



HAL
open science

Elaboration et caractérisation d'un matériau composite nouveau a base de tungstene

Laurence Delfaut

► **To cite this version:**

Laurence Delfaut. Elaboration et caractérisation d'un matériau composite nouveau a base de tungstene. Sciences de l'ingénieur [physics]. Ecole nationale supérieure des Mines de Saint-Etienne; Institut national polytechnique de Grenoble (INPG), 1996. Français. NNT: . tel-01759248

HAL Id: tel-01759248

<https://hal.science/tel-01759248v1>

Submitted on 5 Apr 2018

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

N° D'ORDRE : 138 TD

THESE

présentée par

Laurence DELFAUT

pour obtenir le titre de

DOCTEUR

DE L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE GRENOBLE
ET DE
L'ECOLE NATIONALE SUPERIEURE DES MINES DE SAINT-ETIENNE

(Spécialité : Sciences et génie des matériaux)

**ELABORATION ET CARACTERISATION D'UN MATERIAU COMPOSITE
NOUVEAU A BASE DE TUNGSTENE**

Soutenue à SAINT-ETIENNE, le 5 avril 1996

COMPOSITION du JURY :

Monsieur	R. FOUGERE	Président
		Rapporteur
Monsieur	H. PASTOR	Rapporteur
Madame	C. ALLIBERT	Examineur
Messieurs	A. KOBYLANSKI	"
	G. NICOLAS	"
	M. BISCONDI	"

N° D'ORDRE : 138 TD

THESE

présentée par

Laurence DELFAUT

pour obtenir le titre de

DOCTEUR

**DE L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE GRENOBLE
ET DE
L'ECOLE NATIONALE SUPERIEURE DES MINES DE SAINT-ETIENNE**

(Spécialité : Sciences et génie des matériaux)

**ELABORATION ET CARACTERISATION D'UN MATERIAU COMPOSITE
NOUVEAU A BASE DE TUNGSTENE**

Soutenue à SAINT-ETIENNE, le 5 avril 1996

COMPOSITION du JURY :

Monsieur	R. FOUGERE	Président Rapporteur
Monsieur	H. PASTOR	Rapporteur
Madame	C. ALLIBERT	Examineur
Messieurs	A. KOBYLANSKI	"
	G. NICOLAS	"
	M. BISCONDI	"



A mes parents

A Frédéric

A Camille

Remerciements

Cette étude a été menée au sein du centre "Science des Matériaux et des structures" de l'Ecole des mines de Saint-Etienne, sous la direction de Monsieur A. KOBYLANSKI, Maître de recherche, à qui j'exprime ma profonde gratitude pour la confiance qu'il m'a accordée et pour ses encouragements répétés tout au long de ma thèse.

Je tiens tout autant à remercier Monsieur R. MOYA, technicien du laboratoire, pour son aide précieuse, sa disponibilité, la qualité de la relation humaine qu'il a apportée à notre collaboration et sa participation aux corrections du manuscrit de thèse.

Mes remerciements s'adressent également aux membres du jury :

à Monsieur R. FOUGERE, professeur et directeur du GEMPPM à l'INSA de Lyon, qui m'a fait l'honneur d'accepter d'être rapporteur et président du jury.

à Monsieur PASTOR, directeur du CERMEP pour une lecture attentive de mon manuscrit et la fastidieuse tâche de correction qu'il a bien voulu effectuer en tant que rapporteur.

à Madame C. ALLIBERT, directeur de recherche CNRS, ENSEEG, à Monsieur G. NICOLAS, directeur technique de Cime-Bocuze et Monsieur M. BISCONDI, professeur à l'ENSME pour l'intérêt qu'ils ont porté à mon travail.

J'adresse mes remerciements à toutes les personnes de l'école qui ont contribué, de près ou de loin, à la réalisation de ce travail : Mesdames F. AVONDO, H. BRUYAS, J. PAIRE, Messieurs P. JOUFFREY, G. BLANC, P. PASSET, P. IGIER, B. BAYLE, R. DELABRE, C. VARILLON, M. DOUET, ainsi que Monsieur FROT technicien à l'ENSMP pour son aide lors des analyses à la microsonde W.D.S.

Je tiens enfin à formuler ma profonde reconnaissance à tous ceux qui m'ont apporté leur soutien moral à diverses étapes de la thèse et notamment lors de la préparation de la soutenance : en particulier Monsieur T. MAGNIN, professeur à l'ENSME, Madame P. FELIX-CHOULAS et Mademoiselle Ch. GUILHOT, secrétaires au centre SMS, Mademoiselle V. LOCURTO à qui j'exprime, de plus, mes remerciements pour sa contribution aux corrections du manuscrit et son aide pour le bon déroulement des festivités "d'après-thèse" et à tous mes collègues et amis thésards : Messieurs F. DURUT, J-Ph. CHATEAU, A. BELKEBIR, F. GAY, L. PARRAT, Y. MIZERA, Mesdames et Mesdemoiselles M. BACIA, M-Th. PERROT, M. LOSERTOVA, M-Ch. THEYSSIER, N. DEMONET, A. CHAMBREUIL, Ch. LORENZON, V. CAPRON.

SOMMAIRE

	Page
INTRODUCTION	1
CHAPITRE I - SYNTHÈSE BIBLIOGRAPHIQUE	
I.1 - POSITIONNEMENT DU PROBLÈME	7
I.1.1 - Choix d'un nouveau matériau = un composite de densité élevée (~18) ..	7
I.1.2 - Mise en forme du composite	9
I.1.2 - a - Techniques usuelles	9
I.1.2 - b - Technique choisie = Electroformage avec martelage rotatif	11
I.2 - CARACTÉRISTIQUES DES CONSTITUANTS DU COMPOSITE	13
I.2.1 - Les fils de tungstène	13
I.2.1 - a - Elaboration des fils de tungstène	13
I.2.1 - b - Microstructure des fils	15
I.2.1 - c - Fils en tungstène dopé	17
I.2.1 - d - Recristallisation des fils	19
I.2.1 - e - Propriétés des fils de tungstène des fils	22
I.2.2 - Le nickel	23
I.2.2 - a - Critères de choix	23
I.2.2 - b - Propriétés du nickel	27
I.2.2 - c - Caractéristiques du nickel sous forme de dépôt électrolytique	31
I.2.3 - L'acier inoxydable	35
I.3 - LA MISE EN FORME DU MATÉRIAU COMPOSITE	39
I.3.1 - Présentation des deux machines utilisées	39
I.3.1 - a - Machine à deux marteaux (ENSME)	39
I.3.1 - b - Machine à quatre marteaux (Cime-Bocuze)	43
I.3.2 - Déformations produites par le martelage rotatif sur un matériau homogène (milieu continu)	45
Conclusion partielle	53
I.3.3 - Déformations produites par le martelage à deux marteaux sur un matériau composite (milieu discontinu)	55
Conclusion sur le martelage rotatif	61
I.4 - COMPORTEMENT MÉCANIQUE D'UN COMPOSITE UNIDIRECTIONNEL A FIBRES CONTINUES	63
I.4.1 - Comportement élastique du composite	63
I.4.2 - Approche microcanique σ-ϵ (en élasticité et plasticité) du composite ..	66
I.4.2 - a - Comportement en traction longitudinale	66
Composite à fibres ductiles (V_f forte)	
Composite à fibres fragiles (V_f forte)	
I.4.2 - b - Comportement en traction transversale	79
I.4.3 - Comparaison traction-compression	81
CONCLUSION SUR LA SYNTHÈSE BIBLIOGRAPHIQUE	83

CHAPITRE II - ETUDE DU MATERIAU COMPOSITE

INTRODUCTION	87
II.1 - CARACTERISATION DES MATERIAUX DE BASE	89
II.1.1 - Fibre = fil de tungstène	89
II.1.1 - a - Caractérisation mécanique à l'ambiante des fils de tungstène (traction) .	89
II.1.1 - b - Evolution microstructurale des fils avec la température de recuit	97
II.1.1 - c - Traction à chaud des fils de tungstène	107
II.1.1 - d - Compression longitudinale et transversale des fils	113
II.1.2 - Matrice = nickel	117
II.1.2 - a - Caractérisation mécanique du nickel	117
II.1.2 - b - Choix de l'épaisseur du dépôt de nickel	121
II.1.3 - Gaine = acier inoxydable Z12 CNS 25-20	125
CONCLUSION	127
II.2 - ELABORATION DU MATÉRIAU COMPOSITE	129
II.2.1 - Martelage à deux marteaux (ENSME)	129
II.2.1 - a - Préparation des éprouvettes de martelage	129
II.2.1 - b - Opération de mise en forme	131
II.2.1 - c - Détermination du taux de martelage	133
II.2.1 - d - Influence de la gaine sur la mise en forme	137
II.2.2 - Martelage à quatre marteaux (CIME-BOCUZE): adaptation industrielle	139
II.3 - ETUDE DES DEFORMATIONS PRODUITES PAR LA MACHINE A 4 MARTEAUX	141
II.3.1 - Déformations sur le barreau modèle en cuivre	141
II.3.1 - a - Aspect qualitatif des déformations	141
II.3.1 - b - Analyse des déformations en fonction du taux de martelage	143
II.3.2 - Déformations sur le matériau composite (fils de tungstène)	149
- Comparaison avec le martelage à deux marteaux -	149
CONCLUSION	151
II.4 - CARACTÉRISATION MICROSTRUCTURALE DU MATÉRIAU COMPOSITE	153
II.4.1 - Matériaux composites élaborés avec la machine à deux marteaux ...	153
II.4.1 - a - Influence du taux de martelage	159
II.4.1 - b - Influence de la température de martelage	171
- Conclusion sur la caractérisation microstructurale du composite 2 M -	175
II.4.2 - Matériaux composites élaborés avec la machine à quatre marteaux ...	177
- Conclusion sur la caractérisation microstructurale du composite 4 M -	179
II.5 - CARACTÉRISATION MECANIQUE DU MATÉRIAU COMPOSITE	183
(APPROCHE MICROMÉCANIQUE)	
II.5.1 - Essai de compression	183
II.5.1 - a - Influence de la vitesse de compression	187
II.5.1 - b - Influence du taux de martelage	189
II.5.1 - c - Influence de la température de martelage	195
II.5.1 - d - Influence de la gaine	198
II.5.1 - e - Etude de l'endommagement par compression	201
II.5.2 - Influence de certains paramètres sur le comportement mécanique du composite	211
- Problème de porosité -	
- Mauvais nickelage -	
- Modification de la nuance du tungstène des fils : pur au lieu de dopée -	
- Influence de l'état microstructural des fils : écroui, recristallisé -	
- Influence du diamètre des fils -	

II.5.3 - Essais de compression transversale sur notre matériau composite ...	223
- Comparaison compression transversale - longitudinale -	
- Comparaison avec le matériaux de base -	
- Module d'élasticité transversal -	
- Endommagement -	
II.5.4 - Essais de traction-cisaillement	231
II.5.5 - Approche micromécanique pour la détermination des propriétés mécaniques du composite	233
II.5.5 - a - Compression longitudinale	233
II.5.5 - b - Comportement en traction	237
II.5.5 - c - Compression transversale	240
CONCLUSION	243

CHAPITRE III - REACTION INTERFACIALE ENTRE LE TUNGSTENE ET LE NICKEL

III.1 - INTRODUCTION	247
III.2 - SYNTHESE BIBLIOGRAPHIQUE	248
III.2.1 - Rôle du nickel dans le cadre du frittage W/Ni	248
III.2.2 - Accélération de l'autodiffusion intergranulaire du tungstène en présence de nickel aux joints	253
- Conclusion partielle -	256
III.2.3 - Phénomènes de D.I.G.M. et de D.I.R.	257
III.2.3 - a - Phénomène de D.I.G.M.	257
III.2.3 - b - Modèles pour la D.I.G.M.	261
III.2.3 - c - Phénomène de D.I.R.	267
III.2.3 - d - Modèles pour la D.I.R.	268
- Conclusion partielle -	269
III.2.4 - Diffusion intergranulaire sur joints mobiles	271
Conclusion sur la partie bibliographique	273
III.3 - ETUDE DE LA REACTION INTERFACIALE SUR LES FILS DE TUNGSTENE	275
III.3.1 - Aspect diffusionnel de la réaction interfaciale W/Ni	275
III.3.1 - a - Résultats sur l'interdiffusion volumique W-Ni	277
III.3.1 - b - Analyse du nickel dans le fil de tungstène	283
III.3.1 - c - Analyse du nickel à l'intérieur des grains R.I.	285
III.3.1 - d - Analyse du nickel aux joints des grains du tungstène	289
Discussion- conclusion	295
III.3.1 - e - Etude de la propagation du front R.I.	299
III.3.2 - Etude de la croissance des grains R.I.	309
III.3.3 - Rôle de l'énergie d'écroutissage	317
III.3.4 - a - Etat de surface des fils de tungstène	317
III.3.4 - b - Recristallisation R.I. sur microstructure recristallisée	317
III.4 - CONCLUSIONS ET DISCUSSION GÉNÉRALE DU CHAPITRE III	321
CONCLUSION GÉNÉRALE	329

ANNEXE A : Caractéristiques physiques, mécaniques et thermiques des constituants de base du matériau composite
ANNEXE B : Comportement mécanique des constituants de base du matériau composite	..
ANNEXE C : Densité théorique du matériau composite
ANNEXE D : Aspect théorique de la déformation de l'empilement de fils au cours du martelage
ANNEXE E : Loi de remplissage des containers par les fils
REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- INTRODUCTION -

Pour réaliser un projectile à haute énergie cinétique, capable de libérer une énergie élevée par unité de surface, il est nécessaire d'utiliser un matériau qui présente une résistance élevée, une certaine ductilité et surtout une densité élevée. Le tungstène qui possède la densité la plus élevée (19,3) est donc généralement choisi comme métal de base pour la réalisation de telles pièces.

Les matériaux utilisés actuellement sont des alliages lourds à base de tungstène (densité 19,3) (considérés comme des composites) obtenus par la technique de la métallurgie des poudres avec l'ajout d'éléments servant de liant tels que le nickel et le fer. L'élaboration de ces matériaux par frittage en phase liquide permet l'obtention d'un matériau homogène isotrope de résistance très élevée pouvant atteindre 1700 MPa. Or, diverses études visant à faire varier les modes de mise en forme, la composition chimique, etc... n'ont pas permis d'apporter des améliorations notables aux propriétés mécaniques.

Afin de dépasser les caractéristiques déjà optimales de ces alliages, l'idée fut d'élaborer un **matériau composite métallique, unidirectionnel à base de fils de tungstène.**

En effet, sous forme de fils fortement écrouis, le tungstène présente des caractéristiques mécaniques nettement plus performantes : il acquiert une certaine ductilité à l'ambiante et une résistance nettement plus élevée. Afin d'égaliser la densité élevée des alliages lourds, il est impératif que ce matériau composite ait une forte fraction volumique de fils.

Pour la réalisation de ce composite, il a été envisagé d'utiliser, comme matrice métallique, le nickel déposé préalablement sur les fils de tungstène. L'empilement de ces fils à l'intérieur d'une gaine est alors consolidé par une mise en forme utilisant la technique du martelage rotatif.

L'objectif de notre étude est donc l'élaboration d'un **matériau composite unidirectionnel à très forte fraction volumique de fils de tungstène (environ 80 %) ayant des propriétés mécaniques supérieures à celle des alliages lourds frittés et la caractérisation mécanique en compression du matériau composite.**

L'étude peut se décomposer en cinq étapes :

- 1- Etude de la faisabilité et optimisation des conditions de mise en forme par martelage rotatif pour l'obtention d'un composite parfaitement densifié. Pour cela, une caractérisation microstructurale du composite a été nécessaire.
- 2- Caractérisation mécanique du matériau ainsi formé en sollicitation proche de la sollicitation de service, c'est à dire en compression statique uniaxiale (longitudinale et transversale).
- 3- Caractérisation du mode d'endommagement de ce composite soumis à ces sollicitations.
- 4- Evaluation théorique des paramètres rhéologiques du matériau composite par une approche micromécanique impliquant l'utilisation de la loi des mélanges.
- 5- Etude et analyse de la réaction interfaciale qui se produit à température élevée sur un fil de tungstène nickelé.

L'idée d'élaborer un matériau composite à fibres de tungstène et matrice métallique n'est pas nouvelle mais notre étude présente l'originalité de chercher non pas à renforcer une matrice par des fibres mais à consolider un empilement de fils de tungstène grâce à la présence interstitielle d'un liant (en l'occurrence le nickel). En conséquence, l'étude rhéologique de notre matériau se différencie de la plupart des études antérieures par le fait que nous nous situons dans le domaine très peu exploité des matériaux composites à très forte fraction volumique de fibres.

De plus, notre matériau composite a la particularité d'être élaboré avec des fils de tungstène (microstructure spécifique) dont le diamètre (1 mm) est plus proche de la tige que de la fibre.

Nous proposons donc de scinder cette étude en trois chapitres :

Le premier est consacré à la *synthèse bibliographique* de trois domaines différents : les caractéristiques des constituants de base du composite, le martelage rotatif et les déformations qu'il occasionne aussi bien sur des matériaux homogènes (milieu continu) que des matériaux discontinus (assemblage de fils), l'approche micromécanique d'un composite unidirectionnel à fibres continues.

Le second chapitre intitulé *Etude du matériau composite* commence par une caractérisation mécanique des matériaux de base (fils de tungstène, nickel, acier de la gaine) du composite nécessaire à l'approche micromécanique du composite.

Il se poursuit par l'aspect technologique de l'étude concernant le mode opératoire à suivre pour l'élaboration du composite aussi bien au niveau du laboratoire que sur le site industriel (Cime-Bocuze).

La troisième partie est relative à l'analyse des déformations produites par le martelage rotatif afin d'évaluer les possibles différences entre les composites élaborés en laboratoire et ceux élaborés sur le site industriel avec deux machines différentes.

Enfin, nous aborderons l'étude microstructurale du matériau composite élaborés par ces deux type de machines, la caractérisation mécanique du composite et son comportement à l'endommagement.

Le troisième chapitre a pour objectif l'étude de la réaction interfaciale notamment du phénomène de diffusion-recristallisation qui caractérise très spécifiquement le fil de tungstène nickelé. L'analyse des données expérimentales recueillies nous permettra d'évaluer à la lumière de différentes données bibliographiques dans quelle mesure ce phénomène peut se rapprocher d'un phénomène connu.

x x x

Cette étude a été effectuée en collaboration avec notre partenaire industriel, la société Cime-Bocuze et avec l'appui financier de la D.R.E.T. (contrat n° 91.342)

CHAPITRE I

SYNTHESE BIBLIOGRAPHIQUE

L1 - POSITIONNEMENT DU PROBLEME

Le sujet de notre étude est la réalisation d'un matériau nouveau aux caractéristiques mécaniques performantes : un matériau composite entièrement métallique composé de fils de tungstène et d'une matrice en nickel.

L'étude bibliographique sera consacrée à :

- L'analyse des différents moyens de mise en forme utilisés pour ce type de matériau.
- Aux caractéristiques physiques et mécaniques des matériaux de base (fils de tungstène dopé, matrice de nickel, gaine en acier inoxydable).
- Aux déformations (sur matériau homogène et matériau inhomogène) qu'occasionne le mode d'élaboration choisi (le martelage rotatif).
- A la caractérisation du composite par l'intermédiaire de la loi des mélanges.

L1.1 - Choix d'un nouveau matériau = un composite de densité élevée (≈ 18)

En vu d'obtenir un matériau ayant des propriétés mécaniques très élevées (supérieures à celles des produits classiques que sont les alliages lourds, *Tableau I.1*), nous avons donc cherché à élaborer puis étudié un matériau composite à fibres et matrice métallique (MMC) répondant aux caractéristiques suivantes :

- * Matériau uniaxial à fraction volumique de fibres très grande ($\approx 80\%$).
- * Fibres continues.
- * Combinaison de trois éléments chimiques différents : W, nickel et acier inoxydable avec :
 - **Fibres** : tiges de tungstène fortement écrouies de diamètre 1 mm.
 - **Matrice** : Nickel pur sous forme de dépôt électrolytique en surface de chaque fil de tungstène (épaisseur du dépôt 40 à 50 μm).
 - **Gaine** : acier inoxydable Z12 CNS 25-20 entourant l'ensemble fibres-matrice.

Le fil de tungstène qui représente le matériau de base du composite possède les propriétés les plus performantes :

- * Forte densité ($\approx 19,3$), température de fusion très élevée (3410°C).
- * Propriétés mécaniques les plus élevées dans un large domaine de températures (forte résistance aussi bien à température ambiante qu'à température élevée, haut module d'élasticité) (*Tableau I.2*).

L'inconvénient du tungstène est sa fragilité à l'ambiante, sa température de transition fragile-ductile (TTFD) étant supérieure à 20°C . Toutefois, à l'état écroui, il acquiert une certaine ductilité.

Type d'alliage	Composition	Densité (g/cm ³)	Résistance en traction (MPa)	Allongement (%)
W-Ni-Fe	W : 90-95% Ni/Fe = 7/3	17-18	827	15
	* W : 93% Ni/Fe = 2	/	957 ± 3	20
	* W : 97% Ni/Fe = 2	/	850 ± 50	12
W-Ni-Cu	W : 90-95% Ni/Cu = 3/2	17-18	758	5-6

* produits élaborés par CIME-BOCUZE

Tableau I.1 : Caractéristiques de deux types d'alliages lourds.

Tensile strengths of metal wires and ribbons of metallic glass (at room temperature except where stated)

Material	Composition (wt. %)	Diameter (μm)	Tensile strength (GPa)	Young's modulus (GPa)	Specific gravity (ρ)	Specific strength (GPa)	Specific modulus (GPa)	Melting temperature (K)
Patented steel	0.9 C	100	4.2 [28]	220	7.9	0.53	28	1575
Patented steel after 30 min at 533 K	0.9 C	100	3.2 [28]	210	7.9	0.41	27	1575
Maraging steel 4/11	—	—	4.9 [29]	220	7.9	0.62	28	—
Fe	—	—	9.7 [30]	220	7.9	1.23	28	1808
Stainless steel	18Cr-8Ni-0.8Mo Ni-19Cr-11Co- 10Mo-3Ti-1.7Al	50	2.1 [28]	224	8.2	0.28	27	—
Rene 41 after 30 min at 1073 K	Ni-19Cr-11Co- 10Mo-3Ti-1.7Al	100	1.4 [28]	168	8.2	0.17	20	—
Ni	—	~0.05	10 [31]	210	8.9	1.12	24	1726
β-Ti	13V-11Cr-3Al	150	2.3 [32]	119	4.6	0.50	26	—
W	99.95 W	25	3.9 [28]	405	19.3	0.20	21	3663
Mo	99.9 Mo	150	2.1 [32]	343	10.3	0.20	33	2883
Be	Commercial purity	150	1.3 [33]	315	1.8	0.72	175	1557
Al	High purity	150	0.17 [32]	70	2.7	0.06	26	933
Sb	—	30	0.2 [34]	68	6.7	0.03	10	904
Fe ₈₀ B ₂₀ glass	—	—	3.63 [35]	168	6.8	0.53	25	—
Ni ₄₉ Fe ₂₉ P ₁₄	—	—	2.38 [35]	132	7.1	0.34	19	—
B ₆ Si ₂ glass	—	—	—	—	—	—	—	—
Pd ₇₈ Cu ₆ Si ₁₆	—	—	1.47 [35]	88	10.1	0.15	8.7	—

The figures in square brackets refer to specific references.

(a) [Yih-Wang 79]

Material*	Composition, %	Tensile Strength (σ _T), lb/in ² × 10 ⁴	Young's Modulus (E), lb/in ² × 10 ⁴	Specific Gravity (ρ)	σ _T /ρ, lb/in ² × 10 ⁴	E/ρ, lb/in ² × 10 ⁴	Melting Temp., °C	Ref.		
Carbon Steel	0.90 C	0.575	30	7.8	0.7	3.8	Not available 2610 3380 660 660 1453 1083 960 1769	All 50		
β-Titanium	13 V-11 Cr-3 Al	0.320	17	4.6	0.7	3.7				
Stainless Steel	302 (18 Cr-8 Ni)	0.347	29	7.9	0.44	3.7				
Réné 41	19 Cr-11 Co-10 Mo-3 Ti	0.300	32	8.2	0.37	3.9				
Molybdenum	99.9	0.300	53	10.3	0.29	5.1				
Tungsten	99.95	0.420	50	19.3	0.22	2.6				
Aluminium	High-purity	0.024	10	2.8	0.09	3.6				
Aluminium	96.5	0.042	10	2.8	0.15	3.6				
Nickel	99.999	0.087	30	8.9	0.10	3.4				
Copper	99.999	0.060	18	8.9	0.07	2.0				
Silver	99.999	0.030	11	10.5	0.03	1.05				
Platinum	99.999	0.057	22	21.4	0.03	1.03				
Beryllium	Comm. pure	0.160	45	1.8	0.89	25.0			1284	51

* All wires 0.006 in. in dia. except beryllium, which was 0.070 in. dia.

(b) [Kelly-Davies 65]

Tableaux I.2 a et b : Caractéristiques mécaniques de certaines fibres métalliques.

Pour la matrice, la caractéristique principale du matériau doit être une grande ductilité à basse température. La faiblesse de ses propriétés mécaniques (comparativement à celles des fibres de tungstène) permet, au cours d'une sollicitation, un bon transfert de la charge de la matrice vers les fibres.

Pour la mise en forme du matériau composite, nous avons choisi d'utiliser le principe du martelage rotatif dont nous préciserons ultérieurement les caractéristiques.

I.1.2 - Mise en forme du composite

I.1.2 - a - Techniques usuelles

Les techniques usuellement employées pour l'élaboration des composites à matrice métallique sont :

- * L'infiltration en phase liquide d'un substrat.
- * L'extrusion (filage, tréfilage).
- * Le pressage de tissus de fibres et de feuilles métalliques dans un moule.

L'utilisation de matériaux composites entièrement métalliques (fibres et matrice) étant limitée à des domaines très spécifiques (les transports (aérospatial, aviation), l'armement, l'industrie (machines et pièces de moteurs)), leur développement est assez restreint. Le *tableau I.3* présente, à titre d'exemple, une liste de divers composites métalliques avec leur méthode de fabrication et leur domaine d'application.

Plus spécifiquement, pour l'élaboration de composites à base de fils de tungstène, il existe trois techniques [YIH-WANG 1979] :

1- L'infiltration des fils par un métal en phase liquide sous vide ou atmosphère d'hydrogène

Matrices : Cu [McDanel 1963, Kelly et coll. 1965-69, Petrusek-Weeton 1964, Poole-Embury 1994]
 Ag, Co ou superalliages (Monel, S-816) [Starliper-Kenworthy 1968]
 Ag [Morris-Steigerwald 1967]

2- Frittage de la matrice (sous forme de poudre) en présence des fibres précédé ou non d'une pression à chaud ou à froid (extrusion, pressage ou laminage).

Matrices : Ni-Fe
 Cu [Lee-Kim-Lee 1993]
 Ni [Robinson-Farnsworth 1965 cité par Ahmad et coll. 1967, $\phi = 25,4 \mu\text{m}$]
 Laiton (90 Cu - 10 Zn) [Vennett-Wolf-Levitt 1969]

3- Electroformage : dépôt de la matrice sur les fibres puis mise en forme par des procédés de consolidation divers (pressage, laminage, extrusion...).

Matrices : Nb-15Ti ou Nb-42Ti-4Cr-4Al-1V [Klein-Metcalf 1973-74]
 Ni [Ahmad-Greco-Barranco 1967]

Fibers	Matrix	Fabrication method	Field of application
Stainless steel	Al	Powder metallurgy, lamination	Aircraft industry Automotive engine
Be ribbons	Al, Ti	Al or Ti clad Be rods are inserted in drilled Al or Ti preforms; mechanical deformation of the preform	Shafts for high-speed rotating engines, e.g., rotor shafts in helicopters and control rods in aircraft
Ta	Mg	Infiltration technique	Aircraft industry
Mo	Ti or Ti alloy	Powder metallurgy, fiber alignment by extrusion rolling, etc.	Supersonic aircraft rocket propulsion
Be or Ti clad Be	Ti alloy, pure Ti	Explosive welding of interposed layers of Ti and Be fibers	Aircraft construction
Be	Ti, Ti-6 Al-4V Ti-6 Al-6V 2Sn Ti-5 Al-5Sn	Hot extrusion of mixed precursor of Ti and Be; the latter can be present as fiber preforms	Aircraft industry
Ni ₃ Al	Ni, (2-10%) Al	Powder metallurgy; the fiber-like phase is formed <i>in situ</i> during mechanical working	Oxidation resistant, high strength at high and low temperatures
Ni-Cr-Al-Y	Ni alloy	Powder metallurgy	Sealing elements in turbines and compressors
W/1% ThO ₂	Superalloy	Investment casting	Jet engines
W	W-Ni-Fe alloy	Liquid phase sintering; the W fibers are recrystallized to avoid dissolution	
Stainless steel	Ni alloys	Electroforming	Rocket engines
Mo, Ti, Nb	Ni superalloys	Powder metallurgy	
W	Cu	Melt impregnation	Electrical machinery
Nb filaments	Ni, Cu, Ag	Nb filaments embedded in a Cu, Ni, or Ag matrix are passed through a molten bath of Sn to form Nb ₃ Sn	Superconductors

* Tables A1 through A3 are taken from a book, *Inorganic Fibre and Composite Materials*, by P. Backe, H. Schurmans, and J. Verhoest, Pergamon Press, Oxford, 1983.

Tableau I.3 : Liste de matériaux composites à matrice et à fibres métalliques
[Yih-Wang 79]

Ces techniques présentent certains inconvénients liés notamment à la nécessité d'utiliser des températures élevées et/ou des pressions élevées :

- L'utilisation d'une température élevée fait intervenir des phénomènes de diffusion qui peuvent modifier la microstructure de la matrice ou des fibres et par conséquent altérer les propriétés mécaniques du matériau composite. Certains phénomènes peuvent s'avérer particulièrement dommageables pour la tenue des interfaces tels que la ségrégation, la recristallisation induite par diffusion, la formation de solutions solides ou de composés intermétalliques fragiles [PETRASEK-WEETON 1963] (§ I.2.2).
- Certaines de ces méthodes (notamment la troisième) requièrent une mise en forme du composite sous sollicitation mécanique. Ceci peut donner lieu à l'apparition de contraintes internes dommageables car induisant soit un écrouissage soit une rupture des fibres de renfort soit une fragilisation des interfaces fibre-matrice.

Toutefois, nous noterons que la troisième méthode basée sur la technique du pré-dépôt de la matrice sur les fibres de renfort (dépôt par voie chimique ou électrolytique ou par CVD, par plasma..) présente certains avantages sur toutes les autres méthodes :

- Possibilité d'élaborer des composites à fraction volumique de fibres très important ($V_f > 80 \%$).
- Assurance d'une répartition spatiale homogène des fibres dans la matrice sans contact fibre-fibre puisque l'espacement entre les fils est déterminé par l'épaisseur du dépôt.
- Meilleur contrôle de V_f qui est directement liée au choix de l'épaisseur de dépôt.
- Cette technique peut, de plus, s'appliquer à des fibres de diamètres divers.

La méthode de l'électroformage s'est donc présentée comme un moyen de mise en forme intéressant pour notre composite. Il est, d'ailleurs, particulièrement conseillé pour la mise en forme de composites à fibres continues, à fort V_f et à matrice à base de nickel [WARD-CLOSE-PATRIDGE 1990]. En ce qui concerne le procédé de mise en forme proprement dit, notre choix s'est porté sur l'utilisation du martelage rotatif.

I.1.2 - b - Technique choisie = Electroformage avec martelage rotatif

Le martelage rotatif est surtout utilisé par les métallurgistes comme moyen de mise en forme grossière de pièces métalliques sous forme de barreaux cylindriques. Il est par contre assez peu exploité dans l'industrie pour la mise en forme de produits finis. Jusqu'à ce jour, à notre connaissance, ce procédé n'a jamais été utilisé pour la mise en forme de composites métalliques.

Cependant, dans notre cas, le martelage rotatif permet une mise en oeuvre relativement facile. La forme cylindrique que nous souhaitons donner à ce composite s'avère, de plus, tout à fait adaptée à ce mode de mise en forme.

Le mode opératoire que nous souhaitons suivre est le suivant :

- 1- Obtention d'un dépôt de nickel sur les fils de tungstène par voie électrolytique.
- 2- Remplissage d'un container en acier inoxydable avec les fils de tungstène nickelés.
- 3- Chauffage de l'ensemble à une température et une durée qui nous restent à déterminer.
- 4- Aussitôt sorti du four, martelage de l'ensemble suivi d'un refroidissement lent à l'ambiante.

Ce mode opératoire présente certains avantages :

- La technique de l'électrodéposition du nickel sur des fils de tungstène est un procédé bien maîtrisé industriellement. Il est ainsi possible d'obtenir (à $\approx 10 \mu\text{m}$ près) l'épaisseur de dépôt souhaitée.
- La réalisation du composite présente une facilité d'adaptation à un contexte industriel.
- La mise en forme par martelage rotatif permet une rapidité d'exécution.
Ce procédé permet, en outre, d'imposer le taux de martelage et le diamètre final du barreau composite.
- Il est possible de marteler à une température inférieure à la température de fusion du nickel et du tungstène, ce qui permet de réduire les risques d'interaction chimique entre les constituants lors de l'élaboration.
- Contrairement à la plupart des techniques précédemment citées, le container qui fait office de moule (lors de l'élaboration du matériau) fait partie intégrante du composite en tant que produit fini. Par conséquent, on évite tout problème de démoulage et d'état de surface. En outre, la présence de cette chemise extérieure permet d'usiner le produit pour l'adapter à la forme souhaitée.

L'électrodéposition de la matrice en nickel permet en outre :

- D'éviter le problème de l'oxydation des fils de tungstène lors des manipulations (protection assurée par le nickelage).
- D'avoir, avant l'élaboration du composite, une bonne qualité d'interface fibre-matrice, cette interface étant souvent considérée comme l'interface la plus critique pour la tenue mécanique de la plupart des matériaux composites.
- D'avoir une répartition spatiale homogène des fils dans la matrice.

La mise en forme par martelage a donc pour objectif de densifier et consolider l'empilement des fils en provoquant une déformation des dépôts de nickel (notamment au niveau des points triples) et une diffusion aux interfaces nickel-nickel (Ni-Ni) et gaine-nickel permettant la soudure de ces interfaces.

Toutefois, ce procédé peut conduire à l'endommagement du matériau au cours de sa fabrication (en raison des fortes déformations que le martelage rotatif provoque) et/ou à l'apparition de contraintes internes néfastes aux propriétés mécaniques du composite.

Une étude bibliographique (§ I.4) du comportement en déformation de matériaux homogènes et hétérogènes soumis au martelage rotatif permettra de mieux évaluer l'importance des forces et des déformations mises en jeu et mettre en évidence les hypothétiques problèmes que peut engendrer un tel procédé de mise en forme.

I.2 - CARACTÉRISTIQUES DES CONSTITUANTS DU COMPOSITE

I.2.1 - Les fils de tungstène

I.2.1 - a - Elaboration des fils de tungstène

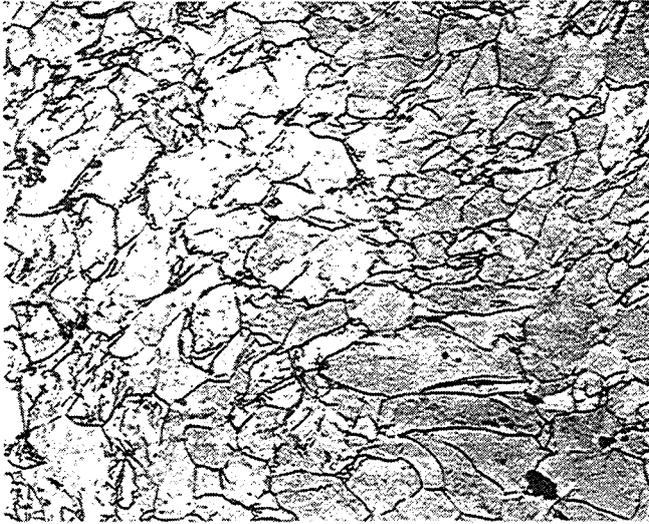
Les fils de tungstène sont des produits métallurgiques très particuliers ($T_f = 3410^\circ\text{C}$) qui demandent une élaboration longue et complexe faisant appel aux techniques de la métallurgie des poudres.

L'élaboration de fils en tungstène à partir de barreaux frittés nécessite une succession d'étapes de corroyage :

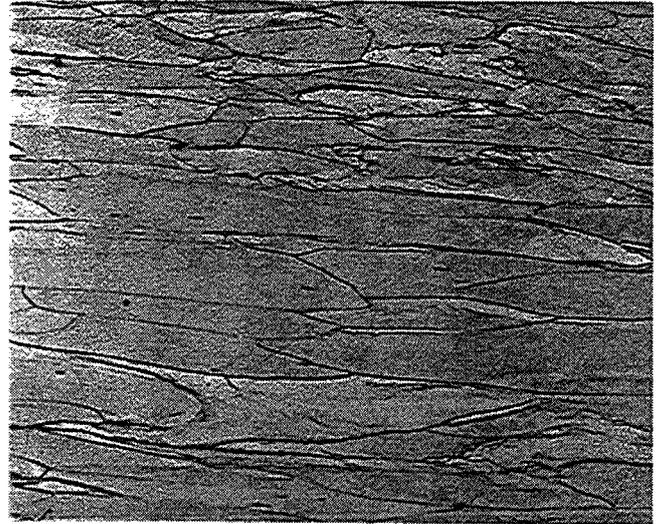
- Succession de passes de **martelage** à chaud ($1550-1650^\circ\text{C}$ puis à température décroissante jusqu'à 1250°C), opération permettant à la fois d'éliminer la porosité résiduelle [YIH-WANG 1979] et de conférer au barreau une ductilité suffisante pour permettre le tréfilage. Entre deux passes, le barreau est remis en température sans pour autant provoquer la restauration.
- Succession d'opérations de **tréfilage** à froid ($T = 900^\circ\text{C}$) entrecoupées quelquefois de phases de recristallisation. La température de tréfilage est ensuite réduite progressivement lorsque le diamètre du fil atteint une valeur inférieure à 0,1 mm.

Il résulte de ces opérations de corroyage une déformation très importante conduisant à une réduction de la section de 99,9 % soit une déformation moyenne ϵ de l'ordre de 7.

Cet état de déformation conférant aux fils de tungstène des caractéristiques microstructurales particulières, nous présenterons brièvement au paragraphe suivant la microstructure des fils, leur recristallisation et l'effet de l'ajout d'éléments dopants sur cette recristallisation.

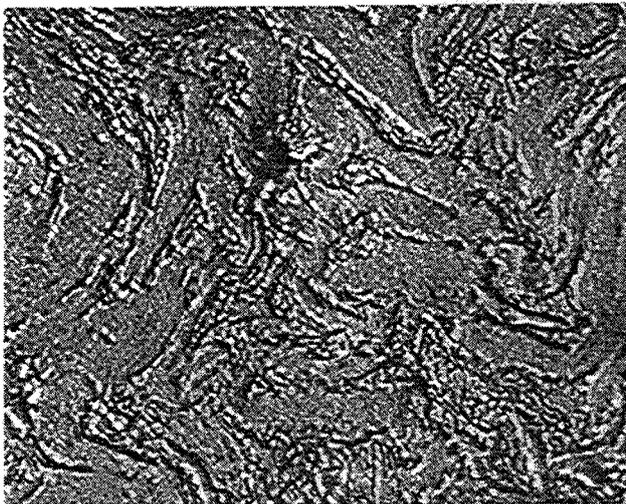


(a) Section transversale (x 150)

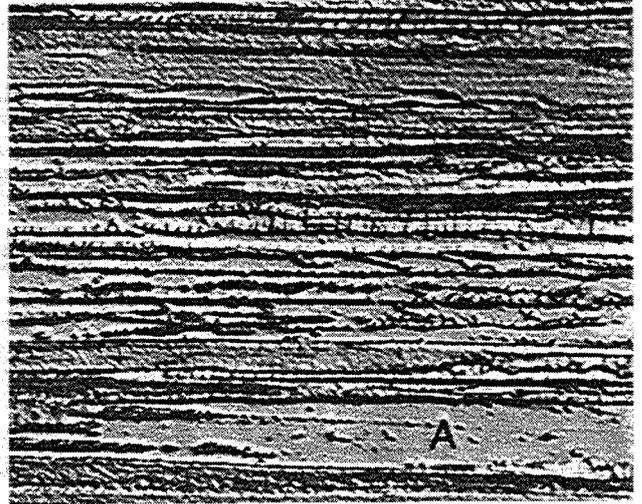


(b) Section longitudinale (x 150)

Micrographies I.1 a et b : Microstructure d'un barreau de fer martelé après une réduction d'aire de 73% [Peck-Thomas 61].



(a) Section transversale (x 2000)



(b) Section longitudinale (x 2000)

Micrographies I.2 a et b : Microstructure d'un filament de tungstène de diamètre 0,76 mm [Peck-Thomas 61]

I.2.1 - b - Microstructure des fils

Au cours des diverses opérations de martelage, les grains équiaxes du matériau fritté s'allongent mais seulement pour des taux de réduction supérieurs à 73 % (*Micrographies I.1 a et b*) en forme de cylindre. Il se développe donc progressivement une texture de fibre caractérisée par une forme de grains de type ellipsoïdal et une texture cristallographique $\langle 110 \rangle$ très préférentielle.

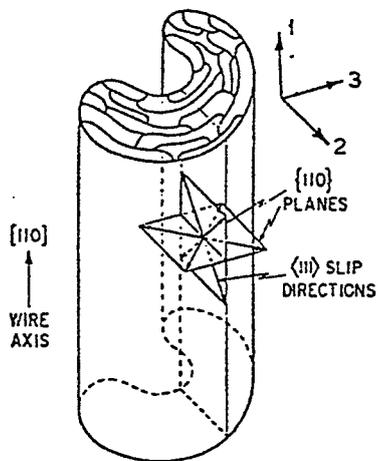
L'opération de tréfilage à froid ($T = 900^\circ\text{C}$, température supérieure à la TTFD) induisant des déformations encore plus importantes entraîne une modification microstructurale encore plus prononcée. Les contraintes deviennent si grandes qu'il se produit une accommodation géométrique des grains : amincissement de leur section transversale à l'axe d'étirage avec courbure hélicoïdale de la fibre autour de ce même axe (*Micrographie I.2 et schémas I.1 a ou b*).

Cette accommodation morphologique des grains résulte d'une déformation non uniforme liée à l'orientation des directions de glissement par rapport à l'axe d'étirage (*Schéma I.1 c*) [PECK-THOMAS 1961]. Une fois la texture de fibre développée, la déformation subie par chaque grain n'est plus axisymétrique en raison de l'orientation prise par les quatre systèmes de glissement vis à vis de l'axe de tréfilage. Leur orientation est telle qu'un surplus de déformation tend à provoquer une déformation en contraintes planes plutôt qu'une déformation axisymétrique. Les directions de glissement C $[111]$ et D $[11\bar{1}]$ orientées parallèlement à l'axe du fil assurent l'élongation des grains suivant $[110]$ et la contraction parallèlement à $[001]$. Les deux autres directions de glissement A $[1\bar{1}\bar{1}]$ et B $[1\bar{1}1]$ faisant un angle de $35^\circ 16'$ avec l'axe du fil et situées dans le plan de type $\{110\}$ perpendiculaire à ce même axe provoque l'amincissement des grains dans la direction $[1\bar{1}0]$ et leur élargissement dans la direction $[001]$. En raison de ce mode de déformation, la compatibilité entre les grains est alors assurée par la courbure et l'enchevêtrement de la section transversale des grains [PECK-THOMAS 1961, HOSFORD 1964].

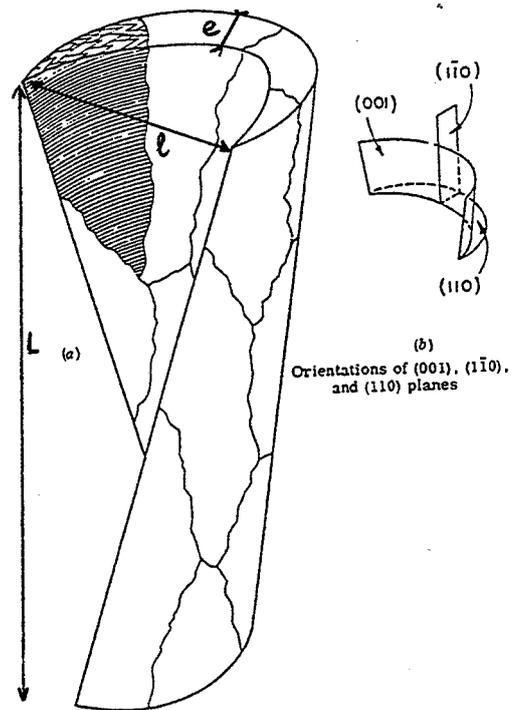
Cette transformation morphologique des grains conduit à la formation d'une **microstructure fibreuse** (*Micrographies I.2 a et b*) caractérisée par des grains en forme de rubans vrillés qui s'enchevêtrent.

Des observations en microscopie électronique en transmission [MEIERAN-THOMAS 1965] ont permis de mettre en évidence la présence d'une **sous-structure cellulaire** à l'intérieur de chaque fibre (*Schémas I.1 a et b*). De manière à accommoder les déformations, les dislocations se regroupent et forment des murs ou parois délimitant des zones exemptes ou presque de dislocations que sont les cellules.

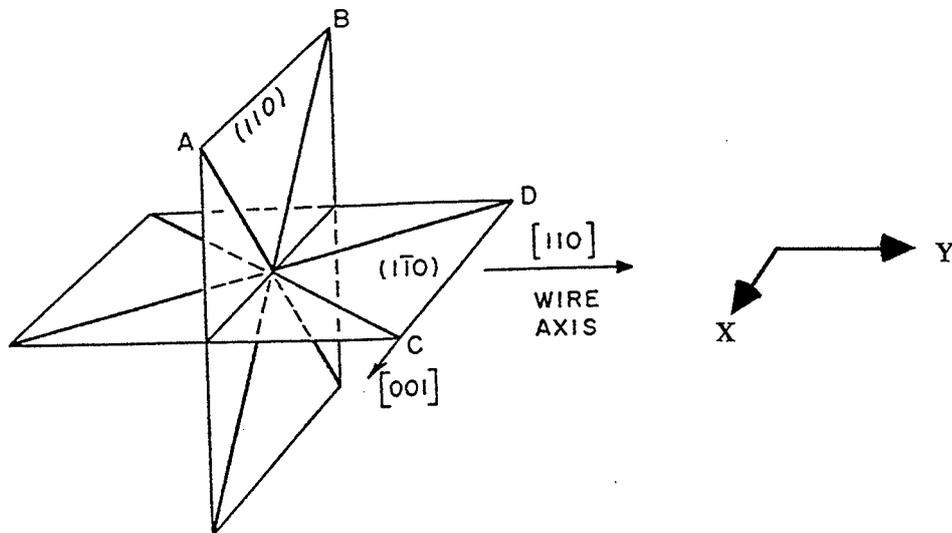
Il est difficile voire impossible de différencier visuellement ces sous-joints des joints de fibres. Seule une mesure de leur désorientation respective par clichés de diffraction X (image of selected area diffraction SAD) permet de les identifier, leur désorientation étant plus faible.



(a) Modèle de Langford-Cohen 69 pour un fil de fer [Haessner 78]



(b) Modèle de Meieran-Thomas pour un fil de tungstène [Meieran, Thomas 61]



(c) Relation entre les plans $\{110\}$, les directions $\langle 111 \rangle$ (A,B,C,D) et l'axe du fil $\langle 110 \rangle$ [Peck-Thomas 61]

Schémas I.1 a, b et c : Représentation et orientation d'un grain et de sa sous-structure dans un fil fortement tréfilé.

Les dimensions des fibres représentées (*schéma I.1 b*) sont les suivantes [SNOW 1976, BARNA 1978] :

- L'épaisseur de la fibre prise sur la section transversale du fil est de 0,5 μm environ.
- La largeur variable est au maximum de 10 μm .
- La longueur peut atteindre le centimètre.

Pour la sous-structure, on estime les dimensions des cellules à : une épaisseur de 0,14 μm , une largeur de 1 μm et une longueur de 2 à 3 μm .

Les fibres s'orientent, en longueur, parallèlement à l'axe [110] et s'enroulent de manière hélicoïdale autour de cet axe.

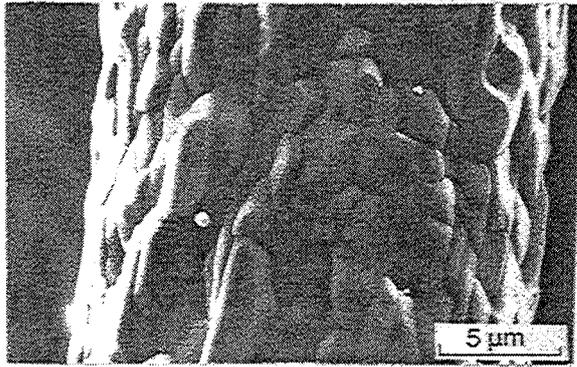
I.2.1 - c - Fils en tungstène dopé

L'élaboration de fils en tungstène servait, autrefois, essentiellement à la réalisation de filaments (double torsade) pour lampe à incandescence. Or, il a été constaté que l'utilisation prolongée de ces filaments ($t > 1000$ heures) à des températures supérieures de 2000°C provoquait une rupture intergranulaire. Cette rupture consécutive à une recristallisation à gros grains (*Micrographie I.3*) est induite par glissement intergranulaire dû au fluage de type Herring-Nabarro (*Schéma I.2*) [WALIRMONT 1975, YIH-WANG 1979, BRIANT-WALTER 1989].

Il a été démontré fortuitement que l'ajout de quelques traces de K, Si et Al dans la poudre d'oxyde de tungstène avait un effet bénéfique sur les filaments de tungstène puisque ces éléments permettaient d'augmenter considérablement leur résistance au fluage [SMITHELLS 1953 cité par YIH-WANG 1979]. Cette nuance de filaments appelée "nonsag" a par la suite fait l'objet de nombreuses études visant à déterminer le principe d'action de ces éléments dopants sur les propriétés de résistance au fluage des filaments.

Il a, ainsi, été mis en évidence que le dopage modifiait considérablement le comportement des filaments vis à vis de la recristallisation. Tandis que la température de recristallisation est atteinte dès 1100°C [filaments $\phi = 0,18$ mm SNOW 1976] ou 1200°C [$\phi = 0,8$ mm WALIRMONT *et coll.* 1975] sur la nuance non dopée des filaments, elle s'élève à environ 2000°C sur les filaments dopés. Ces éléments permettent, outre d'élever la température de recristallisation, de modifier la morphologie des grains recristallisés : au lieu d'être équiaxes, les grains recristallisés ont une forme allongée et les joints présentent un aspect très sinueux (*Micrographie I.4 b*). Cet enchevêtrement confère alors aux grains une meilleure résistance au fluage à haute température [Walirmont *et coll.* 1975].

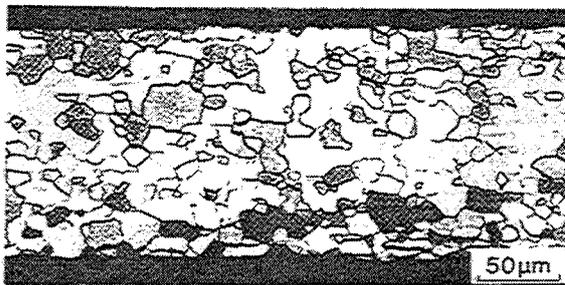
La compréhension des processus élémentaires qui conduisent à une telle modification de comportement n'a pu se faire qu'avec l'aide des nouvelles techniques d'analyse telles que la microscopie électronique en transmission qui a permis de révéler, dans la microstructure de filaments recristallisés, la présence de bulles contenant des éléments dopants [WALTER 1967, MOON-KOO 1971, KOO 1967 et DAS-RADCLIFFE 1968 cités par WALIRMONT *et coll.* 1975, Snow 1974].



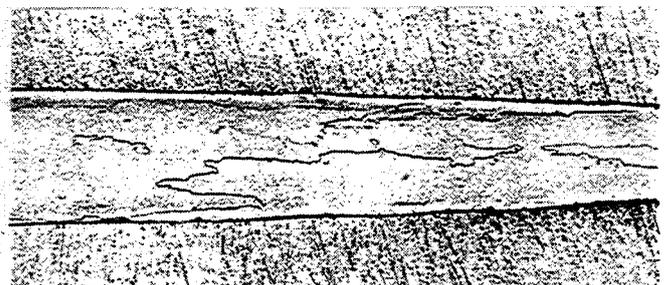
Micrographie I.3 : Filament de tungstène "pur"
recristallisé [Thorsen 89]



Schéma I.2 : Glissement intergranulaire
[Thorsen 89]



(a) Fil pur recuit à 2700°C - 5 min [Thorsen 89]
(diamètre de 178 µm)



(b) Fil dopé recuit à 2350°C - 26 heures [Walter 67]
(diamètre de 254 µm) (x 80)

Micrographies I.4 a et b : Microstructure recristallisée sur coupe longitudinale d'un fil pur (a) et d'un fil dopé (b).



(a) En transmission électronique [Walter 67]
(Fil recuit à 2200°C - 3,5 heures)



(b) En microscopie à balayage [Walirmont 75]
(Fil recuit à 2100°C - 10 min)

Micrographies I.5 a et b : Rangées de bulles dans un fil dopé formées au cours d'un recuit.

Ces bulles contiennent essentiellement du potassium à l'état solide si le recuit est effectué sous vide ou à l'état solide et liquide si le recuit est effectué sous hydrogène [SELL et coll. 1972, SNOW 1972-74, RAO-WALTER-RUSSELL 1974 cités par WALIRMONT et coll. 1975].

Le potassium qui a une basse température d'évaporation 760°C et qui est de plus insoluble dans le tungstène [KRAUTZ-SCHULT 1958, DANNEIL 1958 cités par WALIRMONT et coll. 1975], se volatilise au cours du recuit ($T_{\text{recuit}} > T_{\text{évaporation de K}}$) et forme aux joints des bulles sur les parois desquelles il se dépose épitaxialement lors du refroidissement.

Dans le barreau fritté, le potassium est concentré dans les pores du fritté et suite aux diverses passes de corroyage, il est dispersé en fines particules formant des rangées alignées le long des joints des fibres [WALIRMONT et coll. 1975]. Ces rangées de particules se localisent préférentiellement le long des joints **longitudinaux**, c'est à dire parallèlement à l'axe d'étirage (*Micrographies I.5 a et b*). Les bulles qui se forment ensuite au cours d'un recuit constituent alors des points d'ancrage pour la migration des joints et bloquent la croissance des grains.

I.2.1 - d - Recristallisation des fils

Etant donné la finesse de la microstructure des fils de tungstène, seule une étude en microscopie en transmission, associée aux techniques de diffraction sur une aire sélectionnée (SAD) et image en fond noir, a permis de révéler les mécanismes mis en jeu au cours des phénomènes de restauration et recristallisation des fils de tungstène. L'analyse des textures de recuit apporte un complément d'information sur la compréhension de ces mécanismes.

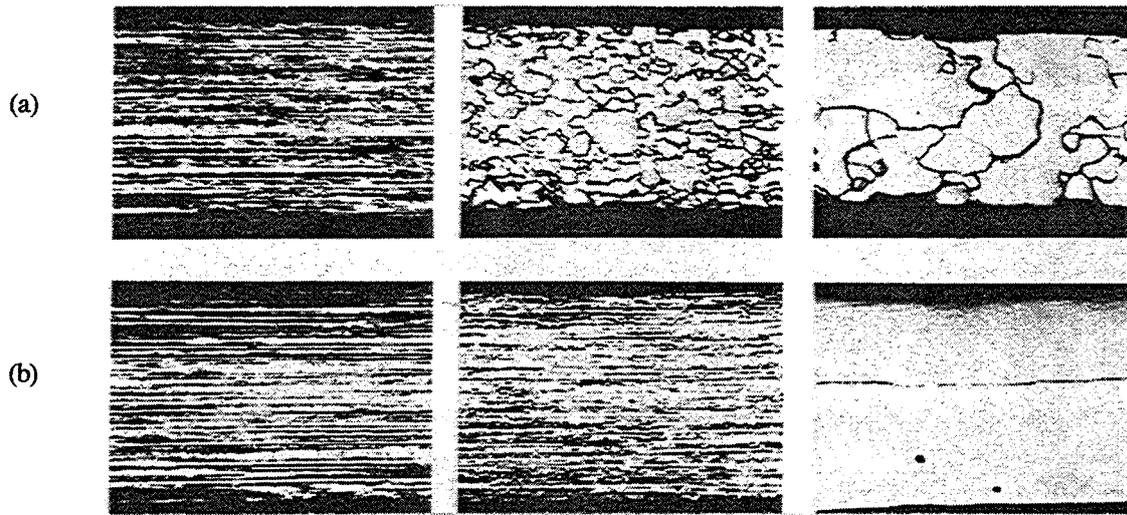
En ce qui concerne les fils de tungstène "purs", il a ainsi été mis en évidence que la transformation microstructurale des filaments de tungstène procédait en **quatre étapes** : restauration, polygonisation (900 à 1500°C), recristallisation primaire (1500°C) et croissance des grains.

La particularité de cette évolution microstructurale est que la recristallisation résulte non pas d'un processus de germination mais de la croissance de sous-grains polygonisés [JONES 1961, MEIERAN-THOMAS 1965, RAY-HUTCHINSON-DUGGAN 1975 et Cottrell cité par TIEYONG 1989].

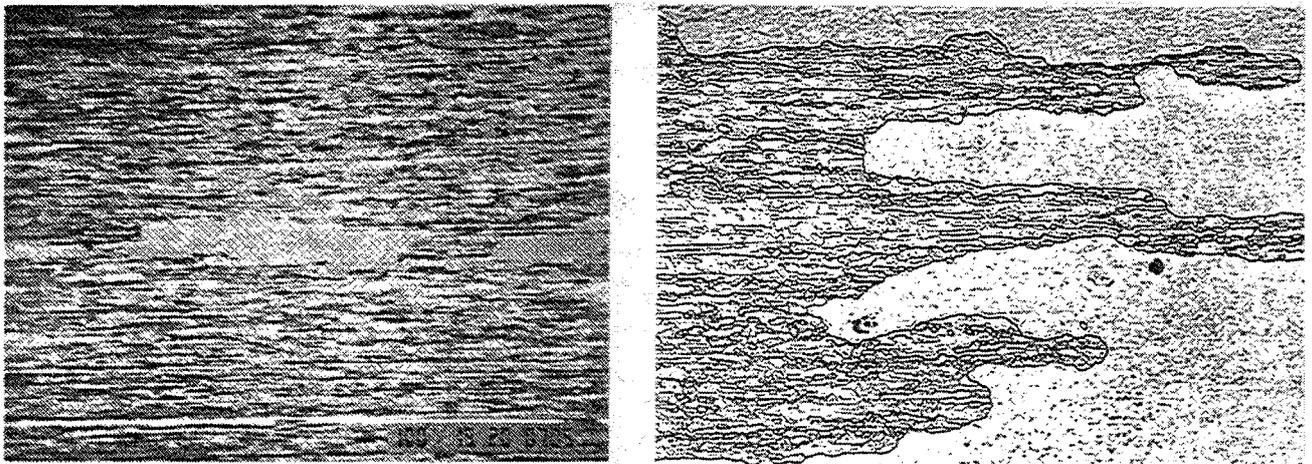
Les textures de recuit ont montré que l'orientation préférentielle $\langle 110 \rangle$ des fils tréfilés est conservée en partie tant que persiste la polygonisation. La texture devient ensuite aléatoire dès qu'on dépasse la température de recristallisation [JONES 1961].

Si on compare l'évolution microstructurale d'un fil pur (*Micrographie I.6 a*) et d'un fil dopé (*Micrographie I.6 b*) en fonction de la température de recuit, on constate que le dopage modifie fortement la recristallisation des fils.

Le dopage n'agit que sur la croissance des grains et non sur les mécanismes de restauration et de polygonisation. On notera toutefois que les microstructures initiale des fils "purs" et dopés se différencie par la taille des cellules (plus petites dans le fil dopé [SNOW 1979]).



Micrographies I.6 a et b : Evolution microstructurale d'un fil de tungstène "pur" (a) et d'un fil de tungstène dopé (b) en fonction de la température de recuit : 100, 1800 et 2300°C (de gauche à droite) [Davinson-Nelecker 66 cités par Yih-Wang 79]



(a) Formation d'un grain recristallisée dans la microstructure polygonisée (recuit à 1860°C) [Tieyong 89]

(b) Excroissances d'un grains se propageant dans la microstructure polygonisée (recuit 2200°C) [Walter 67]

Micrographies I.7 a et b : Apparition et croissance des grains recristallisés dans un fil de tungstène dopé.

Ceci est attribué à la présence des éléments dopants qui favorisent la multiplication des dislocations et/ou induisent une restauration moins dynamique (migration des parois de dislocations) durant la déformation.

Le dopage a donc pour effet de ralentir considérablement la cinétique de croissance des nouveaux grains. Ceci se traduit par une élévation de la température de recristallisation qui passe de 1500°C à 2000°C et par une croissance "anormale" des grains (ou croissance exagérée).

Contrairement aux fils "purs" où la recristallisation donne lieu à une microstructure à grains équiaxes (*Micrographie I.4 a*), la microstructure recristallisée des fils dopés (*Micrographie I.4 b*) est caractérisée par de larges grains allongés (dans une direction parallèle à l'axe du fil) qui s'imbriquent les uns dans les autres par l'intermédiaire d'excroissances (*Micrographie I.7 a et b*).

Ce mode de croissance est attribué, pour certains [BRETT-FRIEDMAN 1971, TIEYONG 1989], au phénomène de recristallisation secondaire tandis que d'autres [WALTER 1967, THOMSON-RUSSELL et coll. 1975] privilégient la thèse selon laquelle il résulterait d'un taux de germination particulièrement faible.

Quoi qu'il en soit, ce phénomène est lié à la présence de rangées de bulles de potassium qui constituent des obstacles à la migration des joints de grains tout comme des particules de seconde phase. La migration des joints de grains se faisant préférentiellement entre les bulles serait à l'origine de l'aspect sinueux des joints de grains recristallisés. La forme allongée des grains serait due à la disposition des rangées de bulles parallèlement à l'axe du fil : la migration des joints devient donc plus facile dans la direction parallèle à l'axe que dans la direction transverse.

L'augmentation de la résistance au fluage des filaments de tungstène dopé lors d'un maintien prolongé à température élevée est donc due : à l'augmentation de la température de recristallisation, à un ralentissement de la croissance des grains et à l'imbrication des grains qui limite le glissement intergranulaire.

Toutefois, il a été montré que l'évolution des textures et de la microstructure suite à un recuit était fonction du diamètre du fil donc du taux de tréfilage subi [THOMSON-RUSSEL 1975]. Ces différences constatées uniquement sur fils dopés sont, en fait, liées à la répartition des éléments dopants. En effet, l'augmentation du taux de déformation implique une répartition plus fine des bulles le long des joints de grains avec augmentation de leur densité et diminution de leur taille [MOON-KOO 1971]. Ayant pour effet de diminuer la distance entre les bulles, ceci induit, en conséquence, un épingleage plus efficace des joints au cours du recuit et donc une modification des processus de germination et de croissance.

- Pour des taux de déformation relativement faibles (diamètre du fil passant de 8,8 à 2,8 mm), la distribution des bulles est bien trop grossière pour influencer la recristallisation. La texture de recuit est dans ce cas "aléatoire" et les grains de forme équiaxe.
- Pour des taux de déformation supérieurs ($\epsilon_{\text{vrai}} > 4$ ou diamètre du fil passant de 2,8 à 0,6 mm), la densité des bulles reste insuffisante pour réellement gêner le mouvement des joints. C'est pourquoi, il peut se produire un phénomène de polygonisation (ou recristallisation in situ). La texture de recuit est de manière prédominante de type $\langle 110 \rangle$. La microstructure de recristallisation est à peu près équiaxe.

Précisons que nos fils de tungstène de diamètre 1 mm font justement partie de cette catégorie.

- Pour des taux de déformation encore plus importants ($\epsilon_{\text{vrai}} > 8$ ou diamètre du fil inférieur à 0,215 mm) (cas des filaments de tungstène pour lampe à incandescence), la densité des bulles est telle que les bulles constituent une réelle entrave à la migration des sous-joints. La microstructure recristallisée est alors constituée de larges grains allongés et imbriqués les uns dans les autres. La texture de recuit est, dans ce cas, mixte : $\langle 531 \rangle$ [RIECK 1961 cité par THOMSON-RUSSELL *et coll.* 1975] et prépondérance de $\langle 110 \rangle$.
- Pour des taux de déformation encore plus grands (diamètre du fil passant à 0,045 mm), les sous-joints sont, tous, orientés parallèlement à l'axe du fil. La microstructure recristallisée est alors formée de gros grains et la texture est de nouveau $\langle 110 \rangle$.

L'augmentation du taux de déformation sur un fil dopé implique donc une augmentation de la température de recristallisation (température d'apparition des nouveaux grains), une modification de la texture et de la microstructure recristallisée.

I.2.1 - e - Propriétés des fils de tungstène

Le tungstène recristallisé est un matériau réputé fragile : sa température de transition ductile-fragile (TTDF) est largement supérieure à la température ambiante (700°C) [STOKES-LI 1984]). Par contre, sous forme de fil, il devient ductile: sa TTDF est d'autant plus basse que le diamètre du fil est faible. Pour un fil de diamètre 1 mm, elle est même nettement inférieure à la température ambiante (-60°C) [LHUIRE 1984]).

Toutefois, cette augmentation de TTDF ne concerne que la sollicitation longitudinale des fils et non la sollicitation transversale [LHUIRE 1984]. La TTDF est fonction d'un certain nombre de paramètres dont la taille des grains, leur forme, le taux d'écroûissage et la teneur en impureté (la ségrégation d'oxygène [SMITH 1973] et/ou de phosphore [JOSHI-STEIN 1970] fragilisent le tungstène).

La ductilité des fils (en sollicitation longitudinale) est liée certes à la forme (fibres) et finesse des grains mais aussi à toutes ses conséquences [LHUIRE 1984] :

- Orientation préférentielle des joints de grains parallèlement à l'axe de sollicitation rendant la propagation intergranulaire des fissures impossible.
- Rupture par clivage difficile, les plans de clivage étant orientés de la manière la plus défavorable possible (à 45° de l'axe de sollicitation).
- La déformation par glissement est, par contre, aisée (4 systèmes de glissement (situés à 30° de l'axe des fils) ayant un facteur de Schmid élevé 0,4).

En sollicitation transversale, par contre, le comportement mécanique des fils est moins bon : la propagation des fissures le long des fibres est alors possible et facilitée par l'orientation préférentielle des joints et la faible cohésion interfibrilles que la ségrégation fragilisante de phosphore ne fait probablement qu'accentuer.

En annexe A, figurent quelques données sur les propriétés physiques et mécaniques du tungstène en général et des fils de tungstène en particulier.

I.2.2 - Le nickel

I.2.2 - a - Critères de choix

En général, le choix de la matrice pour le composite doit tenir compte d'un certain nombre de critères :

- 1- Une bonne ductilité de la matrice lors de l'élaboration du composite.
- 2- Avoir des interfaces résistantes donc une bonne adhérence entre matrice-fibre, matrice-matrice, gaine-matrice.
- 3- Eviter les réactions chimiques à l'interface matrice-fibre qui pourraient être néfastes aux propriétés mécaniques du composite.

Ces réactions peuvent se produire soit en cours d'élaboration du composite en raison du traitement thermique (T, atmosphère) soit lors d'une utilisation ultérieure du composite en environnement sévère.

1 - 1^{er} critère : la ductilité

La ductilité d'un métal étant liée à sa structure cristallographique, la matrice sera choisie parmi les métaux cubiques à faces centrées. Divers éléments sont alors susceptibles d'être utilisés comme matrice : Al, Cu, Ni, Co (CFC pour $T > 420^{\circ}\text{C}$), Cr (CFC pour $T > 28^{\circ}\text{C}$), Fe (CFC pour $912 < T < 1394^{\circ}\text{C}$).

Le *tableau I.4* présente les principales caractéristiques de ces éléments. Trois d'entre eux peuvent d'ores et déjà être écartés : le chrome pour sa température de fusion trop élevée, l'aluminium pour la faiblesse de sa densité et de ses propriétés mécaniques et le fer pour ses transformations allotropiques.

Matériau	T _{fusion} (°C)	ρ g/cm ³	E GPa	R _{0,2} MPa	R _m MPa	ε _p %	ν	K _c MPa √m
Aluminium	660	2,7	70	40	200	50	0,36	100-350
Cobalt	1495							
Chrome	1890							
Cuivre	1083	8,9	125	60	400	55	0,34	100-350
Fer	1538	7,9	200	50	200	30		150
Nickel	1453	8,9	215	70	400	65	0,31	100-350
Tungstène	3410	19,3	410	1000	1510	1-50	0,28	20

Tableau I.4 : Densités et propriétés mécaniques de divers métaux [Petrasek-Weeton 64]

2 - 2^{ème} critère : l'adhérence du dépôt électrolytique sur le fil de tungstène

Un soin particulier doit être apporté à la qualité de l'interface car il met en présence deux éléments chimiques ayant des propriétés très différentes. De nombreuses études ont, mis en évidence que la faiblesse de cet interface était souvent responsable de l'endommagement des matériaux composites.

Deux facteurs essentiels conditionnent la qualité de cette interface :

- * L'état de surface des fils de tungstène : pour une meilleure adhérence des dépôts électrolytiques, il est recommandé d'avoir une surface de substrat **rugueuse**.
- * Une bonne adhérence chimique du métal déposé avec le tungstène (liaison métallique W-Ni forte).

Des essais d'arrachement de fils de tungstène au sein d'une matrice [KELLY-TYSON 1965, OCHIAI 1975-76, VENNETT-WOLF-LEVITT 1969] ont permis d'évaluer la résistance au cisaillement de l'interface fibre-matrice pour trois matrices différentes : nickel, cuivre, laiton (alliage 90 Cu-10 Zn).

Ces essais ont mis en évidence que le nickel avait une meilleure adhérence avec le tungstène ($\tau_{W/Ni} = 100$ MPa) que le cuivre ($\tau_{W/Cu} = 23$ MPa, 47 MPa [KELLY-TYSON 1965] ou 76 MPa [KROCK 1967 cité par VENNETT et coll. 1969]) ou le laiton ($\tau_{W/laiton} = 7$ à 14 MPa [VENNETT et coll. 1969]).

Le fait qu'il y est une certaine solubilité du tungstène dans le nickel contrairement au système W/Cu est un facteur favorable à la résistance de l'interface. OCHIAI [1975] a, en effet, constater par un essai de traction que l'interface (fil W/dépôt Ni) ne s'ouvrait pas (à rupture) lorsqu'on effectuait un léger recuit de diffusion avant traction (900°C - 1 min)

3 - 3^{ème} critère : l'interaction chimique avec le tungstène

Si un léger recuit permet d'améliorer la résistance de l'interface, un recuit un peu plus long ou une température un peu trop élevée risque d'être néfaste aux propriétés mécaniques du composite [PETRASEK-WEETON 1964], certaines interactions chimiques entre fibre et matrice pouvant fragiliser la fibre de renfort.

L'intensité de ces interactions est étroitement liée au degré de solubilité qui existe entre les deux métaux: matrice-fibre. Peu de métaux présentent une insolubilité avec le tungstène : Cu, Ag, Au et Zn (HC). Pour cette raison, la réalisation de composites à fibres de tungstène par la technique d'infiltration en phase liquide de la matrice ($T = 1204^\circ\text{C}$, $t = 1\text{h}$) a longtemps privilégié le cuivre comme matrice [MCDANELS 1963, KELLY-TYSON 1965, KELLY-LILHOLT 1969, PETRASEK-WEETON 1964, LEE-KIM-LEE 1993, EMBURY-POOLE 1994].

PETRASEK ET WEETON [1964] ont montré que l'ajout de faibles quantités d'éléments (Al, Cr, Co, Nb, Ni, Ti et Zr) de solubilités diverses à la matrice de cuivre suffisait à provoquer trois types de réactions interfaciales au cours de l'élaboration du composite [PETRASEK-WEETON 1964] :

Element	Melting Point		Crystal Structure	Maximum Solubility of Element in Tungsten, Wt Pct	Maximum Solubility of Tungsten in Element, Wt Pct	Eutectic Formation, °C	Probable Intermetallic
	°F	°C					
Al	1220	660	Fcc	2.6	1.5	—	WAl, WAl ₁₃ , W ₂ Al, WAl ₃ , WAl ₄ , WAl ₅
Co	2723	1495	Hcp, below 788°F Fcc, above 788°F	0.3	45	1480	WCo ₃ , W ₆ Co ₇
Cr	3430	1890	Hcp, below 82°F Bcc, above 82°F	Complete solid solubility (miscibility gap)		—	—
Nb	4380	2415	Bcc	Complete solid solubility		—	—
Ni	2651	1455	Fcc	0.3	45	1500	WNi ₄
Ti	3300	1820	Hcp, below 1616°F Bcc, above 1616°F	8	50	1880	—
Zr	3200	1750	Hcp, below 862°F Bcc, above 862°F	3	8	1660	W ₂ Zr

Tableau I.5 : Données sur l'état d'équilibre thermodynamique de divers éléments avec le tungstène
[Petrasek-Weeton 64]

- Diffusion de l'élément dans les fibres de tungstène avec recristallisation en périphérie des fibres (avec Co, Al ou Ni (mais à condition d'avoir un pourcentage de Ni suffisant (> 5%)).
- Formation d'un composé intermétallique (avec Ti ou Zr).
- Formation d'une solution solide sans recristallisation (avec Cr ou Nb).

Ces réactions interfaciales sont néfastes aux propriétés mécaniques du composite car elles fragilisent, à des degrés divers, le composite : diminution de la ductilité, chute de la résistance maximale (en traction)).

Parmi ces trois réactions, la diffusion-recristallisation est la plus néfaste. Ce type de réaction concerne exclusivement les métaux CFC (rayon atomique plus petit que les CC donc diffusion plus rapide) qui possèdent en plus une faible solubilité et une grande vitesse de diffusion dans le substrat (*Tableau I.5*).

Parmi les trois métaux concernés, le nickel est le plus dommageable car il induit une recristallisation à gros grains.

Pour l'élaboration de notre composite W/Ni, une attention toute particulière sera donnée au choix de la température d'élaboration nécessitant de faire un compromis entre une température suffisamment basse pour éviter l'apparition de telles réactions interfaciales et suffisamment élevée pour avoir une bonne déformation des dépôts de nickel et une bonne consolidation des interfaces.

I.2.2 - b - Propriétés du nickel

Les propriétés physiques et mécaniques du nickel et du nickel sous forme de dépôt (à microstructure colonnaire) figurent dans le *tableau de l'annexe A*.

Une très bonne aptitude à la déformation du nickel associée à des propriétés mécaniques bien inférieures à celle du tungstène permettent de s'assurer qu'une grande partie des déformations dues au martelage sera encaissée préférentiellement par le nickel, ce qui limitera la sollicitation des fils de tungstène plus fragiles à cette température (mise en forme à "tiède" pour le tungstène).

- Recristallisation statique du nickel -

La température de recristallisation du nickel est très basse (600°C). Ainsi lors du préchauffage des containers avant martelage, on peut prévoir une recristallisation des dépôts de nickel et donc transformation de la structure colonnaire en structure équiaxe avec élimination des contraintes internes liées au processus de nickelage.

Le nickel est sujet à un grossissement rapide des grains à température élevée. La *figure I.1* permet de prévoir, pour un temps de recuit de 30 min, la taille des grains de nickel suite au préchauffage avant martelage. Ainsi, pour une température de 700°C, la taille des grains

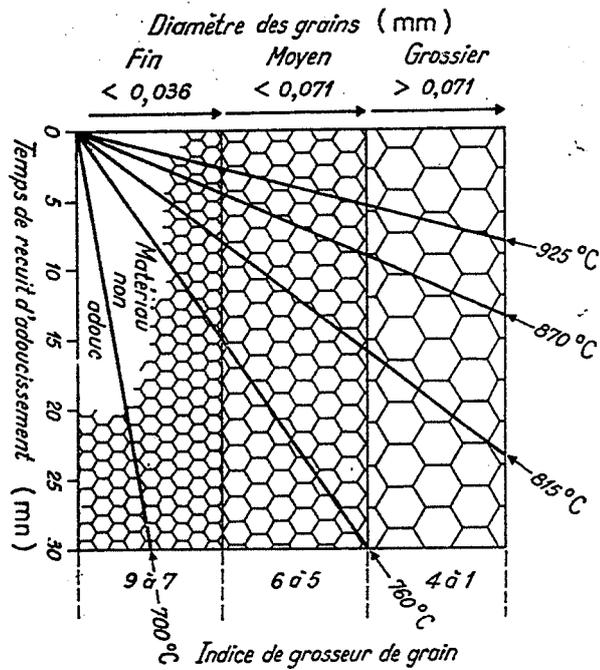


Figure I.1 : Influence des conditions de recuit sur la grosseur des grains du nickel normal (nickel 200)
(d'après Huntington Alloys extrait des techniques de l'ingénieur)

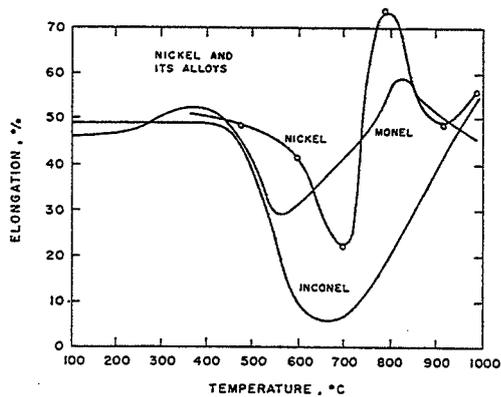


Figure I.2 : Ductilité à chaud du nickel et de ses alliages
[Rhines-Wray 61]

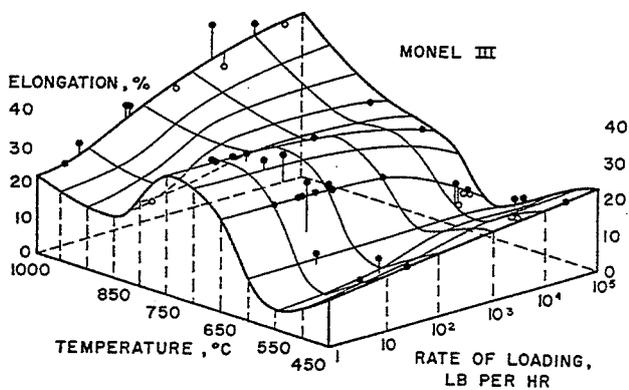


Figure I.3 : Influence de la vitesse de déformation sur la ductilité du Monel en fonction de la température [Rhines-Wray 61]

devrait être inférieure à 36 μm tandis qu'à 800°C, elle serait proche de 71 μm et bien supérieure à cette valeur pour un recuit à 900°C.

- Ductilité à chaud du nickel -

Par des essais de traction à chaud, RHINES ET WRAY [1961] ont évalué la ductilité du nickel en fonction de la température (*Figure I.2*). Ils ont ainsi pu mettre en évidence l'existence d'un creux de ductilité à des températures intermédiaires. Le creux de ductilité intervient typiquement juste en dessous de la température de recristallisation. Ce creux est attribué à l'apparition d'un phénomène de glissement intergranulaire (vers 0,4-0,5 T_f soit vers 700°C pour le nickel) induisant une cavitation intergranulaire tandis que la remontée de la ductilité est attribuée à la recristallisation dynamique (vers 0,6-0,7 T_f soit dès 762°C pour le nickel).

La ductilité du nickel étant maximale à 800°C, il semble donc préférable d'utiliser cette température pour la mise en forme du composite.

Remarque : Toutefois, ces données concernent de faibles vitesses de déformation ($\dot{\epsilon} < 10^{-2} \text{ s}^{-1}$). Or l'essai de martelage fait intervenir une vitesse de déformation supérieure de type intermédiaire ($10^{-2} < \dot{\epsilon} < 10^2 \text{ s}^{-1}$).

D'après RHINES ET WRAY [1961] sur un alliage Ni-Cu (Monel) (Figure I.3), l'augmentation de la vitesse de chargement (entre 10^{-4} et 1 kg/s) n'entraîne qu'un léger décalage du creux de ductilité vers les hautes températures. Elle provoque, en plus, la disparition progressive du second creux de ductilité situé vers 850°C. L'augmentation de la vitesse de déformation à des températures élevées, loin de constituer un facteur aggravant pour la ductilité du matériau, améliore au contraire cette ductilité du fait que le glissement intergranulaire n'a pas le temps de se produire.

- Déformation et recristallisation dynamique du nickel -

La mise en forme d'un métal se fait à "chaud" si la température est supérieure à 0,5 T_f . Cette valeur minimale équivaut à 860°C pour le nickel et l'acier inoxydable et à 1840°C pour le tungstène.

- En dessous de 860°C, le martelage rotatif du composite sera considéré comme un procédé de mise en forme à froid.
- Pour des températures comprises entre 860 et 1840°C, il sera considéré comme un procédé de mise en forme à chaud pour le nickel et l'acier inox et de mise en forme à "mi-chaud" (ou "tiède", $0,3 < T/T_f < 0,5$) pour le tungstène.

Or, la déformation à chaud induit l'activation des mécanismes thermiques que sont la restauration et la recristallisation dynamique. Le nickel ayant une faible énergie de fautes d'empilement (125 mJ/m²), la restauration dynamique est peu active. La recristallisation dynamique est par conséquent le phénomène prépondérant [LUTON-SELLARS 1969].

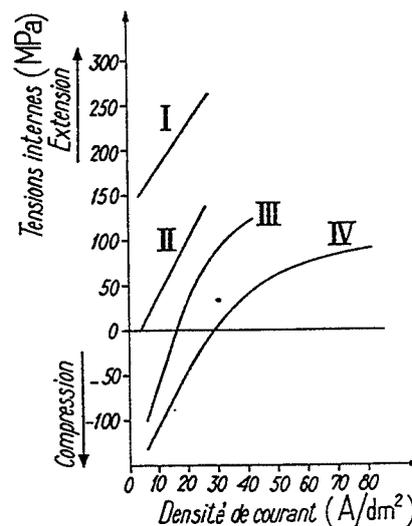
Type d'électrolyte de nickelage	Tensions internes (2) N/mm ²	Résistance à la traction N/mm ²	Limite d'élasticité N/mm ²	Ductilité %	Dureté HV	Masse volumique g/cm ³	Résistivité μΩ.cm	Structure
Acéto-chlorure	230 à 350	1030		4	335 à 350	8,90	9,18	Fibreuse
Brillant sulfate	- 35 à + 400	1500		5	330 à 540	8,86	10	Lamellaire
Brillant allié Co (3)	105 à 120	1450		4	400 à 500	8,90	11,5	Non orientée Cristallisation très fine
Chlorure	280 à 400	760	650	8 à 20	240 à 300	8,90	8,24	Fibreuse
Fluoborate	80 à 110	530	370	16 à 30	180	8,91	8,34	Colonnaire ou fibreuse
Sulfamate	- 50 à + 20	630	410	20 à 30	250 à 350	8,93	8,6	Non orientée Cristallisation très fine
Sulfamate + chlorure	20 à 50	760	520	15 à 20	190			
Watts	120 à 200	400	220	27 à 30	160 à 200	8,90	7,76	Colonnaire
Watts + ≈ 0,5 M NH ₄ ⁺ (pH 5,7)	310	1050		5 à 8	350 à 450	8,90	7,89	Fibreuse

1 N/mm² = 1 MPa.
(1) D'après [1. b. 16].
(2) Un signe - indique l'existence de contraintes de compression.
(3) Température 40 °C au lieu de 50 à 60 °C.

Tableau I.6 : Comparaison des propriétés et structures des dépôts de nickel en fonction de l'utilisation de différents électrolytes [Techniques de l'ingénieur]

Bain watt : Electrolyte au sulfate de nickel		Electrolyte au sulfamate de nickel	
Constituants	Teneur moy. g/l	Constituants	Teneur moy. g/l
Sulfate de Ni NiSO ₄ , 6 H ₂ O	260	Sulfamate de Ni Ni(NH ₂ SO ₃) ₂ , 4 H ₂ O	300
Chlorure de Ni NiCl ₂ , 6 H ₂ O	40	Chlorure de Ni NiCl ₂ , 6 H ₂ O	15
ou équivalent NaCl	25	Acide borique H ₃ BO ₃	38
Acide borique H ₃ BO ₃	40		
PH	4	PH	3,8

Tableau I.7 : Composition des bains électrolytiques.



- I bain de Watts (pH 4, 60 °C)
- II bain au sulfamate classique (pH 4, 60 °C)
- III bain au sulfamate Nickel-speed (pH 4, 60 °C)
- IV bain au sulfamate Nickel-speed (pH 4, 70 °C)

Figure I.4 : Tensions internes des dépôts suivant la nature du bain électrolytique et la densité de courant. [Techniques de l'ingénieur]

I.2.2 - c - Caractéristiques du nickel sous forme de dépôt électrolytique

Le nickel qui forme au contact de l'oxygène un film protecteur NiO est souvent utilisé comme revêtement pour protéger un certain nombre de métaux de la corrosion. Les principales causes de la fragilisation du nickel sont l'absorption d'hydrogène et la présence de soufre (formation d'un eutectique fragile).

Le nickelage des fils de tungstène est effectué par voie électrolytique. Le dépôt de nickel peut s'obtenir à partir de diverses solutions de sels simples (électrolytes) : sulfate de nickel, chlorure de nickel, sulfamate de nickel, fluoborate de nickel.

Les caractéristiques microstructurales et mécaniques du dépôt sont fonction de la nature des électrolytes (*Tableau I.6*) mais aussi des conditions opératoires (pH, T, Densité de courant). Suivant l'électrolyte choisi et la structure du substrat, on obtient une microstructure soit colonnaire, soit lamellaire, soit fibreuse ou encore à grains fins non orientés.

Industriellement, l'électrolyte au sulfate de nickel appelé bain Watts (composition *Tableau I.7*) est le plus couramment utilisé. Il donne un dépôt mat, tendre et ductile avec une microstructure type colonnaire (*Tableau I.6*).

Signalons que pour l'élaboration du composite, nous avons utilisé soit des fils fournis par la société Plansee qui réalise les dépôts de nickel avec le bain Watt, soit des fils provenant de la société Cime-Bocuze qui utilise l'électrolyte au sulfamate de nickel.

L'électrolyte au sulfamate de nickel (composition: *Tableau I.7*) est jugé meilleur pour l'électroformage. Le procédé Ni-speed d'Inco, notamment, permet de faire varier les contraintes internes d'extensives (état obtenu avec le bain watt) à compressives (*Figure I.4*).

Ce type de bain présente par conséquent certains avantages comparativement au bain Watt.

Il assure [Techniques de l'ingénieur (YVES BADÉ)] :

- * Un dépôt **moins tendu** car les tensions internes sont moindres d'où une meilleure résistance à la fatigue.
- * Une **meilleure résistance** du dépôt.
- * L'obtention d'un dépôt épais ($>70 \mu\text{m}$) car il permet une vitesse de nickelage rapide.

Les caractéristiques du dépôt ainsi formé figurent dans le *tableau I.6*. Sa microstructure est alors à grains fins non orientés au lieu d'être colonnaire.

Ce dépôt bien qu'ayant une plus grande résistance à la déformation (dureté plus grande, limite élastique plus élevée) que celui réalisé avec le bain Watt a une ductilité tout aussi grande. Par conséquent, pour la mise en forme de notre composite par martelage, on peut s'attendre à obtenir une qualité d'interface Ni-Ni aussi bonne avec les deux types de dépôt. Pour les caractéristiques mécaniques du composite, on devrait avoir une meilleure résistance de la matrice avec le dépôt au sulfamate.

Remarque : Toutefois, puisque le composite est soumis avant martelage à un recuit de recristallisation ($T > 650^{\circ}\text{C}$), les contraintes internes produites par le bain Watt sont de toute manière annihilées et donc ne peuvent pas entraîner une baisse des caractéristiques mécaniques (voir § 1.2.2 -c-).

L'inconvénient de ces bains est qu'ils sont tous deux à base de soufre, impureté fragilisante pour le nickel au cours d'une mise en forme à chaud.

Ce mode opératoire (dépôt par voie électrolytique) engendre parfois une certaine porosité dans le dépôt. Cette porosité dépend de la pureté physique de l'électrolyte et surtout de l'épaisseur du dépôt (plus le dépôt est épais ($> 70 \mu\text{m}$), plus la porosité est importante) et de l'état de surface du métal support.

- En résumé -

Le choix du nickel comme matrice du composite présente des avantages pour la mise en forme et les propriétés du composite pour les raisons suivantes :

* Critères favorables à la mise en forme du composite :

- Métal facilement déposable par voie électrolytique, technique industriellement éprouvée.
- Très bonne adhérence du dépôt électrolytique sur les fils de tungstène.
- Température de fusion bien inférieure à celle du tungstène.
- Grande aptitude à la déformation plastique.
- En outre, le nickel est connu dans le domaine de la métallurgie des poudres comme un élément favorable au frittage du tungstène dans le sens où il accélère le processus de densification [KAYSSER-PUCKERT-PETZOW 1980].

* Critères favorables aux propriétés du composite :

- Des propriétés mécaniques qui allient une résistance moyenne (400 MPa) et une grande ductilité (27 à 30 %) qui permettent un bon transfert de charge entre matrice et fibre.
- Une densité de 8,9 pas trop faible qui permet d'atteindre pour le matériau composite une densité élevée (17-18)
- Une résilience élevée de 31 daJ et ce quelque soit son état (écroui ou recristallisé). Cette aptitude de la matrice à limiter la propagation des fissures est un élément important pour la résistance du composite à l'endommagement.

Toutefois, lors de l'élaboration du composite, il faudra tenir compte du fait que les températures trop élevées peuvent engendrer une réaction interfaciale (diffusion-recristallisation) qui conduit à une fragilisation des interfaces W/Ni.

