composite est dit « composite à fibres ». Les fibres utilisées peuvent être des fibres continues ou

discontinues, des fibres coupées, fibres courtes, etc. L'arrangement et l'orientation des fibres déterminent la carte des propriétés mécaniques des matériaux composites.

- **Composites à particules :** si le renfort se trouve sous forme de particules, le composite est dit « composite à particules ». Le choix de l'association matrice-particules dépend des propriétés souhaitées.

Les composites à particules recouvrent un domaine étendu dont le développement s'accroît sans cesse. Compte tenu de leurs diversités ce type de matériaux sera étudié dans le cadre de notre travail.

IV.2.2.2. Classification suivant la nature des constituants

Pour cette gamme, les matériaux sont classés selon la nature de la matrice qui peut être organique, minérale ou métallique. Parmi ces composites quelques un sont cités dans le tableau IV.1 :

Tableau IV.1 : Exemples de matériaux composites.

Type de composite	Constituants	Domaines d'application
1. Composite à matrice organique :		
Papier, carton	Résine/charges/fibres cellulosiques	Imprimerie, emballage
Panneaux de particules	Résine/copeaux de bois	Menuiserie
Panneaux de fibres	Résine/fibre de bois	Bâtiment
Toiles enduites	Résine souple/tissus	Sport, bâtiment
Matériaux d'étanchéité	Elastomère/bitume/textiles	Toiture, terrasse
Pneumatiques, Stratifiés	Caoutchouc/toile/acier	Automobile
Plastiques renforcés	Résine/charge/fibres de verre, de carbone, etc. Résine/microsphères.	Domaines multiples
2. Composite à matrice minérale		
Béton	Ciment/Sable/granulats	Génie civil
Composite carbone-carbone	Carbone/fibre de carbone	Aviation, espace,

Composite céramique	Céramique/fibre de céramique	biomédecine Pièces thermomécaniques
3. Composite à matrice métallique	Aluminium/fibres de bore Aluminium/fibres de carbone	Espace
4. Sandwiches peaux Ames	Métaux/stratifiés Mousse, nid d'abeilles, plastique renforcés	Domaines multiples

IV.3 Les composites à matrice métallique

Les composites à matrice métalliques CMM sont apparus dans les années 60. Ce sont des matériaux développés pour tirer parti des meilleures propriétés de la matrice et des renforts [32]. Ils combinent une matrice métallique en aluminium, en titane ou en magnésium qui sont les métaux les plus couramment utilisés, et des renforts qui sont généralement céramiques, métalliques ou intermétalliques.

Pour des applications à plus haute température jusqu'à 600°C, on fait appel à ce type de composite. Les métaux ou alliages métalliques utilisés dans la fabrication des CMM sont choisis en fonction de leurs propriétés spécifiques dans l'état non renforcé [33].

La forme, la taille et la concentration du renfort caractérisent sa géométrie, ainsi, l'ensemble de ces paramètres concourt à déterminer les propriétés du composites [34].

IV.4 Constituants des composites à matrice métallique (CMM)

IV.4.1 Renforts

Il est possible d'associer à la matrice soit des renforts discontinus, dont toutes les dimensions sont inférieures aux dimensions de la pièce, soit des renforts continus, dont au moins une dimension est de même ordre de grandeur qu'une dimension de la pièce.

IV.4.1.1. Renforts discontinus

Parmi les renforts discontinus on trouve, les particules, les trichites et les fibres courtes.

- **Renforts de particules**

Se trouvent sous forme de billes, plaquettes, éclats...etc. D'une taille variant entre 5 et 50 μm . Les particules sont généralement utilisées pour améliorer certaines propriétés, comme la rigidité, la tenue à la température, la résistance à l'abrasion ou simplement pour réduire le cout du matériau [34].

Pour ce type de renfort, les fractions volumiques employées varient de 10 et 50%. Les composites à particules recouvrent un domaine étendu, les plus industrialisés sont à matrice d'aluminium et renfort SiC ou Al₂O₃ de forme aciculaire [34]. Les cermets sont également des exemples de composites métal-céramique à particules.

- **Renforts de trichites**

Les trichites sont des fibres monocristallines d'une longueur moyenne de 20 et 100 μm , et d'un diamètre moyen variant entre 0,1 et 0,5 μm . Elles offrent des propriétés mécaniques très élevées. Les trichites sont employées pour des fractions volumiques comprises entre 15 et 25% [34]

- **Renforts de fibres courtes**

Pour les CMM, les fibres courtes sont des fibres polycristallines ou amorphes d'alumine ou de mélange d'alumine et de silice. Les fractions volumiques des fibres courtes dans les CMM sont entre 5 à 25%, le diamètre moyen varie entre 3 et 5 μm quand à la longueur entre 100 et 600 μm [34].

La figure 4.1 montre la morphologie de quelques types de renforts discontinus.

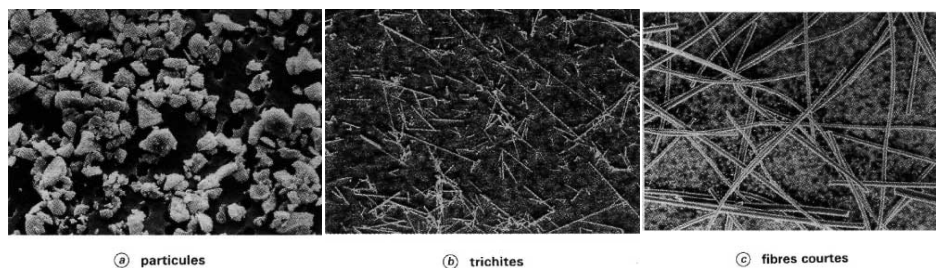


Figure IV.2 : Morphologie des renforts discontinus

IV.4.1.2 Renforts continus

On parle d'un renfort continu, si au moins une dimension est supérieure ou égale à celle du composite. Ce sont des mèches mono ou multi filamentaires ou hybrides.

- **Les mèches mono filamentaires**

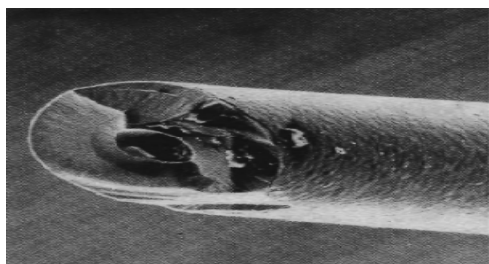
Ces renforts présentent des diamètres de 100 à 300 μm , ils sont d'une rigidité élevée ce qui justifie leur manipulation délicate. Alors ils sont tissés et imprégnés de métaux réfractaires. Dans cette gamme, les fibres de bore et de SiC sont les plus répandues, leur élaboration se fit par dépôt chimique en phase vapeur sur un mono filament en tungstène ou en carbone, ils offrent des propriétés appréciables à haute température.

- **Les mèches multi filamentaires**

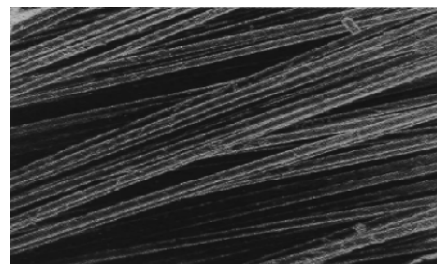
Elles se présentent sous forme de mèches de 300 à 10 000 filaments unitaires. Les diamètres des filaments varient entre 5 et 20 μm , on retient les fibres de SiC, les fibres d'alumine, les fibres de carbone et celles de l'acier. L'avantage de ces mèches est tiré de la facilité de leur utilisation et procédés de fabrication.

Quand aux hybrides, sont des renforts multi filamentaires qui comportent une fine dispersion de particules de SiC entre les fibres pour faciliter l'imprégnation par le métal.

La figure 4.2 montre les deux types de mèches.



(a) Mono filamentaire



(b) Multi filamentaire

Figure IV.3 : Morphologie des renforts continus.

Les caractéristiques des divers types de renforts sont rassemblées dans le tableau IV.2

Type de renfort	Nature chimique	Densité	Diamètre μm	Module de Young Gpa	Résistance à la rupture Gpa
Particules	Sic	3,2	5à50	480	
	TiC	4,7	5à10	310à380	
	Ba ₄ C	2,5	5	390	
	Al ₂ O ₃	3,9	3à30	390	
Trichites	Sic	3,2	0,1 à 0,5	400à700	3 à 14
	K ₂ O _N (TiO ₂)	3,3	0,2 à 0,5	280	17
Mèches mono filamenteuses	Bore	2,49	140	392	3,5
	Sic	3	140	427	3,5
	Acier	7,8	150	200	2,2
Fibres courtes	Al ₂ O ₃	3,3	3	300	2
	Al ₂ O ₃ +SiO ₂	2,7	3	158	2,5
Mèches multi filamenteuses	PCS-Sic 1	2,55	15	196	2,75
	PTCS-Sic 2	2,4	8 à 12	200	2,8
	Al ₂ O ₃	3,9	20	379	1,4
	Al ₂ O ₃ -SiO ₂	3,2	17	200	1,5
	Carbone HR 3	1,76	7	230	3,53
	Carbone HM 4	1,81	6	392	2,74
	Acier	7,74	13	196	4,12

IV.4.2 Matrice

C'est le matériau qui assure la cohésion des renforts, de répartir les efforts et même d'assurer la protection chimique [35].

Les métaux qui sont le plus souvent utilisés comme matrice sont : l'aluminium (CMAI), le magnésium (CMMg), le cuivre (CMCu), le titane (CMTi). Le but recherché est toujours d'augmenter les températures de fonctionnement, ainsi que la résistance et le module

spécifique, tout en abaissant les poids des structures. Les recherches couvrent à la fois les composites à fibres longues et les composites particuliers [33].

- **Les matériaux composites à matrice d'aluminium (CMAI)**

Les matériaux composites à matrice d'aluminium (CMAI) sont assez largement rependus dans l'industrie mécanique et en particulier dans l'aéronautique. Les CMAI réalisés par métallurgie des poudres présentent des propriétés intéressantes du fait de l'addition des particules de céramiques fines généralement du SiC ou fibres d'alumines : module de Young très élevé, très bon comportement en fatigue et une résistance à l'usure. La tenue à la corrosion des CMAI à particules de SiC est voisine de celle de la matrice non renforcée.

- **Les composites à matrice de titane CMTi**

Leur principale caractéristique est de conserver des excellentes propriétés en termes de force et rigidité, à température élevée jusqu'à 900°C [34].

Plus récemment, l'intérêt pour les composites à matrice de titane, renforcés par une précipitation in-situ du renfort se manifeste, à ce titre on peut mentionner le composite Ti-TiB.

- **Les composites à matrice de magnésium CMMg**

La faible densité du magnésium et ses alliages ainsi que sa basse température de fusion en font un candidat intéressant comme matrice pour les structures très sensibles aux incidences de masses élevées. Les renforts attribués à ce type de matrice sont les particules de SiC, renforts d'alumines et de graphite [35]. Des composites magnésium-carbures (TiC ou SiC) élaborés par le procédé SHS possèdent l'avantage supplémentaire de la synthèse in-situ des particules de renfort.

Des travaux sont également en cours sur les composites intermétalliques renforcés par des fibres de SiC ou particules de TiB₂, à titre d'exemple la NASA qui mène des travaux sur les composites à base de FeAl, NiAl et de Ti₃Al [36].

VI.5 Elaboration des CMMp par métallurgie des poudres

Les conditions de sélection d'un procédé de fabrication sont la reproductibilité, l'isotropie et maintien des propriétés des produits, l'aspect économique et environnemental.

VI.5.1. Procédé général

C'est un procédé intéressant sur le quel compte des grandes industries qui produisent des pièces de CMMp par métallurgie des poudres, telle que DWA, Advanced Composite Materials Corp. (ACMC), ou Aerospace Corp. [37].

Les produits de départ sont à l'état pulvérulent, que ce soit les poudres métalliques ou le renfort. Afin que la répartition soit homogène, les poudres métalliques et de renfort sont introduites dans un cylindre rotatif pendant un certain temps.

Les particules sont souvent d'une dimension plus petite que les poudres métalliques ce qui contribue à l'élimination de la porosité aux interfaces métal-particules. Pour éviter la formation des couches d'oxydes sur les particules ou la formation de porosités lors du compactage à haute température, un dégazage sous vide à froid ou à chaud est nécessaire.

La mise en forme des comprimés se fait soit par compression uni axiale à froid ou à chaud, ou isostatique à chaud (HIP Hot Isostatique Pressing). Pour une meilleure densification, il est recommandé d'effectuer un frittage sous haute pression et à haute température.

La figure 4.3 illustre le principe général de la fabrication des CMMp par métallurgie des poudres. [37]

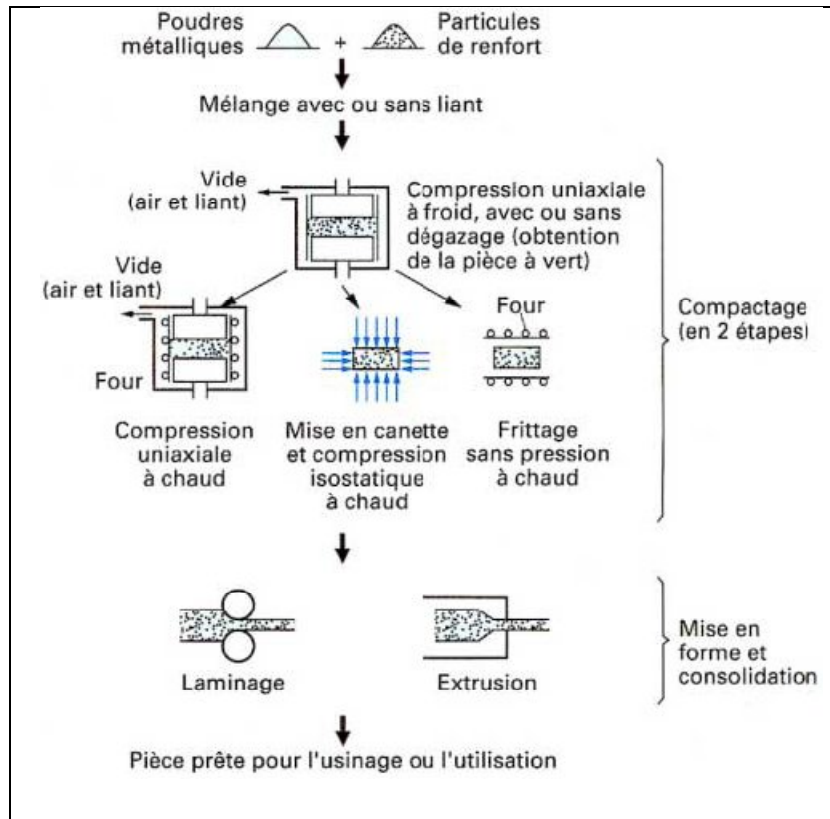


Figure IV.4 : Principe général de la fabrication des CMMp par métallurgie des Poudres.

IV.5.2 Incorporation des particules par alliage mécanique

C'est une opération qui se réalise sous une atmosphère neutre afin d'éviter toute formation de pellicules d'oxyde à l'interface particule-métal et toute utilisation de liant est déconseillé. Pour ce procédé, les poudres sont mélangées à l'aide d'un broyeur rotatif à boulets d'alumines, ce mouvement rotatif entraîne les particules à s'incruster mécaniquement dans les poudres. Il s'ensuit un enrobage des particules les plus dures par les particules ductiles.