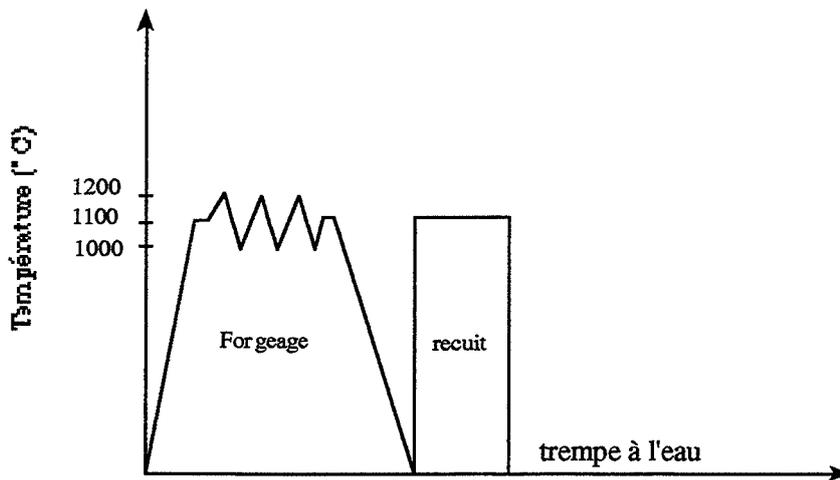


Figure I.5 : Cycles de transformation subis par l'acier Z12 CNS 25-20 avant l'usinage en container.

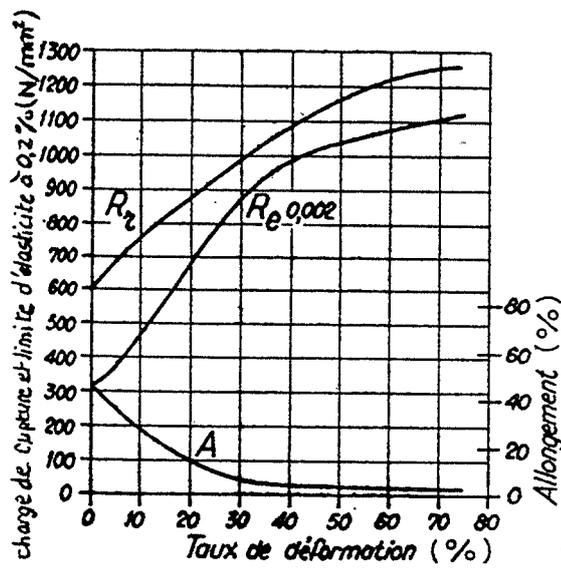


Figure I.6 : Influence de l'écroissage sur les caractéristiques mécaniques (à l'ambiante) de l'acier inoxydable type Cr-Ni 25-20.

	Module d'élasticité E (GPa)	Limite d'élasticité Re _{0,2%} (MPa)	Résistance Rm (MPa)	Allongement A (%)
Z12 CNS 25-20	132	80	160	43

Tableau I.8 : Caractéristiques mécaniques de l'acier inoxydable Z12 CNS 25-20 à 900°C.

I.2.3 - L'acier inoxydable

Pour la réalisation de la gaine (ou container), nous avons choisi d'utiliser l'acier inoxydable Z12 CNS 25-20 à teneurs élevées en chrome et en nickel (analyse chimique ci-dessous).

Nuance	C % max	Mn %	Si %	P max %	S max %	Cr %	Ni %
Z12 CNS 25-20	≤ 0,2	≤ 0,2	1,5 - 2,5	0,04	≤ 0,03	24 à 26	19 à 22

Cet acier austénitique (structure cubique faces centrées) est stable à toute température car fortement allié en chrome et nickel. Il présente donc l'avantage d'allier une bonne résistance à chaud, une grande ductilité et une bonne résistance à la corrosion (formation d'un film passif Cr_2O_3 très résistant).

Les fortes teneurs en nickel et en Chrome permettent donc une utilisation à des températures supérieures à 750-850°C et une très bonne tenue au fluage au dessus de 1000°C. Du fait de sa stabilité à toute température (la trempe n'entraînant pas de formation de martensite), il supporte très bien l'emboutissage : faible coefficient d'érouissage n (compris entre 0,3 et 0,45) donc faible durcissement lors d'une déformation à froid.

Le forgeage à chaud requiert toutefois certaines précautions :

- Cet acier ayant une faible conductivité thermique ($0,23 \text{ W.m}^{-1}.\text{°C}^{-1}$, *Figure I.9*), Il nécessite des vitesses de chauffage lentes et un palier de maintien prolongé pour une bonne homogénéisation de la température et des contraintes internes.
- Il est nécessaire d'éviter tout grossissement du grain à chaud car le grossissement de la microstructure induit une chute des propriétés mécaniques. Toutefois, pour obtenir un grossissement notable des grains, il faudrait dépasser les limites de quelques heures à $T > 1050\text{°C}-1100\text{°C}$.
- Possibilité de fragilisation par précipitations :
 S'agissant d'un acier à haut carbone (0,12 %), il se produit une précipitation intergranulaire de carbures (M_{23}C_6) sous forme de feuilles vers 500-650°C.
 En raison de la forte teneur en chrome, il se produit une précipitation intergranulaire de la phase σ (phase dure et fragile à l'ambiante) pour $T \geq 650\text{°C}$. La présence de ces précipités abaisse considérablement la résilience de l'acier (grande fragilité vis à vis d'une sollicitation par choc). Toutefois, dans les aciers austénitiques, la cinétique de précipitation est très lente : plusieurs heures de recuit sont nécessaires pour que la précipitation devienne dangereuse.

Les caractéristiques physiques, mécaniques (à l'ambiante, en traction, sous deux états différents : recristallisé et hypertempé) et thermique de cet acier figurent dans le *tableau* de l'annexe A. Nous nous intéresserons plus particulièrement aux propriétés de l'acier à l'état

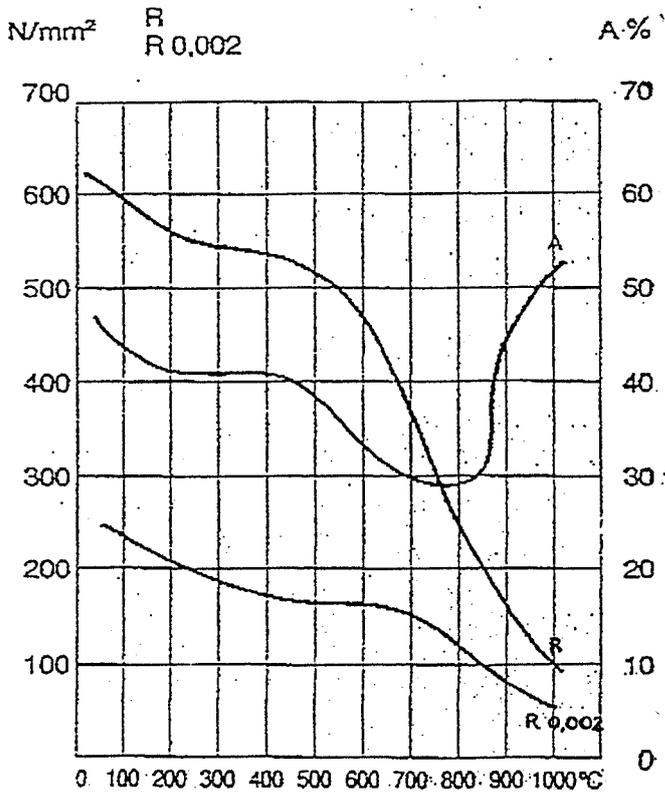


Figure I.7 :
Caractéristiques mécaniques à chaud de l'acier Z12 CNS 25-20 à l'état d'origine hypertrempé (données de la fiche technique).

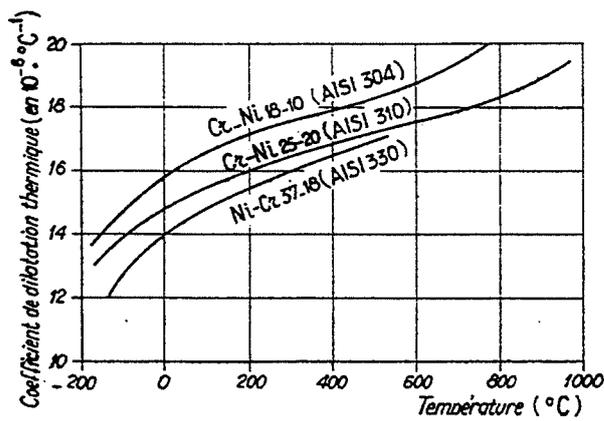


Figure I.8 :
Coefficient moyen de dilatation thermique des aciers austénitiques au chrome-nickel, entre 21°C et les températures indiquées.

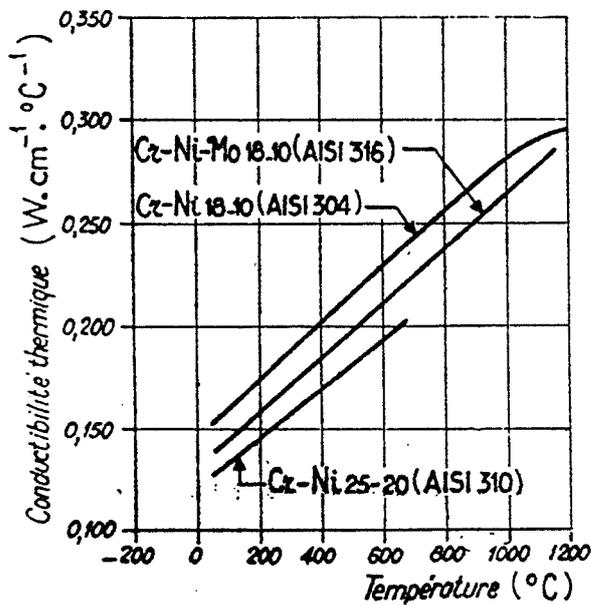


Figure I.9 :
Conductivité thermique des aciers inoxydables austénitiques au chrome-nickel.

hypertrempé puisque les containers sont usinés dans des barreaux livrés dans cet état. Le cycle thermique subi par l'acier avant la trempe est représenté sur la *figure I.5*.

A l'ambiante, les propriétés mécaniques ($E = 193 \text{ GPa}$, $R_e = 230 \text{ MPa}$, $R_m = 550\text{-}800 \text{ MPa}$) de cet acier sont considérées comme faibles à moyennes mais sa ductilité est très grande ($A\% = 40\text{-}50$).

A chaud, cet acier a la particularité d'avoir une très bonne résistance (comparativement aux autres aciers), sa ductilité présentant un creux ($A\% \approx 30$) vers 800°C . Les caractéristiques mécaniques à chaud de l'acier hypertrempé (en traction à chaud) sont représentées sur la *figure I.7* (fiche technique du fournisseur) : les propriétés mécaniques à 900°C étant résumées dans le *tableau I.8*.

Un écrouissage à l'ambiante de cet acier a un effet bénéfique sur les propriétés mécaniques de cet acier puisqu'il augmente la limite d'élasticité et la contrainte à rupture. Il diminue, par contre, $A\%$ (*Figure I.6*).

Cet acier présente aussi l'avantage d'avoir une très bonne soudabilité et un coefficient de dilatation thermique très élevé : $19 \cdot 10^{-6}/^\circ\text{C}$ à 900°C (*Figure I.8*).

Par contre, il présente l'inconvénient d'être difficilement usinable car facilement écrouissable (la surface devient très dure), mauvais conducteur (échauffement de l'outil de coupe), fortement ductile (mauvaise évacuation des copeaux).

I.3 - LA MISE EN FORME DU COMPOSITE PAR MARTELAGE ROTATIF

L'objectif de ce paragraphe est de décrire le principe de fonctionnement des machines à marteler et les déformations que subit la matière par martelage rotatif.

Le martelage rotatif est un procédé généralement utilisé pour réduire le diamètre d'une barre ou pour changer sa forme (ronde, carré, rectangulaire, triangulaire...) mais aussi celle de tubes, par la répétition de coups assenés par une ou plusieurs paires de marteaux.

Il existe plusieurs modèles de machine à marteler. Elles fonctionnent avec 2, 3 ou 4 marteaux et se différencient en trois groupes :

- Marteleuses rotatives standards (standard rotary swagers) dont fait partie la machine à 2 marteaux, disponible au laboratoire de l'Ecole des Mines de Saint-Etienne.
- Marteleuses à axe stationnaire (stationnary-spindle swagers) dont fait partie la machine à 4 marteaux, disponible à Cime-Bocuze, notre partenaire industriel.
- Marteleuses à fermeture de matrices (die-closing swagers).

I.3.1 - Présentation des deux machines utilisées

I.3.1 - a - Machine à deux marteaux (ENSME)

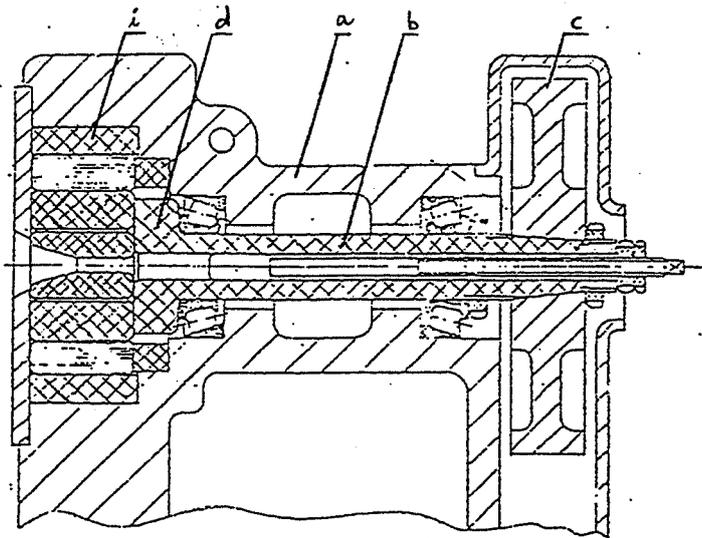
- Principe de fonctionnement -

La machine à deux marteaux représentée sur le *Schéma I.3 a* est composée d'un corps (a) à l'intérieur duquel est monté un arbre rotatif (b) qui porte d'un côté une poulie-volant (c) entraînée par un moteur, et de l'autre une tête (d) dans laquelle sont logées les paires de marteaux et de demi-matrices. Autour de la tête, est montée une cage rotative qui porte une série de galets roulant sur la surface interne d'un anneau fixe (i).

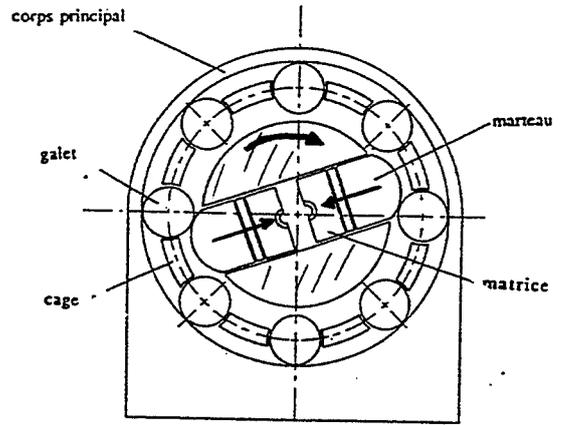
Les marteaux et matrices logés dans la tête sont entraînés en rotation par l'arbre central. Sur le *schéma I.3 a* sont indiquées les directions de mouvement des pièces. Les marteaux et matrices empreints d'un mouvement de rotation coulisent radialement au sein du rotor sous l'effet de la force centrifuge vers la cage extérieure comprenant une série de rouleaux ou galets. Au contact de ces cames, les marteaux renvoient brutalement les demi-matrices sur la pièce prise en étaux et provoquent son rétreint.

Entre chaque coup, les matrices s'écartent et tournent d'un certain angle autour de la pièce maintenue fixe par l'opérateur. La géométrie des faces internes des matrices définit la forme finale de la pièce.

La cage et les galets comme dans un roulement à billes, ne sont pas fixes et tournent lentement lors du fonctionnement en raison de la force tangentielle créée par le frottement



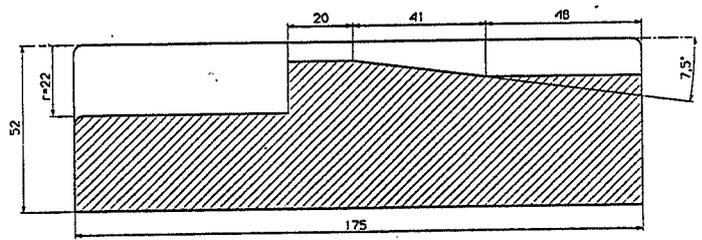
Vue de profil



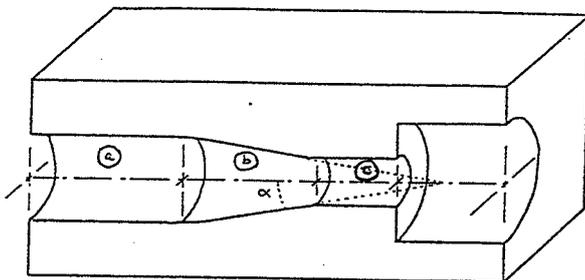
Vue de face

(a) Représentation schématique de la machine (type 339 B)

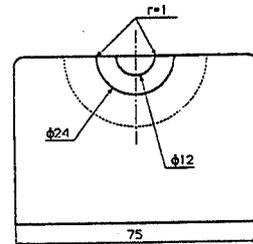
Matrice 18/12



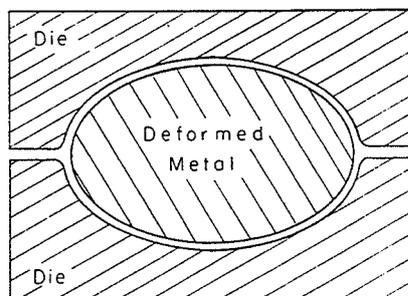
Vue en coupe



Vue de devant



(b) Géométrie de la matrice.



(c) Contour de la pièce après un coup de marteau [Peck-Thomas 61]

Schémas I.3 a, b, c : Caractéristiques de la machine à deux marteaux.

entre galets et marteaux. En conséquence, à chaque tour du rotor, le nombre de coups est légèrement inférieur au nombre de galets.

Des jeux de cales interposées entre les matrices et les marteaux permettent de régler la fermeture des matrices et de réaliser une pièce aux dimensions précises.

Le taux de réduction étant limité aux dimensions du jeu de matrices, l'utilisation de plusieurs jeux de matrices peut s'avérer nécessaire pour un rétreint important : plusieurs passes de martelage sont effectuées avec un changement de jeu de matrices entre chaque passe. Après chaque réduction d'aire de 40 %, un recuit est effectué (entre deux passes) pour relaxer les contraintes internes.

- Géométrie des matrices -

La géométrie interne des demi-matrices est représentée sur *Schéma I.3 b*. Chaque matrice présente trois parties : une partie cylindrique servant de guide pour l'introduction de la pièce (a), une partie conique (b) d'angle au sommet 2α qui représente la partie active de la matrice (α varie de 3,5 à 11° selon le jeu de matrices) et une partie cylindrique calibrante (c) assurant un bon état de surface à la pièce martelée.

Chaque jeu de matrices impose un diamètre final au barreau martelé et limite le diamètre d'entrée du barreau à marteler.

Ceci nous contraint donc à déterminer avec précision les paramètres (taux de martelage souhaité, diamètre initial et final du barreau, dimensions des matrices, épaisseur des cales) avant d'effectuer une opération de martelage.

L'empreinte laissée par les matrices sur le barreau n'est pas axisymétrique : la section initialement circulaire du barreau devient approximativement ovale. Elle reproduit la géométrie interne de la matrice (*Schéma I.3 c*) qui permet un bon dégagement des matrices entre deux coups (éviter que la pièce colle aux matrices).

Cependant, le maintien fixe d'une extrémité du barreau par le manipulateur et la rotation des matrices autour de la pièce assurent, après un certain nombre de coups, une répartition des déformations telle que la pièce martelée ressort sous une forme parfaitement cylindrique.

- Paramètres-machine -

Les différents paramètres machines (nombre de galets, puissance moteur, vitesse de rotation de l'axe et de la cage, angle de rotation des matrices entre deux coups, vitesse d'avance de la pièce) sont donnés dans le *tableau I.9*.

On peut alors en déduire la fréquence des coups définie de la manière suivante [ASM committee on rotary swaging] :

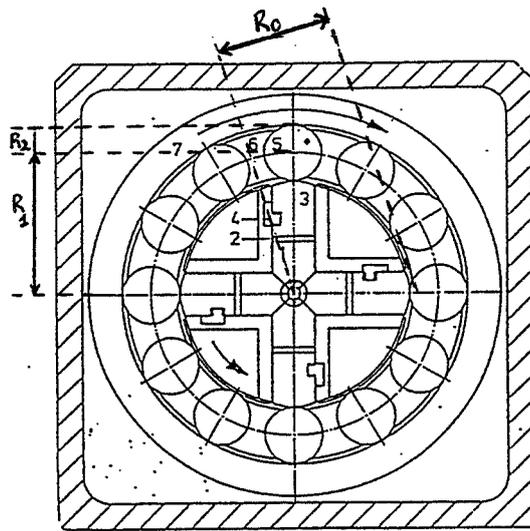
$$f \text{ (coups/min)} = N \times V_a \times 0,6$$

N = nombre de galets.

V_a = vitesse de rotation de l'axe.

0,6 = facteur correcteur de glissement de la cage porte-galets.

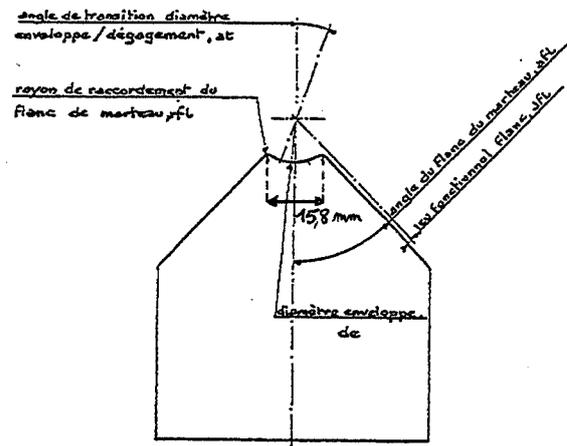
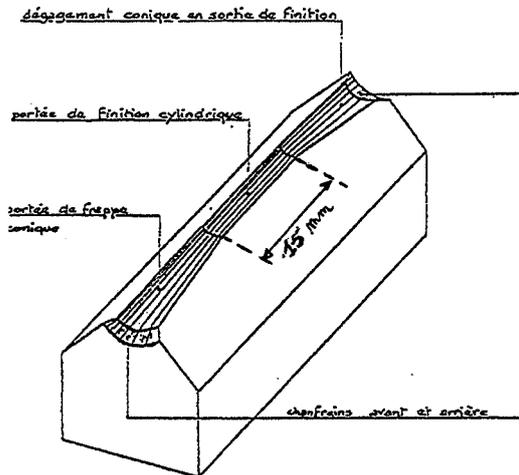
La fréquence des coups sur la machine à 2 marteaux est donc estimée à environ 1320 cps/min.



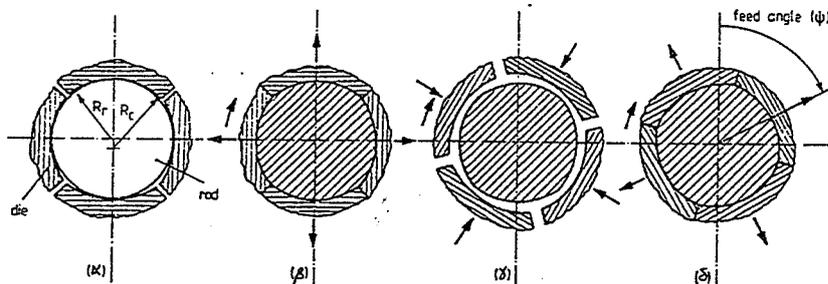
$R_0 = 245 \text{ mm}$
 $R_2 = 55 \text{ mm}$
 R_1 non déterminable avec précision -

- 1 - MARTEAUX EN ACIER OU WC
- 2 - CALES DE REGLAGE EN ACIER TREMPE = 4,6 mm
- 3 - SUPPORTS DE MARTEAU EN ACIER TREMPE
- 4 - LIMITATIONS D'OUVERTURE
- 5 - GALETS EN ACIER TREMPE
- 6 - COURONNE PORTE-GALET
- 7 - ANneau DE MAINTIEN EN ACIER CHROME - MOLYBDENE TREMPE

(a) Représentation schématique de la machine vue de face.



Matrice utilisée pour un rétreint de diamètre de 15 à 12 mm



(b) Géométrie des matrices et du barreau suite au premier coup (β) et au second (δ).

Schémas I.4 a, b, c : Caractéristiques de la machine à quatre marteaux (Muller UR5-4)

L'introduction de la pièce au sein de la marteuse se fait manuellement. Toutefois, nous avons adapté, sur la machine à 2 marteaux, un dispositif permettant une introduction et un maintien parfaitement axial de la pièce au cours du martelage (§ II.1).

L'avance de la pièce s'effectue par incréments lorsque les matrices sont en position écartée. La vitesse d'avance de la pièce au cours du martelage n'est par conséquent pas une donnée mesurable. On estime qu'elle peut varier entre 5 et 25 mm/s.

En se basant sur une vitesse d'avance de 5 mm, la vitesse de déformation due au martelage est estimée à $0,2 \text{ s}^{-1}$ [DIET 1990], soit une vitesse plus faible que celle des procédés de filage ou de laminage. Ceci peut donc représenter un avantage pour la mise en forme de matériaux peu ductiles.

I.3.1 - b - Machine à quatre marteaux (Cime-Bocuze)

- Principe de fonctionnement -

Cette machine fait partie du groupe "standard rotary swagers". Le principe de rotation est différent de la marteuse standard dans le sens où c'est la cage contenant les galets qui est mise en rotation et non l'axe central (*Schéma I.4 a*). Lorsque la cage tourne, les marteaux au contact des galets, projettent les matrices sur la pièce dans un mouvement de pulsation typique du coup de marteaux.

Outre le système de rotation, cette machine présente les particularités suivantes :

- Contrairement à la machine à 2 marteaux, les marteaux et les matrices ne sont pas solidaires. Une clavette limite la course des marteaux à 2 mm.
- Les galets au nombre de douze permettent l'action simultanée de deux paires de matrices sur la pièce (*Schéma I.4 b*).
- L'écartement des matrices est contrôlé soit par l'avance de la pièce martelée soit par un système de ressorts (dispositif mécanique). Des cales sont, comme pour la marteuse standard, placées entre les matrices et les marteaux.
- L'introduction et le maintien de la pièce au cours du martelage sont automatisés et assurés par deux contre-pointes saisissant la pièce en amont et en aval du martelage (*Schéma I.5*). La pression est suffisamment forte pour empêcher toute rotation de la pièce mais assez faible pour éviter que les contre-pointes jouent un rôle sur la déformation finale de l'objet.

- Géométrie des matrices -

Comme précédemment, la forme des matrices est telle qu'elle permet un bon dégagement entre deux coup. Chaque matrice (au nombre de quatre) empreint approximativement un quart de cercle (plus précisément une portion d'ellipse ajustée). La pièce présente donc, après un coup, un contour en forme de carré aux arêtes et aux coins arrondis (*Schéma I.4 b*).

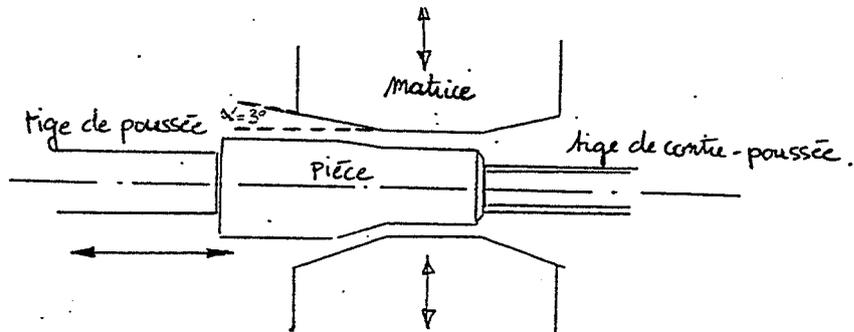


Schéma I.5 : Système automatique de maintien du barreau au cours du martelage.

	Machine à 2 marteaux (ENSME)	Machine à 4 marteaux (Cime-Bocuze)
Nombre de galets	8	12
Puissance moteur (Watts)	7500	/
Vitesse de rotation de l'axe V_a (tours/min)	275	100
Vitesse de rotation de la cage (tours/min)	100	600
Angle de rotation des matrices entre deux coups	60	53,5
Fréquence des coups/min	1320	4320
Vitesse d'avance de la pièce (mm/s)	5 à 25	0,35

Tableau I.9 : Paramètres-machine des deux marteleuses

- Paramètres-machine -

Les différents paramètres-machine sont donnés dans le *tableau I.9*.

D'après les données fournies par Cime-Bocuze, l'axe central est lui aussi mis en rotation au cours du martelage. En estimant que cette rotation n'est qu'une conséquence des frottements entre galets et marteaux et en reprenant la formule citée précédemment avec le même coefficient de frottement, on estime la fréquence des coups sur la machine à 4 marteaux à 4320 cps/min.

La force déployée par chaque marteau est de 50 tonnes.

La vitesse d'avance de la pièce est fonction des caractéristiques mécaniques du matériau. Elle est au maximum de 2,5 mm/s.

I.3.2 - Déformations produites par martelage rotatif sur un matériau homogène (milieu continu).

Le martelage rotatif induit donc la réduction du diamètre et l'allongement de la pièce avec un écoulement de matière complexe qui ne se limite pas à une seule direction : la majorité du métal a tendance à être refoulée vers l'arrière, seule une partie de la matière s'écoule vers l'avant et sur les cotés en épousant la forme des matrices.

Il existe trois manières d'exprimer le taux de réduction :

- Soit par le facteur Z qui, lui même, peut s'exprimer soit en terme de réduction de diamètre soit en terme de réduction d'aire de la section du barreau :

- Réduction du diamètre : $Z(\%) = 100 [1 - D_f/D_i]$

- Réduction d'aire : $Z(\%) = 100 [1 - (D_f^2/D_i^2)]$

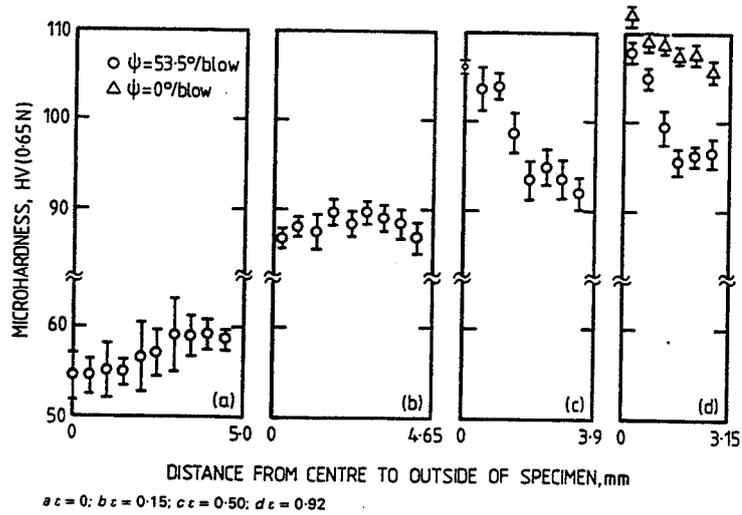
avec D_i et D_f diamètre initial et final du barreau martelé.

- Soit par le facteur φ qui est relié au facteur Z de la manière suivante:

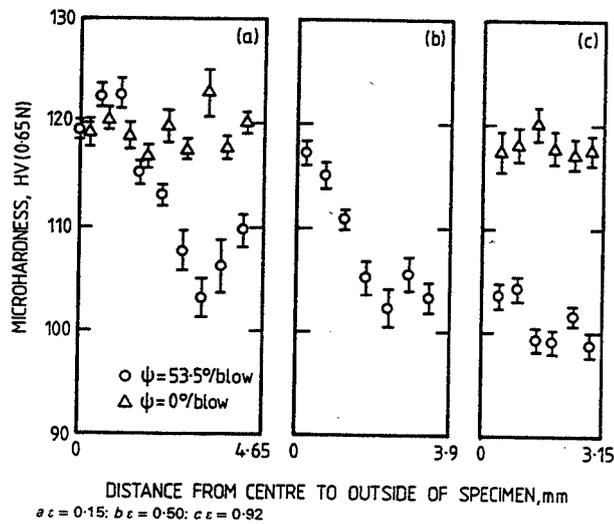
$$Z = 1 - \frac{D_f^2}{D_i^2} = 1 - \exp(-\varphi)$$

$$\text{soit } \varphi = 2 \operatorname{Ln} \left(\frac{D_i}{D_f} \right)$$

Bien que le martelage rotatif ne soit pas un procédé de mise en forme nouveau puisque son invention remonte au siècle dernier (JAMES NASMYTH 1809-1890), il existe peu de publications concernant l'étude du martelage rotatif (notamment le martelage à deux marteaux). Ceci est certainement dû au fait que ce procédé de mise en forme a une utilisation industrielle très limitée.

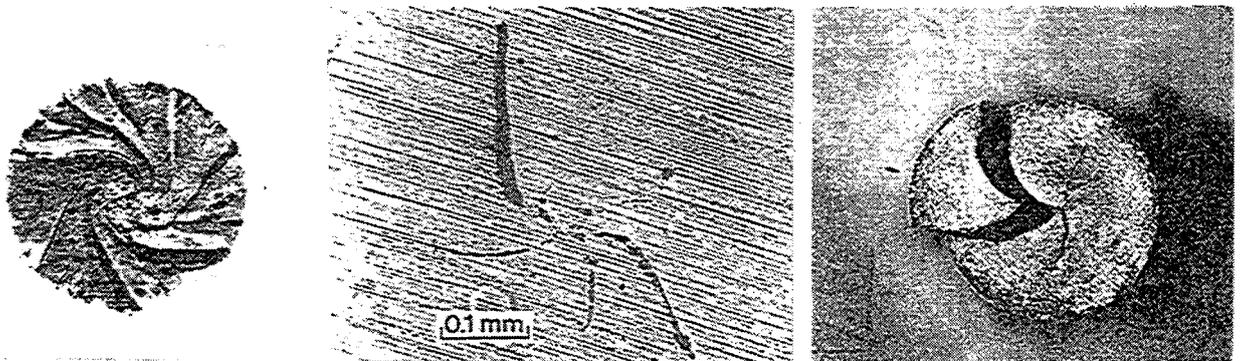


(α) Barreau à l'état initial recristallisé



(β) Barreau à l'état initial écroui

Figures I.10 α et β : Variation de la distribution de la dureté le long du rayon d'un barreau de cuivre martelé en fonction du taux de martelage (ϵ).
 [Schrank-Ortner- Stuwe-Grabianowski 85]



(a) Forme de "S"

(b) Amorce d'une fissure à coeur

(c) Rupture du barreau

Figures I.11 a, b et c: Endommagement provoqué par un fort taux martelage (2 marteaux) sur un barreau de laiton [Ovens-Bartholomew-Biederman 76].

Quelques études ont, toutefois, été menées sur des matériaux homogènes facilement écrouissables tels que le cuivre et l'aluminium afin d'évaluer, sur un plan purement phénoménologique, le mode de déformation caractérisant ce procédé de mise en forme. Pour cela, les auteurs se sont essentiellement basés sur des mesures de dureté.

D'après ces études, le martelage rotatif induit un mode de déformation aux caractéristiques suivantes :

- **Inhomogénéité de dureté** entre le coeur et la périphérie du barreau.

L'état microstructural initial du barreau (écroui ou recristallisé) joue un rôle capital sur l'interprétation de l'effet du martelage : celui-ci provoque un phénomène d'**adoucissement** sur un barreau à l'état **écroui** et un phénomène de **durcissement** sur un barreau à l'état **recristallisé** :

- Sur le barreau **recristallisé**, le martelage provoque un durcissement plus important à coeur qu'en surface (*Figure I.10 α*) [OVENS 1976, GRABIANOWSKI et coll. 1980, SHRANK et coll. 1985].
- Sur le barreau **écroui**, le martelage conduit à un adoucissement plus important de la périphérie que du coeur (*Figure I.10 β*) [SHRANK et coll. 1985].
- **Ecoulement de la matière en spirale** (sur la section du barreau) (*Figure I.11 a*) qui peut engendrer une **fissuration à coeur** si le taux de martelage est trop important (*Figure I.11 b*).
- **Torsion longitudinale en hélice** du barreau.

- Comparaison avec d'autres procédés : laminage et tréfilage -

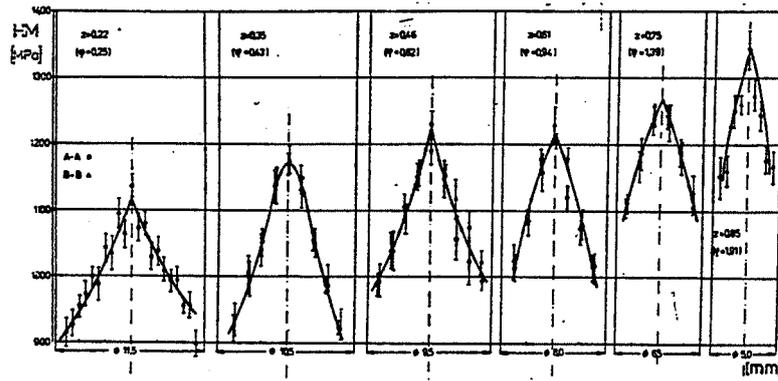
Tout comme le martelage rotatif, ces deux procédés conduisent à une distribution hétérogène de la dureté (ou des déformations) le long du diamètre.

- Le laminage, comme le martelage, provoque un écrouissage plus important du coeur que des zones périphériques (*Figure I.12 b*) [ORTNER et coll. 1983].
- Inversement, le tréfilage induit un durcissement plus important en périphérie qu'à coeur (*Figure I.12 b*) [GRABIANOWSKI et coll. 1980].

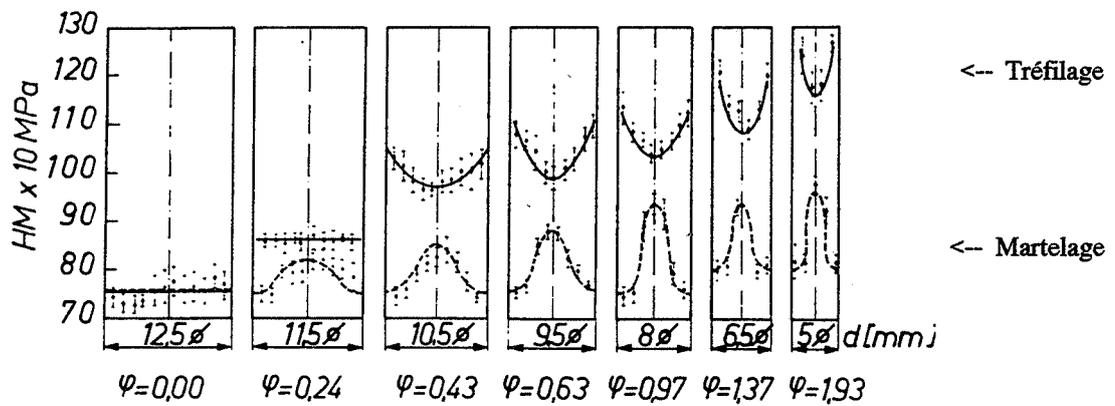
- Analyse du mode de déformation par martelage rotatif -

Le martelage induit donc un écrouissage plus intense du coeur que des zones périphériques du barreau martelé. Ceci a pu être mis facilement en évidence par un recuit effectué à 370°C sur un barreau de cuivre martelé : seule la partie centrale du barreau a subi une recristallisation associée à une chute importante de dureté (*Figures I.13 a et b*).

Cette différence d'écrouissage est attribuée à la géométrie des matrices (non de révolution) qui donne lieu à un couple de torsion (*Figures I.14 a et b*). Ce couple de torsion

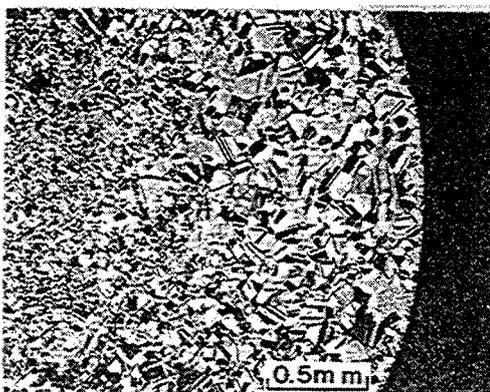


(a) Laminage [Ortner- Grabianowski- Danda 83]

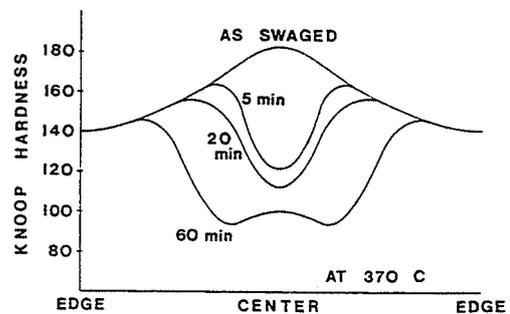


(b) Tréfilage et martelage [Grabianowski -Danda-Ortner- Stuwe 80]

Figures I.12 a et b : Dureté le long du diamètre d'un barreau de cuivre martelé en fonction du taux de martelage (ϵ) pour trois procédés de mise en forme.



(a) Recristallisation du coeur du barreau



(b) Chute de la dureté après recuit

Figures I.13 a et b : Effet d'un recuit à 370°C sur la microstructure et la dureté d'un barreau de laiton martelé [Ovens-Bartholomew-Biederman 76].

(associé à la rotation des matrices) induit un flux tangential de matière conduisant à une déformation de la matière en spirale.

OVENS et coll. [76] attribue cette inhomogénéité d'écrouissage (cas du martelage à 2 marteaux) à la superposition de bandes de cisaillement en forme de "S" (*Figure I.11 a*) créées approximativement tous les 60° , angle de rotation des matrices entre deux coups. Le chevauchement de ces bandes d'épaisseur mal définie conduit, d'après lui, à augmenter l'écrouissage du coeur du barreau.

SHRANK et coll. [1985] qui ont étudié plus particulièrement le martelage à quatre marteaux attribuent cet écrouissage à des déformations cycliques : elles sont nulles à coeur et leur intensité augmente lorsqu'on se rapproche de la surface. Ceci est confirmé par l'observation au microscope électronique en transmission (MET) de l'existence d'une inhomogénéité de structure des dislocations entre le coeur et la périphérie d'un barreau de cuivre martelé [SCHRANK-STUWE 1986]. En surface, les structures de dislocations sont caractéristiques de déformations cycliques tandis qu'à coeur, elles sont semblables à celles d'une déformation monotone, ce qui expliquerait la présence de la zone neutre.

Ils notent aussi l'importance de l'angle ψ de rotation des matrices (entre deux coups de marteaux) sur ces déformations tangentielles.

Dans l'hypothèse où la section du barreau reste plan pendant le martelage, le tenseur des déformations associé à ces composantes de flux plastique tangential s'écrit :

$$\varepsilon = \begin{pmatrix} \varepsilon_{rr} & \varepsilon_{r\phi} & 0 \\ \varepsilon_{\phi r} & \varepsilon_{\phi\phi} & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon_{zz} \end{pmatrix}$$

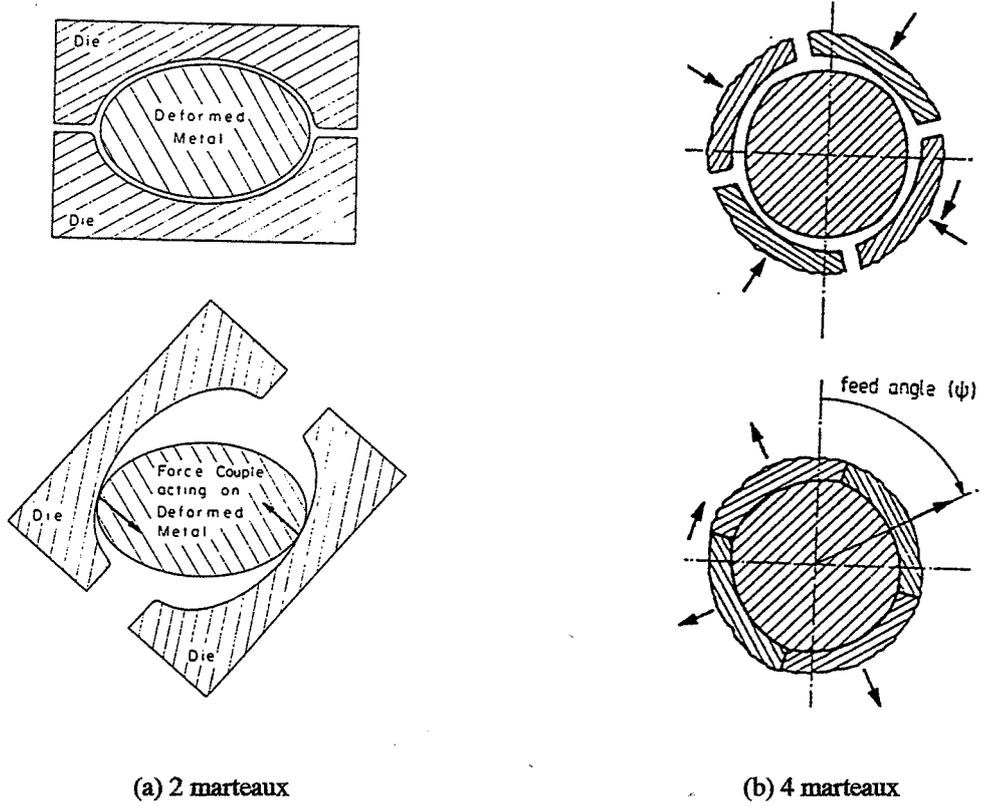
Les composantes ε_{rr} , $\varepsilon_{\phi r}$, $\varepsilon_{r\phi}$ et $\varepsilon_{\phi\phi}$ changent de manière complexe à chaque coup de marteau. Elles dépendent de l'angle ψ et de la constante $S = \frac{R_r}{R_c} \approx 0,98$

R_r = rayon du barreau martelé

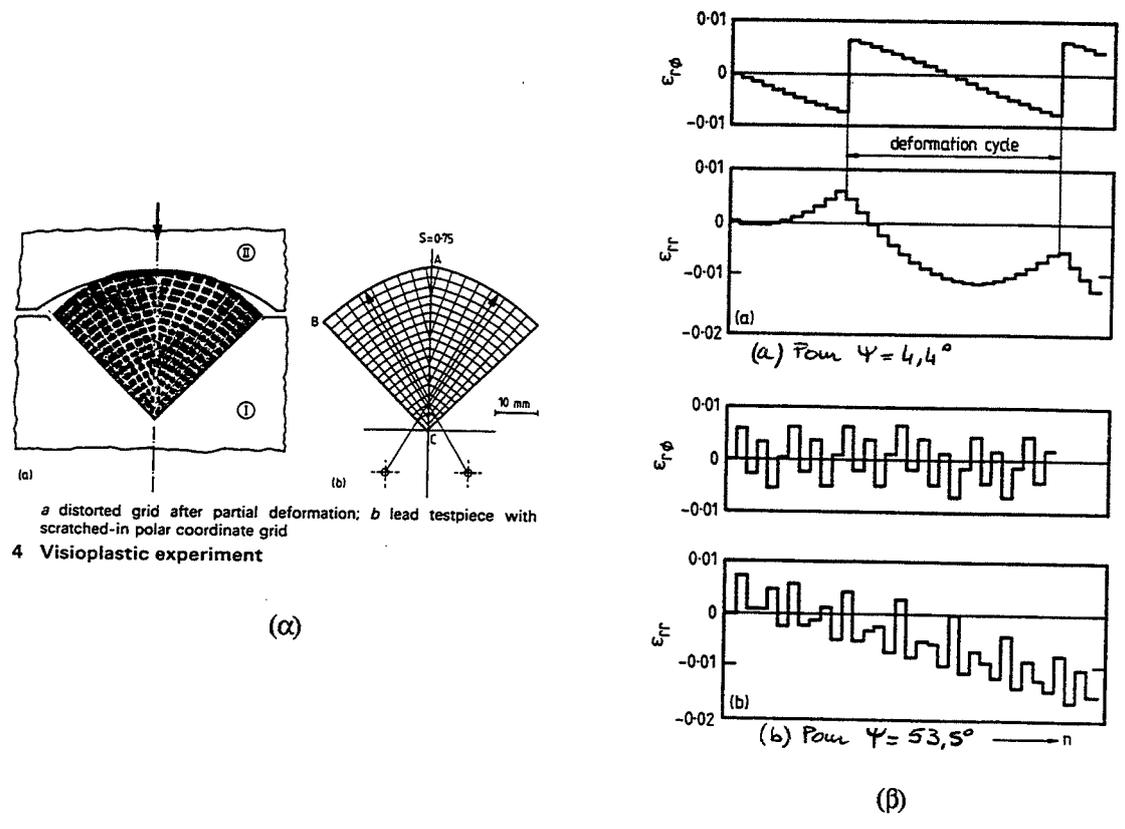
R_c = rayon de chaque portion de matrice (*Schéma I.4 b*).

De manière à évaluer l'évolution de ces composantes au cours du martelage, des essais de compression ont été réalisés sur un disque d'épaisseur 5 mm quadrillé sous forme de deux octants (*Figure I.15 a*). Les résultats ont été transférés au martelage rotatif à 4 marteaux. Les *figures I.15 b (a ou b)* donnent l'évolution de deux de ces composantes : ε_{rr} et $\varepsilon_{r\phi}$ établies sur un volume proche de la surface. Deux valeurs d'angle ψ ont été choisies pour la simulation : $\psi = 4,4^\circ$ et $\psi = 53,5^\circ$, ce dernier correspondant à celui utilisé par la marteuse de notre partenaire industriel (Cime -Bocuze).

* Lorsque $\psi = 4,4^\circ$, on a des cycles de déformation de 20 coups $\left(\frac{\pi}{2\psi}\right)$ (*Figures I.15 b a*).



Figures I.14 a et b : Déformation non axisymétrique du barreau due à la géométrie des matrices.



Figures I.15 α et β : Simulation de la déformation due au martelage à 4 marteaux. [Schrank-Ortner-Stuwe-Grabianowski 85]

* Lorsque $\psi = 53,5^\circ$, l'évolution est plus complexe car $\frac{\pi}{2\psi} = 1,68$ (Figures I.15 β b).

La diagonalisation du tenseur des déformations permet une simplification (changement d'axes principaux) :

$$\varepsilon = \begin{pmatrix} \varepsilon_x & 0 & 0 \\ 0 & \varepsilon_y & 0 \\ 0 & 0 & \varepsilon_z \end{pmatrix} \quad \text{avec } \varepsilon_x + \varepsilon_y + \varepsilon_z = 0$$

ε_x varie de 0,07 à 0,012
 ε_y varie de - 0,07 à - 0,012
 $\varepsilon_z = 0,001$

L'angle ψ détermine donc le nombre de cycles de déformation subis par le barreau au cours de son rétreint. Ψ n'a pas une grande influence sur l'amplitude de déformation au cours d'un cycle qui est surtout fonction de la valeur de S.

- Influence du taux de martelage -

La différence de dureté qui existe entre le coeur et la périphérie d'un barreau martelé augmente avec le taux de martelage (Figure I.12 b et figures I.16 a et b).

Mais le martelage nécessite de prendre certaines précautions : un taux de martelage trop élevé risque, en effet, d'endommager le matériau par fissuration (Figure I.11 c). La fissure s'amorce au coeur du barreau et se propage sous forme de "S" (Figure I.11 b). Elle résulterait, d'après [OVENS et coll. 1976], de la superposition des bandes de cisaillement (Figure I.11 a) dont le chevauchement conduirait à augmenter l'écroutissage du coeur du barreau et, par conséquent, à l'amorçage préférentiel de la fissure dans cette zone.

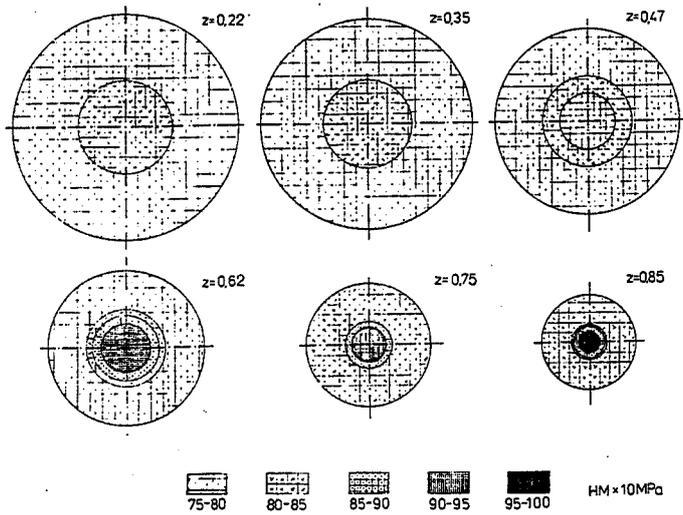
Avec le martelage à deux marteaux, il a été observé que le barreau avait tendance à vriller [OVENS et coll. 1986]. Cette torsion longitudinale du barreau pourrait résulter d'une vitesse d'avance excessive de la pièce lors du martelage [ASM committee on rotary swaging].

- Influence des propriétés du métal martelé -

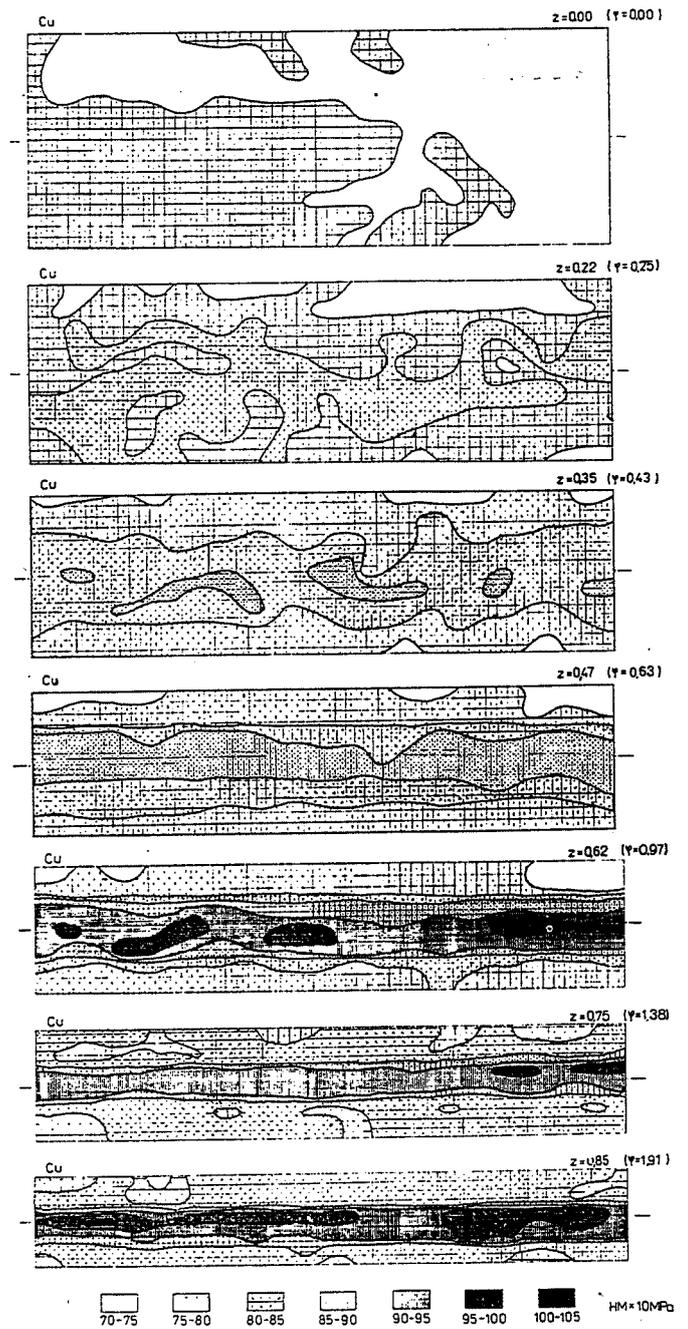
L'analyse des déformations par martelage est toutefois intrinsèquement liée à la nature du métal sollicité et notamment à ses caractéristiques mécaniques.

Ainsi, entre un barreau d'aluminium et de cuivre, on peut noter quelques différences bien que la dureté soit, pour ces deux métaux, toujours maximale à coeur.

L'évolution de la dureté à coeur et en périphérie du barreau d'aluminium (en fonction du taux de martelage) est représentée sur la figure I.17. En périphérie, contrairement au cuivre, il y a stabilisation de la dureté entre 30 et 140 % : cette stabilisation résulte d'une modification auto-entretenu de la microstructure due à des cycles de recristallisation dynamique, la présence simultanée de germes recristallisés et de grains écroutés stabilisant la dureté du matériau.



(a) Vue sur la section du barreau



(b) Vue longitudinale du barreau

Figures I.16 a et b : Distribution de la dureté au sein d'un barreau de cuivre martelé.
[Grabianowski -Danda-Ortner- Stuwe 80]

Le coeur du barreau d'aluminium est, quant à lui, soumis à la restauration dynamique tout comme dans le barreau de cuivre. Ceci se caractérise par un affinement de la sous-structure qui n'empêche pas l'augmentation de la dureté.

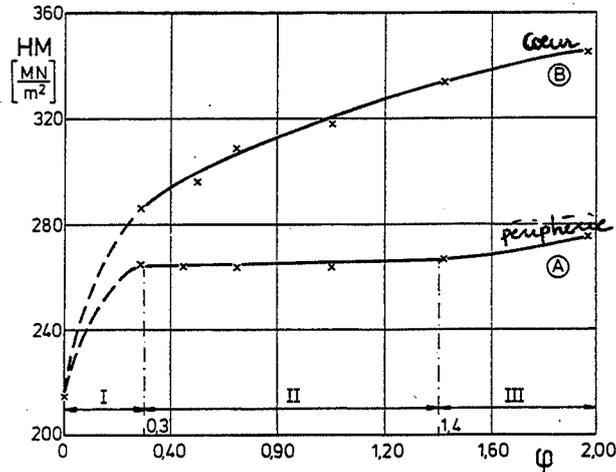


Figure I.17 : Evolution de la dureté du coeur et de la périphérie d'un barreau d'aluminium en fonction du taux de martelage [Grabianowski-Baliga-Ortner 92].

Conclusion partielle

Ces données bibliographiques sur les déformations engendrées par le martelage rotatif concernent exclusivement des matériaux **homogènes** (milieu continu). Elles ont permis d'établir que le martelage produisait sur un tel matériau des déformations complexes caractérisées par :

- Un gradient de déformation le long du rayon du barreau : le coeur du barreau est plus déformé que la périphérie.
- Un écoulement tangentiel de la matière sur la section du barreau en forme de spirale.
- Torsion longitudinale du barreau en hélice.

I.3.3 - Déformations produites par martelage à deux marteaux sur un matériau composite (milieu discontinu).

Une étude du martelage rotatif à deux marteaux effectuée au laboratoire a permis de mettre en évidence l'existence de ces trois composantes de la déformation sur des **matériaux composites** [DIET 1989-90] :

- un matériau composé de trois éléments de cuivre : deux demi-cylindres de cuivre chemisés d'un tube de cuivre (*Figure I.18*). L'ensemble est solidarisé par l'intermédiaire d'une goupille.
- un matériau constitué d'un assemblage de tiges de fer empilées dans un tube de cuivre (*Figure I.22*) [DIET-PETIT 1989].

- Matériau composite en cuivre -

L'éprouvette en cuivre martelée permet de mettre en évidence la torsion longitudinale du barreau autour de son axe (zz') (hélicoïde droit) et la déformation radiale ("S") (*Figure I.19*).

Il a été constaté que l'augmentation du taux de martelage n'entraînait qu'une faible augmentation de l'angle de torsion : $0,15^\circ/\text{mm}$ pour 26 % et $0,17^\circ/\text{mm}$ pour 47 %.

Outre le fait que la vitesse d'avance n'est pas contrôlable, une autre hypothèse est suggérée pour expliquer cette torsion : elle serait due à l'action conjointe du couple de torsion induit par la géométrie asymétrique des matrices, de la rotation des matrices et du maintien fixe d'une des extrémités du barreau par le manipulateur (*Figure I.20*).

L'angle de torsion moyen induit par les matrices est estimé à $2,5 \cdot 10^{-2} \text{ }^\circ$ par coup [DIET 1989].

Mis à part ces phénomènes de torsion (longitudinale et radiale), une étude des déformations à cœur du barreau a pu être menée en gravant un réseau carré sur la face interne d'un demi-cylindre (*Photographie I.8*) [DIET 1989].

Cette étude a montré que pour des taux peu élevés (23 et 47 %), le martelage déforme les carrés en parallélogramme (rétreint selon le rayon (r) du barreau et allongement selon l'axe (z)). La mesure précise des coordonnées des noeuds du réseau indique la présence d'un faible gradient d'allongement suivant ces deux directions et d'une composante de cisaillement pur quasi-nulle (*Figure I.21*). Pour ces taux de martelage, il semble donc que la section du barreau reste plan au cours du martelage.

- Matériau composite à base de tiges de fer -

Cette étude a permis d'évaluer le comportement en déformation et l'écoulement plastique dans le cas particulier d'un assemblage de tiges métalliques soumis au martelage rotatif (à deux marteaux) [DIET-PETIT 1989]. Le matériau composite {tiges de fer ($\phi = 2 \text{ mm}$)

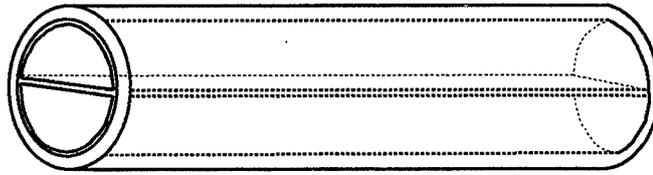


Figure I.18 : Eprouvette en cuivre (ENSME)

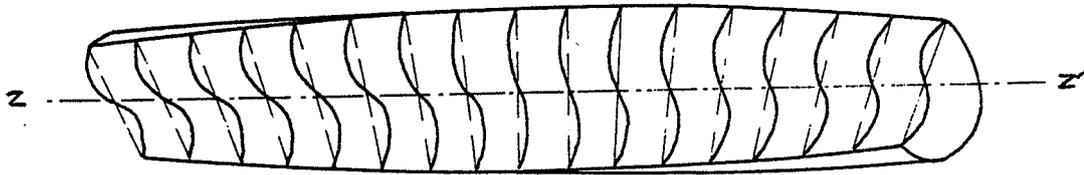


Figure I.19 : Représentation des déformations occasionnées par le martelage sur un demi-cylindre.

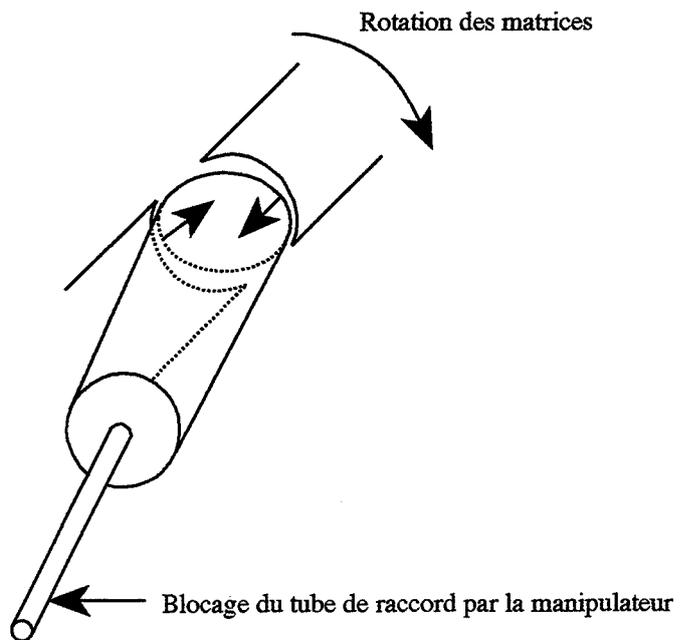
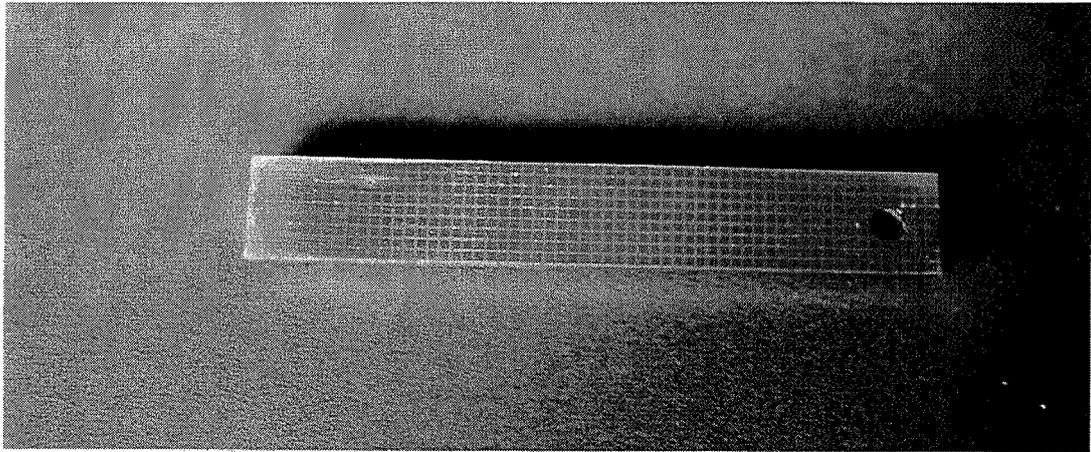


Figure I.20 : Paramètres expliquant la torsion hélicoïdale.



Photographie I.8 : Réseau carré gravé sur la face interne d'un demi-cylindre
[Diet 89]

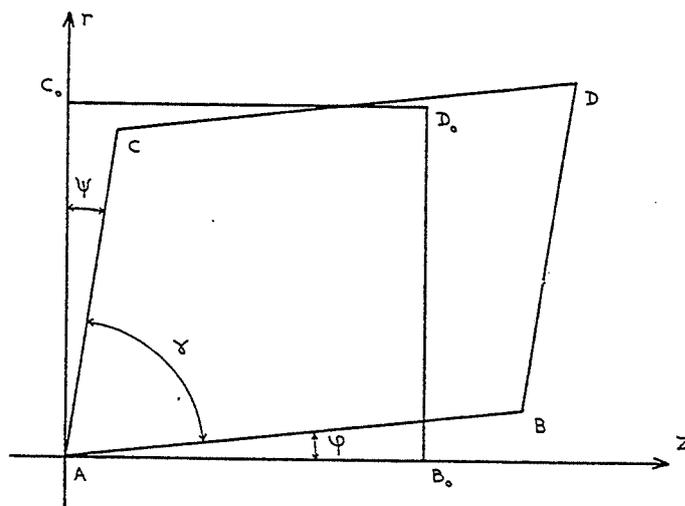


Figure I.21 : Déformation du carré après martelage
[Diet 89]

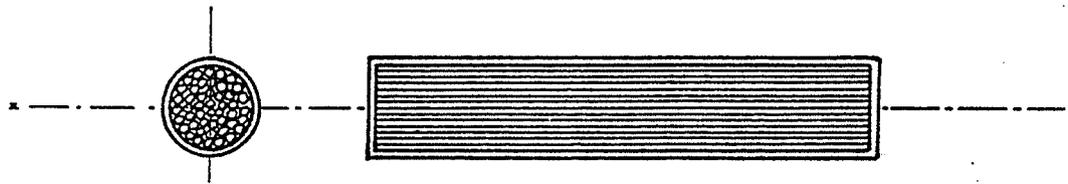
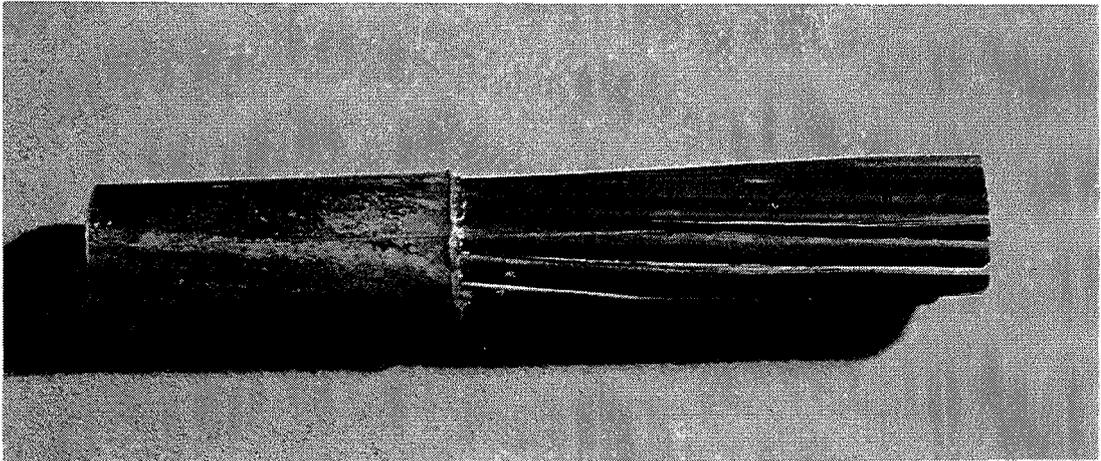
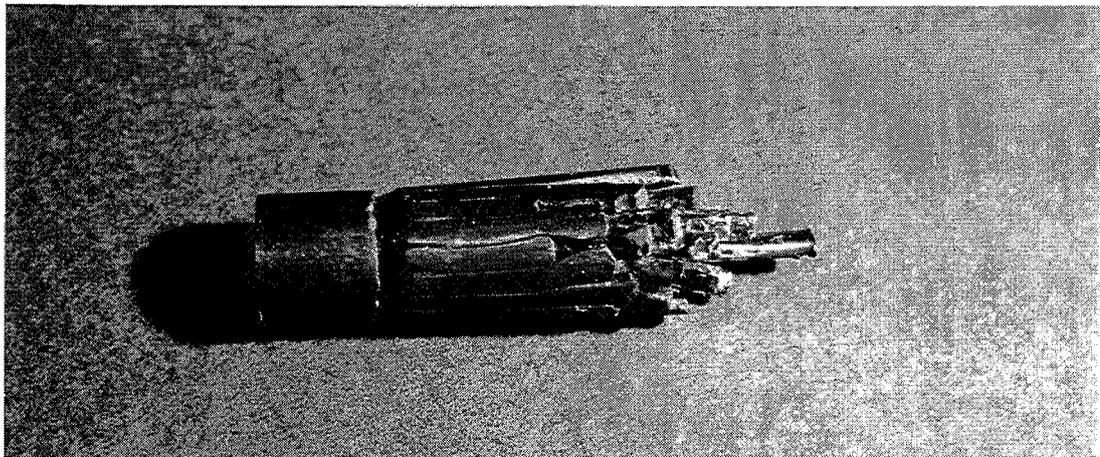


Figure I.22 : Epreuve composite à base de tiges de fer [Diet-Petit 89].



Photographie I.9 : Torsion hélicoïdale du barreau composite après une déformation de 52 %. [Diet-Petit 89]



Photographie I.10 : Extrémité d'un composite montrant un allongement plus important des fils centraux après une déformation de 134 % [Diet-Petit 89].

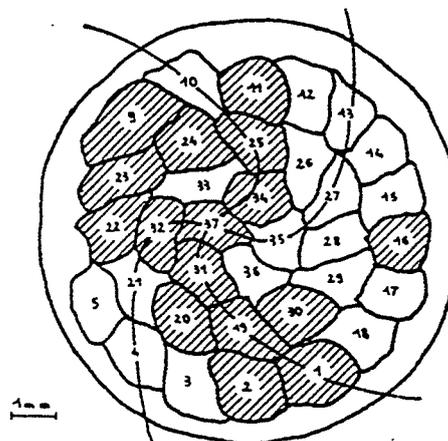


Figure I.23 : Rotation radiale et déformation des fils après une déformation de 90% [Diet-Petit 89]

recouvertes d'une épaisseur de cuivre de 2,5 μm et introduites dans un tube de cuivre} a été martelé à 450°C ($0,4.T_{\text{fusion}}$) et différents taux de martelage (28, 52 et 90 %).

Le martelage rotatif induit donc sur l'assemblage de tiges les déformations suivantes :

- Une torsion hélicoïdale selon l'axe zz' des fils de la périphérie (*Photographie I.9*). L'angle mesuré après une déformation de 52 % est estimé à 4,5°/mm.
- Allongement plus important des fils situés au cœur du barreau comparativement à ceux de la périphérie (*Photographie I.10*). Ceci n'est observé que pour des taux de martelage supérieurs à 52 %.

Cette observation prouve l'existence d'un gradient de déformation entre le cœur du barreau et sa périphérie tel qu'on ne peut plus considéré, pour un matériau composite, que la section du barreau reste plan au cours du martelage contrairement à l'approximation faite par [SCHRANK et coll. 1985] pour exprimer le tenseur des déformations relatif à un matériau homogène.

- Un déplacement relatif des tiges les unes par rapport aux autres sur la section du barreau : ce déplacement observé uniquement pour un taux de martelage supérieur ou égal à 52 % reproduit la torsion radiale en forme de "S" (*Figure I.23*).
- Déformation de la section (circulaire) des tiges en quasi-hexagones (pour $\epsilon_M \geq 28$ %) permettant une élimination quasi-totale des interstices. Pour des taux de martelage supérieurs à 52 %, la section des fils est plus déformée (*Figure I.23*). Cette déformation s'accompagne alors d'une forte augmentation de la dureté des tiges (+ 50 Hv entre les taux de martelage 52 et 90 %)

Ces observations permettent d'établir le tenseur des déformations relatif à un matériau discontinu. En coordonnées cylindriques, il s'exprime de la manière suivante :

$$[\epsilon] = \begin{bmatrix} \epsilon_{rr} & \epsilon_{r\theta} & \epsilon_{rz} \\ \epsilon_{r\theta} & \epsilon_{\theta\theta} & \epsilon_{\theta z} \\ \epsilon_{rz} & \epsilon_{\theta z} & \epsilon_{zz} \end{bmatrix}$$

ϵ_{rr} et $\epsilon_{\theta\theta}$ traduisent la réduction de section des fils

ϵ_{zz} traduit l'allongement axial du barreau

ϵ_{rz} traduit le fait que l'allongement axial n'est pas uniforme (la section du barreau ne reste pas plan pendant le martelage).

$\epsilon_{r\theta}$ et $\epsilon_{\theta z}$ traduisent la torsion en hélice et la déformation en spirale qu'on explique par, d'une part, le couple de torsion induit par la forme légèrement elliptique des matrices et d'autre part, le fait que l'extrémité aval du barreau soit maintenue fixe par l'opérateur au cours du martelage.

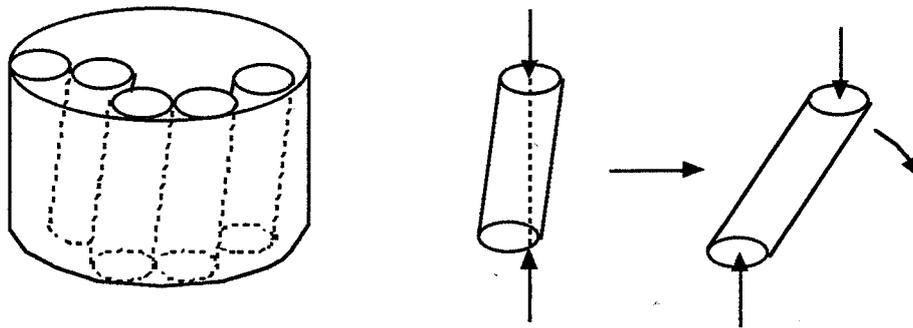


Figure I.24 : Comportement en compression du composite ayant une torsion hélicoïdale.

CONCLUSION SUR LE MARTELAGE ROTATIF

Ces études préliminaires ont donc permis de mettre en évidence la complexité des déformations produites par le martelage rotatif (torsion hélicoïdale, radiale...) aussi bien sur matériau continu que discontinu (assemblage pour composite).

La torsion radiale peut présenter un avantage pour la consolidation de notre matériau composite. Induisant des contraintes de cisaillement $\varepsilon_{r\theta}$, elle peut, en effet, conduire à une meilleure compaction de l'assemblage de fils et favoriser la formation des liaisons métalliques nickel-nickel nécessaires à la consolidation du composite.

La torsion hélicoïdale, par contre, peut devenir un inconvénient pour une sollicitation ultérieure du composite en compression longitudinale : résistance du composite plus faible car la sollicitation ne sera plus axiale mais hors axe (*Figure I.24*).

Par conséquent, pour la réalisation de notre matériau composite, nous effectuerons une torsion préalable sur l'empilement des fils d'un angle opposé à celui induit par le martelage de manière à obtenir un composite avec des fils parfaitement rectilignes.

La valeur de cet angle reste cependant difficile à déterminer car il est fonction de plusieurs paramètres : la nature du matériau martelé, le taux de martelage choisi, la température, le type d'empilement pour le composite (diamètre des fils, importance du vide, etc...) mais aussi les dimensions du tube de raccord (longueur, épaisseur) par l'intermédiaire duquel se fait le maintien du container par le manipulateur.

Ces études préliminaires ne concernant que le martelage à deux marteaux, nous présenterons ultérieurement (§ II.3) une étude similaire menée sur le martelage à quatre marteaux de manière à vérifier que l'on retrouve le même mode de déformation et à quantifier l'angle de torsion hélicoïdale.

I.4 - COMPORTEMENT MECANIQUE D'UN COMPOSITE UNIDIRECTIONNEL A FIBRES CONTINUES.

L'un de nos objectifs est de caractériser mécaniquement notre matériau composite. Nous nous intéressons uniquement à ses propriétés mécaniques de base à l'ambiante (rigidité, limite élastique, plasticité, rupture). Ces notions s'étudient généralement par l'intermédiaire des courbes $\sigma - \epsilon$.

La diversité des matériaux composites élaborés (composite anisotrope à fibres continues, à fibres discontinues, alignées dans une ou plusieurs directions ou aléatoirement réparties, composite à particules dispersées...) a conduit depuis une vingtaine d'années au développement d'un certain nombre de modèles ayant pour objectif de prévoir les propriétés thermodynamiques du matériau composite. Ces modèles peuvent se résumer en cinq modèles de base plus ou moins rigoureux : loi des mélanges, modèle "shear lag" (retard de cisaillement), modèle des plaques stratifiées, modèle d'Eshelby et modèle basé sur les principes variationnels [TAYA-ARSENAULT 1989].

Pour l'étude de notre composite, nous nous restreindrons au modèle le plus simple qu'est la loi des mélanges. Ce modèle permet en effet de prévoir le comportement mécanique du composite à partir des propriétés de chaque constituant pris individuellement par une simple loi additive. Du fait qu'elle repose sur l'hypothèse que les constituants du composite subissent la même déformation, il faut considérer que cette loi conduit généralement à une surévaluation.

Cependant la loi des mélanges est raisonnablement bien adaptée pour un composite métallique (type W/Cu) unidirectionnel à fibres continues et à fraction volumique de fibres pas trop faible [TAYA-ARSENAULT 1989, OCHIAI-SHIMOMURA-MURAKAMI 1975].

En prenant pour exemple la notion de contrainte, la loi des mélanges s'exprime :

$$\sigma_c = \sum_{i=0}^N V_i \sigma_i \quad [1]$$

σ_c résistance du composite

σ_i résistance du constituant i

V_i fraction volumique de constituant i

I.4.1 - Comportement élastique du composite

Les propriétés mécaniques d'un matériau sont fortement dépendantes de la morphologie de sa microstructure et a fortiori de sa géométrie. La géométrie structurale de notre composite étant assimilable à un cylindre de révolution où les fibres sont alignées dans une seule direction (direction longitudinale : l) nous conduit à considérer que ses propriétés mécaniques

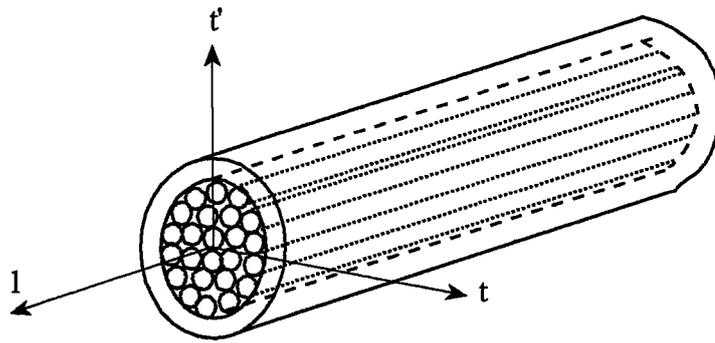


Figure I.25 : Représentation schématique du composite (avec gaine).

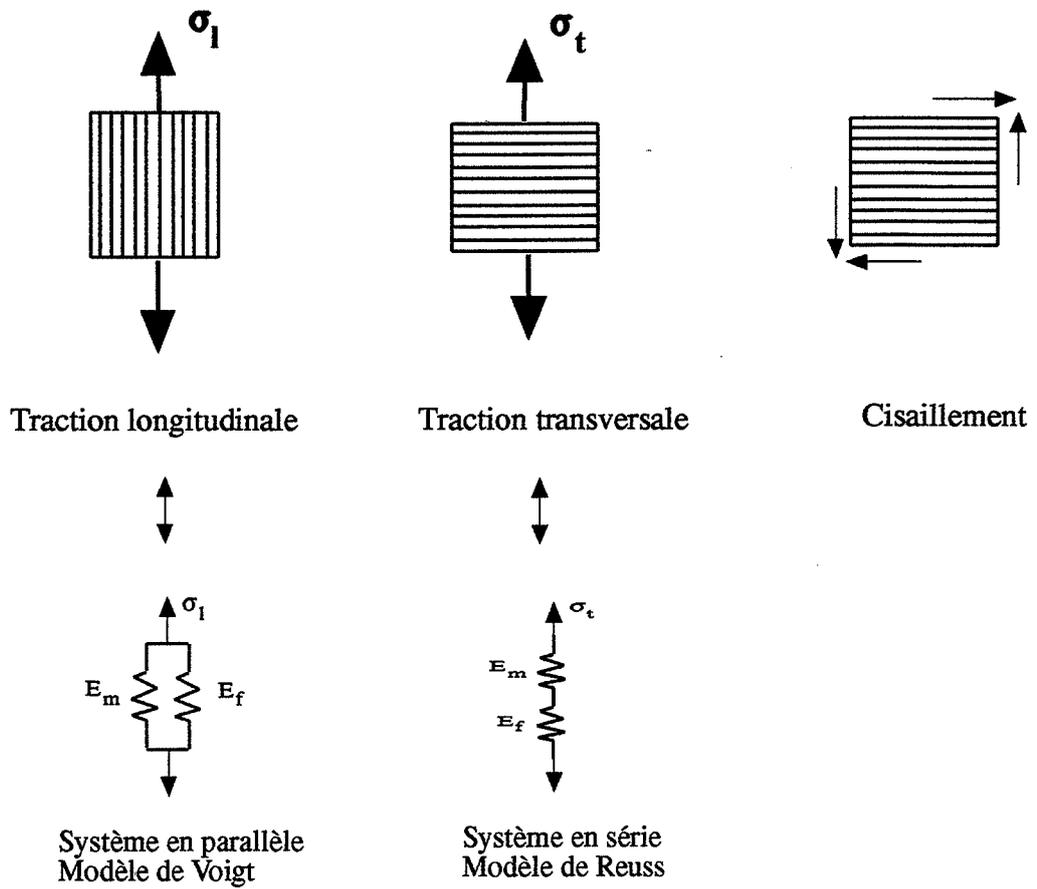


Figure I.26 : Différents types d'essais mécaniques nécessaires à la caractérisation mécanique d'un composite.

seront celles d'un matériau **isotrope transverse** avec t - t' comme plan d'isotropie (*Figure I.25*).

Pour un matériau élastique linéaire, l'équation qui permet de relier ϵ et σ s'exprime sous la forme tensorielle suivante:

$$\epsilon_{ij} = S_{ijkl} \sigma_{kl} \quad [2]$$

Compte tenu des symétries suivantes : $S_{ijkl} = S_{ijlk}$ (symétrie des contraintes), $S_{ijkl} = S_{jikl}$ (symétrie des déformations) et $S_{ijkl} = S_{klij}$ (symétrie des coefficients), le tenseur de complaisance S_{ijkl} se réduit à 21 coefficients :

$$\begin{Bmatrix} \epsilon_{11} \\ \epsilon_{22} \\ \epsilon_{r'r} \\ \gamma_{r'r} \\ \gamma_{t't} \\ \gamma_{tt} \end{Bmatrix} = \begin{bmatrix} \frac{1}{E_l} & -\frac{\nu_{lt}}{E_t} & -\frac{\nu_{lt}}{E_t} & 0 & 0 & 0 \\ -\frac{\nu_{lt}}{E_l} & \frac{1}{E_t} & -\frac{\nu_{lt}}{E_t} & 0 & 0 & 0 \\ -\frac{\nu_{lt}}{E_l} & -\frac{\nu_{lt}}{E_t} & \frac{1}{E_t} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \frac{1}{G_{tt}} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \frac{1}{G_{tt}} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \frac{1}{G_{tt}} \end{bmatrix} \begin{Bmatrix} \sigma_{11} \\ \sigma_{22} \\ \sigma_{r'r} \\ \tau_{r'r} \\ \tau_{t't} \\ \tau_{tt} \end{Bmatrix}$$

avec $\gamma_{ij} = 2\epsilon_{ij}$

Remarques :

- La loi de comportement élastique d'un tel matériau ne fait intervenir que 5 coefficients élastiques indépendants :
 - Le module d'Young dans le sens longitudinal : E_l
 - Le module d'Young dans le sens transverse : E_t
 - Le module de glissement dans le plan l,t : G_{tt}
 - Les coefficients de poisson : ν_{lt} et ν_{tl}
- La symétrie des coefficients élastiques entraîne l'égalité: $\frac{\nu_{lt}}{E_l} = \frac{\nu_{tl}}{E_t}$
- Le module de cisaillement dans le plan transverse t-t' s'exprime pour un isotrope transverse de la manière suivante:

$$\frac{1}{G_{tt}} = \frac{2(1 + \nu_{tt})}{E_t}$$

Ceci permet donc de définir les paramètres élastiques essentiels à la caractérisation mécanique d'un matériau isotrope transverse.

La détermination de ces valeurs nécessiterait d'effectuer différents essais :

- Essai de traction longitudinale pour E_l
- Essai de traction transversale pour E_t
- Essai de cisaillement (torsion) pour ν_{lt} et ν_{tt}

Mais comme nous le verrons au § II.5, la difficulté d'usiner notre composite en éprouvettes adaptées à ces différents essais, nous a contraint à ne pouvoir caractériser notre composite qu'en compression. Cependant la détermination de certains paramètres mécaniques du composite pourra se faire de manière théorique grâce à l'utilisation de la loi des mélanges qui permet le calcul de ces paramètres en fonction de ceux des constituants testés individuellement.

I.4.2 - Comportement mécanique σ - ε (en élasticité et plasticité) d'un composite unidirectionnel à fibres continues

Vu la diversité des comportements qu'un tel composite peut avoir (comportement variable selon les propriétés des constituants de base et leurs écarts), notre étude bibliographique se restreindra au cas d'un composite ayant les caractéristiques suivantes (définition correspondant à notre composite) :

- Fibres continues
- Matrice et fibres métalliques
- Matrice ductile telle que $\varepsilon_m^R \gg \varepsilon_f^R$ et $\varepsilon_m^{el} \ll \varepsilon_f^R$

où ε_m^R déformation à rupture de la matrice.

ε_f^R déformation à rupture des fibres.

ε_m^{el} déformation élastique maximale de la matrice.

I.4.2 - a - Comportement en traction longitudinale

L'essai de traction longitudinale est l'essai le plus utilisé pour caractériser un matériau composite (*Figure 1.26 a*). Les premières tentatives effectuées sur un composite à matrice métallique (MMC) remontent au début des années 60 [MC DANIELS-JECH-WEETON 1959-60-63] et concernent un composite W/Cu (fibres de tungstène de diamètre variable entre 0,007 et 0,18 mm et matrice de cuivre).

Ils ont ainsi pu établir en se basant sur les travaux de VOIGT [1889] que le comportement mécanique en traction σ - ε de ce composite métallique suivait correctement la loi des mélanges. Cette loi permet simplement de relier les propriétés mécaniques du composite à celles des matériaux de base de la manière suivante :

$$\sigma_c = \sigma_f V_f + \sigma_m V_m \quad [3]$$

σ - Contrainte de traction relative à chaque valeur de déformation ϵ .
 V_i - Fraction volumique d'un des constituants.

Les indices utilisés sont définis de la manière suivante :

c - composite
f - fibre
m - matrice

De la même façon, on peut exprimer la déformation du composite comme la moyenne, sur le volume, des déformations des constituants :

$$\epsilon_c = \epsilon_f V_f + \epsilon_m V_m + \epsilon_p V_p \quad [4]$$

Pour un composite exempt de porosité (fraction volumique de porosité : $V_p = 0$), l'équation se réduit à $\epsilon_c = \epsilon_f V_f + \epsilon_m V_m$ [5] et $V_f + V_m = V_c = 1$

Remarques :

- Précisons que cette loi est aussi valable pour un comportement en compression [KELLY-TYSON 1965].
- Du fait que nous ne nous intéressons qu'aux composites à fibres continues et uniaxiales, nous utiliserons, par la suite, le terme de fraction surfacique (A) au lieu de fraction volumique (V).

Conditions de validité de la loi des mélanges :

- a) L'essai de traction étant réalisé longitudinalement (solicitation parallèle aux fibres), ce système est assimilé à un système en parallèle suivant le modèle de VOIGT (*Figure I.26 a*) qui suppose que tous les constituants de base du composite subissent à tout instant au cours de l'essai de traction une déformation identique :

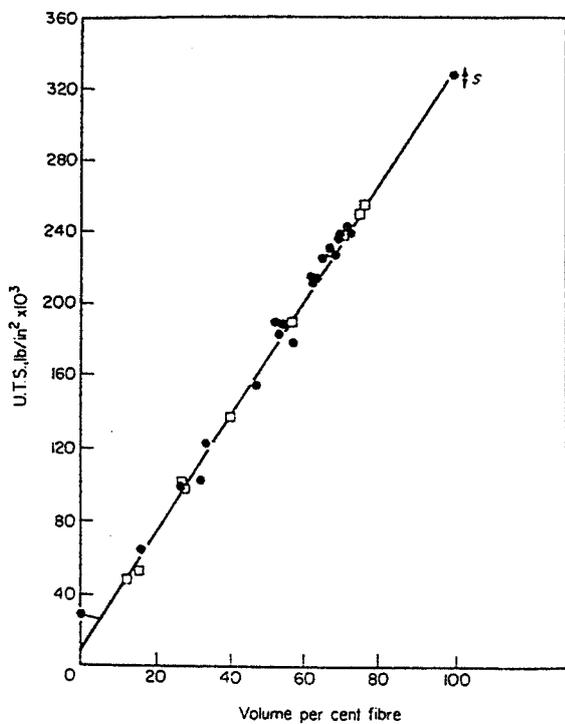
$$\epsilon_f = \epsilon_m = \epsilon_c$$

Précisons qu'il s'agit d'une approximation car en règle générale, la déformation du renfort est différente de celle de la matrice [TAYA-ARSENAULT 1989]

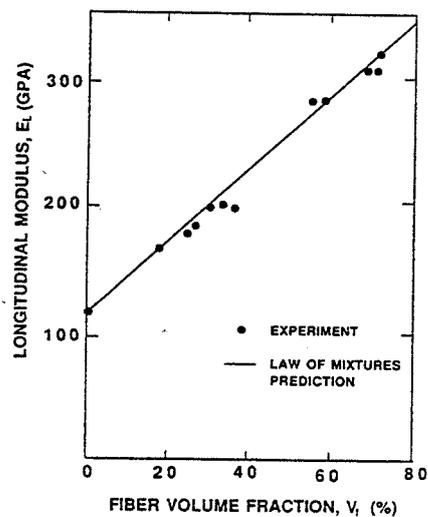
- b) La loi des mélanges suppose que les matériaux de base conservent leurs propriétés mécaniques originelles après mise en forme du composite (voir § I.2.2).