La compression est réalisée par compression uniaxiale ou isostatique à chaud ou à froid. Tous les travaux s'orientent vers l'obtention des produits purs et totalement denses. Citons l'exemple de l'élaboration d'un CMMp à base de carbure de tungstène dans l'acier est effectué par broyage des poudres de Fe-C et WC. Une technique basée sur le principe de l'infiltration est très employée, notamment pour les cermets tels que WC-FeAl ou TiC-FeAl.

Ce principe d'infiltration est schématisé dans la figure IV.4.

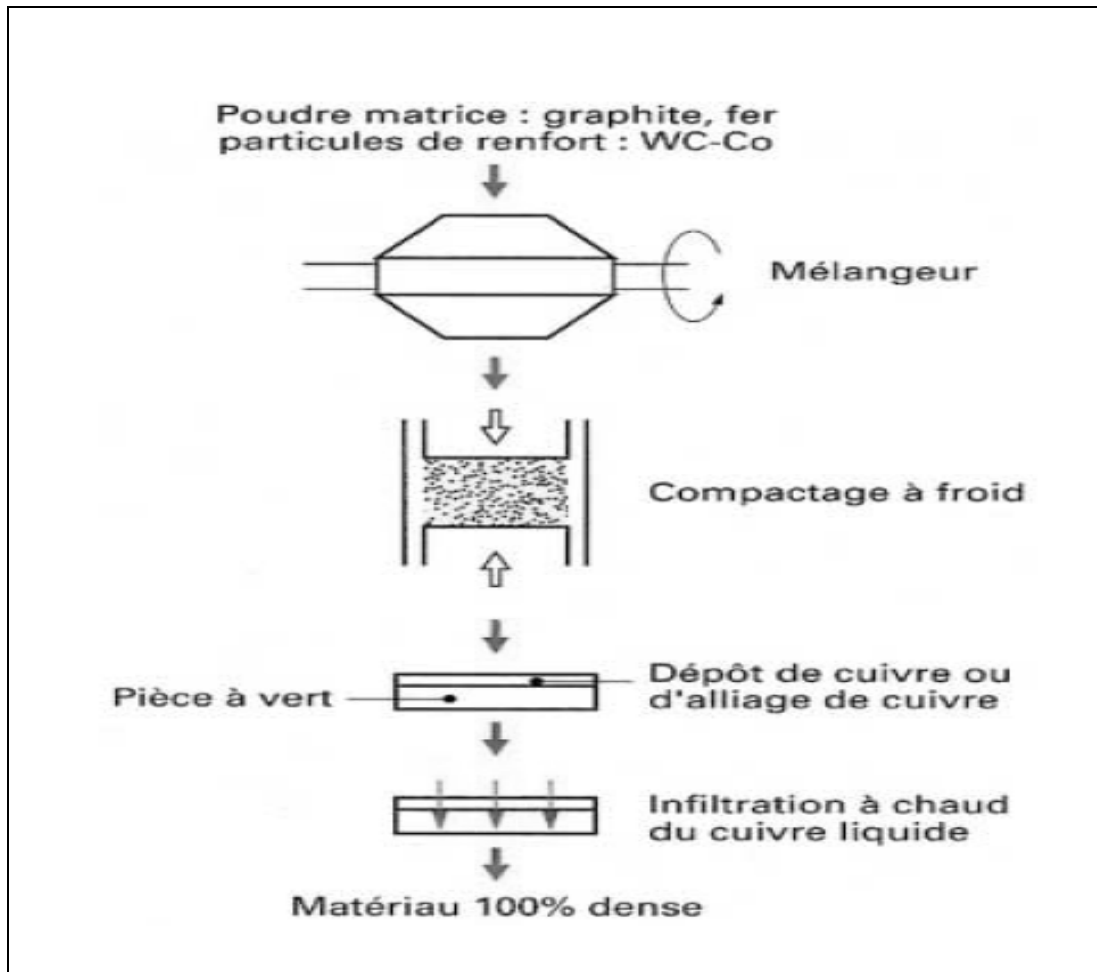


Figure IV.5 : schéma d'élaboration par infiltration.

Deuxième partie
Partie expérimentale

Chapitre V

***Matière première et technique
expérimentale***

Chapitre V

Matières premières et techniques expérimentales.

V.1/ Introduction :

Le choix des poudres est une étape phare pour les expériences, tout comme la préparation des échantillons qui est une démarche minutieuse nécessitant un matériel et une attention particulière. Ce chapitre sera consacré à la description des techniques, des appareils ainsi que la caractérisation des matières premières.

V.2/ Matières premières

Les poudres métalliques utilisées au cours de notre étude sont d'origine commerciale dont le tableau V.I rassemble leur pureté et provenance.

Désignation des poudres	Formes	Pureté	Fournisseur
Fe 1	Sphérique	99,5%	Merck
Fe 2	Irrégulière	99%	Merck art 3819
Al	Sphérique	99%	Riedel de Haen

Tableau V.1 : Désignation, provenance et pureté des poudres.

V.3/ Caractérisation et préparation des poudres

V.3.1 Préparation des mélanges

Les différents mélanges de poudres de composition massique Fe-32,57% Al sont mélangés dans des flacons à l'aide d'un turbula, pendant 20 minutes.

Pour avoir une poudre fine, on n a recourt au broyage qui s'effectue de deux manières :

- l'une est manuelle dans un mortier d'Agathe qui par suite nécessite un tamisage mode vibration.
- L'autre s'effectue à l'aide d'un conteneur broyeur qui contient des billes en acier inox et la poudre à broyer. Le rapport masse des billes/masse de poudre est de 10. Pour

éviter toute oxydation de la poudre, le conteneur sera fermé sous argon. L'ensemble est fixé au mandrin à 4 mores d'un tour dont la vitesse de rotation est de 90 tr/min.

Pour améliorer l'efficacité du broyage le conteneur est désaxé par rapport à l'axe de rotation du mandrin.

Les pesées des poudres et des billes sont effectuées grâce à une balance analytique avec une précision de 0,1 mg.

V.3.2 Préparation des pastilles

Les pastilles sont obtenues par compression uniaxiale à froid de 450MPa, dans une pastilleuse cylindrique de diamètre intérieur de 13mm. La pression nécessaire est fournie par une presse hydraulique de laboratoire équipée d'une pompe, d'un système de contrôle de la vitesse de chargement et d'un manomètre indiquant la pression appliquée. A l'issue de l'opération de compactage l'échantillon est éjecté, après la dépressurisation, sous forme de pastille.

V.4 / Le four de traitement thermique de frittage :

L'opération de frittage est effectuée dans un four tubulaire électrique (Figure V. 3). Ce dernier est équipé d'un tube borgne en alumine entouré d'un résistor pouvant atteindre la température de 1400°C. Le cycle thermique est contrôlé par un régulateur de type eurotherm 3216 par le biais d'un gradateur de puissance qui agit sur l'enroulement primaire d'un transformateur abaisseur de tension. L'enroulement secondaire est relié aux bornes du résistor du four. Le capteur de température est placé dans la canne en céramique, sous l'échantillon. Le tube du four est relié à une pompe à vide et à un circuit de gaz inerte permettant de traiter les échantillons sous atmosphère protectrice. Une soupape d'huile permet d'évacuer l'excès de gaz inerte lors du traitement en atmosphère dynamique d'argon

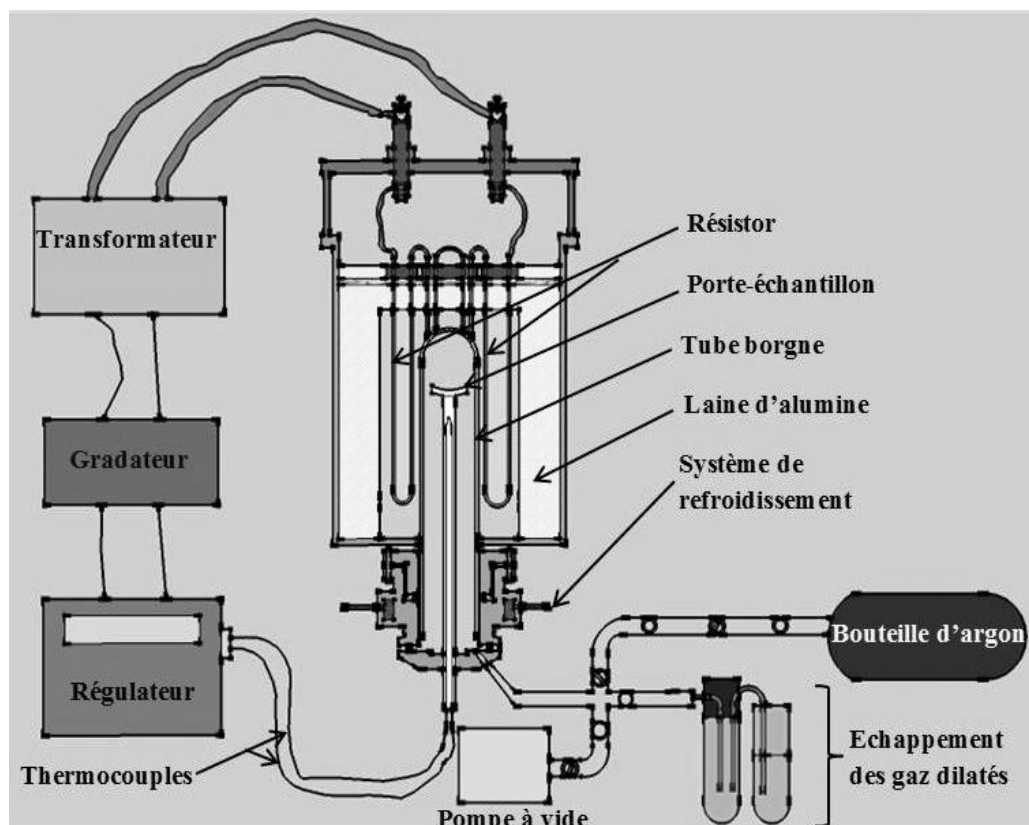


Figure V.1 : Schéma du four tubulaire.

V.5/Dispositif de la réaction SHS :

La réaction SHS est effectuée dans une enceinte étanche (figure V.2) qui est reliée à une pompe à vide et au circuit d'argon. L'atmosphère neutre permet le déroulement de la réaction en absence de l'oxygène. Une fenêtre en verre permet de visualiser ou de filmer, au besoin, l'effet de la réaction.

L'échantillon est placé à côté de la résistance électrique destinée à le chauffer localement jusqu'à la température d'ignition de la réaction. Une fois la réaction amorcée, celle-ci s'auto-propage et se maintient jusqu'à la transformation complète des réactifs. La température est enregistrée par un thermocouple, placé sur le trajet du front de réaction.

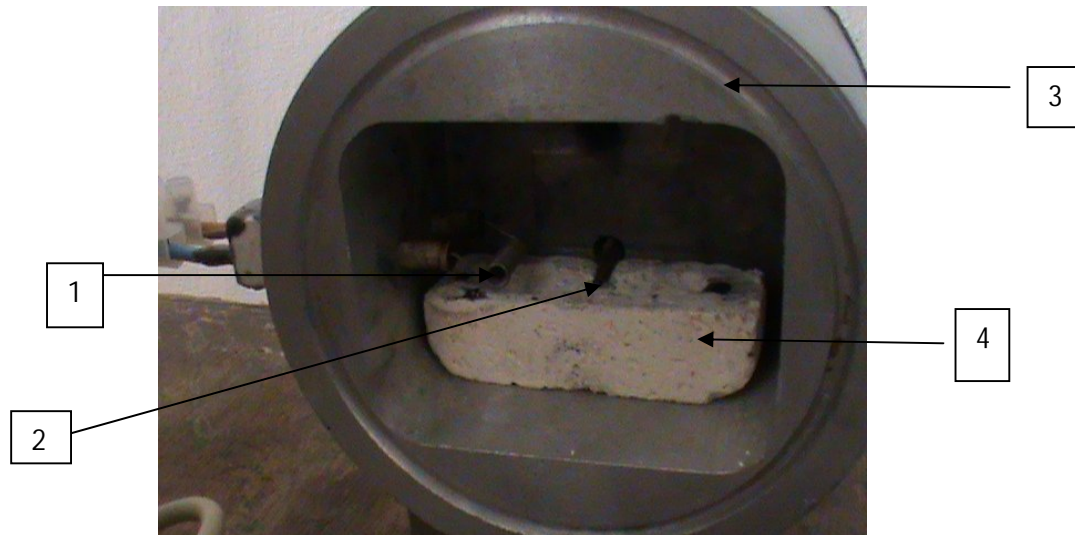


Figure V.2 : Dispositif de la réaction SHS.

- [1] : Résistance électrique.
- [2] : Thermocouple.
- [3] : Fenêtre en verre.
- [4] : Porte échantillon en céramique.

V.6/ Caractérisation des échantillons traités

Pour mettre en évidence la structure et la morphologie des constituants, les échantillons ont subi plusieurs opérations :

V.6.1 Le polissage

Avant de passer à l'observation micrographique, les surfaces doivent être brillantes et exemptes de toutes rayures. Pour cela, une opération de polissage s'avère nécessaire.

C'est une opération effectuée sur une polisseuse à deux disques tournant (figure V.3) sur lesquels des papiers abrasifs de granulométries différentes sont déposés. Pour commencer on frotte nos échantillons sur ces papiers de plus en plus fins en utilisant une gamme de papier allant de 1200 à 4000.

La durée de chaque passage est d'environ 3 min sur chaque papier on prenant soin de faire une rotation de 90° pour croiser les rayures et les rendre non discernables à l'œil nu.

Le refroidissement par arrosage permanent de la surface à polir est impératif pour éviter tout échauffement susceptible de provoquer des changements de phase de la structure.



Figure V.4 : polisseuse à deux disques.

V.6.2 Polissage de finition

Son but est de compléter l'opération de polissage en permettant d'obtenir une surface miroir. Pour ce faire, nous avons utilisé une polisseuse de finition dotée d'un disque recouvert de feutre imbibé d'une suspension d'alumine dont la granulométrie dépend du temps de décantation. Nous avons utilisé l'alumine 1 heure.

V.6.3 Attaque chimique

L'objectif est d'utiliser un réactif adapté pour faire apparaître les joints de grains. C'est une opération qui consiste à verser quelques gouttes du réactif sur la surface préalablement polie, elle dure quelques secondes puis l'échantillon est rincé à l'eau pour éviter une attaque de l'échantillon en profondeur. L'échantillon est ensuite séché à l'air chaud.

V.6.4 Observation au microscope optique

Toutes les opérations précédentes sont faites pour avoir un meilleur résultat d'observation. Le microscope optique permet d'évaluer qualitativement l'état de la microstructure des échantillons. Nous avons utilisé un microscope métallographique de type HUND WETZLAR T 100 qui fonctionne sous une tension de 220V et une fréquence de 50HZ. Pour les prises de photos, cet appareil est doté d'une caméra reliée à un ordinateur permettant d'enregistrer directement les micrographies.

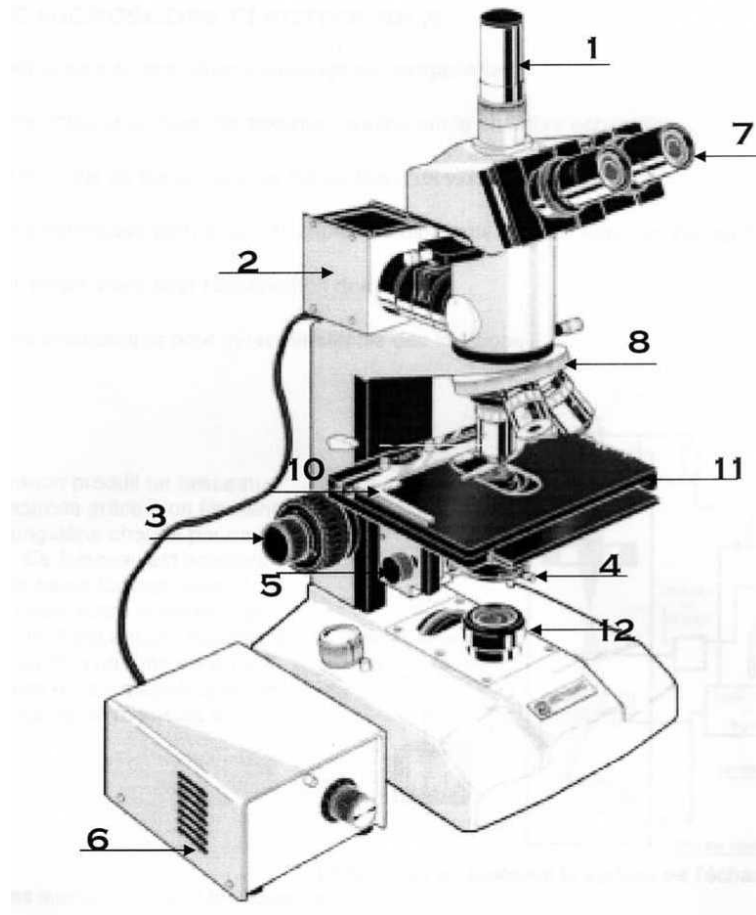


Figure V.5. Microscope métallographique

Les accessoires de ce microscope sont :

- 1- Emplacement pour la caméra.
- 2- Lampe pour observation par réflexion.
- 3- Bouton de mise au point de l'image.
- 4- Bouton de déplacement longitudinal de l'échantillon.
- 5- Bouton de déplacement transversal de l'échantillon.
- 6- Potentiomètre de réglage de l'intensité de lumière.
- 7- Oculaires avec agrandissement de 10X.
- 8- Porte objectifs, libre en rotation.

9- Objectifs avec agrandissement 5, 10 et 40X.

10- Porte échantillon.

11- Platine.

12- Lampe pour utilisation en transmission.

Le principe de fonctionnement du MO est de poser l'échantillon sur le porte échantillon avec une orientation vers l'objectif qui va focaliser un faisceau lumineux sur lui par sa lentille, ensuite cette lumière sera réfléchiée par la surface à analyser vers la même lentille. Ainsi on peut visualiser l'image avec l'agrandissement voulue.

V.6.5 Microscopie électronique à balayage (MEB)

Pour la caractérisation microstructurale de nos échantillons, nous avons utilisé un microscope électronique à balayage (MEB) de type **Philips XL30**.

Le MEB est un appareil d'auscultation de haute résolution qui utilise les rayonnements émis par un échantillon bombardé par un faisceau d'électrons. Le faisceau généré par le canon d'électrons est accéléré par une haute tension pour augmenter son énergie. Des bobines assurent la déviation du faisceau pour balayer portion de la surface de l'échantillon à analyser. L'interaction des électrons primaires avec la matière provoque l'émission de divers électrons qui sont :

- Les électrons secondaires (SE) : de faible énergie, résultant de l'interaction inélastique des électrons primaires et les électrons des atomes de l'échantillon. Ils sont utilisés dans l'examen de la morphologie et de la topographie du fait qu'ils proviennent des couches superficielles.
- Les électrons rétrodiffusés (BSE) : de plus grande énergie, résultant de l'interaction élastique des électrons primaires avec les noyaux des atomes. Ils sont utilisés pour produire le contraste chimique entre les éléments constitutifs de la matière du fait que le coefficient de rétrodiffusion dépend du numéro atomique. En effet, les éléments chimiques lourds rétrodiffusent plus d'électrons du fait de leur nombre atomique élevé, ce qui produit des zones

claires sur la micrographie, contrairement aux éléments légers qui s'y présentent en zones sombres.

- Les rayonnements X: provenant de l'excitation de niveaux électroniques profonds. Le retour à l'équilibre provoque l'émission d'un rayonnement X caractéristique de l'atome. Ils sont utilisés pour faire l'analyse chimique élémentaire qualitative et quantitative.

Le MEB est doté de différents détecteurs permettant de recueillir et de traiter ces rayonnements. L'appareil est relié à un micro-ordinateur pour l'acquisition d'images et un autre pour le traitement des spectres d'analyse.

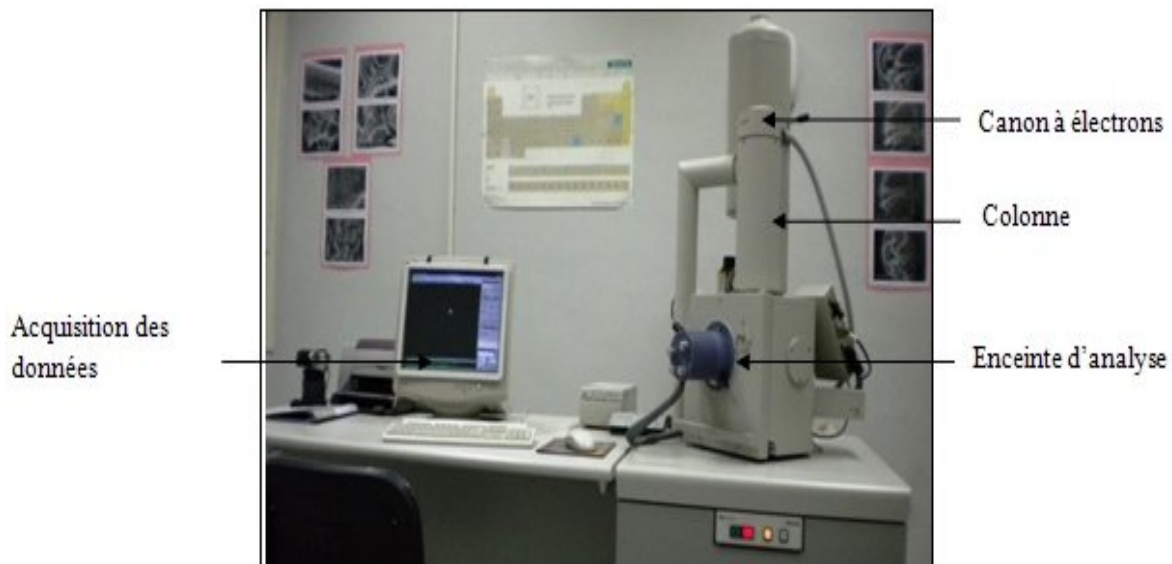


Figure 5.3 : Microscope électronique à balayage Philips XL30

V.7.4 Analyse par diffraction des rayons X (DRX) :

La technique d'analyse par diffraction des rayons X repose sur l'interaction élastique d'un faisceau monochromatique de photons X avec la matière cristallisée. L'appareillage utilisé est un diffractomètre Panalytical qui est couplé à un ordinateur pour le pilotage et l'enregistrement. La source de rayon X est un tube à anticathode de cuivre ($\lambda=1.5405\text{\AA}$). Le montage utilisé est en θ - 2θ qui permet d'enregistrer les rayons diffractés.

Les paramètres utilisés au cours de nos expériences sont les suivants :

- L'intervalle de balayage est de 20 à 100 degrés.

- Le pas de balayage est de $0,02^\circ$.
- Le temps d'exposition par pas est 1 seconde.
- La vitesse de rotation de l'échantillon est de 30 tr.min^{-1} .

Dès lors que les paramètres sont introduits le logiciel enregistre le diffratogramme qui sera traité au moyen du logiciel EVA qui permet l'identification des phases par comparaison aux fiches JCPDS.



Figure 5.4 : Diffractomètre à rayons-x type panalytical.

Chapitre VI

***Elaboration du composés FeAl
par frittage réactif SHS***

Chapitre VI

Elaboration de composé FeAl par frittage réactif SHS.

VI.1/ Caractérisation des poudres élémentaires

La répartition granulométrique des poudres élémentaires a été déterminée en utilisant un granulométrie Laser. Les courbes obtenues, les moyennes de taille et les valeurs statistiques relatives à ces poudres ainsi que les surfaces spécifiques sont représentées sur les figures VI.1.a et VI.1.b.

La forme des particules de chaque poudre a été mise en évidence par observation au microscope électronique à balayage en mode d'électrons secondaires. Les micrographies sont rapportées sur les figures VI.2.a et VI.2.b

La distribution granulométrique de la poudre Fe1 est monomodale, constituées à 50% de son volume, de particules de tailles comprises entre 4,258 et 10,07 μm et une moyenne qui coïncide avec le pic principale de 8,064 μm (figure VI.1.a), avec une forme sphérique des particules (figure VI.2.a).

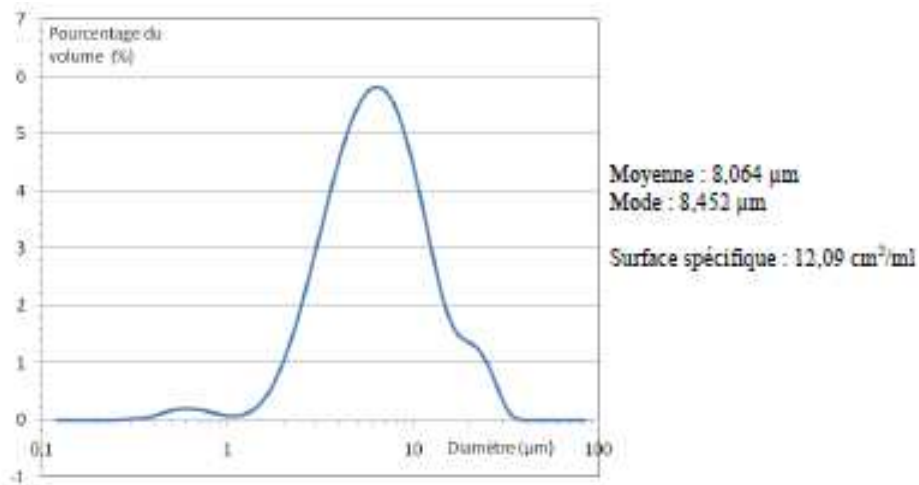


Figure VI.1.a : Courbe de répartition granulométrique de la poudre Fe1

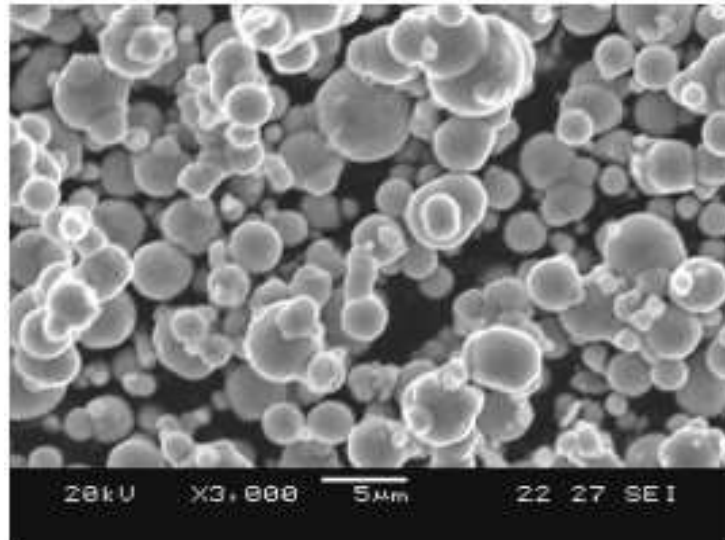


Figure VI.2.a : Aspect de la poudre Fe 1.

Egalement, la poudre de fer Fe2 est d'une répartition monomodale (figure VII.1.b) mais de granulométrie élevée puisque la moitié du volume est constituée de particules de tailles comprises entre 34,75 et 58,89µm. le pic principal représente 47,61µm qui est la moyenne des tailles. L'observation au MEB révèle une forme irrégulière des particules (figure VI.2.b)

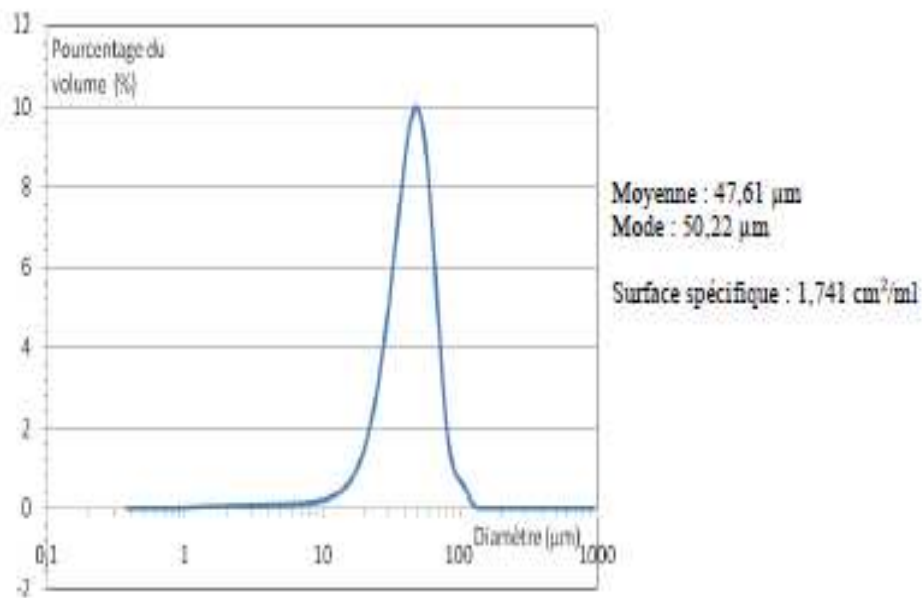


Figure VI.2.a : Courbe de répartition granulométrique de la poudre Fe 2

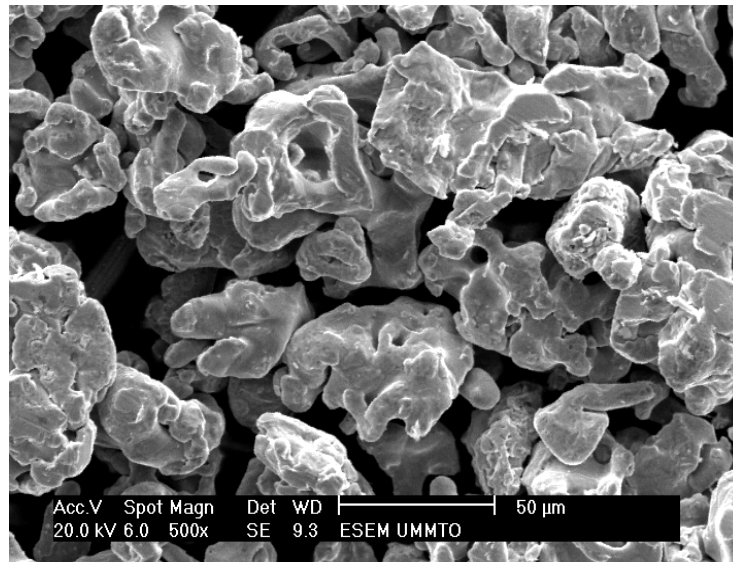


Figure VI.2.b : Aspect de la poudre Fe 2

La poudre d'aluminium a une répartition monomodale, qui 50% de son volume est constituée de particules de tailles comprises entre 36,04 et 70,17 μm avec une moyenne de 55,52 μm (figure VI.3). La forme irrégulière de la poudre est mise en évidence par MEB (figure VI.3)