Aucune interaction chimique (fragilisante) ne doit donc se produire entre les fibres et la matrice au cours de l'élaboration du composite.

- c) Cette loi suppose aussi l'absence de porosités dans la matrice, une parfaite adhérence fibre-matrice, une répartition uniforme des fibres dans la matrice et enfin l'absence de contraintes résiduelles inhérentes à la fabrication.



a) Contrainte - V_f



b) Module d'young - V_f

Figure I.27 : Relation linéaire entre la résistance a) ou le module d'élasticité b) et la fraction volumique de fibres pour un composite W/Cu [Mc Daniels-Jech-Weeton 65].

MC DANELS et coll. [1965] ont pu vérifier expérimentalement qu'il y avait bien une relation de linéarité croissante entre σ_c et V_f (fraction volumique de fibres) comme le prévoit la loi des mélanges (*Figure I.27*) :

$$\sigma_c - \sigma_m = (\sigma_f - \sigma_m) V_f \quad [6]$$

Cette loi est donc aussi valable pour des matériaux à forte fraction volumique de fibres ($\geq 80\%$). Elle peut donc s'appliquer à notre matériau composite.

Dans le domaine des matériaux composites à matrice métallique et à fibres continues, on distingue deux types de comportement liés à celui des fibres de renfort (en prenant bien sûr pour acquis que la matrice est ductile et nettement plus ductile que les fibres) :

- * Composites à fibres fragiles
- * Composite à fibres ductiles

Dans les deux cas, ces composites auront les caractéristiques suivantes :

- Fibres à module d'Young très supérieur à celui de la matrice.
- Matrice ductile et à allongement à rupture très supérieur à celui de la fibre de renfort :

$$\varepsilon_m^R > \varepsilon_f^R$$

Les figures I.28 a, b et c schématisent le comportement en traction longitudinale σ - ε d'un tel composite et de chacun des constituants pris individuellement pour respectivement le composite à fibres ductiles (a) et le composite à fibres fragiles (b ou c).

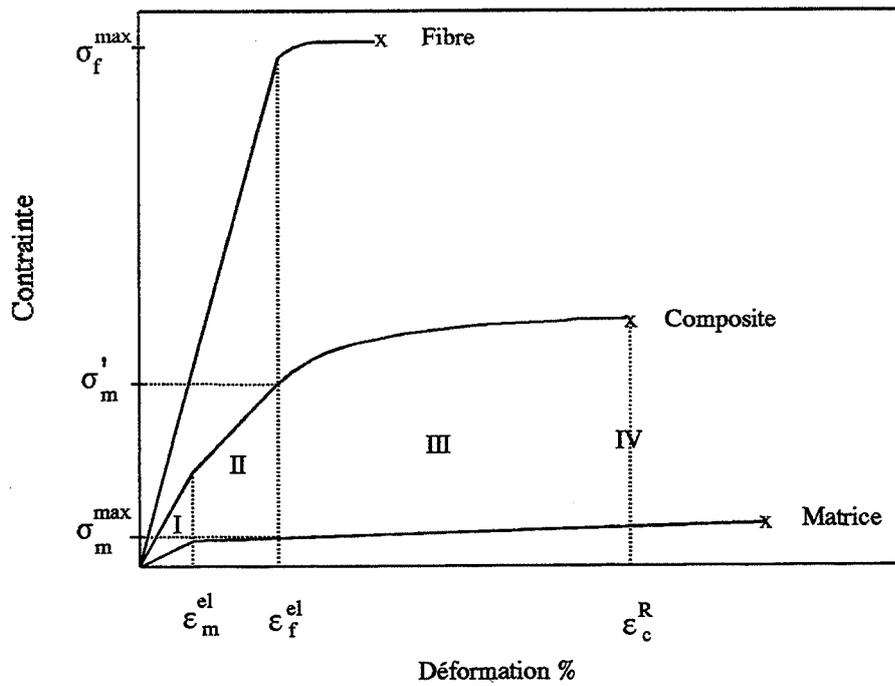
La différence de comportement qui existe entre ces deux composites réside principalement le mode de rupture.

Ne pouvant présager du comportement qu'auront les fils de tungstène dans notre composite (fragile ou ductile) suite au préchauffage, nous allons traiter des deux types de composites en nous restreignant au cas des composites à forte fraction volumique de fibres (V_f).

L'étude des courbes σ - ε en traction longitudinale d'un composite métallique permet de distinguer :

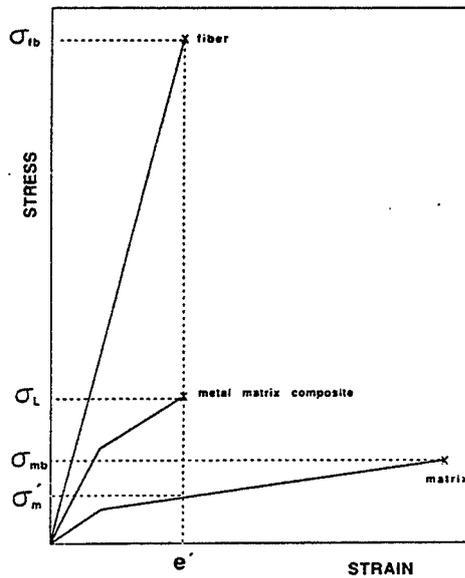
- 3 stades de déformation pour un composite à fibres fragiles (*Figure I.28 b*)
- 4 stades de déformation pour un composite à fibres ductiles (*Figure I.28 a*)

Les deux premiers stades étant communs aux deux types de composite, nous les traitons ensemble.



- Stade I : Fibre et matrice élastique
- Stade II : Matrice se déforme plastiquement et la fibre reste élastique
- Stade III : Fibre et matrice se déforment plastiquement
- Stade IV : Rupture du composite

(a) composite à fibres ductiles



(b) composite à fibres fragiles [Taya-Arsenault 89]

Figures I.28 a, b : Schématisation du comportement mécanique (courbes σ - ϵ) des constituants et du composite (à fibres continues et V_f forte) correspondant.

Stade I : $\epsilon_c \leq \epsilon_m^{el}$: Domaine d'élasticité "primaire" du composite

Les fibres et la matrice ont un comportement élastique.

Le composite a par conséquent lui aussi un comportement élastique.

- Du fait de la condition de validité a), le module d'élasticité longitudinal "initial" du composite, E_c^1 , est défini par :

$$E_c^1 = E_f A_f + E_m A_m \quad [7]$$

Remarque : Pour les composites qui n'ont pas une répartition rigoureusement parallèle et équidistante des fibres en raison du mode de fabrication, on affecte alors E_f d'un coefficient de mise en oeuvre ($k \approx 0,9$) et l'expression devient :

$$E_c^1 = k E_f A_f + E_m A_m \quad [8]$$

- La contrainte sur le composite s'exprime donc : $\sigma_c^1 = \epsilon_c^1 E_c^1$ [9]

- Détermination du coefficient de poisson du composite :

Pour une sollicitation longitudinale, on a :

$$\begin{aligned} \sigma_f^t &= 0 & \epsilon_f^t &= -\nu_f \epsilon_c^1 = -\nu_f \epsilon_c^1 \\ \sigma_m^t &= 0 & \epsilon_m^t &= -\nu_m \epsilon_c^1 = -\nu_m \epsilon_c^1 \end{aligned}$$

La déformation transversale s'exprimant :

$$\begin{aligned} \epsilon_c^t &= \epsilon_f^t V_f + \epsilon_m^t V_m \\ \epsilon_c^t &= \epsilon_c^1 (-\nu_f V_f - \nu_m V_m) \end{aligned}$$

Et comme $\frac{\epsilon_c^t}{\epsilon_c^1} = -\nu_c^t$, le coefficient de poisson s'exprime donc lui aussi en terme de

loi des mélanges :
$$\nu_c^t = \nu_f V_f + \nu_m V_m \quad [10]$$

Stade II : $\epsilon_m^{el} < \epsilon_c \leq \epsilon_f^{el}$: Domaine d'élasticité "secondaire" du composite

Les fibres ont toujours un comportement élastique.

La matrice se déforme plastiquement.

Le composite a un comportement quasi-élastique ou élastique "secondaire" défini par un module d'élasticité $E_c^1 < E_c^1$.

- Le module d'élasticité "secondaire" du composite s'exprime alors :

$$E_c^1 = E_f A_f + \left(\frac{d\sigma_m}{d\epsilon} \right) A_m \quad [11]$$

$\frac{d\sigma_m}{d\epsilon}$ - pente de la courbe σ - ϵ de la matrice à une valeur donnée de ϵ

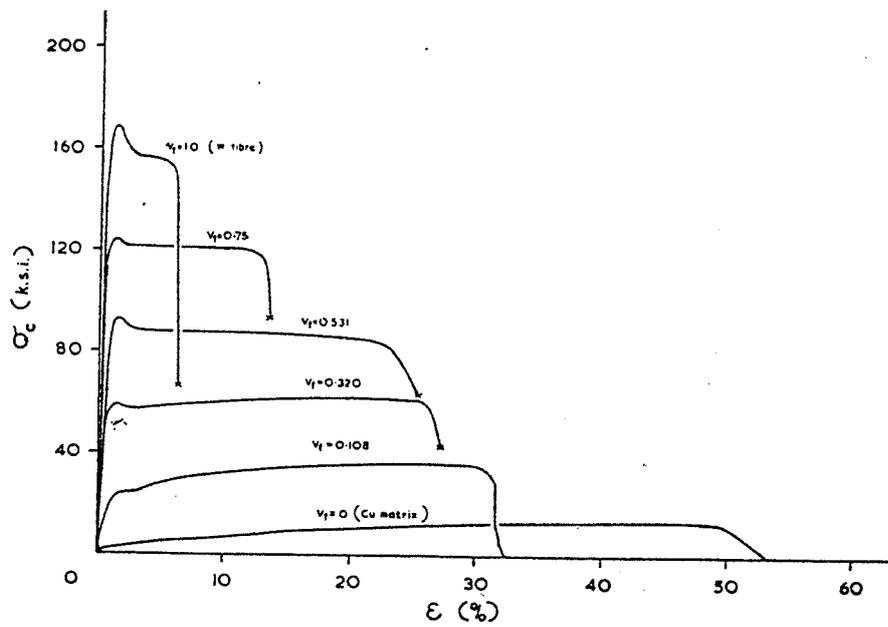
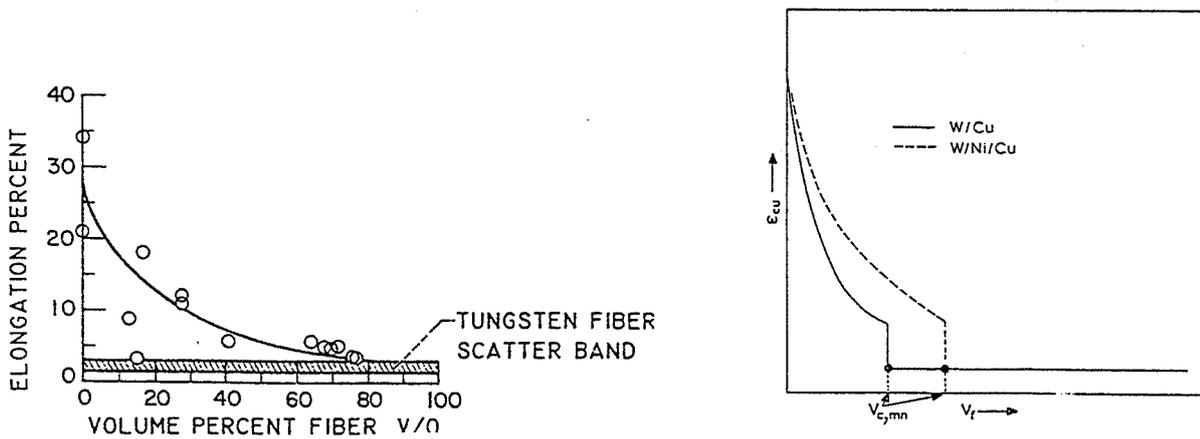


Figure I.29 : Courbes σ - ϵ typiques d'une matrice ductile, d'une fibre ductiles et du composite avec V_f variant entre fort et faible.
composite W/Cu testé à 250°C (fibres de diamètre 0,2-0,5 mm) [Kelly-Tyson 65]



a) Composite W/Cu (diamètre des fibres = 127 μ m)
[Mc Danels-Jech-Weeton 65]

b) Schématisation pour deux composites W/Cu et W/Cu/Ni (diamètre des fibres = 100 μ m)
[Ochiai-Shimomura-Murakami 75]

Figures I.30 a,b : Allongement d'un composite renforcé par des fibres ductiles.

Du fait de la forme quasi-linéaire de la courbe σ - ε et de sa faible pente dans le domaine de plasticité de la matrice ductile, on est tenté d'écrire : $\frac{d\sigma_m}{d\varepsilon} < E_m$ soit environ égal à $\frac{E_m}{100}$

Le second terme étant petit, on a : $E_c^{I'} \approx E_f A_f$

- La détermination de la limite conventionnelle d'élastique du composite ($\sigma_c^{el 0,2\%}$) se fera non pas à partir de la pente correspondant à E_c^I mais plutôt avec celle correspondant à $E_c^{I'}$. On la nommera la contrainte élastique "secondaire".
- Influence de la fraction volumique de fibres
L'extension de ce domaine (ou valeur de ε_c^{el}) augmente avec la fraction volumique de fibres. Un composite à forte fraction volumique de fibres (comme c'est le cas de notre matériau) aura donc l'avantage d'avoir un domaine élastique plus grand.

Le stade III (et éventuellement IV) dépend fortement du mode de rupture du composite. Or le mode de rupture d'un composite (à fibres continues et matrice ductile) dépend de deux facteurs : le mode de rupture des fibres (fragile ou ductile) mais aussi de la fraction volumique de fibres (forte, faible) dans le composite.

Composite à fibres ductiles et V_f forte

(Figure I.29)

Stade III : $\varepsilon_f^{el} < \varepsilon_c < \varepsilon_c^R$: Domaine de plasticité du composite

Les fibres et la matrice ont un comportement plastique.

Le composite adopte donc lui aussi un comportement plastique.

- La contrainte supportée par le composite s'exprime :

$$\sigma_c = \sigma_f A_f + \sigma_m' (1 - A_f) \quad [12]$$

σ_m' est la contrainte de la matrice (associée à σ_f , celle des fibres) à une valeur de ε donnée. Dans ce domaine de déformation, la contrainte d'une matrice très ductile étant approximativement constante, on considère généralement que $\sigma_m' \approx \sigma_m^R$ (contrainte à rupture du nickel).

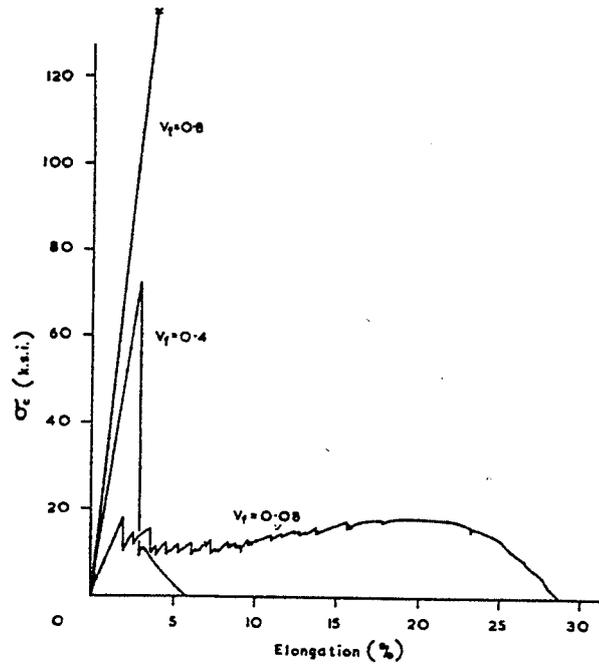


Figure I.31 : Courbes σ - ϵ typiques d'un composite à matrice ductile et fibres fragiles pour V_f faible et V_f fort.
Composite W/Cu (fibres de diamètre 0,2-0,5 mm) [Kelly-Tyson 65]

Stade IV : $\epsilon_c^R = \epsilon_f^R$: Domaine de rupture du composite

Ce stade intervient après que le composite ait atteint sa contrainte maximale, la courbe (*Figure I.29*) montre donc une décroissance progressive de σ jusqu'à la rupture.

Cependant, l'allongement du composite est fonction de la fraction volumique (ou surfacique) de fibres : Il décroît quand V_f augmente (*Figure I.30*) et devient équivalent à celui des fibres (testées individuellement pour $V_f > 80\%$ (valable pour les composites W/Cu). La rupture du composite se produit donc à $\epsilon_c^R = \epsilon_f^R$. Le composite présente alors une ductilité similaire à celle d'une fibre [MC DANELS et coll. 1965].

- La contrainte à rupture du composite équivaut donc à :

$$\sigma_c^R = \sigma_f^R A_f + \sigma_m^* (1 - A_f) \quad [13]$$

σ_m^* contrainte atteinte par la matrice à ϵ_f^R et proche de σ_m^R

Pour la matrice cuivre : $\sigma_m^* = 55$ MPa pour ϵ_f^R variant entre 1,2 et 1,5 % [MC DANELS et coll. 1965]

Composite à fibres fragiles et V_f forte

(*Figure I.31*)

Dans ce cas, le stade III n'existe pas puisque la rupture du composite est fragile.

Stade IV : $\epsilon_c = \epsilon_f^R$: Domaine de rupture du composite

Le composite rompt dans le domaine élastique "secondaire" dès que les fibres commencent à se rompre donc à $\epsilon_c = \epsilon_f^R$ (déformation à rupture des fibres).

Sa contrainte maximale qui correspond à sa contrainte de rupture est donnée par la même équation que celle établie pour un composite à fibres ductiles [eq. 13] :

$$\sigma_c^{\max} = \sigma_c^R = \sigma_f^R A_f + \sigma_m^* (1 - A_f) \quad [14]$$

σ_m^* représente la contrainte de la matrice quand on atteint ϵ_f^R .

Pour la matrice cuivre: $\sigma_m^* = 20,7$ MPa, valeur proche de la limite élastique du cuivre (à gros grains) [KELLY-TYSON 1965].

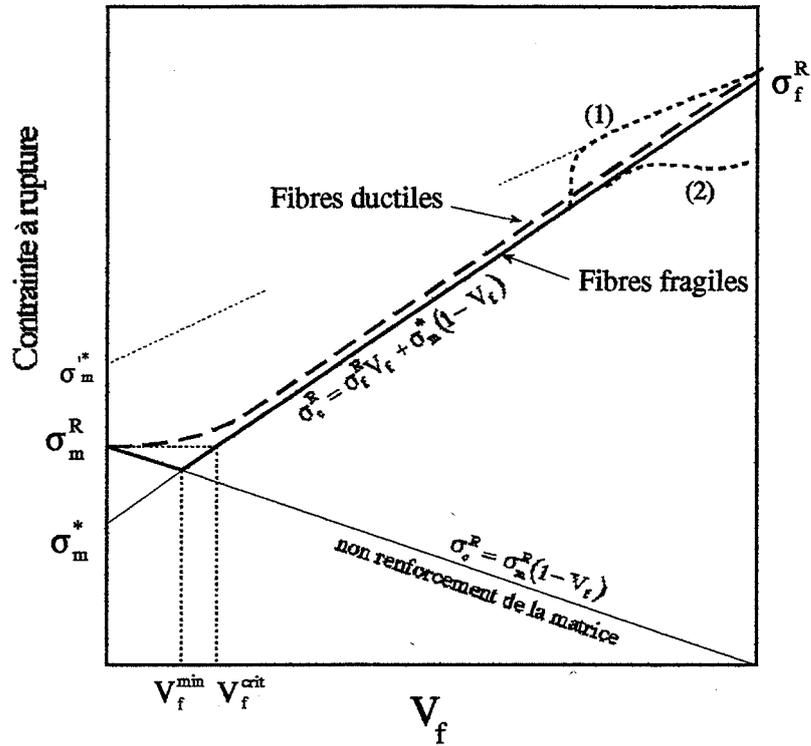


Figure I.32 : Comportement d'un composite métallique en traction longitudinale en fonction de V_f (pour composites à fibres fragiles et ductiles).

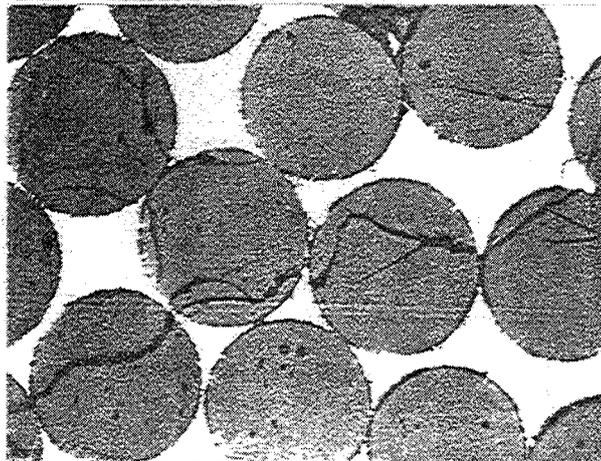


Figure I.33 : Propagation d'une fissure aux points de contact entre fibres sur la section d'un composite (fibres de verre/matrice d'aluminium)
[Sutton et coll. cité par Kelly-Davies 65]

La *figure 1.32* permet de résumer le comportement du composite en traction longitudinale. Elle représente l'évolution de la contrainte à rupture du composite en fonction de V_f pour un composite à fibres ductiles et un composite à fibres fragiles. La loi qui régit le comportement du composite (vis à vis de la traction longitudinale) est la même que le composite soit à fibres ductiles ou fragiles. Seulement, la contrainte σ_c^{\max} du composite à fibres ductiles est légèrement supérieure à celle du composite à fibres fragiles comme l'indique la *figure 1.32*.

Remarques : Cas de déviation à la loi des mélanges

* Si la température d'élaboration du composite donne lieu à une réaction interfaciale (fibre-matrice) fragilisante pour les fibres (à tel point que $\sigma_f^R < \sigma_m^R$), au delà de ε_f^R , la force appliquée n'est plus supportée par les fibres mais par la matrice [TAYA-ARSENAULT 1989]. Les fils ne jouent plus le rôle de renfort et la contrainte à rupture du composite suit la loi suivante (voir *Figure II.32*) :

$$\sigma_c^R = (1 - V_f)\sigma_m^R \quad [15]$$

* Lorsque le composite a une fraction volumique de fibres (V_f) très élevée (tendant vers 1) :

Cas (1) : Si l'espacement inter-fibres est trop faible ($< 10 \mu\text{m}$), il peut se produire un durcissement de la matrice due à une interférence des fibres sur le mouvement des dislocations de la matrice. Il faut alors remplacer σ_m^* par σ_m^* , ce qui conduit à une augmentation de la contrainte à rupture du composite (σ_c^R) (*Figure II.32*) [KELLY-DAVIES 1965].

Cas (2) : Les fibres ont tendance à se toucher, ce qui peut conduire à un endommagement superficiel des fibres et donc une diminution de σ_c^{\max} (*Figure II.32*).

Pour des fibres de section circulaire, la valeur maximale que peut prendre V_f est $\pi/2\sqrt{3} = 90,6 \%$ [TAYA-ARSENAULT 1989]. Mais dans le cas d'un composite à fibres fragiles, cette valeur maximale doit être réduite à 80 % du fait de l'endommagement des fibres par contact fibre-fibre. En effet, KELLY-TYSON [cité par TAYA-ARSENAULT 1989] ont montré expérimentalement sur un composite à fibres de tungstène recristallisées que la contrainte du composite chutait au delà d'une fraction volumique de 80 % en raison du contact fibre/fibre qui affaiblit la résistance des fibres (*Figure 1.32 (2)*). Citons l'exemple du composite fibres de verre/Al pour lequel un tel contact fibre/fibre entraîne une propagation désastreuse des fissures d'une fibre à l'autre par l'intermédiaire des zones de contact (*Figure 1.33*).

* L'utilisation de la loi des mélanges peut aussi conduire à une surestimation des contraintes dans le stade II (et en conséquence du module d'élasticité secondaire du composite) pour un espacement inter-fibres étroit (de l'ordre de 5 à 60 μm). Cet écart résulterait de l'apparition de contraintes latérales dues à la différence de comportement entre les deux constituants dans ce stade II : plastique pour la matrice, élastique pour la fibre [KELLY-LILHOLT 1969].

I.4.2 - b - Comportement en traction transversale

Cet essai permet d'avoir accès à deux coefficients d'élasticité du composite isotrope transverse : le module d'Young transversal E_t et le module de cisaillement G_{tt} .

Suivant le modèle en série de REUSS (*Figure I.26*), on peut cependant avoir accès à ces données sans effectuer l'essai de traction transversal :

* Dans un premier temps, on supposera que les contraintes subies par les constituants sont uniformes : $\sigma_c^t = \sigma_f^t = \sigma_m^t$

$$\text{La déformation transversale s'exprimant : } \varepsilon_c^t = \varepsilon_f^t V_f + \varepsilon_m^t V_m = \sigma_c^t \left(\frac{V_f}{E_f} + \frac{V_m}{E_m} \right) \quad [18]$$

D'où l'expression du module d'élasticité transversal

$$\boxed{\frac{1}{E_c^t} = \frac{V_f}{E_f} + \frac{V_m}{E_m}} \quad [19]$$

En tenant le même raisonnement, on exprime le module de cisaillement du composite :

$$\tau = G \gamma \quad \text{avec} \quad \boxed{\frac{1}{G_c^{tt}} = \frac{V_f}{G_f} + \frac{V_m}{G_m}} \quad [20]$$

G_f et G_m sont les modules de cisaillement (isotrope) respectivement des fibres et de la matrice.

Ce type de raisonnement qui suppose les contraintes uniformes conduit cependant à une sous-évaluation des composantes de l'ordre de 25 à 30 %. Expérimentalement, la valeur du module transversal se situe entre celle déterminée par l'équation précédente et la valeur du module longitudinal.

* Il convient donc de tenir compte du fait que les contraintes ne sont pas uniformes ($\sigma_f^t \neq \sigma_m^t$) en utilisant une approche semi-empirique adaptée de HALPIN-TSAI et qui considère que la contrainte moyenne dans la matrice est inférieure à celle dans les fibres. On introduit alors le paramètre η_t (qui dépend des caractéristiques mécaniques des constituants, de leur forme, de leur arrangement et de la régularité de l'arrangement (coefficient de contiguïté)):

$$\sigma_m^t = \eta_t \sigma_f^t \quad 0 < \eta_t < 1$$

$$\sigma_c^t = \sigma_f^t (V_f + \eta_t V_m) \quad [21]$$

$$\text{Or } \varepsilon_c^t = \frac{\sigma_c^t}{E_c^t} = \sigma_f^t \left(\frac{V_f}{E_f} + \eta_t \frac{V_m}{E_m} \right) \quad [22]$$

$$\text{D'où } \boxed{\frac{1}{E_c^t} = \frac{1}{V_f + \eta_t V_m} \left(\frac{V_f}{E_f} + \eta_t \frac{V_m}{E_m} \right)} \quad [23]$$

De même pour le module de cisaillement, on a : $\sigma_m^{tt} = \eta_{tt} \sigma_f^{tt} \quad 0 < \eta_{tt} < 1$

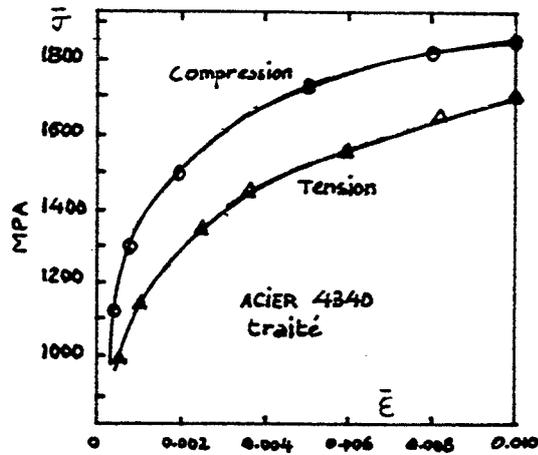
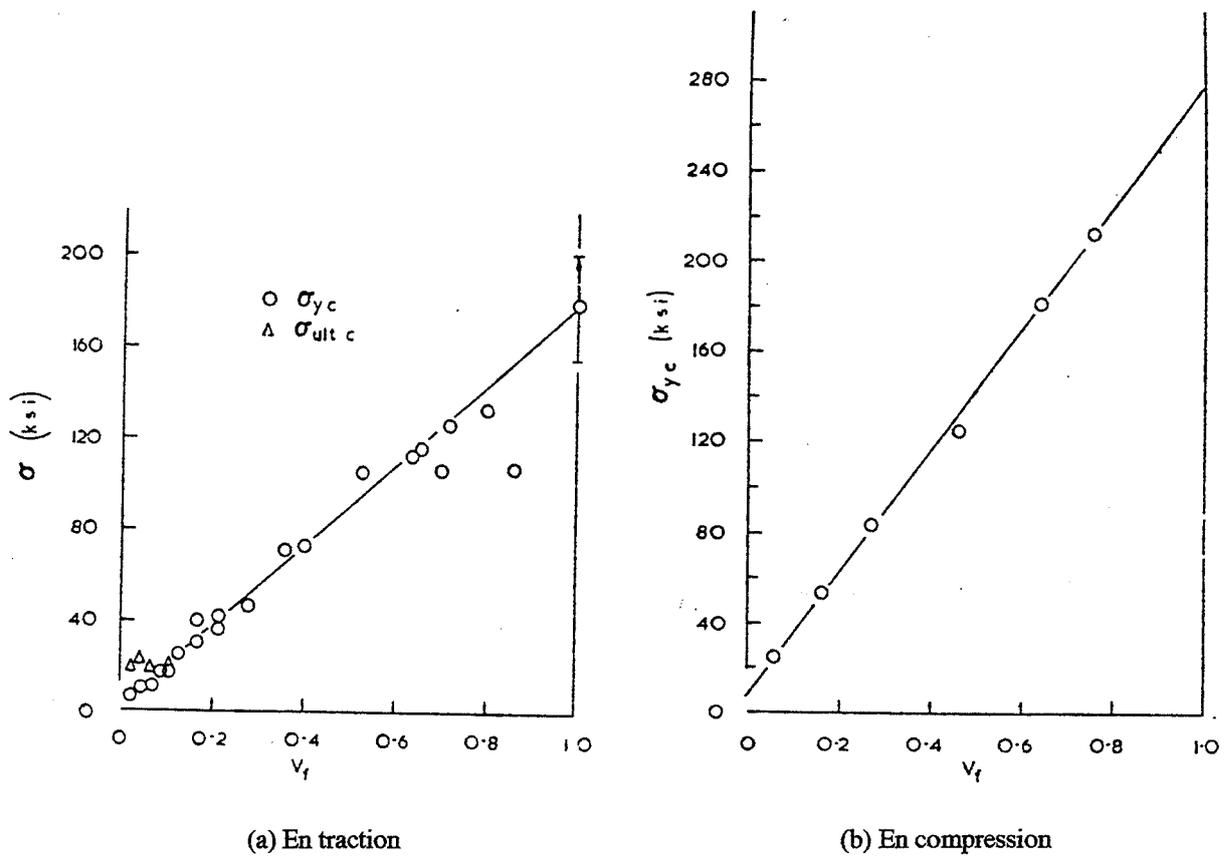


Figure I.34 : Comparaison traction-compression sur un matériau homogène.
 [Revue mise en forme des mtaux et alliages CNRS 76]



Figures I.35 a,b : Evolution de la résistance en traction (a) et en compression (b) d'un composite W/Cu en fonction de la fraction volumique de fibres V_f [Kelly-Tyson 65].

$$\text{et } \boxed{\frac{1}{G_c^{tt}} = \frac{1}{V_f + \eta_{tt} V_m} \left(\frac{V_f}{G_f} + \eta_{tt} \frac{V_m}{G_m} \right)} \quad [24]$$

Notons qu'il a été vérifié sur certains composites que pour $\eta_t = \eta_{tt} = 0,5$, on obtient une bonne adéquation avec l'expérience.

I.4.3 - Comparaison traction-compression

Un essai de compression n'est pas toujours équivalent à un essai de traction pour un matériau homogène et l'est encore moins pour un matériau composite. En effet, la courbe de consolidation $\sigma = \frac{F}{S} = f\left(\varepsilon = \ln \frac{L}{L_0}\right)$ déduite d'un essai de compression est toujours au dessus de celle déduite d'un essai de traction.

Cette différence a deux origines pour un matériau homogène :

- Les textures cristallographiques dues aux déformations sont différentes.
- Les lois d'écroutissage ne sont pas les mêmes car le nombre de systèmes de glissement actifs par grain en compression est inférieur à celui en traction (durcissement moindre en compression).

Pour un matériau homogène, l'écart entre les deux courbes peut atteindre 8 % (*Figure 1.34*). C'est l'effet de Strength-Differential [Mise en forme de matériaux et Alliage 1976 C.N.R.S].

Pour un matériau composite, cet écart est encore plus important si on en croît [KELLY ET TYSON 1965], qui constatent sur un composite : fils de tungstène ($\phi = 0,2$ à $0,5$ mm)/matrice cuivre (obtenu par la technique de l'infiltration en phase liquide) un écart de 36 % entre la résistance en compression et la résistance en traction (*Figures 1.35 a et b*). La résistance en compression d'un composite n'est donc pas comparable à la résistance en traction.

CONCLUSION SUR LA SYNTHÈSE BIBLIOGRAPHIQUE

Cette recherche bibliographique nous a donc permis de recueillir différentes données tant microstructurales que mécaniques sur les constituants de base qui nous permettront de mieux appréhender le comportement de ces matériaux au cours de la mise en forme du composite par martelage.

Toutefois, pour une meilleure connaissance du comportement mécanique des constituants de base (fil de tungstène, nickel, acier inoxydable), nous avons dû effectuer divers tests mécaniques : traction à l'ambiante et à chaud, compression longitudinale et transversale. Ces tests ont notamment pour but d'évaluer le comportement des matériaux de base soumis à des sollicitations proches de celles qu'ils devront subir aussi bien lors de la mise en forme du composite (compression de type transversale) que lors de la sollicitation ultérieure du composite en compression longitudinale.

L'étude bibliographique sur le martelage rotatif confirme que ce procédé de mise en forme est relativement innovant (le martelage rotatif étant d'une utilisation industrielle assez restreinte) et jamais utilisé pour la mise en forme d'un matériau composite.

Ce procédé de mise en forme est par conséquent mal connu et les déformations qu'il occasionne sur un matériau homogène sont complexes et difficilement maîtrisables. L'étude préliminaire effectuée au sein du laboratoire sur un assemblage de fils a confirmé que cette complexité des déformations (torsions) affectait aussi les matériaux hétérogènes.

Nous serons donc amenés à tenir compte des composantes de torsion lors de l'élaboration du composite.

L'étude bibliographique sur les matériaux composites nous a confirmé que notre matériau composite était un matériau nouveau (forte fraction volumique de fibres, diamètre des fibres important). D'après cette étude, la loi des mélanges devrait permettre de prévoir assez bien les caractéristiques mécaniques du composite (matériau isotrope transverse).

CHAPITRE II

ETUDE DU MATERIAU COMPOSITE

INTRODUCTION

Le matériau composite étudié est constitué des éléments suivants :

- Fibres : fils de tungstène de diamètre 1 mm
- Matrice : nickel électro-déposé en surface des fils d'épaisseur 40-50 μm
- Gaine : acier inoxydable Z 12 CNS 25-20.

La première étape de notre travail est consacrée à la caractérisation mécanique des matériaux de base du composite : fils de tungstène, nickel, acier inoxydable.

Pour les fils de tungstène, nous disposons de plusieurs produits différenciables soit par leur composition chimique (tungstène pur ou dopé) soit par leur diamètre (taux de tréfilage).

Dans un premier temps, nous avons utilisé des fils de tungstène nickelés fournis par la société Plansee pour élaborer le composite. La société Cime-Bocuze s'engageant dans la production de fils de tungstène, nous avons pu par la suite, une fois le procédé de fabrication maîtrisé, réaliser des composites avec des fils Cime-Bocuze.

Deux nuances de fils de tungstène nous ont été fournies par Plansee:

- Fils de tungstène "pur" (non dopé au potassium)
- Fils de tungstène dopé

Une étude antérieure ayant montré que les fils de tungstène "pur" présentaient un comportement à la rupture plus aléatoire (juxtaposition de régions tantôt ductiles tantôt fragiles (sur un même fil) [DIET 1989]) que les fils dopés (probablement en raison d'une plus grande hétérogénéité chimique), il nous a semblé préférable d'utiliser la nuance dopée pour la réalisation du composite.

Certains [WALTER 1982 et FUNKENBUSH 1979] prétendant que le dopage des fils a un effet bénéfique sur leur résistance mécanique, nous avons effectué des tests comparatifs pour vérifier cette affirmation et évaluer l'écart.

La seconde étape de notre travail concerne plus précisément le matériau composite :

Dans un premier temps, nous avons cherché à établir la faisabilité du matériau composite puis à déterminer ses caractéristiques tant microstructurales que mécaniques.

La faisabilité de mise en forme du composite a, d'abord, été établie avec la machine à 2 marteaux (disponible au laboratoire de l'Ecole des Mines de Saint-Etienne) puis avec celle à 4 marteaux (disponible sur le site de la société Cime-Bocuze, notre partenaire industriel).

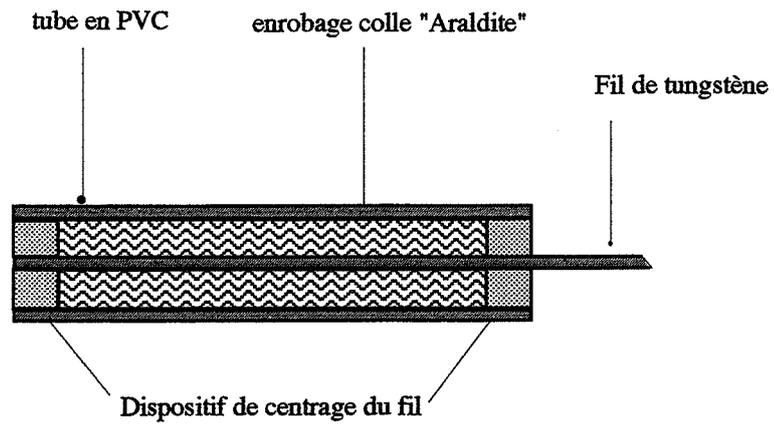


Schéma II.1 : système d'amarrage pour la traction des fils

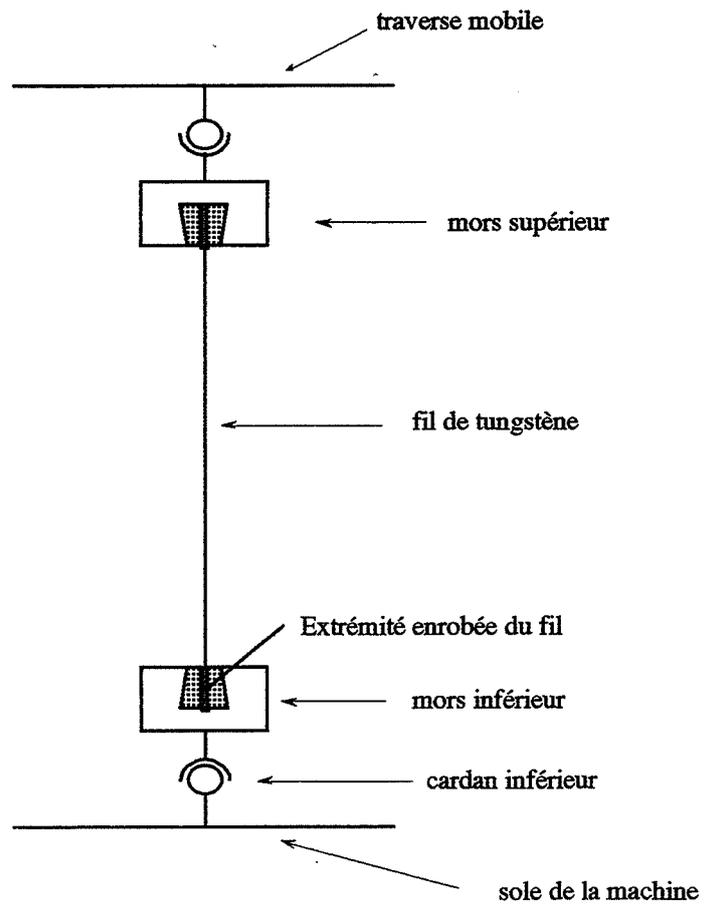


Schéma II.2 : Dispositif de traction à l'ambiante

II.1 - CARACTÉRISATION DES MATÉRIAUX DE BASE

Nous avons tout d'abord testé mécaniquement les constituants de base du composite à l'ambiante (avant et après différents recuits) puis à différentes températures afin de déterminer la température idéale pour le martelage, température pour laquelle il est essentiel de conserver les propriétés des fils de tungstène, d'obtenir un bon écoulement plastique du nickel pour éviter toute porosité interne ainsi qu'une bonne tenue mécanique du container soumis plus directement au martelage. Ces essais ont été complétés par des observations microstructurales.

II. 1.1 - Fibre = fil de tungstène

Différents types de fils (nuance ou diamètre variable) de tungstène ont été testés de manière à évaluer leurs performances.

Deux nuances de tungstène nous ont été fournies par la société Plansee : du tungstène "pur" et du tungstène dopé (K, Si, Al) dont l'analyse chimique figure dans le *tableau II.1*. D'après les données bibliographiques (§ I.2.1-c-), le dopage au potassium a un effet bénéfique sur la résistance des fils de tungstène à haute température et améliore sensiblement ses caractéristiques mécaniques à l'ambiante. Cette nuance s'avère donc intéressante pour la réalisation de notre matériau composite.

Tableau II.1 : Analyse chimique des fils de tungstène

Conc. ppm pds	K	Al	Si	Ca	Cr	Fe	Mo	Ni	Na	C	Ti	O	H	N	P	S
PUR	10	10	30	30	10	50	300	20	20	30	20	30	5	10	50	5
DOPE	70	20	30	30	10	50	300	20	20	30	20	30	5	10	50	5

II.1.1 - a - Caractérisation mécanique des fils de tungstène par traction à l'ambiante

Les essais de traction ont été réalisés sur les fils suivants :

- Fils de diamètre 1 mm nickelés et non nickelés fournis par la société Plansee :
 - Fils de tungstène "pur"
 - Fils de tungstène dopé
- Fils de tungstène "pur" fournis par la société Cime-Bocuze :
 - Fils non nickelés de diamètre 1 mm
 - de diamètre 1,5 mm
 - de diamètre 2,1 mm

Nature des fils	Limite élastique Re (MPa)	Limite conventionnelle d'élasticité à 0,2% R_p (MPa)	Résistance Rm (MPa)	Contrainte à rupture Rr (MPa)	Allongement A (%)	Coefficient de striction Z (%)
Fils Plansee $\dot{\epsilon} = 6 \cdot 10^{-5} s^{-1}$						
Dopé non nickelé ($\phi = 1$ mm)	1348 (5)	1739 (5)	2132 (5)	1700 (5)	2,5 (5)	/
Pur non nickelé ($\phi = 1$ mm)	1345 (4)	1667 (4)	1883 (4)	1549 (4)	1,64 (4)	46 (3)
Dopé nickelé ($\phi = 1$ mm)	1468 (9)	1873 (9)	2306 (9)	1992 (9)	1,6 (9)	41,8 (3)
Pur nickelé ($\phi = 1$ mm)	1188 (4)	1533 (4)	1790 (4)	1622 (4)	1,6 (4)	18,4 (4)
Fils Cime-Bocuze						
Pur non nickelé ($\phi = 1$ mm) $\dot{\epsilon} = 6 \cdot 10^{-5} s^{-1}$	1348 (3)	1724 (3)	1931 (3)	1515 (2)	3,5 (2)	/
Pur non nickelé ($\phi = 1,5$ mm) $\dot{\epsilon} = 10^{-3} s^{-1}$	717 (3)	1320 (3)	1420 (3)	/	6,5 (1)	/
Pur non nickelé ($\phi = 2,1$ mm) $\dot{\epsilon} = 10^{-3} s^{-1}$	548 (3)	936 (2)	1035 (3)	/	/	/

* les valeurs entre parenthèses indiquent le nombre d'éprouvettes prises en compte

Tableau II.2 : Caractéristiques mécaniques en traction à l'ambiante des fils de tungstène

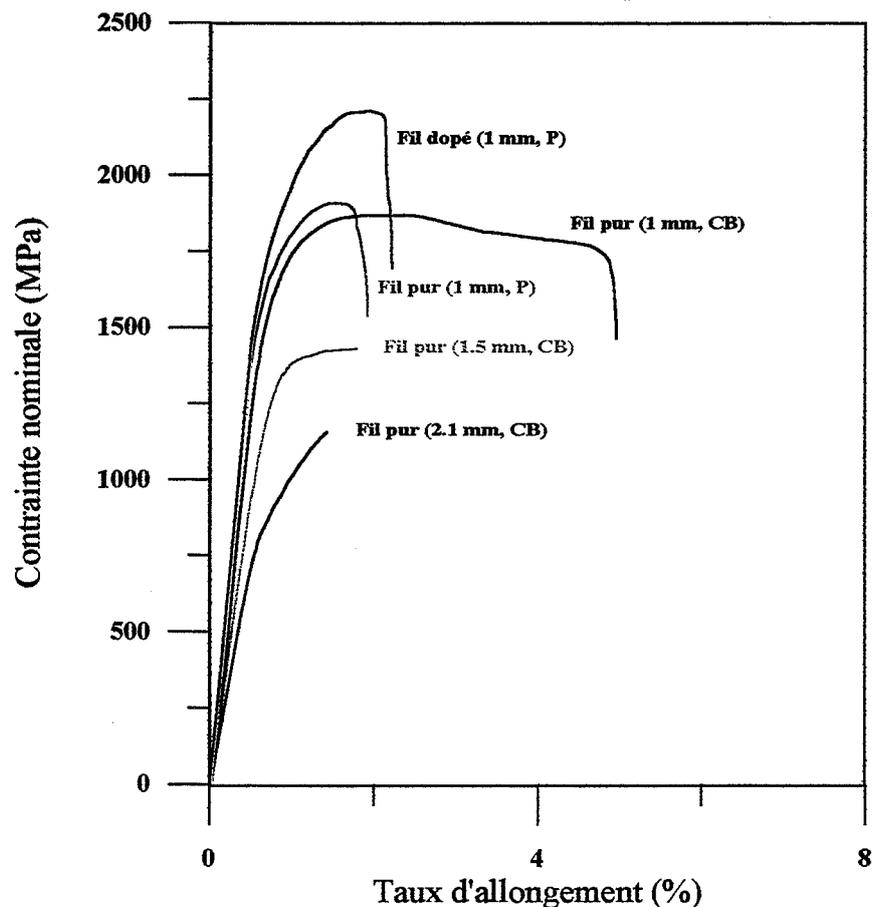


Figure II.1 : Exemples de courbes σ - e de traction (à l'ambiante) de fils de tungstène de diamètre variable

P : fournisseur Plansee
CB : fournisseur Cime-Bocuze

- Procédure expérimentale -

Pour assurer un bon alignement du montage de traction, nous avons utilisé un dispositif à double cardan (un pour chaque système de mordache). Pour éviter d'endommager le fil lors du serrage des mors, nous avons enrobé les extrémités des éprouvettes : tube en P.V.C et colle type araldite (*Schéma II.1*).

Les éprouvettes sont ensuite enserrées dans le dispositif de traction présentée sur le schéma II.2. A chaque extrémité, la longueur de mordache est de 50 mm conformément à la norme NF A03-705 spécifique aux essais sur fils.

- Caractérisation mécanique des fils à l'état brut de tréfilage -

Les fils de tungstène étant relativement fragiles, les essais de traction à l'ambiante ont été effectués à des vitesses de déformation lentes, comprises entre 6.10^{-5} et 10^{-3} s^{-1} ($0,01 <$ vitesse de traverse $< 0,1 \text{ cm/mn}$). Les fils de tungstène ayant une faible sensibilité à la vitesse de déformation, on considérera les propriétés mécaniques indépendamment des vitesses de déformation.

Les principales propriétés mécaniques (R_e , R_p , R_m , $A\%$, $Z\%$) sont données dans le tableau II.2 .

Remarques :

- *Le nickel ayant des caractéristiques mécaniques nettement inférieures à celles des fils de tungstène, nous n'avons pas tenu compte (pour les fils nickelés) dans le calcul des contraintes de l'aire occupée par le dépôt de nickel.*
- *Les mesures d'allongement restent subjectives car les fils adoptent tantôt une rupture ductile tantôt une rupture prématurée de type fragile. La rupture fragile peut être attribuée soit à des hétérogénéités chimiques qui rendent certaines portions du fil plus fragiles (c'est surtout le cas des fils purs [Diet 89]) soit à des faibles écarts d'alignement qui entraînent une rupture par cisaillement du fil.*

L'allure des courbes de traction σ - ϵ (contrainte nominale-déformation conventionnelle) obtenues avec les différents fils sont présentés sur la figure II.1.

Ces essais nous montrent que :

- Les fils de diamètre 1 mm ont une résistance élevée (1800 MPa) et une légère ductilité (2 à 3 %) à température ambiante. Cette ductilité est liée au caractère fibreux de la microstructure des fils (microstructure spécifique au tréfilage (voir § II.1.1-b-))
- La résistance en traction des fils est une fonction décroissante du diamètre. Ceci est dû au caractère fibreux de la microstructure qui s'affine avec l'augmentation du taux de tréfilage donc avec la réduction du diamètre du fil.

Température de recuit (°C)	Fils Plansee						Fils Cime-Bocuze							
	Dopé non nickelé (φ = 1 mm)		Pur non nickelé (φ = 1 mm)		Dopé nickelé (φ = 1 mm)		Pur nickelé (φ = 1 mm)		Pur non nickelé (φ = 1 mm) $\dot{\epsilon} = 6 \cdot 10^{-5} s^{-1}$		Pur non nickelé (φ = 1,5 mm) $\dot{\epsilon} = 10^{-3} s^{-1}$		Pur non nickelé (φ = 2,1 mm) $\dot{\epsilon} = 10^{-3} s^{-1}$	
	Rm (Mpa)	A%	Rm (Mpa)	A%	Rm (Mpa)	A%	Rm (Mpa)	A%	Rm (Mpa)	A%	Rm (Mpa)	A%	Rm (Mpa)	A%
500	2172 (2)	2,5 (2)	1667 (2)	1,08 (2)	2207 (14)	1,7 (5)	1888 (4)	2,1 (5)						
700	2304 (2)	1,8 (1)	1571 (3)	1,02 (3)	2210 (4)	1,7 (5)	1738 (4)	2,0 (5)	1897 (1)	3,8 (1)	1376 (3)	1-2,5 (2)	997 (3)	0,23 (3)
800	2325 (2)	1,3 (2)	1722 (3)	0,8 (3)	2103 (3)	1,9 (3)	1760 (5)	1,6 (2)						
900	2202 (3)	1,4 (3)	1673 (3)	0,33 (3)	2117 (5)	1,4 (7)	1881 (5)	0,6 (4)	2080 (3)	1,03 (3)	1435 (2)	1,3 (2)	1106 (3)	0,2 (3)
1000	2052 (1)	1,4 (1)	1624 (3)	0,92 (3)	2014 (4)	1,1 (8)	1878 (3)	1,3 (4)						
1100	1908 (5)	0,3 (5)	1557 (3)	0,88 (3)	1871 (3)	0,8 (3)	1404 (3)	0,1 (4)	1502 (2)	0,3 (2)	1307 (3)	2,3 (3)	792 (3)	0,25 (3)
1200	1628 (8)	0,5 (4)	1396 (3)	0,13 (3)	1302 (5)	0,04 (7)	658 (5)	0						
1300	1473 (5)	0,03 (5)	982 (3)	0,034 (3)	685 (6)	0	618 (6)	0	598 (3)	0 (5)	484 (2)	0 (2)	223 (2)	0,01 (2)
1400	1371 (3)	0,09 (3)	1126 (3)	0,05 (3)	611 (4)	0	318 (4)	0						

* les valeurs entre parenthèses indiquent le nombre d'éprouvettes pris en compte

Tableau II.3 : Caractéristiques mécaniques des fils en traction à l'ambiante après recuit

Si on compare les fils de diamètre 1 et 2,1 mm, on constate que le fait de multiplier par deux le diamètre du fil induit une réduction de la résistance de plus de 800 MPa.

- L'augmentation du diamètre des fils induit, de plus, une perte de ductilité : les fils de diamètre 1,5 et 2,1 mm se rompent, certes, dans le domaine plastique mais sans striction.
- Le comportement en traction des fils de tungstène "pur" (non nickelés) fournis par Cime-Bocuze est différent de celui des fils fournis par Plansee : ils sont un peu plus résistants et deux fois plus ductiles.
- On vérifie que le dopage permet en effet d'augmenter légèrement la résistance des fils : une augmentation d'environ 200 MPa.

- Évolution des caractéristiques mécaniques des fils en fonction de la température de recuit -

Des recuits ont été effectués sur les fils afin de tester l'influence de la température de recuit sur leurs propriétés mécaniques (le temps de recuit étant fixé à 1 heure). Les recuits ont été effectués sous vide secondaire (10^{-3} Pa) jusqu'à 900°C puis sous balayage d'argon pour les températures de recuit supérieures à 900°C. Le domaine de températures de recuit choisi s'étale entre 500°C et 1400°C.

Les principales propriétés mécaniques (R_m , A%) des fils après ces différents recuits sont données dans le *tableau II.3*.

Sur les *figures II.2 a et b et II.3 a et b*, sont représentées l'évolution de la résistance (*a*) et celle de la ductilité (*b*) des différents fils en fonction de la température de recuit.

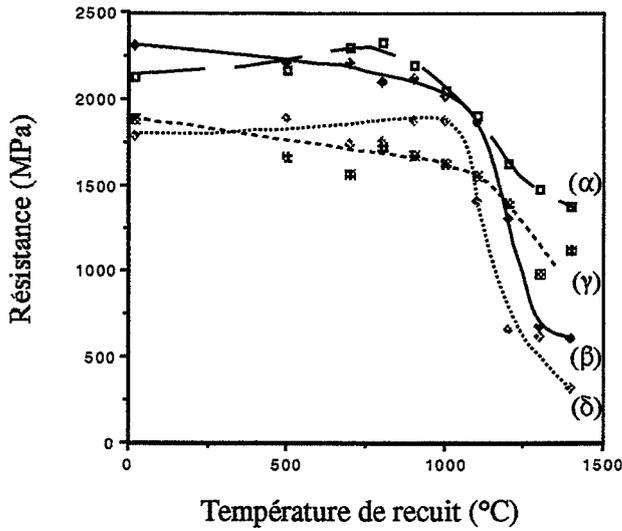
En annexe B (*Figure B-1*), nous pouvons suivre l'évolution des courbes σ - ϵ des fils dopés nickelés en fonction de la température de recuit.

On constate :

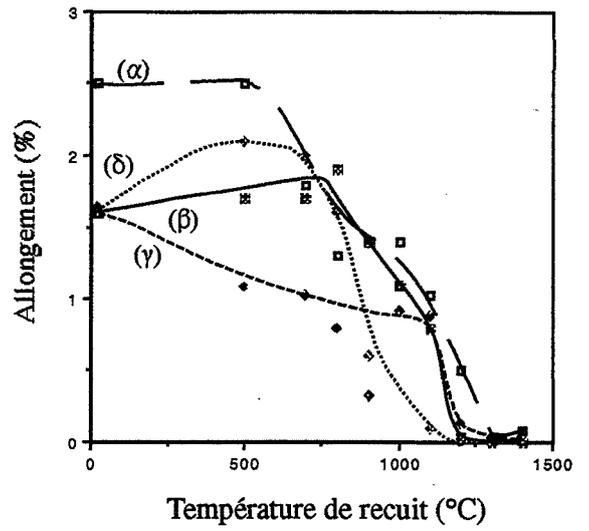
• Effet de la température de recuit (*Figures II.2 a, b et II.3 a, b*):

- Pour des températures de recuit inférieures à 1000°C, une heure de recuit ne suffit pas à altérer les propriétés mécaniques des fils.
- Par contre, pour $T > 1000^\circ\text{C}$, l'augmentation de la température de recuit entraîne une chute de la résistance des fils ("pur" comme dopé) accompagnée d'une perte de ductilité. Cette chute est **progressive** sur les fils **non nickelés** et **brutale** (et plus importante) sur les fils **nickelés**.

Pour les fils **non nickelés**, la chute de résistance et de ductilité peut être attribuée à la recristallisation primaire qui induit la disparition progressive du réseau de polygonisation suivi de l'élargissement des fibres puis (mais uniquement sur les fils **purs**) la croissance de nouveaux grains de forme équiaxe (§ I.2.1).



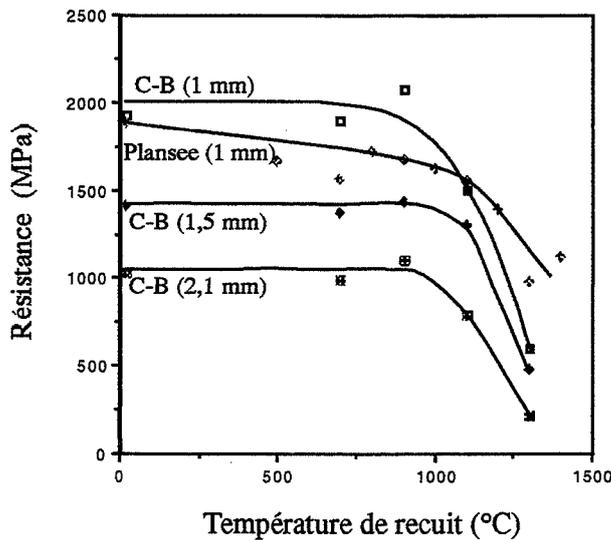
(a) Evolution de la résistance



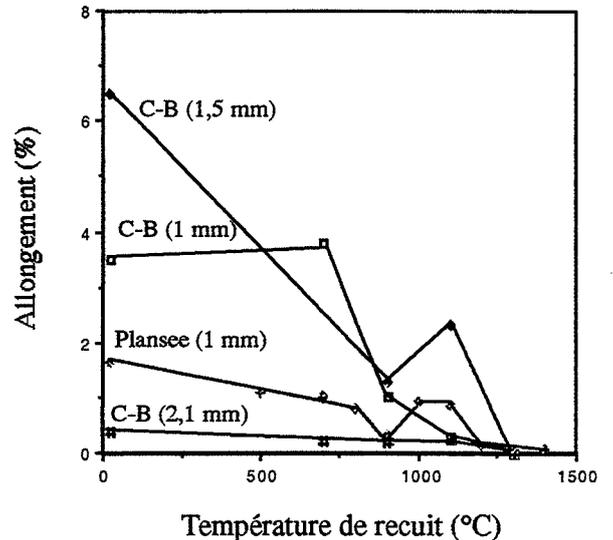
(b) Evolution de l'allongement

Figures II.2 a et b : Evolution des caractéristiques mécaniques des fils de tungstène (diamètre 1 mm, Plansee) en fonction de la température de recuit.

- (α) Fil dopé non nickelé
- (β) Fil dopé nickelé
- (γ) Fil "pur" non nickelé
- (δ) Fil "pur" nickelé



(a) Evolution de la résistance



(b) Evolution de la ductilité

Figures II.3 a et b : Evolution des propriétés mécaniques des fils de tungstène "pur" (diamètres variables) en fonction de la température de recuit.

Au delà de 1100°C, se produit une recristallisation des fils purs (recristallisation normale dite R.N.). Sur les fils dopés, par contre, bien qu'il y ait une chute de résistance et de ductilité, la microstructure fibreuse persiste à haute température.

Ceci signifie donc que la cause principale de la fragilisation des fils **non nickelés** est l'élargissement des fibres plutôt que la transformation des fibres en grains équiaxes.

- **Effet du nickelage**

Le nickel n'influe sur les propriétés mécaniques des fils que pour des températures supérieures à 1100°C. Ceci se traduit par une chute brutale de la résistance et de la ductilité (*Figure II.2 a et b, courbes β et δ*), chute nettement plus importante que sur les fils **non nickelés** (courbes α et γ). Cette chute correspond à une fragilisation des fils par **réaction interfaciale W-Ni** de type diffusion-recristallisation (voir § I.2.2)

Cette chute de résistance (d'environ 1500 MPa) se produit aussi bien sur les fils de tungstène dopé que sur les fils de tungstène "pur". La température (1150-1200°C) correspondant à la perte totale de ductilité (rupture dans le domaine élastique) est peu différente entre fil pur et fil dopé nickelés.

Pour les fils purs **non nickelés**, cette perte totale de ductilité se produit vers 1300°C. Par contre, les fils dopés **non nickelés** conservent jusqu'à 1400°C, une certaine ductilité (*Figures II.2 b ou figures B-1 (dopé nickelé) de l'annexe B*).

- **Influence du dopage** (*Figures II.2 a et b*):

Quelle que soit la température de recuit, le fil de tungstène dopé possède toujours une résistance et une ductilité supérieures à celles du fil de tungstène "pur". Ceci se vérifie aussi bien sur les fils nickelés que non nickelés.

- **Influence du dopage sur la réaction interfaciale W-Ni** (*Figures II.2 a et b*)

La chute de résistance étant identique sur fils dopés et purs, on en conclut que le dopage (au potassium) est inefficace face à la réaction interfaciale : il ne permet pas d'enrayer la fragilisation des fils.

L'étude micrographique des faciès de rupture (voir § II.1.1-b-) nous permettra une meilleure compréhension de la réaction interfaciale.

Remarque :

Dans l'annexe B, sont représentées sur la figure B-1, les courbes de traction σ - ϵ correspondant aux fils dopés nickelés. Ces courbes permettent de mieux appréhender l'évolution du comportement mécanique des fils nickelés avec la température de recuit notamment le passage du domaine ductile au domaine fragile.

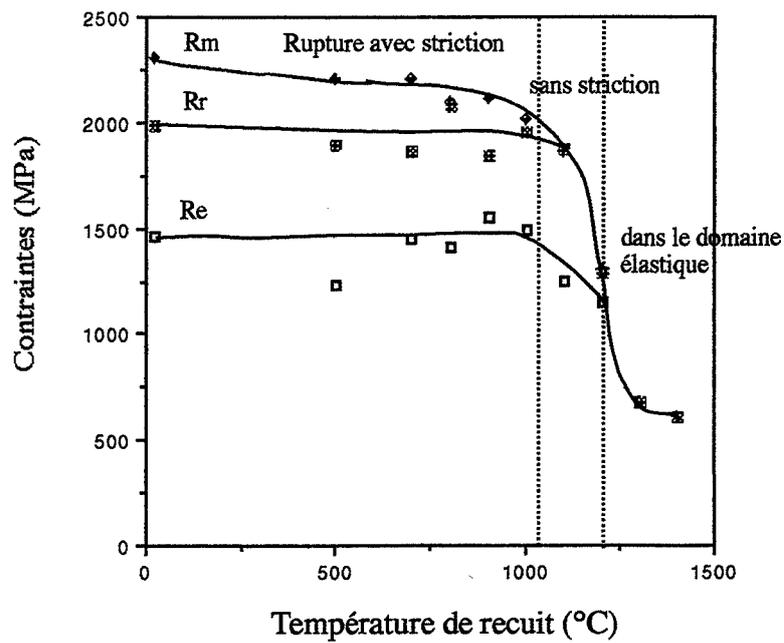
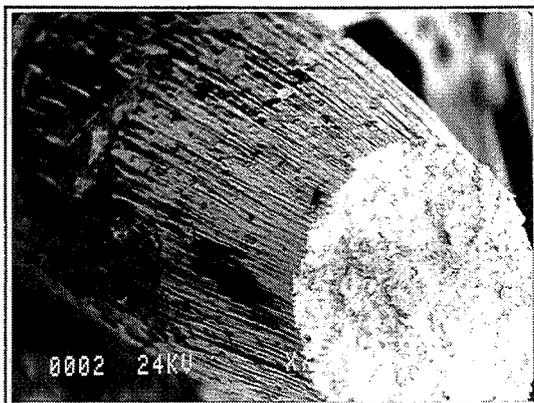
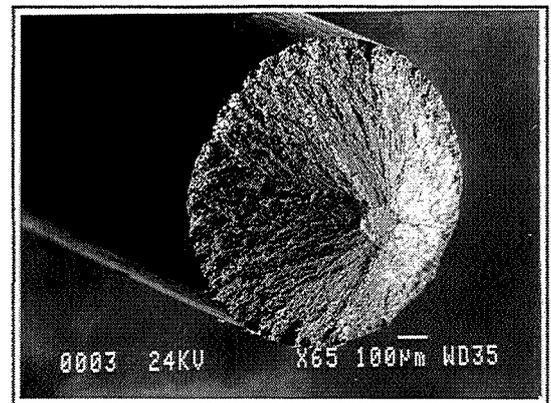


Figure II.4: Evolution du comportement en traction des fils dopés nickelés en fonction de la température de recuit au travers des contraintes (Re, Rm, Rp).



(a) Rupture ductile avec striction



(b) Rupture fragile

Micrographies II.1 a et b : Modes de rupture des fils de tungstène.
(a) ductile avec striction ou (b) fragile

Cette transition ductile-fragile est illustrée sur la *figure II.4* pour le cas particulier du fil dopé nickelé. On différencie trois domaines :

- A basse température ($T < 1000^{\circ}\text{C}$), le fil ductile rompt avec striction (*Micrographie I.1 a*).
- Entre 1000 et 1200°C , le fil semi-fragile possède encore une certaine capacité à la déformation plastique mais rompt sans striction (*Micrographie I.1 b*).
- A $T > 1200^{\circ}\text{C}$, le fil est fragile et rompt dans le domaine élastique.

• **Effet du diamètre des fils** (*Figures II.3 a et b*)

Seuls sont concernés, pour cette étude, les fils de tungstène "pur" non nickelés fournis par la société Cime-Bocuze. On constate que :

- La résistance des fils est une fonction décroissante du diamètre et ce quelle que soit la température de recuit.
- La chute de la résistance des fils s'amorce vers 1000°C indépendamment du diamètre du fil.
- Pour $T_{\text{recuit}} \leq 1000^{\circ}\text{C}$, les fils de diamètre 1 mm fournis par Cime-Bocuze semblent avoir des propriétés mécaniques (R_m et $A\%$) légèrement meilleures que les fils fournis par Plansee. Au delà de cette température, la tendance s'inverse indiquant que les fils Plansee résistent un peu mieux au phénomène de recristallisation primaire en raison vraisemblablement d'une concentration en potassium non nulle (10 ppm pds).

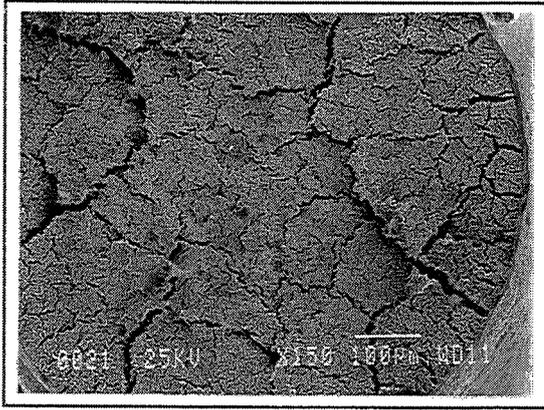
En conclusion, nous pouvons dire que :

- 1- La réaction interfaciale (diffusion-recristallisation) due à la présence du nickelage se produit à températures supérieures à 1000°C et conduit à une diminution importante de résistance (\approx de 500 MPa) et une perte totale de ductilité.
- 2- Le dopage n'a, semble-t-il, aucun effet sur cette réaction interfaciale. Il ne permet donc pas d'éviter ni de retarder la fragilisation des fils de tungstène par le nickel.
- 3- Plus le diamètre du fil de tungstène est petit, meilleures sont ses propriétés mécaniques.

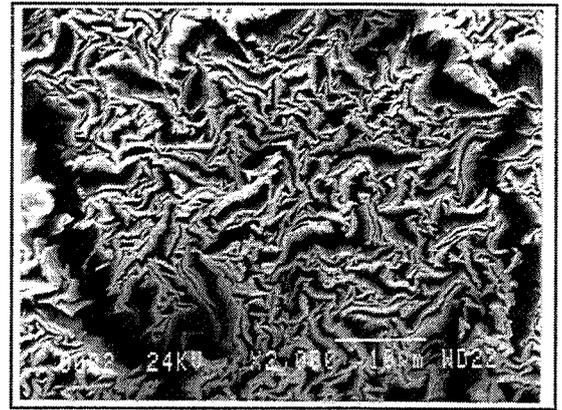
II. 1.1 - b - Évolution microstructurale des fils avec la température de recuit

Les essais de traction réalisés sur les fils (fils Plansee) ont révélé, de manière macroscopique, deux types de comportement :

- Rupture ductile aux basses températures de recuit : déformation homogène du fil accompagnée ou non d'une striction (*Micrographie II.1 a*).
- Rupture fragile aux températures de recuit élevées : dans le domaine élastique ou après une très légère déformation plastique homogène du fil (*Micrographie II.1 b*).

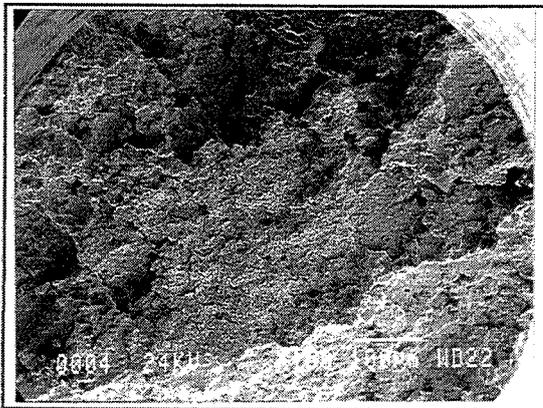


(a) x 150

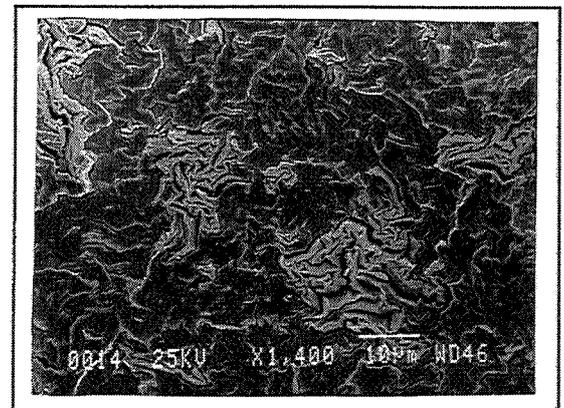


(b) x 2000

Micrographies II.2 a et b : Faciès de rupture de type ductile

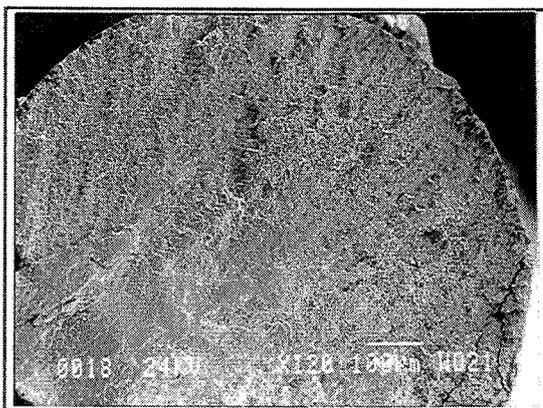


(a) x 150

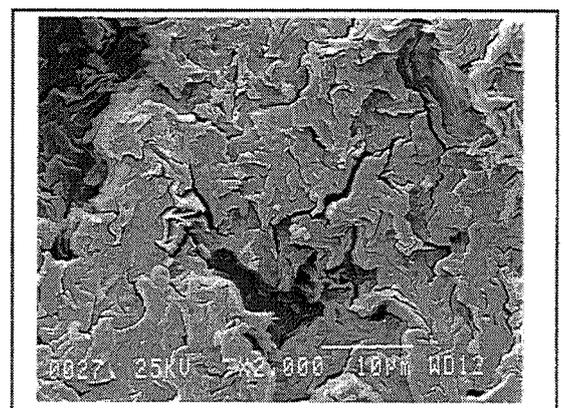


(b) x 1400

Micrographies II.3 a et b : Faciès de rupture mixte: clivage-ductile



(a) x 120



(b) x 2000

Micrographies II.4 a et b : Faciès de rupture de type clivage "plat"

L'observation des faciès de rupture (en microscopie électronique à balayage) permet de constater que la chute des propriétés mécaniques (liée à l'augmentation de la température de recuit) est associée à une modification progressive de la microstructure des fils. Cependant, la fragilisation importante des fils nickelés peut s'expliquer par l'apparition de la réaction interfaciale W-Ni qui conduit à une transformation microstructurale plus spectaculaire.

Les valeurs de température correspondant au début de chaque modification de microstructure sont données pour chaque type de fil dans le *tableau II.4*.

* Aux basses températures de recuit (inférieure approximativement à 800°C) :

Les paramètres (nature du tungstène (pure ou dopée), état nickelé ou non) ne change rien aux caractéristiques microstructurales.

Aux basses températures de recuit, le faciès de rupture des fils présente un aspect ductile donnant lieu à une striction du fil au moment de la rupture (*Micrographie II.2 a*). La surface de rupture parcourue de crevasses révèle l'aspect fibreux de la microstructure (§ I.2.1-b-). Ce mode de rupture résulte d'un phénomène de délaminage et de décohésion inter-fibres. Chaque fibre subit une striction à 100 % lui conférant, après rupture, un aspect en "lame de couteau" (*Micrographie II.2 b*).

* Aux températures intermédiaires :

Le faciès de rupture se modifie progressivement et tend vers un faciès de type clivé. La transition donne lieu à un faciès de type mixte. Il se caractérise par la présence conjointe de plaques ductiles et de plaques de clivage "plat" (*Micrographies II.3 a et b*). Tant que persiste le caractère ductile, on observe une striction sur le fil au moment de la rupture.

Lorsque le faciès est 100% clivé, la surface est alors exempte de crevasses. Les fibres clivent dans le plan (110) donc perpendiculairement à l'axe du fil.

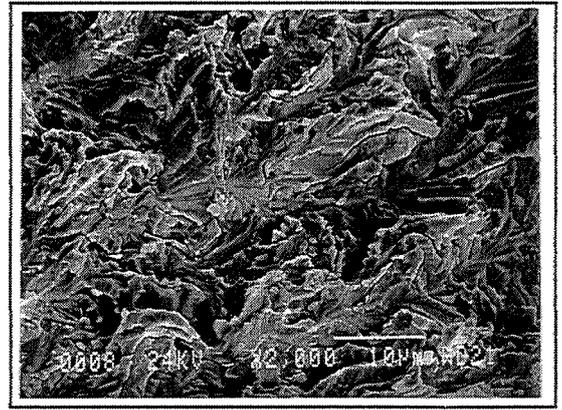
Le phénomène de striction disparaît mais le fil conserve cependant une certaine ductilité liée à la déformation plastique homogène (*Figure B-1* de l'annexe B correspondant à un fil dopé, recuit à 1000°C).

Le clivage ainsi défini peut, cependant à fort grossissement, présenter deux aspects distincts :

- un clivage de type "plat" (*Micrographies II.4 a et b*) qui présente un aspect à facettes caractérisé par la rupture nette des fibres sous forme de blocs dans le plan (100) (perpendiculaire à l'axe des fils). La rupture de chaque bloc se produit à différents niveaux (comme pour un matériau composite uniaxial), chaque bloc étant encerclé d'une fissure caractéristique d'un léger délaminage.
- un clivage avec "rivières" (ou crénelé ou en "feuille de chêne") (*Micrographies II.5 a et b*) ne permettant plus de discerner la structure fibreuse des fils. Ce type de clivage apparaît, semble-t-il, à température un peu plus élevée que le clivage plat et caractérise notamment

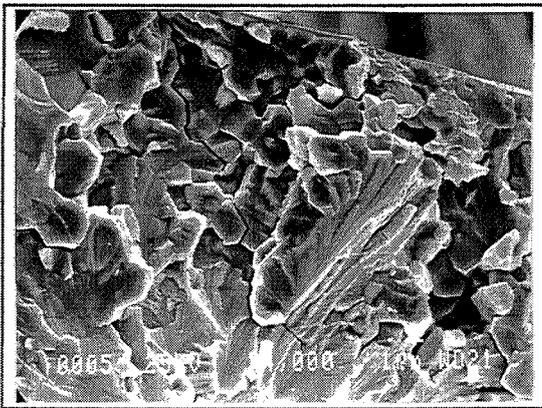


(a) x 110

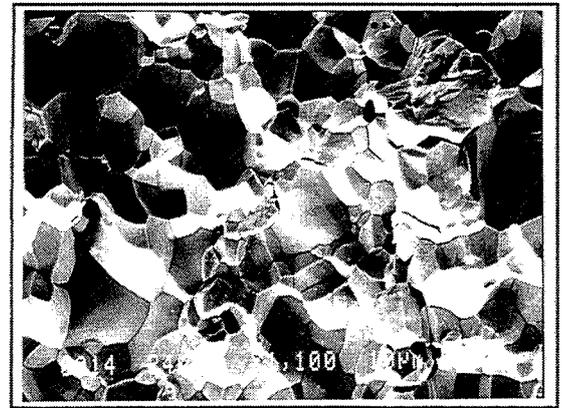


(b) x 2000

Micrographies II.5 a et b : Faciès de rupture de type clivage "crénelé"

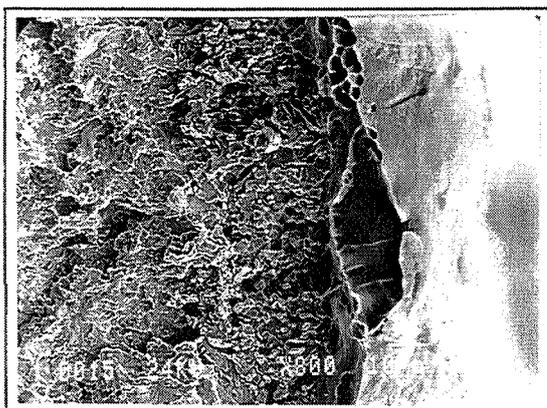


(a) Fil dopé non nickelé (x 4000)

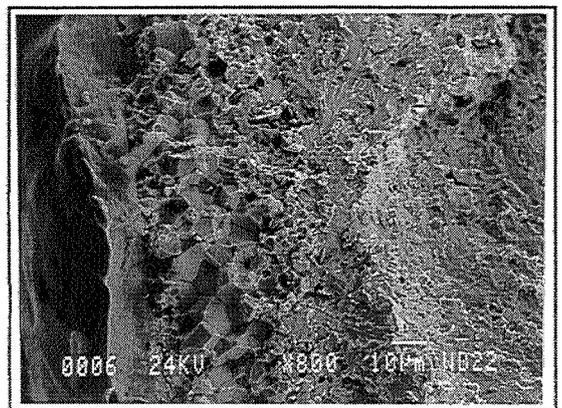


(b) Fil "pur" non nickelé (x 1100)

Micrographies II.6 a et b : Recristallisation "normale" (R.N.) sur fils non nickelés recuit à 1400°C pendant 1 heure.



(a) Fil dopé nickelé (x 800)



(b) Fil pur nickelé (x 800)

Micrographies II. 7 a et b : Faciès de rupture mixte: clivage-intergranulaire après un recuit à 1100°C pendant 1 heure.

le coeur des fils nickelés recuits à $T > 1200^{\circ}\text{C}$. Ce type de clivage pourrait résulter de l'élargissement des fibres par polygonisation (§ I.2.1-d-) puis apparition de quelques grains clairsemés de recristallisation "normale".

* Aux températures élevées (supérieures à 1000°C) :

Sur les fils non nickelés, l'augmentation de la température de recuit entraîne :

- Pour les fils de tungstène pur, l'apparition dès 1200°C , au milieu du faciès clivé, de petits grains équiaxes de recristallisation primaire. A partir de 1300°C , la rupture devient majoritairement intergranulaire avec, par endroits, une rupture transgranulaire de gros grains (*Micrographie II.6 b*).
- Pour les fils de tungstène dopé, on observe aussi l'apparition de quelques petits grains équiaxes mais leur croissance est quasi-inexistante jusqu'à 1400°C (*Micrographie II.6 a*). Ceci confirme donc bien que le dopage au potassium permet de retarder la recristallisation "normale" en empêchant la croissance des grains (§ I.2.1-d-).

Sur les fils nickelés, on observe l'apparition de la réaction interfaciale W-Ni dès 1100°C aussi bien sur les fils purs que dopés .

Cette réaction se caractérise par l'apparition de petits grains équiaxes près de l'interface W-Ni (*Micrographie II.7 a* pour le fil dopé, *Micrographie II.7 b* pour le fil "pur") puis la croissance rapide de ces grains entraînant la formation d'un anneau de recristallisation qui progresse radialement vers le coeur du fil au dépens de la microstructure fibreuse d'origine. L'épaisseur de l'anneau ainsi que la taille des grains augmente avec la température de recuit.

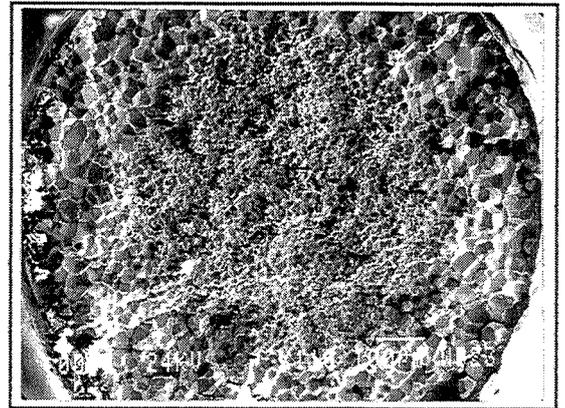
L'évolution microstructurale des fils dopés diffère cependant de celle des fils purs en terme de cinétique de croissance des grains et d'avance du front de recristallisation. Ceci conduit à observer des modes de rupture différents sur ces deux types de fils pour une température de recuit identique :

- Sur le fil dopé, l'épaisseur de l'anneau augmente entre 1100 et 1400°C mais n'atteint pas le centre du fil qui conserve jusqu'à 1400°C un coeur fibreux (*Micrographies II.8 a* (α et β)). Le mode de rupture est alors mixte : intergranulaire dans l'anneau et transgranulaire au coeur du fil (clivage "crénelé").
- Sur le fil "pur", la taille des grains dans l'anneau est supérieure à celle mesurée sur les fils dopés. L'avance du front de recristallisation est moins rapide que sur le fil dopé.

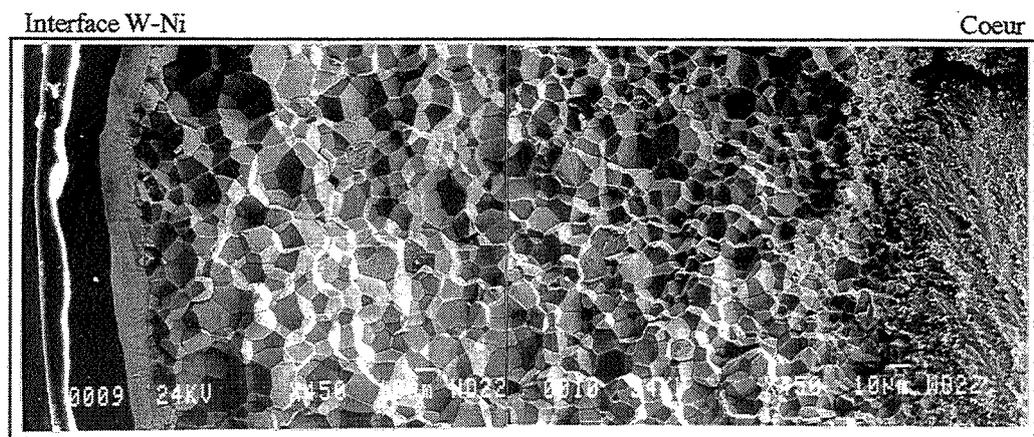
A partir de 1300°C , le coeur des fils purs subit une totale recristallisation "normale", le mode de rupture des fils purs devient alors totalement intergranulaire avec une différence de taille de grains entre l'anneau et le coeur : les grains sont plus petits à coeur (*Micrographies II.8 b* (α et β)).



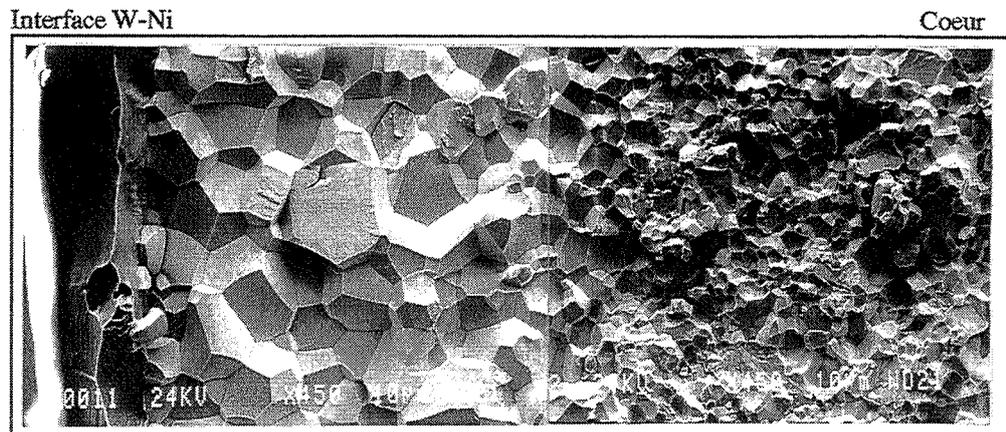
(a) Fil dopé nickelé (x 110)



(b) Fil pur nickelé (x 110)



(c) Rupture mixte d'un fil dopé nickelé : intergranulaire dans l'anneau R.I. et clivage à coeur (x 450)



(d) Rupture intergranulaire d'un fil pur nickelé dans l'anneau R.I. comme à coeur (x 450)

Micrographies II.8 a, b, c, d : Faciès de rupture des fils nickelés dopés (a et c) et "purs" (b et d) après un recuit à 1400°C pendant 1 heure.

La réaction interfaciale se manifeste donc par un phénomène de recristallisation. De manière à distinguer les deux types de recristallisation, on appellera :

R.I. : la Recristallisation Induite par le nickel (réaction interfaciale).
R.N. : la Recristallisation "Normale" (simple effet thermique).

La différence de taille de grains R.I. entre fils purs et fils dopés résulte vraisemblablement de la présence (uniquement sur les fils dopés) des bulles aux joints des grains R.I. (*Micrographie II.9 a* pour le pur et *II.9 b* pour le dopé).

Ces bulles formées au cours du recuit en raison du caractère fortement volatil du potassium joue donc le même rôle que vis à vis de la recristallisation R.N. c'est à dire qu'elles freinent la migration des joints de grains.

Cependant, contrairement à la recristallisation R.N., la présence de ces bulles ne permet pas d'élever la température de recristallisation R.I. puisque le phénomène R.I. apparaît à la même température sur le fil pur et le fil dopé.

Remarque :

On notera qu'au chapitre bibliographique (I.2.1-d-), il était fait mention que pour des diamètres de fils allant de 2,8 à 0,6 mm (cas de nos fils), la densité des bulles est considérée comme insuffisante pour réellement freiner la recristallisation "normale", ce qui donne lieu à une microstructure de recristallisation quasi-équiaxe.

La forme équiaxe des grains recristallisés obtenue est certes bien différente de celle des filaments où la densité des bulles est telle qu'elle donne lieu à une microstructure de recristallisation R.N. particulière (grains R.N. allongés et fortement enchevêtrés), la sinuosité des joints étant le signe de l'effet de "frein" exercé par les bulles sur la migration des joints.

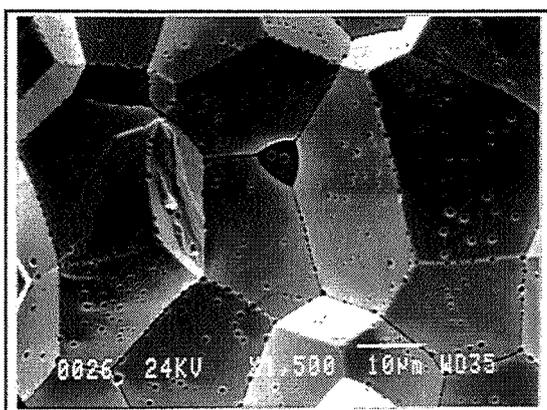
Mais, en dépit d'une microstructure équiaxe, nos observations ont montré que la densité des bulles dans un fil de 1 mm permettait, tout de même, de freiner la croissance des grains (tout au moins dans notre domaine de températures).

Donc, quel que soit le diamètre du fil, le dopage peut jouer son rôle de frein vis à vis de la croissance des grains sans donner lieu forcément à la microstructure de recristallisation (particulière) des filaments dopés.

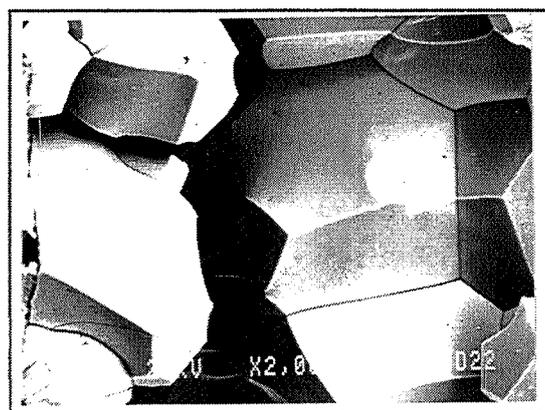
La *Micrographie II.10 a* qui montre un faciès de rupture longitudinale (parallèlement à l'axe du fil) d'un fil dopé permet une meilleure observation de la zone de transition entre le coeur fibreux et l'anneau de recristallisation R.I. La zone de transition est très étroite (pas plus d'une trentaine de microns), ce qui signifie que la transformation R.I. est très rapide.

Fils	Température de transition ductile-clivage	Température de recristallisation "normale"	Température de recristallisation "induite"
dopé non nickelé	≈800	1200	/
dopé nickelé	≈800	1200	> 1100
pur nickelé	≈800	1200	1100

Tableau II.4 : Températures correspondant aux changements microstructuraux.



(a) Bulles de potassium aux joints des grains R.I. d'un fil dopé (x 1500)

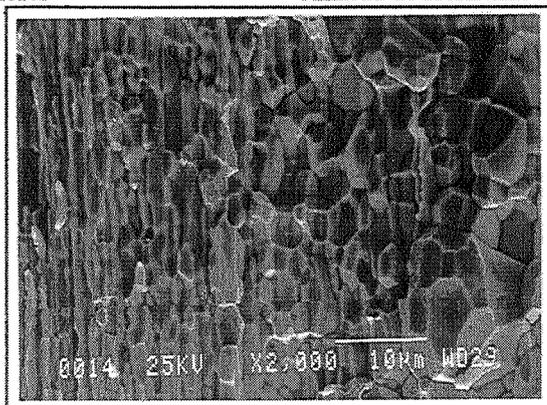


(b) Joints de grains R.I. d'un fil "pur" (x 2000)

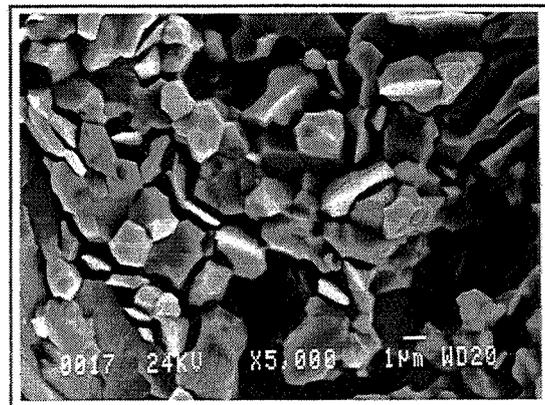
Micrographies II.9 a et b : Joints des grains R.I. sur faciès de rupture de fils nickelés (dopés et "purs") après recuit (x 1500).

Fibres

Anneau de recristallisation R.I.



(a) Interface anneau R.I -coeur fibreux
Fil recuit à 1400°C pendant 1 heure
Vue longitudinale (x 2000)



(b) Apparition des grains R.I. près de l'interface
Fil recuit à 1100°C pendant 1 heure
Vue transversale (x 2000)

Micrographies II.10 a et b : Recristallisation induite par le nickel (R.I.) sur le fil dopé nickelé.

Dans cette zone transition, les grains R.I. en cours de croissance ont une forme ovale avant de devenir équiaxe. Ceci laisse supposer que les grains R.I. ne sont pas issus d'un processus de germination mais correspondent plutôt à une évolution microstructurale des fibres en grains équiaxes. Ce mode de recristallisation est alors tout à fait similaire à la recristallisation R.N. spécifique aux fils de tungstène (§ I.2.1-d-) excepté le fait qu'elle se produit à température inférieure. Les grains R.I. seraient alors la conséquence d'un élargissement des fibres et croissance de sous-joints privilégiés (*Schéma II.3*).

Pour plus de détails concernant ce phénomène de recristallisation induite par le nickel, se reporter au chapitre III.

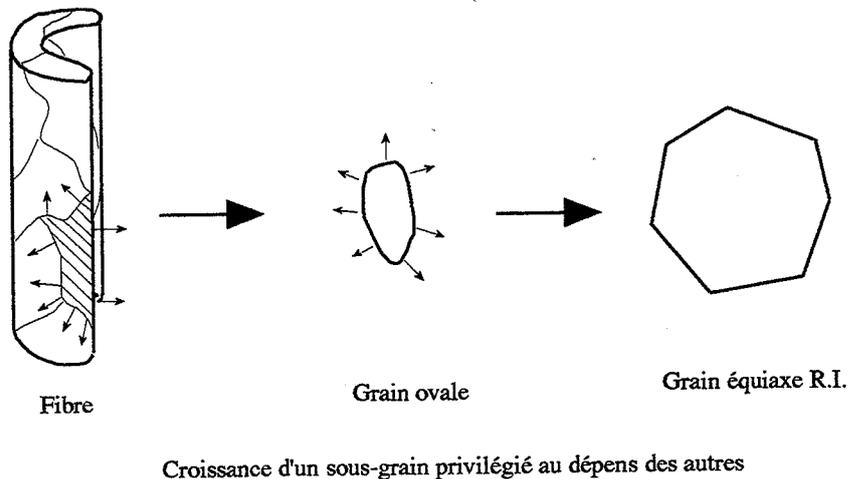
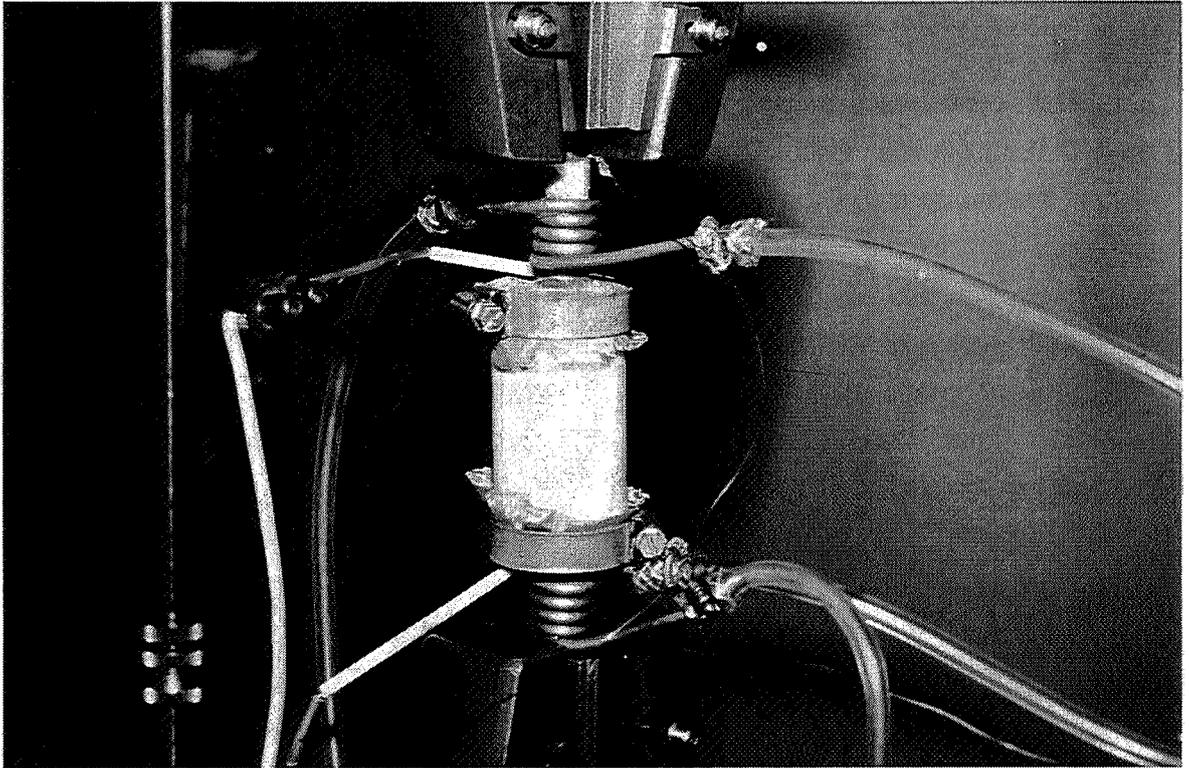
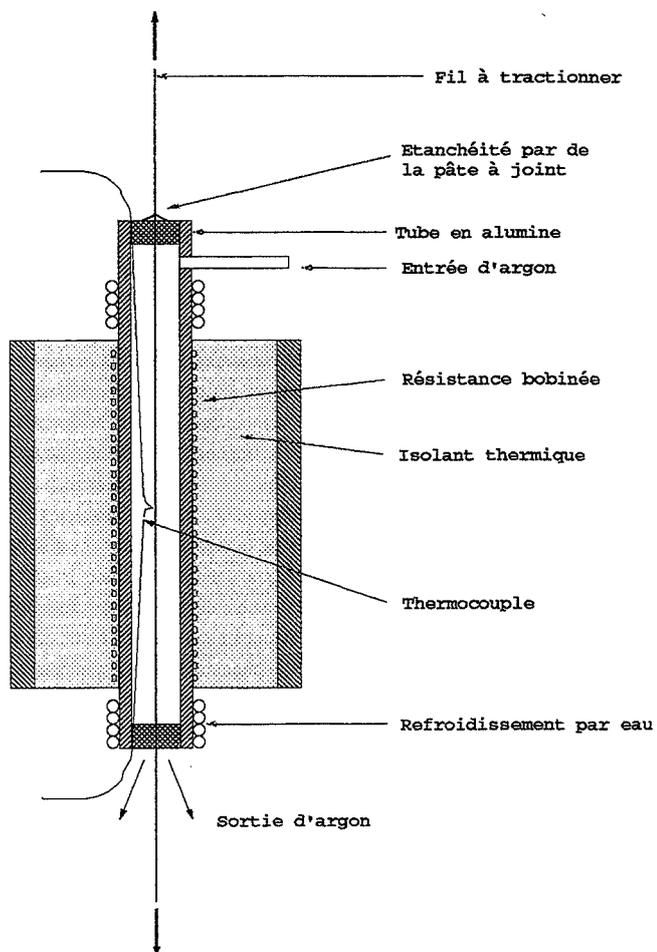


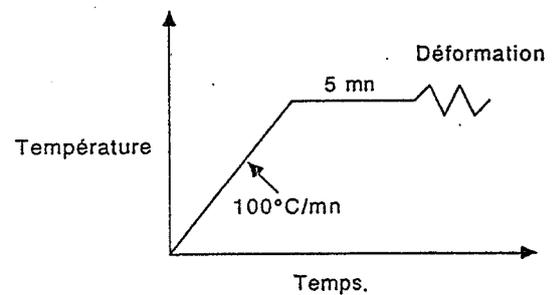
Schéma II.3 : Evolution microstructurale d'une fibre en grain équiaxe au cours de la recristallisation R.I.



(a) Photographie du montage



(b) Représentation schématique du mini-four



(c) Cycle thermique utilisé

Figures II.5 a et b : Dispositif pour les essais de traction à chaud des fils.

II. 1.1 - c - Traction à chaud des fils de tungstène

- Procédure expérimentale -

Ces essais ont été effectués sur les fils purs de Cime-Bocuze (non nickelés, de diamètre 1 mm) et les fils Plansee : dopés (nickelés et non nickelés) et purs (nickelés).

Un montage spécifique a été réalisé de manière à chauffer le fil sur toute sa longueur sans risque pour le système de mordage (*Figures II.5 a et b*). L'essai de traction s'effectue sous balayage d'argon afin d'éviter l'oxydation du fil en cours d'essai. La température est contrôlée par un thermocouple placé à l'intérieur du four près du fil.

Comme nous le montre la *Figure II.5 c*, la vitesse de montée en température est de 100°C/mn. Ce four présente cependant l'inconvénient de donner lieu à un gradient thermique le long du fil (longueur du fil étant d'environ 100 mm) avec un point de chauffe maximale au milieu sur une zone de longueur estimée à environ 3 mm. La mesure de la température (par le thermocouple) spécifique à chaque essai se fait en ce point de chauffe maximale.

- Caractéristiques mécaniques à chaud des fils -

Les fils ont été sollicités en traction à une vitesse de déformation de 10^{-4} s^{-1} ou $5,5 \cdot 10^{-5} \text{ s}^{-1}$. Le domaine de températures choisi s'étend entre 200 et 1200°C.

A titre d'exemple, l'évolution des courbes σ - ϵ des fils dopés nickelés en fonction de la température de l'essai sont présentées en annexe B.

Le *tableau B (Annexe B)* donne les valeurs de limite élastique (R_e), de résistance maximale (R_m), d'allongement (A%) et du coefficient de striction (Z%) des différents fils.

Résistance en traction

La *figure II.6* permet de suivre l'évolution de la résistance maximale pour chaque fil en fonction de la température de l'essai : diminution monotone de la résistance avec l'augmentation de la température d'essai.

Comme pour les essais à l'ambiante, on constate une légère supériorité de résistance des fils dopés par rapport aux fils purs (quelle que soit la température de l'essai) et une légère supériorité des fils pur Cime-Bocuze sur les fils Plansee.

A 900°C, la résistance des fils dopés n'est plus que de 1200 MPa soit environ 700 MPa de moins qu'à l'ambiante.

Ductilité

Du fait du gradient thermique, les valeurs d'allongement n'ont pas une réelle signification. Cependant, nous les avons mesurées et représentées sur la *figure II.7 a* où on observe une relative stabilité de A% entre 400 et 1200°C.

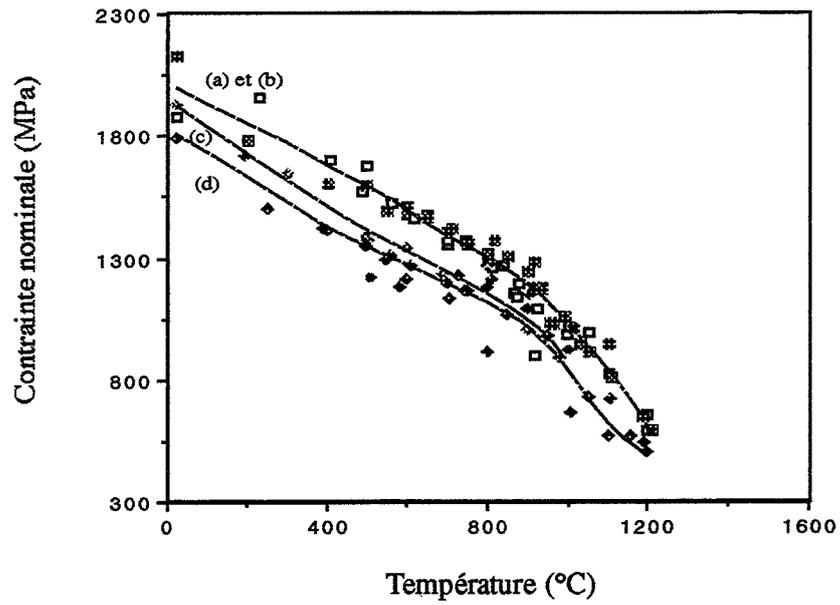


Figure II.6 : Résistance en traction à chaud des fils de tungstène.

- (a) Fil dopé nickelé (Plansee)
- (b) Fil dopé non nickelé (Plansee)
- (c) Fil pur non nickelé (Cime-Bocuze)
- (d) Fil pur nickelé (Plansee)

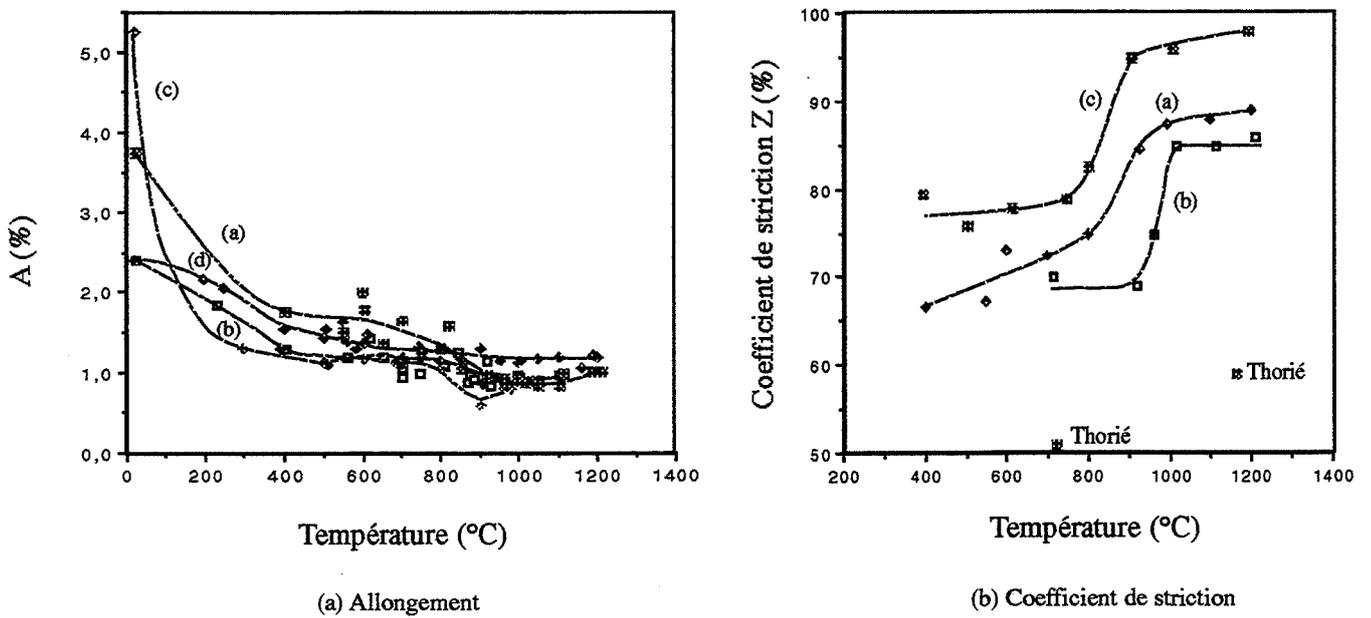


Figure II.7 a et b : Ductilité des fils (1 mm) en fonction de la température de l'essai de traction.

- (a) Fil dopé nickelé (Plansee)
- (b) Fil dopé non nickelé (Plansee)
- (c) Fil pur nickelé (Plansee)

La mesure du coefficient de striction, d'après l'observation des faciès de rupture, permet une meilleure estimation de la ductilité des fils.

L'évolution des faciès de rupture d'un fil dopé nickelé entre 400°C (*Micrographies II.11 a*) et 900°C (*Micrographies II.11 b*) permet d'évaluer l'évolution de Z%.

Pour comparer le comportement des fils purs et dopés en traction à chaud, nous montrons les faciès de rupture obtenus suite à un essai à 900°C sur un fil dopé non nickelé et un fil pur nickelé (*Micrographies II.12 a et b*).

Sur la *figure II.7 b*, est représenté l'évolution du coefficient de striction en fonction de la température de l'essai pour les trois fils Plansee : dopé (non nickelé, nickelé) et pur nickelé.

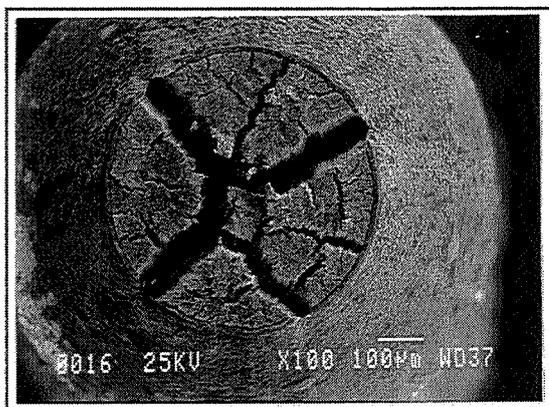
Ceci permet de mettre en évidence une soudaine augmentation de ductilité entre 800 et 1000°C pour les trois fils. Cette augmentation de ductilité est peut-être lié au phénomène de restauration-polygonisation qui se produit dans ce domaine de température (§ I.2.1-d-).

Cette augmentation de ductilité des fils apparaît intéressante pour la mise en forme du composite par martelage puisqu'elle intervient dans un domaine de températures correspondant à celui envisagé pour la température de martelage. On peut donc s'attendre à ce qu'il y ait une meilleure déformation plastique des fils au cours de la mise en forme pour $T > 800^\circ\text{C}$. Ceci permet de supposer aussi un moindre risque d'endommagement des fils (par rupture fragile) au cours de l'élaboration du composite.

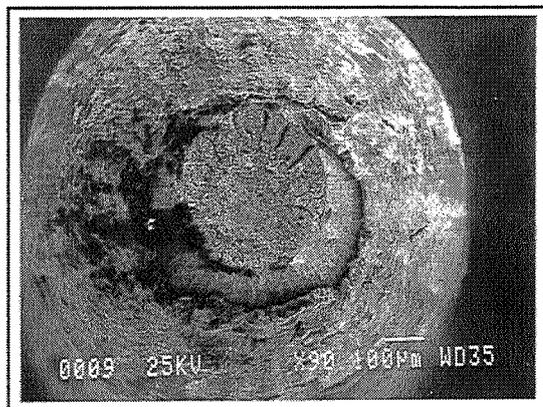
Remarque : dopage au thorium des fils

La mesure du coefficient de striction effectué sur certains fils "purs" (températures de 720°C et 1160°C) ont donné des valeurs nettement plus basses (Figure II.7 b). L'observation des faciès de rupture de ces fils a révélé la présence d'un grand nombre de précipités d'oxyde de thorium ThO_2 (diamètre entre 1 et 5 μm) aux joints des fibres (Micrographie II.13 b et c).

L'oxyde de thorium est parfois utilisé dans la métallurgie du tungstène comme élément d'ajout servant à freiner la recristallisation. En traction à chaud, ces précipités semblent constituer des sites d'amorçage pour la fissuration car ils fragilisent les fils. La présence de ces précipités correspond vraisemblablement à une pollution accidentelle au cours de la fabrication des fils. L'observation des précipités de thorie sur faciès de rupture et sections polies de fils (purs et dopés) recristallisés suite à un recuit à 1400°C-16h a montré que la thorie se localise aussi bien aux joints des grains R.I. (Micrographie II.14 a) qu'à l'intérieur des grains (Micrographie II.14 b).

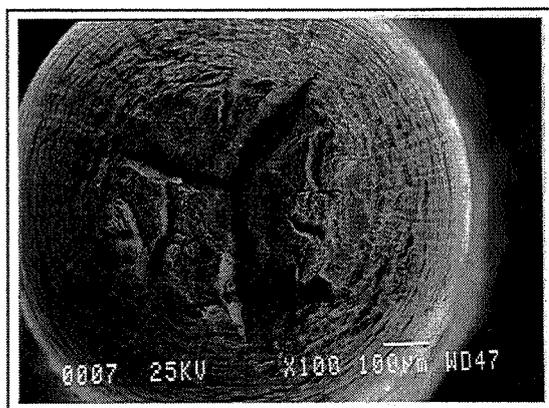


(a) 400°C

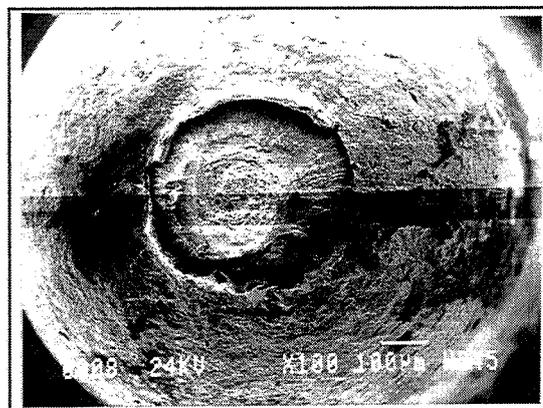


(b) 924 °C

Micrographies II.11 a et b: Evolution du faciès de rupture d'un fil dopé nickelé suite à un essai de traction réalisé à 400°C et un essai à 900°C.



(a) dopé non nickelé



(b) "pur" nickelé

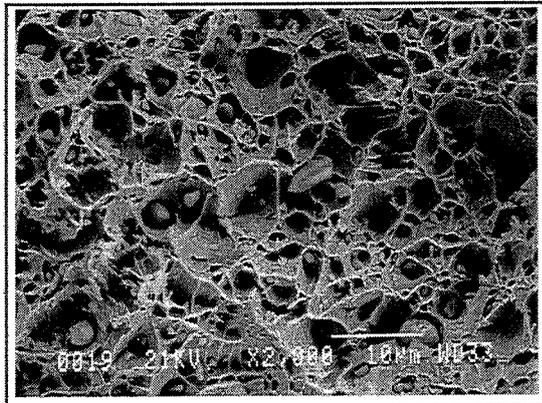
Micrographies II.12 a et b : Faciès de rupture d'un fil dopé non nickelé et d'un fil "pur" nickelé suite à un essai de traction réalisé à 900°C.



(a) Faciès de rupture en l'absence de thorine

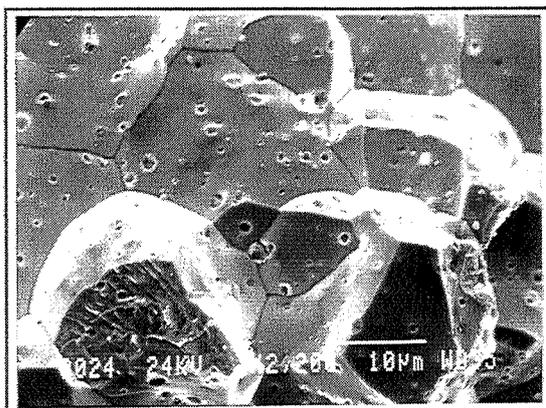


(b) Faciès de rupture en présence de thorine

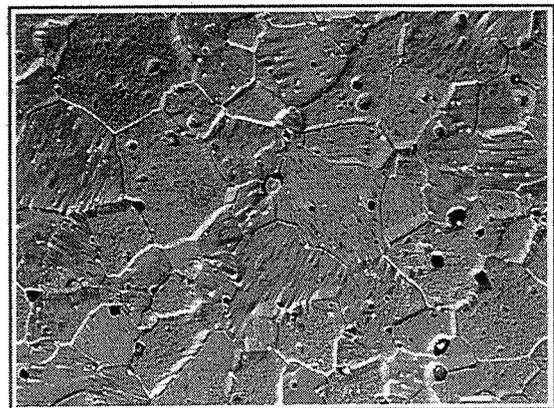


(c) Précités nombreux de thorine

Micrographies II.13 a, b et c : Influence de la présence de précipités de thorine sur la ductilité des fils "purs" suite à une traction à 730°C.

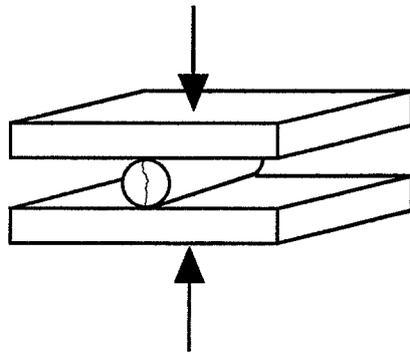


(a) Joints des grains R.I. sur le faciès de rupture d'un fil "pur"

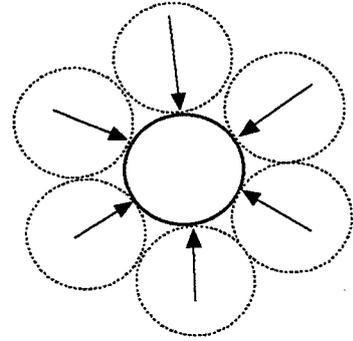


(b) Section polie et chimiquement attaquée d'un fil dopé (échelle = 10 µm)

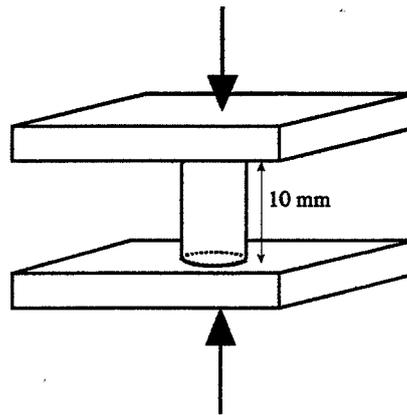
Micrographies II.14 a et b : Localisation des précipités de thorine dans les fils de tungstène thorié.



(a) Compression transversale



(b) Martelage = Compression localisée en six points



(c) Compression longitudinale

Schémas II.4 a, b et c : Représentation schématique des deux essais de compression réalisés sur fils de tungstène et de la compression par martelage.

II.1.1 - d - Compression longitudinale et transversale des fils

Ces essais de compression à l'ambiante réalisés au sein du laboratoire [Diet 89] ont pour but d'évaluer le comportement des fils à des divers sollicitations mettant en évidence le caractère fortement anisotrope des fils.

- L'essai de compression transversale réalisés sur des portions de fils (dopés et purs) (*Schéma II.4 a*) permet d'évaluer le comportement des fils vis à vis d'une sollicitation proche de celle que subiront les fils lors de l'élaboration du composite par martelage. On évaluera donc essentiellement sa résistance (en terme de force plutôt que de contrainte, la section n'étant pas définissable) et son mode d'endommagement.
En effet à l'intérieur du container, le martelage fera subir aux fils une sollicitation proche d'une compression transversale en six points (approximativement) (*Schéma II.4 b*)
- L'essai de compression longitudinale réalisés sur des portions de fil purs (*Schéma II.4 c*) permet, quant à lui, d'évaluer la résistance des fils à une sollicitation identique à celle que nous avons choisi pour évaluer la résistance de notre composite (§ II.4.2).

Sur les *figures II.8 et II.9*, sont représentées les courbes obtenues pour chaque type d'essai.

- En compression transversale, les fils (dopés comme purs) présentent un comportement fragile avec rupture dans le domaine élastique. La rupture se produit par fissuration dans le plan méridien, parallèle à l'axe de sollicitation mais les deux parties restent liées par quelques fibres (*Schéma II.4 a*). La rupture s'accompagne d'une brève émission acoustique. Les forces à ruptures (F_R) obtenues sur les fils dopés et pur sont sensiblement les mêmes :

$$\text{Fil pur : } F_R = 7367 \pm 440 \text{ N}$$

$$\text{Fil dopé : } F_R = 7575 \pm 440 \text{ N}$$

On distingue, à la rigueur, une légère supériorité des fils dopés indiquant que le dopage renforce légèrement la résistance inter-fibres (en accord avec les observations de [Walter-Fukenbush 79]).

L'absence de ductilité des fils en compression transversale (contrairement à la traction) peut s'expliquer par la nature anisotrope de la microstructure des fils [Diet 89] : la ductilité en traction longitudinale serait due à un glissement inter-fibres (délaminage) tandis qu'en compression transversale, l'enchevêtrement des fibres empêcherait tout glissement tant cristallographique que intergranulaire (*Schéma II.5*).

- En compression longitudinale, la courbe σ - ϵ obtenue montre une très bonne résistance et tenue du fil vis à vis de ce mode de sollicitation puisqu'on obtient un pic vers 2000-2400 MPa qui est le signe d'un début d'endommagement. Mais malgré l'endommagement, le fil continue de résister (stabilisation de la contrainte, la remontée correspondant à un effet de frottement).

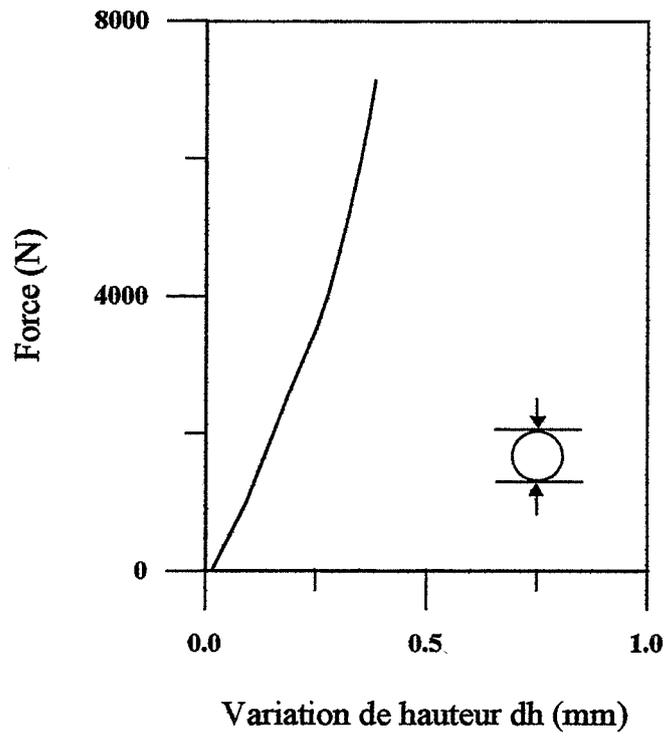


Figure II.8 : Courbe F-dh en compression transversale d'un fil dopé [Diet 89]

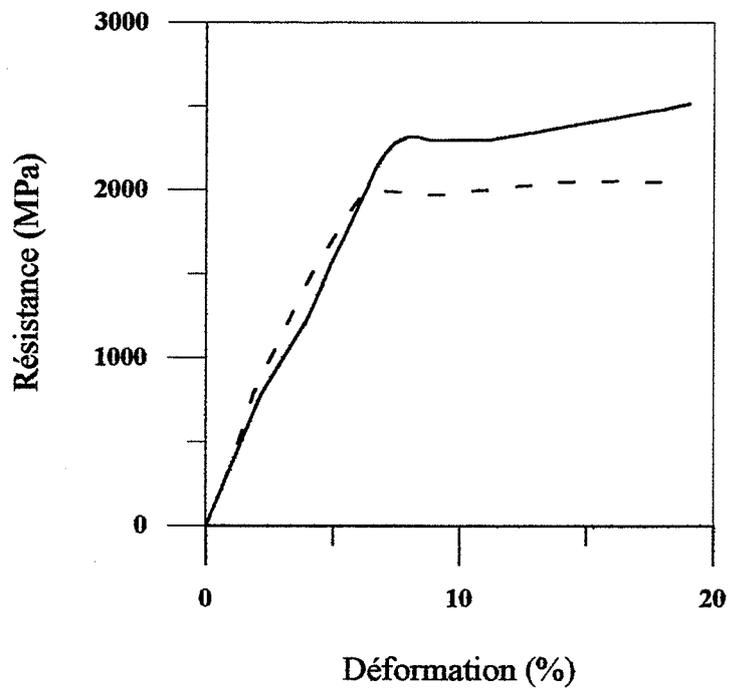


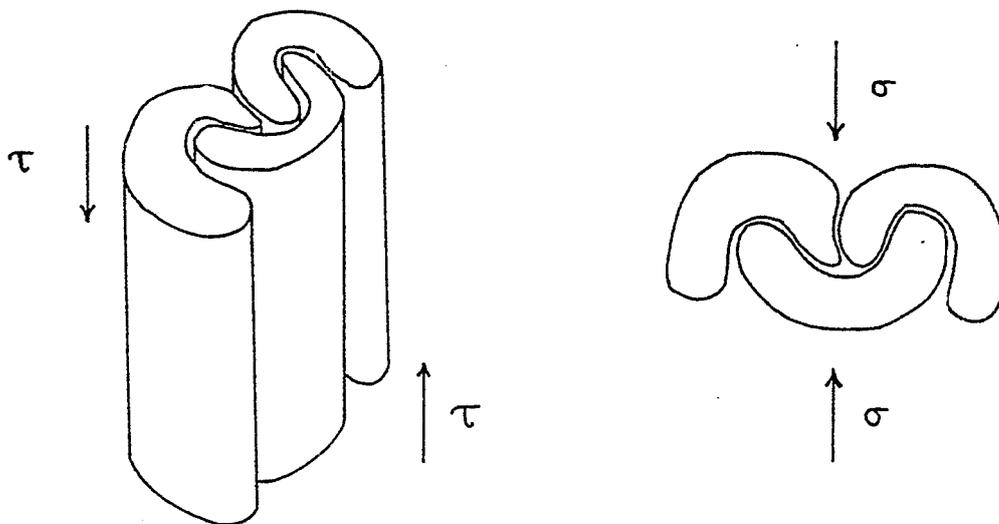
Figure II.9 : Courbes σ - ϵ en compression longitudinales obtenues avec deux fils différents.

En conclusion, nous pouvons dire que le caractère anisotrope des fils lié à leur microstructure spécifique donne lieu à un comportement variable selon l'axe de sollicitation.

La résistance des fils en traction transversale n'est pas très bonne et peut représenter un inconvénient pour la mise en forme par martelage du composite. La force déployée par chaque coup de marteaux étant très importante (estimée à 50 tonnes pour la machine à 4 marteaux (§ I.3.1-b-), on risque d'endommager les fils au cours du martelage puisque ceux-ci ne peuvent résister à une force supérieure 0,76 tonnes en compression transversale.

Toutefois, l'essai de compression transversale étant différent d'une compression en six points, on ne peut présager du comportement des fils au cours du martelage d'autant plus que la présence de la gaine autour de l'empilement des fils peut amortir les chocs.

En compression longitudinale, on atteint un niveau de résistance très bon et comparable à celui mesuré en traction, atout intéressant pour le comportement en traction longitudinale de notre composite.



(a) Essai de traction
(glissement inter-fibre)

(b) Essai de compression transversale
(pas de glissement)

Schéma II.5 : Différence de comportement liée à l'anisotropie de la microstructure des fils en fonction du mode de sollicitation.

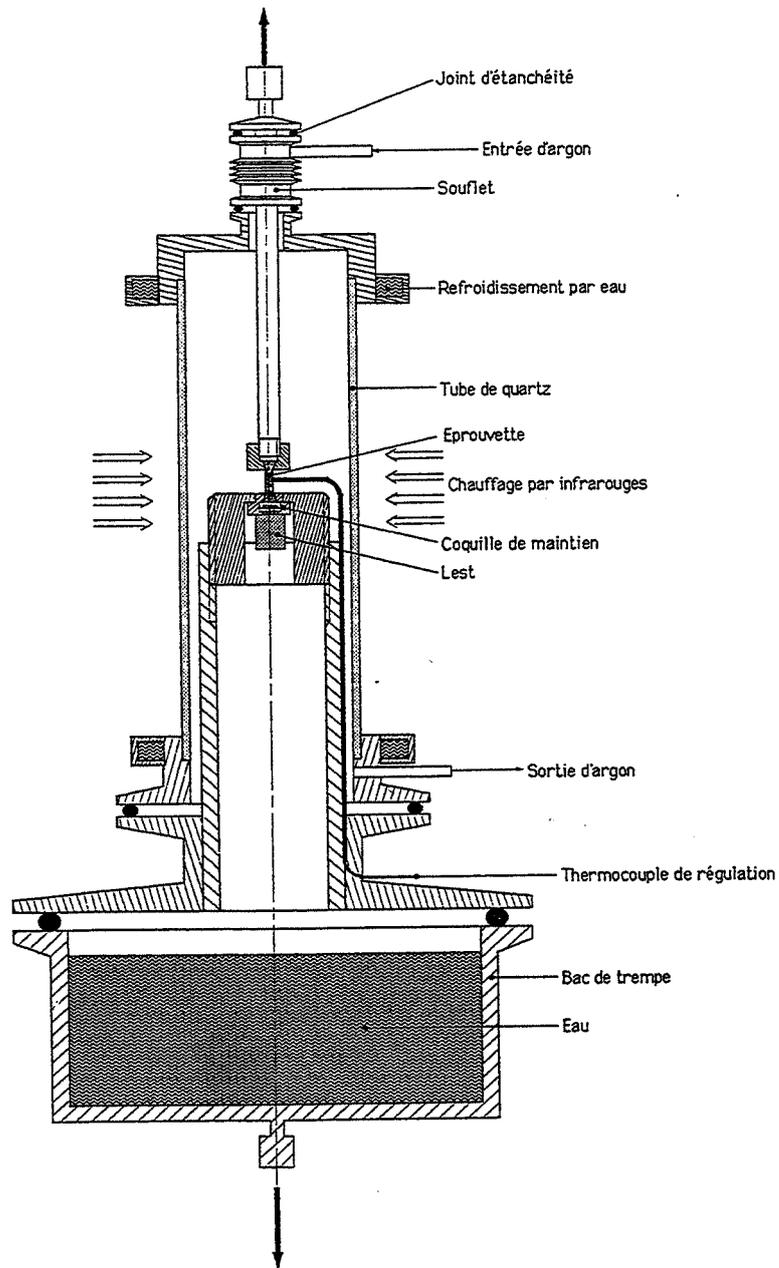


Schéma II.6 : Dispositif de traction à chaud sous atmosphère utilisé à l'école des Mines de Saint-Etienne [Simonetta-Perrot 94].

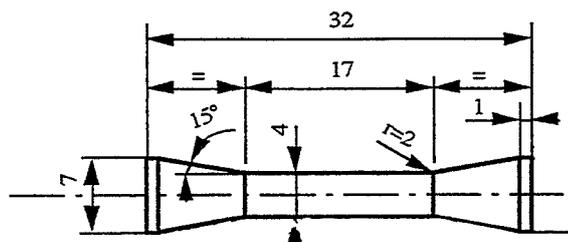


Schéma II.7 : Epreuves destinées aux essais de traction à chaud [Simonetta-Perrot 94].

II.1.2 - Matrice = Nickel

L'objectif de ce paragraphe est de caractériser le comportement à l'ambiante et à chaud (en traction et en compression) du nickel servant de matrice au matériau composite et de déterminer l'épaisseur optimale à donner au dépôt de nickel sur les fils de manière à obtenir un composite de densité élevée. Pour cela, nous avons utilisé un nickel massif de haute pureté élaboré à l'E.N.S.M de Saint-Etienne.

II.1.2 - a - Caractérisation mécanique du nickel

- Evolution des caractéristiques mécaniques en traction à chaud -

Ces essais de traction à chaud vont nous permettre d'évaluer le comportement des dépôts de nickel au cours de la mise en forme à chaud du composite (par martelage).

Pour ces essais, nous avons utilisé le dispositif de traction à chaud présenté sur le schéma II.6 et des éprouvettes aux dimensions données par le schéma II.7.

Les essais ont été effectués à une vitesse de déformation initiale de $2 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ (vitesse couramment choisie pour caractériser la ductilité des aciers) et dans un domaine de températures comprises entre 700 et 1000°C sous atmosphère neutre (balayage d'argon). Le cycle thermique utilisé pour ces essais consiste en une montée rapide de la température (200°C/mn) suivi d'un palier de stabilisation de la température de 5 mn avant traction.

Les caractéristiques mécaniques en traction à chaud du nickel figurent dans le *tableau II.5*. Nous avons aussi fait figurer dans ce tableau les résultats obtenus (par traction à l'ambiante) sur une éprouvette ayant subi au préalable un martelage à chaud dans les conditions suivantes : $T_M = 800^\circ\text{C}$, $\epsilon_M = 35 \%$.

L'évolution de la résistance et de la ductilité du nickel en fonction de la température de l'essai sont représentées sur les *figures II.10 et 11*.

Quelques courbes σ - ϵ sont représentées sur la *figure B-3* en annexe B et permettent de suivre l'évolution du comportement mécanique du nickel en fonction de la température de l'essai. On remarque notamment, sur ces courbes, le phénomène de recristallisation dynamique (R.D.) (à simple pic à 700°C et à pics multiples à 800 et 900°C).

Ceci permet de constater qu'il se produit, en fonction de la température de l'essai :

- une chute importante de la résistance du nickel notamment entre l'ambiante ($R_m = 400 \text{ MPa}$) et 700°C ($R_m = 50 \text{ MPa}$)
- Une forte augmentation de la ductilité : l'allongement qui est de 24% à l'ambiante passe à 75% à 700°C et 100 % à 900°C.

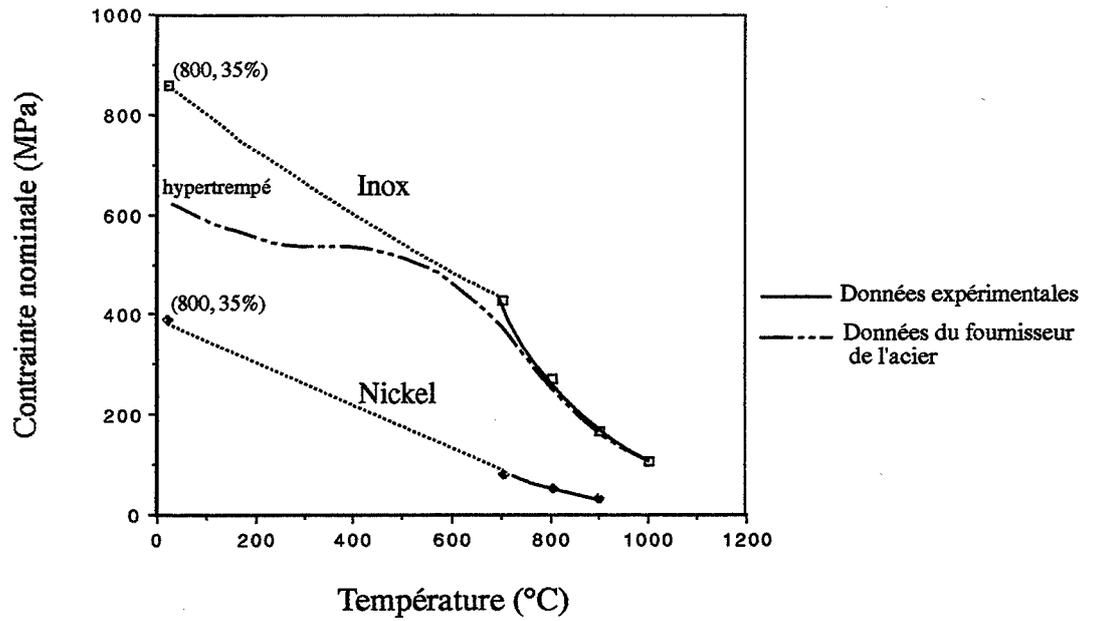


Figure II.10 : Evolution de la résistance du nickel et de l'acier (en traction à chaud) en fonction de la température de l'essai.

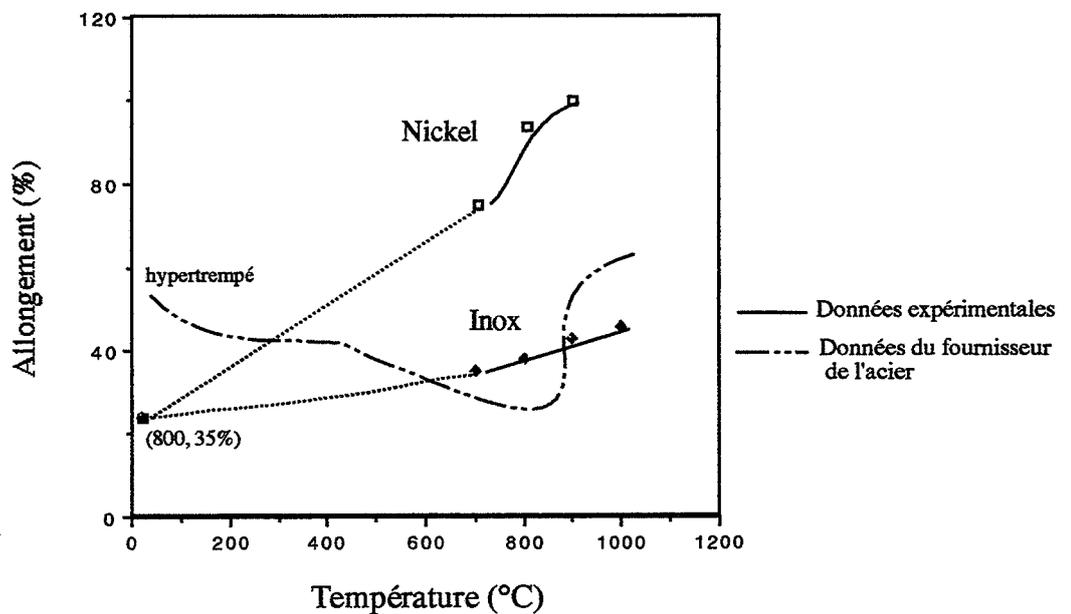


Figure II.11 : Evolution de la ductilité du nickel et de l'acier (en traction à chaud) en fonction de la température de l'essai.

Cette ductilité qui est maximale à 900°C représente un atout essentiel pour la mise en forme du composite (à 900°C) car ceci nous assure que la déformation des dépôts de nickel sera suffisante pour combler les interstices entre les fils de tungstène.

On remarque cependant que ces mesures de ductilité ne sont pas en accord avec celles établies par [RHINES-WRAY 1961] (§ I.2.2-d-) qui observent une ductilité variant suivant la température : baisse de ductilité entre l'ambiante (50 %) et 700°C (20 %), remontée entre 700 et 800°C (75 %) puis de nouveau une chute de ductilité vers 900°C (50 %).

Cas des dépôts de nickel sur les fils :

Signalons que le processus de R.D. est tributaire de la présence d'impuretés ou de précipités dans le nickel. Les impuretés peuvent, en effet, ralentir la cinétique de recristallisation dynamique.

Or, une microanalyse chimique que nous avons effectuée sur des dépôts de nickel (par microsonde E.D.S.) a révélé la présence d'impuretés telles que le silicium, chlore, fer, chrome, calcium, manganèse, oxygène et carbone.

Mais nos observations des dépôts de nickel (sur faciès de rupture de fils obtenus à partir d'essais de traction à chaud) ont montré que les dépôts de nickel recristallisent, malgré ces impuretés, à une température comprise entre 600 et 700°C (*Micrographies II.15 a et b*).

- Effet d'un pré-écrouissage par martelage sur les propriétés mécaniques du nickel -

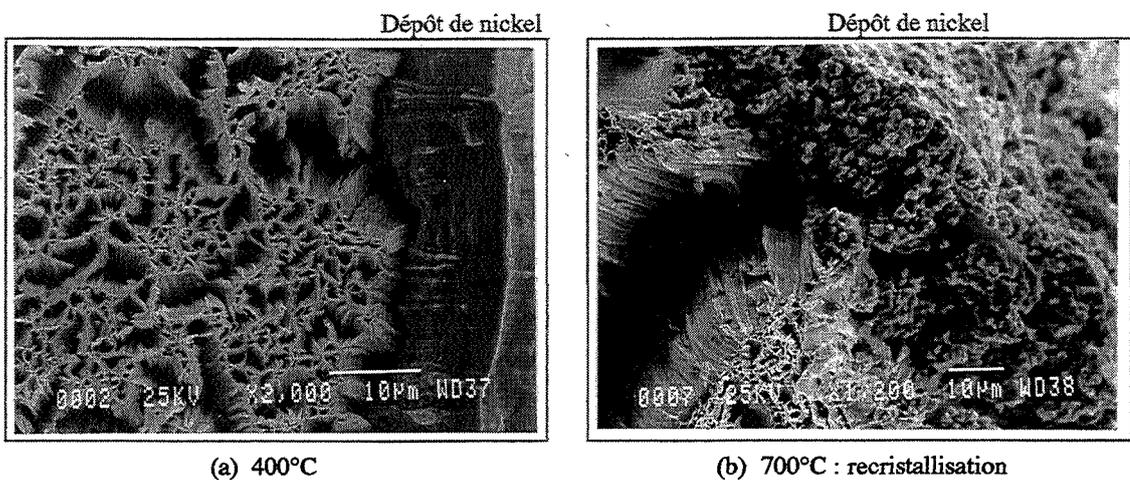
N'ayant pas effectué d'essais à l'ambiante sur du nickel à l'état recristallisé, nous pouvons difficilement évaluer l'influence d'une déformation par martelage à 800°C-35% sur les caractéristiques mécaniques du nickel (à l'ambiante). Cependant, en utilisant les données bibliographiques (Annexe A), on remarque que si les valeurs de résistance (expérimentale : 390 MPa et bibliographique : 270 à 560 MPa) sont équivalentes, les limites élastiques ne concordent pas (expérimentalement, on obtient 350 MPa alors que la bibliographie la donne comprise entre 40 à 100 MPa).

La microstructure du barreau de nickel obtenue suite au martelage (800°C-35%) (visible au niveau de la tête d'amarrage des éprouvettes de traction (*Micrographie II.16 a*)) présente un aspect recristallisé avec la présence de grains plus petits sur la ligne centrale de l'éprouvette, signe probable d'une R.D. consécutive à un écrouissage plus important du coeur au cours du martelage.

On peut donc considérer que l'opération de martelage à chaud du nickel n'entraîne pas l'écrouissage du nickel. Par conséquent, on peut s'attendre à ce que les propriétés mécaniques de la matrice en nickel (dans le composite) soit similaires à celle d'un nickel massif recristallisé.

Température de l'essai (°C)	Nickel			Acier inoxydable Z12 CNS 25-20		
	Limite élastique Re (Mpa)	Résistance Rm (MPa)	Allongement A (%)	Limite élastique Re (Mpa)	Résistance Rm (Mpa)	Allongement A (%)
20	349	390	24	716	822	24
700	48	82	75	361	430	35
800	25	51	94	249	274	38
900	18	33	100	139	167	43
1000	/	/	/	88	108	46

Tableau II.5 : Caractéristiques mécaniques en traction à chaud du nickel et de l'acier inoxydable Z12CNS 25-20.



Micrographies II. 15 a et b : Evolution de la microstructure du dépôt de nickel en fonction de la température de l'essai de traction.

Température de l'essai (°C)	Limite élastique Re (Mpa)	Allongement correspondant ϵ^{el} (%)
Nickel (800°C-35%)	70	6
Z12 CNS 25-20	410	3
Z12 CNS 25-20 (800°C-35%)	326	2,3

Tableau II.6 : Caractéristiques mécaniques en compression à l'ambiante du nickel et de l'acier inoxydable Z12CNS 25-20.

- Caractéristiques mécaniques du nickel en compression à l'ambiante -

Pour ces essais, nous avons utilisé des éprouvettes cylindriques de nickel (à gros grains) de rapport hauteur/diamètre voisin de 1. Ces essais ont été effectués à vitesse de déformation initiale de $2 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}$. Un exemple de courbe σ - ϵ figure en annexe B (*Figure B-5*).

Ces essais ont pour but de déterminer la limite élastique du nickel en compression et le taux d'allongement correspondant. Ces données sont particulièrement difficile à déterminer sur du nickel en raison de sa faible limite élastique.

La limite élastique, mesurée dans ces conditions, est voisine de 70 MPa et le taux d'allongement associé qu'on appellera $\epsilon_{\text{Ni}}^{\text{el}}$ de l'ordre de $6 \cdot 10^{-2}$ (*Tableau II.6*).

Cette mesure de limite d'élasticité est en accord avec les données bibliographiques (*Annexe A*) car comprise entre 40 et 100 MPa.

II.1.2 - b - Choix de l'épaisseur du dépôt de nickel

Le choix de l'épaisseur du dépôt de nickel résulte d'un compromis entre la densité du matériau composite (qui est d'autant plus élevée que l'épaisseur de nickel est faible) et l'aspect structural du matériau composite (porosité, endommagement entre fils).

- Relation densité-épaisseur du dépôt de nickel -

La relation entre la densité et l'épaisseur du dépôt de nickel établie pour un fil nickelé est donnée dans l'annexe C. Cette loi permet d'estimer la valeur maximale à donner à l'épaisseur de nickel pour avoir une densité au moins égale à 17.

Pour un fil de diamètre 1 mm, cet objectif est atteint pour une épaisseur de 60 μm et une densité de 18,5 est obtenue pour une épaisseur de nickel de 20 μm .

Notre intérêt étant d'avoir une densité la plus élevée possible, une épaisseur minimale est recherchée. Toutefois, l'épaisseur de dépôt doit être suffisante pour éviter toute porosité interne au composite (porosité lié au manque de liant).

Outre le rôle de liant, une épaisseur suffisante de nickel permet d'éviter le contact entre fils et donc un endommagement par frottement (aussi bien au cours de l'élaboration que lors d'une sollicitation mécanique du composite).

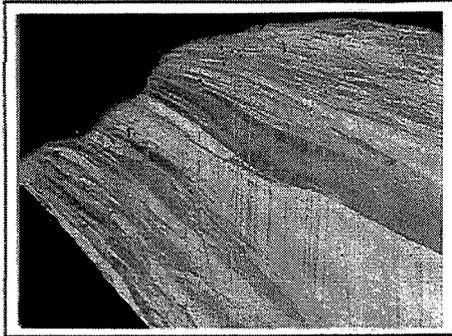
- Relation épaisseur du dépôt de nickel - distance entre fils dans le composite -

Cette relation nous permet de déterminer l'épaisseur minimale à donner au dépôt de nickel pour obtenir après martelage une épaisseur de nickel entre fils acceptable.

Cette relation résulte d'une analyse théorique des modes de déformations possibles que peut induire le martelage. Ceci nous a donc amené à faire certaines hypothèses donnant lieu à l'étude de 4 cas détaillés dans l'annexe D.



(a) Au niveau de la tête d'amarrage.



(b) Zone de rupture.

Micrographies II.16 a et b : Microstructure du nickel dans l'éprouvette de traction (800°C-35%) après traction à l'ambiante (1 cm = 448 μm)

L'observation à posteriori de la section des matériaux composites (§ III.3.2) nous a montré que la réalité était plus proche des cas 3 et 4 qui (contrairement aux cas 1 et 2) tiennent compte d'un allongement des fils par martelage (les expériences ayant montré que ces allongements n'étaient pas négligeables).

D'après ces observations, la déformation des fils de tungstène correspond plus précisément à un cas intermédiaire entre le cas 3 et 4.

Ces deux cas décrivent, en effet, des comportements extrêmes :

Cas 3 : Allongement des fils avec conservation d'une section circulaire

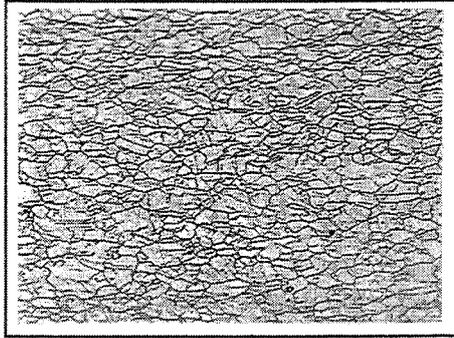
Cas 4 : Allongement des fils avec modification de la section en hexagone

Les *figures D-4 et D-5* de l'annexe D nous permettent de déterminer, dans chacun des cas, l'épaisseur de la matrice en nickel située entre deux fils ($2e_f$) en fonction de l'épaisseur du dépôt de nickel.

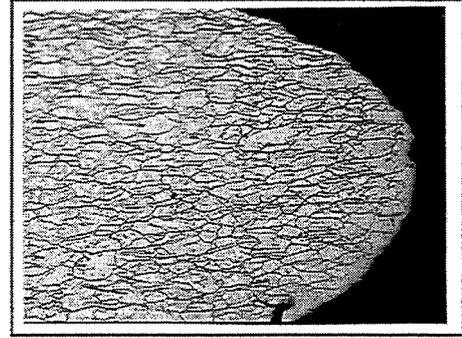
Le cas 3 conduisant à des valeurs de e_f nettement inférieures à celles prévues par le cas 4, l'épaisseur minimale à donner au dépôt de nickel sera déterminée en se basant sur le cas 3.

On constate que la *figure D-4* (Annexe D) donnée pour un taux de martelage important (43 %) prévoit des valeurs négatives de e_f pour une épaisseur de dépôt inférieure à 35 μm .

En conséquence, nous estimons que la valeur minimale à donner au dépôt de nickel est de 40 μm .



(a) Au niveau de la tête d'amarrage



(b) Zone de rupture

Micrographies II.17 a et b : Microstructure de l'acier inoxydable Z12 CNS 25-20 dans l'éprouvette de traction (800°C-35%) après traction à l'ambiante (1 cm = 224 μm).

II.1.3 - Gaine = Acier inoxydable Z12 CNS 25-20

- Caractéristiques mécaniques de l'acier en traction à chaud -

Pour la réalisation des éprouvettes de traction, nous avons utilisé le matériau que pour la fabrication des containers. On s'assure ainsi que la microstructure originelle et les propriétés mécaniques sont identiques. Les essais de traction à chaud sur cet acier se sont déroulés dans les mêmes conditions que ceux du nickel et les éprouvettes de mêmes dimensions.

Les résultats de ces essais figurent dans le *tableau II.5* et les courbes σ - ϵ en fonction de la température de l'essai sont présentés sur la *figure B-4* en annexe B.

L'évolution de la résistance et de la ductilité de l'acier en fonction de la température de l'essai sont présentées respectivement sur les figures *II.10* et *II.11*.

On constate que :

- Cet acier a une bien meilleure résistance que le nickel mais une décroissance à $T > 700^{\circ}\text{C}$ plus rapide.
- Cette perte de résistance s'accompagne d'une légère augmentation de la ductilité qui reste cependant inférieure à celle du nickel (les deux métaux ayant à l'ambiante la même valeur d'allongement).

A 900°C , l'allongement de l'acier est de 43 %. L'observation microstructurale du composite martelé (§ II.3) nous permettra de savoir si cette ductilité est suffisante lors du martelage pour combler les interstices et réaliser un bon interface gaine-fils nickelés.

- Effet d'un pré-écrouissage par martelage sur les propriétés mécaniques de l'acier -

Comme pour le nickel, un essai de traction à l'ambiante a été réalisé sur une éprouvette usinée dans un barreau martelé à 800°C -35 %. L'observation microstructurale de l'éprouvette (*Micrographie II.17 a*) indique une microstructure recristallisée mais à grains beaucoup plus fins que pour le nickel et de taille uniforme en tout point de l'éprouvette. Il semble donc que l'acier inoxydable a subi au cours du martelage une recristallisation dynamique.

L'observation de la zone de striction permet de constater que si les éprouvettes d'acier et de nickel ont la même valeur d'allongement, la déformation des grains est nettement plus importante sur le nickel que sur l'acier (*Micrographies II.16 b* et *II.17 b*).

D'un point de vue mécanique, la limite élastique que l'on mesure sur l'acier martelé est nettement supérieure (716 MPa) à celle fournie par la bibliographie (230 MPa, Annexe A). Par contre, la valeur de résistance (822 MPa) est proche de la fourchette donnée (550-800 MPa).

- Caractéristiques mécaniques de l'acier en compression à l'ambiante -

Pour ces essais, nous avons procédé de la même manière que pour le nickel. Deux types d'éprouvettes ont été testées :

- Eprouvette usinée directement dans le barreau d'acier inoxydable d'origine.
- Eprouvette usinée après martelage du barreau à 800°C-35%.

Les courbes de compression σ - ϵ obtenues sur ces deux éprouvettes figurent en annexe B (*Figure B-6*) et les caractéristiques mécaniques sont présentées dans le *tableau II.6*.

On constate qu'en compression à l'ambiante :

- L'acier inoxydable a une limite élastique plus élevée que le nickel.
- Mais un domaine élastique moins étendu en déformation
- Contrairement à ce qu'on pouvait attendre, le martelage de l'acier ne permet pas d'élever la limite élastique et réduit quelque peu le domaine de déformation élastique.

CONCLUSION

La caractérisation mécanique des matériaux de base a donc permis, d'une part, d'évaluer un domaine de températures pour la mise en forme du composite et d'autre part, de déterminer les propriétés mécaniques nécessaires à l'utilisation de la loi des mélanges.

La température de mise en forme qui apparaît la meilleure (et commune à tous les constituants) se situe vers 900°C. Pour chaque constituant, elle présente l'intérêt suivant :

- Pour le fil de tungstène

- Assez bonne conservation des propriétés mécaniques des fils (par rapport à celle obtenue à l'ambiante), pas de risque de recristallisation R.N. ni R.I. à cette température.
- Cependant, une légère perte de ductilité liée à une modification de la microstructure peut se produire car cette température coïncide au changement de mode de rupture (ductile à clivé) et donne lieu à un faciès type mixte. Selon le fil, le pourcentage de clivé par rapport au ductile est variable et détermine donc le mode de rupture : avec ou sans striction.
- Par contre, les essais de traction à chaud ayant montré une augmentation importante de Z% entre 800 et 1000°C, on peut s'attendre à une meilleure ductilité des fils au cours du martelage (supérieure à celle obtenue à l'ambiante (A% = 2 à 3%)). On limite ainsi les risques d'avoir un endommagement des fils au cours de l'élaboration du composite.

- Pour le nickel

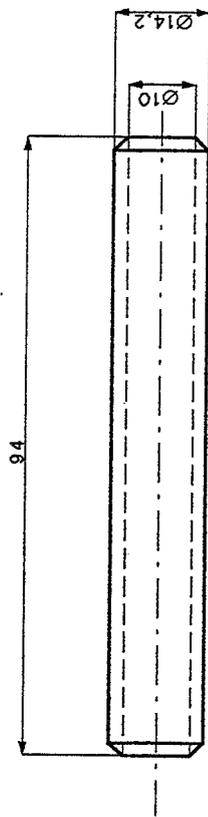
- La ductilité est très grande. Les dépôts de nickel seront donc parfaitement malléables au cours du martelage et susceptible de bien combler les interstices.
- La déformation par martelage du nickel à cette température provoque une recristallisation dynamique du nickel. On évite donc le risque d'avoir des contraintes internes.

- Pour l'acier Z12 CNS 25-20

- La ductilité est importante, légèrement inférieure, cependant, à celle du nickel.
- Comme le nickel, il recristallise dynamiquement lors du martelage à cette température.

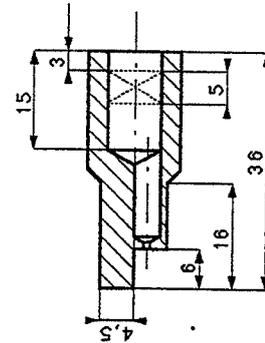
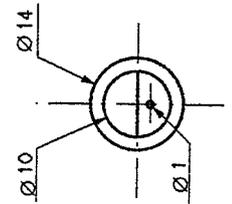
Pour la réalisation du composite, on privilégiera les fils dopés par rapport aux fils purs du fait qu'ils présentent des propriétés mécaniques légèrement supérieures. De même, on utilisera des fils de petit diamètre (1 mm) qui donne de meilleures propriétés mécaniques.

Pour le choix de l'épaisseur de dépôt, la nécessité d'avoir un composite de densité supérieure ou égale à 17 et une épaisseur de matrice après martelage suffisante a conduit, d'un point de vue théorique, à une épaisseur de dépôt optimisée de 40 µm.

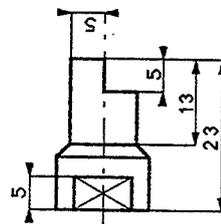
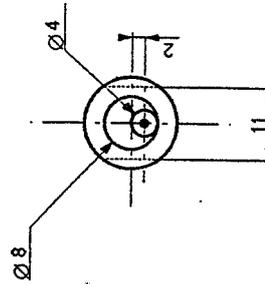


CORPS PRINCIPAL

MATIERE: Z12CNS 2 5 20



BOUCHON AVAL



BOUCHON AMONT

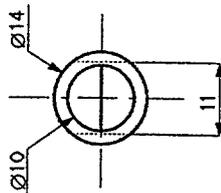


Schéma II.8 : Plan du container

II.2 - ELABORATION DU MATERIAU COMPOSITE

Nous abordons dans ce paragraphe l'aspect technologique de notre étude qui concerne l'élaboration du composite. Cette étape nous rend tributaire d'un certain nombre de paramètres liés aux conditions techniques.

II.2.1 - Martelage à deux marteaux (ENSME)

II.2.1 - a - Préparation des éprouvettes de martelage

- Mode opératoire -

L'élaboration des éprouvettes de martelage nécessite six étapes :

1. Fabrication de containers en acier inoxydable Z12 CNS 25 20 (*Schéma II.8*).
2. Découpe des fils nickelés et nettoyage des fils aux ultrasons à l'alcool et à l'acétone.
3. Remplissage des containers avec les fils (voir ci-dessous).
4. Fermeture des containers par soudage des bouchons au corps du container après avoir fait subir une torsion à l'empilement des fils. Cette torsion est effectuée par rotation des bouchons (l'un par rapport à l'autre) qui, dotés d'une marche interne permettent de séparer l'empilement des fils en deux parties (*Schéma II.9*).
5. Soudage du tube de dégazage (doté d'une vanne) sur l'orifice du bouchon aval (*Schéma II.10*).
6. Dégazage de l'intérieur du container par l'intermédiaire d'une pompe à palettes (durant 12 heures à 350°C = vide primaire) (*Schéma II.10*).

Remarque : La torsion appliquée sur l'empilement des fils a pour but de rattraper celle produite au cours du martelage (torsion hélicoïdale voir § I.3.3) par le fait que l'on maintient fixement l'une des extrémités du container tandis que l'autre subit le mouvement de rotation exercée par les matrices.

A ce stade, le matériau est prêt pour le martelage avec la machine à deux marteaux (*Photographie II.18*). Le tube de dégazage est conservé et permet au manipulateur de tenir le container au cours du martelage.

- Etude du remplissage des containers -

D'un point de vue industriel, il est indispensable de prévoir, avant le remplissage des containers, le nombre de fils maximum qu'on va introduire. Dans l'annexe E.1, nous avons établi une loi permettant de prévoir ce nombre. Précisons que cette loi est toujours valable même si on fait varier le diamètre des fils ou le diamètre intérieur du container. Ceci est

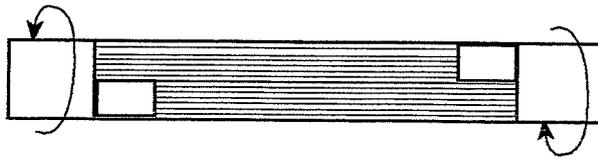
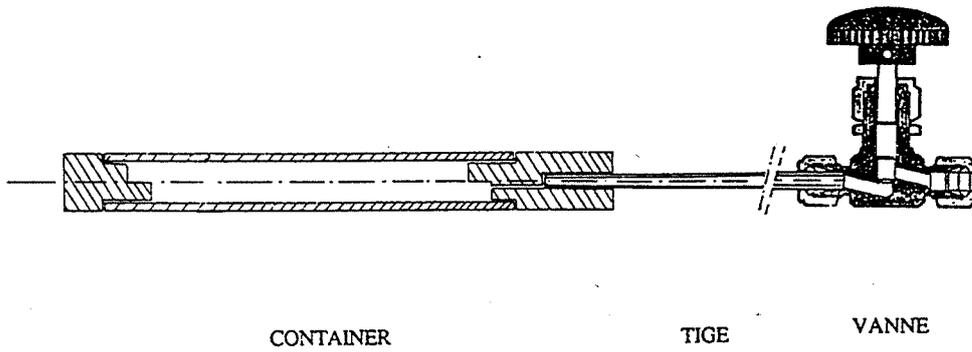
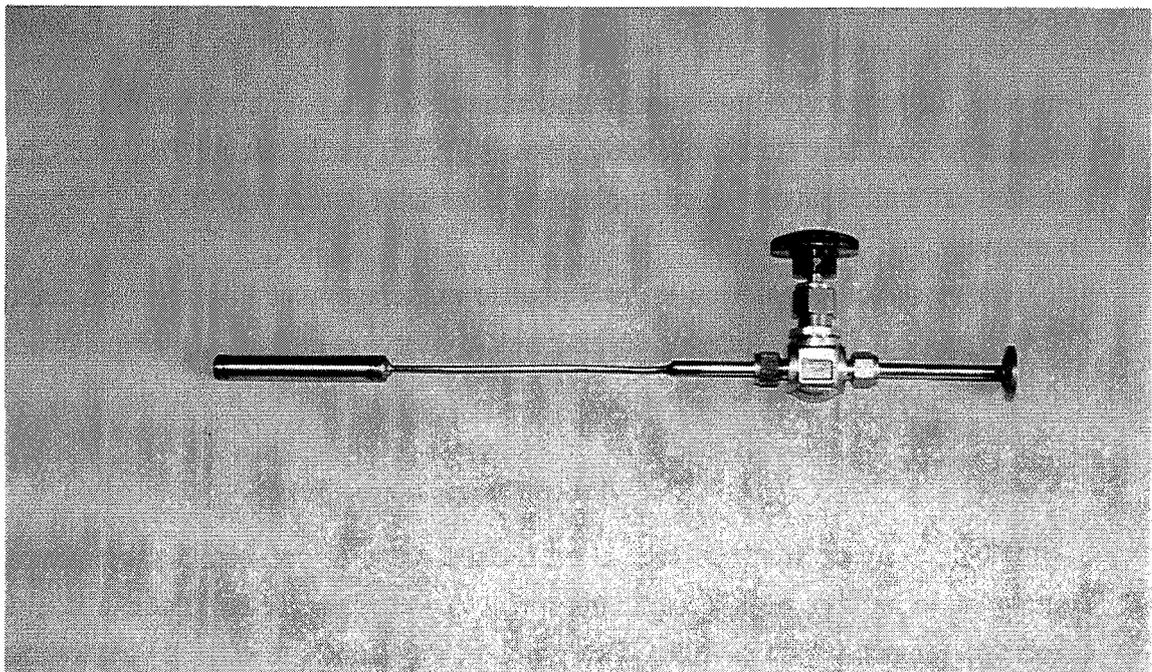


Schéma II.9 : Torsion appliquée à l'assemblage des fils par rotation des bouchons.



T = 350°C
t = 12 h

Schéma II.10 : Préparation de l'éprouvette de martelage

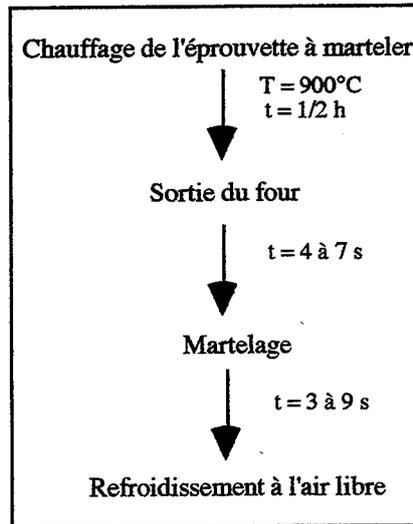


Photographie II.18 : Eprouvette destinée au martelage à deux marteaux.

d'autant plus intéressant si on est amené à utiliser des fils de diamètres différents ou des containers de dimensions variables pour une future exploitation à l'échelle industrielle.

II.2.1 - b - Opération de mise en forme

Le déroulement des opérations concernant le martelage est le suivant :



- Le Préchauffage -

Le martelage est effectué sur un matériau chauffé préalablement à 900°C pendant 30 minutes dans un four à conduction. D'après notre étude sur les fils (§ II.1.1), un tel recuit n'entraîne pas de modification des propriétés mécaniques des fils de tungstène.

- Le martelage -

Aucun dispositif automatisé n'étant prévu sur la machine à deux marteaux, la pièce est introduite manuellement dans la marteuse mais pour faciliter cette opération (introduction parfaitement axiale de la pièce pour l'obtention d'un barreau parfaitement rectiligne), nous avons mis au point un dispositif de guidage (*Schéma II.11*) qui devient nécessaire pour une température de martelage supérieure à 800°C.

- Aspect thermique du martelage -

Le temps de transfert four-machine à marteler s'effectue à l'air libre en seulement 4 à 7 secondes. Au cours de ce trajet, DIET [1990] avait estimé qu'il se produisait une chute de température à coeur du matériau composite de l'ordre de 44°C (pour 7 s) (*Figure II.12*).

Le temps de martelage est lui aussi très court de l'ordre de 3 à 9 secondes. Une chute importante de la température du matériau a lieu au cours du martelage en raison du contact

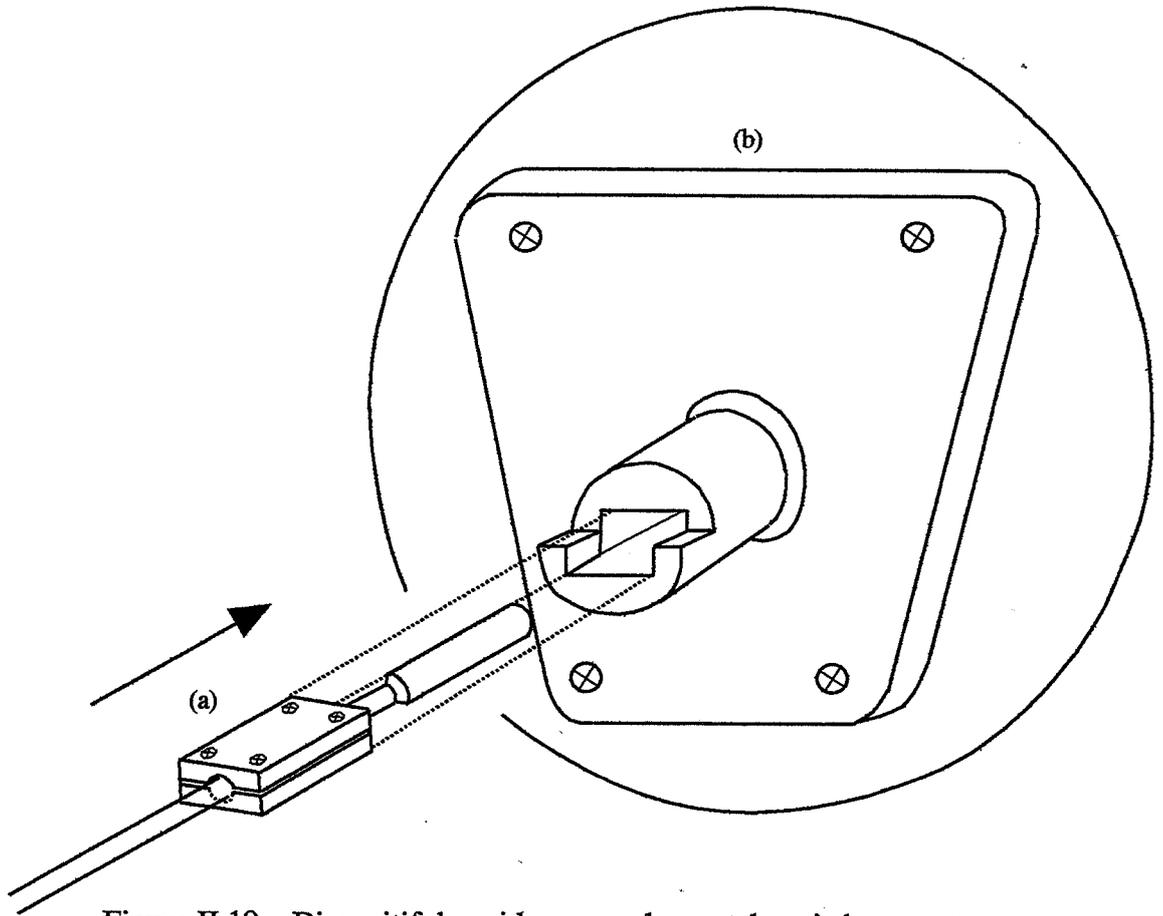
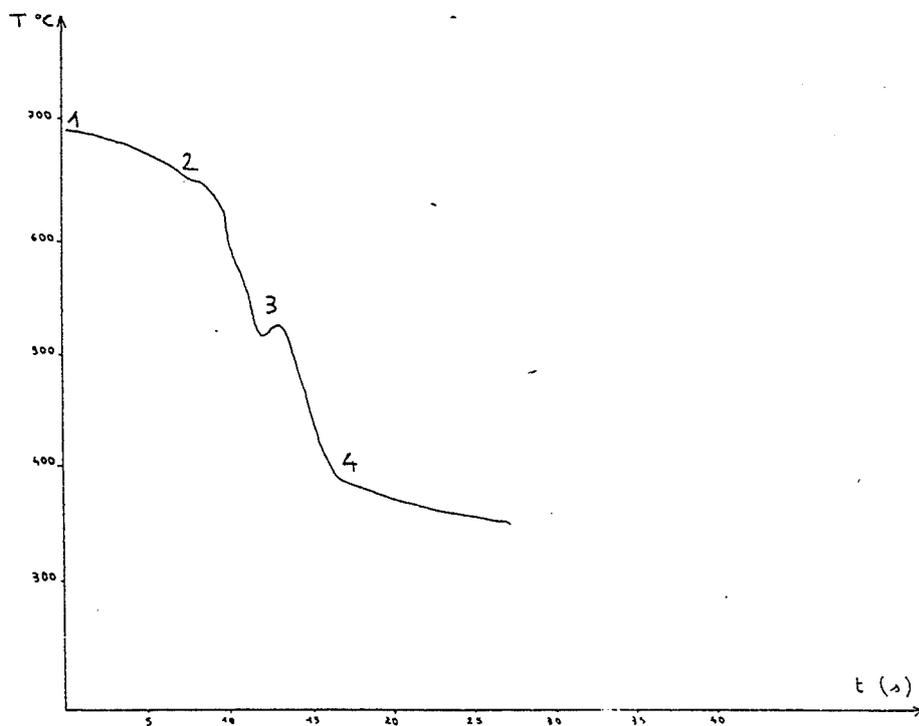


Figure II.19 : Dispositif de guidage pour le martelage à deux marteaux.



Entre 1 et 2 : Transfert four -> machine à marteler
 Entre 2 et 3 : Prise de contact du container avec les matrices
 En 3 : Echauffement provoqué par le martelage
 Entre 3 et 4 : Martelage de l'extrémité du barreau
 (Mesure assurée par un thermocouple placé au centre du container)

Figure II.12 : Evolution de la température à coeur de l'éprouvette au cours du martelage [Diet 50]

avec les matrices froides (chute de l'ordre de 350°C en 9 s [DIET 1990]) malgré un légère remontée locale de la température ($\approx 13^\circ\text{C}$) sous l'effet du coup de marteau.

Ceci nous montre donc que dans la pratique, le martelage ne s'effectue pas à température constante. La raison principale en est le refroidissement causé par le contact de la pièce avec des matrices plus froides.

La chute de température constatée entre le début et la fin du martelage nous incitera lors de la caractérisation des matériaux composites à évaluer s'il existe ou non une différence notable entre échantillons prélevés en début et fin de barreau.

Une fois martelée, l'éprouvette est refroidie lentement à l'air libre.

II.2.1 - c - Détermination d'un taux de martelage

- Définition du taux de martelage -

Parmi les expressions utilisées pour définir le taux de martelage ε_M (§ I.3.2), nous avons choisi le paramètre Φ qui s'exprime de la manière suivante:

$$\varepsilon_M (\%) = \Phi = 2 \ln (D_i / D_f)$$

avec D_i et D_f : diamètre initial et final et du matériau composite.

- Choix du taux de martelage -

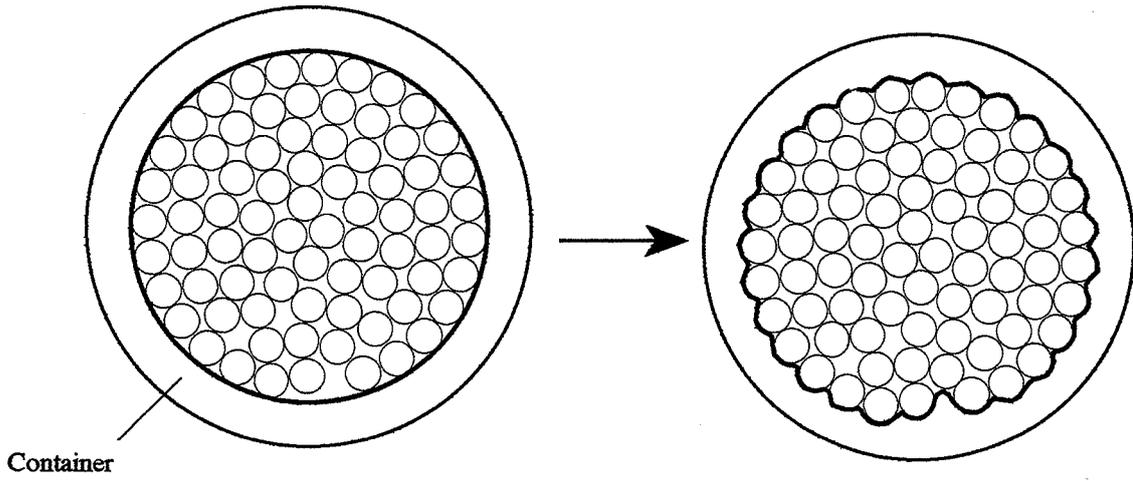
L'élaboration du composite par martelage rotatif procède en trois opérations simultanées :

- Réarrangement géométrique de l'empilement.
- Déformation radiale de la gaine conduisant à un rétreint de la gaine autour de l'empilement des fils nickelés (interstices comblés) et à la formation de l'interface gaine-(Ni/W) (*Figure II.13 a*).
- Élimination des interstices entre fils par déformation des fils et du nickel.

Ces trois opérations peuvent se résumer théoriquement en deux étapes :

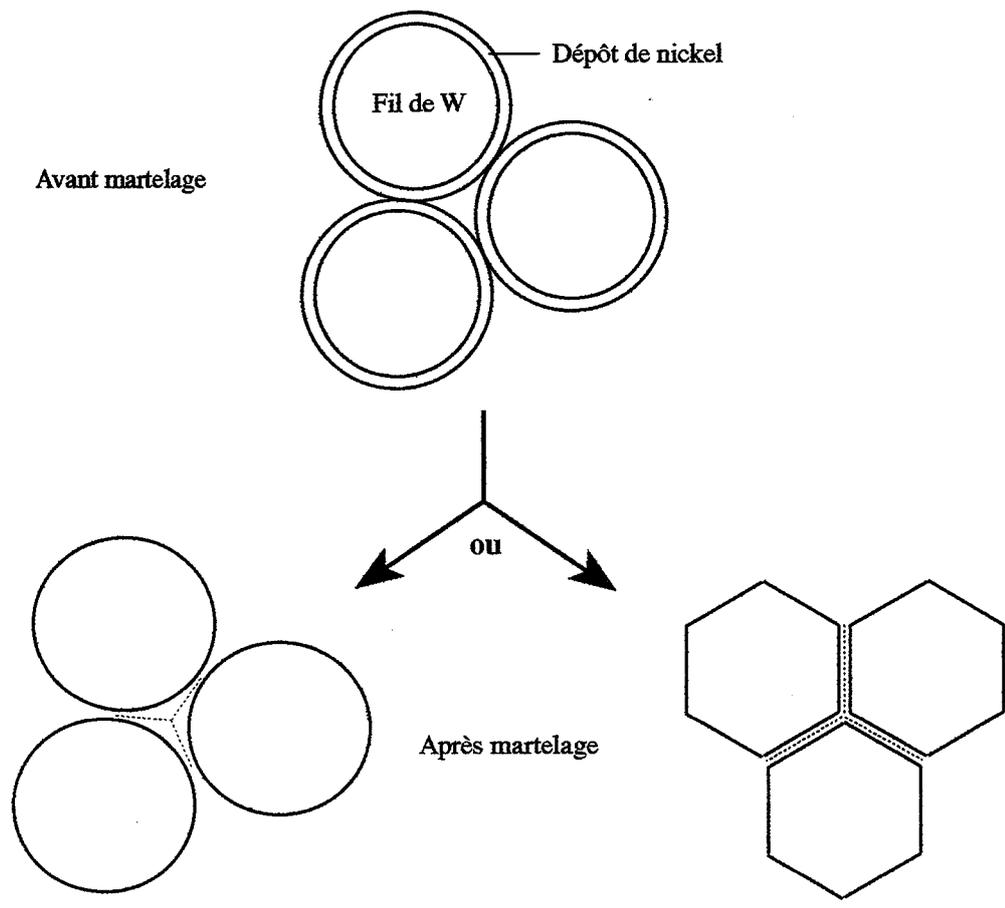
- La **densification** qui correspond à l'élimination de la porosité (ou interstices ou vide).
- La **déformation** de l'éprouvette (allongement) liée à celle des constituants :
 - * La déformation des fils de tungstène se caractérise par leur allongement entraînant une déformation radiale inévitable.

Selon l'importance du taux de martelage, cette déformation radiale est soit limitée à une simple diminution du diamètre soit aggravée par une accommodation géométrique de la section contrainte par la présence des fibres voisines (forme finale de la section : hexagonale pour un empilement idéal) (*Figure II.13 b*).



Container

(a) Rétreint de la gaine



Avant martelage

Dépôt de nickel

Fil de W

ou

Après martelage

(b) Déformation des constituants

Figures II.13 a et b : Densification au cours de la mise en forme du composite par martelage.

- * La déformation du nickel ne peut être qu'une conséquence de celle des fils.
La déformation doit être suffisamment forte pour arriver à combler les points triples (interstices les plus importants) et réaliser l'interface nickel-nickel (soudure).
- * Allongement et déformation radiale de la gaine.
La gaine étant plus malléable que l'intérieur du container (empilement des fils de tungstène) subit une déformation plus importante (allongement supérieur à celui des fils).

Remarque :

Nous retiendrons que la déformation des fils de tungstène peut poser un problème crucial pour la résistance du composite en raison de la faible ductilité des fils de tungstène qui sous l'effet d'un martelage trop violent, risquent de s'endommager.

Le choix du taux de martelage sera donc guidé, dans un premier temps, par la détermination du **taux minimal** nécessaire à la totale élimination de la porosité soit ϵ densification.

Dans un deuxième temps, nous nous efforcerons de déterminer un **taux optimal** (ϵ déformation) par caractérisation microstructurale et mécanique de plusieurs composites auxquels nous aurons fait subir différents taux de martelage (§ II.4 et 5).

- Impératifs pratiques liés à la détermination du taux de martelage -

La détermination d'un taux de martelage est liée à plusieurs facteurs :

- Facteurs extrinsèques liés à la machine à marteler :
 1. Choix du jeu de matrices
 2. Nombre de passes de martelage
- Facteurs intrinsèques liés au matériau composite :
 3. Diamètres intérieur et extérieur du container
 4. Diamètre des fils nickelés (diamètre du fil + épaisseur de la couche de nickel)

Le rétreint d'un barreau par martelage rotatif est tributaire des dimensions des jeux de matrices (§ I.3.1) : chaque jeu limite le diamètre initial de l'éprouvette à marteler et fixe le diamètre final de l'éprouvette martelée. Avec la machine à deux marteaux, la plupart des jeux de matrices permettent une réduction de diamètre limitée à 2 mm au maximum.

Pour faire varier le taux de martelage, deux possibilités nous sont donc offertes :

- Soit effectuer plusieurs passes de martelage, ce qui nécessite un changement du jeu de matrices et un réchauffage de l'éprouvette avant chaque passe.

- Soit effectuer une seule passe et prendre le parti de faire varier le taux de martelage en faisant varier le diamètre de l'éprouvette à marteler (dans la limite des dimensions du cône d'entrée du jeu de matrices).

C'est cette seconde solution que nous avons choisi afin d'éviter une trop grande lourdeur expérimentale. Nous avons, pour cela, privilégié un jeu de matrices particulier (matrices 18/12) qui permet une réduction de diamètre plus importante que les autres (4 mm au maximum). Cet écart permet de balayer une gamme de taux de martelage suffisamment étendue (jusqu'à 55 %).

La variation du diamètre initial de l'éprouvette peut s'obtenir de deux manières :

- Soit on fait varier le diamètre intérieur du container.

Ceci induit alors une difficulté supplémentaire liée à la loi de remplissage (Annexe E) en raison de la modification du nombre de fils à introduire que ça entraîne.

- Soit on fait varier l'épaisseur du container (sans modifier les conditions internes).

Il nous est apparu préférable, d'un point de vue pratique, de nous limiter à la seconde solution plus facilement réalisable.