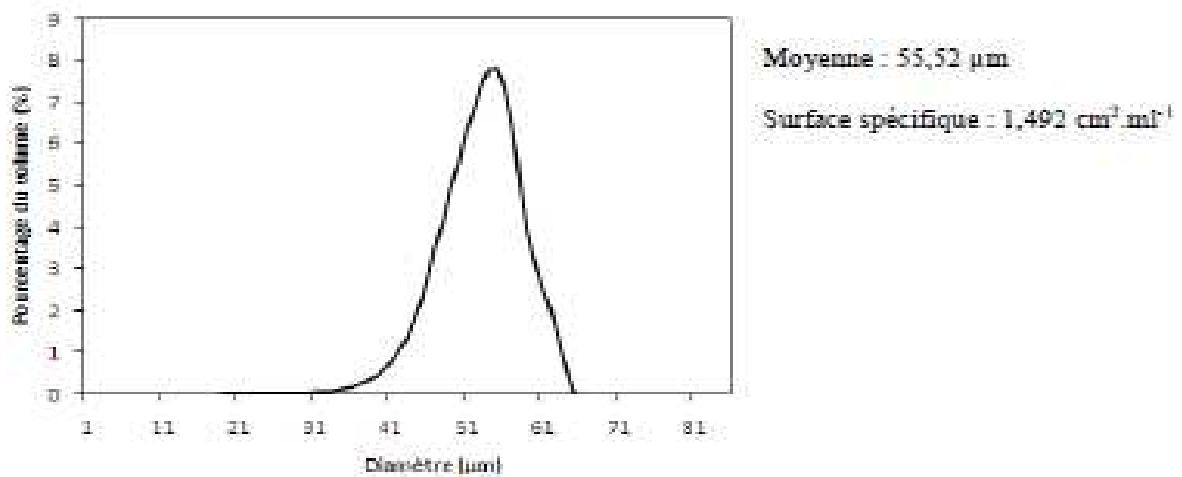


Figure VI.3.a : Courbe de la répartition granulométrique de la poudre d'aluminium

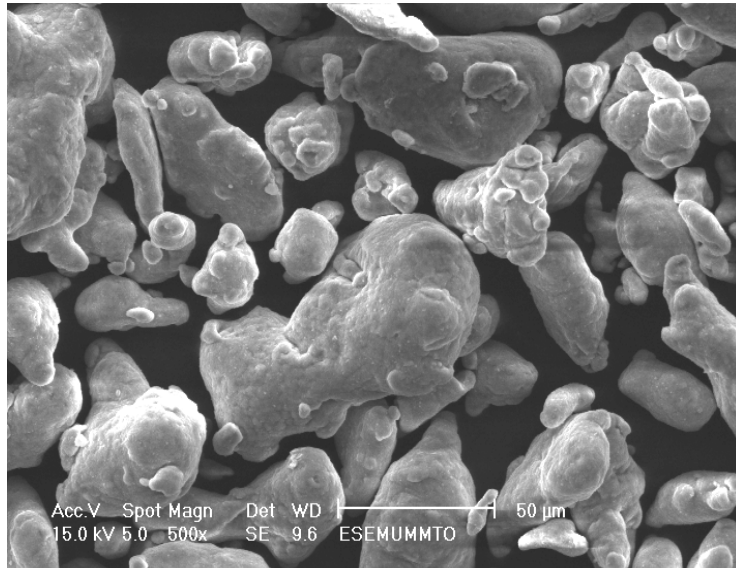


Figure VI.3.b : Aspect de la poudre d'aluminium Al

VI.2/ Elaboration du composé FeAl par frittage réactif

Afin de comprendre les phénomènes qui régissent la synthèse du composé FeAl par frittage réactif, on a réalisé deux comprimés à base des deux poudres de fer et celle d'aluminium qui sont soumis à un traitement thermique de frittage à 1100°C. La vitesse de chauffe et de refroidissement est de 15°C/min et un temps de maintien d'une heure.

L'identification des phases obtenues est effectuée par diffraction des rayons X (DRX).

VI.2.1 Frittage du mélange Fe1-50%Al en atomes

Ce mélange est réalisé de dans les mêmes conditions d'homogénéisation et de compactage. Les pastilles sont frittées sous argon à la température de 1100°C. A l'issue de cette opération, l'échantillon subit un important gonflement accompagné d'un virement de la couleur comme le montre la figure VI.4.



Figure VI.4 : Echantillon fritté à 1100°C d'un mélange Fe1 et Al.

VI.2.1.1.a Analyse dilatométrique du mélange Fe1-50%Al en atomes

Pour mettre en évidence la réaction entre le fer et l'aluminium qui se manifeste par un gonflement de l'échantillon, nous avons effectué des analyses dilatométriques en fonction de l'augmentation de la température. Ceci a permis d'enregistrer la température du déroulement de la réaction SHS. La courbe dilatométrique de l'échantillon Fe1-50%Al en atomes est représentée sur la figure VI.5

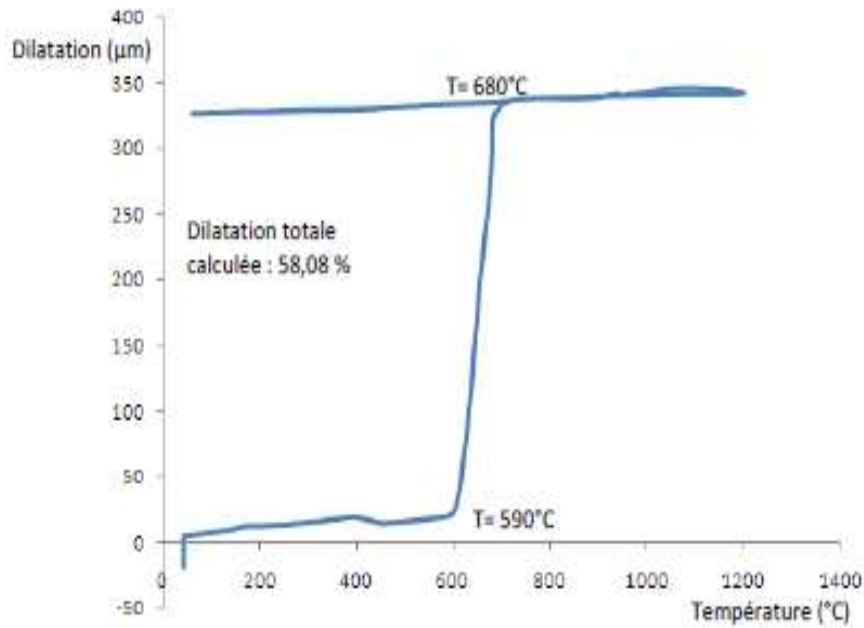


Figure VI.5 : Courbe dilatométrique de l'échantillon Fe1-50%Al

Cette figure montre que la réaction est amorcée vers 590°C et se termine au voisinage de 680°C. Dans cet intervalle l'échantillon subit un gonflement brutal qui est le résultat de la réaction SHS. Après le refroidissement l'échantillon garde une augmentation de volume jusqu'à la température ambiante. Le produit de cette réaction est analysé par DRX pour identifier les phases formées.

Cette analyse révèle la formation des composés intermétalliques FeAl et Fe₃Al qui prédominent et la présence d'une quantité de fer pur et des traces de son oxyde Fe_{2,93}O₄ (figure VI.6).

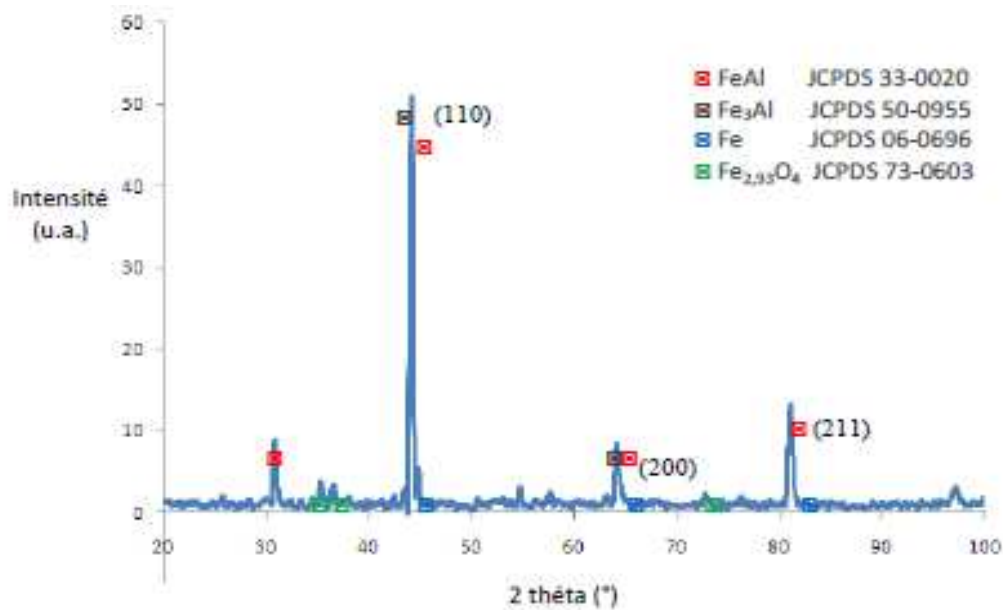


Figure VI.6 : Diffractogramme de l'échantillon Fe1-50%Al

VI.2.2. Frittage du mélange Fe2-50%Al en atomes

Cet échantillon est soumis au même traitement que le précédent. La courbe dilatométrique (figure VI.7), montre le début de la réaction SHS à 654°C et sa fin à 672°C. Cette réaction se manifeste par un gonflement relativement plus rapide que celui du mélange utilisant la poudre Fe1.

Le produit de la réaction est le composé intermétallique FeAl seul comme en témoigne la diffraction des rayons X de la figure VI.8. Les réactifs sont complètement consommés.

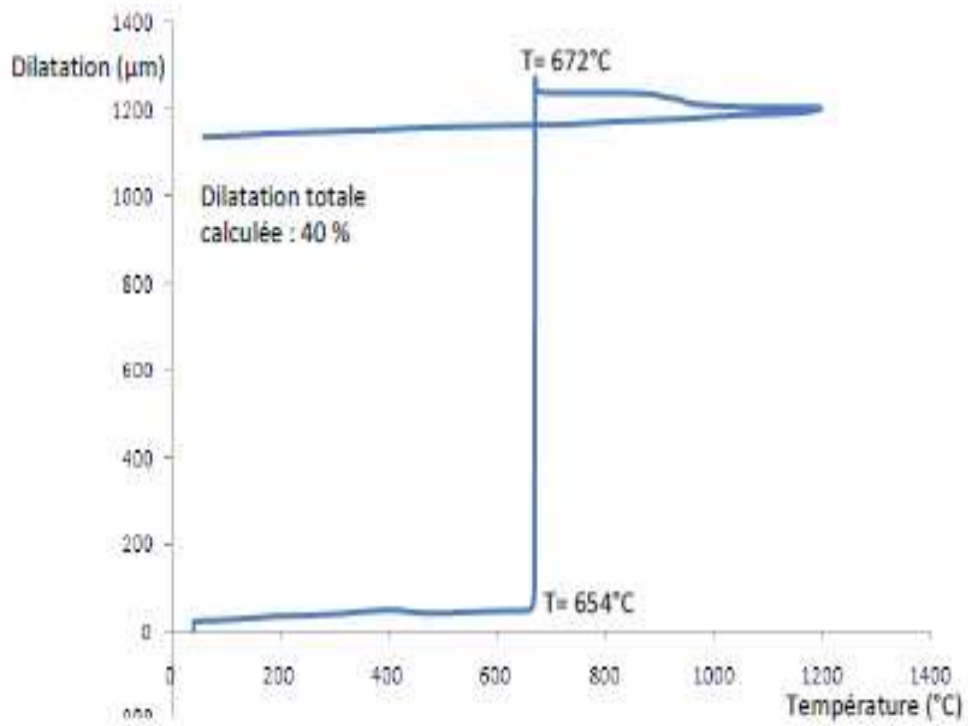


Figure VI.7: Courbe dilatométrique de l'échantillon Fe2-50% Al

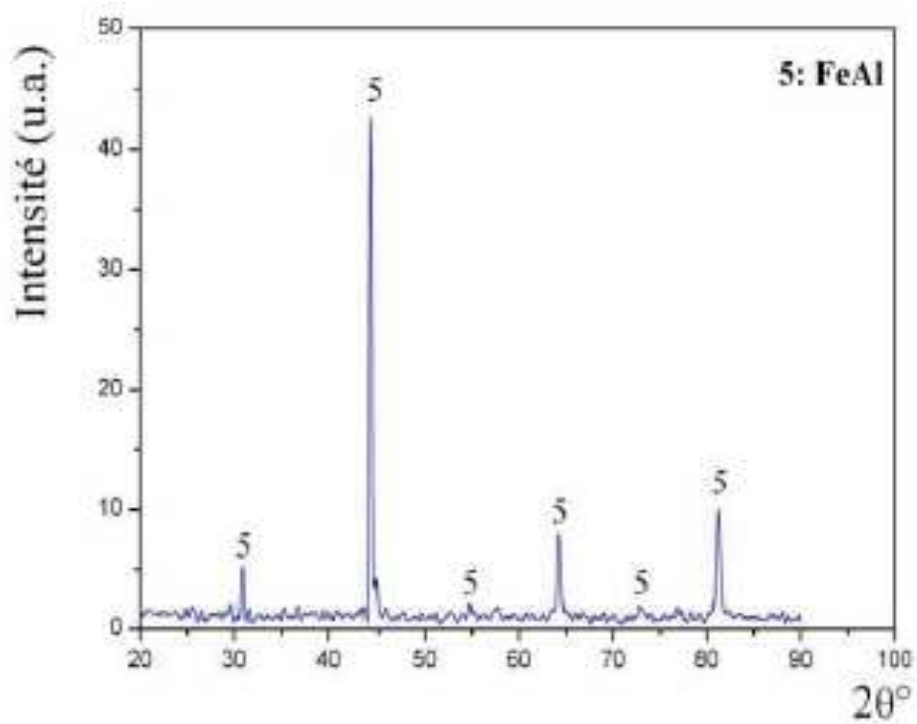


Figure VI.8 : Diffractogramme de l'échantillon Fe2-50% Al

Pour l'élaboration du composite à matrice métallique le composé obtenu est réduit en poudre par broyage manuel dans le mortier puis utilisé comme renfort de particules d'une matrice de cuivre. Le chapitre suivant est consacré à l'étude de ce composite.

Chapitre VII

***Elaboration d'un composite à
matrice de cuivre et renforts
FeAl***

Chapitre VII

Elaboration d'un composite à matrice de cuivre et renforts FeAl

Dans le présent chapitre, nous parlerons de l'élaboration et caractérisation d'un composite à matrice de cuivre renforcée par des particules de FeAl produites par frittage réactif SHS.

VII.1/ Matière première

Nous avons utilisé une poudre de cuivre pur à 99,5% fournie par Merck (art. 2715). La répartition granulométrique de cette poudre est bimodale avec des tailles moyennes de 13,6 et 120 μm (figure VII.1) . L'aspect dendritique de cette poudre est mis en évidence par microscopie électronique à balayage en mode d'électrons secondaires qui éclairent une multitude de grains allongés assemblés à la manière de branches (figure VII.2).

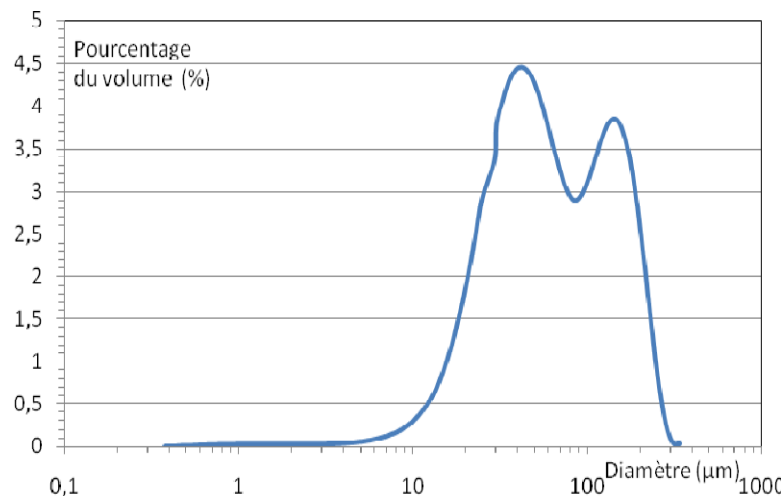


Figure VII.1 : Courbe de répartition granulométrique de la poudre de cuivre.

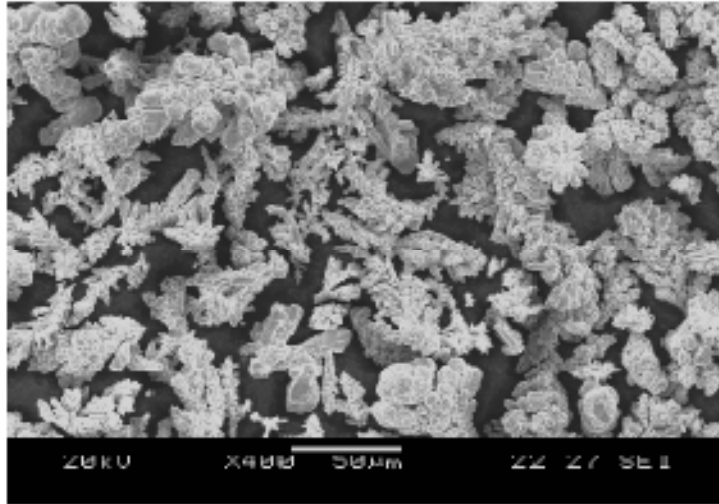


Figure VII.2 : Aspect des particules de la poudre de cuivre

Pour les particules de FeAl qui serviront de renfort, sont obtenues par broyage manuel et tamisage ($< 80\mu\text{m}$) du composé synthétisé par SHS. L'aspect spongieux et poreux de ces particules est illustré sur la figure VII.3.

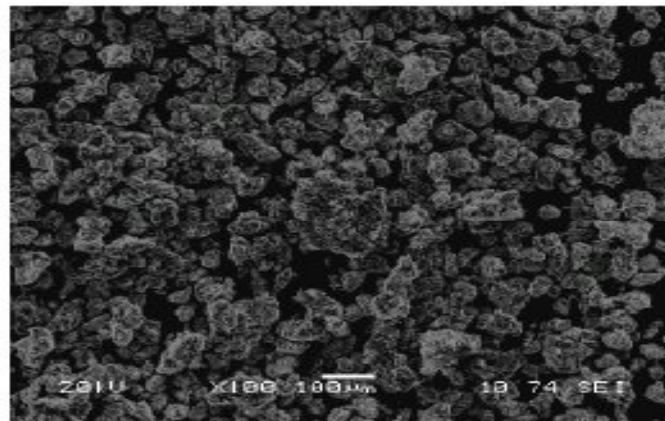


Figure VII.3 : Poudre Fe Al obtenue à partir de Fe₂ broyé manuellement

VII.2/ Elaboration du composite à matrice métallique et renfort FeAl

Les mélanges ont été préparés dans des proportions de 80% de cuivre et 20% de FeAl. Après homogénéisation de 20 minutes au turbulot, les mélanges sont compactés à 450 MPa par compression uni-axiale. Pour certains échantillons des opérations de broyage et cobroyage ont été effectuées.

La température de frittage des échantillons est de 800°C pour le traitement en phase solide et 1130°C dans le cas d'une présence d'une phase liquide. L'opération de frittage se déroule

dans un four tubulaire avec une vitesse de chauffe et de refroidissement de 15°C/min et un temps de maintien d'une heure.

VII.2.1 Composite Cu-20%FeAl fritté à 800°C

L'échantillon fritté a été poli et observé au microscope optique (figure VII.4) qui fait apparaître les particules de FeAl en gris noyées dans la matrice de cuivre en rose.

L'observation en mode d'électrons rétrodiffusés (figure VII.5) permet de distinguer les phases par contraste chimique. Les particules de FeAl apparaissent en sombre dans la matrice de cuivre en claire.

Une analyse par diffraction des rayons X montre la présence du composé $Al_{0.4}Fe_{0.6}$ qui apparaît suite au changement de stoechiométrie du composé FeAl, qui laisse une quantité d'aluminium s'échapper pour réagir avec la cuivre et former le composé $CuAl_2$ comme on constate une présence du cuivre pur (figure VII.6).

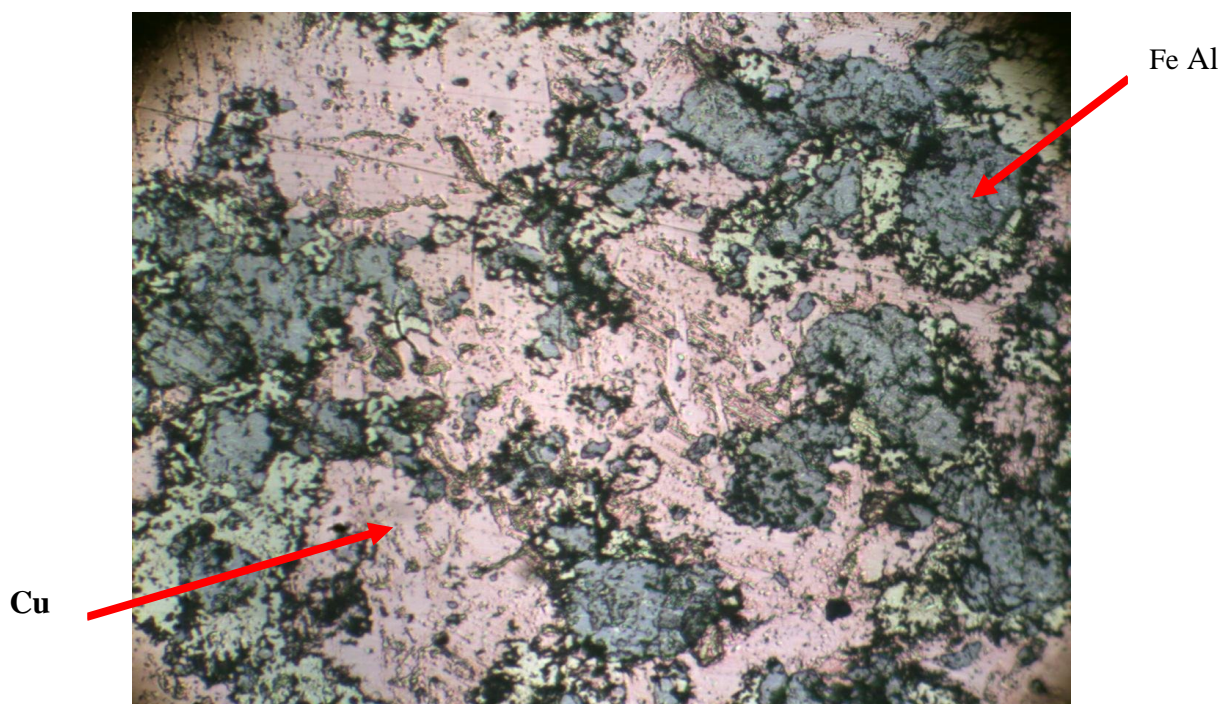


Figure VII.4 : Micrographie optique de l'échantillon Cu-20%Fe Al fritté à 800°C.

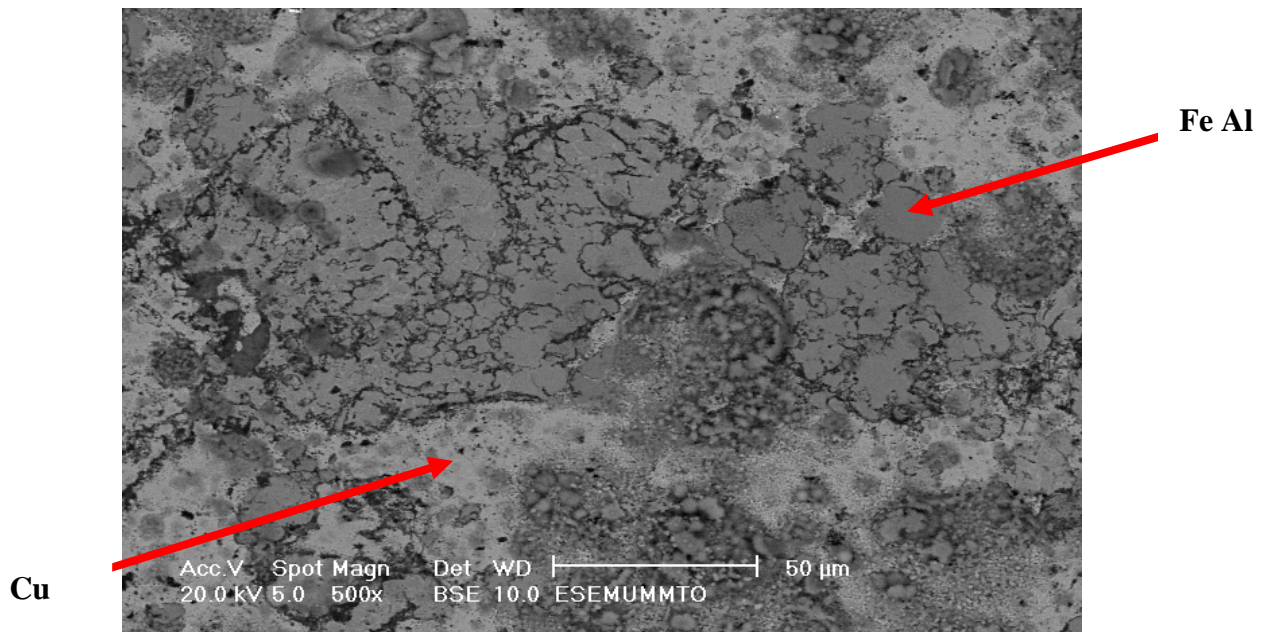


Figure VII.5 : Observation en électrons rétrodiffusés au MEB de l'échantillon Cu-20%Fe Al fritté à 800°C

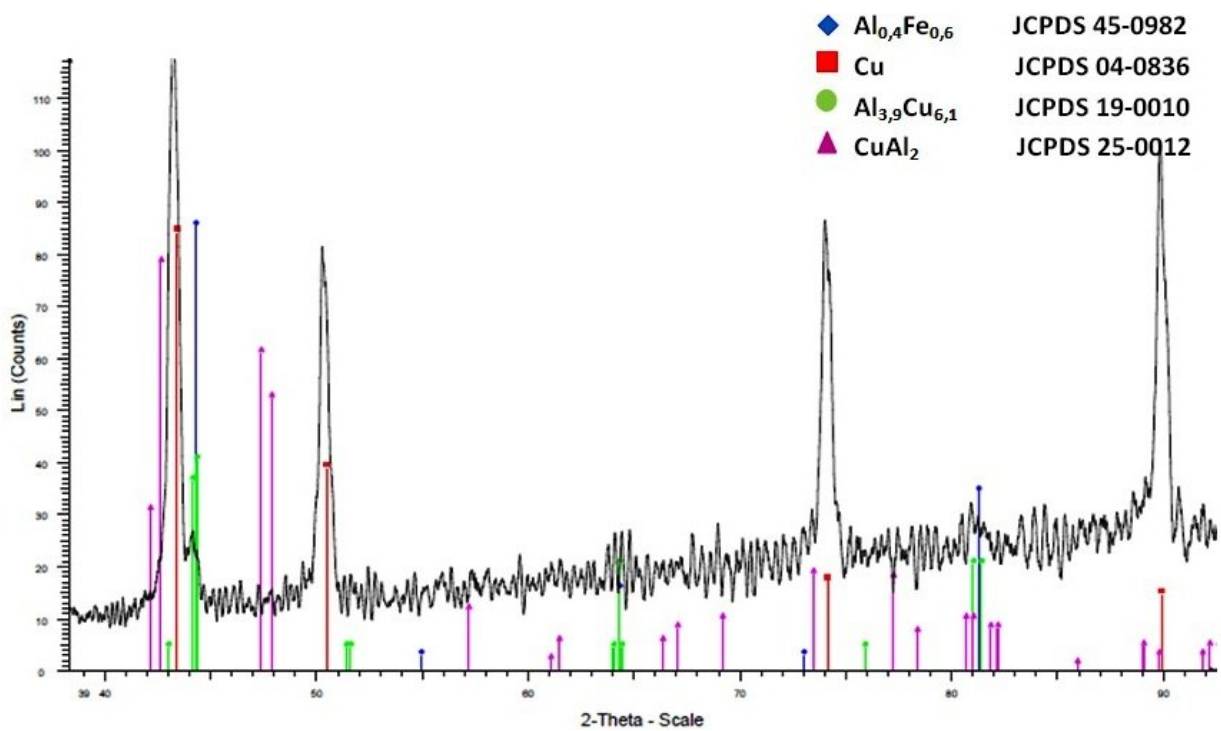


Figure VII.6 : Diffractogramme de l'échantillon Cu-20%Fe Al fritté à 800°C.

VII.2.2 Composite Cu-20%FeAl broyé 10h fritté à 800°C

Le broyage des particules de Fe Al pendant 10h a permis d'uniformiser la répartition de ces particules dans la matrice de cuivre comme le montre la micrographie (figure VII.7).

L'analyse par DRX met en évidence l'existence du cuivre pur, du FeAl et la formation du composé CuAl_2 (figure VII.8).