Pour nos expérimentations, le diamètre intérieur du container a donc été fixé à 10 mm, ce qui permet l'introduction au maximum de 68 fils nickelés (N) de diamètre 1 mm et d'épaisseur de nickel égale à 40 µm.

Le pourcentage surfacique optimisé qu'occupe chacun des éléments (W, Ni, vide) (prise sur la section du container), est d'environ 68 % pour les fils de tungstène de diamètre 1 mm, 11 % pour le nickel et 21 % pour le vide (Tableau de l'annexe E).

- Détermination du taux minimal de martelage -

Ce taux équivaut à déterminer ϵ densification soit le taux minimum à fournir pour l'élimination théorique de la porosité.

Le taux de déformation associé à la densification s'exprime de la manière suivante :

$$\epsilon \text{ densification} = \ln (S_i^{\text{int}} / S_f^{\text{int}})$$

avec S_i^{int} surface initiale intérieure de la section du container de diamètre $D_i^{\text{int}} = 10 \text{ mm}$

S_f^{int} surface intérieure finale de la section du container après martelage

L'élimination théorique de la porosité est obtenue si : $S_f^{\text{int}} = S_{\text{fils nick.}}$

avec $S_{\text{fils nick.}}$ surface occupée par les fils nickelés de diamètre $d = 1,08 \text{ mm}$ (épaisseur de nickel de 40 µm)

Le taux de densification équivaut donc à :

$$\epsilon \text{ densification} = \ln \left(\frac{D_i^{\text{int}^2}}{N \cdot d^2} \right) = 23 \%$$

Le taux de martelage à appliquer au container de diamètre intérieur égale à 10 mm et remplis de fils de tungstène nickelés de diamètre 1,08 mm doit donc être au minimum égal au taux de densification soit 23 %.

Remarque:

Dans l'annexe E.2, nous avons pu établir une loi en puissance 2 permettant de déterminer facilement à partir de la connaissance des deux paramètres (D_i^{int} et d), l'aire occupée par les interstices dans le container avant le martelage. Cette estimation peut donc permettre d'en déduire facilement le taux minimum de martelage à appliquer et ce quelque soit les dimensions des éléments.

- Détermination du diamètre extérieur minimal du container -

Etant donné que le diamètre intérieur du container et le diamètre final extérieur du container sont des constantes pour tous les matériaux composites, la variation du taux de martelage est donc fonction de la seule variation du diamètre extérieur initial du container.

Ce taux de martelage définie de la manière suivante : $\varepsilon_M = 2 \text{Ln} (D_i / D_f)$

avec D_i diamètre extérieur initiale du container.

D_f diamètre extérieur final du container égal à 12 mm (fixé par le jeu de matrices 18/12).

Le diamètre extérieur initial que doit avoir le container pour assurer un taux de martelage minimum de 23 % sera donc au moins égal à 13,7 mm.

Toutefois, l'étude microstructurale des composites ainsi élaborée nous montrera que dans la pratique, il est nécessaire d'ajouter, au taux minimum, 10 % pour obtenir un matériau composite correct (voir § II.4) : $\varepsilon_{\text{déformation}} = \varepsilon_{\text{densification}} + 10 \%$

II.2.1 - d - Influence de la gaine sur la mise en forme

La gaine joue un grand rôle dans la mise en forme du matériau composite puisque en tant que container, elle maintient les fils de tungstène en contact les uns avec les autres aussi bien pendant le préchauffage que pendant le martelage. Elle isole, de plus, les fils de tungstène nickelés de l'air ambiant (vide effectué à l'intérieur des containers).

La mise à température des fils à l'intérieur du container au cours du préchauffage se fait par conduction thermique et dépend donc fortement de la conductivité thermique de l'acier Z12 CNS 25-20, elle-même fonction de son épaisseur (2,1 mm).

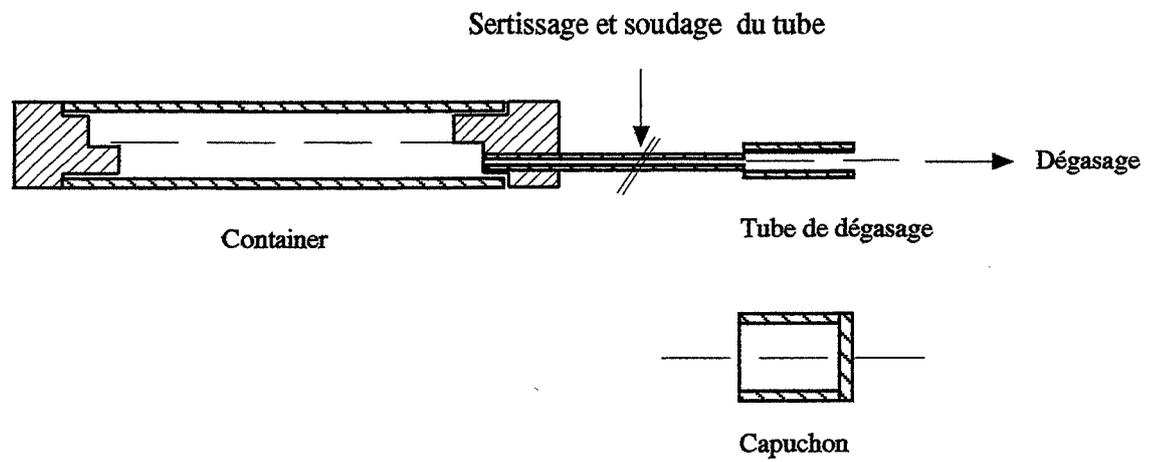
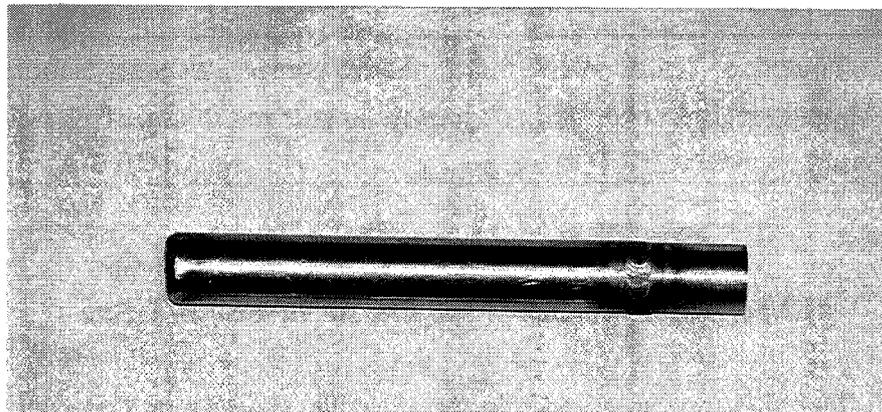


Schéma II.12 : Adaptation des éprouvettes au martelage sur la machine à 4 marteaux.



Photographie II.19 : Eprouvette destinée au martelage à 4 marteaux.

Or la conductivité thermique de cet acier étant faible, on doit s'assurer d'un temps de chauffe suffisamment long pour obtenir une bonne homogénéisation de la température à l'intérieur du container.

En raison de la résistance à l'oxydation de cet acier (§ I.2.3) jusqu'à des températures de 1150°C, nous n'aurons pas à craindre la détérioration de sa surface au cours du martelage à 900°C. La ductilité de l'acier à 900°C étant très bonne (A% = 45 %), on peut s'attendre à une bonne déformation de la gaine au cours du martelage.

II.2.2 - Martelage à 4 marteaux (Cime-Bocuze) : adaptation industrielle

Pour la préparation des éprouvettes de martelage, nous procédons de la même manière que pour le martelage à 2 marteaux excepté pour la finition.

Le maintien du container, lors du martelage à 4 marteaux, étant assuré par un système automatique de pointe-contre-pointe (§ I.3.1-b-) et non par le manipulateur, nous avons dû procéder à l'élimination du tube de dégazage et de la vanne (sans casser le vide, *Schéma II.12*) de manière à obtenir une éprouvette parfaitement cylindrique (*Photographie II.19*).

Le préchauffage du container est assuré par un four à induction avec un temps de chauffe limité à 5 mn.

Le temps de transfert four-machine est rapide environ 4 à 6 s. Malgré tout, entre la sortie du four et le martelage, une chute de température de l'éprouvette est inévitable du fait que celle-ci est manipulée au cours de son transfert par des pinces métalliques maintenues à température ambiante.

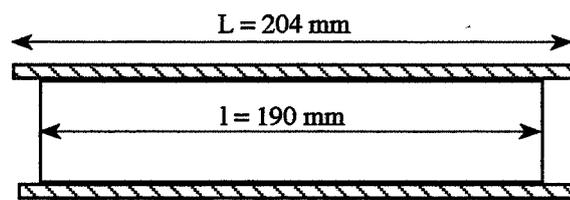


Schéma II.13 : Profil de l'éprouvette en cuivre martelée à 260°C-65%.

II.3 - ETUDE DES DEFORMATIONS PRODUITES PAR LA MACHINE A QUATRE MARTEAUX.

L'objectif de cette étude est d'analyser les déformations occasionnées par le martelage à quatre marteaux et notamment d'évaluer s'il existe ou non des différences avec la machine à 2 marteaux en vue d'une élaboration industrielle du matériau composite.

Nous nous sommes donc inspirés des méthodes utilisées dans notre laboratoire pour l'étude du martelage à deux marteaux (§ I.3.3) : éprouvette constituée de deux demi-cylindres de cuivre (recristallisé) et éprouvette composite à base de fils de tungstène à la différence que ces éprouvettes ont été martelées avec la machine à quatre marteaux de Cime-Bocuze, notre partenaire industriel.

II.3.1 - Déformations sur le barreau modèle en cuivre

Nous avons repris l'expérience concernant le martelage de deux demi-cylindres de cuivre dont l'une des faces internes est quadrillée (voir § I.3.3).

L'étude de la déformation s'est faite à travers l'analyse des allongements des carrés, de la torsion autour de l'axe zz' et de la torsion radiale "S" sur la section, en fonction du taux de martelage.

De manière à permettre une lecture plus fine des déformations des carrés, nous avons effectué un quadrillage plus fin de la face interne du demi-cylindre (pas de 1 mm).

Trois taux de martelage ont été testés : 41, 54 et 65 % (martelage réalisé en une seule passe). Les deux premiers ont été réalisés à température ambiante tandis que le dernier (65 %) a été effectué sur un barreau chauffé à 260°C.

II.3.1 - a - Aspect qualitatif des déformations

- Influence de la gaine -

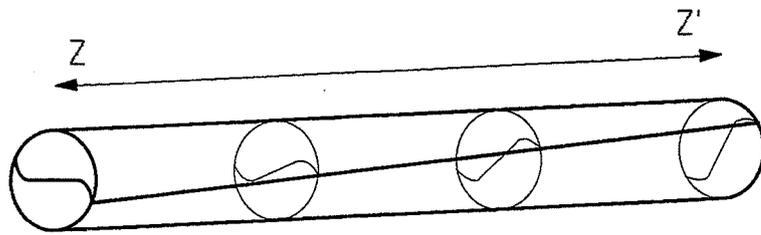
L'observation des éprouvettes après martelage nous permet de constater que la gaine subit une déformation plus importante que les deux demi-cylindres au cours du martelage : ceci est d'autant plus visible sur l'éprouvette martelée à 260°C-35 % (*Schéma II.13*)

Le taux de martelage défini par $\epsilon = 2 \ln D_f / D_i$ représente donc un taux moyen qui inclut deux déformations distinctes : celle subie par la gaine et celle réellement subie par les deux demi-cylindres.

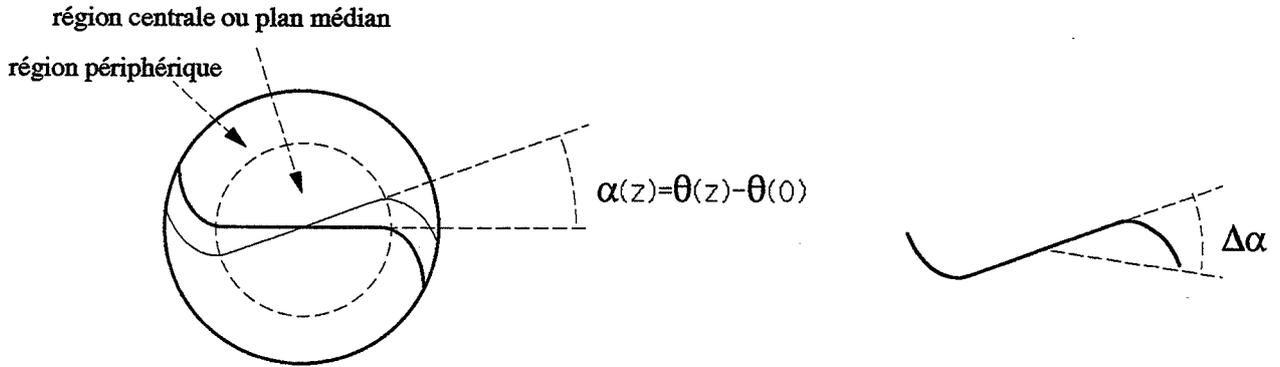
En prenant pour exemple l'éprouvette martelée au taux moyen de 41 %, on obtient en réalité d'après les dimensions relevées sur l'éprouvette (tableau ci-dessous) :

* un taux de déformation pour la gaine de 50 %.

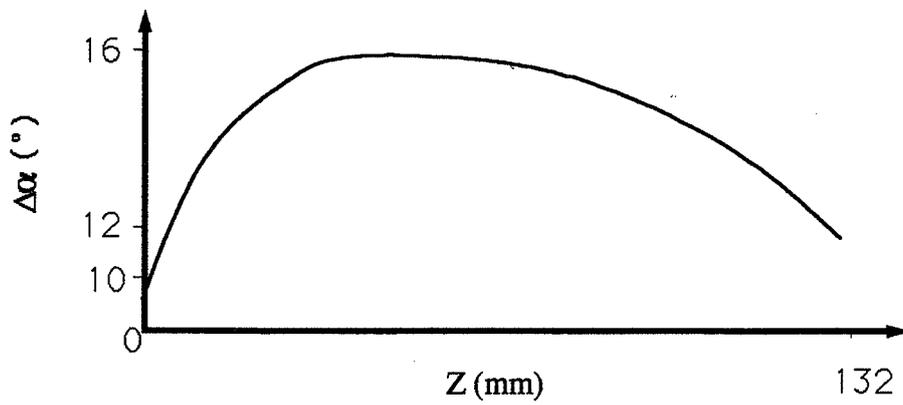
* un taux de déformation de 37 % pour le barreau formé des deux demi-cylindres .



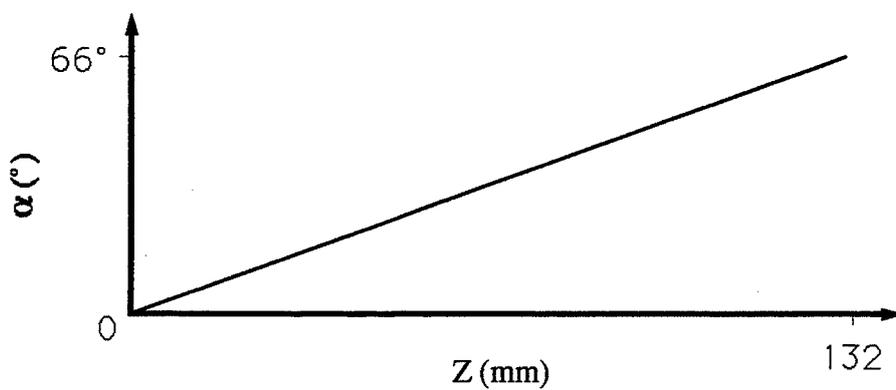
(a) Forme de l'éprouvette



(b) Section du barreau : définition des angles pour les deux torsions



(c) Evolution de la torsion radiale le long de l'axe du barreau



(d) Profil de la torsion longitudinale le long de l'axe du barreau

Figure II. 14 : Epreuve de cuivre martelée à 41%

On retiendra donc que le taux de martelage réellement subi par l'empilement des fils nickelés est légèrement moindre que le taux de martelage qui caractérise l'essai.

- Les phénomènes de torsion -

Tout comme pour le martelage à deux marteaux, on observe la torsion hélicoïdale et la torsion radiale en forme de "S" sur la section transversale de chaque demi-cylindre de cuivre (*Figures II.14 a et 15 a*). Bien qu'ayant une géométrie interne différente (§ I.3), les matrices de ces deux machines induisent donc un couple de torsion responsable d'un écoulement tangentiel de la matière.

La forme de "S" imprimée sur les demi-cylindres semble cependant, dans le cas du martelage à quatre marteaux, pouvoir se décomposer en deux régions (*Figure II.14 b*):

- La région centrale peu perturbée : pas de distorsion du plan parallèle à l'axe du barreau. On peut donc considérer que la déformation y est homogène, ce qui confirme les propos de [SHRANK et coll. 1985] qui nomme cette région la "zone neutre" (§ I.3.2). Nous l'appellerons ultérieurement plan médian.
- Les régions périphériques fortement courbées. La déformation y est donc hétérogène et est liée à un gradient de déplacement tangentiel de la matière.

II.3.1 - b - Analyse des déformations en fonction du taux de martelage

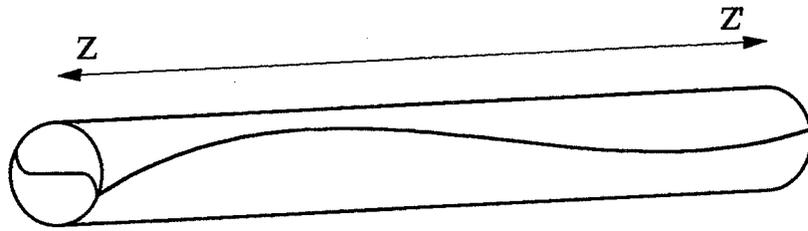
- Déformation du réseau gravé en fonction du taux de martelage -

Nous ne considérerons pour cette étude que la zone centrale du demi-barreau de cuivre (ou plan médian). On constate d'après le quadrillage que la déformation y est homogène. Pour les taux de 41% et 53%, on ne relève aucun cisaillement (les carrés deviennent des rectangles parfaits selon l'axe zz') tandis que pour le taux de 65%, le cisaillement transforme les carrés en parallélogrammes comme le montre la figure ci-dessous.

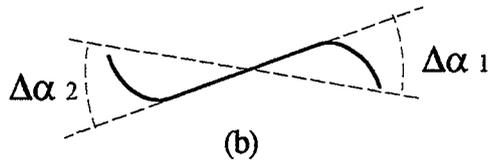


Rappelons toutefois que le barreau martelé à 65% a été préchauffé à 260°C et que la température joue un rôle sur l'écoulement plastique de la matière.

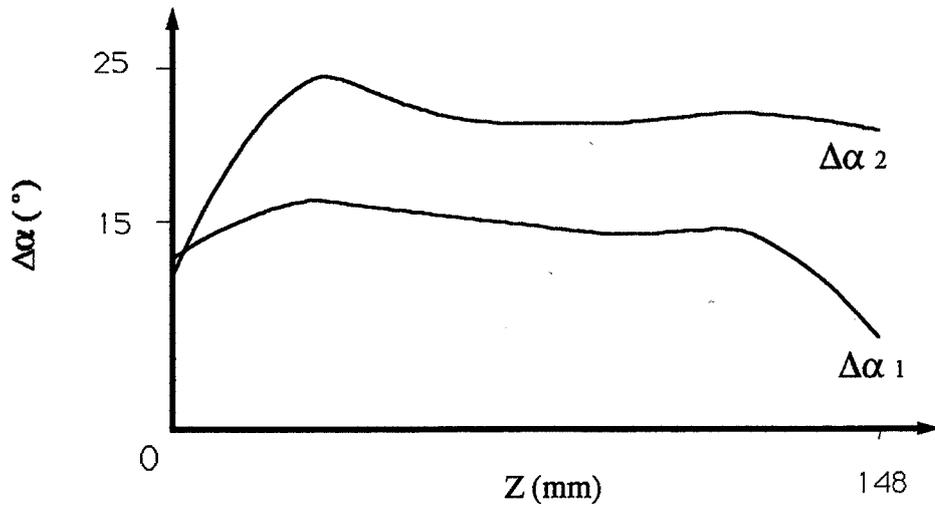
Nous pouvons cependant en conclure que l'approximation faite par [SHRANK et coll. 1985] (voir § I.3.3) "tout plan transversal reste plan après martelage" est vérifié sur ce type de matériau pour un taux de martelage inférieur ou égal à 53 % (au moins).



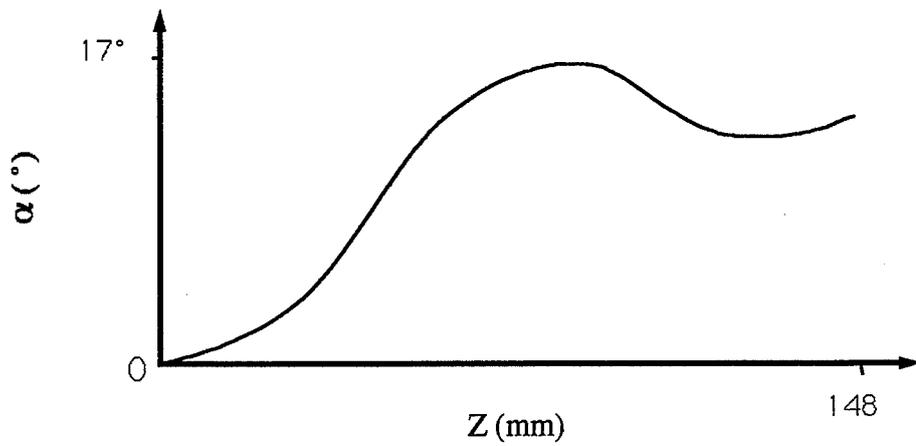
(a) Forme de l'éprouvette



(b)



(c) Evolution de la torsion radiale le long de l'axe du barreau



(d) Profil de la torsion longitudinale le long de l'axe du barreau

Figure II.15 : Eprouvette de cuivre martelée à 53%

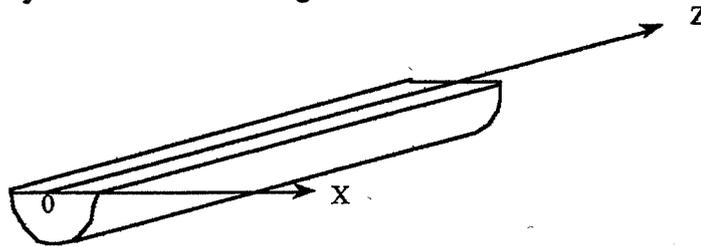
- Evolution des phénomènes de torsion en fonction du taux de martelage -

Définitions (Figure II.14b) :

- La torsion radiale sera définie par le paramètre $\Delta\alpha$ qui représente la différence d'angle entre le plan médian et le point extrême situé sur la circonférence du demi-cylindre.
- La torsion hélicoïdale sera définie par le paramètre $\alpha(z)$ représentant la rotation qu'effectue le plan médian d'une extrémité à l'autre du barreau.

Pour caractériser l'évolution des deux paramètres $\Delta\alpha$ et α en fonction de l'abscisse z , nous procéderons de la manière suivante :

- Nous prenons, comme plan de référence, celui de la figure ci-dessous qui représente la face interne d'un demi-cylindre avant martelage.



- La mesure des angles α et $\Delta\alpha$ est obtenue à l'aide d'un comparateur à bille que l'on promène sur la surface interne du cylindre. Les coordonnées (x, z) des points mesurés permet donc de déterminer l'évolution des phénomènes de torsion suivant l'axe z et ceci pour les trois taux de martelage considérés.

Les figures II.14 (c et d) et II.15 (c et d) représentent donc l'évolution des ces paramètres pour respectivement un taux de martelage de 41 % et de 53 %.

* Evolution de la torsion radiale : $\Delta\alpha (Z)$

La forme de "S" est d'autant plus marquée que le taux de martelage est élevé. Ceci se traduit par l'augmentation de la valeur moyenne de $\Delta\alpha$ augmente avec le taux de martelage.

En comparant les figures II.14 c et II.15 c relatives aux trois taux de martelage, on constate que la torsion radiale n'est pas constante le long du barreau et évolue de manière complexe en fonction du taux de martelage :

- Pour le taux de 41 %, la torsion radiale évolue le long de l'axe z en décrivant approximativement un demi-cercle : elle est maximale à environ 1/3 du barreau.
- Pour le taux de 53 %, la déformation radiale n'est plus tout à fait symétrique par rapport à l'axe z ($\Delta\alpha_1 \neq \Delta\alpha_2$) et sa forme est nettement moins régulière.

Ces mesures n'étant obtenue que sur un seul barreau, nous ne pouvons pas généraliser et affirmer que cette variation est reproductible et liée à l'augmentation du taux de martelage.

* Evolution de la torsion longitudinale : $\alpha(z)$

- Pour un taux de martelage de 41 %, l'évolution croissante et monotone de α en fonction de z indique que la torsion longitudinale du barreau est parfaitement hélicoïdale avec un pas de $0,5^\circ/\text{mm}$ (*Figure II.14 d*).
- Pour des taux de déformation plus élevés, $\alpha(z)$ ne varie plus de manière linéaire: sa variation devient irrégulière le long de l'axe z (*Figure II.15 d* pour le taux de 53 %)
Ceci est encore plus visible sur l'éprouvette martelée à 65 % mais là, le facteur température a aussi son influence.

- Conclusion sur les déformations produites par martelage 4M sur les éprouvettes en cuivre -

La déformation induite par la machine à 4 marteaux se caractérise donc, comme pour le martelage à deux marteaux, par une torsion radiale (formation d'un "S" sur la section du demi-cylindre) et par la torsion hélicoïdale autour de l'axe de l'éprouvette. La présence de cette torsion longitudinale nous apporte un complément d'information sur le martelage dans le sens où on pensait que cette torsion résultait du principe de maintien de l'éprouvette (cas du martelage à 2 marteaux : l'une des extrémités de l'éprouvette étant tenue par l'opérateur, l'autre, sous l'effet du martelage, est entraînée en rotation en raison de l'asymétrie géométrique des matrices (voir § I.3.3)).

Or, pour le martelage à 4 marteaux, le maintien de l'éprouvette étant assuré par un dispositif de pointe-contre-pointe qui impose une pression égale aux deux extrémités d'éprouvette, ne devrait pas induire une torsion hélicoïdale de l'éprouvette.

La comparaison quantitative des phénomènes de torsion entre la machine à deux et à quatre marteaux n'est pas facile du fait que les éprouvettes n'ont pas été martelées aux mêmes taux. Cependant, pour deux éprouvettes proches : l'éprouvette martelée à 2 marteaux à 47 % et l'éprouvette martelée à 4 marteaux à 41 %, on mesure une torsion longitudinale de $0,17^\circ/\text{mm}$ pour l'éprouvette martelée 2 M et $0,5^\circ/\text{mm}$ pour l'éprouvette martelée 4 M.

Les valeurs sont suffisamment éloignées l'une de l'autre pour en déduire que le martelage à 4 marteaux, contrairement à ce qu'on prévoyait, produit une torsion longitudinale plus importante que le martelage à 2 marteaux.

Pour le martelage à 2 marteaux, la forme de "S" sur la section de l'éprouvette n'est visible que pour des taux de martelage élevés (soit pour $\epsilon_M > 47\%$) alors que pour le martelage à 4 marteaux, la forme de "S" apparaît sur le barreau de cuivre dès 41 %.

Le martelage à 4 marteaux produit donc des déformations (torsions radiale et hélicoïdale) plus importantes que le martelage à 2 marteaux.

Matériau composite	Taux de martelage (%)	Température de martelage (°C)	Allongement des fils du centre (mm)	Allongement des fils de la périphérie (mm)	Angle de torsion (°)	Commentaires
D1	23	900	0	2	19	
D2	24	800	1	4	19	
D3	23	700	1	2	18	qq fils périphériques se décollent
D4	30	680	6	8	32	
D5	30	820	7	9	39	
D6	30	700	7	9	/	Dislocation complète
D7	38	800	13	15	62	qq fils périphériques se décollent
D8	38	820	14	15,5	55	
D9	37	700	14	16	~0	

Tableau II.7 : Caractéristiques des éprouvettes martelées avec la machines à quatre marteaux.

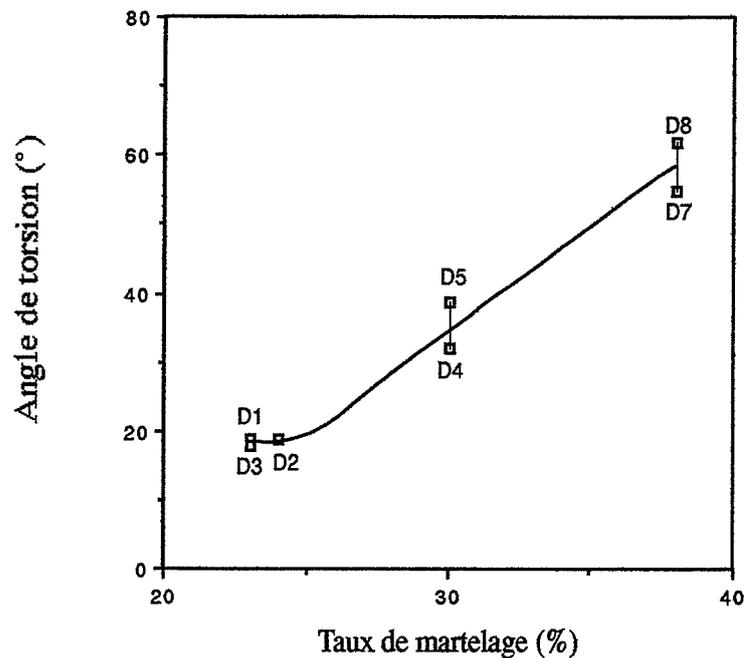


Figure II.16 : Variation de l'angle de torsion hélicoïdale en fonction du taux de martelage.

II.3.2 - Déformations sur le matériau composite (fils de tungstène)

Les éprouvettes composites constituées de 68 fils de tungstène dopé ($\phi = 1 \text{ mm}$) nickelés (épaisseur de la couche de Ni = $40 \text{ }\mu\text{m}$) de longueur 70 mm ont été élaborées comme indiqué au § II.2.2. De manière à étudier la torsion longitudinale, nous n'avons pas effectué de pré-torsion.

Ces éprouvettes ont été martelées à trois taux différents (23, 30 et 38 %) et trois températures (700, 800 et 900°C).

En dégageant le composite (W/Ni) de sa gaine, nous avons pu visualiser la déformation longitudinale. Les paramètres allongement (Δl fils du centre, Δl fils périphériques), rotation (θ), pas de l'hélice (en surface) et observations diverses de chaque éprouvette figurent dans le *tableau II.7*.

On constate :

- L'existence d'un gradient de déformation sur l'assemblage des fils de tungstène (*Schéma II.14 a*) : ceux de la périphérie sont plus allongés que ceux du centre.
Cet écart d'allongement est d'autant plus marqué que le taux de martelage est élevé.
On mesure pour le taux de 38 % un allongement important des fils de 15 mm, ce qui est considérable au regard de l'état initial fortement écroui des fils de tungstène.
Ce gradient de déformation n'est observable qu'à l'arrière du matériau composite, l'autre extrémité restant plan. Ceci résulte de l'écoulement de la matière qui se fait préférentiellement vers l'arrière (voir § I.3.3).
- Une torsion hélicoïdale d'angle α autour de l'axe zz' . Cet angle α croît avec le taux de martelage (*Figure II.16*) en accord avec ce que l'on observe sur les éprouvettes de cuivre. Pour un taux de 30 %, il faudrait donc pré-torsionner les fils de tungstène d'un angle de 39° pour avoir des fils rectilignes après martelage.
- L'augmentation de la température de martelage (700 -> 900°C) n'a, semble-t-il, pas une grande influence sur les différentes composantes de déformation.

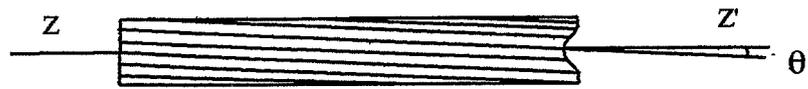
- Comparaison avec le martelage à deux marteaux -

Sur la *schéma II.14 b* sont représentés les aspects extérieurs des composites obtenus par martelage à 2 marteaux (a) et par martelage à 4 marteaux (b).

On constate la différence suivante :

La déformation (allongement des fils) est plus importante à coeur du barreau pour le martelage à 2 marteaux et plus important en périphérie pour le martelage à 4 marteaux.

Le résultat obtenu avec la machine à quatre marteaux ne va pas dans le sens des données bibliographiques (§ I.3.2) où il est dit que le martelage à quatre marteaux engendre, comme le martelage à 2 marteaux, une déformation plus importante à coeur.

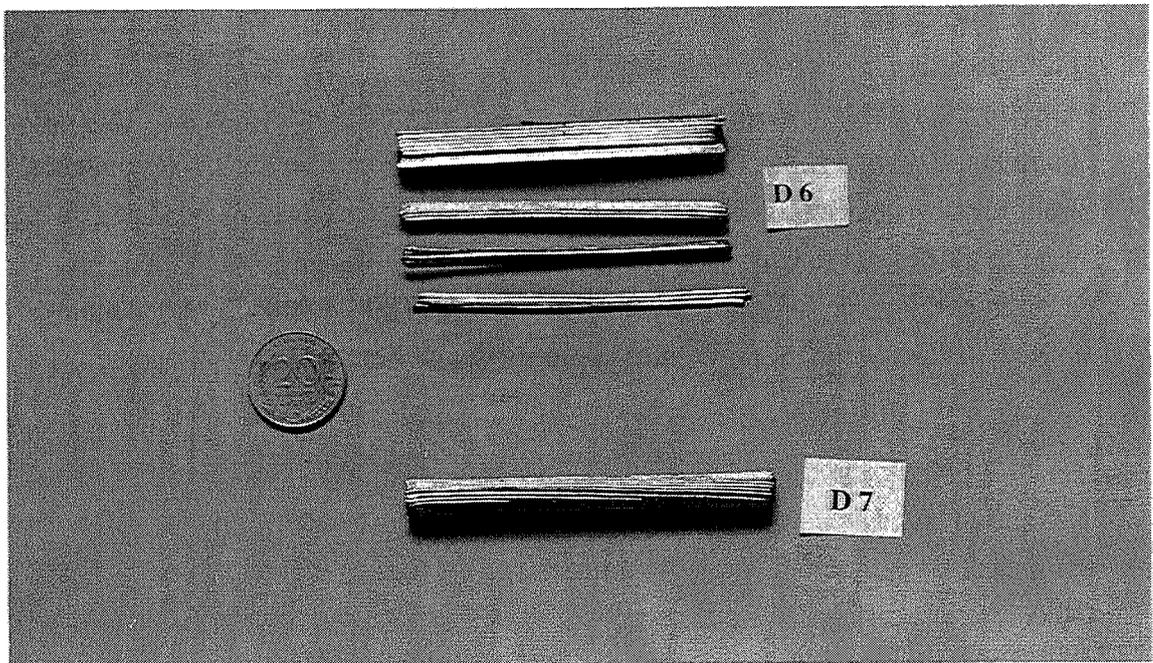


(a) Martelage à 4 marteaux



(b) Martelage à 2 marteaux

Schémas II.14 a et b: Aspect des barreaux composites dépouillés de leur gaine après martelage.



Photographie II.20 : Eprouvettes martelées avec la machine à quatre marteaux.

Ceci nous amène donc à considérer une autre raison : l'inhomogénéité de chauffe du container lors du préchauffage. En effet, pour ces essais, le temps de chauffe avait été fixé à 5 mm (§ II.2.2) alors que nous avons un matériau composite discontinu (interstices nombreux) et une gaine faiblement conductrice. Cette hypothèse a pu être vérifiée lorsqu'on a voulu enlever la gaine entourant le composite W/Ni, certains se sont désolidarisés indiquant une mauvaise soudure des interfaces nickel-nickel qui ne peut se faire que si la température est suffisamment élevée (*Photographie II.20*).

L'étude par microscopie des sections des composites ainsi réalisés (voir § II.4) nous en apportera la confirmation.

CONCLUSION

Cette étude a donc permis de vérifier qu'avec le martelage à quatre marteaux, on retrouvait les mêmes composantes de déformation (torsion longitudinale, torsion radiale, déformation homogène dans la partie centrale du barreau) qu'avec le martelage à deux marteaux.

Pourtant contrairement à ce qu'on prévoyait, la torsion longitudinale dont on avait attribué la responsabilité (principalement) au maintien fixe d'une des extrémités de l'éprouvette par le manipulateur (cas du martelage à 2 marteaux) s'avère autant voire plus importante avec le martelage à 4 marteaux.

Ceci nous amène donc à devoir effectuer une pré-torsion de l'assemblage des fils lors de l'élaboration des éprouvettes destinées au martelage à quatre marteaux : une pré-torsion d'environ 40° est nécessaire pour un taux de martelage de l'ordre de 30 %.

Ces essais préliminaires sur le site industriel (Cime-Bocuze) ont permis de déceler un problème au niveau du préchauffage des éprouvettes (insuffisance ou mauvaise conduction de la chaleur) nécessitant de revoir les différents paramètres afin d'optimiser les conditions de chauffe pour le cas particulier d'un matériau composite.

II.4 - CARACTÉRISATION MICROSTRUCTURALE DES MATÉRIAUX COMPOSITES

Cette partie de l'étude est consacrée à l'aspect purement microstructural du matériau composite (MC) suivant :

MC à base de fils Plansee dopés (1 mm), épaisseur de nickel de 40 μm et gaine en acier inox

Elle nous permettra d'examiner et d'optimiser différents paramètres dont principalement la température et le taux de martelage (T_M et ϵ_M) qui sont déterminants pour la qualité structurale du MC.

Dans un premier temps, nous présenterons l'aspect microstructural des composites élaborés avec la machine à deux marteaux puis celui des composites élaborés avec la machine à quatre marteaux.

II.4.1 - Matériaux composites élaborés avec la machine à deux marteaux

L'étude préliminaire des propriétés mécaniques des fils de tungstène nickelés (§ II.1) nous a montré que pour des températures de recuit supérieures à 1000°C, on obtenait une fragilisation des fils caractérisée par une chute de la contrainte et une perte totale de ductilité. Pour cette raison, la température de martelage ne devra pas dépasser cette valeur critique (1000°C). De manière à s'assurer d'une certaine marge, la température de martelage maximale sera fixée à 900°C.

Lors de nos essais de martelage, deux paramètres ont été testés :

- * La température de martelage : 700, 800, 900°C
- * Le taux de martelage : de 18 à 43 %

Différentes campagnes d'essais ont été menées. Les éprouvettes d'une même campagne sont repérables par une lettre alphabétique majuscule (campagne A, B, C, D, E, F). Chaque éprouvette d'une même campagne, différenciable par son taux ou sa température de martelage est identifiée par un numéro (exemple : A0, A1, A2 ...).

Une fois martelé, le matériau composite est débité en tronçons perpendiculaires à l'axe du barreau. La position des tronçons par rapport à l'extrémité libre du container lors du martelage est repérée par une lettre minuscule choisie par ordre alphabétique (*Schéma II.15*). Les tronçons seront donc désignés comme suit : A1a, A1b, A1c Ces tronçons serviront d'éprouvettes de compression. Un ou deux tronçons seront cependant prélevés pour la caractérisation microstructurale du composite.

Les *tableaux II.8, 9, 10* nous résument, chacun en fonction d'une température donnée de martelage, les caractéristiques de chaque matériau composite élaboré.

Température de martelage = 800°C								
Eprouvettes	Diamètre initial Di (mm)	Diamètre final Df (mm)	Taux de martelage (%)	Données concernant les fils de tungstène			Angle de prétorsion (°)	Nature de la gaine
				Nombre	Diamètre (mm)	Origine		
E1	13,84	12,2	25	284	0,5	dopé Plansee	42	Inox
E2	13,8	12,2	25	284	0,5	dopé Plansee	42	Inox
F4	12,84	12,16	26	67	1	dopé Plansee	42	Inox
C3	14,22	12,37	28	67	1	dopé Plansee	42	Inox
C4	14,23	12,30	29	67	1	dopé Plansee	42	Inox
E5	14,2	12,2	30	68	1	dopé Plansee	42	Inox
E6	15	12,2	41	68	1	dopé Plansee	42	Inox
E7	14	12,2	28	68	1	dopé Plansee	42	Nickel
E8	14,26	12,2	31	68	1	dopé Plansee	42	Nickel
E9	14,26	12,2	30	68	1	PUR Plansee	42	Inox
E10	14,2	12,2	30	61	1	PUR recrist. 1400-2 Plansee	42	Inox
(*) F6	14,2	12,02	32	66	1	PUR CB	42	Inox
(*) F7	14,2	12,06	33	66	1	PUR CB	42	Inox

(*) Epaisseur de la couche de nickel de 20 µm au lieu de 40 µm
Les fils de ces containers présentent un mauvais nickelage

Tableau II.8 : Caractéristiques des éprouvettes martelées à 800°C

Température de martelage = 700°C								
Eprouvettes	Diamètre initial Di (mm)	Diamètre final Df (mm)	Taux de martelage (%)	Données concernant les fils de tungstène			Angle de prétorsion (°)	Nature de la gaine
				Nombre	Diamètre (mm)	Origine		
C1	14,24	12,37	28	67	1	dopé Plansee	42	Inox
C2	14,22	12,37	28	67	1	dopé Plansee	42	Inox

Tableau II.9: Caractéristiques des éprouvettes martelées à 700°C

Température de martelage = 900°C								
Eprouvettes	Diamètre initial	Diamètre final	Taux de martelage	Données concernant les fils de tungstène			Angle de prétorsion	Nature de la gaine
	Di (mm)	Df (mm)	(%)	Nombre	Diamètre (mm)	Origine	(°)	
(1) A1	13,46	12,28	18	68	1	dopé Plansee	0	Inox
B1	13,46	12,24	19	68	1	dopé Plansee	0	Inox
(2) B2	13,80	12,28	24	68	1	dopé Plansee	0	Inox
Ao	13,98	12,28	26	68	1	dopé Plansee	0	Inox
Bo	13,98	12,28	27	68	1	dopé Plansee	0	Inox
(3) A3	14,04	12,28	27	68	1	dopé Plansee	0	Inox
(4) B3	14,03	12,28	27	68	1	dopé Plansee	0	Inox
(*) C5	14,23	12,26	30	<u>67</u>	1	dopé Plansee	42	Inox
(*) C6	14,23	12,25	30	<u>67</u>	1	dopé Plansee	42	Inox
A4	14,32	12,28	31	68	1	dopé Plansee	0	Inox
B4	14,32	12,28	31	68	1	dopé Plansee	0	Inox
(*) F1	14,15	12,06	32	<u>67</u>	1	dopé Plansee	42	Inox
A5	14,61	12,28	35	68	1	dopé Plansee	0	Inox
B5	14,61	12,28	35	68	1	dopé Plansee	0	Inox
(*) F2	14,42	12,00	36	<u>67</u>	1	dopé Plansee	42	Inox
A6	14,91	12,28	39	68	1	dopé Plansee	0	Inox
(4) B6	14,91	12,28	39	68	1	dopé Plansee	0	Inox
(*) F3	14,92	12,00	43	<u>67</u>	1	dopé Plansee	42	Inox
F5	14,10	12	32	<u>67</u>	1	dopé Plansee	42	Nickel
(5) F8	14,22	12,02	34	<u>66</u>	1	PUR CB	42	Inox

- (1) Oubli des calles => 2 passes ont été nécessaires avec un rechauffage de 25 mn entre les deux passes
(2) Incident en fin de martelage sans conséquence sur le MC
(3) Blocage de la marteuse => rechauffage de 5 mn avant martelage
(4) Martelage sans l'utilisation du système de guidage
(5) Epaisseur de la couche de nickel de 20 µm au lieu de 40 µm
Les fils de ces containers présentent un mauvais nicklage
(*) Eprouvettes comportant 67 fils au lieu de 68.

Tableau II.10 : Caractéristiques des éprouvettes martelées à 900°C

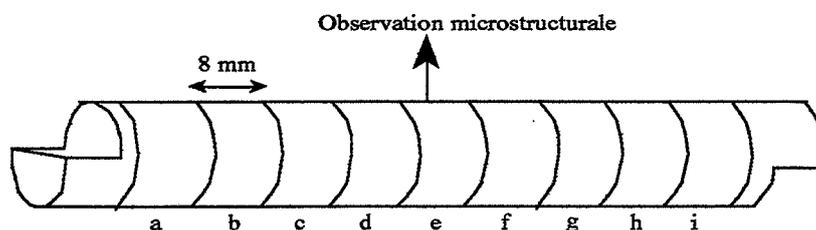
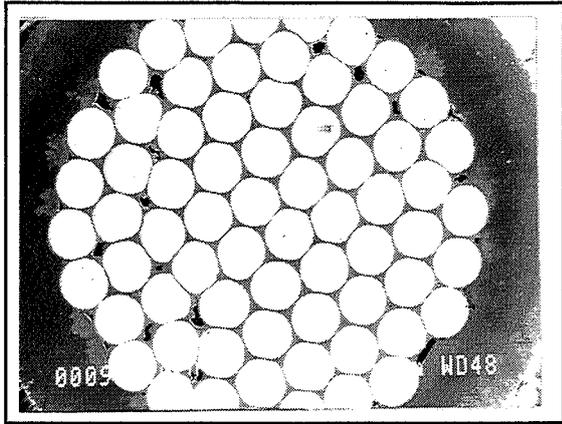


Schéma II.15 : Tronçonnage du barreau composite et identification des tronçons par ordre alphabétique

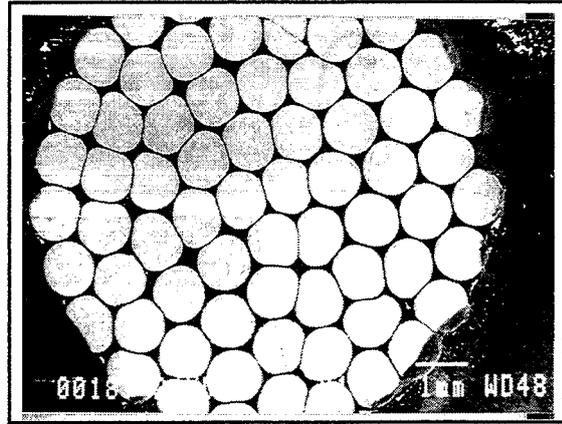
Eprouvettes	Taux de martelage (%)	Taux de porosité (%)	Densité (s) surfacique (v) volumique	% surfacique de W	% surfacique de Ni	Aire moyenne de chaque fil W (mm ²)	Taux de déformation des fils (%)
A1	18	1,4	17,43 (s)	83,2	15,4	0,7319	7
B1a	19		17,59 (v)				
B1b			17,65 (v)				
B2	24	0	17,63 (s)	84	16	0,7369	6,4
A3	27	0	17,43 (s)	82	18	0,6753	15,1
B3	27	0	17,38 (s)	81,54	18,46	0,6315	21,1
B3b			17,78 (v)				
B3c			17,7 (v)				
* C6	30	0	17,78 (s) (v) (17,67-17,91)				
A4	31	0	17,68 (s)	84,4	15,6	0,6341	21,4
B4a	31	0	17,77 (v)				
B4b			17,74 (v)				
A5	32	0	17,51 (s)	82,8	17,2	0,6278	22,4
B5a	35	0	17,72 (v)				
B5b			17,76 (v)				
B5c			17,69 (v)				
A6	39	0	17,15 (s)	79,3	20,7	0,618	24
B6b	39	0	17,83 (v)				
B6c			17,78 (v)				

* Eprouvettes contenant 67 fils au lieu de 68

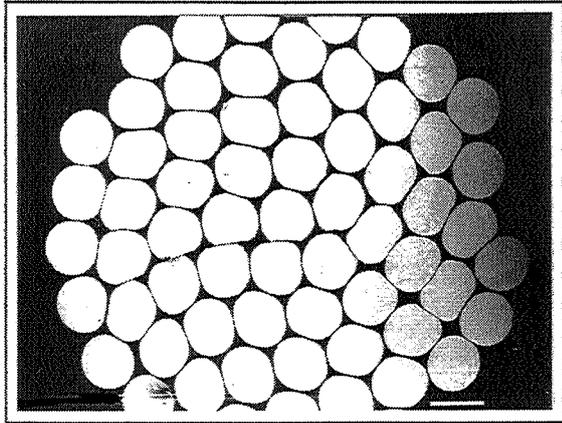
Tableau II.11 : Caractéristiques structurales des matériaux composites en fonction du taux de martelage



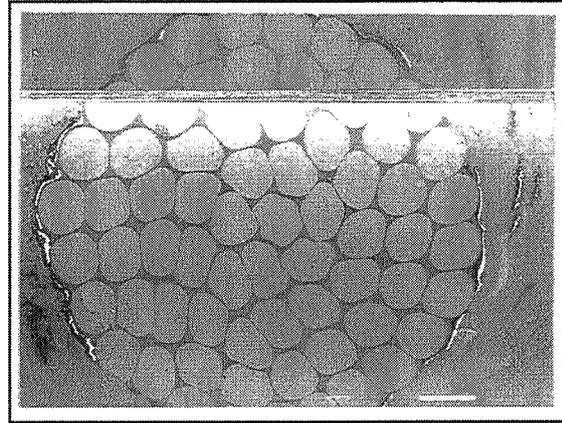
(a) $\epsilon_M = 19\%$ (B1c)



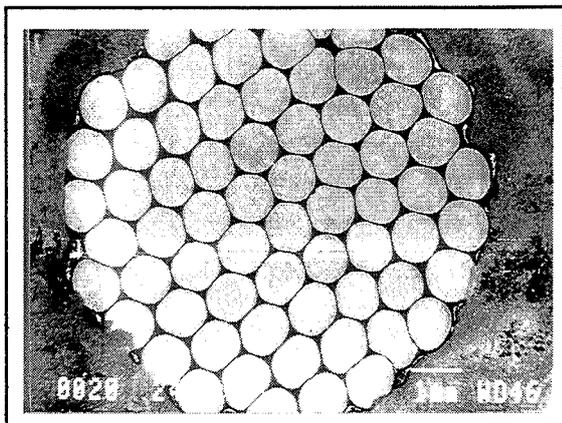
(b) $\epsilon_M = 24\%$ (B2a)



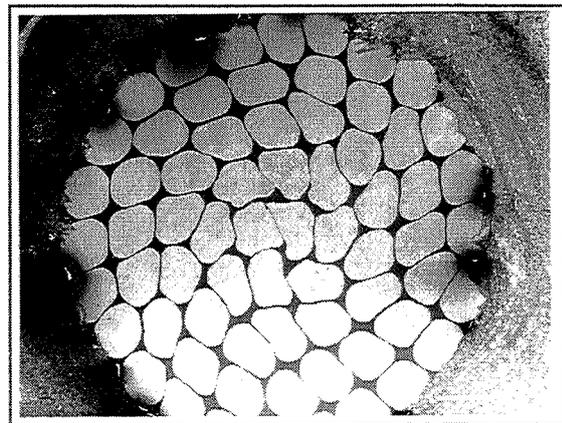
(c) $\epsilon_M = 32\%$ (F5)



(d) $\epsilon_M = 36\%$ (F2)

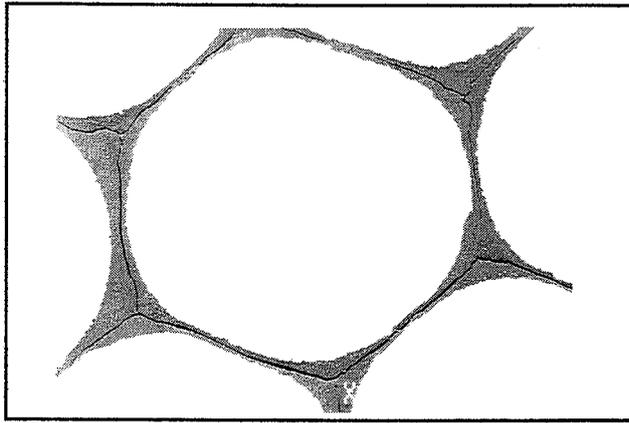


(e) $\epsilon_M = 39\%$ (B6)



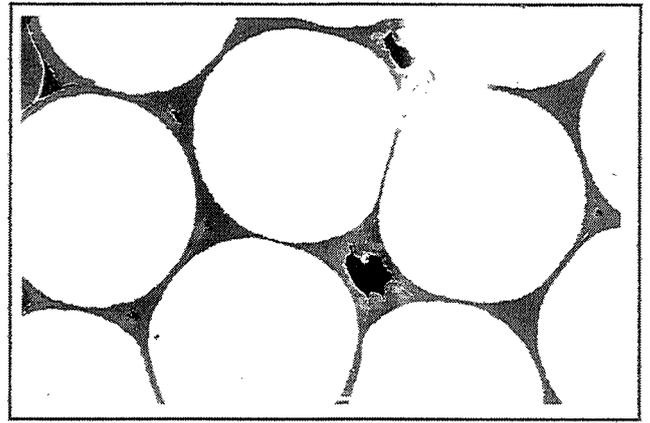
(f) $\epsilon_M = 43\%$ (F3)

Micrographies II.21 a, b, c, d, e, f : Section des matériaux composites en fonction du taux de martelage.
(échelle = 1 mm)

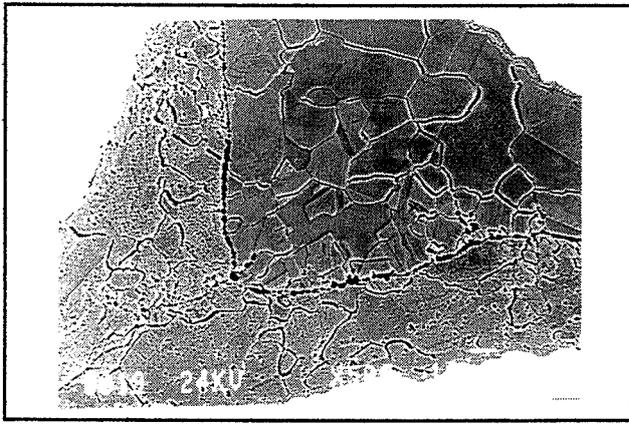


(a)

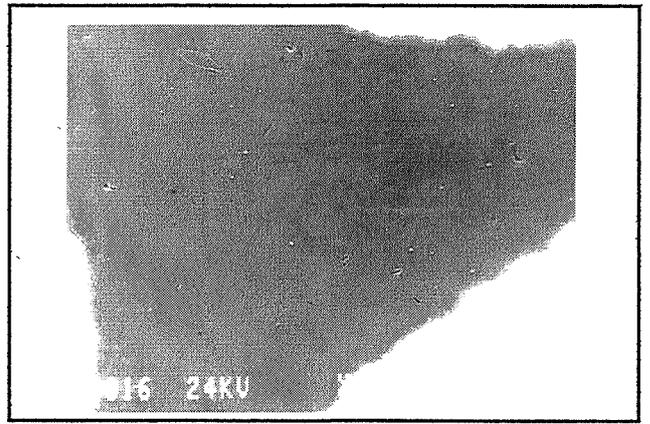
(a) $\epsilon_M = 19\%$ (B1c)



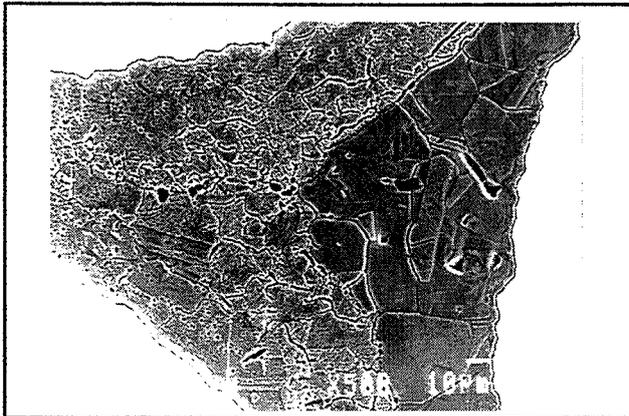
(b)



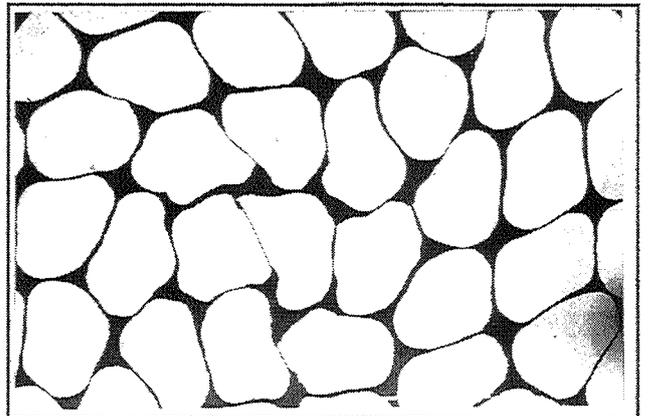
(b) $\epsilon_M = 24\%$ (B2a)



(c) $\epsilon_M = 30\%$ (C6)



(d) $\epsilon_M = 39\%$ (B6)



(e) $\epsilon_M = 43\%$ (F3)

Micrographies II.22 a,b,c,d,e : Interfaces des composites en fonction du taux de martelage.

II.4.1 - a - Influence du taux de martelage

Cette caractérisation s'est faite d'après l'observation des éprouvettes (séries A, B et quelques éprouvettes de la série C et F) martelées à 900°C et à des taux de martelage variant entre 18 et 43 % (Tableau II.8).

Les *micrographies II.21 (a,b,c,d,e,f)* (observations en microscopie électronique à balayage) montrant la section polie des différents composites, nous permettent de dégager certains critères qualifiant l'état structural du matériau composite (Tableau II.11) :

- Porosité
- Proportion surfacique de chaque élément
- Densité du matériau composite
- Nombre de fils de tungstène endommagés
- Taux de déformation des fils de tungstène
- Qualité des interfaces W-Ni et Ni-Ni

- Taux de porosité -

* Comme nous l'avions prévu par le calcul théorique du taux minimum ($\epsilon_{\text{densification}} = 23 \%$) de martelage (§ II.2.1-c-), les deux seuls échantillons (A1(18%) et B1(19%)) qui présentent une porosité résiduelle ont un taux de martelage inférieur à ce taux minimum. La porosité est surtout **localisée en périphérie** du matériau composite aux points triples et encore plus aux points quadruples (*Micrographie II.22 aβ*).

On constate, de plus, que ces faibles taux de martelage ne permettent pas un bon rétreint de la gaine autour de l'assemblage (Ni/W) : interstices non comblés et interface gaine-nickel non réalisé.

Ces observations semblent donc indiquer que le coeur du matériau composite est davantage contraint lors du martelage à 2 marteaux que les zones périphériques.

* Pour des taux supérieurs ou égaux à 24%, on constate l'absence de toute porosité (exemple: B2 martelé à 24% *Micrographie II.22 b*).

Quel que soit le taux de martelage compris entre 24 et 43 %, l'observation microstructurale des matériaux composites nous permet d'affirmer que le **martelage rotatif à 900°C** permet de manière tout à fait satisfaisante de réaliser un **matériau composite parfaitement consolidé**.

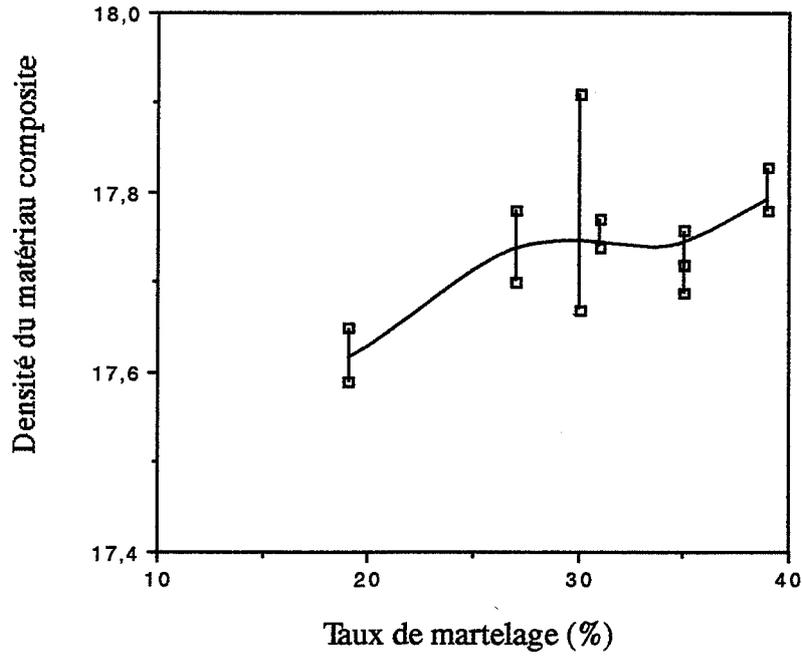


Figure II.17 : Densité volumique du matériau composite en fonction du taux de martelage.

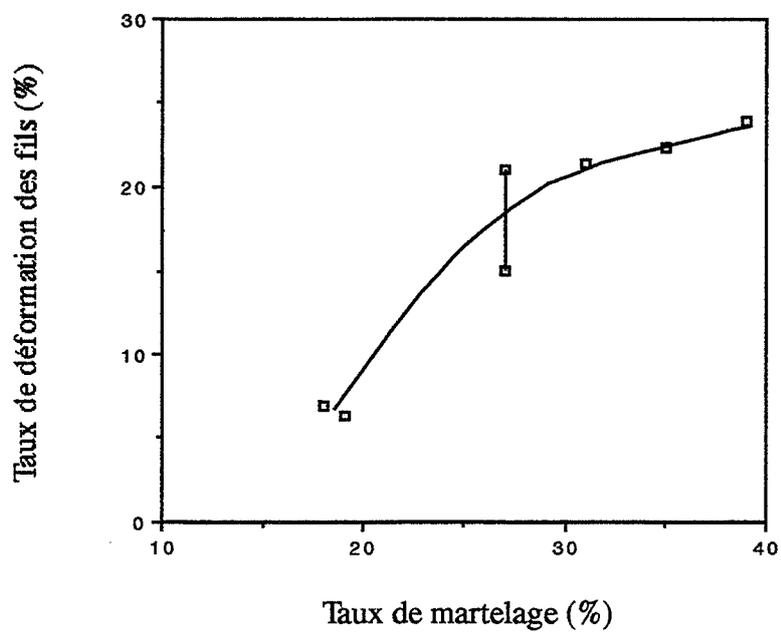


Figure II.18 : Taux de déformation des fils en fonction du taux de martelage.

- Densité du matériau composite -

Des mesures de densité ont été effectuées sur un certain nombre de matériaux composites auxquels nous avons enlevé la gaine en inox.

La densité du matériau composite a été déterminée de deux manières (*Tableau II.11*) :

- * Mesure de la densité surfacique du matériau composite qui a donné des valeurs dispersées comprises entre 17,4 et 17,6.
- * Mesure de la densité volumique du matériau composite par la méthode de la pesée comparative dans l'air et dans l'eau : valeurs de densité comprises entre 17,6 et 17,8 (*figure II.17*).

La densité du matériau composite, comparativement à celle des alliages lourds est donc très satisfaisante. Ces valeurs expérimentales sont proches de la valeur théorique (17,81) calculée dans l'annexe C.

- Taux de déformation des fils -

L'observation de la section des composites nous permet de constater que le martelage ne donne pas lieu à un empilement parfaitement hexagonal des fils de tungstène (voir Annexe D) : la section des fils déformés n'est ni circulaire ni hexagonale; sa forme est plutôt irrégulière.

Indépendamment du taux de martelage et de la position (à coeur ou en périphérie) du fil dans le matériau composite, on constate que certains fils sont plus touchés par la déformation que d'autres.

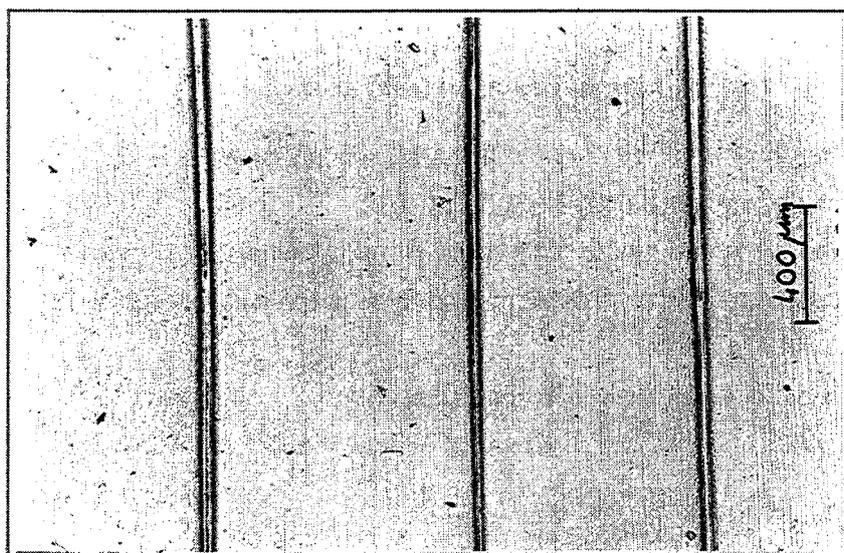
En règle générale cependant, on peut remarquer que :

- Pour de faibles taux de martelage (*Micrographie II.21 b*), il n'y a pas de différence dans la déformation des fils entre la périphérie et le coeur du matériau composite.
- Pour des taux plus élevés (> 35 %) (*Micrographie II.21 f*), les fils situés à coeur sont plus déformés que ceux de la périphérie.

La mesure de l'aire moyenne des fils en fonction du taux de martelage, nous indique que la réduction de section des fils est d'autant plus importante que le taux de martelage est élevé (*Figure II.18*).

Si on compare le taux de déformation moyen mesuré sur la section des fils ($\epsilon_{fil} = \ln(S_f/S_i)$) avec le taux de martelage ($\epsilon_M = \ln(D_f/D_i)$), on constate une différence de 10 % que l'on peut attribuer à la gaine en inox (voir § II.3.1-a-).

On peut, de plus, constater de manière assez surprenante que les fils de tungstène subissent au cours du martelage des déformations très importantes qui n'entraînent pas, pour autant, un endommagement notable du fil (ex : déformation de 24 % pour le composite martelé à 39 %)



Micrographie II.23 : Coupe longitudinale $\epsilon_M = 31\%$ (A4)

Ech.	Taux de martelage $\epsilon_M\%$	Interface Ni-Ni		Interface W-Ni	Nombre de Fils endommagés	Distance entre fils (mm)
		sans attaque	après attaque			
B1 A1	19% 18%	non établie + porosité à certains pts triples (périphérie)	/	bon	0	/
B2a	24%		/	filet pt triple	bon	2 brisés
B3a	27%	/	filet pt triple	bon	2 brisés	/
A4 B4	31% 31%	bon	/	bon	0	/
F5 F1	32% 32%	bon	/	bon	0 3 fissurés	7-20 (centre) 20-27 (bord) 17-40
F8 (Fils CB)	34%	mauvais		mauvais	4 fissurés	3-45 (centre) 14-38 (bord)
F2	36%	bon	/	bon	7 fissurés	3-10 (centre) 20-40 (bord)
B6	39%	/	filet pt triple moins visible	bon	1 fissuré	/
F3	43%	bon	/	bon	21 fissurés	10-20 (centre) 30-40 (bord)

Tableau II.12 : Aspect qualitatif des éprouvettes martelées à 900°C.

alors que les fils pris individuellement ont une très faible ductilité ($\approx 2\%$, valeur mesurée par traction, voir § II.1.1).

- Endommagement des fils -

Pour des taux de martelage élevés (36 à 43 %), nous avons donc vu que les fils situés au centre du matériau étaient fortement déformés. Toutefois, de telles déformations n'entraînent pas forcément la rupture ou la fissuration systématique des fils (par délaminage) comme on aurait pu s'y attendre au regard des essais de compression uniaxiale effectués sur un fil isolé (§ II.1.1-d-).

D'après nos observations, si l'augmentation du taux de martelage entraîne une augmentation du taux de déformations des fils (surtout ceux situés à coeur), elle ne semble pas induire une augmentation du nombre de rupture :

Curieusement, nous avons observé des ruptures de fils pour des taux de martelage relativement faibles (24 et 27% et sur des fils qui n'ont pas une section particulièrement déformée, Micrographie II.21 b) alors que pour des taux de martelage importants, les fils les plus déformés ne présentent pas de rupture (Tableau II.11).

La comptabilisation du nombre de fils rompus ne semble donc pas constituer un bon critère pour caractériser l'effet de l'augmentation du taux de martelage.

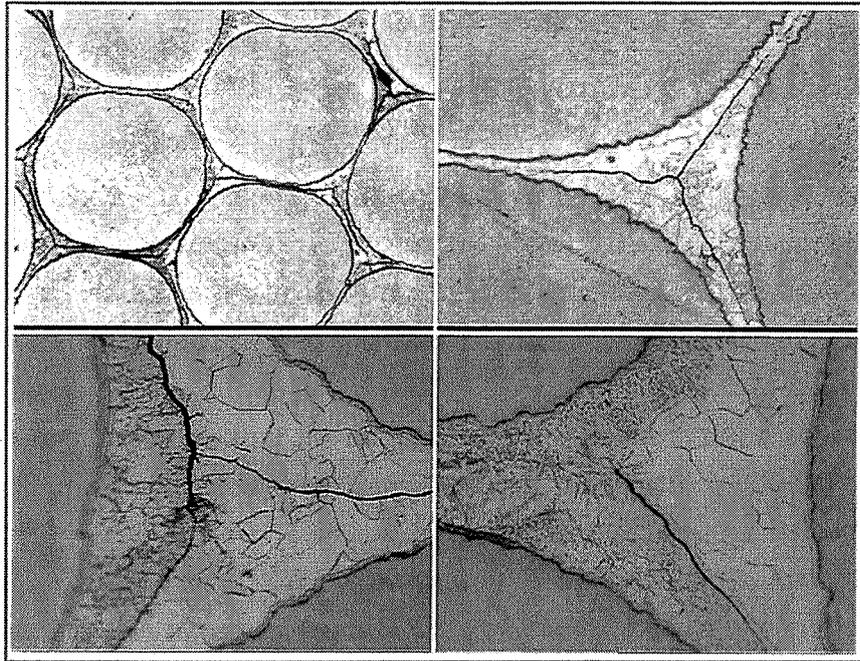
Par contre, on constate un rapport croissant entre le nombre de fils endommagés par de très légères fissures (difficiles à déceler) et le taux de martelage (Tableau II.12).

Le taux de fissuration (concernant surtout les fils situés au centre du composite) est, en effet, plus important pour les taux élevés de 39 et 43 %. Ces petites fissures se produisent préférentiellement en périphérie du fil (près de l'interface W-Ni) là où il est soumis à de fortes déformations (accommodation géométrique liée aux fils voisins). Il s'agit donc d'une "rupture cohésive de la fibre près de l'interface".

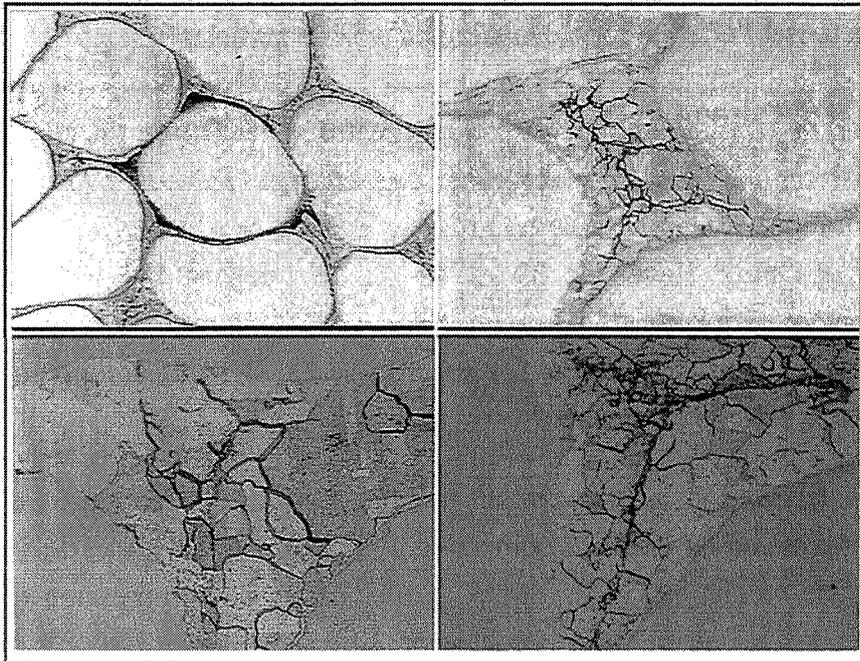
De telles fissurations, en apparence bénignes, risquent cependant d'abaisser la résistance en compression du matériau composite. Il serait donc préférable de limiter le taux de martelage à une valeur maximale de 35 %. Les essais de compression (§ II.5) nous permettront cependant de vérifier ou non cette supposition.

Remarque :

Il faut toutefois relativiser nos conclusions dans le sens où l'on prétend qualifier l'état général d'une éprouvette uniquement sur l'observation d'une surface prélevée au hasard sur l'éprouvette. Il se peut notamment que la rupture d'un fil ne se propage pas sur toute sa longueur et ne soit pas détectable sur la section observée.



(a) B1 (900°C, $\epsilon_M = 19\%$)



(b) F3 (900°C, $\epsilon_M = 43\%$)

Micrographies II.24 a et b : Influence du taux de martelage sur la microstructure de la matrice nickel
(Température de martelage : 900°C)

Toutefois, l'observation longitudinale des composites n'a pas non plus montré la présence de telles ruptures sur les fils (Micrographie II.23).

- Interfaces tungstène-nickel -

Quel que soit le taux de martelage, les interfaces W-Ni ne montrent aucun signe de détérioration; leur aspect est toujours parfait. Le martelage n'induit donc aucune décohésion entre le dépôt de nickel et le fil de tungstène.

On peut remarquer que cette interface est sinueuse. Cette rugosité à la surface des fils (Plansee) a vraisemblablement été réalisée dans le but d'améliorer l'adhérence des dépôts électrolytique de nickel.

- Matrice en nickel -

L'attaque chimique de la matrice en nickel (réactif de Marble) a révélé que la microstructure des dépôts de nickel pouvait différer d'un fil à l'autre et ceci indépendamment du taux (*Micrographies II.24 a,b*) et de la température de martelage (*Micrographies II.25 a,b*). Si certains dépôts sont plus sensibles à l'attaque chimique, d'autres montrent une microstructure à larges grains équiaxes avec présence de macles de recuit .

Cette sensibilité à l'attaque de certains dépôts peut provenir du taux d'impuretés ou de précipités introduit au cours du nickelage et qui n'est pas forcément reproductible d'un lot à un autre (Micrographie II.25 b).

Quoiqu'il en soit, nous constatons que le martelage à 900°C permet d'obtenir une matrice dont la microstructure est à grains équiaxes. Il s'est donc produit au cours de l'élaboration du composite une recristallisation des dépôts de nickel originellement de type colonnaire (voir § I.2.2-b-). Cette nouvelle microstructure résulte donc soit d'une recristallisation post-dynamique du nickel soit d'une recristallisation dynamique du nickel pendant martelage.

La recristallisation de la matrice peut être un atout pour la résistance mécanique du composite en compression car une structure écrouie ou colonnaire présente des contraintes internes pouvant fragiliser le matériau composite.

La variation du taux de martelage entre 19 à 43 % n'induit apparemment pas de différences microstructurales notables au niveau de la matrice de nickel puisqu'on n'observe pas de différence de taille de grains : comparaison des *figures II.24 a* ($\epsilon_M = 19\%$) et *II.24 b* ($\epsilon_M = 43\%$).

Si l'augmentation du taux d'écrouissage (dans la limite de nos expériences) n'influe pas sur la microstructure de la matrice en nickel, il agit, par contre, sur la qualité de l'interface Ni-Ni.

- Interfaces nickel-nickel -

La qualité de l'interface Ni-Ni est, en effet, fonction du taux de martelage :

* Pour de faibles taux (18 et 19 %), la déformation des dépôts de nickel est insuffisante pour soit accoler les dépôts les uns aux autres (présence de porosité aux points triples) ou pour réaliser la soudure de l'interface Ni-Ni. Ceci concerne surtout la périphérie du composite, ce qui prouve encore une fois que le coeur du matériau est plus écroui que sa périphérie.

La mauvaise soudure de l'interface se visualise sur la section polie (sans besoin d'attaquer chimiquement) par un trait noir qui suit l'interface Ni-Ni, preuve qu'il y a bien eu déformation des dépôts de nickel mais sans soudure (*Micrographie II.22 aα*).

* Pour des taux plus élevés, la soudure à la jonction Ni-Ni devient invisible sur surfaces polies. Seule une attaque chimique permet de révéler la trace de la soudure.

L'augmentation du taux de martelage n'entraîne pas la disparition de cette trace. Contrairement aux traits visibles à faible taux de martelage, cette trace est sinueuse (*Micrographie II.22 d*). Elle correspond plus vraisemblablement aux traces d'impuretés qui se sont déposées (avant le martelage) sur les fils nickelés, la croissance des grains au cours de la recristallisation du nickel rendant le tracé sinueux.

On peut donc considérer que l'interface Ni-Ni est parfaitement soudé si le taux de martelage est supérieur à 20 %.

- Distance entre fils -

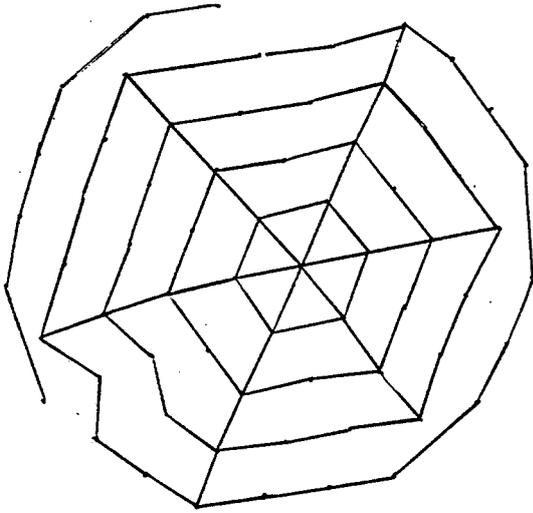
Nous avons mesuré, à l'intérieur des composites martelés à des taux élevés (32 à 43 %) les épaisseurs minimales de matrice entre deux fils (ou distances minimales qui séparent deux fils de tungstène) (*Tableau II.12*).

On constate que cette épaisseur diminue vers le coeur du matériau, là où les fils sont les plus déformés. Pour les taux de martelage élevés, à coeur, l'épaisseur devient très faible voir quasi-nulle (entre 3 et 20 μm maximum). En périphérie, elle est un peu plus importante; elle varie entre 20 et 40 μm .

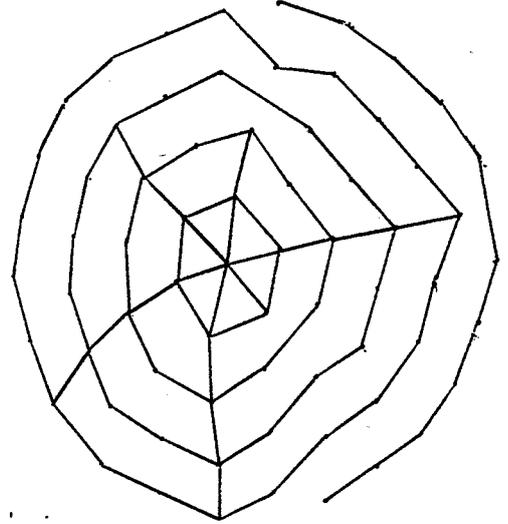
La quasi-absence de matrice à coeur risque d'être néfaste aux propriétés mécaniques du composite en raison de possibles endommagements des fils provoqués par des frottements entre fils lors d'une sollicitation mécanique (voir § II.5).

Remarque :

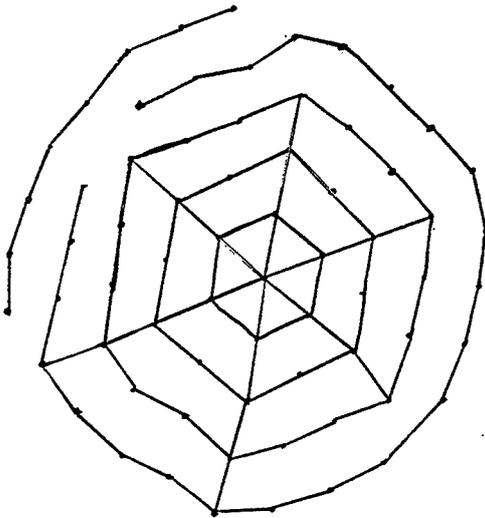
Dans l'annexe D nous avons estimé, de manière tout à fait théorique, la distance entre fils (ou épaisseur de matrice) en tenant compte de l'allongement des fils (qui est fonction du taux de martelage) et en considérant deux cas extrêmes parmi les quatre cas envisagés.



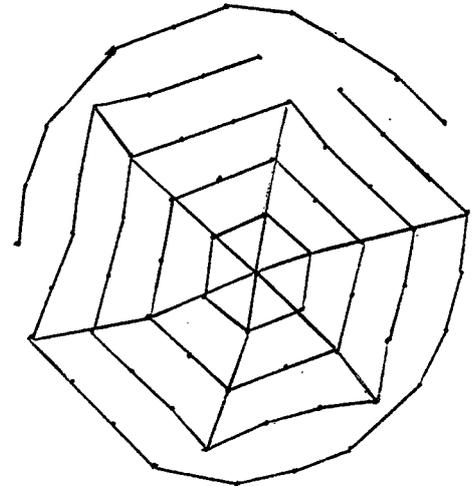
(a) $\epsilon_M = 19\%$ (B1)



(b) $\epsilon_M = 24\%$ (B2a)



(c) $\epsilon_M = 27\%$ (B3a)



(d) $\epsilon_M = 39\%$ (B6)

Figures II.19 a, b, c, d : Configuration des empilements en fonction du taux de martelage.
(Température de martelage : 900°C)

Cas 3 : On considère que la section des fils conserve l'aspect d'un disque parfait après déformation.

Cas 4 : On considère que la section des fils se déforme en hexagone.

L'observation des sections des fils, après martelage, a montré qu'en réalité, leur forme était irrégulière. La déformation des fils sur une même section étant hétérogène, certains fils ont une section de forme proche de celle décrite par le cas 3 tandis que celles d'autres fils se rapprochent plus du cas 4.

Le cas 3 conduit à des distances entre fils ($2e_f$) très inférieures à celles prévues par le cas 4 (Annexe D):

Exemple : Pour un taux de martelage 35 %, le cas 3 prévoit une épaisseur entre fils de $7 \mu\text{m}$ tandis que le cas 4 prévoit une épaisseur de $34 \mu\text{m}$.

Ceci est contraire aux observations expérimentales. En effet, pour les composites fortement martelés (taux de martelage $> 35 \%$), l'épaisseur de matrice est plus fine à coeur (cas proche du cas 4) qu'en périphérie (cas proche du cas 3).

Ceci vient du fait que dans notre analyse théorique, nous n'avons pas pris en compte la différence de ductilité entre le nickel et le tungstène : la compression de l'assemblage entraînant un écoulement plastique du nickel plus intense que celui du tungstène.

- Evolution de l'empilement en fonction du taux de martelage -

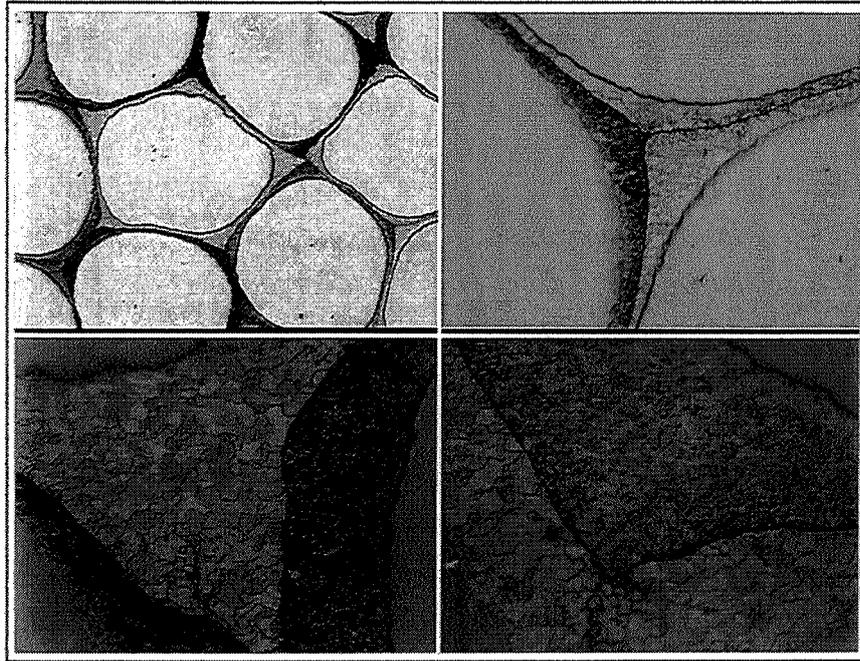
En reliant les centres des fils constituant chaque composite, nous avons voulu suivre l'évolution du réseau en fonction du taux de martelage (Figures II.19 a,b,c,d).

On s'attendait à avoir une évolution progressive vers une configuration hexagonale. Or, nos résultats ne semblent pas aller dans ce sens. A 19 %, la configuration proche d'un réseau hexagonal est similaire à celle obtenue à 39 % malgré la porosité. Pour un taux intermédiaire (24 %), la configuration du composite B_{2a} offre un réseau de forme plus aléatoire.

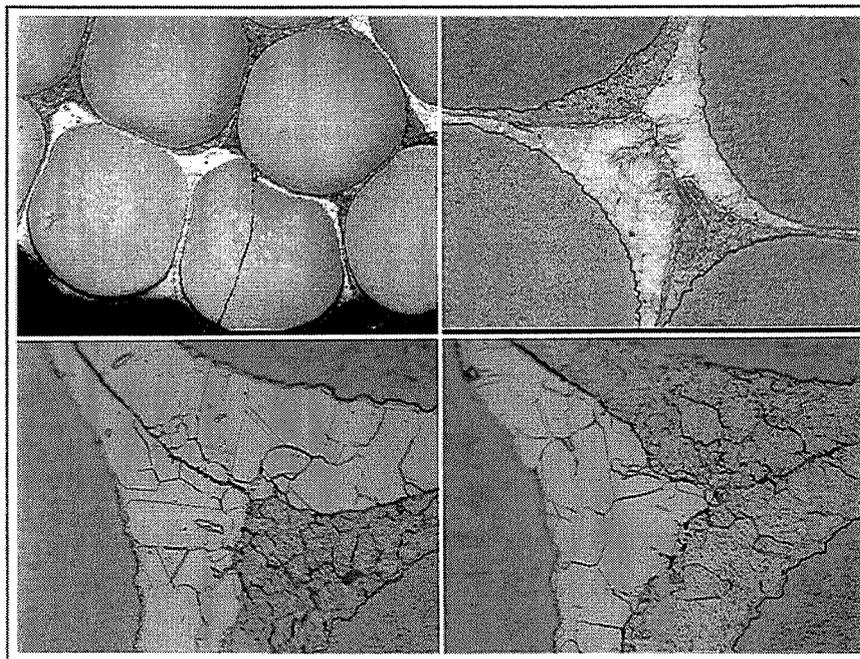
Le martelage rotatif permet donc un arrangement quasi-hexagonal de l'empilement des fils (préférentiellement ceux situés à coeur, les fils de la périphérie se positionnant de manière plus aléatoire).

L'augmentation du taux de martelage se traduit toutefois sur les réseaux par une légère diminution de la distance entre deux hexagones concentriques (1 à 1,15 pour 19 % et 0,8 à 1 pour 39 %).

Remarque : Etant donné cette structure de réseau, le composite pourra être considéré comme un matériau isotrope transverse vis à vis d'une sollicitation mécanique.



(a) C1 (700°C, $\epsilon_M = 28\%$)



(b) B3 (900°C, $\epsilon_M = 27\%$)

Micrographies II.25 a et b : Influence de la température de martelage sur la microstructure de la matrice nickel (Taux de martelage : 28%)

II.4.1 - b - Influence de la température de martelage

Etant donné l'existence d'une réaction interfaciale entre le nickel et le tungstène (diffusion-recristallisation) aux températures supérieures à 1000°C, nous avons choisi de limiter notre température de mise en forme à 900°C.

Nous avons cherché alors à évoluer l'incidence d'une petite variation vers les basses températures. Nous avons donc élaboré et comparé des composites martelés à 700 et 800°C à ceux martelés à 900°C. Pour cette étude, nous nous plaçons dans un domaine de taux de martelage variant entre 25 et 33 %, soit au dessus du taux de densification.

Les caractéristiques des éprouvettes martelées à ces températures figurent dans les *tableaux II.8 et 9* : C₁ et C₂ martelées à 700°C; F₄, C₃, C₄, E₅ et E₆ martelées à 800°C.

Signalons que pour certaines éprouvettes, le nombre de fils est de 67 au lieu de 68 en raison de petits écarts dimensionnels des containers.

- Interfaces W-Ni et Ni-Ni -

Quelle que soit la température, les interfaces W-Ni restent inchangées.

La température ne semble pas avoir, non plus, une grande influence sur la qualité des interfaces Ni-Ni puisque la déformation des couches de nickel est aussi bonne à 700 qu'à 900°C et la soudure aussi bien réalisées.

- Déformation des fils de tungstène -

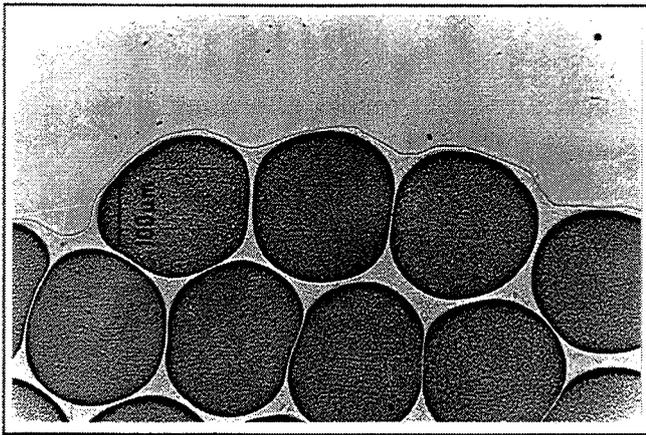
Le changement de température n'entraîne pas de modification du comportement des fils de tungstène en déformation. On peut toutefois remarquer qu'on n'observe pas de fissuration des fils sur le composite E₆ martelée à 41 % (800°C) alors qu'on en relevait de nombreuses sur l'éprouvette F₃ martelée à 43 % (900°C).