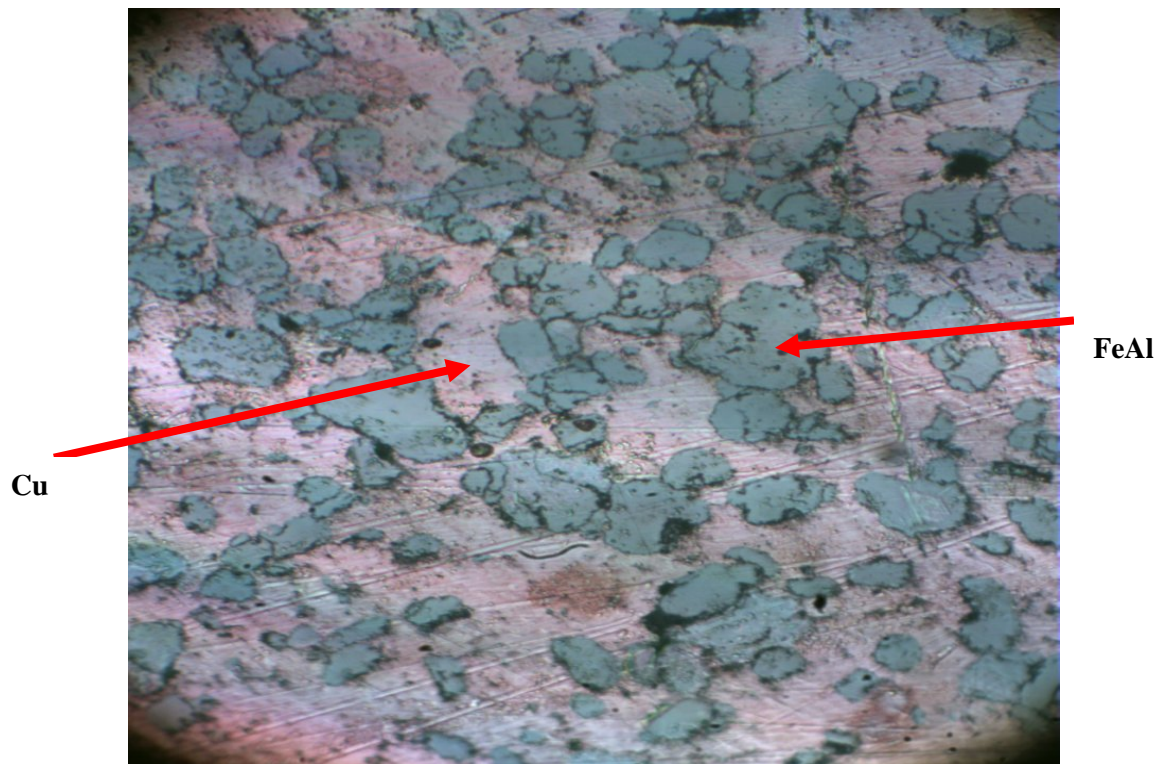
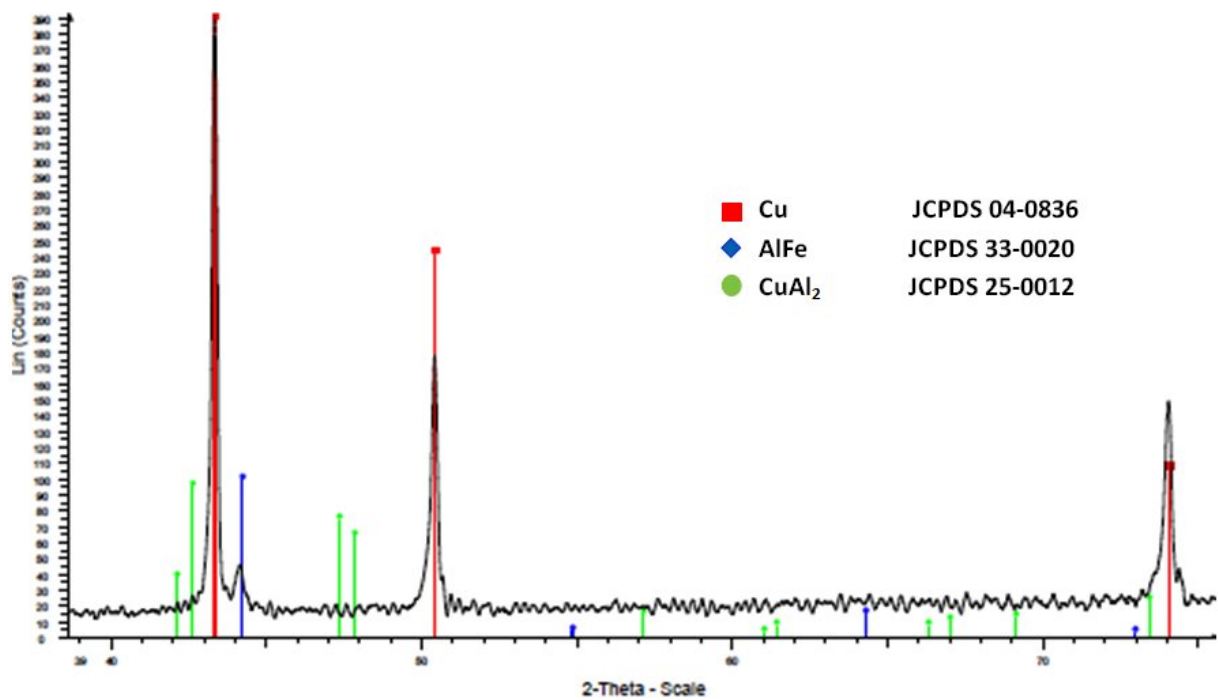


Figure VII.7 : Micrographie optique de l'échantillon Cu-20%Fe Al

broyé 10h et fritté 800°C.



Fufure VII.8 : Diffractogramme de l'échantillon Cu-Fe Al broyé 10h fritté à 800°C

VII.2.3 Composite Cu-20%Fe Al cobroyé 20h fritté à 800°C

Après un cobroyage de 20h du cuivre et de la poudre FeAl, la poudre obtenue présente un aspect gris rougeâtre. Le cobroyage de ces deux poudres provoque généralement un enrobage des particules les plus dures (FeAl) par les plus ductiles (cuivre).

L'observation au microscope optique (figure VII.9) met en évidence la diminution de la taille des grains et une tendance des particules de renforts (en gris) à se regrouper dans la matrice.

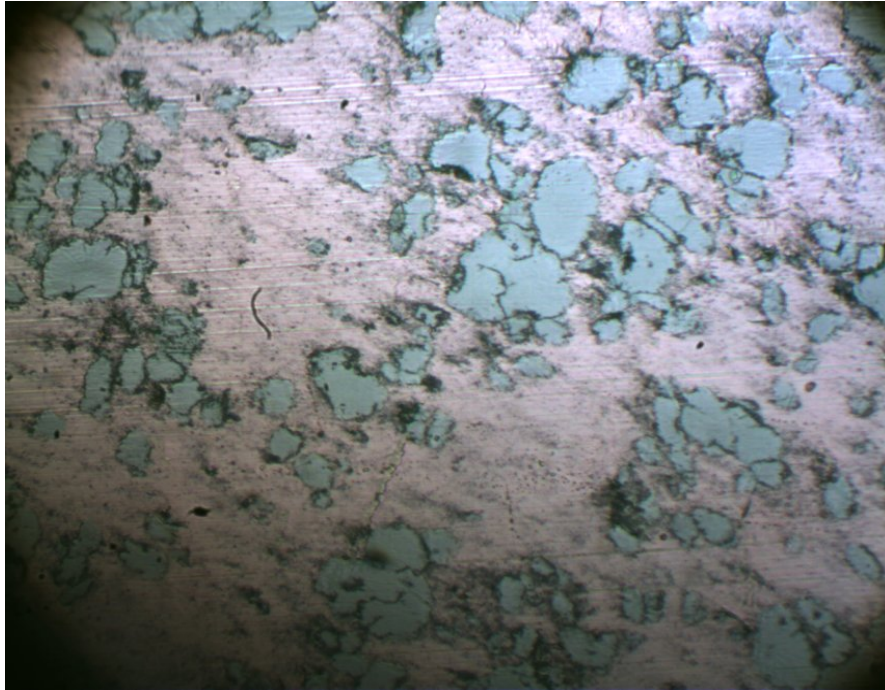


Figure VII.9 : Micrographie optique du composite Cu-20%Fe Al
cobroyé 20h et fritté à 800°C.

L'analyse par DRX de l'échantillon a montré que la poudre de Fe Al est bien enrobée, vu que la phase identifiée est le cuivre avec un léger décalage de ses raies vers la droite et des épaulements significatifs de la présence du Fe Al [12]. Après le frittage, les raies des deux phases Fe Al et Cu réapparaissent séparément (figure VII.10).

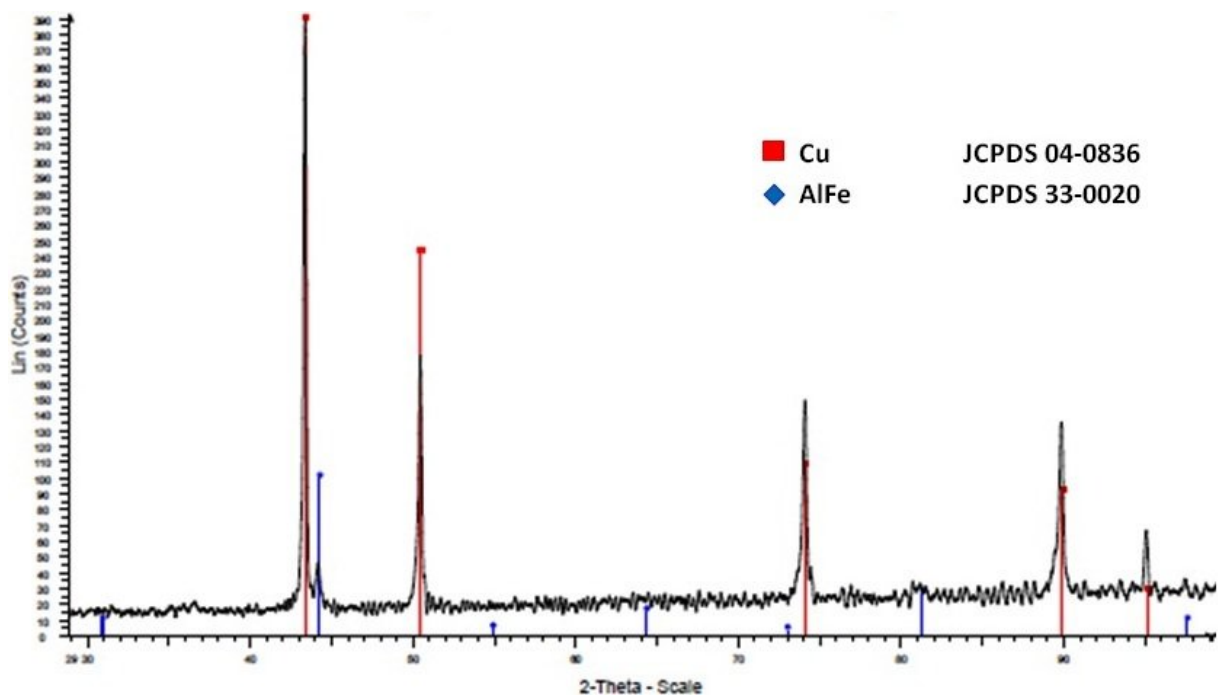


Figure VII.10 : Diffractogramme du composite Cu-20%FeAl cobroyé 20h fritté 800°C.

VII.2.4 Composite Cu-20%FeAl broyé 20h fritté à 1130°C

Un frittage en phase liquide a été effectué pour cette composition. La micrographie montre les particules de FeAl noyées dans la matrice de cuivre (figure VII.11.a zone 1). Par ailleurs, dans certaines plages de la microstructure de très petites particules de FeAl se trouvent parsemés dans la matrice (figure VII.11.b).

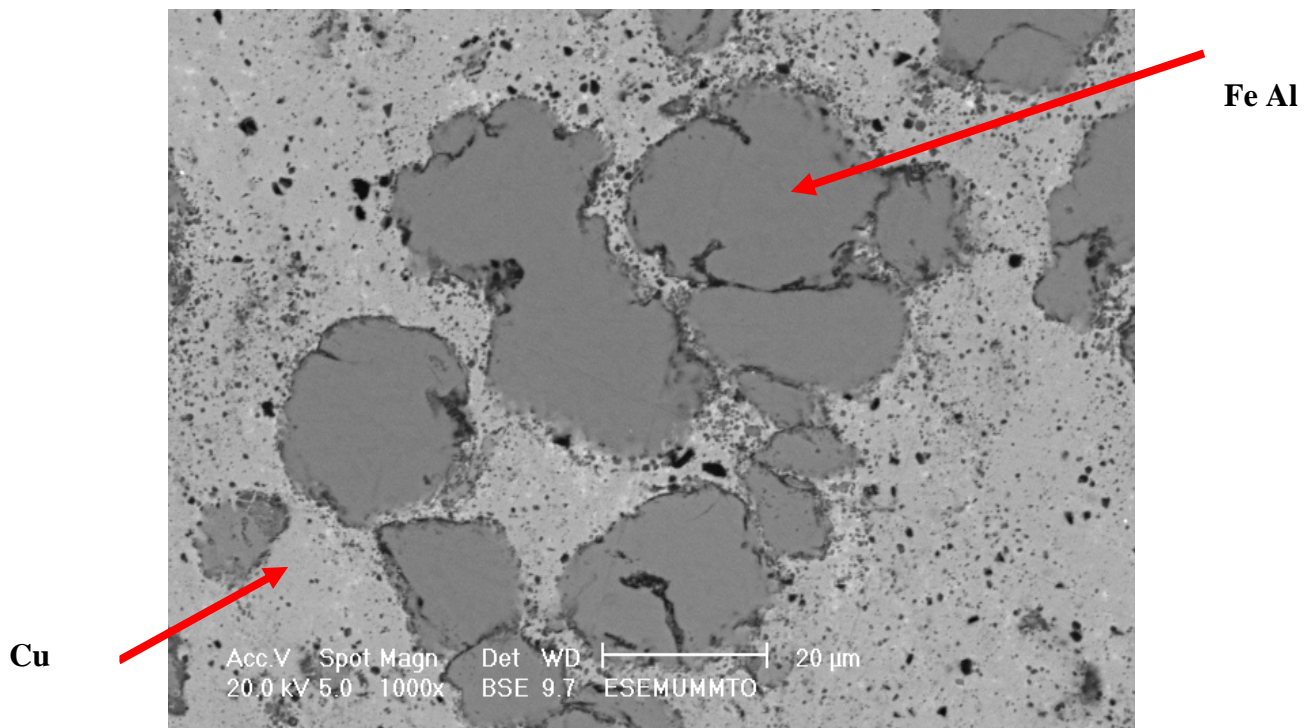


Figure VII.11.a : Micrographie de l'échantillon Cu-20%Fe Al

broyé 10h fritté à 1130°C (zone1)

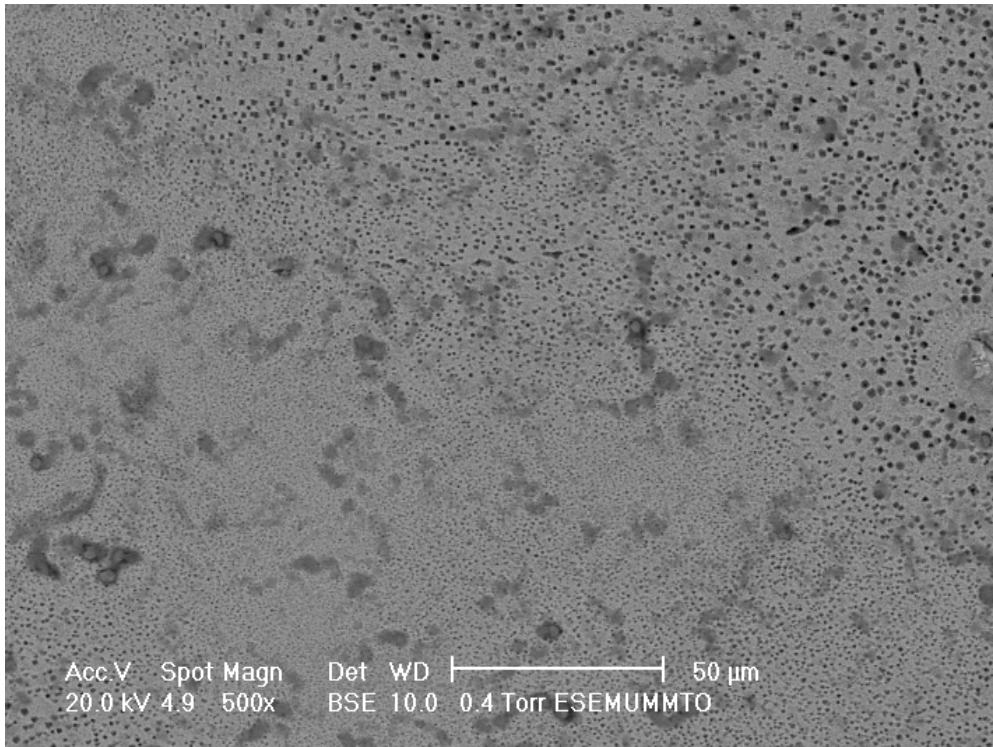


Figure VII.11.b : Micrographie de l'échantillon Cu-20%Fe Al broyé 10h fritté à 1130°C
(zone 2)