- Matrice en nickel -

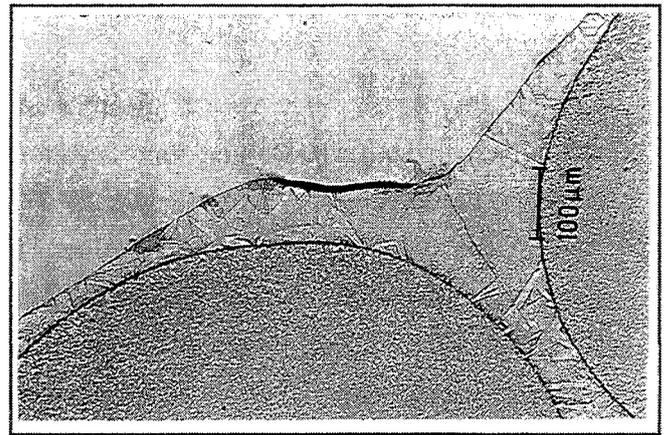
La variation de la température a davantage d'influence sur la microstructure de recristallisation de la matrice en nickel.

Pour ces trois températures, la matrice a un aspect recristallisé mais en comparant les éprouvettes C₁ (700°C) (*Micrographie II.25 a*), C₃ (800°C) et B₃ (900°C) (*Micrographie II.25 b*) ayant, toutes trois, subi le même taux de martelage (28 %), on constate que la taille des grains du nickel sur C₁ est nettement inférieure à celle des grains des deux autres éprouvettes. Ces dernières qui ont une taille de grains sensiblement identique présentent, de plus, des macles de recuit.

D'après Luton et Sellars [1969], la recristallisation dynamique du nickel n'apparaît que vers $0,6T_f$ soit 762°C (§ I.2.2-d-). On s'attendait donc à ce que la matrice de nickel soit à l'état



(a) Sans attaque chimique



(b) après attaque chimique du nickel

Micrographies II.26 a et b : Interface gaine-matériau composite sur l'éprouvette E₉ ($T_M = 800^\circ\text{C}$, $\epsilon_M = 30\%$)

Ech.	$T(^{\circ}\text{C}), \epsilon_M(\%)$	Nombre de fils	Interface Ni-Ni		Interface W-Ni	Nombre de Fils endommagés
			sans attaque	après attaque		
F4	800, 26%	67	Bon	Filet, pt triple	bon	3 fissurés (centre) + 12 (bord)
C1	700, 28%	67	Bon	très visible	Bon	0
C3	800, 28%	67		Filet, pt triple	Bon	0
C4	800, 29%	67	bon		bon	0
E5	800, 30%	68	bon	filet pt triple	bon	0
F6 (Fils CB)	800, 32%	66	mauvais		mauvais	7 fissurés (centre) + 16 (bord)
E6	800, 41%	68	bon	filet pt triple	bon	0

Tableau II.13 : Aspect qualitatif des éprouvettes martelées à 700 et 800°C.

écroui pour un martelage à 700°C. Le fait d'avoir, malgré tout, une matrice recristallisée peut résulter de la présence des fils de renfort.

En effet, Poole et coll [1994] ont mis en évidence sur un composite W/Cu (la méthode d'infiltration en phase liquide utilisée donne une matrice monocristalline) qu'on obtenait sur un tel matériau une recristallisation de la matrice en cuivre pour une température de recuit inférieure à la température de recristallisation du cuivre massif. Il a ainsi été démontré que la présence des fils de renfort avait pour effet d'abaisser la température de recristallisation du cuivre et donc que la cinétique de recristallisation de la matrice en cuivre était accélérée dans un matériau composite.

En faisant une analogie entre recristallisation dynamique et statique et, cuivre et nickel, on peut, peut-être, expliquer la recristallisation de la matrice en nickel sur les composite élaborés à 700°C.

- Interface gaine - composite (W/Ni) -

L'opération de dénudage qui consiste à extraire le composite (W/Ni) de la gaine en acier inox a permis en évidence que la gaine avait une meilleure adhérence sur le composite lorsque l'élaboration avait lieu à 900°C plutôt qu'à 700 ou 800°C. L'observation de l'interface gaine-composite (W/Ni) sur les sections des composites élaborés à 700 et 800°C a, en effet, montré qu'à certains endroits, la soudure entre la gaine et le nickel n'est pas réalisée comme le prouve la *micrographie II.26 b*.

On en conclut donc que pour avoir une meilleure consolidation du matériau composite (avec gaine), il est préférable de choisir 900°C comme température de mise en forme.

- Conclusion sur la caractérisation microstructurale du composite 2M -

Au vu de ces observations microstructurales, nous pouvons conclure que pour avoir un matériau composite optimal (microstructuralement), nous devons effectué la mise en forme du composite à :

Taux de martelage: $23 \% < \epsilon_M < 35 \%$
Température de martelage $\approx 900^\circ\text{C}$

En effet,

- Pour $\epsilon_M < 23\%$, les matériaux composites présentent une porosité interne. Le taux de déformation est insuffisant pour éliminer tous les interstices (interstices entre les fils et interstices entre gaine-W/Ni). De plus, la qualité des interfaces Ni-Ni est mauvaise car la soudure est imparfaite.
- Pour $\epsilon_M > 35\%$, le coeur des matériaux composites subit un écrouissage trop important conduisant à une fissuration des fils, une forte diminution de l'épaisseur de matrice entre fils.

Pour le choix de la température de mise en forme, il nous semble satisfaisant de prendre 900°C dans le sens où on obtient une parfaite soudure des interfaces Ni-Ni, une recristallisation du nickel donnant une microstructure à gros grains et surtout une meilleure adhérence de la gaine sur le matériau composite.

Cependant la simple observation structurale des matériaux composites ne suffit pas pour caractériser le matériau de bon ou mauvais, encore faut-il que sa résistance aux sollicitations soit suffisamment bonne. Nous nous sommes donc attachés à caractériser le comportement mécanique des différents composites élaborés au cours d'essais de compression. Ces essais vont permettre d'estimer d'une part leur niveau de résistance et d'autre part d'évaluer l'influence d'un certain nombre de paramètres tels que le taux de martelage, la température de martelage, l'influence de la présence et de la nature de la gaine, la nature des fils ...

ϵ_M (%)	T (°C)	Eprouvettes	aspect extérieur	Aspect intérieur (observations au M.E.B)
23	700	D _{3d}	MAUVAIS 6/9 tronçons bons	POROSITE centre : gros pores aux points triples (Leur grosseur diminue lorsqu'on se rapproche de la périphérie) périphérie : pas de pores interfaces Ni-Ni parfois visibles parfois invisibles
24	800	D _{2e}	MAUVAIS 4/9 tronçons bons	POROSITE /
24	900	D _{1g}	MAUVAIS 5/9 tronçons bons qq fils partis	POROSITE LEGERE centre : petits pores aux points triples interfaces Ni-Ni visibles périphérie : pas de pore interfaces Ni-Ni parfois visibles
30	680	D _{4c}	MAUVAIS 8/10 tronçons bons	POROSITE centre : pores aux points triples interfaces Ni-Ni très visibles une fissure se propage ~ le long du diamètre en longeant les interfaces Ni-Ni (parfois fissure la périphérie d'un fil deW) périphérie : pas de pore interfaces Ni-Ni parfois visibles parfois invisibles
		D _{4g}		idem
30	700	D ₆	Entièrement désagrégé	/
30	820	D _{5e}	MOYEN 7/9 tronçons bons qq fils partis	POROSITE LEGERE centre : petits pores aux points triples interfaces Ni-Ni visibles seulement aux points triples périphérie : pas de pore interfaces Ni-Ni visibles
37	700	D _{9b}	MOYEN 3-4/9 tronçons bons	PAS DE POROSITE centre : pas de pore interfaces Ni-Ni très visibles une fissure se propage ~ le long du diamètre suivant les interfaces Ni-Ni (fissure parfois la périphérie d'un fil deW) périphérie : pas de pore interfaces Ni-Ni parfois visibles parfois invisibles
38	800	D ₇₄	BON 7/9 tronçons bons aucun fil parti	~ PARFAIT centre : pas de pore interfaces Ni-Ni très peu visibles (qq traits entre 2 fils) périphérie : idem
38	820	D _{8a}	BON 9/10 tronçons de bon	PAS DE POROSITE centre : pas de pore interfaces Ni-Ni visibles périphérie : pas de pores interfaces Ni-Ni parfois visibles parfois invisibles
		D _{8f}		PARFAIT centre : pas de pore interfaces Ni-Ni non visibles périphérie : idem

Tableau II.14 : Aspect qualitatif des éprouvettes martelées avec la machine à 4 marteaux.

II.4.2 - Matériaux composites élaborés avec la machine à quatre marteaux

Neuf éprouvettes ont été élaborées par martelage à 4 marteaux avec les caractéristiques suivantes :

- MC à base de 68 fils Plansee dopés ($\phi = 1$ mm), épaisseur de nickel de 40 μm et gaine en acier inox.
- Pas de pré-torsion.
- Chauffage des éprouvettes dans un four à induction pendant 5 mn.
- Trois taux (23, 30, 38%) et trois températures de martelage (700, 800, 900°C) ont été testés.

Au cours des opérations de "dénudage" et de tronçonnage (en éprouvettes), nous avons pu constater que la cohésion de ces composites était nettement moins bonne que celle des composites élaborés avec la machine à deux marteaux (§ II.3.2) : un des composites (D₆) s'est même entièrement désolidarisé au cours de l'opération de "dénudage".

Ceci indique donc une mauvaise adhérence gaine-(W/Ni) et une mauvaise soudure des interfaces Ni-Ni.

De plus, on a pu remarquer que les extrémités du barreau présentaient une cohésion moins bonne que le milieu du barreau composite.

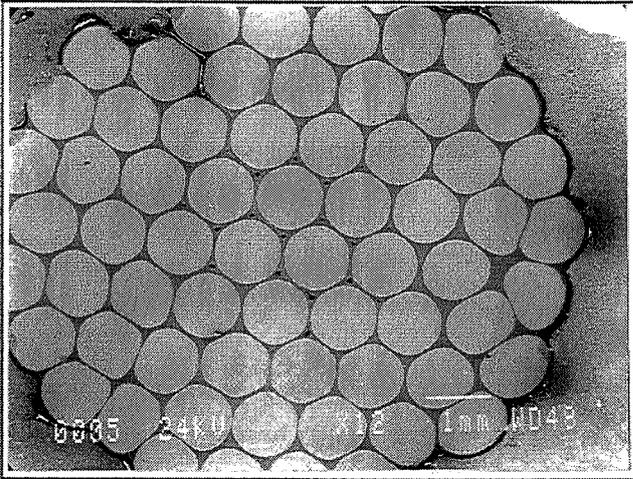
Etant donné la faible conductivité de l'acier inoxydable (§ I.2.3) et la nature composite du matériau (pourcentage volumique de vide important dans le container), on peut supposer que ce comportement résulte d'un problème de chauffage : temps de chauffe insuffisant (5 mn) et utilisation d'un four à induction.

Pour une bonne homogénéisation thermique à l'intérieur du container, il aurait été préférable d'effectuer une montée lente en température et un maintien prolongé à la température de mise en forme.

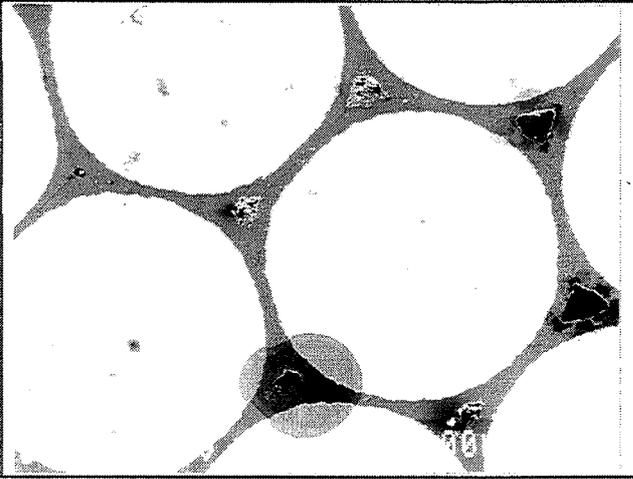
Quant à la faible tenue des interfaces Ni-Ni au niveau des extrémités du barreau composite, elle semble liée à l'utilisation d'un four à induction qui présente un gradient thermique donnant un point de chauffe maximum en milieu de barreau.

Cette hypothèse (mauvais transfert thermique) semble assez bien se confirmer par l'étude microstructurale des composites (*Tableau II.14*) car on a pu constater :

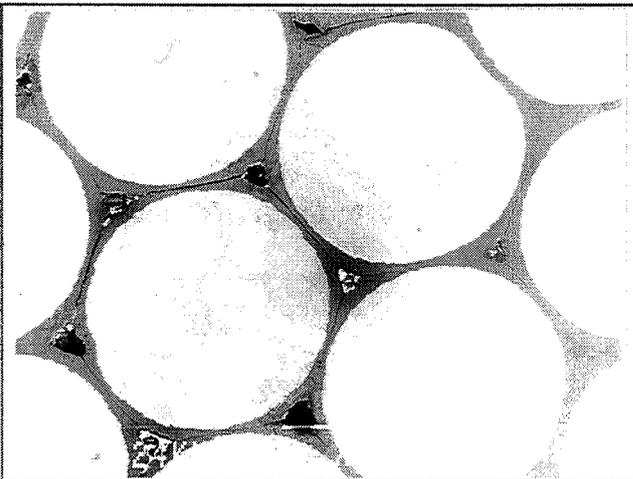
- Pour les taux de martelage de 23 % et 30 %, la présence, **uniquement à cœur** du matériau, de porosités aux points triples (*micrographies II.27 a, b, c*). En périphérie du matériau, même s'il n'y a pas de porosité, les interfaces Ni-Ni ne sont pas, pour autant, correctement soudées. L'augmentation de la température (de 700 à 900°C) ne permet pas d'éliminer la porosité (*Micrographies II.27 b et c*).



(a) D_{4c} ($T_M = 680^\circ\text{C}$, $\epsilon_M = 30\%$)



(b) D₃ ($T_M = 700^\circ\text{C}$, $\epsilon_M = 23\%$)



(c) D₁ ($T_M = 900^\circ\text{C}$, $\epsilon_M = 24\%$)

Micrographies II.27 a, b, c : Section des matériaux composites martelés aux taux de 23 ou 30 % .

• Pour un taux de 38 %, par contre, on constate la disparition de la porosité (*Micrographies II.28 b α*). L'augmentation de la température (de 700 à 820°C) permet d'améliorer la qualité des soudures interfaciales Ni-Ni (*Micrographies II.28 a et II.28 b β*).

La comparaison des *micrographies II.28 b β* (bonne soudure des interfaces Ni-Ni sur une section prélevée en milieu de barreau) et *II.28 b γ* (mauvaise soudure des interfaces Ni-Ni sur une section prélevée en extrémité de barreau) permet de confirmer l'hypothèse d'un gradient thermique le long du barreau (point de chauffe maximum en milieu de barreau).

Ces observations microstructurales nous indiquent donc que, outre le problème de chauffage, la porosité est aussi liée au taux de martelage puisqu'elle disparaît pour des taux supérieurs ou égaux à 38 %.

- Conclusion sur la caractérisation microstructurale du composite 4M -

Ces données nous indiquent donc que pour obtenir un composite satisfaisant (sans porosité, interfaces soudés) avec le martelage à 4 marteaux, il est nécessaire de revoir le mode de préchauffage des éprouvettes (principalement : allonger le temps de chauffage) et d'augmenter le taux de martelage ($\epsilon_M \geq 38\%$) (par rapport au martelage à 2 marteaux).

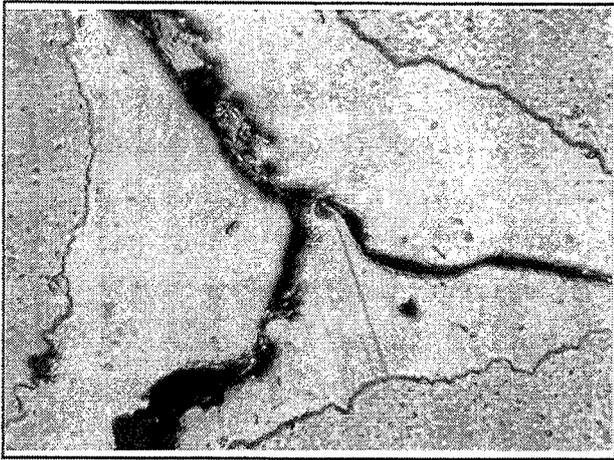
Si l'augmentation de la température permet d'améliorer la soudure des interfaces Ni-Ni, le taux de martelage est le facteur déterminant pour la porosité.

En comparant les composites (avec porosités) issus du martelage 4 M (cas où $\epsilon_M \leq 38\%$) à ceux issus du martelage à 2 M (cas où $\epsilon_M \leq 23\%$), on constate que la porosité n'est pas répartie au sein du matériau de la même manière : à l'intérieur des composites 4 M, elle se situe à cœur alors que dans les composites 2 M, elle se situe en périphérie.

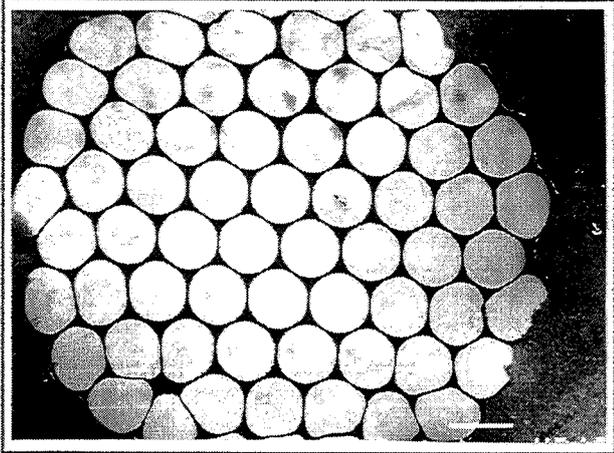
La présence de porosité en périphérie sur les composites 2 M peut s'expliquer, comme nous l'avons vu au chapitre bibliographique (§ I.3.2), par le fait que le martelage a tendance à écrouir d'avantage le cœur du barreau martelé que les régions périphériques. Par contre, on s'explique plus difficilement la porosité à cœur obtenue sur les composites 4 M, d'autant plus qu'elle persiste à des taux de martelage supérieurs au taux minimum théorique ($\approx 23\%$, voir § II.2.1-c).

La cause est vraisemblablement double :

- Les mauvaises conditions de chauffe avec la création d'un gradient thermique radial (à l'intérieur du container) : à cœur, la température trop basse induit un manque de ductilité des dépôts de nickel donc de la porosité.
- Un taux de martelage insuffisant.

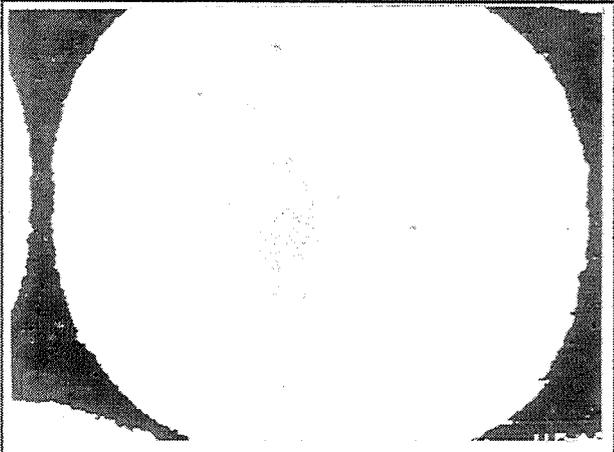


(a) D9 ($T_M = 700^\circ\text{C}$, $\epsilon_M = 37\%$)

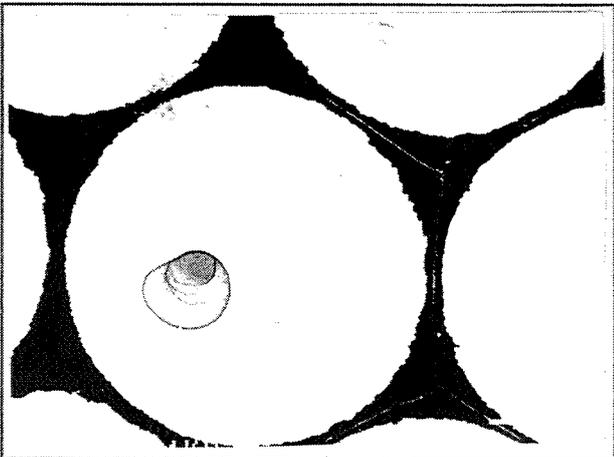


(b) D8 ($T_M = 820^\circ\text{C}$, $\epsilon_M = 38\%$)

(α) Section du composite D8



(β) Section prélevée au milieu du barreau composite



(γ) Section prélevée en extrémité du barreau composite

Micrographies II.28 a et b (α , β , γ) : Section des matériaux composites martelés au taux de 38 % .

En effet, l'absence de porosité sur les composites martelés à 38 % prouve que le problème de chauffage n'est que secondaire. La cause principale de la porosité est donc une insuffisance du taux de martelage.

Pour un même taux de martelage, le martelage 4 M induit donc une déformation à coeur moins intense que le martelage 2 M et une déformation des zones périphériques plus intense qu'à coeur. Cette dernière remarque bien que contraire aux données bibliographiques (§ I.3.2) est en accord avec les déformations observées sur le barreau de cuivre où on avait constaté que le martelage 4 M induisait des déformations (torsion radiale et hélicoïdales) plus importantes que le martelage à deux marteaux.

Ceci signifie donc que le martelage à 4 marteaux provoque un écoulement de matière en périphérie du barreau plus important. La porosité à coeur peut donc s'expliquer par cette accentuation de la déformation en périphérie liée vraisemblablement à une plus grande vitesse de rotation des matrices .

Au vu de ces résultats, nous pouvons conclure que pour le martelage à 4 marteaux, l'obtention d'un composite sans porosité nécessite d'utiliser un taux de martelage minimum de 38 %, taux supérieur à celui établi pour le martelage à 2 marteaux.

II.5 - CARACTÉRISATION MÉCANIQUE DES MATÉRIAUX COMPOSITES (APPROCHE MICROMÉCANIQUE)

II.5.1 - Essai de compression

En raison des dimensions du composite (aire de la section) et de sa forte résistance, il se prête assez mal à l'essai de traction. Un usinage du composite ne peut être envisagé en raison de la difficulté d'usiner le tungstène (outils de coupe non adaptés) et de l'endommagement qu'il peut provoquer sur les fils (au contact de l'outil de coupe).

La forme de notre composite étant quasi-cylindrique, il est plus aisé de réaliser un essai de compression. On déterminera ainsi le comportement mécanique du composite lors d'un essai d'écrasement, mode de déformation plus proche de la sollicitation de service à laquelle on destine le matériau (projectile devant percer des blindages).

Toutefois, les vitesses de compression utilisées en laboratoire sont insuffisantes pour tester le comportement du matériau en dynamique. Nous nous limiterons donc à une étude du composite en compression statique.

Ces essais ont été réalisés à l'ambiante avec une machine Instron (modèle 1186). Les éprouvettes de rapport hauteur/diamètre compris entre 0,8 et 1 ont été prélevées sur les composites (*Schéma II.16*). Pour limiter le frottement au cours de l'essai de compression (soit essayer d'éviter que l'éprouvette prenne une forme en tonneau : *Schéma II.17*), chaque face d'appui est polie puis recouverte d'un ruban de P.T.F.E.

Nous avons aussi testé la résistance du composite à d'autres types de sollicitations (compression transversale, essai de cisaillement) que nous présenterons ultérieurement.

L'objectif avec ce composite est de dépasser les performances des alliages lourds frittés (résistance de l'ordre de 1700 MPa). En vue d'optimiser ses capacités, nous avons fait varier les paramètres déterminants pour l'élaboration du composite que sont : la température de mise en forme et le taux de martelage.

Outre ces deux facteurs essentiels, d'autres paramètres ont pu être testés :

Paramètres extrinsèques :

- Vitesse de compression
- Hétérogénéité des résultats en fonction de l'endroit où l'éprouvette a été prélevée sur un barreau : amont, milieu, aval.
- Reproductibilité des résultats pour des composites fabriqués dans les mêmes conditions

Paramètres intrinsèques :

- Nombre de fils
- Diamètre du fil (0,5 et 1 mm)

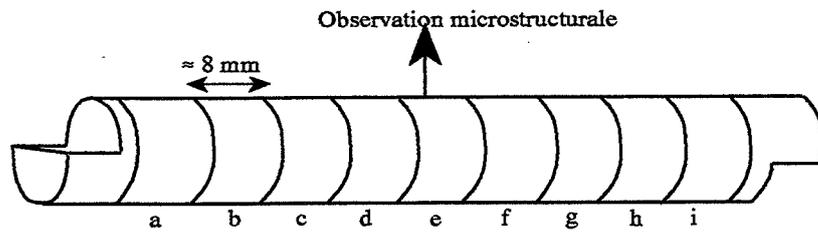


Schéma II.16 : Barreau composite découpé en éprouvettes et identification des tronçons par ordre alphabétique.

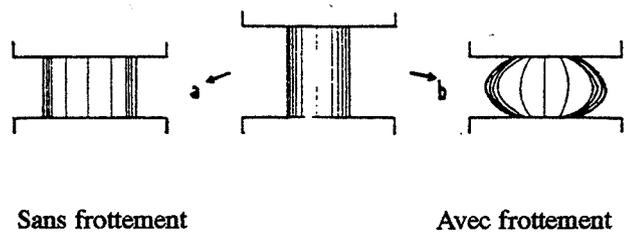


Schéma II.17 : Compression d'un lopin

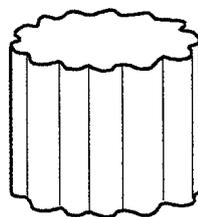


Schéma II.18 : Morphologie des éprouvettes de compression (composite sans gaine)

- Nature du fil : fil en tungstène dopé ou pur
- Etat microstructural des fils : écroui, recristallisé
- Influence de la gaine (composite testé avec et sans sa gaine)
- Nature de la gaine : Inox, nickel
- Qualité des interfaces

Dans un premier temps, nous nous sommes intéressés à la caractérisation mécanique du composite sans sa gaine d'inox (*Schéma II.18*).

L'opération qui consiste à enlever la gaine (dénudage) s'effectue, minutieusement, en deux étapes afin d'éviter l'endommagement du matériau :

- Amincissement de la gaine effectuée au tour
- Sillons tracés à l'aide d'une meule permettant de décoller les fragments restants qui adhèrent au composite W/Ni.

Le contour des éprouvettes n'étant pas parfaitement cylindrique (*Schéma II.18*), la mesure des surfaces des échantillons pour le calcul des contraintes a nécessité l'utilisation d'une méthode d'analyse d'images.

Les essais de compression sont réalisés à vitesse de traverse (V_t) constante (4 vitesses différentes ont été testées), ce qui implique une variation de la vitesse de déformation au cours de l'essai.

Ces courbes de compression (*Figure II.20*) sont caractérisées par la présence d'un pic (ou palier) suivi ou non d'une légère chute de la force, puis d'une augmentation de la force (caractéristique du frottement éprouvette-tas). Le pic ou palier coïncide avec un début d'endommagement du matériau composite (voir plus loin).

Dans notre étude, nous avons donc considéré que la contrainte associée au pic (ou au palier) représentait la résistance du matériau composite. On appellera cette contrainte la limite supérieure d'écoulement du composite.

L'ensemble des essais a révélé que notre matériau de diamètre environ égal à 8 mm était capable de supporter sans endommagement un niveau de contrainte élevé de l'ordre de 1800-1900 MPa (= limite supérieure d'écoulement du composite).

Lorsque l'éprouvette ne subit pas de flambage, la force continue d'augmenter après le palier. Malgré un endommagement croissant du composite (aggravé par les forces de frottement), il est capable de supporter des contraintes bien supérieures à la limite supérieure d'écoulement.

Ainsi, en poursuivant l'essai de compression sur l'éprouvette E5c, on a pu atteindre une contrainte de 3367 MPa équivalent à un taux de déformation de 82 % sans pour autant observer la désintégration du composite. Le matériau bien que présentant de fortes

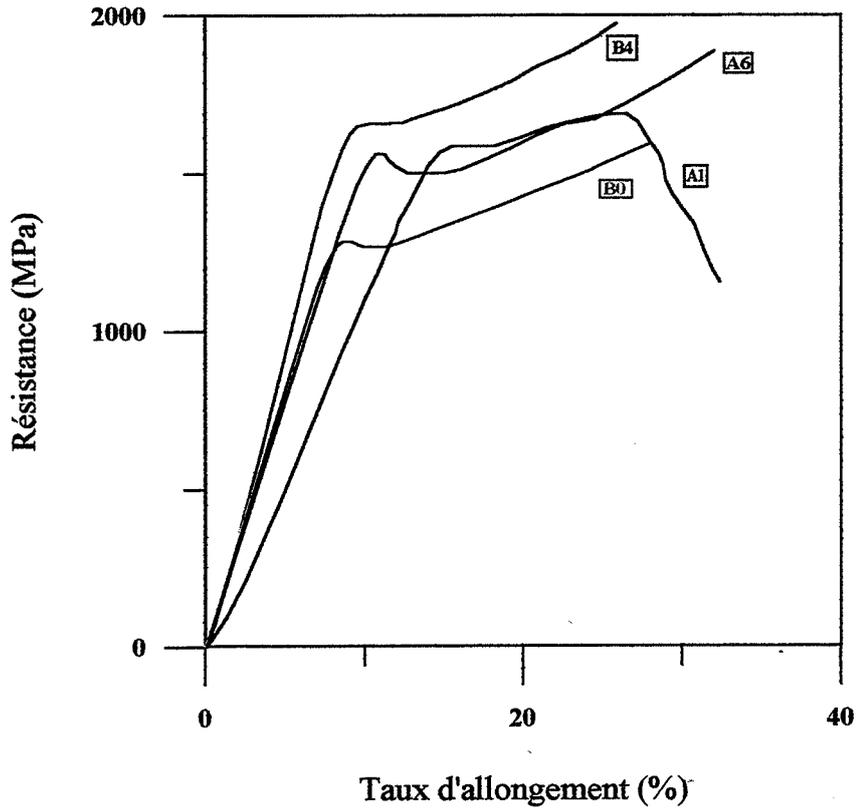


Figure II.20 : Quelques courbes σ - ϵ de compression obtenues avec les composites.

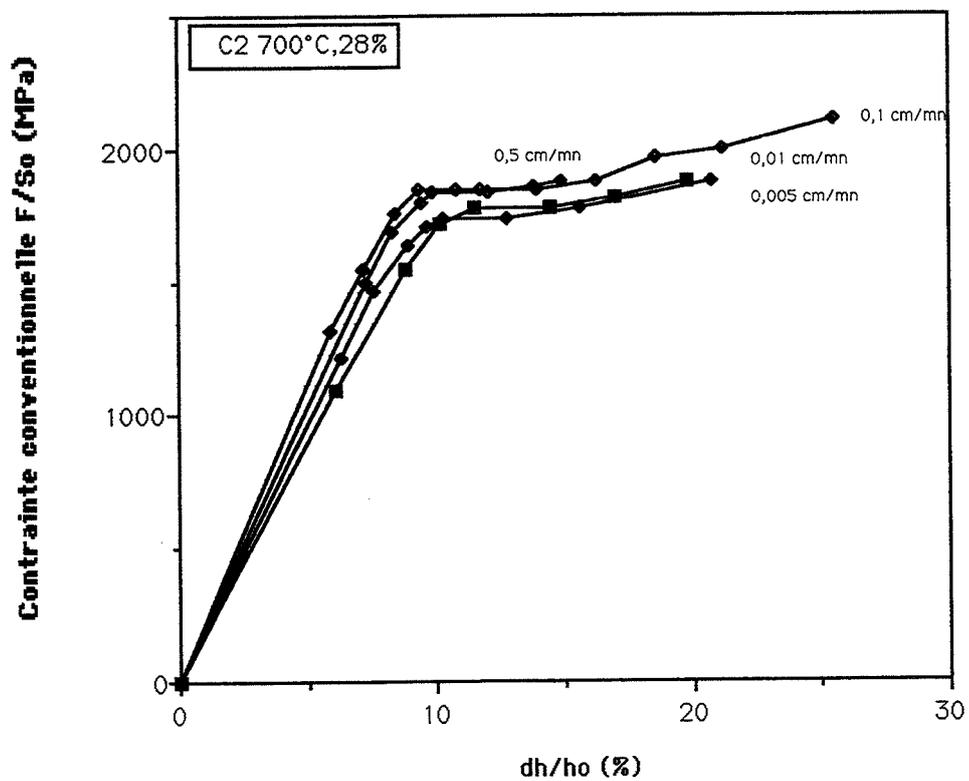


Figure II.21 : Influence de la vitesse de compression sur les courbes σ - ϵ .
(composite C₂)

décohésions conserve encore une certaine cohérence grâce à la résistance de quelques interfaces.

II.5.1 - a - Influence de la vitesse de compression.

Cette vitesse est déterminée par la vitesse de descente de la traverse. Nous avons testé quatre vitesses : 0,005; 0,01; 0,1 et 0,5 cm/mn; ce qui correspond à des vitesses de déformation $\dot{\epsilon}$ initiales comprises entre 10^{-4} et 10^{-2} s $^{-1}$.

Les courbes obtenues pour chaque vitesse avec un même composite (C₂ (700°C, 28%)) sont présentées sur la *figure II.21*.

L'augmentation de la vitesse de compression ne modifie pas la forme des courbes mais entraîne une légère augmentation de la limite supérieure d'écoulement (comme pour tout matériau continu).

Pour un écart de vitesses important de l'ordre de 10^2 , on obtient un écart de résistances d'environ 100 MPa. Même si cet écart peut être considéré comme relativement faible devant les 1700-1800 MPa que peut supporter ce type de matériau, nous serons amenés lors de nos études ultérieures à en tenir compte.

Ces essais de compression réalisés à différentes vitesses de déformation permettent d'évaluer le coefficient de sensibilité (m) à la vitesse de déformation du composite. Il est donné par la pente instantanée de la courbe $\sigma - \dot{\epsilon}$ pour une température et une déformation donnée.

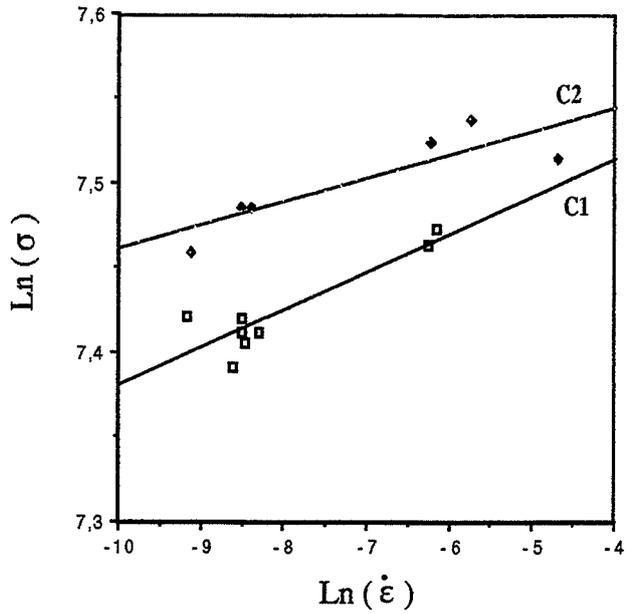
$$m = \frac{\partial \text{Ln } \sigma}{\partial \text{Ln } \dot{\epsilon}_{\epsilon, T}}$$

A partir des graphes logarithmiques représentant la limite supérieure d'écoulement en fonction de la vitesse de déformation (*Figures II.22 a, b, c*), on détermine le coefficient de sensibilité à la vitesse de déformation du composite (à l'ambiante) par la mesure de la pente en $\epsilon = 1,03$ % (déformation relative au début du palier)

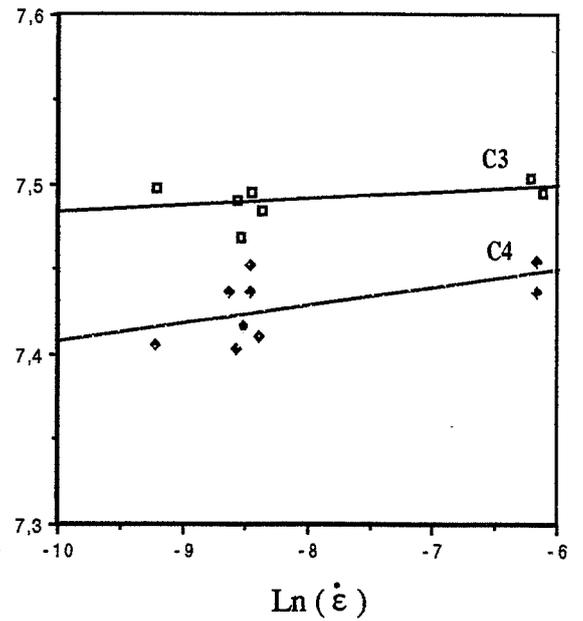
Nous avons calculé le coefficient (m) pour six composites ayant un taux de martelage identique mais une température d'élaboration différente :

- C1 et C2 martelés à 700°C au taux de 28%: $m_{C1} = 0,022$; $m_{C2} = 0,014$
- C3 et C4 martelés à 800°C au taux de 28%: $m_{C3} = 0,010$; $m_{C2} = 0,004$
- C6 martelé à 900°C au taux de 30% : $m_{C1} = 0,004$

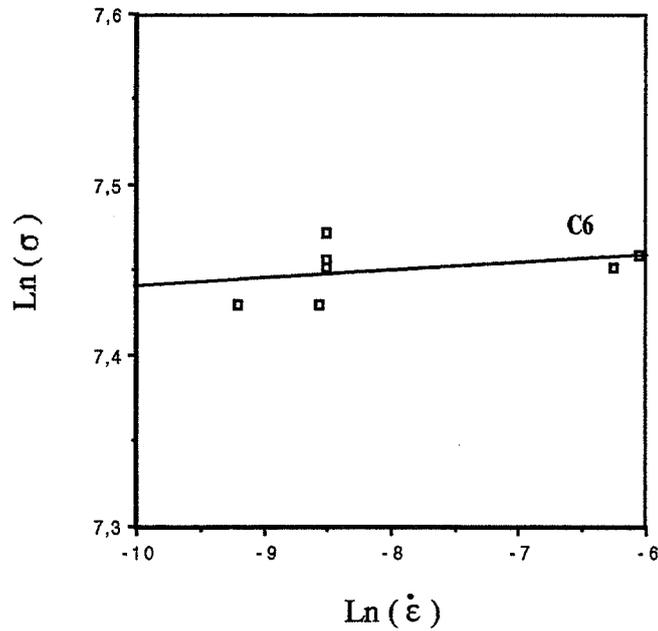
Ces valeurs sont très faibles comparativement à celle des aciers ($m \sim 0,1$ à $0,3$). Nous pouvons donc dire que dans le domaine $10^{-4} < \dot{\epsilon} < 10^{-2}$, le composite est quasiment insensible aux variations de vitesses de déformation. Ceci peut se comprendre en raison de la forte fraction volumique de fils de tungstène dans le composite. Ayant une température de



(a) Composites martelés à (700°C, 28%)



(b) Composites martelés à (800°C, 28%)



(c) Composite martelé à (900°C, 30%)

Figures II.22 a, b, c : Détermination du coefficient de sensibilité à la vitesse de déformation pour différents composites W/Ni.

fusion très élevée (3410°C), le tungstène est quasiment insensible aux variations de vitesses à l'ambiante d'où $m_f \sim 0$.

La sensibilité du composite aux variations de vitesses dépend uniquement de celle de la matrice dont la fraction volumique est trop faible pour jouer un rôle significatif.

II.5.1 - b - Influence du taux de martelage

Nous rappelons que la variation du taux de martelage résulte de la variation du diamètre extérieur initial des containers (§ II.2.1-b-). Nous avons donc pu, tout en faisant varier les taux de martelage entre 18 et 43 %, obtenir des matériaux (avec gaine) aux diamètres extérieurs identiques. Toutefois, l'aire de la section du composite W/Ni (sans gaine) diminue avec le taux de martelage (*Tableau II.15*)

Le *tableau II.15* présente les différentes éprouvettes obtenues par martelage à 900°C en donnant leurs caractéristiques principales et les résultats des essais de compression : limite élastique, limite supérieure d'écoulement et rapport d_h/h_0 correspondant. Ce rapport permet d'évaluer la capacité à la déformation du matériau composite sans endommagement. Pour ces essais, deux vitesses de compression ont été utilisées : 0,005 et 0,1 cm/mn

La *figure II.23* permet de suivre l'évolution de la résistance (ou limite supérieure d'écoulement) du composite en compression en fonction du taux de martelage (pour une vitesse de compression de 0,1 cm/mn).

On constate que pour optimiser la résistance du composite (W/Ni), il est préférable d'utiliser un taux de martelage compris entre 25 et 35 % car pour les taux de martelage extrêmes (20 et 40 %), on obtient une résistance moindre que l'on peut expliquer d'un point de vue microstructural (§ II.4) :

- Pour des taux faibles (≤ 23 %), par la présence de porosités aux interfaces Ni-Ni
- Pour des taux élevés (≥ 40 %), par la fissuration de quelques fils de tungstène au cours du martelage.

Remarques:

- Rappelons que (§ II.2.1-c-) le taux minimal de martelage nécessaire à l'élimination du vide (ou porosité) est de 23 %. On confirme donc expérimentalement que ce taux est bien le taux minimal à donner au composite pour obtenir des caractéristiques microstructurales et mécaniques satisfaisantes.
- Toutefois, nous pouvons dire que l'essai de compression longitudinale ne met pas en évidence, de manière flagrante, la mauvaise qualité des composites martelés à faible taux (20 %). En effet, en raison de la forte porosité du matériau, on pouvait s'attendre à une résistance beaucoup plus faible.

Température de martelage = 900°C							
Ech.	Taux de martelage (%)	So : aire des faces d'appui (mm ²)	ho hauteur initiale des éprouvettes (mm)	Limite élastique Fe/So (MPa)	Résistance R = F/So (MPa)	Déformation à R $\epsilon = dh/ho$ (%)	Taux de compression Ln h _f /h _o (%)
Vt = 0,005 cm/mn							
A1	18	59,8	6,81	1188	1658	/	-19
B2c	24	59,72	6,03	976	1501	2,4	-30
B2d	"	59,72	6,21	1072	1495	1,1	-17
A3	27	56,05	5,61	1253	1659	1,2	-13
A4	31	51,11	5,13	1374	1795	1,2	-14
A6	39	52,26	5,06	1304	1589	1,2	-20
Vt = 0,1 cm/mn							
A1	18	59,80	5,21	1209	1762	1,9	endommag.
B1a	19	60,45	8,48	1401	1811	0,82	-14 (flambée)
B1b	"	58,85	6,63	1281	1790	1,9	-17 (flambée)
B2a	24	59,72	6,92	1245	1543	1,16	-15
B2b	"	56,20	8,44	1535	1882	0,83	-23
A3	27	56,05	6,17	1415	1825	1,13	-15
B3b	"	54,75	7,73	1509	1906	0,97	-22
B3c	"	55,2	7,41	1506	1871	1,07	-30
C6f	30	55,10	8,73	1406	1725	1,14	-37
C6g	"	55,40	7,27	1417	1736	0,69	-28
A4a	31	51,12	6,5	1475	1859	/	-41
A4b	"	51,56	6,01	1554	1963	/	-17
B4b	"	52,55	8,68	1533	1808	1,15	-24
F1a	32	57,4	8,12	1303	1566	1,44	flambée
F1b	"	56,6	8,02	1380	1635	1,53	/
B5a	35	51	8,18	1580	1887	0,86	-23
B5b	"	49,6	7,91	1582	1915	0,76	-17
B5c	"	50,0	5,29	1549	1875	1,7	-5
F2a	36	52,9	8,24	1386	1679	1,01	flambée
F2b	"	52,9	8,02	1386	1631	1,53	-39
A6	39	52,26	5,82	1455	1779	0,94	-64
B6b	"	49,45	8,01	1546	1838	0,79	-16
B6c	"	47,95	8,36	1529	1853	0,84	-17
F3a	43	49,6	8,15	1364	1604	1,23	-57
F3b	"	49,6	8,09	1458	1625	0,82	-49

Tableau II.15 : Résultats des essais de compression sur composites martelés à 900°C.

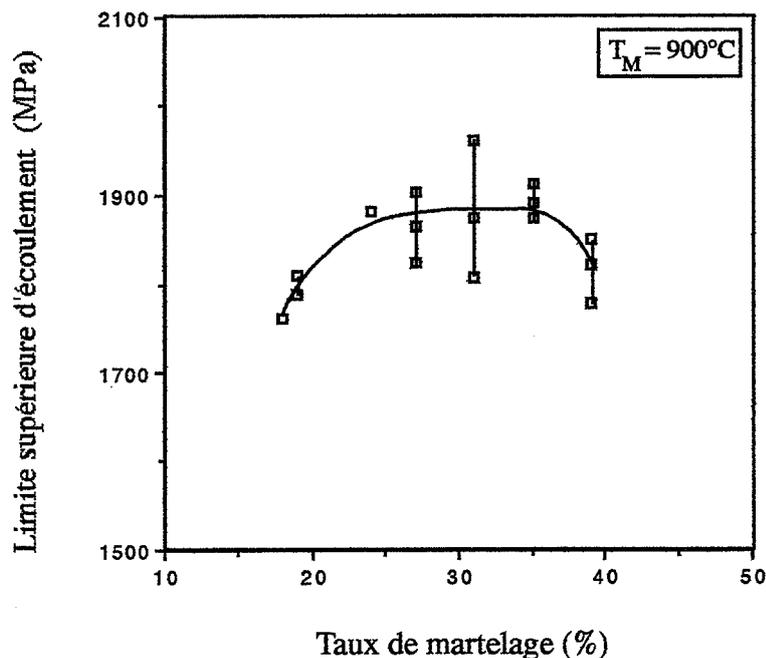


Figure II.23 : Résistance à la compression du matériau composite martelé à 900°C en fonction du taux de martelage.

- Pour des taux compris entre 25 et 35 %, on atteint donc un niveau de résistance très élevé compris entre 1800 et 1900 MPa. Notre objectif qui était de dépasser le niveau de contraintes des alliages lourds (1700 MPa) est donc atteint.
- La capacité du composite à la déformation plastique sans endommagement est donnée par la valeur de la déformation ϵ correspondant au début du palier. Nos mesures indiquent que cette capacité est faible puisqu'elle varie entre 0,7 et 1,9. Ces valeurs sont proches de celles des fils de tungstène testés individuellement.

Remarque concernant la mesure expérimentale du module d'Young :

Nous n'avons pas pu déduire de ces essais de compression des données expérimentales sur le module d'Young des composites. Pour être valable, ces mesures nécessitent des conditions expérimentales très précises (utilisation de jauges extensométriques sur surface parfaitement lisse et matériau homogène) dont nous pouvons difficilement nous servir en raison du caractère inhomogène du composite et de l'état de surface de nos éprouvettes. Toutefois, nous pourrions estimer sa valeur en utilisant la loi des mélanges. (§ II.5.5) .

Remarque concernant l'influence du nombre de fils :

Pour certains composites (C6, F1, F2, F3, Tableau II.15), nous n'avons pu introduire dans les containers que 67 fils au lieu de 68. Ceci est dû soit un petit écart de dimension de l'intérieur du container soit un écart à l'axialité des fils introduits. D'un point de vue résistance mécanique, cela se traduit par une baisse de la résistance de l'ordre de 150 à 200 MPa.

Cet écart de résistance pourrait résulter d'un écart de taux de martelage (liée à la diminution de l'aire de la section du composite). En effet, le taux de martelage tel qu'on a choisi de le définir (§ II.2.1-c-) ne tient compte que des dimensions du container et non du nombre de fils à l'intérieur.

Si on exprime le taux de martelage en fonction, cette fois, du nombre (N) de fils, on obtient :

$$\begin{aligned} \epsilon_M^{(N)} &= 2 \operatorname{Ln} \left(\frac{D_{\text{ext}}^i}{D_{\text{ext}}^f} \right) = 2 \operatorname{Ln} \left(\frac{D_{\text{int}}^i + e}{D_{\text{ext}}^f} \right) = \operatorname{Ln} \left[\frac{(D_{\text{int}}^i + e)^2}{(D_{\text{ext}}^f)^2} \right] \\ &= \operatorname{Ln} \left[\frac{S_{\text{int}}^i + S_e^i + 2\pi e D_{\text{int}}^i}{S_{\text{ext}}^f} \right] \\ &= \operatorname{Ln} \left[\frac{S_v + N(S_w^i + S_{N_i}^i) + S_e^i + 2\pi e D_{\text{int}}^i}{S_{\text{ext}}^f} \right] \end{aligned}$$

avec e l'épaisseur de la paroi du container

D_{int}^i et D_{ext}^i le diamètre intérieur et extérieur initial du container

D_{ext}^f le diamètre final du container (ou diamètre du composite avec sa gaine)

S_{int}^i aire de la section interne du container avant martelage

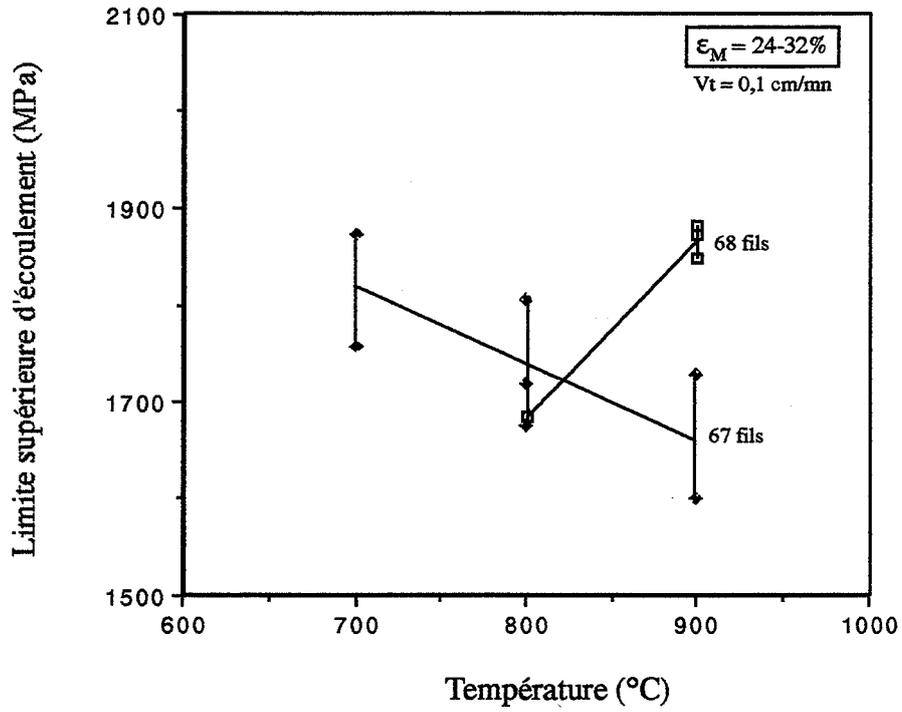
Température de martelage = 700°C							
Ech.	Taux de martelage (%)	So : aire des faces d'appui (mm ²)	ho hauteur initiale des éprouvettes (mm)	Limite élastique Fel/So (MPa)	Résistance R = F/So (MPa)	Déformation à R $\epsilon = dh/ho$ (%)	Taux de compression $Ln h_f/h_o$ (%)
Vt = 0,005 cm/mn							
C1b	28	57,5	8,14	1135	1628	0,97	-11
C2c	"	54	7,55	1331	1714	1,03	-12
Vt = 0,01 cm/mn							
C1c	28	56,85	7,87	1221	1645	1,5	-11
C1d	"	57,15	9,2	1222	1613	1,2	-13
C1e	"	55,3	6,69	1173	1700	1,6	-9
C1h	"	56,8	8,13	1149	1669	1,23	-12
C1i	"	57,65	8,24	1175	1630	1,01	-13
C2d	28	53,3	7,32	1178	1782	1,77	-10
C2e	"	52,95	8,02	1248	1794	1,25	-11
C2h	"	53	7,24	1357	1792	1,33	-10
C2i	"	52,7	8,19	1403	1788	1,05	-11
Vt = 0,1 cm/mn							
C1f	28	56,75	8,51	1471	1744	1,37	/
C1g	"	56,4	7,8	1406	1773	/	/
C2f	28	53,4	7,84	1451	1849	1,14	-17
C2g	"	52,65	5,16	1530	1899	1,26	-23

(a) 700°C

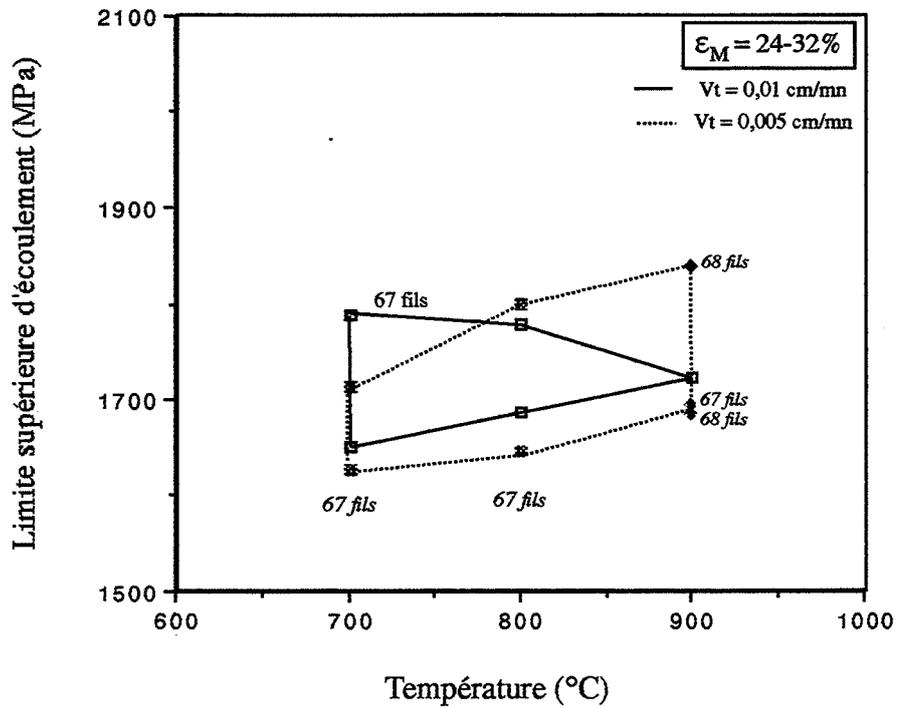
Température de martelage = 800°C							
Ech.	Taux de martelage (%)	So : aire des faces d'appui (mm ²)	ho hauteur initiale des éprouvettes (mm)	Limite élastique Fel/So (MPa)	Résistance R = F/So (MPa)	Déformation à R $\epsilon = dh/ho$ (%)	Taux de compression $Ln h_f/h_o$ (%)
Vt = 0,005 cm/mn							
C3b	28	53	8,07	1396	1801	0,93	-12
C4b	29	55,92	7,97	1278	1646	0,88	-13
Vt = 0,01 cm/mn							
C3c	28	53,55	7,87	1304	1782	1,05	-11
C3d	"	53,15	8,46	1353	1788	0,96	-12
C3e	"	52,9	8,54	1226	1757	1,07	-13
C3h	"	52,55	7,18	1415	1793	1,06	-11
C4c	29	55,3	8,05	1300	1681	0,89	-15
C4d	"	56,3	7,37	1225	1710	0,99	-13
C4e	"	55,9	8,77	1179	1626	1,2	-13
C4h	"	56,1	8,13	1178	1694	0,86	-13
C4i	"	55,9	7,88	1286	1722	0,78	-12
Vt = 0,1 cm/mn							
F4a	26	59,3	8,06	1394	1655	1,24	-42
F4b	"	59,3	8,3	1437	1698	0,80	-56
C3f	28	53,5	7,42	1467	1776	0,88	flamb.
C3g	"	52,35	8,44	1480	1835	0,77	flamb.
C4f	29	55,8	7,87	1444	1721	0,85	-47
C4g	"	55,9	8,01	1570	1718	0,83	-21
E5c	30	58,9	8,1	1559	1655	0,82	-82
E5e	"	57,5	8,2	1488	1714	1,2	-45
E5f	"	58,92	8,1	1514	1690	1,03	-17
E6b	41	52,75	8,1	1475	1632	1,23	-60
E6c	"	50,9	8,0	1451	1606	1,04	-6
E6d	"	50,7	8,1	1494	1616	1,03	-24
E6f	"	50,87	8,08	1519	1672	0,83	-17

(b) 800°C

Tableaux II.16 a et b : Résultats des essais de compression pour composites martelés à 700 et 800°C.



(a) Résultats pour une vitesse de compression $V_t = 0,1$ cm/mn



(b) Résultats pour deux autres vitesses de compression $V_t = 0,01$ et $0,005$ cm/mn

Figures II.24 a et b : Influence de la température sur la résistance en compression du composite.

S_e^i aire de la section de la paroi du container avant martelage

$S_W^i + S_{Ni}^i = \pi d^2$ aire de la section d'un fil nickelé

S_v aire occupée par les interstices (ou vide) entre fils avant martelage.

En remplaçant l'expression entre crochets par le paramètre:

$$A = \frac{S_v + N\pi d^2 + S_e^i + 2\pi e D_{int}^i}{S_{ext}^f}$$

L'expression précédente devient alors pour un composite ayant un fil en moins :

$$\epsilon_M^{(N-1)} = \text{Ln} \left[A - \frac{\pi d^2}{S_{ext}^f} \right]$$

Pour des taux de martelage compris entre 20 et 35 %, le terme A varie entre 1,21 et 1,42 tandis que le rapport $\frac{\pi d^2}{S_{ext}^f}$ est égal à 0,0081. La différence de taux qu'induit l'absence d'un

fil est alors estimée à 0,6 % quelle que soit la valeur du taux située entre 20 et 35 %. Cet écart étant très faible, on ne peut pas attribuer l'écart de résistance à une différence de taux de martelage mais plutôt au fait que la présence d'un fil supplémentaire permet d'augmenter la résistance du composite.

Ceci montre donc que la résistance du composite est une fonction croissante du nombre de fils.

II.5.1 - c - Influence de la température de martelage

Nous avons testé l'influence de trois températures de mise en forme (700, 800 et 900°C) sur les caractéristiques mécaniques du composite

Les résultats des essais de compression pour 700 et 800°C figurent dans les *tableaux II.16 a et b*, ceux pour 900°C figurant dans le *tableau II.15*.

Les *figures II.24 a et b* permettent de visualiser l'évolution de la résistance du composite en fonction de la température de martelage. Pour tenter de déceler une variation, nous avons associé les résultats correspondant à chacune des trois vitesses de compression utilisées : *Figure II.24 a* pour $V_t = 0,1$ cm/mn; *Figure II.24 b* pour $V_t = 0,01$ et $0,005$ cm/mn.

L'interprétation des résultats est toutefois délicate d'autant plus que certains composites présentent 67 fils au lieu de 68.

Sur la *figure II.24 a*, on observe (avec les composites à 67 fils) une décroissance de la résistance avec l'augmentation de la température de martelage. Mais cette tendance n'est ni confirmée par les composites à 68 fils ni par les composites testés à des vitesses de compression différentes (*Figure II.24 b*).

Composite	(T°C, ϵ_M %)	Ecart maximum de résistance (MPa)
C1 (5)	(700, 28)	87
C2 (4)	(700, 28)	12
C3 (4)	(800, 28)	36
C4 (5)	(800, 29)	96
E5 (3)	(800, 30)	59
E6 (4)	(800, 41)	66
B1 (2)	(900, 19)	21
B3 (2)	(900, 27)	35
C6 (2)	(900, 30)	11
A4 (2)	(900, 31)	104
F1 (2)	(900, 32)	69
B5 (3)	(900, 35)	40
F2 (2)	(900, 36)	48
B6 (2)	(900, 39)	15
F3 (2)	(900, 43)	21

() nombre d'éprouvettes prises en compte

Tableau II.17 : Mesure de l'écart maximum de résistance entre éprouvettes de compression issues d'un même barreau composite.

Composite	(T°C, ϵ_M %)	Ecart maximum de résistance (MPa)
A3-B3	(900, 27)	45
A4-B4	(900, 31)	155
A6-B6	(900, 39)	66
C3-C4	(800, 28)	35
C1-C2	(700, 28)	138

Tableau II.18 : Mesure de l'écart maximum de résistance entre composites élaborés dans les mêmes conditions.

On en conclut donc qu'une variation de température de mise en forme (entre 700 et 900°C) n'entraîne pas de modification au niveau des propriétés mécaniques du composite.

Mais, ces essais ont été réalisés sur des composites sans gaine. Ils ne tiennent, par conséquent, pas compte de l'interface gaine-composite (W/Ni). Or, comme nous l'avons fait remarquer au § I.4, l'adhérence de la gaine sur le composite (W/Ni) est bien meilleure pour une température de mise en forme de 900°C.

Etant donné que pour le prototype final, il est envisagé de conserver cette gaine, il serait par conséquent préférable de choisir la température de 900°C pour la mise en forme du matériau composite.

Remarque 1 : Etude de l'hétérogénéité des résultats sur un même composite

Les éprouvettes prélevées d'un bout à l'autre d'un même barreau composite sont repérés par ordre alphabétique par les indices a, b, c ... (Schéma II.16)

Les essais de compression effectués à 700, 800 et 900°C ont montré (Tableau II.17) qu'on pouvait obtenir un écart de résistance égal, en moyenne, à 48 MPa entre deux échantillons provenant d'un même barreau composite (et comprimés à la même vitesse), l'écart maximum étant voisin de 100 MPa (entre C₄ et A₄).

Remarque 2 : Reproductibilité des résultats mécaniques

L'écart de résistance entre deux matériaux composites (même taux, même température de martelage) semble légèrement plus grand. En moyenne, on estime (Tableau II.18) cet écart à 88 MPa mais peut atteindre 155 MPa (exemple : composites A₄ et B₄).

Ces écarts apparaissent aussi importants voire parfois plus importants que ceux obtenus entre deux taux de martelage. Ainsi, l'écart obtenu entre un composite microstructuralement mauvais (porosité pour 19 %) et un composite bon (35 %), l'écart n'est, en moyenne, que de 100 MPa, soit environ 5 %. Ceci indique donc que l'essai de compression longitudinal est assez peu sensible aux défauts structuraux (porosité dans la matrice) du composite.

Température de martelage = 900°C, Vt = 0,05 cm/mm							
Ech.	Taux de martelage (%)	So : aire des faces d'appui (mm ²)	ho hauteur initiale des éprouvettes (mm)	Limite élastique Fel/So (MPa)	Résistance R = F/So (MPa)	Déformation à R $\epsilon = dh/ho$ %	Taux de compression Ln h _f /h _o (%)
A1	18	118,4	14,05	1099	1237	1,07	(flambée)
B2	24	118,4	14,32	1076	1265	1,05	(flambée)
B0	27	117,7	14,35	1137	1281	0,8	-46
B3	27	118,4	14,19	1108	1226	0,88	-52
A3	27	118,4	14,16	1099	1221	0,7	-46
A4	31	118,4	14,3	1008	1208	1,05	-61
A6	39	118,4	14,09	1008	1169	0,88	-85

Tableau II.19 : Résultats des essais de compression sur composites avec gaine en inox martelés à 900°C.

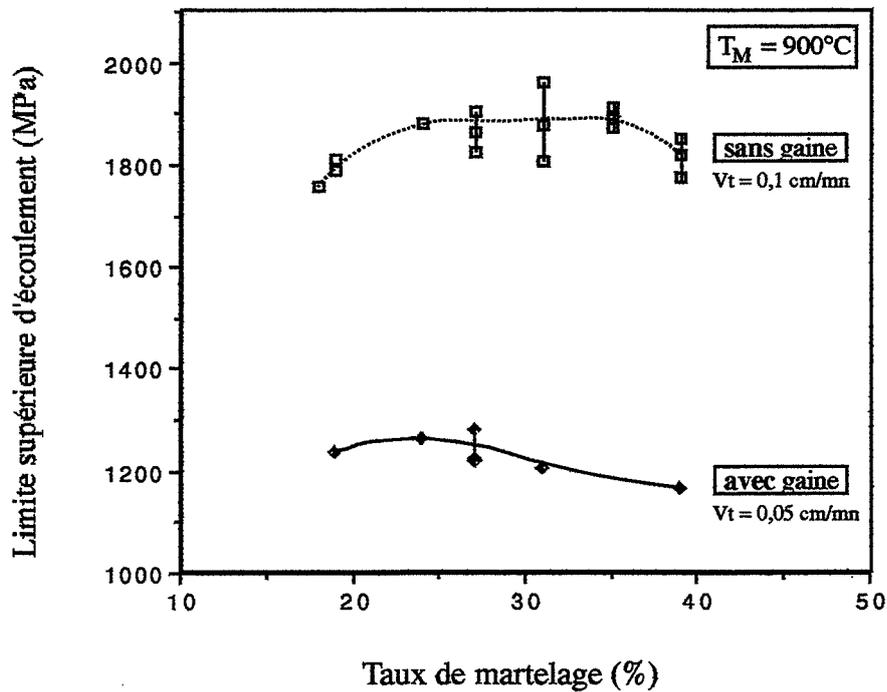


Figure II.25 : Résistance en compression longitudinale en fonction du taux de martelage pour les composites avec gaine et sans gaine.

II.5.1 - d - Influence de la gaine

- Compression des composites avec la gaine -

L'objectif étant de conserver en partie la gaine pour l'utilisation future du matériau composite, nous avons voulu évaluer l'incidence de la présence de la gaine sur la résistance en compression du composite. Nous avons donc réalisé des essais de compression sur des éprouvettes composites avec leur gaine en acier inoxydable.

La vitesse de traverse choisie est de 0,05 cm/mn soit une vitesse de déformation initiale de l'ordre de 10^{-3} s^{-1} .

La forme des courbes σ - ϵ n'est pas modifiée par la présence de la gaine. On observe toujours un palier à σ_{\max} puis une augmentation de contrainte liée aux forces de frottement.

Les résultats de ces essais de compression figurent dans le *tableau II.19*.

La *figure II.25* nous permet de comparer les résistance des composites testés avec gaine à ceux testés sans gaine (dans les mêmes conditions). Comme on pouvait s'y attendre en raison de la faible résistance de l'acier inoxydable comparativement aux fils de tungstène (§ II.1.3), la présence de la gaine abaisse considérablement la résistance du composite de 450 à 500 MPa. Cet écart est bien entendu fonction de l'épaisseur de la gaine et peut être réduit en amincissant la gaine après la mise en forme par martelage.

On obtient donc sur composite avec gaine une résistance d'environ 1200 MPa. La limite élastique est elle aussi plus basse, de 1000-1100 MPa (au lieu de 1400-1500 MPa pour le composite sans gaine). La valeur de la déformation correspondant au début du palier (début d'endommagement) n'est par contre pas modifiée par la présence de la gaine.

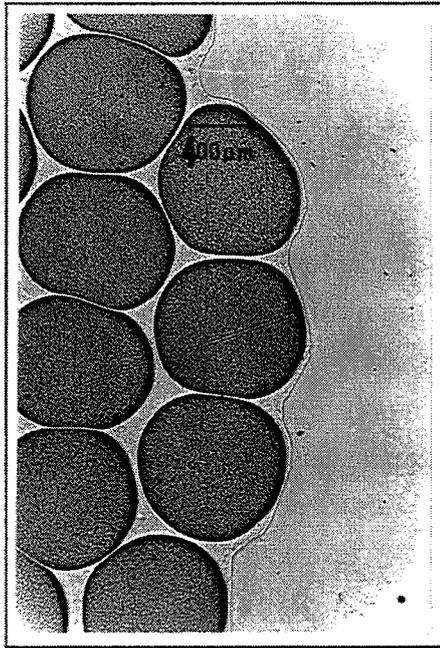
On en conclut donc que pour la réalisation du projectile-prototype, on doit envisager de minimiser l'épaisseur de la gaine afin d'obtenir une résistance en compression proche de 1700 MPa. Notons, cependant, qu'en soumettant le composite à des contraintes supérieures à celle de sa résistance, bien qu'endommagé, il ne se désintègre pas pour autant.

- Influence de la nature de la gaine : inox, nickel -

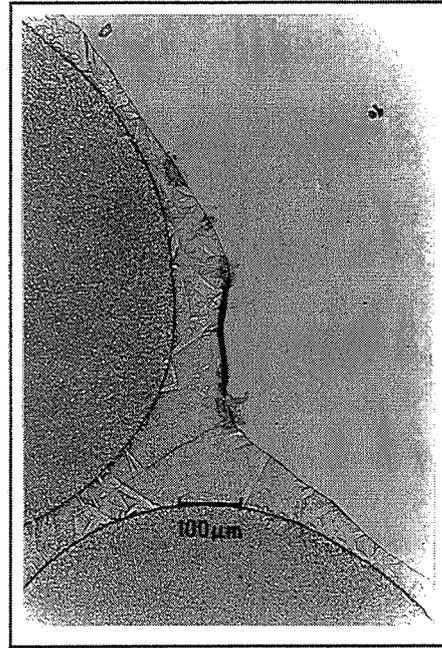
En vue d'améliorer la résistance de l'interface gaine-(W/Ni), nous avons élaboré un composite avec un container en nickel, métal identique à celui de la matrice. On peut alors s'attendre à avoir une meilleure consolidation de l'interface gaine-(W/Ni) au cours de l'élaboration du composite.

Si on compare les sections polies (non attaquées) d'un composite avec gaine en inox (*Micrographie II.29 a*) et avec gaine en nickel (*Micrographie II.30 a*), on constate, en effet, une meilleure soudure de l'interface gaine-(W/Ni) lorsque la gaine est en nickel :

- Avec la gaine en inox, outre le trait visible à l'interface, on observe, par endroits, des décohésions de l'interface (*Micrographie II.29 b*).

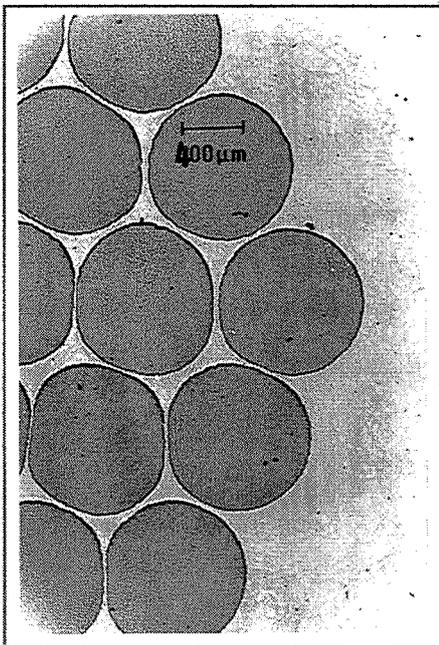


(a) Sans attaque chimique

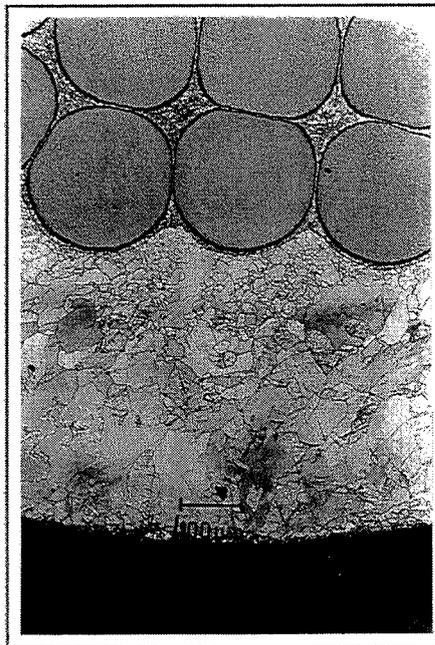


(b) Après attaque chimique de la matrice

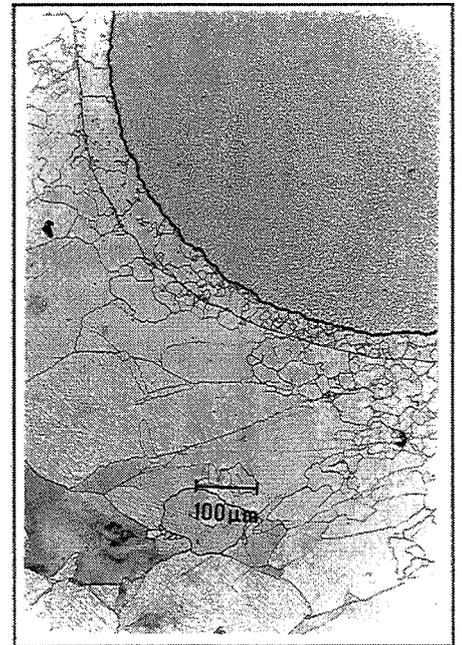
Micrographies II.29 a et b : Interface gaine inox-(W/Ni) sur un composite (800°C,30%)



(a) Sans attaque chimique



(b) Après attaque chimique du nickel



(c)

Micrographies II.30 a et b : Interface gaine nickel-(W/Ni) sur un composite (800°C, 31%).

- Avec la gaine en nickel, seule une attaque chimique du nickel permet de révéler l'interface gaine-(W/Ni) sous forme d'un mince filet noir, semblable à celui des interfaces Ni-Ni.

La mise en forme par martelage à chaud induisant la recristallisation dynamique du nickel (§ I.2.2-d-), on peut remarquer, après attaque chimique de la gaine, que les grains situés près de l'interface gaine-(W/Ni) sont plus fins (*Micrographies II.30 b et c*). Ceci peut s'expliquer par les fortes déformations que doit subir la gaine pour arriver à combler les interstices de la périphérie de l'empilement de fils.

Malgré une amélioration de la qualité de l'interface, la résistance du composite avec gaine en nickel est inférieure à celle du composite avec gaine en inox d'environ 200 MPa (*Figure II.26, Tableau II.20*).

La valeur de cet écart n'est, cependant, pas surprenante puisque nos essais de compression réalisés sur du nickel et de l'acier inoxydable massifs (§ II.1) ont montré que l'acier avait une résistance supérieure à celle du nickel d'un ordre de grandeur comparable à celui observé sur les composites, c'est à dire de 100 à 200 MPa (Annexe B et § II.1).

II.5.2 - Etude de l'endommagement par compression

Pour cette étude, les essais de compression ont été interrompus à différents taux d'écroutissage allant de 3 à 85 %. Le taux de compression est calculé en fonction des hauteurs initiales et finales des éprouvettes de la manière suivante:

$$\varepsilon_c = \ln(h_f/h_o)$$

Comme nous l'avons déjà dit précédemment, on peut atteindre avec le composite des taux de compression très importants ($\approx 85\%$) sans jamais observer la désintégration par "explosion" ou plus précisément la ruine du composite. Malgré un fort endommagement, le composite continue à supporter la charge grâce au maintien de certaines interfaces W-Ni.

Les paramètres qui déterminent, généralement, le comportement à rupture d'un composite sont les propriétés mécaniques des constituants et des interfaces, la fraction volumique de fibres et la présence de défauts (porosité, défauts d'alignement ...).

L'endommagement d'un composite (et par là même sa résistance) est généralement conditionné par la résistance du "chaînon" le plus faible qui, pour la plupart des composites, est l'interface fibre-matrice.

Les interfaces fibre-matrice jouent donc, généralement, un rôle primordial vis à vis du comportement à rupture d'un composite. Nous chercherons, par conséquent, à évaluer son importance sur le comportement à rupture de notre composite.

Vitesse de compression $V_t = 0,1 \text{ cm/mn}$							
Ech.	Taux de martelage (%)	So : aire des faces d'appui (mm^2)	ho hauteur initiale des éprouvettes (mm)	Limite élastique F_{el}/S_0 (MPa)	Résistance $R = F/S_0$ (MPa)	Déformation à R $\epsilon = dh/h_0$ (%)	Taux de compression $\ln h_f/h_0$ (%)
Température de martelage = 800°C							
E7a	28	118,4	8,55	863	1064	1,75	-47
E7b	"	"	8,56	801	1055	3,50	-15
E7c	"	"	8,6	885	108	1,55	-11
E7d	"	"	8,6	885	1069	1,94	-3
E8a	31	118,8	8,54	882	1068	1,76	-47
E8b	"	"	8,52	853	1047	1,56	-16
E8c	"	"	8,6	922	1060	1,16	-5
Température de martelage = 900°C							
F5a	32	115	8,18	870	1009	1,02	-35
F5b	"	"	8,30	826	1014	1,20	-31

Tableau II.20 : Résultats des essais de compression sur composites avec gaine en nickel

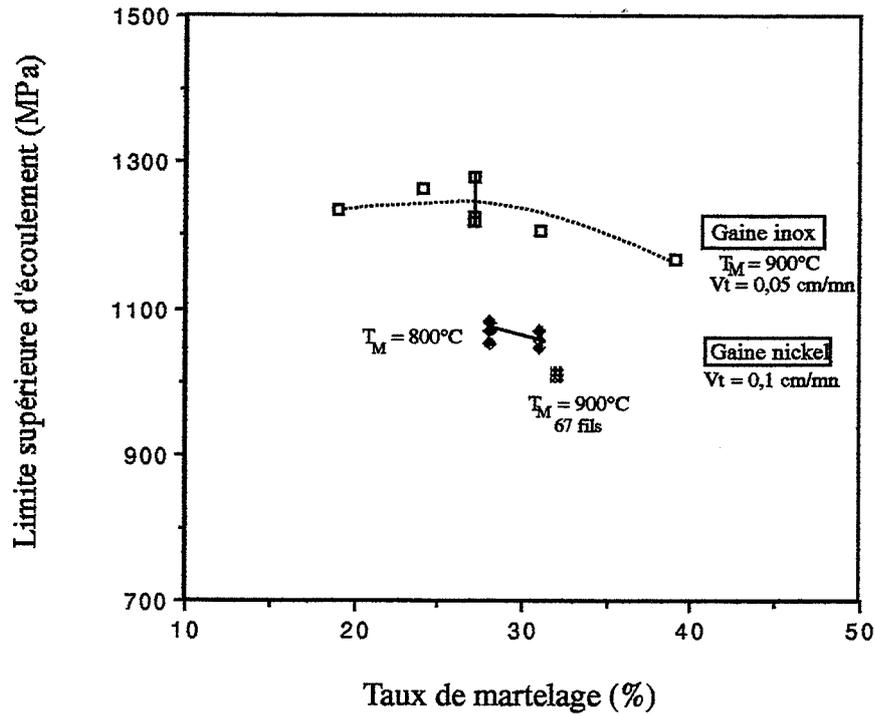
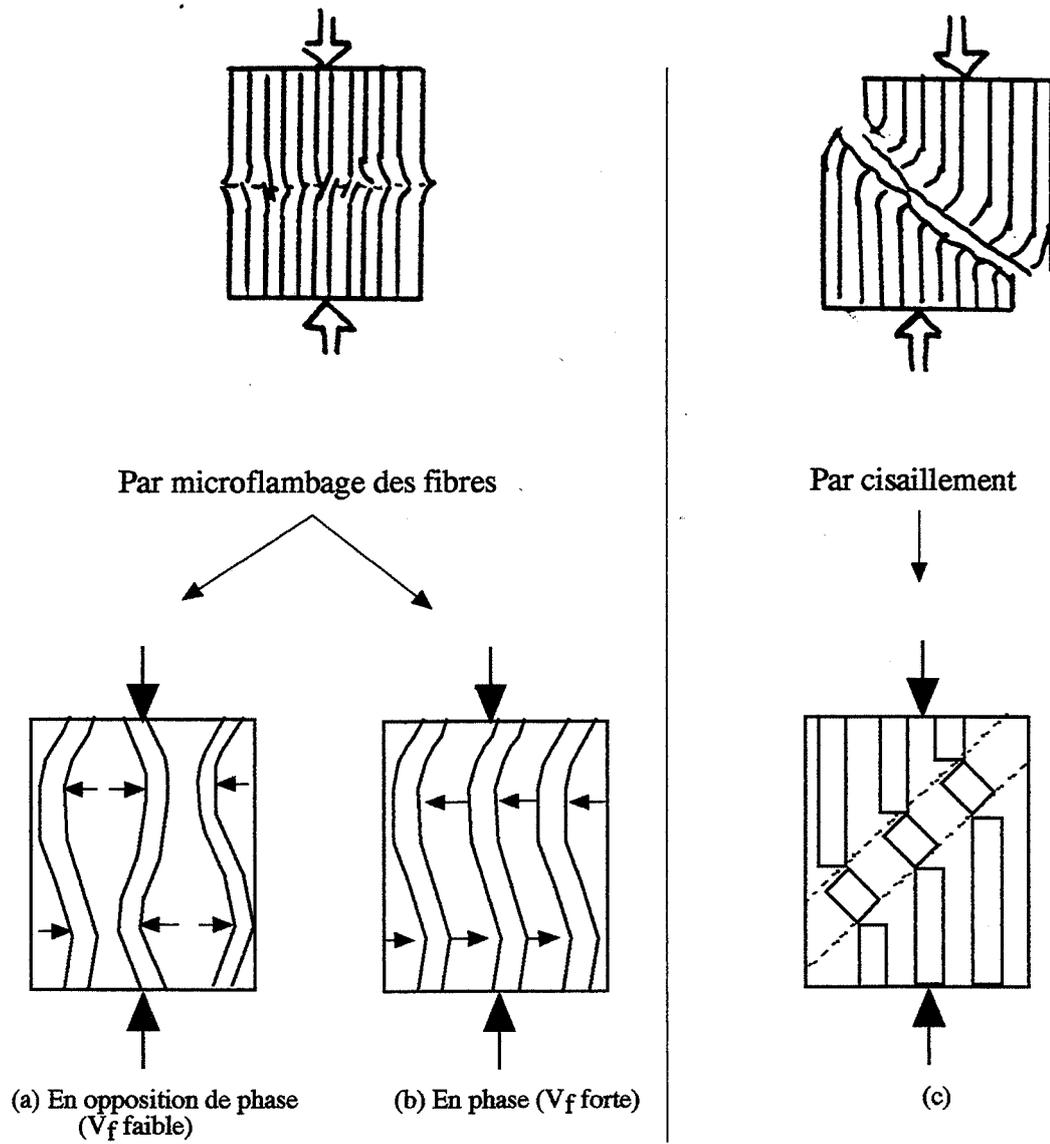
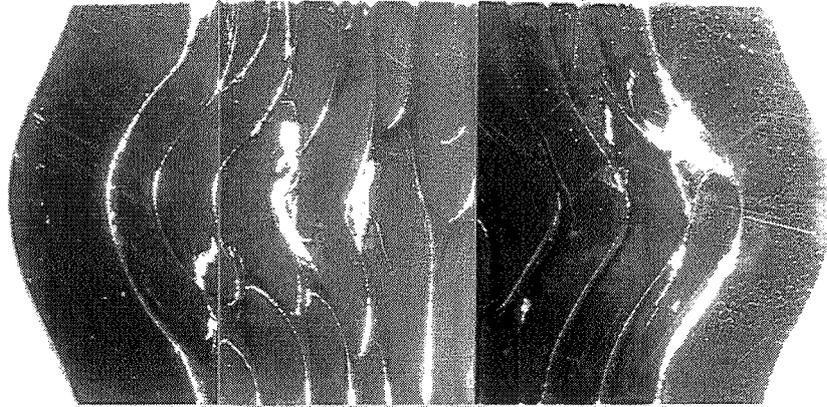


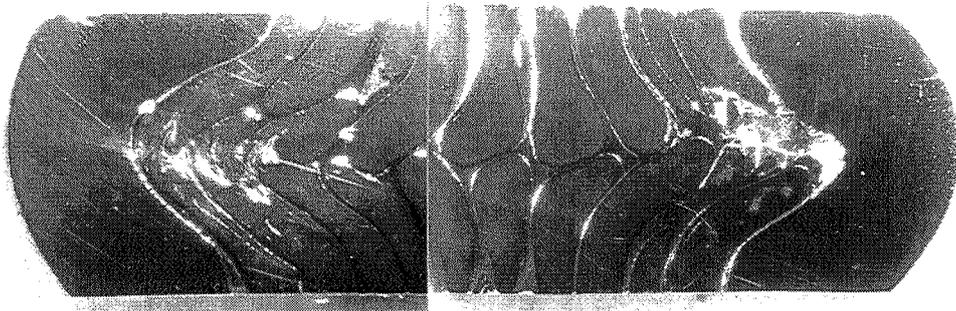
Figure II.26 : Résistance en compression longitudinale du composite avec gaine en fonction de la nature de la gaine.



Figures II.27 a, b, c : Modes de rupture d'un composite en compression longitudinale.



(a) B3 avec gaine (900°C, 27% / $\tau_c = -52\%$)



(b) A6 avec gaine (900°C, 39% / $\tau_c = -85\%$)

Photographies II.31 a et b : Coupes longitudinales des éprouvettes après compression longitudinale.

- Mode de déformation des constituants et localisation de l'endommagement -

En compression longitudinale, deux modes de rupture peuvent se présenter (*Figure II.27*) :

- 1- Rupture par microflambage des fibres qui entraîne l'écoulement de la matrice et le décollement des constituants.
- 2- Rupture par cisaillement.

Ce mode de rupture concerne plus particulièrement les composites présentant des défauts du type : porosité, écarts d'alignement des fibres, fibres non équidistantes. L'endommagement a lieu par double rupture des fibres en flexion le long d'une ligne orientée à 45° de l'effort de compression (*Figure II.27 c*).

En ce qui concerne la rupture par microflambage des fibres, on distingue deux possibilités de rupture suivant l'importance de la fraction volumique de fibres (V_f) dans le composite:

- **Si V_f est faible** : Microflambage en extension des fibres (*Figure II.27 a*)

Les fibres fléchissent en opposition de phase et la matrice subit des efforts de traction-compression.

- **Si V_f est forte** : Microflambage en cisaillement des fibres (*Figure II.27 b*)

Les fibres fléchissent en phase et la matrice subit des efforts de cisaillement.

Notre composite ayant une forte fraction volumique de fibres ($\approx 83\%$), on peut supposer qu'il subira un endommagement de type microflambage en cisaillement des fibres. L'observation de coupes longitudinales et transversales du composite (après compression) permet de vérifier un tel endommagement (*Photographies II.31 a et b et figures II.28 a et b*) puisque :

- * L'endommagement se localise essentiellement dans la région médiane (mi-hauteur de l'échantillon), ce qui est typique aux essais de compression car dans cette zone, les contraintes locales sont :

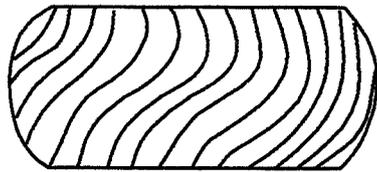
$$\sigma_{rr} = 0, \sigma_{\theta\theta} > 0, \sigma_{zz} > 0 \text{ ou } < 0$$

(le signe dépendant des conditions d'interfaces cylindre-tas de compression [Mise en forme des métaux])

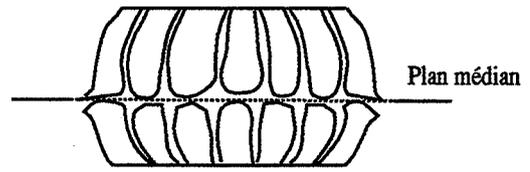
- * L'endommagement se traduit par la pliure des fils avec fissuration au niveau de la ligne médiane (signe d'un microflambage en cisaillement des fils), par un décollement des constituants (localisé uniquement sur cette ligne médiane). On peut remarquer que le décollement des constituants ne se produit pas au niveau de l'interface W/Ni contrairement à la plupart des composites biphasés.

Les forces de frottement ne font qu'accentuer cet endommagement et ce, préférentiellement en périphérie du matériau, donnant à l'éprouvette une forme en tonneau. Pour une rupture par microflambage en cisaillement des fibres, l'expression théorico-empirique qui permet d'évaluer le comportement en compression d'un tel composite est :

$$\sigma_{11c} = \sigma_c = \frac{G_m}{(1 - V_f)}$$

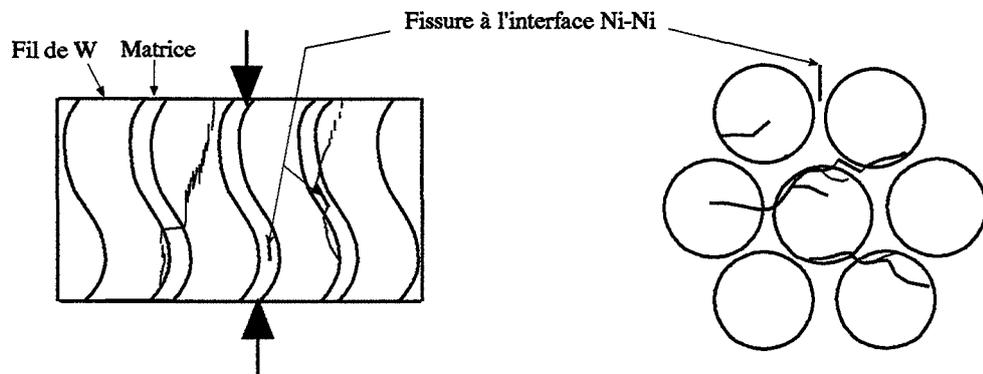


(a) Aspect extérieur du composite sans gaine



(b) Coupe longitudinale (plan // aux fils)

Figures II.28 a et b : Déformation de l'éprouvette par compression longitudinale.



(a) Vue longitudinale

(b) Vue transversale

Figures II.29 a et b : Propagation des fissures en compression longitudinale.

Cette expression sous entend que la résistance en compression du composite est fonction uniquement du module de cisaillement de la matrice en nickel ($G_m = 77$ GPa pour le nickel, Annexe A)

Toutefois, il est connu qu'expérimentalement, les valeurs de σ_c sont plus faibles que celles données par cette relation empirique en raison de l'apparition de fissures et de décollement transversaux.

- Propagation de l'endommagement -

Sur les sections polies des composites, on constate que le microflambage des fils induit une fissuration des fils mais pas une rupture nette en raison de sa microstructure fibreuse. Les fissures se propagent très facilement à l'intérieur du fil mais en suivant un plan parallèle et non perpendiculaire au fil (*Figure II.29 a*) donnant lieu à un délaminage inter-fibres (*Micrographie II.32 a*). Malgré la fissure, la rupture du fil est évitée grâce au maintien de certaines fibres.

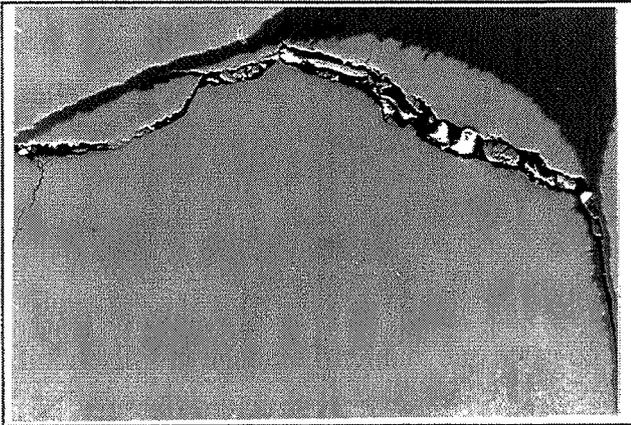
- * La propagation des petites fissures (qui apparaissent dès $\tau_c \approx 10$ %) est généralement stoppée à l'interface W-Ni par la capacité de la matrice (ductile) à relaxer la contrainte en fond de fissure par déformation plastique (*Micrographie II.32 b*).
- * Les grosses fissures (ou crevasses, qui apparaissent vers $\tau_c \approx 30$ %), par contre, rompent cet interface facilement. Elles se propagent de fils en fils (*Micrographies II.33 a et b*) en rompant la matrice là où son épaisseur est la plus faible c'est-à-dire entre deux fils contigus (*Micrographies II.34*).

Il est assez rare d'observer la propagation des fissures à l'interface W-Ni et à l'interface Ni-Ni (lieu de la soudure réalisée au cours du martelage). Il est à noter que la propagation des fissures n'affecte jamais la matrice située au niveau des points triples.

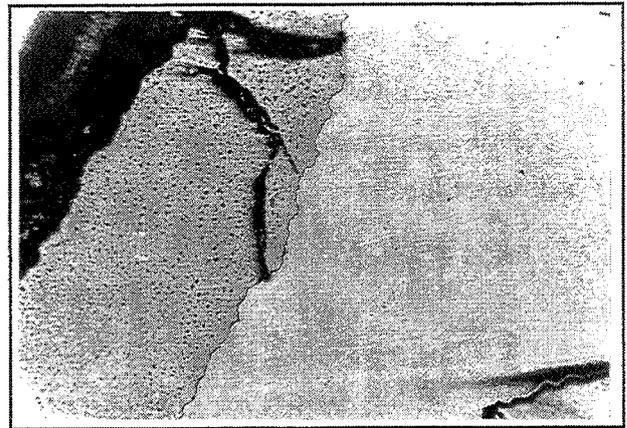
Ce mode de propagation montre qu'il s'effectue un transfert de charge de la matrice vers les fils de tungstène au cours de la sollicitation. Ce transfert de charge est typique des composites à forte fraction volumique de fibres (fibres proches l'une de l'autre) et entraîne un endommagement caractérisé par une rupture en cascade des fils de tungstène.

Remarques :

- *Les crevasses importantes s'initient généralement en bord d'éprouvette soit à partir d'un fil soit d'un interface Ni-Ni et rayonnent vers le centre (Photographie II.35 a). Etant donné le taux de compression important subi par l'éprouvette, on peut supposer que ces crevasses sont en partie dues aux forces de frottement qui induisent une déformation macroscopique de l'éprouvette en tonneau.*
- *On observe, parfois, la présence de fissures isolées, aux interfaces Ni-Ni, là où l'épaisseur de matrice est la plus fine (entre fils contigus) (Micrographie II.36).*

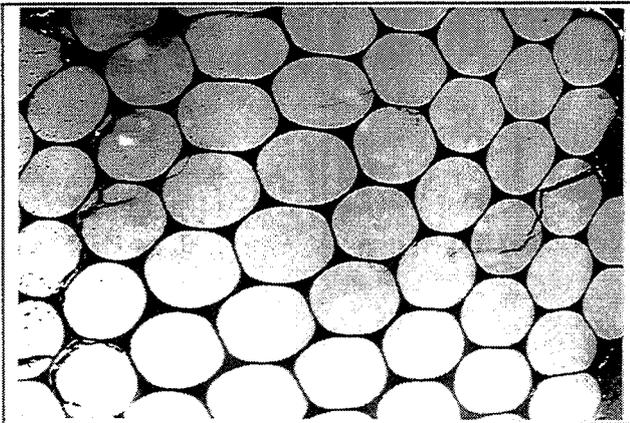


(a) Fissure d'un fil de tungstène
C₃ (800°C-29%)



(b) Arrêt de la fissure à l'interface W-Ni
B₃ (900°C-27%/τ_c = -52%)

Micrographies II.32 a et b : Rupture des fils de tungstène dans le composite par compression longitudinale.



(a) C₆ (900°C-30% / τ_c = -37%).



(b) B₃ (900°C-27% / τ_c = -52%)

Micrographies II.33 a et b : Propagation des fissures dans le composite.

- Conclusion sur l'endommagement -

Le fil de tungstène peut donc être considéré comme le "chaînon" le plus faible du composite puisqu'il est le premier élément du composite à s'endommager.

Toutefois, pour des taux de compression relativement faibles, l'apparition des petites fissures qui endommagent les fils n'entraînent pas pour autant la ruine du composite en raison notamment de la forte résistance des interfaces fibre-matrice et de la ductilité de la matrice.

Pour des taux de compression plus élevés, par contre, les fissures s'élargissent. La ductilité de la matrice devient insuffisante pour empêcher la propagation des fissures qui rompent les ponts de matrice (situés entre deux fils contigus) induisant une **rupture en cascade des fils**.

Ce mode d'endommagement est typique d'un composite à forte fraction volumique de fibres (§ I.4) et résulte de la faible épaisseur de matrice située entre deux fils contigus.

Ces observations ont, tout de même, prouvé la parfaite soudure de l'interface nickel-nickel réalisée au cours du martelage puisque les interfaces Ni-Ni résistent à la propagation des fissures.

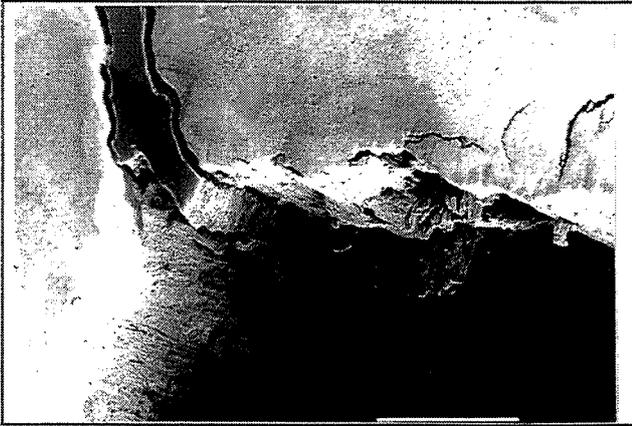
On a aussi pu constater que, contrairement à la plupart des composites, les interfaces de type fibre-matrice étaient très résistantes, plus résistantes que les fils de tungstène. Nous devons cette résistance à la qualité d'adhérence des dépôts de nickel sur la surface des fils de tungstène. Cette adhérence est, certes, due aux méthodes de nickelage mais probablement aussi au préchauffage des éprouvettes avant martelage.

En effet, si on se réfère à l'article de OCHIAI et *coll* [1975], un court recuit à 900°C (pendant 1 minute) suffit à obtenir une meilleure adhérence des dépôts de nickel sur les fils de tungstène, en raison de l'interdiffusion localisée entre tungstène et nickel.

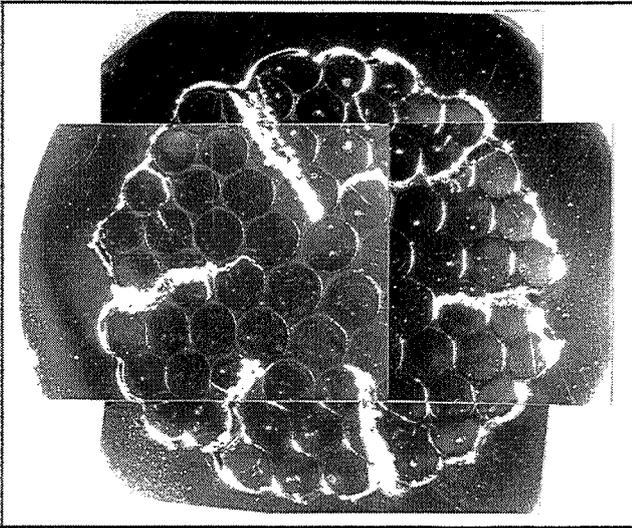
Toutefois, un recuit prolongé risque de devenir néfaste car en entraînant une forte diffusion volumique du tungstène dans le dépôt de nickel, il risque de rendre ce dépôt plus dur et donc fragile [OCHIAI et *coll* 75].

Pour l'élaboration du composite, le temps de préchauffage utilisé (30 minutes) étant trop court pour induire une forte diffusion volumique du tungstène dans le nickel, nous pouvons considérer que le nickel conserve dans le composite ses propriétés mécaniques, notamment sa ductilité.

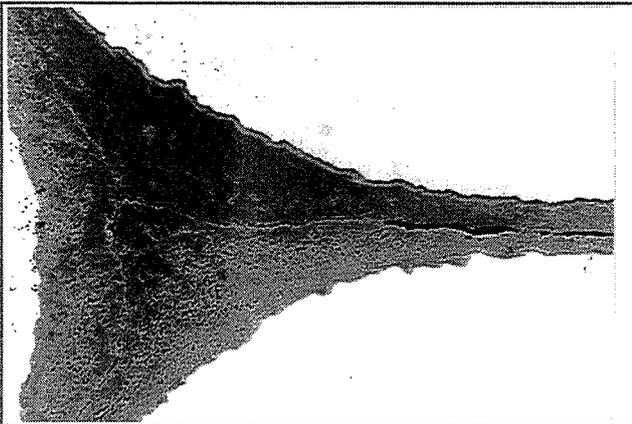
En raison de la microstructure fibreuse des fils de tungstène, de la résistance des interfaces W/Ni et Ni/Ni, le matériau composite résiste bien à l'endommagement et présente un comportement pseudo-plastique intéressant.



Micrographie II.34 :
Rupture des ponts de nickel.
B₃ (900°C- 27% / τ_c = -52%)



Micrographie II.35 :
Propagation des crevasses sur un composite
avec gaine.
B₃ (900°C- 27% / τ_c = -52%)



Micrographie II.36 :
Ouverture isolée des interfaces Ni-Ni
C₃ (800°C- 29%)

II.5.2 - Influence d'autres paramètres sur le comportement mécanique du composite

Dans ce paragraphe, nous allons tester l'influence d'un certain nombre de paramètres sur le comportement mécanique du composite :

- Les défauts structuraux (porosité, mauvais nickelage)
- La nuance du tungstène (pur / dopé)
- L'état microstructural des fils (écroui ou recristallisé)
- Le diamètre des fils (0,5 mm au lieu de 1 mm).

- Problème de porosité -

La porosité résiduelle observée sur un certain nombre de composites résulte principalement d'un taux de martelage insuffisant :

- Sur les composites obtenus par martelage 2 M, elle est présente si $\tau_c < 23 \%$.
- Sur les composites obtenus par martelage 4 M, elle est présente si $\tau_c < 38 \%$.

Les essais de compression effectués sur ce type de matériau ont montré que la résistance du composite n'était que faiblement affectée par la présence de la porosité. Par contre, la porosité modifie le comportement du matériau vis à vis de l'endommagement : au delà d'un certain taux de compression (variable suivant le composite considéré), le composite avec porosité soit flambe (exemple : A₁) soit explose (exemple : D₃) (*Figure II.30*). Dans les deux cas, la ruine du composite se traduit par la désintégration du composite en plusieurs morceaux.

Signalons qu'un tel comportement ne se produit jamais sur les composites exempts de porosité (exemple : B₄ sur la *Figure II.30*).

Le flambage qui précède la ruine des composites poreux est significatif du mode d'endommagement qui caractérise, en général, les matériaux avec des défauts structuraux (cas 1-) : rupture par cisaillement (*Figure II.27 c*).

- Mauvais nickelage -

Au cours de notre étude, il s'est avéré qu'un lot de fils nickelés utilisés pour l'élaboration de certains composites présentait une anomalie au niveau du nickelage (mauvaise adhérence du dépôt électrolytique de nickel sur les fils de tungstène). Ceci nous a permis d'évaluer l'influence de ce défaut sur la réponse mécanique du composite.

Les composites (F₆, F₇, F₈) constitués de fils "purs" (fils Cime-Bocuze, épaisseur de nickel de 20 μm) ont été martelés à un taux de 33 % avec la machine à deux marteaux.

Les *micrographies II.37 et II.38* montrent que le martelage provoque la décohésion des interfaces W-Ni si initialement, l'adhérence des dépôts de nickel sur les fils de tungstène n'est pas parfaite.

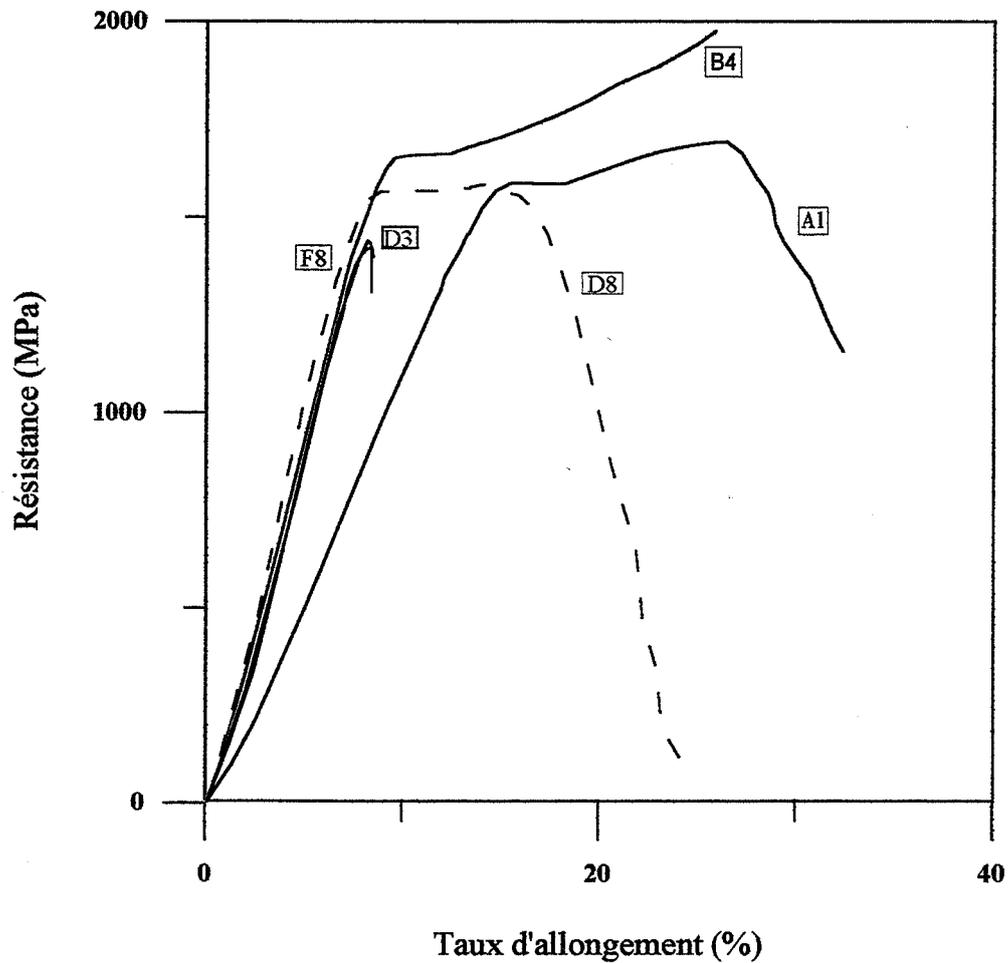
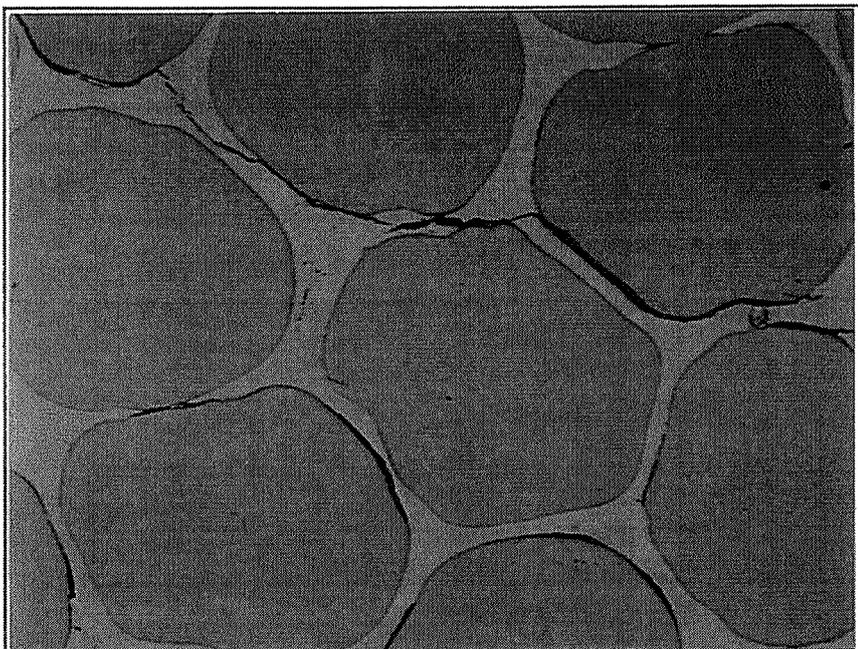
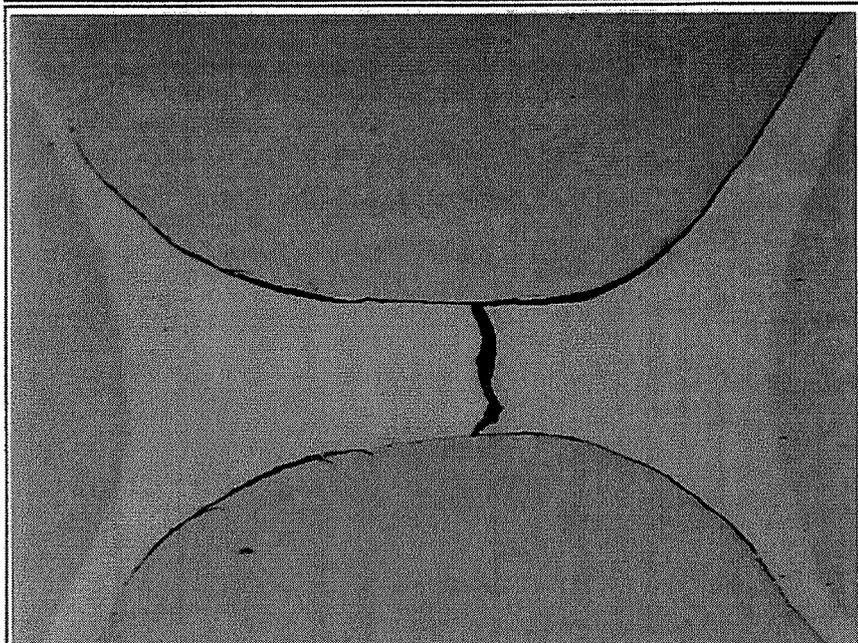


Figure II.30 : Exemples de courbes $\sigma - e$ en compression longitudinale de composites sans gaine

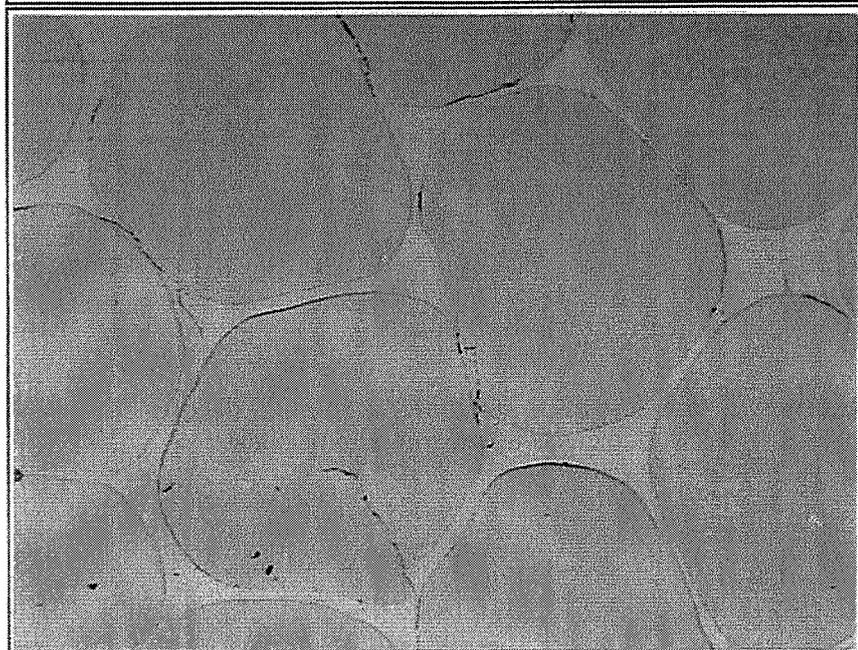
- B4 (martelé à 2 marteaux, bon)
- A1 (martelé à 2 marteaux, porosité)
- D3 (martelé à 4 marteaux, avec porosité)
- D8 (martelé à 4 marteaux, qualité moyenne des interfaces Ni-Ni)
- F8 (martelé à 2 marteaux, fils purs et problème de nickelage)



Micrographie II.37 :
Décollement des interfaces W-Ni
F₈ (900°C- 34%)



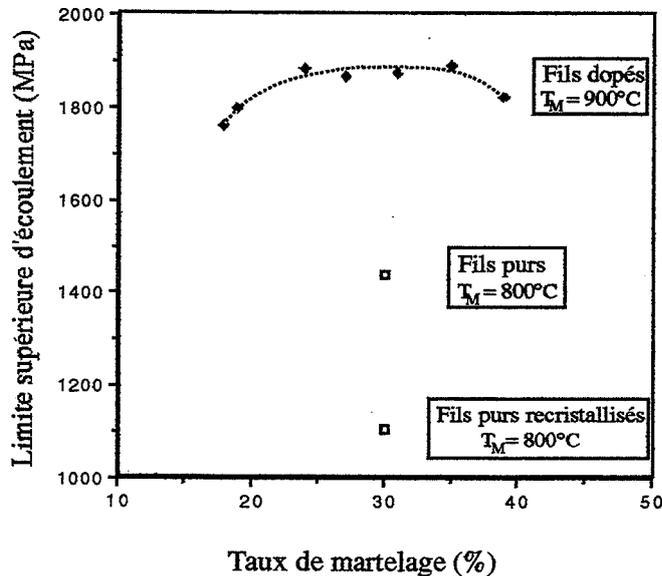
Micrographie II.38 :
Rupture des ponts de nickel.
F₆ (800°C- 32%)



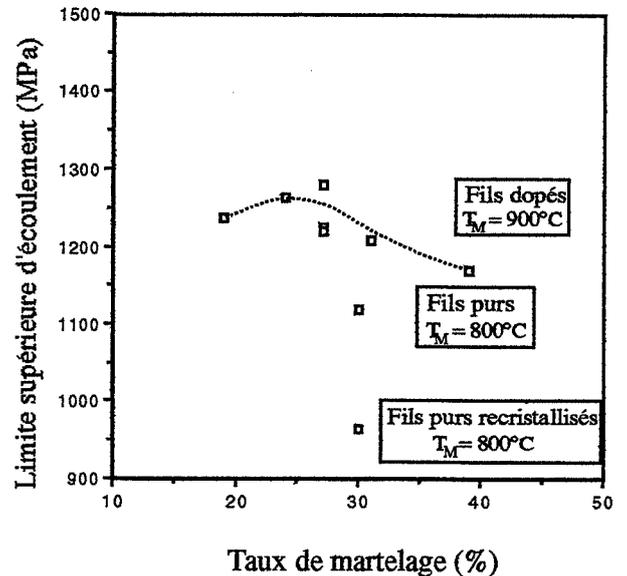
Micrographie II.39 :
Fissuration des fils de tungstène
F₆ (800°C- 32%)

Vt = 0,1 cm/mn							
Ech.	Taux de martelage (%)	So : aire des faces d'appui (mm ²)	ho hauteur initiale des éprouvettes (mm)	Limite élastique Fe/So (MPa)	Résistance R = F/So (MPa)	Déformation à R $\epsilon = dh/ho$ (%)	Taux de compression Ln h _f /h _o (%)
Température de martelage = 800°C							
Avec gaine							
E9a	30	130,5	8,24	969	1112	1,2	-12
E9b	"	"	8,1	941	1128	1,4	-4
E9c	"	"	8,13	922	1120	1,6	-34
Sans gaine							
E9e	30	63	7,9	1292	1432	1,3	-16
E9f	"	"	7,48	1284	1149	0,7	-45
F6a	32	56,9	8,02	1235	1416	0,8	explosé
F6b	"	56,9	7,78	1144	1235	0,5	explosé
F7a	33	56,98	8,13	1070	1178	0,6	explosé
F7b	"	56,5	8,12	1508	1618	0,6	explosé
Température de martelage = 900°C, sans gaine							
F8a	34	56,8	8,14	1419	1528	0,6	explosé
F8b	"	56,5	7,74	1334	1490	0,9	explosé

Tableau II.21 : Caractéristiques mécaniques d'un composite constitué de fils de tungstène "pur".



a) Composites sans gaine



b) Composites avec gaine

Figures II.31 a et b: Influence de la nature et de l'état microstructural des fils sur la résistance en compression du composite.

Le martelage a, de plus, provoqué la propagation des fissures de fils en fils au niveau des interfaces W-Ni soit en rompant nettement les ponts de matrice (*Micrographie II.38*) soit en longeant les interfaces Ni-Ni (*Micrographie II.37*).

Le comportement mécanique de ces composites est donc similaire à celui des composites avec porosité si ce n'est que la ruine du composite intervient à un taux de compression un peu plus faible que les matériaux poreux (*Figure II.30*).

Remarques :

- Pour optimiser l'adhérence des dépôts de nickel, outre la maîtrise des conditions expérimentales du nickelage, il semble préférable de rendre la surface des fils rugueuse avant d'effectuer le nickelage. En effet, contrairement aux fils nickelés de Cime-Bocuze (*Micrographie II.37*), les Fils Plansee présentent un interface W-Ni sinueux, preuve de la rugosité de la surface des fils (*Micrographie II.41 b* au § I.2.2-b-).
- On peut remarquer que contrairement à nos estimations théoriques, il est possible d'obtenir un composite non poreux avec une épaisseur de nickel de seulement 20 μm . Toutefois, comme le montre la *micrographie II.39*, le martelage a provoqué la fissuration de quelques fils de tungstène. Cette fissuration est probablement due aux forces de frottement entre fils imputables à une trop faible épaisseur de matrice (§ II.1.2-b-).

- Modification de la nuance du tungstène des fils : pur au lieu de dopé -

Au chapitre II.1.1, nous avons pu constater que les fils de tungstène dopé avaient une meilleure résistance en traction que les fils de tungstène pur. Nous avons donc cherché à savoir si cette tendance se vérifiait sur les composites testés en compression. Nous avons donc élaboré un composite (E9) à partir de fils de tungstène pur.

L'aspect microstructural du composite une fois martelé, est tout à fait similaire à celui des composites obtenus à partir de fils dopés : les fils purs ont le même mode de déformation que les fils dopés; on n'observe pas plus de fissures dans le composite avec fils "purs" que dans ceux avec fils dopés.

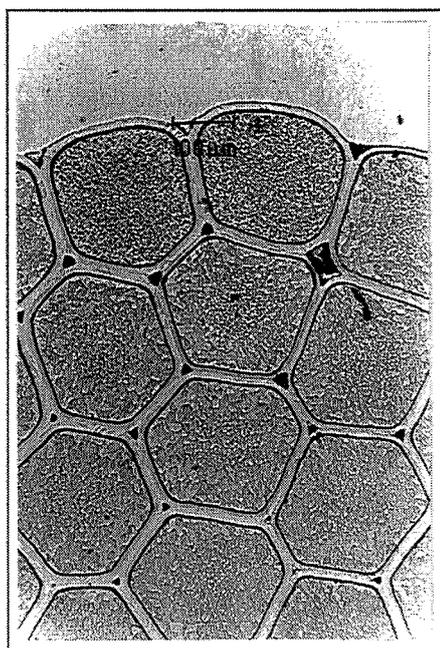
Les essais de compression ont été effectués sur ce composite avec et sans la gaine d'innox. Les résultats figurent dans le *tableau II.21* et la *figure II.31* permet de comparer les résultats avec ceux obtenus sur les composites avec fils de tungstène dopé.

- Avec les éprouvettes sans gaine, on obtient une résistance moindre de 250 MPa par rapport aux composites avec fils dopés.
- Avec les éprouvettes avec gaine, cet écart est moins grand (≈ 100 MPa), la présence de la gaine conditionnant probablement cette atténuation.

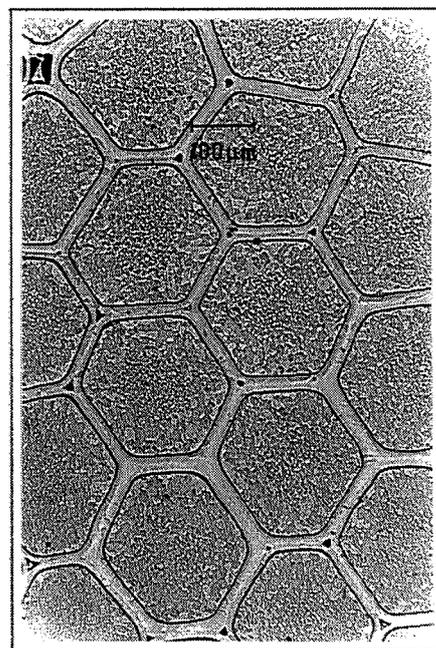
L'écart étant du même ordre que celui mesuré en traction entre les fils dopés et les fils "purs" (≈ 200 voire 500 MPa, § II.1.1), on en conclut donc que pour une optimisation de la résistance du composite, il est préférable d'utiliser des fils dopés.

Température de martelage = 800°C, Vt = 0,1 cm/mn							
Ech.	Taux de martelage (%)	So : aire des faces d'appui (mm ²)	ho hauteur initiale des éprouvettes (mm)	Limite élastique Fel/So (MPa)	Résistance R = F/So (MPa)	Déformation à R $\epsilon = dh/ho$ (%)	Taux de compression $Ln h_f/h_o$ (%)
Avec gaine en inox							
E10a	30	130,5	8,68	738	978	3,84	-40
E10b	"	"	8,64	731	977	3,86	-21
E10c	"	"	8,68	747	941	3,4	-5
Sans gaine							
E10e	30	58,3	8,06	827	1130	3,3	-60
E10f	"	58,5	8,1	887	1090	2,5	-25

Tableau II.22 : Caractéristiques mécaniques d'un composite constitué de fils de tungstène "pur" à l'état recristallisé.



(a) Bord du composite



(b) Coeur du composite

Micrographies II.40 a et b : Composite E10 (800°C, 30%) avec des fils purs recristallisés.

- Influence de l'état microstructural des fils : écroui, recristallisé -

Une fois recristallisés, les fils de tungstène deviennent extrêmement fragiles d'autant plus si cette recristallisation est induite par le nickel : perte totale de ductilité (la rupture intergranulaire dans le domaine élastique), résistance en traction passant de 1800 à 300 MPa (pour les fils purs, voir § II.1.1).

Nous avons cherché à connaître l'influence d'un tel état sur la mise en forme du composite et à sa résistance en compression longitudinale.

Nous avons donc réalisé un composite constitué de fils de tungstène pur entièrement recristallisés. Pour cela, nous avons préalablement effectué sur ces fils un recuit à 1400°C pendant 2 heures.

L'observation microstructurale (*Micrographies II.40 a et b*) de ce composite nous révèle de manière assez surprenante que le martelage ne provoque ni la détérioration ni même la fissuration des fils recristallisés (par rupture intergranulaire). De plus, on constate que les fils recristallisés ont une meilleure aptitude à la déformation que les fils à l'état écroui : la section des fils recristallisés prend une forme quasi-hexagonale après martelage. Ceci résulte vraisemblablement de la baisse de dureté qu'occasionne la recristallisation.

Toutefois, on constate sur ces micrographies que ce composite présente une porosité importante au niveau des points triples.

Deux facteurs peuvent expliquer la présence d'une telle porosité :

- *Etant donné l'extrême fragilité des fils recristallisés rendant leur manipulation délicate lors de la réalisation des éprouvettes de martelage, il n'a pas été possible d'introduire 68 fils. Seuls 61 fils ont pu être placés dans le container. L'insuffisance du nombre de fils est la cause principale de cette porosité (voir § II.4.2-d-). Malgré un taux de martelage important (30 %), on n'atteint pas avec ce composite le taux minimal de densification (taux assurant l'élimination totale de la porosité) (§ II.2.1-c-). Ce taux minimal est de 23 % si le composite est à 68 fils mais de 34 % si le composite est à 61 fils. Le taux de martelage choisi pour ce composite (30 %) est donc inférieur au taux de densification.*
- *La recristallisation induite des fils de tungstène nickelés a permis d'abaisser la dureté des fils et d'augmenter celle des dépôts de nickel (par diffusion volumique du tungstène) (voir § III.4.2). Ces deux faits peuvent contribuer à favoriser la porosité dans le sens où si la section des fils se déforme plus facilement, les fils exercent une moindre pression sur les dépôts de nickel lors du martelage. Ceci a alors pour conséquence de réduire la déformation du nickel au niveau des points triples.*

Du point de vue mécanique (*Tableau II.22 et figures II.31 a et b*), on constate que la résistance du composite avec fils recristallisés (E_{10}) est légèrement inférieure à celle du composite avec fils écrouis (E_9). Cependant, nous ne pouvons pas attribuer cette différence à l'état recristallisé des fils en raison de la présence de porosité dans le composite E_{10} .

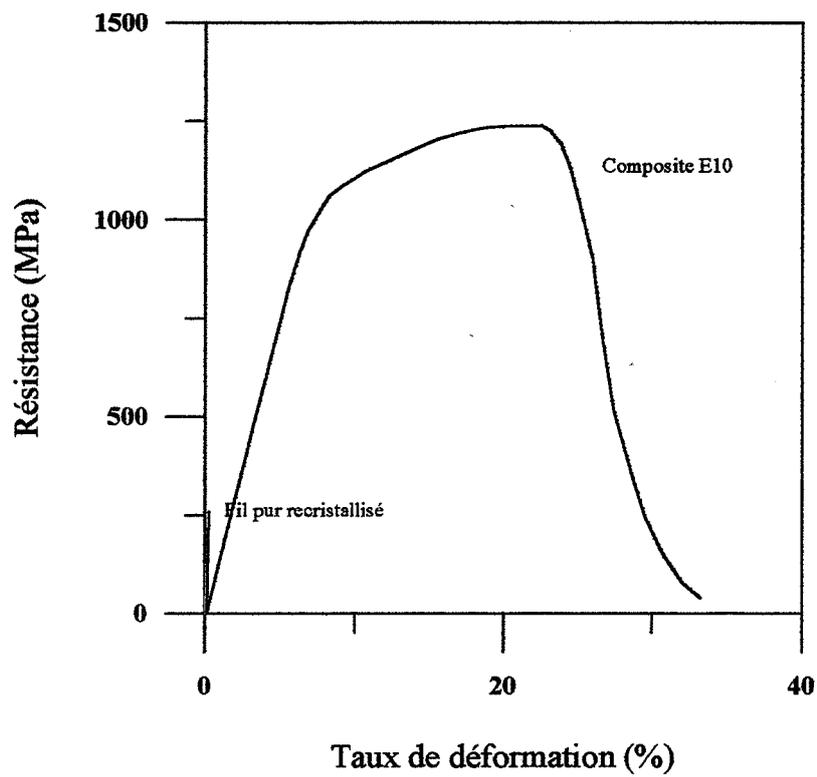


Figure II.32 : Compression longitudinale du composite avec fils purs recristallisés (1400-2 heures) et courbe de traction d'un fil pur recristallisé après un recuit à 1400°C-1 heure

Toutefois, d'après KELLY et TYSON [cités par Taya-Arsenault 89 et Petrasek-Weeton 65] qui ont étudié le comportement d'un composite W/Cu, la résistance à rupture d'un composite constitué de fibres fragiles est inférieure à celle d'un composite à fibres ductiles.

Nous avons, en effet, observé une différence de comportement à rupture entre ces deux types de composite : si la compression du composite avec fils écrouis se traduit par un endommagement croissant, celle d'un composite à fils recristallisés se traduit, au delà d'un certain taux, par la désintégration totale du composite consécutive à une rupture intergranulaire des fils de tungstène.

Il est, toutefois, intéressant de remarquer que la résistance (en compression) du composite à fils recristallisés (≈ 1100 MPa) est nettement supérieure à celle des fils recristallisés testés individuellement en traction (≈ 320 MPa) (*Figure III.32*) et que le composite présente une certaine ductilité contrairement aux fils.

Ceci résulte vraisemblablement de la meilleure résistance des fils recristallisés en compression qu'en traction, la sollicitation des joints de grains étant moindre.

Ce comportement surprenant a aussi été constaté sur d'autres types composites qui, élaborés à partir de constituants fragiles, deviennent des matériaux non fragiles.

En conclusion, nous dirons que contrairement à nos prévisions, ce matériau s'est avéré beaucoup plus résistant que ne le supposait l'extrême fragilité des fils. Sa résistance en compression est probablement inférieure à celle d'un composite constitués de fils à l'état écroui mais la différence n'est certainement pas aussi grande que celle observée entre les deux types de fils (testés individuellement). Toutefois, la ténacité d'un tel composite est moins bonne; un début d'endommagement conduit assez vite à la ruine du matériau.

Nous prouvons ainsi la nécessité d'utiliser une température de mise en forme pour le composite inférieure à la température d'apparition du phénomène de Recristallisation Induite par le nickel (§ I.1.1-b-).

- Influence du diamètre des fils -

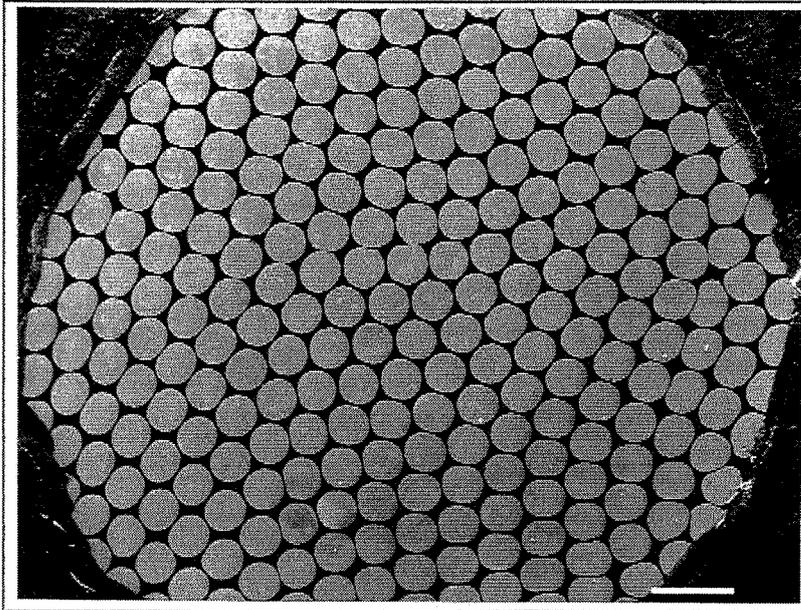
Deux composites (E_1 et E_2) ont été réalisés à partir de fils de diamètre plus petit (0,5 mm au lieu de 1 mm). La résistance et la ductilité des fils étant fonction de leur taux de tréfilage donc de leur diamètre, on peut donc considérer que ces fils ont des propriétés mécaniques supérieures à celles de fils de diamètre 1 mm.

Nous avons donc cherché à évaluer l'influence de ce paramètre sur la réponse mécanique du composite à la compression.

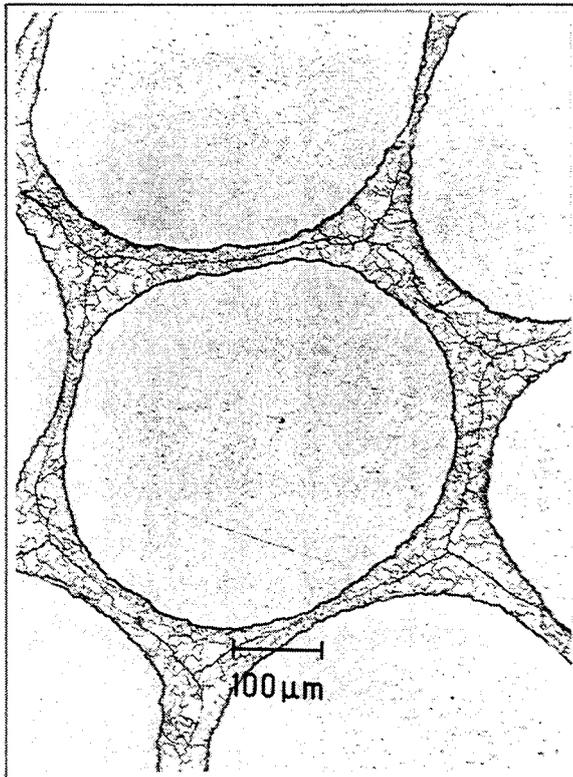
L'épaisseur du dépôt de nickel est proportionnellement réduite à 25 μm . Pour un diamètre intérieur de container de 10 mm, le nombre maximum de fils que l'on peut introduire est alors de 184 (voir Annexe E.1)

Vitesse de compression $V_t = 0,1$ cm/mn								
Ech.	ϕ fils (mm)	Taux de martelage (%)	So : aire des faces d'appui (mm ²)	ho hauteur initiale des éprouvettes (mm)	Limite élastique F_{el}/S_o (MPa)	Résistance $R = F/S_o$ (MPa)	Déformation à R $\epsilon = dh/ho$ (%)	Taux de compression $Ln h_f/h_o$ (%)
Température de martelage = 800°C								
E1b	0,5	25	64,2	7,7	1551	1729	1,1	-47
E1c	"	"	63,7	8,1	1539	1694	1,2	-31
E1d	"	"	64	7,94	1524	1686	1,3	-79
E1e	"	"	63,9	8	1477	1680	1,4	-4
E1g	"	"	63,5	8,24	1487	1691	1,2	-32
E2b	0,5	25	64,9	8,08	1538	1710	1,2	-63
E2d	"	"	64,2	7,94	1486	1680	1,4	-22
E2e	"	"	64,15	8	1480	1690	1,2	-1,5

Tableau II.23 : Résultats des essais de compression sur composites avec diamètre de fil de 0,5 mm



(a) Section du composite (échelle = 1mm)



(b) Aspect de la matrice

La *micrographie II.41* permet de visualiser l'aspect structural du composite E₂. On remarque sur ce type de composite que la finesse des fils permet de mettre en évidence la forme de "S" (tracée par les rangées de fils) sur la section du barreau composite (voir § I.3).

Les résultats des essais de compression (*Tableau II.23*) montrent de manière surprenante que la diminution du diamètre des fils, si elle augmente la résistance (en traction) des fils, ne modifie pas de manière conséquente la résistance en compression du composite ni même les autres caractéristiques mécaniques (limite élastique, déformation plastique à σ_{\max}). De plus, l'augmentation du nombre de fils constituant le composite (184 au lieu de 68 pour des fils de 1 mm) n'entraîne pas une augmentation de résistance.

Ceci nous permet donc de conclure que pour l'élaboration du composite, nous éviterons de compliquer le mode opératoire en manipulant des fils de petits diamètres, les fils de diamètre 1 mm satisfaisant suffisamment nos objectifs.

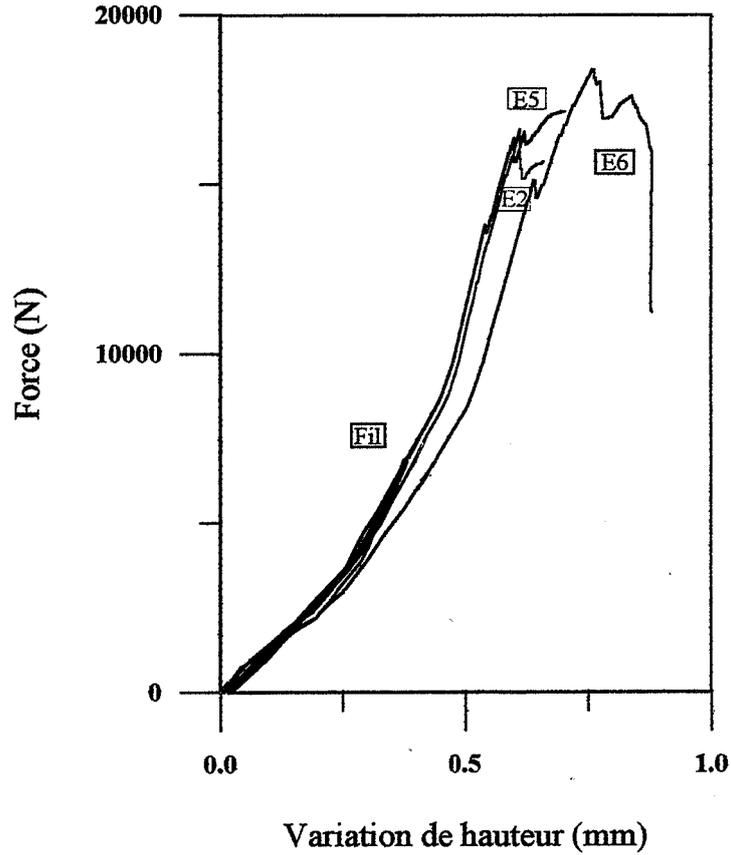


Figure II.33 : Courbes F-dh en compression transversale de quatre composites et d'un fil dopé
 E5 et E6 (fils dopés de diamètre 1 mm)
 E2 (fils dopés de diamètre 0.5 mm)
 D5 (fils purs de diamètre 1 mm et porosité)

Température de martelage = 800°C, Vt = 0,02 cm/mn				
Ech.	ϕ_{fils} (mm)	Taux de martelage (%)	Force liée au début de l'endommagement F_1 (N)	Force maximale avant ruine F_{max} (N)
E2h	0,5	25	/	12913
E2g	0,5	25	12025	16529
E5b	1	30	8471	/
E5g	1	30	13678	17025
E6e	1	41	11611	14256
E6i	1	41	14091	18347

Tableau II.24 : Résultats des essais de compression transversales sur composites

II.5.3 - Essais de compression transversale

Les essais de compression transversale (non normalisés) ont été réalisés sur les éprouvettes cylindriques identiques à celles utilisées pour les essais longitudinaux. La résistance du composite ne sera donc pas exprimée en terme de contrainte mais de force.

Ce type d'essai permet d'évaluer le comportement du composite sollicité perpendiculairement aux fils et notamment d'évaluer sa résistance et son endommagement au cisaillement.

L'allure des courbes obtenues est présentée sur la *figure II.33*. Chaque décrochage visible sur la courbe est accompagné au cours de l'essai d'une émission acoustique correspondant à une micro-rupture du composite. Le composite ne rompt pas dès l'apparition d'un premier endommagement : sa ruine n'intervient qu'après une accumulation de micro-ruptures.

Pour caractériser le comportement en compression transversale du composite, nous avons choisi de relever les valeurs de deux forces (*Tableau II.24*) :

- La force F_1 correspondant à l'apparition du **premier endommagement**.
- La force maximale F_{\max} qui précède la ruine de l'éprouvette.

Dans ce tableau, figurent les résultats obtenus sur deux types de composites :

- E2 : composite constitué de fils de diamètre **0,5 mm** (Epaisseur de nickel = 25 μm)
- E5 et E6 : composites formés de fils de diamètre **1 mm** (Epaisseur de nickel = 40 μm).

La réponse mécanique et le comportement à l'endommagement de ces deux séries de composites sont semblables. Le fait d'avoir une structure plus ou moins fine n'influence donc en rien la réponse mécanique du composite à un tel type d'essai.

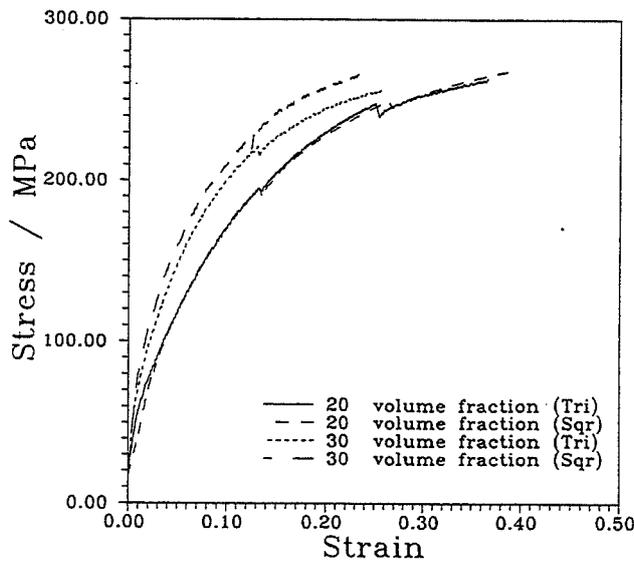
La résistance d'un composite à un tel essai dépend fortement de la résistance de l'interface fibre-matrice (liée à la résistance transversale de la fibre), la résistance de la matrice au cisaillement et la fraction volumique de fibres [TAYA et ARSENAULT 1989].

Sur nos composites, on estime la résistance du composite à $F_{\max} \approx 16000 \text{ N}$ (en moyenne). Mais le début de l'endommagement se produit vers $F_1 \approx 12000 \text{ N}$.

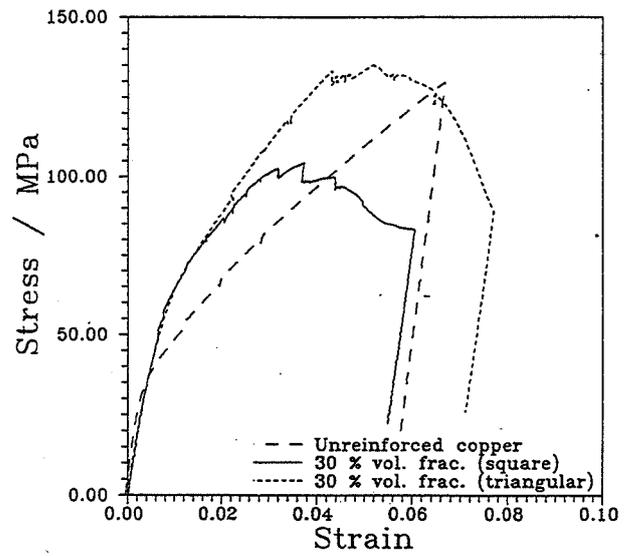
- Comparaison compression transversale-longitudinale -

En règle générale, les propriétés transversales d'un composite unidirectionnel sont nettement inférieures aux propriétés longitudinales. On considère généralement qu'il existe un rapport 10 entre la résistance longitudinale et transverse : $\sigma^t \approx \frac{1}{10} \sigma^l$ [PREWO et KREIDER 1972].

On vérifie effectivement cette tendance avec notre composite : la résistance en compression transversale représente 14 % (soit 1/6) de la résistance en compression longitudinale pour le composite E2 et 18 % pour les deux composites E5 et E6.

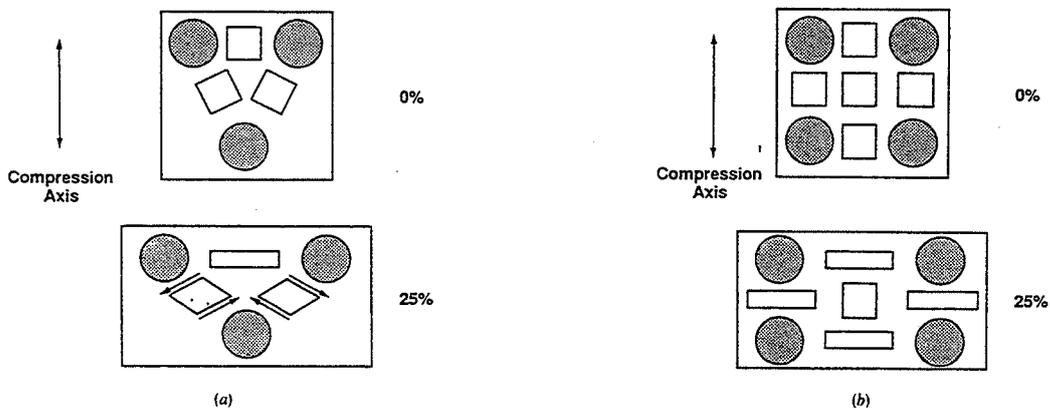


(a) En compression transversale (pour $V_f = 20$ et 30%)



(b) En traction transversale (pour $V_f = 30\%$)

Figures II.34 a et b : Influence de la géométrie de l'empilement des fibres (carré ou hexagonal) sur la résistance du composite (fibres de W/matrice Cu) [Poole et al 94].



Figures II.35 a et b : Déformation en compression transversale d'un composite [Poole et al 94]
(a) avec arrangement triangulaire, (b) avec un arrangement carré

Cette tendance observée sur d'autres composites uniaxiaux est attribuée à un moins bon transfert de charge de la matrice vers les fibres en compression transversale [POOLE et coll. 1994, PREWO et coll. 1972].

La résistance d'un composite dépend, en fait, de deux facteurs : la géométrie de l'empilement des fibres et la fraction volumique de fibres.

* La fraction volumique de fibres.

PREWO et coll. [1972] ont montré (sur un composite : fibres de bore/matrice aluminium) que contrairement à la sollicitation longitudinale, la résistance du composite en sollicitation transversale est une fonction décroissante de la fraction volumique de fibres.

* La géométrie de l'empilement des fibres.

Deux types d'arrangement (carré et hexagonal) ont été étudiés sur des composites type : fibres de W/Cu [POOLE et coll. 1994] ou fibres de bore/Al [PREWO et coll. 1972].

Notons que l'arrangement dans notre composite est proche de l'arrangement hexagonal.

En compression transversale, un arrangement carré permet d'atteindre un niveau de résistance supérieur à un arrangement hexagonal (*Figure II.34 a*) [POOLE et coll. 1994, PREWO et KREIDER 1972, ZAHL et coll. 1994]; cette différence n'apparaît, cependant, que pour une fraction volumique de fibres supérieure ou égale à 30 % [POOLE et coll. 1994].

Ceci s'explique par une différence de distribution des déformations au sein de la matrice (distribution dépendant de la géométrie de l'empilement) (*Figures II.35 a et b*) et permettrait, dans le cas d'un arrangement carré, un meilleur transfert de charge entre matrice et fibres [POOLE et coll. 1994].

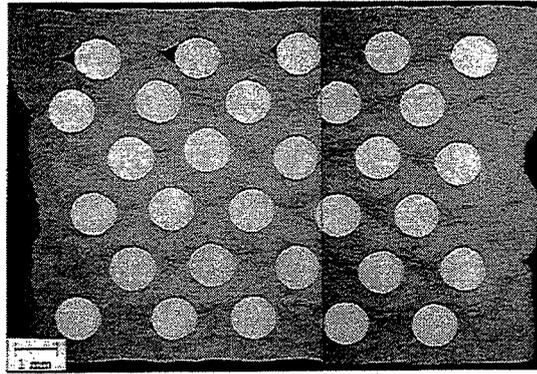
Remarque : Nous noterons qu'en traction transversale, la comparaison des deux arrangements conduit à la conclusion inverse : l'arrangement hexagonal permet d'obtenir une plus grande résistance du composite (Figure II.34 b) [PREWO et KREIDER 1972, POOLE et coll. 1994].

- Comparaison avec les matériaux de base -

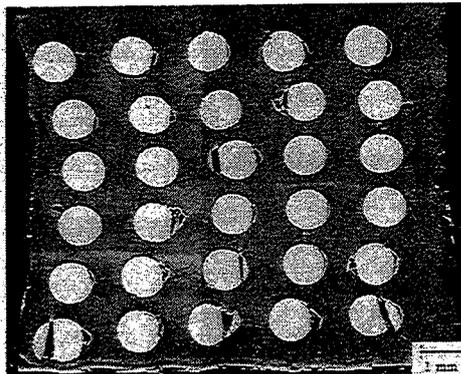
D'après PREWO et KREIDER [1972], la résistance d'un composite type fibres de bore/Aluminium en traction transversale est considérablement inférieure à celle de la matrice non renforcée.

En compression, nous nous référerons aux limites élastiques estimées à 70 MPa (soit 3518 N) pour du nickel massif (voir § II.1.2) et 12000 N pour notre composite. Nous constatons donc que contrairement au composite fibres de bore/Al, notre composite a une meilleure résistance en compression transversale que la matrice non renforcée.

On remarque aussi que la résistance du composite est supérieure à celle des fils de tungstène testés individuellement en compression transversale (≈ 7575 N, voir § II.1.1-d-: *Figure II.33*).

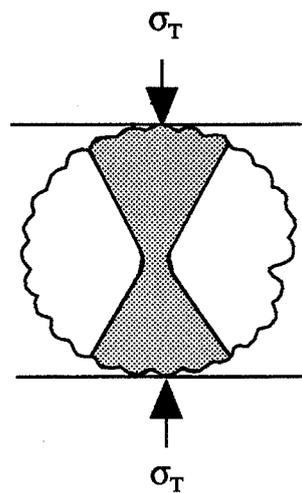


(a)

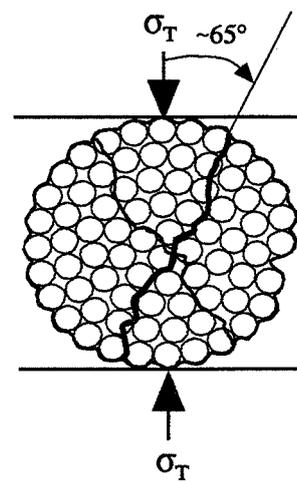


(b)

Figures II.36 a, b : Endommagement par compression transversale d'un composite (W/Cu)
 (a) avec arrangement triangulaire, (b) avec arrangement carré [Poole et coll. 94].



(a) Zone affectée par l'endommagement



(b) chemin de fissuration

Figure II.37 a et b : Représentation schématique de l'endommagement de nos composites par compression transversale

- Module d'élasticité transversal -

Ce type d'essai (compression transversale) permet en principe d'avoir accès au module d'Young transversale E_t et en conséquence au module de cisaillement G_{tt} . Mais, comme pour le module d'Young longitudinal, la détermination expérimentale du module d'Young en compression transversale n'est pas aisée.

Toutefois, on considère généralement qu'il existe un rapport inférieur à 2 entre le module longitudinale E_l et le module transversal (E_t) [PREWO et KREIDER 1972].

En sollicitation transversale, si la résistance du composite en compression est supérieure à celle en traction, il n'en va pas de même pour les modules d'Young qui s'équivalent [PREWO et KREIDER 1972].

Sur un composite fibres de bore-Al, le module d'élasticité transversal est fonction croissante de la fraction volumique de fibres. On déterminera donc ce module transversal en utilisant la loi des mélanges.

- Endommagement -

L'endommagement des composites en compression transversale est généralement dû au cisaillement de la matrice associé à des décollements interfaciaux.

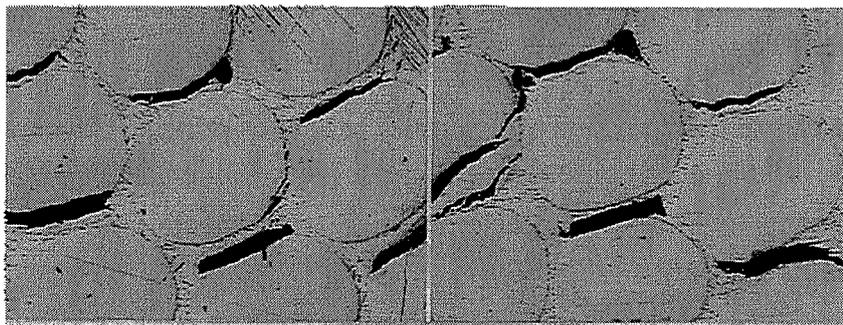
L'endommagement dépend cependant fortement de deux facteurs : la géométrie de l'arrangement des fibres et la fraction volumique de fibres [POOLE et coll. 1994, ZAHL et coll. 1994]:

* D'après POOLE et coll. [1994], pour un composite W/Cu avec $V_f = 30\%$:

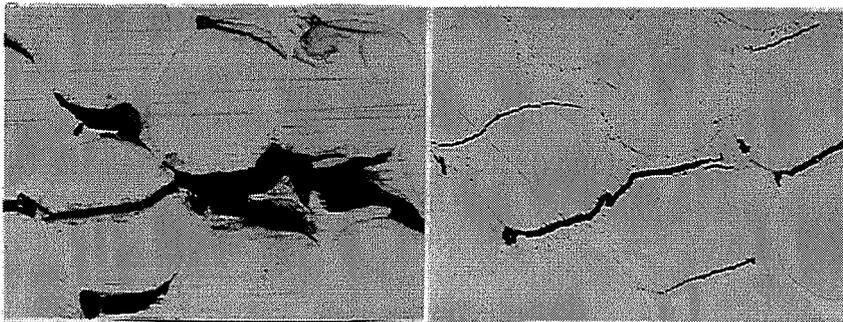
- Avec un arrangement carré, l'endommagement est lié à la rupture des fibres. Les fissures se localisent en périphérie de la fibre. Elles sont orientées parallèlement à l'axe de sollicitation et réparties uniformément dans le composite (*Figure II.36 b*).
- Avec un arrangement hexagonal, l'endommagement se traduit seulement par la décohésion des interfaces fibre-matrice et ceci, préférentiellement dans les régions proches des faces d'appui (*Figure II.36 a*).

* D'après ZAHL et coll. [1994], l'endommagement apparaît dans les régions soumises à de fortes tensions hydrostatiques et déformations plastiques. La localisation de ces régions est fonction de la fraction volumique des fibres. Ainsi, pour un arrangement hexagonal, elles se situent près des interfaces fibre-matrice et sont orientées à 35° pour une V_f égale à 30% et à 55° pour une V_f égale à 80% .

L'observation de la section d'une éprouvette ($\phi = 0,5\text{ mm}$) après compression "arrêtée" montre que l'endommagement du composite se produit à l'intérieur d'une zone "en forme de sablier" (*Figure II.37 a*). Le chemin emprunté préférentiellement par la fissuration suit un plan incliné approximativement à 65° par rapport à l'axe de sollicitation (*Figure II.37 b*). Etant

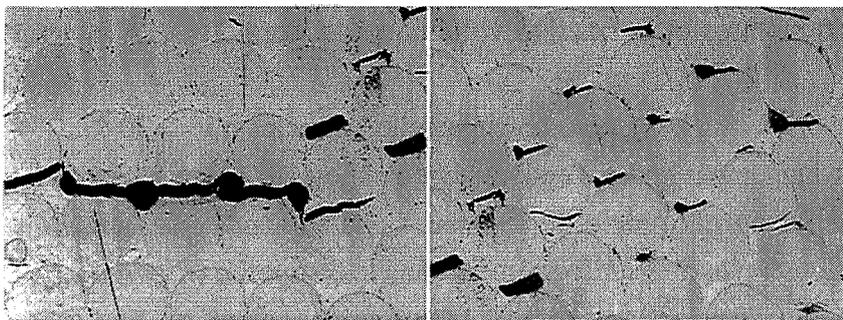


(a) E5 (800°C, 30%)

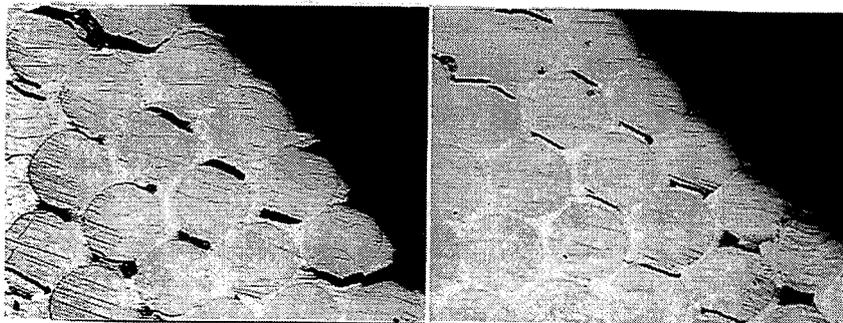


(b) E6 (800°C, 41%)

Micrographies II.42 a et b : Endommagement par compression transversale d'un composite constitué de fils de diamètre 1 mm



(a) Amorce de l'endommagement (sur une éprouvette arrêtée en cours d'essai).



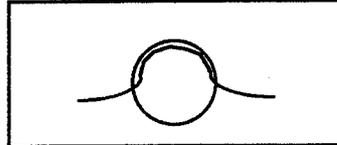
(b) Zone de rupture de l'éprouvette (rompue en deux)

Micrographies II.43 a et b : Endommagement par compression transversale d'un composite constitué de fils de diamètre 0,5 mm : E2 (800°C, 25%)

donné la forte fraction volumique de fils de ce composite (> 83 %), on constate que cet angle est cohérent avec celui établi pour $V_f = 80\%$ par [ZALH et coll. 1994].

L'endommagement se traduit principalement par la fissuration des fils localisée presque toujours près des interfaces W-Ni (*Schéma ci-dessous*), parfois aux interfaces W-Ni et plus rarement aux interfaces Ni-Ni (*Micrographies II.42 a et b*).

L'endommagement des fils affectant essentiellement leur périphérie indique qu'il s'agit d'une rupture de type "rupture cohésive de la fibre près de l'interface". Elle est caractéristique d'une interface fibre-matrice très résistante (liaison interfaciale forte : σ_i^R élevée).



Chaque émission acoustique qui accompagne l'endommagement est donc attribuée à la rupture d'un fil de tungstène.

Remarque : Contrairement à [POOLE et coll. 1994], notre composite de structure quasi-hexagonal subit un endommagement qui ressemble davantage à celui décrit pour un composite W/Cu à arrangement carré. Ceci est peut-être dû à la forte valeur de V_f et à la forte résistance de l'interface W-Ni (comparativement à l'interface W-Cu) (§ I.2.2).

Contrairement à la compression longitudinale, l'endommagement en compression transversale conduit à une rupture franche du composite (rupture en deux morceaux) (*Micrographie II.43 b*). La fissuration s'amorce tout d'abord en différents endroits du composite (dans la zone "en sablier") (*Micrographie II.43 a*). La propagation de la fissure se fait en rejoignant ces points de micro-rupture. Ce mode de propagation est caractéristique d'une rupture par accumulation typique aux composites à forte fraction volumique de fibres (ou faible distance entre fibres) (§ I.4.2). Dans ce cas, la rupture d'une fibre entraîne la rupture des fibres voisines du fait qu'elle introduit un facteur d'amplification de contrainte (k_σ) ou de déformation k_ϵ .

$$k_\epsilon = \frac{\epsilon_{y,local}}{\bar{\epsilon}_{y,appliquée}} = 2 + \frac{s/r}{s/r + 2E_m/E_f}$$

avec s est l'espacement entre fils et r le rayon du fil

Si on applique cette formule à notre composite, on obtient : $k_\epsilon \approx 2,035$

sachant que : $E_m/E_f = 210/380 = 0,55$

$s_{moyen} \approx 20 \mu\text{m}$ et $r = 0,5 \text{ mm}$ d'où $s/r = 0,04$

La probabilité de rupture d'une fibre voisine augmente avec k_σ (pour $k_\sigma > 1$). Pour un arrangement hexagonal, (nombre de premiers voisins = 6), ce facteur est estimé à 1,14-1,17. Pour un arrangement carré (8 premiers voisins), il est un plus élevé : 1,25. De plus, cet effet est augmenté si la fissure s'amorce dans la matrice car intervient alors le facteur d'intensité de contrainte K (mécanique de la rupture).

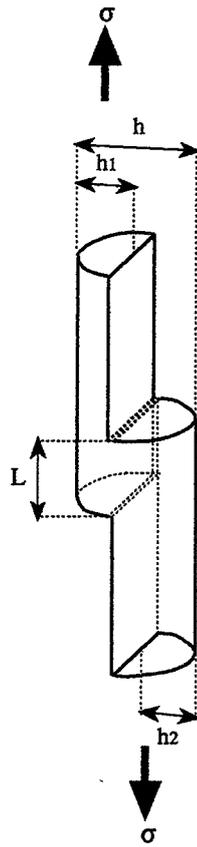


Schéma II.19 : Eprouvette de traction-cisaillement.

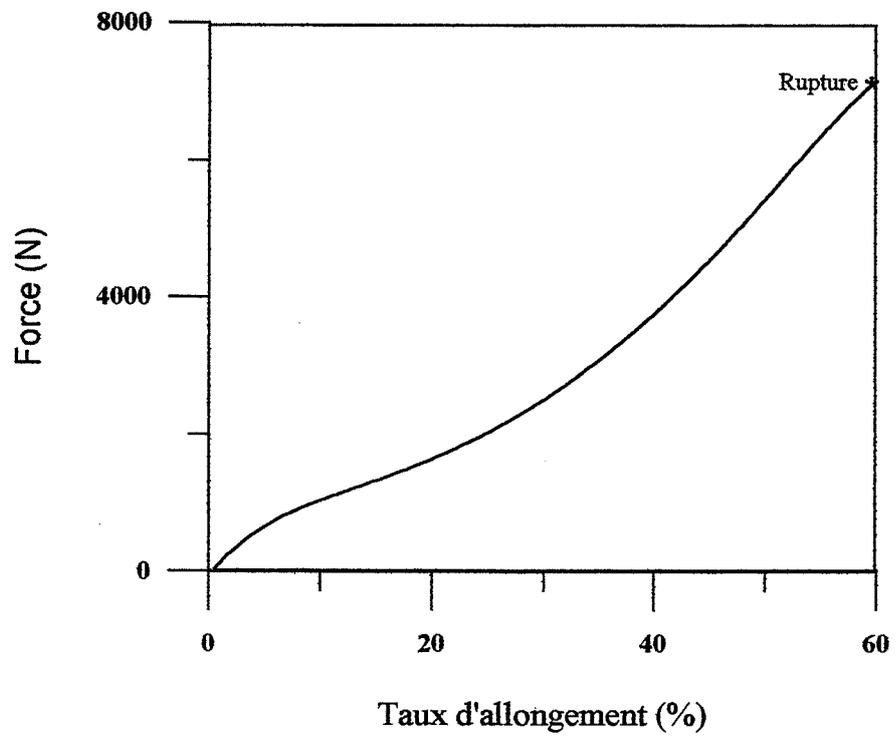


Figure II.38 : Courbe F-e de traction-cisaillement sur le composite F₁.

Si la rupture se produit par l'interface, la résistance du composite (σ_c^t) s'écrit alors :

$$\sigma_c^t = \sigma_i^R V_f + \sigma_m V_m$$

avec σ_i^R résistance de l'interface fibre-matrice

σ_m contrainte sur la matrice

Toutefois ceci ne se produit que très rarement sur notre composite indiquant que l'interface W-Ni a une résistance très élevée et certainement supérieure à celle des fils de tungstène en compression transversale.

II.5.4 - Essais de traction-cisaillement

Cet essai a pour but d'évaluer la résistance du composite au cisaillement et plus précisément celle de la matrice de nickel. Cet essai s'inspire du test de cisaillement par traction à simple recouvrement couramment utilisé pour évaluer les performances mécaniques des assemblages collés. La principale différence entre notre essai et celui des assemblages collés réside dans le fait que la zone sollicitée par le cisaillement n'est pas plane et pas uniquement constituée de "colle" (nickel dans notre cas).

L'éprouvette utilisée pour cette étude est usinée dans un tronçon de composite. Sa forme et ses dimensions sont représentées sur le *schéma II.19*.

L'essai de traction-cisaillement a été réalisé à vitesse de traverse de 0,1 cm/mn avec le composite F₁ dont les caractéristiques sont optimales (fils de 1 mm, 900°C-32 %).

La courbe expérimentale obtenue (F-e) est présentée sur la *figure II.38*.

La résistance du composite à cet essai est exprimée en terme de contrainte moyenne de cisaillement à rupture :

$$\tau_{\text{moyen}}^R = \frac{F^R}{Lh}$$

avec la force à rupture $F^R = 7107 \text{ N}$.

la longueur de recouvrement $L = 4,4 \text{ mm}$

la largeur de recouvrement $h = h_1 + h_2 + e = 7,5 \text{ mm}$

On obtient alors pour le composite W/Ni, une contrainte moyenne de cisaillement à rupture égale à :

$$\tau_{\text{moy}}^R = 215 \text{ MPa}$$

L'observation du faciès de rupture indique qu'il s'est produit (majoritairement) un glissement des fibres donc un cisaillement de la matrice. Cependant sur le faciès de rupture, on observe la rupture transversale d'un ou deux fils de tungstène. Ceci signifie donc que la valeur estimée ci-dessus ne peut être considérée comme une contrainte de cisaillement pure. Elle correspond certainement à une surestimation de la contrainte de cisaillement à rupture du composite.

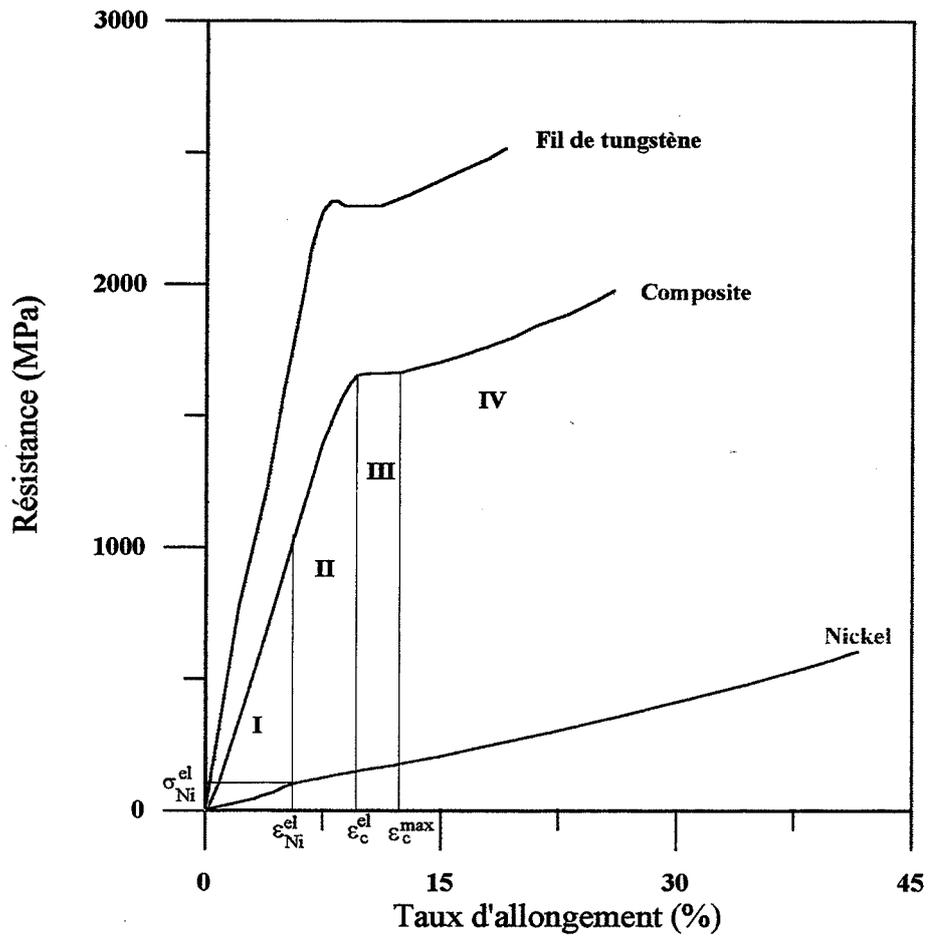


Figure II.39 : Comportement en compression longitudinale du composite (sans gaine) et de ses constituants de base

II.5.5 - Approche micromécanique pour la détermination des propriétés mécaniques du composite

L'approche micromécanique nous permet d'évaluer les principales caractéristiques mécaniques du composite grâce à l'utilisation de la loi des mélanges. Il est ainsi possible d'estimer, entre autres, le module d'élasticité du composite (paramètre que nous n'avons pas pu déterminer expérimentalement) et de prévoir la résistance du composite en traction.

II.5.5 - a - Compression longitudinale

Sur la *figure II.39*, sont représentées les courbes de compression longitudinale obtenues sur le composite (W/Ni) et ses constituants (fil de tungstène et nickel). La loi des mélanges étant applicable en compression [KELLY et TYSON 1965], cette représentation va nous permettre de comparer le comportement mécanique en compression longitudinale du composite avec celui de ses constituants.

Comme nous l'avons fait remarqué au § I.4, la loi des mélanges ne peut s'utiliser que sous certaines conditions dont nous allons vérifier l'adéquation à notre matériau :

- La température d'élaboration du composite étant inférieure à 1000°C, nous évitons tout problème de fragilisation causé par interaction chimique entre les fils de tungstène et la matrice de nickel.
- La deuxième condition concerne la conservation des propriétés mécaniques des constituants après élaboration du composite.

Pour le nickel, du fait de la recristallisation des dépôts de nickel au cours de l'élaboration, on peut considérer que les caractéristiques mécaniques de la matrice sont proches de celles (établies au § II.1) d'un nickel massif.

Pour les fils de tungstène, bien qu'un recuit effectué à 900°C entraîne la recristallisation-polygonisation des fils de tungstène qui se concrétise, d'un point de vue mécanique, par une légère chute de résistance et de ductilité, on peut considérer que l'écart est trop faible pour réellement modifier les propriétés mécaniques des fils. D'autre part, notre étude nous a montré que les fils subissaient au cours du martelage une déformation assez importante caractérisée principalement par une élongation ($\approx 10\%$). Cette élongation entraînant une augmentation du taux d'écroûissage des fils ne peut être considérée comme néfaste aux propriétés mécaniques des fils.

- La troisième condition concerne la qualité structurale du matériau : il ne doit avoir ni porosité, ni décohésion interfaciale et il doit avoir une répartition uniforme des fibres. Tout ceci est obtenu sur notre matériau composite (taux de martelage de 25-30 % et température de mise en forme de 900°C).

Nous pouvons donc utiliser les caractéristiques mécaniques des constituants à l'ambiante établis au § II.1 pour la loi des mélanges.

Pour l'étude du comportement en compression longitudinale du composite, nous procéderons de la même manière qu'en traction longitudinale (§ I.5.2) en décomposant la courbe σ - ϵ en quatre stades :

Stade I : $\epsilon_c \leq \epsilon_m^{el}$: domaine d'élasticité "primaire"

Du fait que notre composite présente une répartition rigoureusement parallèle (grâce à l'angle de torsion qu'on applique sur l'assemblage des fils avant le martelage du composite § II.2) et équi-distante des fibres (déterminée par l'épaisseur du dépôt de nickel sur les fils), il n'est pas nécessaire d'affecter à E_f un coefficient de mise en oeuvre k (§ I.4.2).

Le module d'Young longitudinal "primaire" s'exprime alors selon la loi des mélanges :

$$E_c^I = E_f V_f + E_m V_m$$

Sachant que $E_f = E_{fil \text{ de } W} \approx 350 \text{ GPa}$, $E_m = E_{Ni} = 210 \text{ GPa}$ et $V_f = 0,83$ (tableau II.11 du § II.4), on estime le module d'Young primaire du composite à :

$$E_c^I \approx 326 \text{ GPa}$$

En ce qui concerne la détermination du coefficient de poisson, on peut aussi lui appliquer la loi des mélanges (§ I.4.2) :

$$\nu_c^k = \nu_f V_f + \nu_m V_m$$

Sachant que $\nu_f = \nu_w = 0,28$, $\nu_m = \nu_{Ni} = 0,31$ et $V_f = 0,83$, la valeur du coefficient de poisson du composite est :

$$\nu_c^k = 0,285$$

Stade II : $\epsilon_m^{el} < \epsilon_c \leq \epsilon_f^{el}$: domaine d'élasticité "secondaire"

La rupture de pente qui caractérise ce domaine est difficilement décelable sur les courbes σ - ϵ déterminées expérimentalement du fait de que ce domaine d'élasticité "secondaire" est très étroit. En effet, comme le montre la *Figure II.39*, les valeurs ϵ_m^{el} et ϵ_f^{el} qui délimitent ce domaine sont très proches l'une de l'autre : $\epsilon_m^{el} \approx 6 \%$ et $\epsilon_f^{el} \approx 6,58 \%$.

ϵ_m^{el} et ϵ_f^{el} représentent les déformations associées aux limites élastiques de chacun des constituants : matrice et fibres.

Le module d'Young longitudinal "secondaire" s'exprime selon la loi des mélanges :

$$E_c^{II} = E_f V_f + \left(\frac{d\sigma_m}{d\epsilon} \right) V_m$$

$\left(\frac{d\sigma_m}{d\epsilon} \right)$ représentant la pente de la portion de courbe σ - ϵ de la matrice située dans ce domaine de déformation.

On constate (Figure II.39) que cette portion de courbe est quasi-linéaire et de faible pente comme pour le cuivre (§ I.4.2). On peut donc négliger le second terme et définir le module d'Young "secondaire" de la manière suivante :

$$E_c^{1'} \approx E_f V_f$$

On estime alors la valeur de ce module d'Young "secondaire" à :

$$E_c^{1'} \approx 290 \text{ GPa}$$

Remarque : L'étendue du domaine d'élasticité "secondaire" est une fonction croissante de V_f (§ I.4.2) car ε_c^{el} augmente avec V_f . On vérifie, en effet, ceci avec notre composite à forte fraction volumique de fibre : l'étendue du domaine élastique (en déformation) est légèrement supérieure à celui d'un fil de tungstène.

Stade III : $\varepsilon_f^{el} > \varepsilon_c$: domaine de plasticité

Pour le stade III, se pose la question de la ductilité des fils de tungstène. Nous avons vu, lors des essais de traction à l'ambiante, que les fils de tungstène étaient ductiles. Bien qu'un recuit à 900°C provoque une légère diminution de ductilité, ils conservent encore un caractère ductile (déformation plastique non négligeable (Annexe B) même si on observe parfois l'absence de striction sur les courbes de traction σ - ε pour certains fils recuits 1 heure à 900°C.

On peut donc considérer que le comportement de notre composite en plasticité correspond à celui décrit au § I.4.2 pour un composite à fibres ductiles et forte fraction volumique de fibres.

La contrainte du composite dans ce domaine s'écrit alors :

$$\sigma_c^1 = \sigma_f^1 V_f + \sigma_m^* V_m$$

avec σ_m^* la contrainte mesurée sur la courbe de la matrice (nickel) pour une déformation ε_c et une contrainte σ_c^1 .

Il est alors possible de déterminer la résistance du composite (σ_c^{1max}) sachant que :

$$\sigma_c^{1max} = \sigma_f^{1max} V_f + \sigma_m^* (1 - V_f)$$

avec $\sigma_f^{1max} \approx 2000-2400 \text{ MPa}$ (§ II.1.1-d-), $\sigma_m^* = 148 \text{ MPa}$ pour $\varepsilon = 9,7\%$ et $V_f = 0,83$ soit :

$$\sigma_c^{1max} \approx 1850 \pm 160 \text{ MPa}$$

Expérimentalement (§ II.5.2), on obtenait une résistance égale en moyenne à $1800 \pm 150 \text{ MPa}$. On constate donc une très bonne adéquation entre la résistance théorique donnée par la loi des mélanges et les résultats expérimentaux; nous vérifions ainsi que la loi des mélanges s'applique bien à l'étude de notre composite uniaxial.

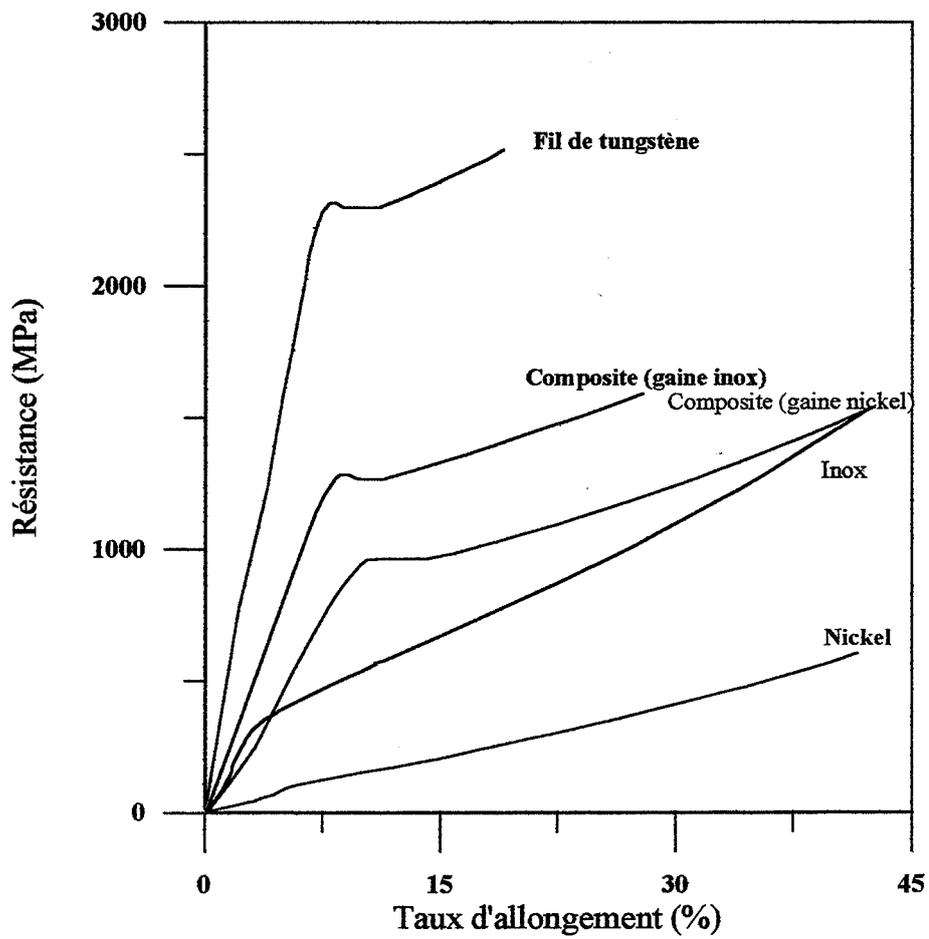


Figure II.40 : Comportement en compression longitudinale du composite avec gaine : inox ou nickel et de ses constituants de base.

Stade IV : Rupture du composite en compression longitudinale

En compression longitudinale, on n'observe pas de manière nette la rupture du composite (ceux exempts de défauts). On peut cependant considérer que la rupture est effective dès qu'apparaît l'endommagement soit dès que $\varepsilon_c > \varepsilon_c^{\max}$ (légère chute de la contrainte - ou palier - avant la remontée due au frottement) avec ε_c^{\max} correspondant à $\sigma_c^{l\max}$ la résistance du composite. La contrainte de rupture correspond alors à la résistance du composite.

Le composite a un comportement mécanique en compression longitudinale semblable à celui du fil de tungstène : il est très faiblement ductile; son domaine plastique se limite à $\sigma_c^{el} < \sigma_c < \sigma_c^{l\max}$.

Comme nous l'avons vu au § I.4.2 (*Figure I.33*), la loi des mélanges peut conduire, avec les composites à forte fraction volumique de fibres ($V_f > 80\%$), à sous-estimer (si durcissement de la matrice) ou sur-évaluer (si endommagement des fils) la résistance du composite (ou contrainte à rupture). En ce qui concerne notre composite ($V_f \approx 83\%$), il ne semble pas que ces effets interviennent étant donnée la bonne adéquation que nous avons entre nos résultats expérimentaux et théoriques.

Remarque :

Sur la figure II.40, nous avons aussi représenté quelques courbes σ - e relatives à des composites avec gaine en inox ou en nickel et les courbes relatives aux constituants de base (nickel, acier inoxydable, fil de tungstène).

II.5.5 - b - Comportement en traction

La résistance en compression d'un composite est différente de celle en traction (§ I.4.3). Comme nous n'avons pas pu effectuer d'essais de traction sur notre composite, nous allons utiliser la loi des mélanges pour estimer sa résistance en traction à partir de la connaissance des caractéristiques mécaniques (en traction) des constituants de base (établies expérimentalement au chapitre II.1).

Nous avons reporté sur la *figure II.41*, les courbes σ - e de traction à l'ambiante obtenues avec les deux constituants de base. On constate de manière surprenante que $\varepsilon_m^{el} > \varepsilon_f^R$ avec $\varepsilon_f^R = 1,5\%$ et $\varepsilon_m^{el} = 7\%$. Ceci implique donc que le composite dont la rupture se produit à $\varepsilon_c = \varepsilon_f^R$ (cas des composites à forte V_f) va rompre à un taux de déformation correspondant au domaine élastique du nickel.

Rappelons toutefois que la courbe relative au nickel correspond à une éprouvette de nickel qui avait subi un pré-écrouissage par martelage (800°C - 35 %). On avait remarqué (§ II.1.2) que ceci se traduisait par une augmentation de la limite élastique (349 au lieu de 40-100 MPa).

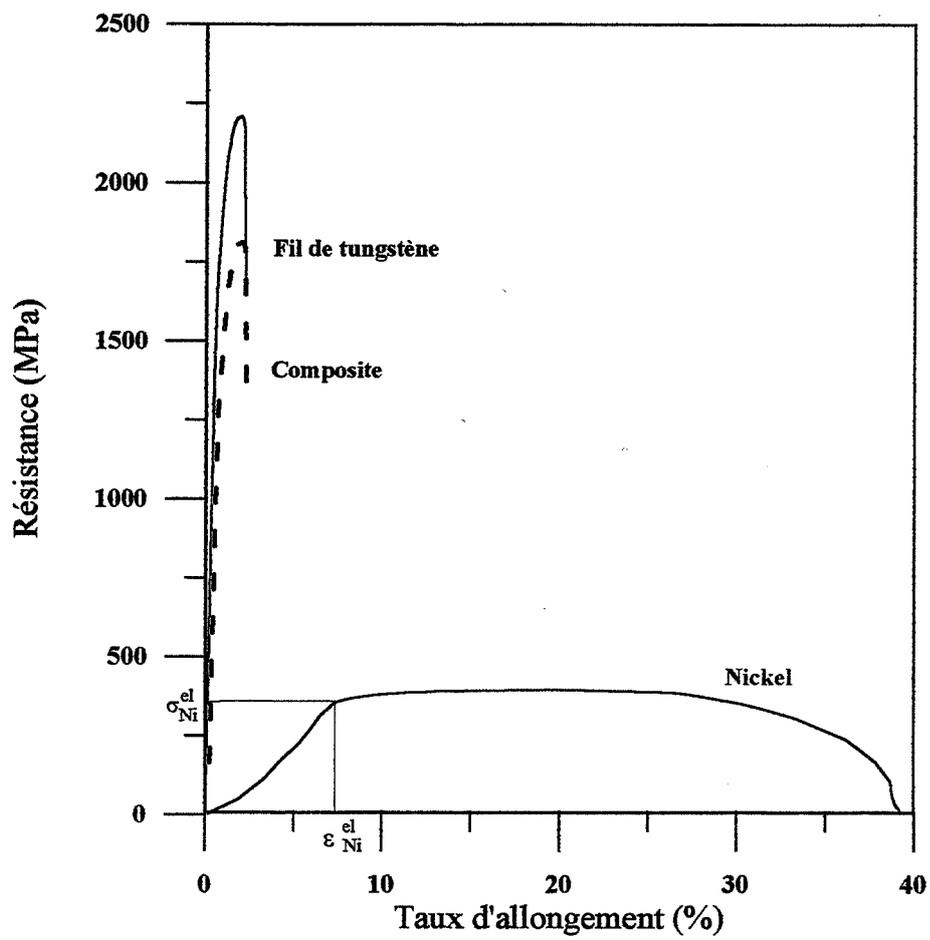


Figure II.41 : Comportement en traction des constituants de base et le comportement supposé du composite (sans gaine)

Quoi qu'il en soit il faudrait une limite élastique pour le nickel inférieure à 40 MPa pour obtenir condition $\epsilon_f^R > \epsilon_m^{el}$.