VII.3/ Analyses EDS-X de l'échantillon

Des microanalyses EDS-X ont permis d'identifier et de quantifier la composition chimique en quelques points et zones de cet échantillon fritté en phase liquide. L'étude des spectres de dispersion en énergie des rayons X caractéristiques montre en un point situé d'une particule de FeAl, la présence du fer est grande proportion (73,12 % en masse) ainsi que l'aluminium avec une teneur de 26,88%. La figure VII.12 illustre la zone ciblée de la microstructure, les points d'analyse ainsi que les spectres d'énergie des rayons X

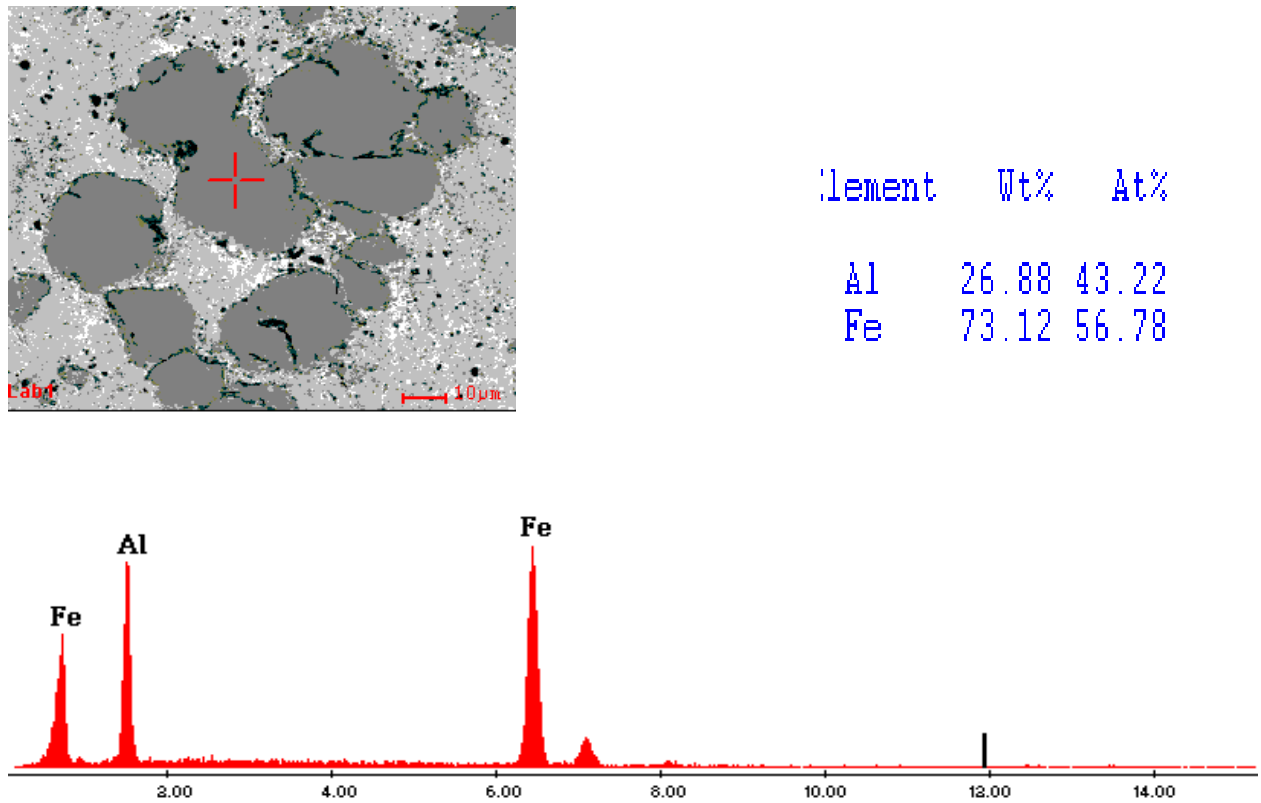


Figure VII.12.a : Micrographie et résultats des analyses EDS-X de l'échantillon fritté en phase liquide.

Le point de la matrice contient du cuivre en grande quantité 90,88 % en masse et des pourcentages en Al et Fe respectivement 1,67% et 4,91% ce qui est due à la diffusion de Al et Fe dans la matrice de cuivre. La figure VII.12.b montre le point ciblé et les teneurs massiques et atomiques de chaque élément.

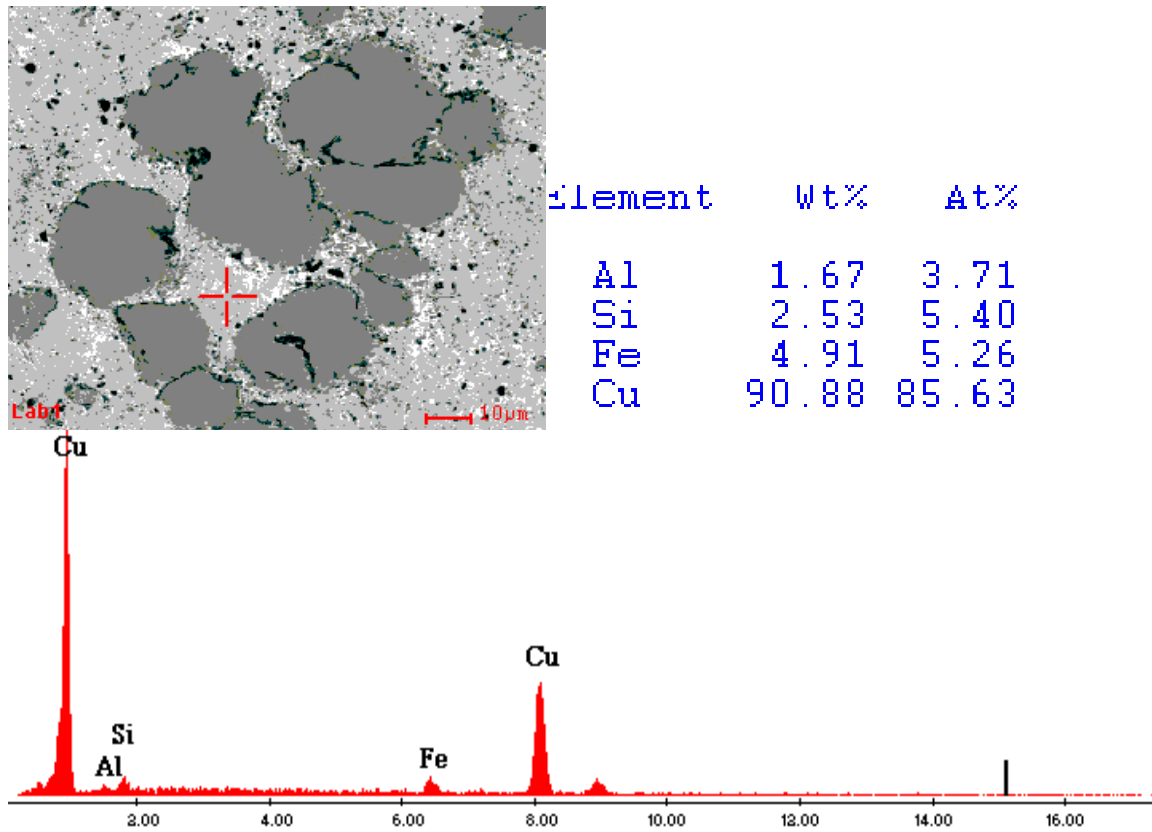


Figure VII.12.b : Micrographie et résultats d'analyses EDS-X d'un point de la matrice

Les analyses effectuées sur des aires des rectangles des mêmes zones que précédemment, révèlent sur la matrice l'existence de cuivre en quantité prédominante (91,24% en masse) à côté des faibles pourcentages de Fe (3,31%) et Al (3,62%) qui quittent le composé FeAl et diffusent dans le cuivre (figure VII.13.a)

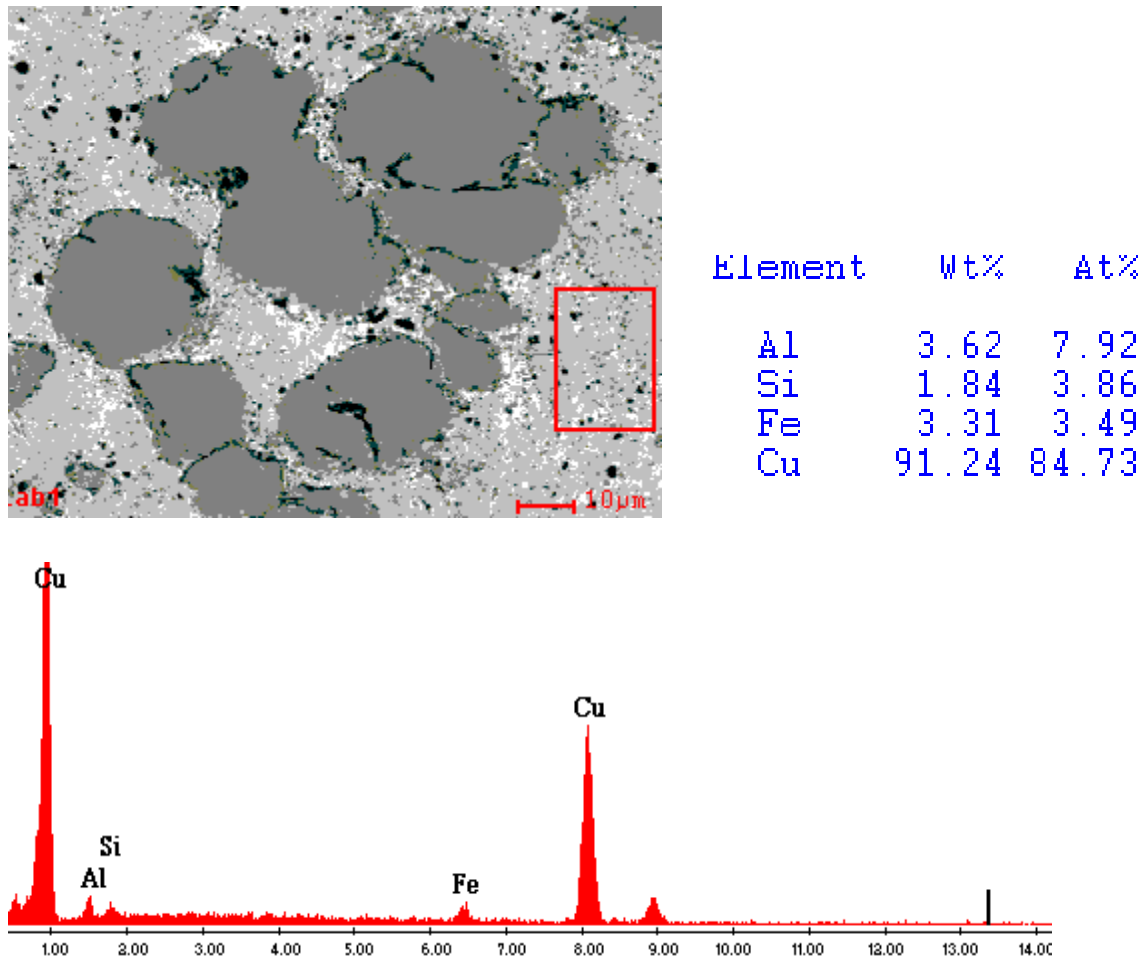
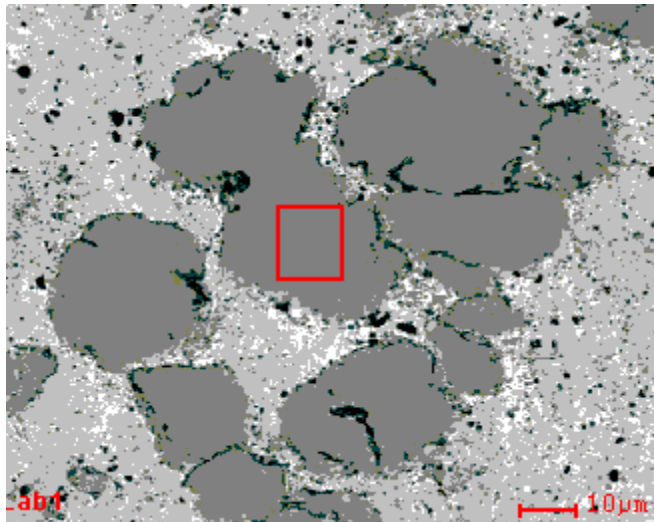


Figure VII.13.a : Micrographie et résultats d'analyses EDS-X

d'une aire sur la matrice

Une seconde analyse cible une aire située sur une particule de FeAl qui met en évidence la teneur élevée du Fe à 64,01% en masse nettement plus grande que celles d'Al et de Cu qui sont respectivement de 27,63% et 7,30% résultant d'une diffusion de Cu dans le réseau de FeAl (figure VII.13.b).



Element	Wt%	At%
Al	27.63	44.09
Si	1.05	1.62
Fe	64.01	49.35
Cu	7.30	4.95

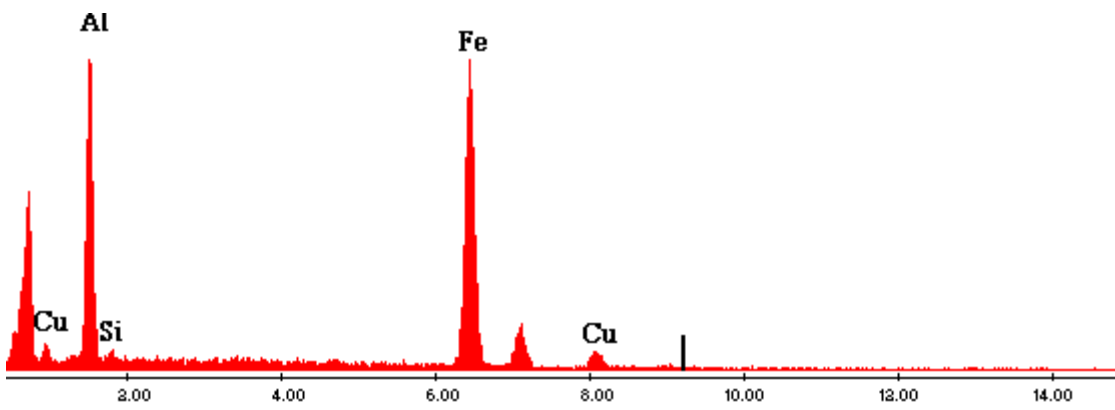


Figure VII.13.b : Micrographie et résultats d'analyses EDS-X d'une aire sur une particule FeAl

Conclusion

Conclusion générale

Cette étude nous a permis de mettre en évidence l'influence de la température, la forme et granulométrie des poudres de départ sur les différents phénomènes qui se produisent durant l'élaboration de l'intermétallique FeAl par réaction SHS.

L'analyse par DRX des mélanges Fe1-50%Al at. et Fe2-50%Al at., à base de poudres de fer de formes respectivement sphérique et irrégulière, frittés à 1100°C, a montré que le composé FeAl pur est obtenu à plus haute température.

Les analyses dilatométriques ont mis en évidence la violence de la réaction qui se manifeste dans le mélange à base de la poudre de fer irrégulière là où les surfaces de contact sont nombreux comparées à celles de la forme sphérique. Le changement de forme que l'échantillon subit au cours du frittage témoigne de la violence de la réaction.

La réduction de la taille des grains de poudre FeAl par broyage assure une homogénéité de distribution des particules et procure une certaine dureté pour les dispersoïdes. Un cobroyage en présence du cuivre réduit encore la taille des grains et assure un enrobage des particules les plus dures par les plus ductiles du cuivre.

Les résultats obtenus lors des travaux précédents avec des teneurs en cuivre de 50% sont des produits poreux, ce qui nous a poussés à augmenter cette teneur jusqu'à 80%. Des analyses par dispersion en énergie des rayons X caractéristiques ont permis de confirmer la présence des éléments Fe et Al en faibles proportions dans la matrice ce qui justifie une dissolution de ces éléments dans le cuivre en fusion lors de l'opération de frittage. Ces analyses ont montré aussi la présence du cuivre dans les particules de FeAl. Ceci est probablement le résultat d'une aspiration du cuivre en fusion par capillarité dans les micropores des particules de FeAl.

Référence
bibliographique

Références bibliographiques

- [1] : Frédéric Bernard, Eric Gaffet : Intérêt de l'activation mécanique dans la production de poudres nanostructurées par SHS. Laboratoire de recherches sur la réactivité des solides. UMR 5613. CNRS. Université de Bourgogne.
- [2] : Anouar Benabes : Approche micromécanique de la compaction de poudre et de la rupture ductile des matériaux incluant le 3^{ème} invariant des contraintes. Thèse de doctorat de l'Université de Reims Champagne Ardenne. (2009)
- [3] : Nechiche Mustapha : compressibilité et frittage du système fer-aluminium. Mémoire ingénieur, Université Mouloud Mammeri de Tizi Ouzou, (2005)
- [4] : Damien Gendron : Etude numérique et expérimentale du frittage à l'échelle du grain. Thèse de doctorat de l'université de Bordeaux I, (2001)
- [5] : Michel Eudier : fabrication des produits frittés. Technique de l'ingénieur .M864
- [6] : Didier Bernache-Assollant, Jean Pierre Bonnet. Aspect physico-chimique de frittage en phase solide. Technique de l'ingénieur AF 6620.
- [7] : Didier Bernache-Assollant : Frittage en phase liquide technique de l'ingénieur AF 6621
- [8] : Dominique Vrel : Synthèse des matériaux céramiques par combustion auto-entretenue de poudres (procédé SHS). Modélisation et application aux carbures de titane. Thèse de l'université de parisXIII. 1995.
- [9] : D. Vrel, O.Guellat, W.Ramdane : élaboration et caractérisation du carbure de titane. Laboratoire d'Etude et de Recherches des Etats Condensés (LERC), Département de physique, Université Badji Mokhtar. Annaba 23000.Algérie.
- [10] : Ahmed Esharghaoui : Elaboration des matériaux poreux à base de mullite par procédé SHS. Thèse de doctorat de l'Université de limoges, (2009)
- [11] : N.Karmatak, Marie-France Beaufort : Effet de l'activation mécanique sur la synthèse de carbure de titane par combustion auto-propagée. Laboratoire de métallurgie physique. Matériaux 2002. France

Références bibliographiques

- [12] : Kahina Kheloui : Elaboration de l'intermétallique Fe-Al utilisé comme renfort particulaire dans les matériaux composites. Mémoire de Magister, Université de TiziOuzou, (2011).
- [13] : Guo Fu'AN : L'influence de la microstructure sur des propriétés mécaniques et des contraintes internes d'un alliage intermétallique biphasé à base de TiAl. Thèse Doctorat, Ecole Nationale Supérieure D'arts et Métiers, (2001).
- [14] : K. Kitamura, T. Kuchida, T. Inaba, M.Tokuda, Y.Yoshimi : Shape memory characteristics of TiNi casting alloys made by using self-propagating high-temperature synthesis. *Materials Science and Engineering A* 4386440 pp. 675-678 ; (2006).
- [15] : P. Massino : Some aspects in self-propagating high temperature synthesis. *Ceramics International*. (2004).
- [16] : E.Gaffet, F.Bernard : Intérêt de l'activation mécanique dans la production des poudres nanostructures par SHS. Equipe matériaux à grains fins.UMR 5613CNRS. Université de Bourgogne.
- [17] : Leila Amiour : Etude des transformations ordre-désordre dans les alliages à base de cuivre et de fer. Mémoire Magister Université Mentouri-Constantine.2005
- [18] : J.H. Song, T. Kwon Ha and Y. W. Chang : *Script Mater*, Vol. 42 (2000)
- [19] : F. Cuevas : Synthèse et propriétés d'hydrogénation de composés intermétalliques. Laboratoire de chimie Métallurgique des terres Rares, ISCSA, CNRS..
- [20] : D.Daloz, V. Rigaud, G. Lesoult : Influence de l'élément d'adition Ti ou Zr sur la solidification de l'alliage intermétallique Fe₃Al .*Matériaux* 2006
- [21] : A. Leila : Etude comparative par différentes techniques expérimentales de l'effet des recuits anisothermes sur les transformations ordre-désordre. Thèse de doctorat de l'Université de Constantine.
- [22] : Miao ZHE : Réactivité et propriétés mécaniques des interfaces entre un alliage Al-Si et un renfort Fe ou Ti. Thèse Docteur Université Claude Bernard Lyon 1.2006
- [23] : S.M. Allen, *Phil. Mag* ;Vol 36 (1977).

Références bibliographiques

- [24] : F.Moret, R.Baccino, P. Martel, L.Guetaz : Propriétés et application des alliages intermétalliques B2-Fe Al .Journal de physique IV.1996.
- [25] : Najjar Sanaa, Anna F, F.Monttheillet : Affinement de microstructure par traitement thermomécanique des alliages Fe-40AL-B ternaires. Ecole Nationale supérieure des Mines des Saint Etienne.
- [26] : C.G Mc Kamey, J.H.Devan P.F.Tortorelli and V. K. Sikka : A review of recent developments in Fe₃-Al based alloys, Metals and ceramics Division, Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, Tennessee, 1991
- [27]: S.C Deevi, S.Gedevanishvili : Processing of iron aluminides by pressureless sintering through Fe + AL elemental route. Materials science and engineering 2002
- [28]: S.Le Gallet, E.Gaffet, F.Bernard : Elaboration de matériaux denses et nanostructurés par frittage flash. Université de Bourgogne.2006.
- [29] : Foad Naimi, Sophie L G : Synthèse de poudres nanostructurés par broyage. Université de Bourgogne mécanique.2006
- [30] : Gay.D : Matériaux composites. 3^e édition. Paris. Hermés. 1991.
- [31] : Arnaud Kremer : Etude du choix structurel d'outils coupants en diamant revêtu ou polycristallin massif pour l'usinage compétitif et environnemental des composites à matrice métallique et renfort céramique particulaire (CMMp Al/Sic). Thèse Docteur de l'école nationale supérieure d'art et métiers.2009.
- [32] : Sabine Denis : Analyse et modélisation des contraintes internes dans des composites à matrice métallique au cours de traitements thermiques avec changement de phases de la matrice. Institut Jean Lamour/ UMR 7198CNRS.
- [33] : Emmanuel George : Contribution à la détermination des paramètres ultrasonores des gondolements des fibres dans un matériau composite à matrice céramique renforcée des fibres. Université-Douala.
- [34] : S. Dermarkar : Matériaux composites à matrice métallique.Technique de l'ingénieur M250

Références bibliographiques

[35] : Grégoire, Nordine : Les composites à matrice métallique dans l'aéronautique et l'aérospatiale. Ecole des mines de Douai.

[36] : T.Khan : Deux nouvelles familles de matériaux les intermétalliques et les composites à matrice métallique.199

[37] : Jacque Massouane, Nathalie Villar : Elaboration des composites à matrice métallique. Technique de l'ingénieur M 2448

Annexes

Cu

Copper
Copper, syn

2th	i	h	k	l
43.298	100	1	1	1
50.434	46	2	0	0
74.133	20	2	2	0
89.934	17	3	1	1
95.143	5	2	2	2
116.923	3	4	0	0
136.514	9	3	3	1
144.723	8	4	2	0

Lattice : Face-centered cubic		Mol. weight = 63.55
S.G. : Fm-3m (225)		Volume [CD] = 47.24
a = 3.61500	Z = 4	Dx = 8.935
		Dm = 8.950

Melting point: 1083°
Sample preparation: It had been heated in an H2 atmosphere at 300 C.
Sample source or locality: Sample from metallurgical laboratory of NBS, Gaithersburg, MD, USA.
Temperature of data collection: Pattern taken at 26 C.
General comments: Impurities from 0.001-0.01%, Ag, Al, Bi, Fe, Si, Zn.
Reflectance: Opaque mineral optical data on specimen from unspecified locality, R_{3R}%=60.65, Disp.=Std.
Vickers hardness number: VHN₁₀₀=96-104,
General comments: Measured density and color from *Dana's System of Mineralogy, 7th Ed., I 99.*
Color: Red
Additional pattern: See ICSD 64699 (PDF 85-1326).
Data collection flag: Ambient.

Swanson, Tatge., Natl. Bur. Stand. (U.S.), Circ. 539, volume I, page 15 (1953)

CAS Number: 7440-50-8

Radiation : CuKα1	Filter : Beta
Lambda : 1.54050	d-sp : Not given
SS/FOM : F8= 89(0.0112,8)	

γ -Al_{3.892}Cu_{6.10808}

Aluminum Copper

2th	i	h	k	l
22.842	20	1	1	3
22.902	10	2	1	1
25.064	20	1	2	2
25.136	20	3	0	0
30.881	10	1	3	1
34.239	10	4	0	1
42.946	10	0	5	1
44.106	90	3	0	6
44.201	90	3	2	4
44.272	100	3	3	0
51.353	10	2	0	8
51.533	10	2	4	4
64.016	10	0	2	10
64.263	50	6	0	6
64.378	10	2	6	2
75.905	10	0	8	4
81.023	50	3	0	12
81.405	50	8	1	4

Lattice : Rhombohedral

Mol. weight = 493.16

S.G. : R3m (160)

Volume [CD] = 1968.67

a = 12.26600

Dx = 6.240

c = 15.10900

Z = 15

Unit cell: Rhombohedral cell: a=8.6899, α =89.78.

General comments: Single-crystal data taken.

Analysis: Homogeneity range: 38.3-40.6 at.% Al.

General comments: Indexed on face-centered rhombohedral cell.

Additional pattern: See 22-501.

Data collection flag: Ambient.

Westman., Acta Chem. Scand., volume 19, page 2369 (1965)

Radiation : CuK α 1

Filter : Monochromator crystal

Lambda : 1.54050

d-sp : Guinier

SS/FOM : F18= 7(0.0155,157)

CuAl₂

Aluminum Copper
Khatyrkite, syn

Lattice : Body-centered tetragonal
S.G. : I4/mcm (140)

Mol. weight = 117.51
Volume [CD] = 179.28

a = 6.06540
c = 4.87320

Z = 4

Dx = 4.354

2th	i	h	k	l
20.620	100	1	1	0
29.386	35	2	0	0
37.867	70	2	1	1
42.071	35	2	2	0
42.591	90	1	1	2
47.332	70	3	1	0
47.808	60	2	0	2
57.129	13	2	2	2
61.032	2	4	0	0
61.435	6	3	1	2
66.335	6	4	1	1
67.034	9	2	1	3
69.173	11	4	2	0
73.462	21	4	0	2
77.251	20	3	3	2
78.383	8	0	0	4
80.678	11	5	1	0
81.007	11	4	2	2
81.842	9	4	3	1
82.181	9	1	1	4
85.950	1	2	0	4
89.103	5	5	2	1
89.829	3	4	1	3
91.872	3	4	4	0
92.205	5	5	1	2
93.221	3	2	2	4
95.578	2	5	3	0
97.063	17	3	1	4
99.267	5	6	0	0
112.766	3	5	2	3
114.285	2	2	1	5
116.471	6	4	2	4
119.438	6	6	2	2

Additional pattern: To replace 2-1309.
Unit cell: Reference reports: a=6.063, c=4.872.
General comments: Cell parameters generated by least squares refinement.
Data collection flag: Ambient.

Havinga, Philips Research Lab, Eindhoven, The Netherlands., Private Communication (1973)

Radiation : CuKα1
Lambda : 1.54050
SS/FOM : F30= 15(0.0480,43)

Filter : Not specified
d-sp : Not given

AIFe

Aluminum Iron

2th	i	h	k	l
30.819	8	1	0	0
44.187	100	1	1	0
54.858	3	1	1	1
64.318	14	2	0	0
73.007	2	2	1	0
81.339	25	2	1	1
97.596	8	2	2	0
105.924	1	3	0	0
114.537	9	3	1	0
134.332	4	2	2	2

Lattice : Cubic
S.G. : Pm3m (221)

Mol. weight = 82.83
Volume [CD] = 24.27

a = 2.89540

Z = 1

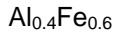
Dx = 5.666

Color: Dark gray
Sample source or locality: The sample was obtained from the Metallurgy Section of the National Bureau of Standards, Gaithersburg, MD, USA.
Sample preparation: It had been heated to 800 C for 5 days and cooled to room temperature in 4 days.
Additional pattern: To replace 1-1257.
Data collection flag: Ambient.

Natl. Bur. Stand. (U.S.) Monogr. 25, volume 18, page 5 (1981)
 CAS Number: 12042-17-0

Radiation : CuKα1
Lambda : 1.54060
SS/FOM : F10= 54(0.0169,11)

Filter : Monochromator crystal
d-sp : Diffractometer
Internal standard : W



Aluminum Iron

2th	i	h	k	l
30.910	8	1	0	0
44.231	100	1	1	0
54.890	3	1	1	1
64.293	18	2	0	0
73.014	3	2	1	0
81.280	40	2	1	1
97.532	15	2	2	0
105.830	1	3	0	0
114.421	26	3	1	0

Lattice : Cubic

Mol. weight = 44.30

S.G. : Pm3m (221)

Volume [CD] = 24.31

a = 2.89670

Dx = 6.053

Z = 2

Sample preparation: The powder sample was produced from ingot extruded at 700 C and area reduction ratio 6:1 by filing and ground to reduce the particle size. The resulting powder was sieved to -400 mesh. The powder was annealed at 400 C for 120 hours and furnace cooled in vacuum.

Unit cell: Reference reports: a=2.8983.

General comments: Cell parameter generated by least squares refinement.

Unit cell: Al_{0.47} Fe_{0.57} a=2.9017: Al_{0.45} Fe_{0.55} a=2.9079.

Data collection flag: Ambient.

Baker, I., Thayer School of Eng., Dartmouth College, Hanover, NH, USA., ICDD Grant-in-Aid (1993)

Radiation : CuK α

Filter : Not specified

Lambda : 1.54180

d-sp : Diffractometer

SS/FOM : F9= 28(0.0360,9)