Stade III : Domaine de plasticité du composite

En utilisant la loi des mélanges on peut alors estimer la résistance du composite en traction qui est égale à :

$$\sigma_c^{lmax} = \sigma_f^{lmax} V_f + \sigma_m^* (1 - V_f)$$

avec σ_f^{max} résistance des fils en traction ≈ 2200 MPa aussi bien à l'état brut ou après recuit à 900°C (Tableau II.2 ou Tableau II.3 du § II.1.1)

σ_m^* contrainte atteinte par le nickel à $\epsilon_f^{max} = 60$ MPa

Le composite ayant une fraction volumique de fibres égale à 83 %, on en déduit alors la résistance en traction du composite :

$$\sigma_c^{max} \approx 1835 \pm 80 \text{ MPa.}$$

Si on compare la résistance du composite en traction avec celle obtenue en compression, on constate que les valeurs obtenues sont proches. L'écart entre traction et compression est donc nettement moins marqué que celui estimé par [KELLY et TYSON 1965] sur un composite W/Cu (écart d'environ 36 % : § I.4.3).

Stade IV : Rupture du composite en traction

En traction, il aurait été plus facile d'évaluer la ductilité du matériau. La ductilité d'un composite à fibres ductiles est une fonction décroissante de V_f (§ I.4.2). Pour une V_f forte (> 80 % [Mc DANELS et coll. 1965]), elle équivaut celle des fibres testées individuellement.

On peut donc présumer qu'en traction, notre composite présente une faible ductilité (≈ 2 %) similaire à celle des fils de tungstène, sa rupture intervenant à $\epsilon_c^R = \epsilon_f^R$.

La contrainte à rupture du composite équivaut alors à :

$$\sigma_c^R = \sigma_f^R V_f + \sigma_m' (1 - V_f)$$

avec σ_f^R contrainte à rupture du fil de tungstène (Tableau II.2 du § II.1) = 1700 MPa (pour les fils non nickelés) et 1990 MPa (pour les fils nickelés).

σ_m' contrainte atteinte par le nickel à $\epsilon_f^R = 2,8$ % soit 88 MPa

On obtient alors :

$$\sigma_c^R = 1546 \pm 120 \text{ MPa}$$

En tenant compte de toutes ces données, nous avons pu tracer sur la *figure III.41* la courbe σ - ϵ représentant le comportement présumé du composite en traction.

II.5.5 - c - Compression transversale

N'ayant pu déterminer expérimentalement les paramètres (module d'Young transversal, module de cisaillement) caractéristiques d'une sollicitation transversale (soit en l'occurrence l'essai de compression transversale), nous utiliserons la loi des mélanges .

Elle nous donne donc les relations suivantes (§ I.4.2-b-):

Pour le module d'Young transversal,
$$\frac{1}{E_c^t} = \frac{V_f}{E_f} + \frac{(1-V_f)}{E_m}$$

Pour le module de cisaillement,
$$\frac{1}{G_c^u} = \frac{V_f}{G_f} + \frac{(1-V_f)}{G_m}$$

Toutefois, comme ces relations supposent que les contraintes sont uniformes entre la matrice et les fibres ($\sigma_f^t = \sigma_m^t$), elles fournissent une sous-évaluation de ces paramètres.

On préférera alors les relations semi-empiriques de Halpin Tsai. Elles supposent que la contrainte exercée sur le nickel est inférieure à celle exercée sur les fibres et tiennent compte, par l'intermédiaire de k , de l'arrangement des fibres au sein du composite (§ I.4.2-b-) :

L'expression du module d'Young transversal devient:
$$\frac{1}{E_c^t} = \frac{1}{V_f + \eta_t(1-V_f)} \left[\frac{V_f}{E_f} + \eta_t \frac{(1-V_f)}{E_m} \right]$$

Module de cisaillement :
$$\frac{1}{G_c^u} = \frac{1}{V_f + \eta_u(1-V_f)} \left[\frac{V_f}{G_f} + \eta_u \frac{(1-V_f)}{G_m} \right]$$

Les valeurs de η_t et de η_u ne sont pas connues avec précision car elles dépendent de nombreux facteurs dont les caractéristiques mécaniques des constituants. Elles sont toutefois comprises entre 0 et 1.

En prenant les valeurs extrêmes (0,1 et 0,9), on peut déterminer les bornes inférieures et supérieures. On estime alors que :

$$317 \leq E_c^t \leq 345 \text{ GPa}$$

$$152 \leq G_c^u \leq 172 \text{ GPa}$$

avec $E_f = 350 \text{ GPa}$, $E_m = 210 \text{ GPa}$, $G_f = 177 \text{ GPa}$, $G_m = 77 \text{ GPa}$ (Annexe A)

Quant au coefficient de Poisson ν_u , on le détermine grâce à la relation suivante (§ I.4.1) :

$$\frac{1}{G_c^u} = \frac{2(1-\nu_u)}{E_c^t}$$

En prenant comme valeur moyenne pour G_c^u 162 GPa, on obtient :

$$\nu_u = 0,02$$

- Conclusion -

Les principales caractéristiques mécaniques du composite (W/Ni) sont résumées dans le *tableau II.25*. Ces données nous permettent alors de déterminer les coefficients du tenseur de complaisance qui définit le comportement du composite en élasticité (voir § I.4.1) dont les principaux termes valent :

$$\frac{1}{E_c^I} = 3,07.10^{-3}$$

$$\frac{1}{E_c^t} = 3,02.10^{-3}$$

$$\frac{\nu_{lt}}{E_c^I} = 8,74.10^{-4}$$

$$\frac{\nu_{tl}}{E_c^t} = \frac{\nu_{lt}}{E_c^I} \text{ d'où } \nu_{tl} = 0,289$$

$$\frac{1}{G_c^{tt}} = 6,17.10^{-3}$$

Le seul terme que nous n'avons pas pu déterminer est G_c^{lt} le module de glissement dans le plan contenant l'axe d'isotropie du composite.

	Module d'Young "primaire" E_c^I (GPa)	Module d'Young "secondaire" E_c^{II} (GPa)	Résistance en compression σ_c^I (MPa)	Résistance en traction R_c (MPa)	Contrainte à rupture en traction σ_c^R (MPa)	Module d'Young en compression transversale E_c^t (GPa)	Module de cisaillement G_c^{tt} (GPa)	Coefficient de poisson ν_{lt}	Coefficient de poisson (cisaillement) ν_{tt}
Matériau composite W/Ni	326	290	1850 ± 160	1835 ± 80	1546 ± 120	331	162	0,289	0,02

Tableau II.25 : Principales caractéristiques mécaniques du composite (W/Ni)

- CONCLUSION -

Les caractéristiques des matériaux de base (fils de tungstène, nickel et acier inoxydable) nous ont permis d'obtenir les données nécessaires pour l'élaboration et les caractéristiques mécaniques du matériau composite.

Les fils de tungstène de diamètre 1 mm ont une résistance en traction (à l'ambiante) de 2150-2300 MPa, en compression longitudinale de ≈ 2000 -2400 MPa et en compression transversale de ≈ 7600 N. Ils sont faiblement ductiles (≈ 2 % maximum).

Les essais de traction à chaud ou à l'ambiante après recuit effectués sur ces fils ont montré la nécessité de limiter la température de mise en forme du matériau composite pour éviter la réaction interfaciale : Recristallisation des fils de tungstène Induite par le nickel (R.I.).

Ce phénomène que nous étudierons plus largement au chapitre III est, en effet, très dommageable pour les fils qui deviennent extrêmement fragiles.

En ce qui concerne l'élaboration du matériau composite (utilisation de deux machines à marteler (2 et 4 marteaux)), nous avons fait varier les paramètres température de mise en forme et taux de martelage afin de déterminer les conditions optimales pour l'obtention d'un composite sans porosité et sans endommagement.

Malgré la complexité des déformations (torsion longitudinale et radiale, hétérogénéité de déformation entre le coeur et la périphérie du barreau) induites par le martelage rotatif, nous avons prouvé qu'il était possible d'obtenir un matériau composite parfaitement bien soudé. Toutefois, les paramètres (angle de prétorsion, taux de martelage) définis pour le martelage à 2 marteaux doivent être légèrement augmentés pour le martelage à 4 marteaux en raison d'une différence d'intensité de déformation entre les deux machines : la machine à 4 marteaux donne lieu, pour un même taux de martelage, à des torsions plus prononcés alors même que le maintien automatisé de l'éprouvette aurait dû les atténuer.

La complexité de l'évolution des composantes de torsion, de déformation en fonction du taux de martelage ne nous a pas permis de définir un modèle d'évolution des champs de contraintes et de déformations.

L'étude microstructurale des composites a permis de caractériser l'état microstructural des interfaces W-Ni, Ni-Ni, gaine-(W/Ni) ainsi que d'évaluer les déformations et dommages causés par le martelage en fonction du taux de martelage et de la température de mise en forme.

Cette étude sur la qualité microstructurale du composite nous a permis de déterminer les paramètres optima pour la mise en forme :

$23 \% < \epsilon_M < 35 \%$ $T_M = 900^\circ\text{C}$
--

Les essais de compression longitudinale effectués sur le composite ont confirmé le choix de ces paramètres. Les mesures de résistance du composite (sans gaine) à un tel essai se sont avérées très bonnes puisque de l'ordre de 1800 MPa et reproductibles. Malgré l'utilisation pour la gaine d'un acier performant, nous avons pu constater la différence de résistance entre le composite testé sans gaine et avec gaine (écart de 500 MPa pour une épaisseur initiale du container de 2 mm).

Nous avons pu aussi montrer la faible sensibilité du composite à la vitesse de déformation (le coefficient de sensibilité $m \approx 0,01$).

Les essais de compression transversale ont permis de montrer l'anisotropie des caractéristiques mécaniques du composite. Quant à l'essai de cisaillement, il a prouvé la forte résistance des interfaces W-Ni et la bonne résistance au cisaillement du nickel.

Mais pour la détermination des propriétés mécaniques (résistance en traction, module d'Young, composantes élastiques), nous avons dû avoir recours à la loi des mélanges qui fournit une assez bonne estimation de ces valeurs pour un composite à fibres continues.

L'étude que nous avons menée sur l'endommagement du composite a montré qu'il s'initiait en premier lieu dans les fils de tungstène par une légère fissuration dont la propagation est stoppée par l'interface W-Ni. Contrairement à la plupart des composites, les interfaces fibre-matrice résistent parfaitement à l'endommagement : peu de décohésions induites par propagation des fissures.

Pour un taux de compression plus important ($\tau_c > 20 \%$), les fissures plus importantes finissent par rompre les ponts de matrice (entre les fils) et se propagent de fil en fil en provoquant une rupture en cascade des fils, mode de rupture typique d'un composite à forte fraction volumique de fibres ($V_f \approx 83 \%$).

CHAPITRE III

RÉACTION INTERFACIALE

ENTRE LE TUNGSTÈNE

ET LE NICKEL

III.1 - INTRODUCTION

Ce chapitre précédé d'une synthèse bibliographique, est consacré à l'étude de la réaction interfaciale W-Ni qui donne lieu à une **Recristallisation** des fils de tungstène **Induite** par le nickel (**R.I.**).

Cette recristallisation s'initie près de l'interface W/Ni avec l'apparition de petits grains de forme équiaxe. La croissance et la multiplication de ces grains entraînent la formation d'un anneau de recristallisation qui se propage radialement vers le coeur du fil (§ II.1.1).

Ce phénomène très spécifique aux fils de tungstène nickelés est assez mal connu. Nous chercherons donc à mieux comprendre les mécanismes et forces motrices qui induisent un tel phénomène au travers d'une étude comparative entre le phénomène de R.I. et différentes données bibliographiques concernant des phénomènes proches : frittage W-Ni, D.I.G.M. (phénomène de migration de joints de grains induite par une diffusion intergranulaire), D.I.R. (phénomène de recristallisation en surface des échantillons lié à la D.I.G.M.), diffusion sur joints mobiles.

L'étude du phénomène de R.I. sur les fils de tungstène se fera au travers de celle de l'interdiffusion entre le fil de tungstène et le dépôt de nickel, de la propagation de la région recristallisée et de la croissance des grains de notre phénomène de R.I. en fonction de la température (1100-1400°C) et du temps de recuit (1-5 heures).

Cette analyse nous permettra alors de proposer un schéma expliquant de manière détaillée le processus qui conduit à cette recristallisation des fils de tungstène.

III.2 - SYNTHÈSE BIBLIOGRAPHIQUE

L'interaction physico-chimique du nickel avec le tungstène est un phénomène connu et recherché dans le domaine de la métallurgie des poudres car il permet une accélération du processus de frittage. La compréhension des mécanismes mis en jeu au cours du frittage nous permettra de cerner les forces motrices qui peuvent régir le phénomène de Recristallisation Induite des fils de tungstène nickelés (R.I.). En effet, pour certains [GESSINGER-FISHMEISTER 1972, KOZMA-HENING 1982, MOON-OH-KIM 1989], la R.I. est un phénomène similaire au frittage en phase solide.

III.2.1 - Rôle du nickel dans le cadre du frittage W/Ni

L'effet bénéfique du nickel se manifeste aussi bien lors d'un frittage en phase liquide que lors d'un frittage en phase solide. L'accélération du frittage résulte d'une accélération de la phase de densification (ou coalescence des nodules) due à la présence d'une seconde phase qui constitue un court-circuit facilitant le transport de matière [GERMAN 1984] : la seconde phase (Ni) étant soit liquide soit à l'état solide (cinétique de densification plus rapide avec le frittage en phase liquide).

- Frittage en phase liquide -

Au cours du frittage en phase liquide d'alliages lourds type W/Ni, la coalescence procède soit par migration d'un joint liquide soit par dissolution des petits nodules. Elle est gouvernée par deux processus que sont la dissolution-reprécipitation du tungstène (processus moteur) et la diffusion du tungstène dans la phase liquide (processus limitant).

La force motrice résulte d'une différence de potentiel chimique (ou de composition) entre les grains en cours de dissolution et la solution solide en cours de croissance [HILLERT, KOZMA-HENING 1982, GERMAN 1985]. Elle dépend donc fortement de la solubilité du métal solvant (le tungstène) dans la phase liquide (le nickel).

Signalons que, dans le cas particulier de la migration d'un film liquide, la loi de croissance ($R(t) = t^{1/n}$ ou $R^n - R_0^n = kt$) est fonction de l'épaisseur du film ou, plus précisément, du volume de phase liquide présent au joint [KANG-YOON 1978, YOON-HUPPMAN 1979 bis, YOON-HUPPMAN 1979] :

- si le joint est mince, la cinétique de croissance est gouvernée par la dissolution-reprécipitation (réaction d'interface : $n = 2$)
- si le joint est épais, la cinétique de croissance est alors freinée par le mécanisme de diffusion du solvant dans la phase liquide et l'exposant n tend vers 3.

D'après HILLERT [1983], la force motrice responsable de la migration du joint liquide est de nature chimique et résulte de l'énergie élastique de cohérence qu'engendre l'effet de distorsion de la maille du tungstène par les atomes de nickel lorsqu'ils diffusent à partir du joint dans un grain adjacent. Elle est donc fonction de la différence de concentration (ΔC) entre le tungstène pur et la solution solide W(Ni):

$$\Delta G_c = \frac{E V_m \eta^2}{1 - \nu} (\Delta C)^2$$

E module d'Young, ν coefficient de poisson, η écart au paramètre de maille, V_m volume molaire.

- Frittage en phase solide -

Pour le frittage en phase solide, plusieurs modèles ont été proposés : modèle basé sur la configuration électronique, modèle basé sur la dissolution-reprécipitation à l'état solide mais le plus probable semble celui basé sur la diffusion [GERMAN 1983].

L'accélération de la densification résulterait d'une augmentation de l'autodiffusion intergranulaire du tungstène dans un joint enrichi en nickel (joint formant le contact entre deux nodules) : la présence de nickel au joint ayant pour effet d'augmenter la vitesse de diffusion intergranulaire du tungstène [SCHINTLMEISTER-RICHTER 1970 cités par GESSINGER-FISHMEISTER 1972, GERMAN 1983].

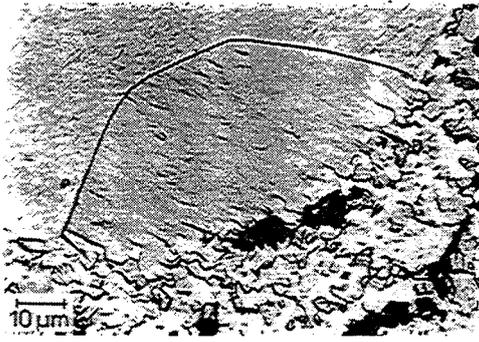
Un tel processus ne peut se produire que si le système vérifie un certain nombre de critères [GERMAN 1983] :

- Le métal-solvant (tungstène en l'occurrence) doit avoir une solubilité **non nulle** dans la phase liante (nickel en l'occurrence) à la température de frittage.
- La phase liante ne peut fournir un chemin de court-circuit pour la diffusion du métal-solvant que si elle reste confinée entre les nodules de solvant. Le métal-liant doit donc avoir une très faible solubilité dans le métal-solvant.
- Le métal-solvant doit, de plus, avoir une diffusivité dans la phase liante supérieure à son autodiffusivité. Ceci nécessite une grande différence entre les températures de fusion des deux métaux.

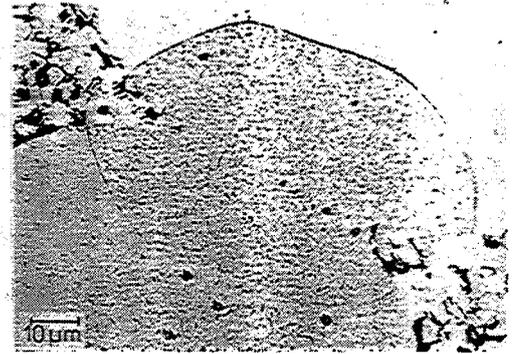
De tous les systèmes, le système W/Ni est celui qui satisfait au mieux ces conditions. Ceci explique alors le fait que l'accélération du frittage soit plus spectaculaire avec ce système qu'avec tout autre [GERMAN 1987].

Phénomène de coalescence par frittage en phase solide

L'accélération de la densification se traduit sur un mélange de poudres : poudre de nickel et deux types de poudres de tungstène caractérisées par une taille de particules différente par PETZOW et coll. [1980-81] :



(a) Germination et croissance d'un grain à l'intérieur d'une grosse particule



(b) Croissance de nouveaux grains dans chaque particule symétriquement au joint d'origine

Figures III.1 a et b : Germination et croissance de nouveaux grains par migration d'un joint de grain au cours du frittage en phase solide du système W/Ni [Kaysser-Petzow 1981]

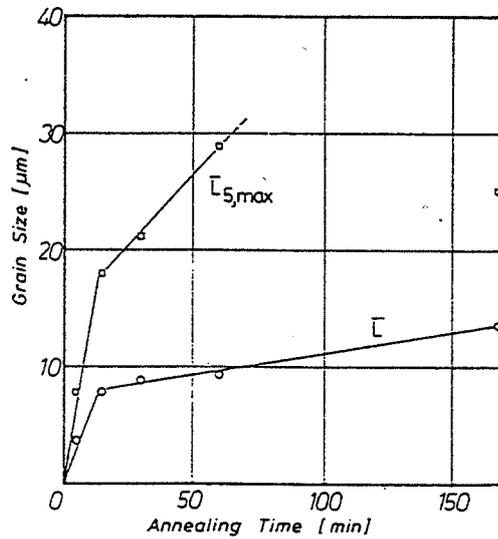


Figure III.2 : Croissance des nouveaux grains à 1380°C [Kaysser-Petzow 1981]

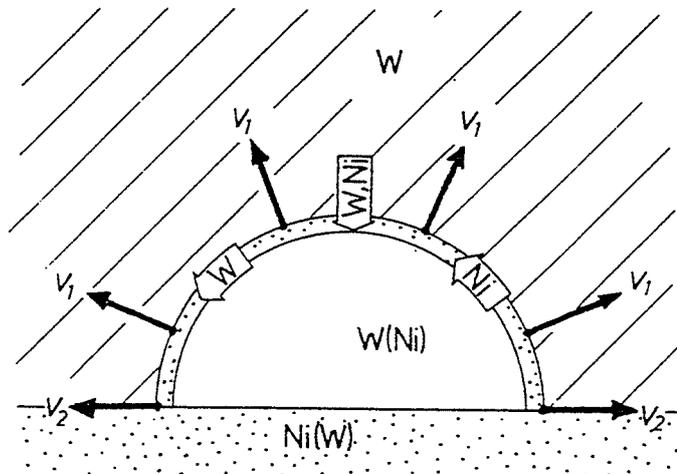


Figure III.3 : Schématisation de la diffusion et migration du joint au cours du frittage en phase solide [Kaysser-Petzow 1981]

- La germination de nouveaux grains au niveau de la zone de contact entre deux particules de tungstène. La germination résulte de la formation et la migration d'un nouveau joint (*Figure III.1 a*).
- La croissance, obtenue par migration du joint solide, est soit unidirectionnelle (du côté de la plus grosse particule) si le contact a lieu entre un gros nodule et une fine particule (*Figure III.1 a*) soit bidirectionnelle si le contact se fait entre deux nodules de même taille : les deux joints migrent alors à la même vitesse, chacun dans un nodule (*Figure III.1 b*).
- Pour un temps de recuit très long, certains de ces grains disparaissent par migration inversée du joint.

Cinétique de croissance des nouveaux grains

La cinétique de croissance (ou de migration des joints) se décompose en deux temps : après une croissance initiale très rapide, on obtient une évolution linéaire, plus lente de la croissance des grains avec le temps de recuit (*Figure III.2* : $\bar{L}_{5\max}$ représentant une moyenne des plus grandes distances de migration donne une meilleure représentation de la croissance que \bar{L} car cette valeur tient compte de la régression de certains grains).

Forces motrices

En ce qui concerne les forces motrices [PETZOW et coll. 1981] :

- Pour la recristallisation, la force motrice serait liée à l'énergie d'écroissage localisée à l'intérieur des nodules près de la zone de contact sur un rayon r_1 .

Cet écroissage proviendrait de la compression des poudres avant frittage : PETZOW et coll. [1980] ayant montré qu'une trop faible pression n'induisait pas la germination de nouveaux grains lors du frittage.

$$\begin{aligned} \delta G_R &\approx \frac{1}{2} Gb^2 (\rho_1 - \rho_0) \\ &\approx Gb^2 \frac{\rho_1}{2r_1} (r_1 - r) \text{ si on considère une décroissance de l'énergie} \\ &\text{d'écroissage entre la zone de contact et } r = r_1. \end{aligned}$$

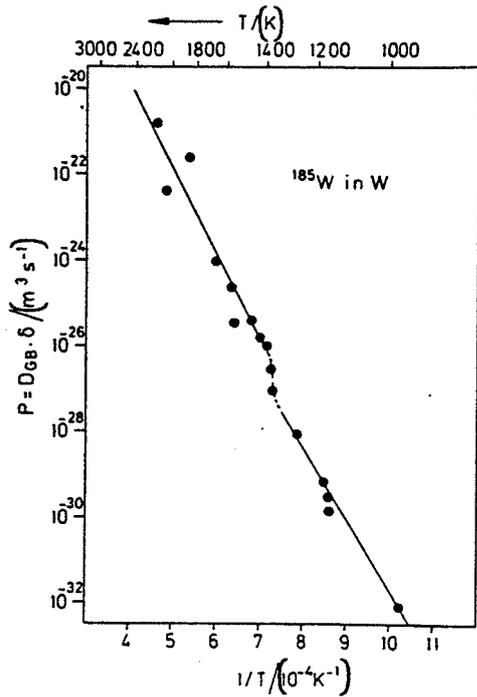
avec $\rho_1 - \rho_0$: différence de densités de dislocations entre la zone écroie et le reste de la sphère de tungstène.

(Gb^2) l'énergie d'écroissage (G le module de cisaillement, b le vecteur de Burgers).

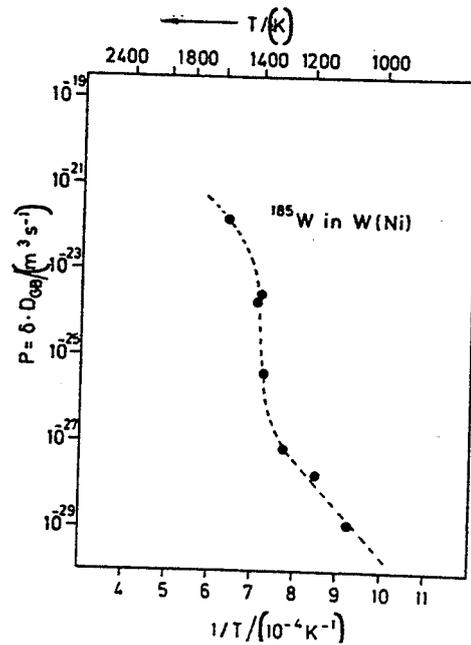
- Pour la croissance des grains (ou migration des joints), la force motrice dominante serait l'énergie de mélange (δG_m) liée à la formation d'une solution solide (*Figure III.3*).

Pour une solution régulière :

$$\delta G_m = \frac{-RT}{1 - 2X_{Ni}} \left[X_{Ni}^2 \ln X_{Ni} - (1 - X_{Ni})^2 \ln(1 - X_{Ni}) \right]$$



(a) Autodiffusion intergranulaire du W dans le W



(b) Autodiffusion intergranulaire du W dans W(Ni)

Figures III.4 a et b : Loi d'Arrhénius traduisant la diffusivité intergranulaire du tungstène :

(a) dans du tungstène pur

(b) dans du tungstène en présence de nickel aux joints.

[Lee-Klockgeter-Herzig 1990]

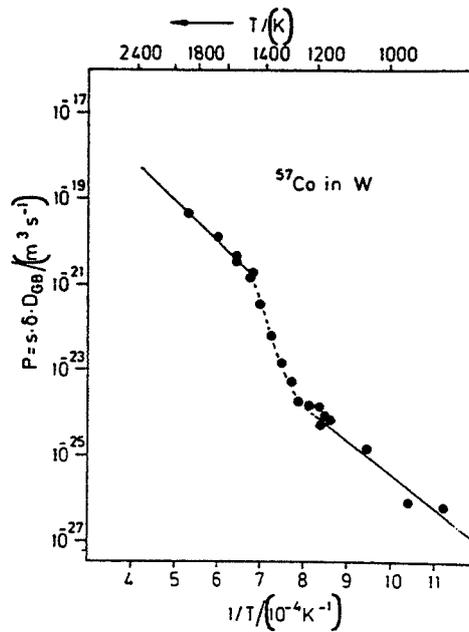


Figure III.5 : Loi d'Arrhénius traduisant l'hétérodifusivité intergranulaire du cobalt dans le tungstène [Lee-Klockgeter-Herzig 1990]

- La disparition des grains se produit lorsque la force de freinage liée à la courbure du joint devient prépondérante : $\delta G_f = \frac{2\gamma_j}{r}$

La vitesse de migration des joints dépend alors de la variation d'énergie libre :

$$\Delta G = \int_v \delta G_f - \delta G_R - \delta G_m$$

Reste à savoir sous quelle forme se trouve le nickel au joint. Deux hypothèses ont été suggérées :

- Soit sous la forme d'un film fin (ayant les propriétés d'un nickel massif) dans lequel le tungstène diffuserait par diffusion volumique.
- Soit sous forme d'impuretés ségréguées qui augmenteraient la diffusion intergranulaire du tungstène.

D'après les observations de [GESSINGER-FISCHMEISTER 1972], la seconde hypothèse serait la plus probable.

III.2.2 - Accélération de l'autodiffusion intergranulaire du tungstène en présence de nickel aux joints

L'accélération du frittage en phase solide étant basée sur une accélération de l'autodiffusion du tungstène dans les joints de grains riches en nickel, nous présentons quelques données bibliographiques sur la diffusion intergranulaire dans le tungstène.

- * Concernant l'autodiffusion intergranulaire du tungstène, il est à noter qu'elle présente une anomalie à la loi d'Arrhénius (brisure du graphe) qui se manifeste vers 1100°C (= 0,37. T_f^w) :

$$P_w^w = \delta D_j^w \propto \exp(-Q_w^w/T) \quad (\text{Figure III.4 a})$$

Remarque : L'autodiffusion volumique du tungstène présente, elle aussi, une anomalie (brisure) à la loi d'Arrhénius : les coefficients de diffusion à basses températures sont supérieurs à ceux obtenus par extrapolation des données à hautes températures [PHILIBERT 1975-90, LESAGE-HUNTZ 1977].

- * En présence de nickel aux joints des grains, cette anomalie persiste (Figure III.4 b) mais en comparant les valeurs de diffusivité, on constate que l'autodiffusivité du tungstène est plus rapide (et ce quelle que soit la température) lorsque les joints des grains sont riches en nickel [LEE-KLOCKGETER-HERZIG 1990].

Signalons que les valeurs de diffusivité ont été obtenues sur des polycristaux de tungstène (la présence de nickel aux joints des grains est obtenue après un recuit (1200°C-10 h) sur un polycristal recouvert de nickel).

Température (°C)	D_v^W (cm ² /s)	P_W^W (cm ³ /s)	$P_W^{W(Ni)}$ (cm ³ /s)	$P_W^{W(Ni)}/P_W^W$	$D_v^{Co(W)}$ (cm ² /s)	P_{Co}^W (cm ³ /s)	P_{Co}^W/P_W^W
827	$4,3 \cdot 10^{-27}$	$7,1 \cdot 10^{-25}$	$2,2 \cdot 10^{-23}$	31	$6,1 \cdot 10^{-20}$	$1,9 \cdot 10^{-19}$	$2,7 \cdot 10^5$
1327	$2,8 \cdot 10^{-19}$	$4,5 \cdot 10^{-19}$	$2,2 \cdot 10^{-16}$	489	10^{-13}	$5,9 \cdot 10^{-15}$	$1,3 \cdot 10^4$

Tableau III.1 : Coefficient de diffusion volumique et diffusivité intergranulaire du tungstène
[Lee-Klockgeter-Herzig 1990]

Le tableau III.1 permet de comparer les valeurs obtenues à deux températures : 1327°C et 827°C (l'une supérieure et l'autre inférieure à la température critique de 1100°C).

On remarque ainsi que l'accélération de l'autodiffusion se manifeste indépendamment de la température (en moindre proportion, toutefois, à basse température) :

$$\text{A } 827^{\circ}\text{C, } P_{\text{W}}^{\text{W(Ni)}} = 31.P_{\text{W}}^{\text{W}}$$

$$\text{A } 1327^{\circ}\text{C, } P_{\text{W}}^{\text{W(Ni)}} = 489.P_{\text{W}}^{\text{W}}$$

Avec un fritté au lieu d'un polycristal, les rapports sont les suivants pour une température de 1000 et 1100°C [GESSINGER-FISCHMEISTER 1972 : par extrapolation des données de SCHINTLMEISTER-RICHTER 1970] :

$$\text{A } 1000^{\circ}\text{C, } D_{\text{j}}^{\text{W(Ni)}} = 900.D_{\text{j}}^{\text{W}}$$

$$\text{A } 1100^{\circ}\text{C, } D_{\text{j}}^{\text{W(Ni)}} = 2000.D_{\text{j}}^{\text{W}}$$

avec $D_{\text{j}}^{\text{W(Ni)}}$ coefficient d'autodiffusion du tungstène radioactif dans du tungstène dopé au nickel.

D_{j}^{W} coefficient d'autodiffusion du tungstène radioactif dans du tungstène pur.

Ces valeurs sont surévaluées par rapport à celles établies précédemment par Lee-KLOCKGETER-HERZIG mais nous pouvons difficilement en conclure que l'accélération de l'autodiffusion est plus efficace sur un fritté que sur un polycristal du fait qu'il peut exister une erreur liée à l'extrapolation.

Ces données confirment cependant que la présence de nickel accélère l'autodiffusivité intergranulaire du tungstène.

* Pour une **hétérodiffusion** intergranulaire (diffusion de cobalt dans un polycristal de tungstène recristallisé), l'anomalie persiste encore et se produit à la même température critique (1100°C) (Figure III.5). Dans ce cas, le terme de diffusivité intergranulaire doit tenir compte de la ségrégation du cobalt : $P_{\text{Co}}^{\text{W}} = S\delta D_{\text{j}}^{\text{Co}}$ (S le facteur de ségrégation).

Entre l'hétérodiffusion du cobalt et l'autodiffusion du tungstène, on a un rapport de coefficients de diffusivité de l'ordre de 10^4 à 10^5 . Cet écart provient à la fois d'une différence de coefficient de diffusion intergranulaire (D_{j}^{Co} et D_{j}^{W}) mais aussi du facteur de ségrégation.

Les propriétés du nickel étant voisines de celles du cobalt, on peut s'attendre à observer une diffusivité similaire pour le nickel dans le tungstène (recristallisé) soit un rapport :

$$P_{\text{Ni}}^{\text{W}}/P_{\text{W}}^{\text{W}} \approx P_{\text{Co}}^{\text{W}}/P_{\text{W}}^{\text{W}} \approx 10^4$$

Rappelons que la diffusion intergranulaire du cobalt dans un fil de tungstène provoque tout comme le nickel une réaction interfaciale de type diffusion-recristallisation [PETRASEK-WEETON 1964, § I. 2.2]. Pour un même recuit (1200°C-1 h), ces deux éléments ont une même profondeur de pénétration mais pour que le phénomène ait lieu, la concentration en nickel

doit être supérieure à celle du cobalt. De plus, comparativement au cobalt, le nickel induit une recristallisation à grains plus grossiers.

Toutefois, il reste que les mécanismes qui conduisent à l'accélération de l'autodiffusion intergranulaire du tungstène en présence de nickel sont assez mal compris :

Pour HERZIG et *Coll.* [1990], elle résulterait de la formation de paires d'atomes W-Ni dont la mobilité aux joints serait supérieure à celle des atomes de tungstène, la probabilité de former ces paires d'atomes augmentant avec la quantité de nickel aux joints.

- Pour d'autres, l'augmentation de la diffusivité intergranulaire serait liée à la mobilité des joints (voir § III.2.3)

- Conclusion partielle -

Ces données bibliographiques montrent que l'interaction W/Ni réside dans le fait que le nickel a un rôle de catalyseur vis à vis du processus d'autodiffusion intergranulaire du tungstène. On peut donc s'attendre à ce que le phénomène de recristallisation induite (R.I.) observé sur les fils de tungstène relève du même mécanisme de base : la cinétique de croissance des grains serait alors gouvernée par l'autodiffusion intergranulaire du tungstène.

La recristallisation induite présente, en effet, de nombreux points communs avec le frittage en phase solide : domaine de température identique où le nickel est à l'état solide, germination et croissance de nouveaux grains, présence d'une énergie d'écrouissage.

En outre, la microstructure fibreuse fortement texturée des fils de tungstène peut jouer un rôle important sur les mécanismes de diffusion notamment en raison de la forte énergie d'écrouissage qu'elle renferme sous forme de sous-grains.

La croissance des grains par R.I. mettant en jeu un phénomène de migration des joints de grains, nous nous sommes intéressés au phénomène de D.I.G.M. (sigle anglo-saxon désignant la migration de joints de grains induite par hétérodifusion intergranulaire) auquel certains articles consacrés au frittage (en phase solide) font référence.

III.2.3 - Phénomènes de D.I.G.M. et de D.I.R.

Le phénomène de "**D.I.G.M.**" (Diffusion Induced Grain Boundaries Migration), découvert en 1938 par RHINES et MONTGOMERY, se manifeste sur des polycristaux mis au contact d'une autre source métallique et se caractérise par une migration des joints de grains sous l'effet de la diffusion intergranulaire des atomes de la source métallique.

Ce phénomène apparaît assez contradictoire avec la notion de ségrégation d'impuretés qui, généralement, ont tendance à restreindre la migration des joints plutôt que de la favoriser [LÜCKE-DETERT 1957].

Ce phénomène qui a suscité l'intérêt des chercheurs dans les années 70-90 concerne un assez grand nombre de systèmes binaires (parfois ternaires). On en dénombre, à ce jour, une quarantaine environ dont W/Cr [DEN BROEDER 1972], Au/Cu ou Ag [BALLUFFI et coll. 1981-82], Ni/Fe ou C [PARTHASARATHY-SHEWMON 1983], Ni/Zn [PREDEL-GUST et coll. 1988], Fe/Zn [HILLERT et coll. 1978-81], Cu/Zn [BALLUFFI et coll. 1979, KING et coll. 1988], alliage Ni-19,4 % at Pd/Cu [MA-LAUB et coll. 1992].

Le phénomène de Recristallisation Induite observé sur le fil de tungstène nickelé n'a jamais été cité comme un cas de D.I.G.M. Seul le frittage en phase solide de poudres (W/Ni) a été assimilé par certains au phénomène de D.I.G.M. [PETZOW et coll.].

Parallèlement au phénomène de D.I.G.M. et seulement sur quelques systèmes (une douzaine environ : Cu/Zn, Ni/Zn, Fe/Zn...), un autre phénomène peut apparaître : la "**D.I.R.**" (Diffusion Induced Recrystallization). Il correspond à l'apparition de petits grains recristallisés près de la surface de l'échantillon mise en contact avec une source métallique.

Pour une meilleure compréhension des mécanismes et forces motrices mis en jeu, nous indiquons, dans le paragraphe suivant, les principaux éléments qui caractérisent ces deux phénomènes.

III.2.3 - a - Phénomène de D.I.G.M.

Le phénomène de D.I.G.M. se caractérise par la migration des joints de grains, sous l'effet de la diffusion intergranulaire d'un soluté, dans une direction normale au flux de diffusion. Le joint laisse derrière lui au cours de sa migration une zone dont la composition est différente de celle du grain original : enrichissement (*Figure III.6*) ou appauvrissement selon le sens du flux de diffusion.

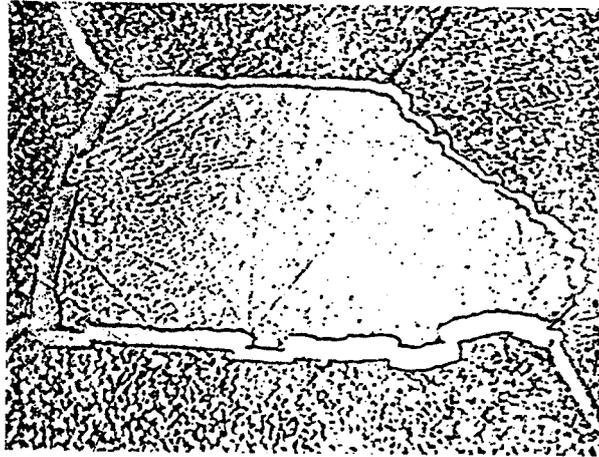


Figure III.6 : Phénomène de D.I.G.M. sur le système W-Cr : formation d'une zone alliée (16 % at de chrome) entourant le grain de tungstène.

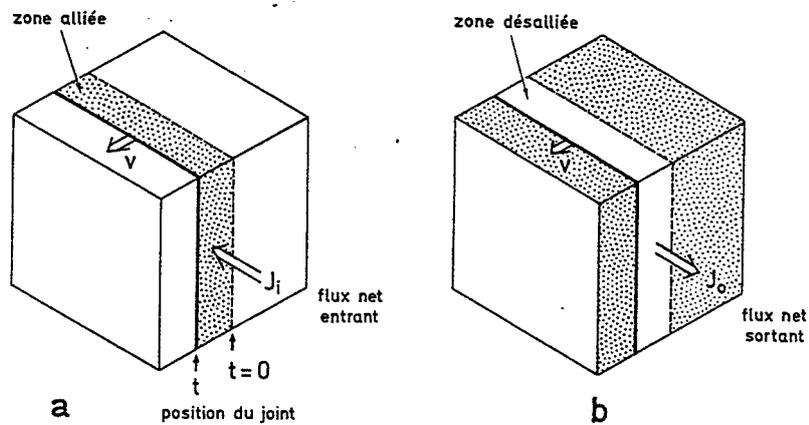


Figure III.7 : Migration du joint de grains induite par diffusion (D.I.G.M.)

- a) Flux de soluté entrant : dépôt d'une zone sur-alliée
- b) Flux de diffusion sortant : dépôt d'une zone sous-alliée

[Balluffi -Cahn 1981]

Dans la majorité des systèmes binaires étudiés, ceci se traduit par (*Figure III.7*) :

- La formation d'une solution solide (substitutionnelle, rarement interstitielle) si le flux de diffusion est entrant.
- La démixtion de l'alliage qui constitue le solvant (cas plus rare) si le flux est sortant [BALLUFFI-CAHN 1981, DEN BROEDER 1985].

- La D.I.G.M. se produit dans un domaine de températures relativement basses ($0,3-0,5.T_f$, T_f représentant la température de fusion du solvant) où la diffusion volumique est négligeable. La D.I.G.M. résulte donc essentiellement d'une **hétérodifusion intergranulaire**.

Remarque : la D.I.G.M. se produit vraisemblablement aussi à hautes températures mais elle passe inaperçue dans le sens où les signes distinctifs de la D.I.G.M. se trouvent alors masqués par les phénomènes de diffusion volumique et croissance de grains inhérents au phénomène purement thermique [KING 1987].

- Le phénomène de D.I.G.M. a tendance à s'amenuiser avec la profondeur de pénétration :
 - Décroissance de la distance de migration (ou épaisseur de la zone alliée). Mais, d'après [SCHMELZLE et coll. 1992], ceci n'est valable que près de la surface car à partir d'une certaine profondeur, elle devient **indépendante** de la profondeur.
 - La concentration moyenne de la zone alliée a aussi tendance à décroître avec la profondeur de pénétration, décroissance de type exponentielle d'après [SCHMELZLE et coll. 1992] :

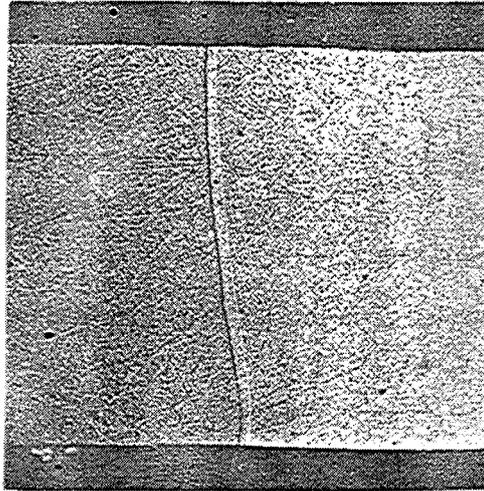
$$\ln C(y) = \ln C_0 - \sqrt{\frac{V}{K\delta D_j}} \cdot y$$

Hypothèses : - Concentration dans le joint et vitesse de migration des joints constantes
 - Diffusion uniquement le long des joints de grains
 avec C_0 concentration en surface (en $y = 0$)
 V la vitesse de migration des joints
 y la profondeur

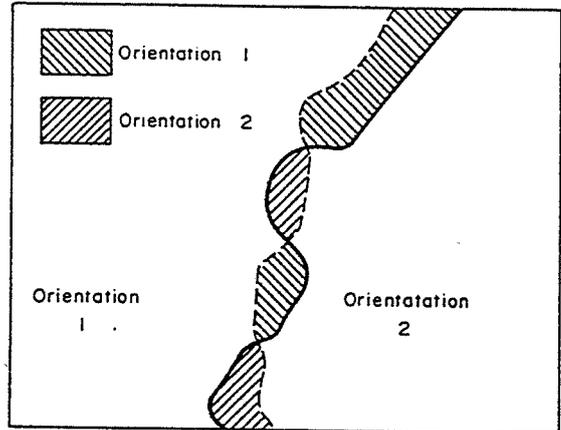
- Sur des échantillons massifs, la concentration en soluté dans la zone alliée est constante entre la position originelle du joint et sa position finale [KING 1987].

Remarque : Sur des échantillons minces (feuilles), on observe un gradient de concentration : décroissant dans la zone alliée et croissant dans la zone désalliée [BALLUFFI-CAHN 1981, CHONGMO-HILLERT 1981]. Certains suggèrent que ce gradient n'est qu'un artefact lié aux effets de surfaces des échantillons minces.

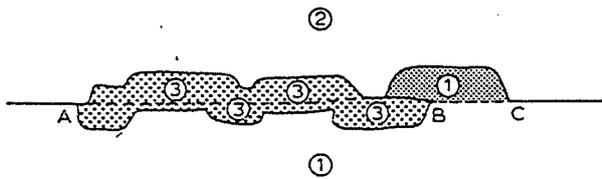
- Tous les types de joint (symétriques, asymétriques) sont sensibles au phénomène de D.I.G.M. excepté les joints symétriques de faible désorientation ($\theta < 15^\circ$ ou $> 165^\circ$) et les joints de macle incohérents $\Sigma 3$ [SCHMELZLE et coll. 92].



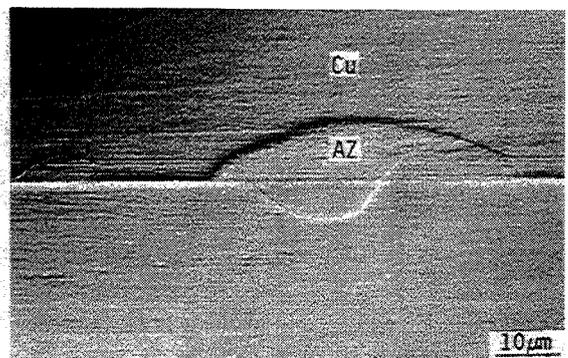
(a) Migration uniforme ou monolithique du joint
[Chongmo-Hillert 1981]



(b) Migration aléatoire dans l'un ou l'autre grain
[Pan-Balluffi 1981]



(c) Migration de deux joints après dissociation du joint primaire [Den Broeder 1972]



(d) Migration oscillatoire du joint autour de sa position originelle [Schmelzle et coll. 1992]

Figures III.8 a, b, c, d : Différents modes de migration des joints par D.I.G.M.

Toutefois, le mode de migration des joints dépend fortement de la structure des joints (symétrique, asymétrique, de forte ou faible désorientation ...). Ils donnent lieu à une diversité des modes de migration :

- Migration de type **continu** (ou monolithique) dans une seule direction, c'est à dire aux dépens d'un seul grain (*Figure III.8 a*).
- Migration par formation de **protubérances** qui migrent indépendamment les unes des autres soit dans un grain soit dans l'autre : cas des joints **symétriques** [DEN BROEDER 1972, BALLUFFI-CAHN 1981, SCHMELZLE et coll. 1992]. Dans ce cas, les protubérances adoptent la même orientation cristalline que celle du grain dans lequel elles croissent (*Figure III.8 b*).
- Il se produit parfois une **dissociation du joint** formant deux autres joints migrant chacun dans un grain (*Figure III.8 c*) [DEN BROEDER 1972, JAHN-KING 1992]. La zone alliée présente alors une orientation totalement différente de celle des deux grains qui l'entourent.
- Certains joints restent **immobiles** tandis que d'autres forment des **facettes** qui se déplacent de manière **saccadée** [CHONGMO-HILLERT 1981, BABCOCK-BALLUFFI 1989, JAHN-BRISTOWE 1990, RICKMANN et coll. 1991, SCHMELZLE et coll. 1992].
- Migration de type **oscillatoire** (mouvement de "va et vient" autour de sa position originelle) (*Figure III.8 d*) [CHONGMO-HILLERT 1981, TOSHIRO-PURDY 1983].

Remarque : Bien que pouvant ressembler, sous certains aspects, au phénomène de précipitation discontinue, la D.I.G.M. se différencie par le fait qu'elle n'induit pas de transformation de phase. Mais les deux phénomènes semblent cependant mus par le même mécanisme [KIM-MEYRICK-SCHEWMON 1983].

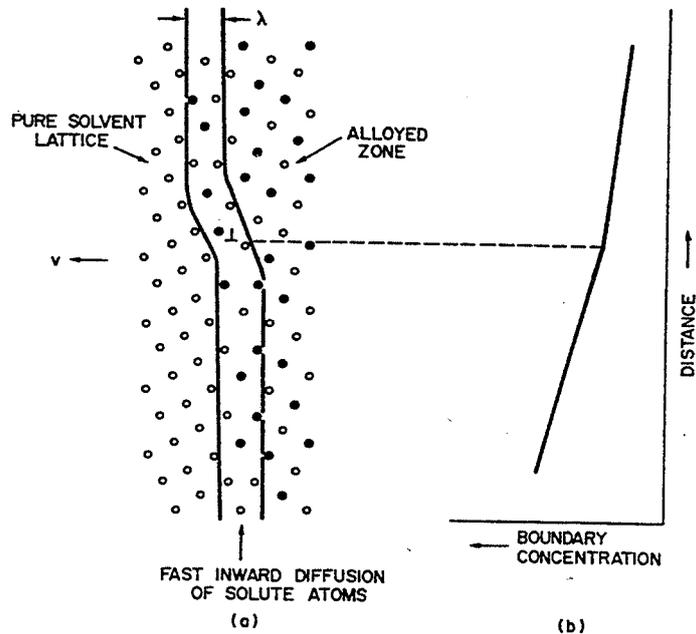
III.2.3 - b - Modèles pour la D.I.G.M.

Sur la base des observations expérimentales, plusieurs modèles ont été développés pour expliquer le mécanisme de la D.I.G.M. Parmi ceux-là, deux théories s'affrontent :

1. Le modèle de l'énergie élastique de cohérence proposé par [HILLERT 1983].

La diffusion du soluté vers une fine région du grain adjacent au joint aurait pour effet de créer une accumulation d'énergie élastique due à la distorsion de la maille du solvant. La migration du joint à travers cette zone permettrait d'abaisser l'énergie du système.

La force motrice pour la migration serait la variation d'enthalpie libre chimique de l'alliage correspondant au changement de composition. La vitesse de migration du joint (V) est donc proportionnelle à cette énergie (ΔG).



Processus auto-entretenu : l'arrivée d'un flux atome de soluté dans le joint crée un flux de lacunes que le joint accommode par la descente d'une marche intergranulaire (constituée de dislocations) accompagnée d'un processus d'échanges atomiques. Ceci se traduit alors par la migration du joint dans le grain de gauche laissant derrière lui une zone alliée.

Figure III.9 : Mécanisme de la migration de joint induite par diffusion (D.I.G.M.) [Balluffi-Cahn 1981].

(a) Coeur du joint de grain (en noir : les atomes de soluté)

(b) Représentation schématique de la discontinuité du gradient de concentration au joint, à l'aplomb de la marche.

L'expression améliorée proposée par [KING-DIXIT 1990] permet de tenir compte de l'aspect asymétrique de la migration en faisant intervenir le facteur Y qui dépend des constantes d'élasticité du grain et de la désorientation du joint :

$$V = \frac{D_j(1-\nu)\Delta G}{\delta \cdot E \cdot RT} \cdot [Y(n_1) - Y(n_2)] \cdot \frac{C_j(1-C_j)}{(C_j - C)^2} \quad \text{avec } \Delta G = \frac{E V_m \eta^2}{1-\nu} (\Delta C)^2 \quad [\text{HILLERT 1983}]$$

D_j coefficient de diffusion intergranulaire, δ largeur du joint, E module d'Young, ν coefficient de poisson, η écart au paramètre de maille, V_m volume molaire, ΔC différence de composition entre les solutions solides initiale et finale, C_j concentration dans le joint.

La différence [$Y(n_1) - Y(n_2)$] entre deux grains adjacents (1 et 2) détermine la direction de migration du joint.

2. Le mécanisme de "montée des dislocations" aux joints des grains proposé simultanément par deux équipes [SMITH-KING 1981] et [CAHN-BALLUFFI 1981] (*Figure III.9*).

Ce modèle explique la migration des joints de grains par le déplacement latéral de marches (créées par des dislocations intergranulaires) sous l'effet de la montée auto-entretenu de ces dislocations. La montée des dislocations intergranulaires liée à un mécanisme d'émission et d'absorption de lacunes à travers le joint résulterait de l'inégalité des coefficients de diffusion intergranulaire des deux espèces chimiques du système (phénomène correspondant à un effet Kirkendall intergranulaire). Ceci suppose l'existence d'un gradient de concentration de soluté le long du joint de grain.

La force motrice pour la migration des joints de grains est, dans ce cas, directement liée à la diffusion intergranulaire et au potentiel chimique de lacunes intergranulaires.

Vitesse de montée des dislocations intergranulaires : $V_d = J_A + J_B = \frac{(D_B - D_A)}{b_n} \cdot \lambda \cdot \Delta \left(\frac{\partial C}{\partial x} \right)$

b_n composante du vecteur de Burgers normale au plan du joint

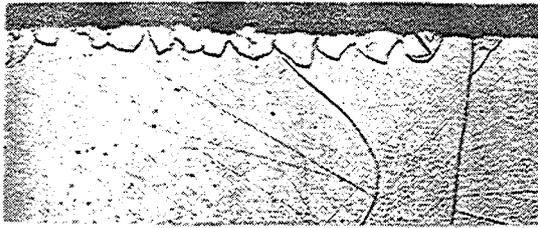
J_A et J_B flux d'atomes de l'espèce A et de l'espèce B

λ épaisseur du joint

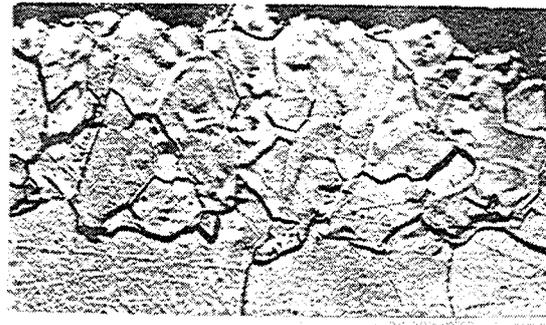
$\Delta \left(\frac{\partial C}{\partial x} \right)$ discontinuité du gradient de concentration

BABCOCK-BALLUFFI [1989] ont pu mettre en évidence grâce à des observations au microscope électronique que la migration continue (ou monolithique) des joints résulte de deux mécanismes : montée des dislocations intergranulaires secondaires (S.G.B.D) et glissement d'un grain par rapport à l'autre.

En ce qui concerne la migration saccadée (ou facettes) qui ne peut s'expliquer par ce modèle, les observations ont montré qu'elle résultait d'un tout autre mécanisme basé sur un effet de capillarité imputable à un mécanisme d'échanges locaux et conservatifs de groupes d'atomes à travers les joints [JAHN-BRISTOWE 1990].



(a) Germination de nouveaux grains à la surface après un recuit à (600°C, 1h)



(b) Zone recristallisée D.I.R. après un recuit à (600°C, 20h)

Figures III.10 a, b : Phénomène de D.I.R. sur le système Fe-Zn [Chongmo-Hillert 1981]

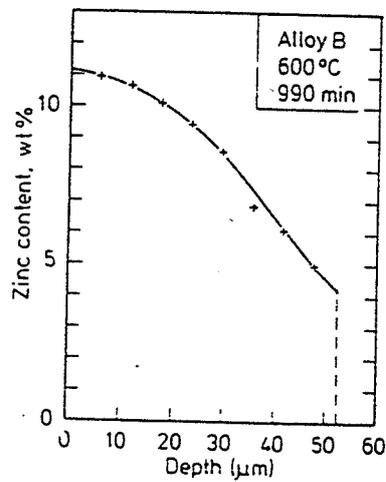


Figure III.11 : Profil de concentration dans la zone D.I.R. en fonction de la profondeur de pénétration [Chongmo-Hillert 1981]

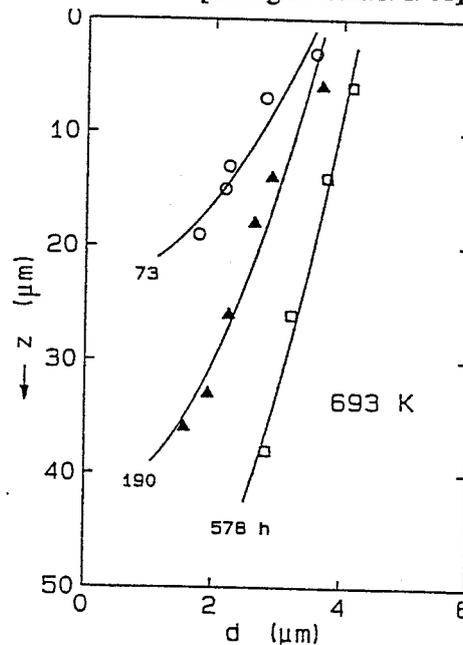


Figure III.12 : Taille des grains D.I.R. en fonction de la profondeur de pénétration après des recuits à (693°K, 73 h) et (578°K, 578 h) [Schmelzle et coll. 1992]

Toutefois, ces modèles suscitent certaines critiques car les nombreuses études menées sur divers systèmes ont montré qu'aucun des deux modèles ne peut prétendre expliquer, à lui seul, tous les cas de D.I.G.M. [PAN-BALLUFFI 1982, CHAKI 88, CHEN et coll. 1990, KING-DIXIT 1990].

Le modèle de HILLERT propose uniquement une force motrice tandis que celui de BALLUFFI-CAHN a l'avantage de proposer à la fois une force motrice et un mécanisme pour la migration des joints.

* Pour HILLERT, la force motrice est d'origine chimique liée à l'apparition d'un état de contrainte dans le grain adjacent au joint que le système tend à éliminer par migration du joint sur cette zone contrainte.

Ce modèle développé initialement pour le frittage en phase liquide (migration d'un film liquide) puis étendu au cas de la migration de joints de grains s'avère bien adapté pour certains cas particuliers notamment :

- Les systèmes où la diffusion volumique du soluté est très faible: $\frac{D_v}{V} < \lambda$ (distance inter-atomique, D_v coefficient de diffusion volumique, V vitesse de migration) et où il y a modification du paramètre de maille du solvant par les atomes de soluté donc une énergie de mélange non négligeable).
- Les joints de flexion asymétrique ($\theta > 25^\circ$) ou le joint liquide (frittage).
- Le mode de migration continu.

Il devient par contre tout à fait inadapté pour expliquer la D.I.G.M. sur les systèmes caractérisés par une faible (voir nulle) énergie de mélange (exemple : Ni-19,4 % at Pd / Cu [MA-LAUB et coll. 1992]) et un module d'élasticité faible (Au/Ag [PARTHASARATHY-SCHEWMON 1983]).

Ce modèle ne permet pas non plus d'expliquer le phénomène de D.I.R. [DEN BROEDER-NAKAHARA 1983].

* Le modèle de CAHN ET BALLUFFI présente l'avantage de relier la D.I.G.M au seul processus de diffusion le long des joints. De plus, ce modèle propose un mécanisme (auto-entretenu) pour la migration du joint basé sur l'aspect structural des joints de grains (dislocations) et sur l'existence d'un gradient de concentration le long du joint (ce qui nécessite un apport continu en soluté).

Bien que critiqué, ce modèle permet d'expliquer un plus grand nombre de cas de D.I.G.M. Il s'applique notamment :

- A la migration des joints généraux ayant une structure pas trop ordonnée [BALLUFFI-CAHN 1981], joints symétriques, joints asymétriques fortement désorientés (car ils présentent une marche) [KING-DIXIT 1990, BABCOCK-BALLUFFI 1989].
- A tous les modes de migration excepté la migration saccadée qui relève d'un autre mécanisme [JAHN-BRISTOWE 1990, BABCOCK-BALLUFFI 1989, RICKMANN et coll. 1991].
- Aux systèmes qui présentent une faible énergie de mélange et un faible module d'élasticité.



Figure III.13 : Germination des grains D.I.R. le long des joints de grains de la microstructure initiale du solvant [Chongmo-Hillert 1981]

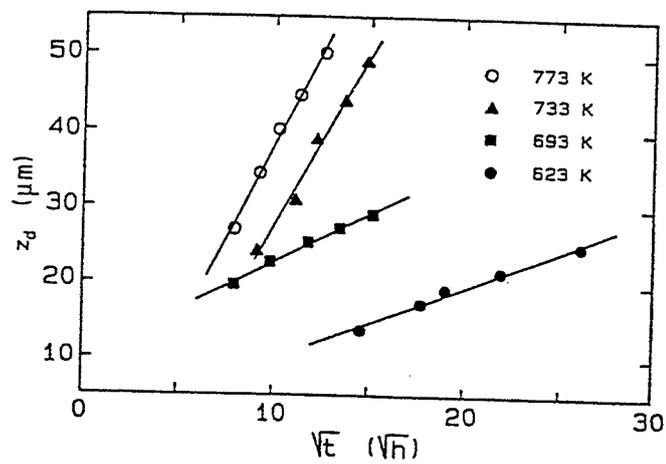


Figure III.14 : Extension de la région D.I.R. en fonction de la racine carré du temps de recuit (pour plusieurs températures de recuit) [Giakupian et coll. 1992]

Le phénomène de D.I.G.M. est complexe car il dépend d'un grand nombre de facteurs : nature du système, caractéristiques des joints de grains (orientation, degré de coïncidence, symétrie, courbure). D'après CHEN-KING [1988], la vitesse de migration des joints, la profondeur de pénétration du soluté et la concentration de soluté déposé seraient, tous trois, fonction du flux de soluté le long du joint et interdépendants, la nature de leur interdépendance étant liée à la structure du joint.

Ceci montre donc toute la complexité de la D.I.G.M. sur un polycristal d'autant plus qu'elle induit, par elle-même, d'importantes asymétries microscopiques : elle provoque notamment la perte de symétrie des joints de flexion symétriques qui sont pourtant connus pour leur grande stabilité [CHEN-KING 1988].

Les forces motrices sont, en conséquence, difficilement identifiables. Certains prétendent qu'elles peuvent se suppléer au cours de l'évolution du système : l'une prenant le relais de l'autre dès que les paramètres géométriques des joints se trouvent modifiés par la migration ou la diffusion [KING 1987, KING-DIXIT 1990].

III.2.3 - c - Phénomène de D.I.R.

Sur certains systèmes qui présentent un phénomène de D.I.G.M., on observe un phénomène de "D.I.R." (Diffusion Induced Recrystallization) [CHONGMO-HILLERT 1981, DEN BROERDER-KERK 1983, CHEN-KING 1987, FOURNELLE *et coll.* 1988-92] qui se caractérise par la germination de petits grains équiaxes préférentiellement en surface de l'échantillon donc en contact direct avec la source de solutés (*Figures III.10 a, b*).

- Il est apparu pour certains que la germination de ces grains était étroitement liée à la présence de défauts de polissage en surface de l'échantillon [CHEN-KING 1987].
- Ces grains qui croissent apparemment par la D.I.G.M. [GIAKUPIAN *et coll.* 1992] ont la particularité d'être **alliés** : concentration uniforme soit supérieure soit identique à celle de la zone alliée (créée par D.I.G.M.) [DEN BROERDER-NAKAHARA 1983, PARTHASARATHY-SHEWMON 1983, GIAKUPIAN *et coll.* 1992].
Il apparaît que la **concentration** en soluté de ces grains (*Figure III.11*) ainsi que leur **taille** (*Figure III.12*) **décroit** avec la profondeur de pénétration [CHONGMO-HILLERT 1981, SCHMELZLE *et coll.* 1992, GIAKUPIAN *et coll.* 1992].
- L'extension en profondeur de cette zone de recristallisation est généralement restreinte : sur le système Cu/Zn, elle n'excède pas 10 μm pour un temps de recuit court (55 h à 460°C) et 40 μm pour des temps plus longs (2920 h) [SCHMELZLE *et coll.* 1992].

La propagation de cette région semble se faire par germination préférentielle de nouveaux grains le long des joints de grains de la structure originelle (*Figure III.13*) [CHONGMO-HILLERT 1981, GIAKUPIAN et coll. 1992].

L'extension de cette région croît monotonement en fonction de la température et en racine carré du temps de recuit (*Figure III.14*).

- L'importance du phénomène de D.I.R. est, semble-t-il, fonction de la microstructure initiale du solvant [DEN BROEDER-NAKAHARA 1983] :
 - Si la microstructure du solvant est à gros grains ($\phi \approx 200 \mu\text{m}$), les grains D.I.R. restent confinés aux joints des grains (*Figure III.13*).
 - Si au contraire, la microstructure du solvant est fine (25-50 μm), les grains D.I.R. envahissent l'échantillon en surface et font disparaître la microstructure initiale (*Figure III.10 b*).

III.2.3 - d - Modèle pour la D.I.R.

Le phénomène de D.I.R. a souvent été considéré comme un phénomène annexe à la D.I.G.M. du fait qu'il n'apparaissait qu'en présence de D.I.G.M. et pas systématiquement sur tous les systèmes. Il a même été considéré comme un élément parasite lié à des imperfections surfaciques des échantillons.

[DEN BROEDER-NAKAHARA 1983] ont montré qu'en réalité, la D.I.R. est un important mécanisme de transport de matière qui devient largement dominant lorsque le solvant présente une microstructure à petits grains (ex : Cu ($\phi = 25$ à $50 \mu\text{m}$)/Ni).

D'après ces auteurs, la D.I.R. se produit dans un large domaine de températures donc aussi bien en présence de diffusion volumique que de diffusion intergranulaire. Cependant, de toute évidence, la D.I.R. est initiée, comme la D.I.G.M., par la diffusion intergranulaire : notamment parce que les grains germent le long des joints de grains de la microstructure originelle [DEN BROEDER-NAKAHARA 1983].

En conséquence, la force motrice pour la croissance des grains D.I.R. est la même que pour la D.I.G.M. : la migration des joints (par montée des dislocations intergranulaires) serait assurée par le potentiel chimique de lacunes intergranulaires créé par l'inégalité des flux de diffusion intergranulaire des deux espèces (effet Kirkendall) [DEN BROEDER-NAKAHARA 1983].

Se pose alors la question de la force motrice pour la germination des grains D.I.R. sur une structure déjà recristallisée.

DEN BROEDER-NAKAHARA [1983] suggèrent l'hypothèse suivante : la D.I.R. du fait qu'elle apparaît près de la surface résulte probablement d'un fort gradient de concentration, d'une forte diffusion intergranulaire et par conséquent d'un flux de lacunes important.

Ce flux de lacunes engendre un niveau de contrainte élevé conduisant à l'émission de dislocations du joint vers les grains adjacents. Ces dislocations en coalesçant avec des murs de

dislocations (seulement possible si le grain est suffisamment petit) donnent alors naissance à un nouveau joint prêt à migrer par D.I.G.M.

- Conclusion partielle -

Au vu de ces données bibliographiques, il semble que la Recristallisation Induite (R.I.) observée sur les fils de tungstène soit assimilable au phénomène de D.I.R. observé sur d'autres systèmes (où le solvant est toujours à l'état recristallisé et non écroui).

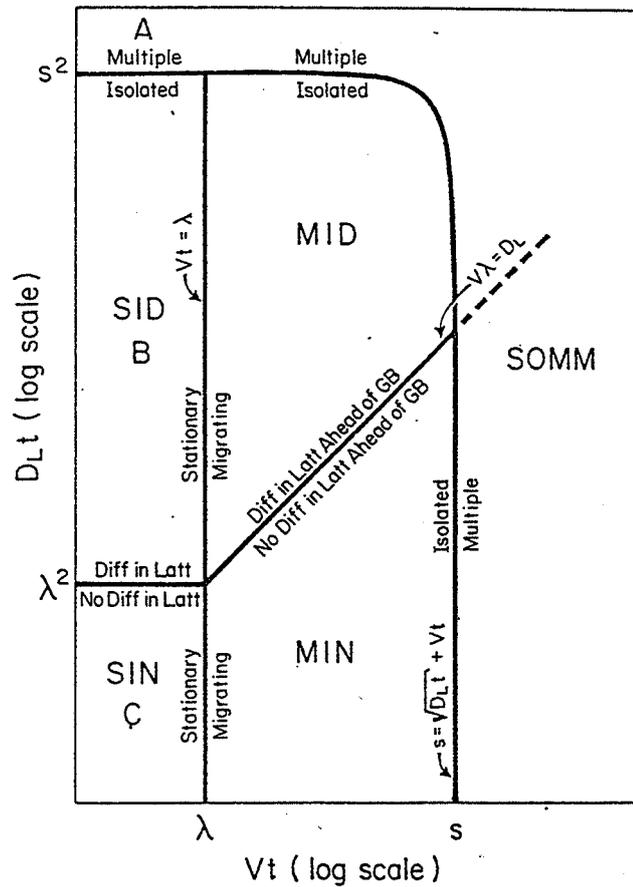
Cependant, le phénomène de R.I. paraît plus spectaculaire que le phénomène de D.I.R. : l'extension de la zone recristallisée étant plus importante et non associée au phénomène de D.I.G.M.

Ces différences peuvent toutefois résulter d'une différence microstructurale [DEN BROEDER-NAKAHARA 1983] : plus les grains du solvant sont fins, plus la zone de D.I.R. est étendue.

Les fils de tungstène ayant une microstructure fibreuse très fine (épaisseur de $\sim 1 \mu\text{m}$), il n'est pas étonnant alors d'observer un phénomène de D.I.R. envahissant les fils de tungstène au dépens de la microstructure fibreuse.

L'absence du phénomène de D.I.G.M. sur les fils de tungstène est vraisemblablement aussi liée à la finesse de la microstructure car le phénomène de D.I.R. devient prédominant lorsque la microstructure du solvant est fine [DEN BROEDER-NAKAHARA 1983].

Pour certains [CHEN-KING 1987], la présence de défauts de surface favorisent l'apparition du phénomène de D.I.R. Or, les fils de tungstène présentent justement une surface rugueuse, signe d'un écrouissage permettant une meilleure adhérence du nickel lors de l'électro-déposition. Toutefois, ces défauts de surface n'ont qu'un rôle limité puisqu'ils ne peuvent expliquer l'extension, en profondeur, de l'anneau de recristallisation.



Regimes of diffusional mass transport behavior expected for polycrystal containing stationary or migrating boundaries. D_L = lattice diffusivity, V = boundary velocity, s = spacing between grain boundaries, λ = interatomic distance, and t = diffusion time. Harrison's A, B, and C regimes shown on left side.

SID \equiv stationary boundaries, isolated boundary diffusion, diffusion occurs in lattice

SIN \equiv stationary boundaries, isolated boundary diffusion, no diffusion occurs in lattice

MID \equiv migrating boundaries, isolated boundary diffusion, diffusion occurs in lattice ahead of the boundaries

MIN \equiv migrating boundaries, isolated boundary diffusion, no diffusion occurs in the lattice ahead of the boundaries

SOMM \equiv stationary or migrating boundaries, multiple boundary diffusion.

Figure III.15 : Extension des régimes diffusionnels au cas des joints mobiles [Cahn-Balluffi 1979].

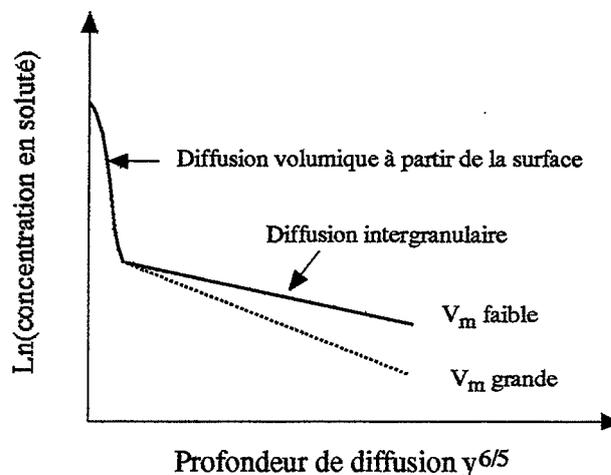


Figure III.16 : Profil de diffusion intergranulaire typique du régime B.

III.2.3 - Diffusion intergranulaire sur joints mobiles

La D.I.R. comme la D.I.G.M. met en jeu un phénomène de diffusion intergranulaire sur joints mobiles. Or la mobilité des joints modifie les lois de diffusion établies classiquement pour des joints stationnaires. Toutefois, l'influence de la mobilité des joints sur la diffusivité intergranulaire est un sujet controversé :

- Les premières mesures de diffusivité sur joints mobiles ont montré que la diffusivité dans des joints mobiles était supérieure (de 10^2 à 10^4) à celle dans des joints stationnaires [HILLERT-PURDY 1978, SMIDODA-GOTTSCHALK-GLEITER 1978, CHONGMO-HILLERT 1981, OLANDER-EL SAID 1992]

D'après PARTHASARATHY-SHEWMON [1983], cette différence de diffusivité serait liée à la largeur du joint (δ) : la largeur d'un joint mobile étant supérieure (de 1 à 2 ordres de grandeur) à celle d'un joint stationnaire.

- Ce résultat a, par la suite, été remis en cause par un certain nombre d'auteurs [FOURNELLE-GUST et coll. 1985-92, CHEN-DIXIT-KING 1990, GOTTSTEIN-SHVINDLERMAN 1992, SCHMELZLE et coll. 1992] pour qui la mobilité du joint ne modifie pas intrinsèquement sa diffusivité (vérifié avec des métaux de haute pureté). Les différences de diffusivité mesurées entre joints stationnaires et mobiles (sur métaux impurs) résulteraient plutôt d'une modification microstructurale du joint notamment de sa désorientation causée par la migration du joint associé à des phénomènes de ségrégation [CERMAK 1990, GLAESER-EVANS 1992].

CAHN-BALLUFFI [1979] ont proposé une extension de la classification en régimes diffusionnels type A, B ou C (établis pour des joints stationnaires par [HARRISON 1961]) au cas des joints mobiles. Ils proposent trois régimes supplémentaires : "MIN", "MID" et "SOMM" qui se distinguent par les valeurs relatives de trois paramètres (*Figure III.15*) :

- La distance de migration du joint : $L_m = V.t$
- La distance de diffusion volumique : $L_v = \sqrt{D_v.t}$
- Espacement entre joint ou diamètre des grains : S

- Régime "MIN" : $Vt > \lambda$ et $V\lambda > D_v$

Il se différencie du régime C (Diffusion uniquement le long des joints de grains) par le fait qu'il tient compte du dépôt de soluté dans la zone balayée par le joint au cours de sa migration.

Ce régime s'applique donc à des conditions de recuit telles que T assez basse et t très court, à une vitesse de migration des joints pas trop grande et une diffusion volumique du soluté nulle.

- Régime "MID" : $Vt > \lambda$ et $V\lambda < D_v$

Il se différencie du régime B (légère diffusion volumique du soluté à partir des joints et à partir de la surface) par le fait qu'il tient compte du dépôt de soluté dans la zone balayée par le joint au cours de sa migration.

Ce régime correspond donc à une situation intermédiaire : T et t moyennes, diffusion volumique du soluté limitée et vitesse de migration des joints pas trop grande.

- Régime "SOMM" : $\sqrt{D_v t} + Vt > S$

Il correspond au cas d'une grande vitesse de migration et/ou forte diffusion volumique du soluté et/ou des conditions de recuit suivantes (T élevée et t très long).

Il équivaut donc au régime A (forte diffusion volumique impliquant : profondeur de diffusion volumique \approx profondeur de diffusion intergranulaire) mais est aussi valable dans le cas où la diffusion volumique est négligeable ($D_v \approx 0$) et la vitesse de migration importante.

Le coefficient de diffusion apparent s'exprime alors comme pour le régime A (équation de HART):

$$D_a = D_v + (b/S) \delta D_j$$

avec b facteur géométrique, δ épaisseur du joint

Les solutions aux équations de Fick classiquement utilisées pour l'étude de la diffusion sur joints stationnaires (FISHER, WHIPPLE, SUZUOKA, LEVINE-MAC CALLUM) ne sont plus valables lorsque les joints deviennent mobiles car la vitesse de diffusion est alors régie par la vitesse de migration des joints [PARTHASARATHY-SCHEWMON 1983]. Elles conduiraient à une **sous-estimation importante** (plusieurs ordres de grandeur) du coefficient de diffusion intergranulaire $P = (K)D_j\delta$ [OLANDER-EL SAID 1992, MISHIN-RAZUMOVSKII 1992].

Des solutions numériques et analytiques complexes (reliant la concentration en soluté à la profondeur de pénétration y) ont alors été proposées : [MISHIN-RAZUMOVSKII 1992] pour les régimes "MIN" et "MID", [OLANDER-EL SAID 1992] pour le régime "MID", [GLAESER-EVANS 1986] pour le régime "MIN").

Ces solutions tiennent compte de la concentration en soluté laissée dans la zone balayée par le joint de grain au cours de sa migration. Les profils de diffusion sur joints mobiles sont fonction d'un certain nombre de paramètres qui sont la diffusivité des joints, la diffusivité volumique du soluté, la vitesse de migration des joints, la taille et la morphologie des grains du solvant [OLANDER-EL SAID 1992].

Si la mobilité des joints ne modifie pas la forme du profil de diffusion (la relation $\text{Ln} \bar{C} \propto y^{6/5}$ étant toujours valable (régime B et MID) (*Figure III.16*)), la diffusion sur joints mobiles se différencie de la diffusion sur joints stationnaires par :

- Une augmentation de la pente $-\left(\frac{\partial \text{Ln}\bar{C}}{\partial y^{6/5}}\right)$ en racine carré de la vitesse de migration des joints [GLAESER-EVANS 1986].
- Une diminution de la profondeur de diffusion [MISHIN-RAZUMOVSKII 1992, OLANDER-EL SAID 1992] : l'élément diffusant pénètre moins profondément le long des joints (d'un facteur $\frac{\gamma}{2}$ pour un bicristal avec $\gamma = \frac{Vt}{\sqrt{D_v t}}$ [MISHIN-RAZUMOVSKII 1992]).
Ceci n'est valable que pour le régime "MID" et non "MIN" pour lequel la profondeur de diffusion n'est pas modifiée par la mobilité du joint [MISHIN-RAZUMOVSKII 1992].
- Une augmentation de la quantité de diffusant absorbée (Q) (d'un facteur $\frac{\gamma}{2}$ pour un bicristal [MISHIN-RAZUMOVSKII 1992]) qui se traduit par une augmentation de la concentration près de la surface mais une diminution de la concentration en profondeur.
Ceci concerne, par contre, aussi bien les régimes "MID" et "MIN".

De ce fait, l'utilisation des méthodes classiques (établies pour des joints stationnaires : méthode $\text{Ln}\bar{C} \propto y^{6/5}$) est utilisable pour un régime de type "MIN" mais pas pour un régime de type "MID" car elle conduira à une sous-estimation importante du produit $P = (K)D_j\delta$ (d'un facteur $\frac{\gamma}{2}$ soit plusieurs ordres de grandeur).

En conclusion, la diffusivité est modifiée par la migration des joints à condition que la vitesse de migration soit supérieure à celle de la diffusion volumique (soit $Vt > \sqrt{D_v t}$) [CERMAK 1990].

Conclusion sur la partie bibliographique

L'effet du nickel sur le tungstène a donc principalement été étudié dans le cas du frittage activé. Quelques articles évoquent toutefois le cas particulier de la Recristallisation Induite sur fils de tungstène nickelés [BRETT et coll. 1968 (2), NIEH 1984, MOON-OH-KIM 1989, KOZMA et coll. 1981-82].

A la lumière des connaissances bibliographiques sur le frittage activé et les phénomènes de D.I.R. et de D.I.G.M., nous allons donc pouvoir, à travers l'étude de la Recristallisation Induite observée sur nos fils de tungstène nickelés, évaluer dans quelle mesure nous pouvons assimiler la recristallisation R.I. au frittage activé et/ou au phénomène de D.I.R. qui repose sur le phénomène de base qu'est la D.I.G.M.

III.3 - ETUDE DE LA REACTION INTERFACIALE SUR LES FILS DE TUNGSTENE

L'étude bibliographique laisse donc supposer que le phénomène de R.I. (Recristallisation Induite) sur les fils de tungstène s'apparente au phénomène de D.I.R. (Diffusion Induced Recristallisation) observé sur un certain nombre d'autres systèmes. Le phénomène R.I. serait alors gouverné par trois processus élémentaires :

- La diffusion intergranulaire du nickel.
- La germination de nouveaux grains.
- La croissance des grains sous l'effet d'une D.I.G.M. (Diffusion Induced Grain boundary Migration)

Pour vérifier ces trois processus, nous nous proposons d'étudier les points suivants :

- L'aspect diffusionnel de la réaction interfaciale par des mesures de concentration et l'étude des cinétiques d'avance du front de recristallisation
- La croissance des grains R.I.

III.3.1 - Aspect diffusionnel de la réaction interfaciale W/Ni

Trois méthodes d'analyse ont été utilisées pour étudier la diffusion du système : fils de tungstène/nickel :

- Microanalyse à sélection d'énergie (E.D.S) (au laboratoire de l'ENSM de Saint-Etienne).
- Microanalyse à dispersion de longueur d'onde (W.D.S) ou de Castaing (au centre des matériaux de l'ENSM de Paris).
- Spectrométrie Auger (au laboratoire de l'ENSM de Saint-Etienne).

Remarques sur la solubilité du système W-Ni :

D'après le diagramme des phases du système W-Ni (*Figure III.17 a*), il est possible de former une solution solide W(Ni) à des températures inférieures au point de fusion du nickel (1453°C) mais ces solutions solides présentent une très faible teneur en nickel en raison de la faible solubilité du nickel dans le tungstène.

Grâce au tracé un peu plus précis de la courbe de solubilité (*Figure III.17 b*) établie par [KOZMA-LABAR 1981], on peut déterminer la limite de solubilité du nickel dans le tungstène ($C_{S_{Ni}}^W$) dans le domaine de températures qui nous intéresse : $900 < T < 1400^\circ\text{C}$.

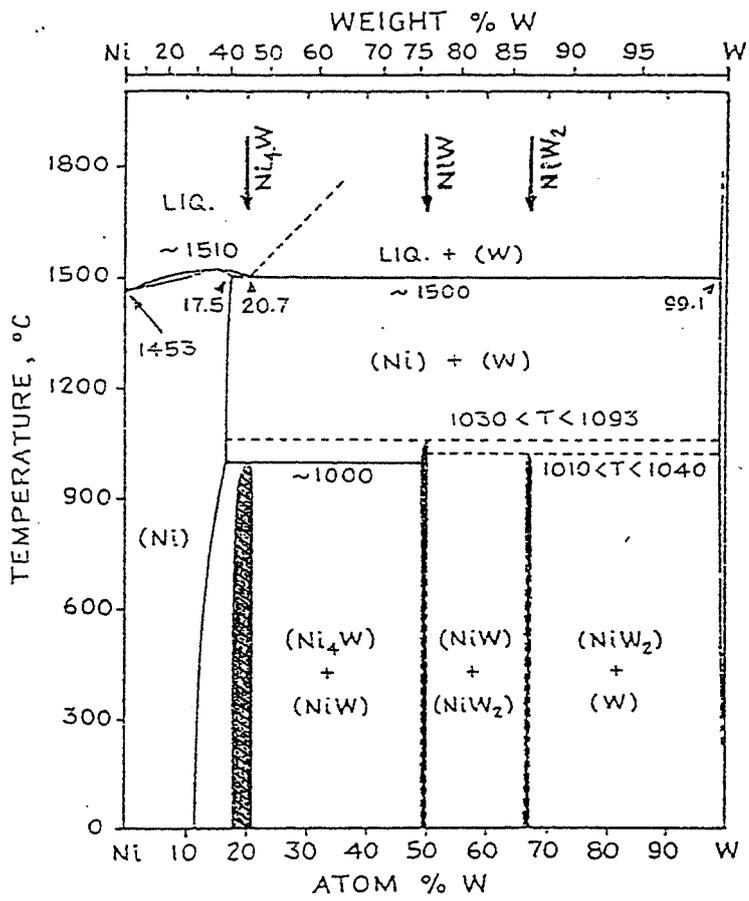
$$\text{Pour } T = 1400^\circ\text{C}, C_{S_{Ni}}^W = 0,125 \text{ \% at}$$

$$\text{Pour } T = 900^\circ\text{C}, C_{S_{Ni}}^W \leq 0,054 \text{ \% at}$$

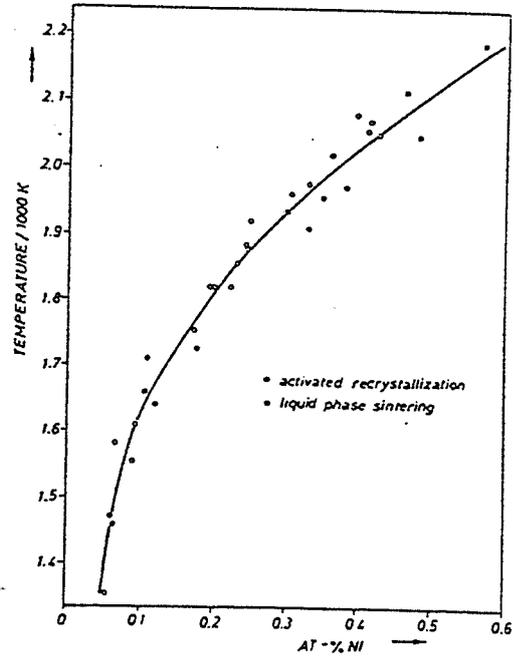
Par contre, le tungstène présente une plus grande solubilité dans le nickel, ainsi aux mêmes températures, on obtient :

$$\text{Pour } T = 1400^\circ\text{C}, C_{S_W}^{Ni} = 16,7 \text{ \% at}$$

$$\text{Pour } T = 900^\circ\text{C}, C_{S_W}^{Ni} = 15 \text{ \% at}$$



(a)



→ (b) Solubilité du nickel dans le tungstène [Kozma-Labar 81]

Figure III.17 : Diagramme de phase W/Ni.

Le système W-Ni est donc caractérisé par :

- Une grande différence entre points de fusion : 1453°C pour le nickel, 3410°C pour le tungstène.
- une plus grande solubilité du tungstène dans le nickel que du nickel dans le tungstène.

On peut donc s'attendre à ce que :

- Le nickel ait plus tendance à diffuser intergranulairement qu'en volume.
- Le nickel ait tendance à ségréger aux joints des grains en raison de sa très faible solubilité dans le tungstène.
- La présence de cette couche de nickel aux joints incite les atomes de tungstène à diffuser intergranulairement (voir frittage en phase solide § III.2.1)

Pour un recuit effectué au dessus de 1093°C, il est possible de former, au cours d'un refroidissement suffisamment lent, des composés intermétalliques :

- NiW (49,6% at de W) de structure orthorhombique apparaît entre 1038 et 1093°C [WALSH-DONACHIE 18973, POULSEN-RUBÆK-LANGER 1974].
- Ni₄W (19,4% at de W) de structure CC tétragonale apparaît à 970°C à l'interface Ni-NiW [EPREMIAN-HARKER 1949].
- NiW₂ (66% at de W) de structure CC tétragonale apparaît entre 1010 et 1040°C à l'interface NiW-W [POULSEN-RUBÆK-LANGER 1974].

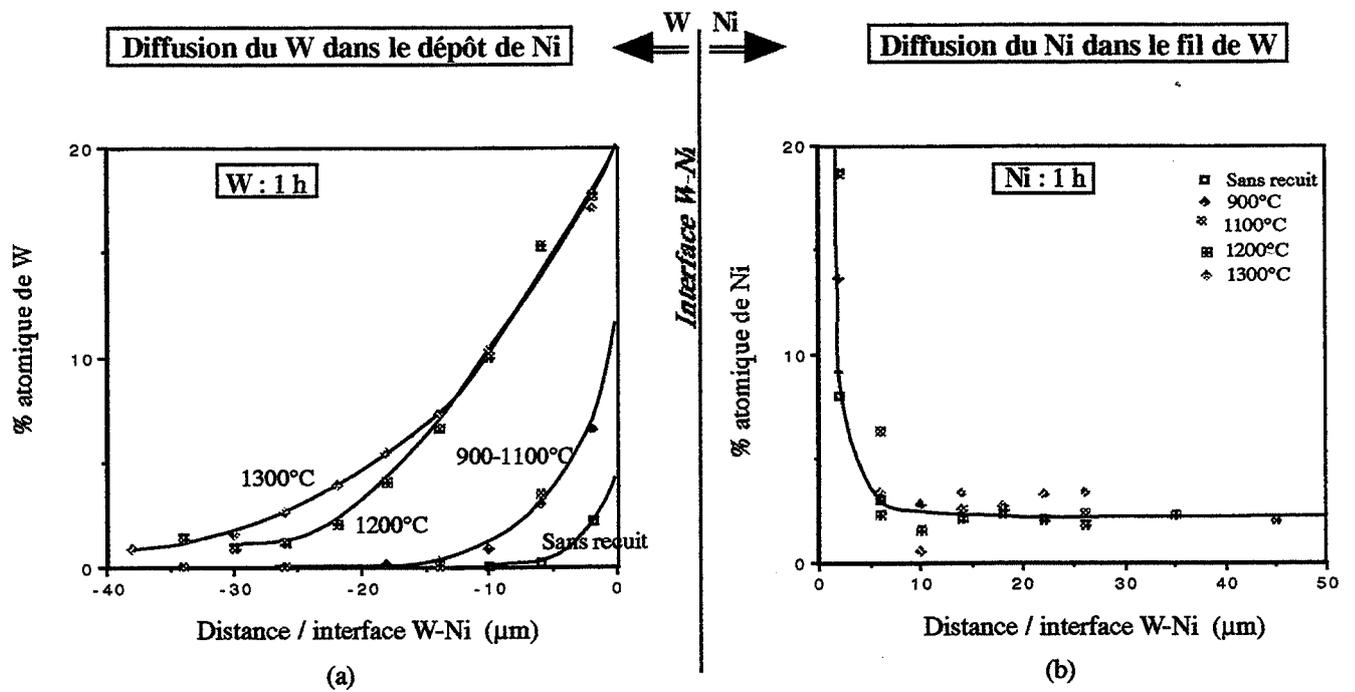
Signalons que les composés NiW et NiW₂ ont été identifiés à l'interface fibre-matrice d'un composite (fibres de tungstène - matrice de nickel) suite à un recuit effectué à 1040°C pendant 140 heures. La présence de tels composés intermétalliques est généralement néfaste aux propriétés mécaniques du composite.

III.3.1 - a - Résultats sur l'interdiffusion volumique W-Ni

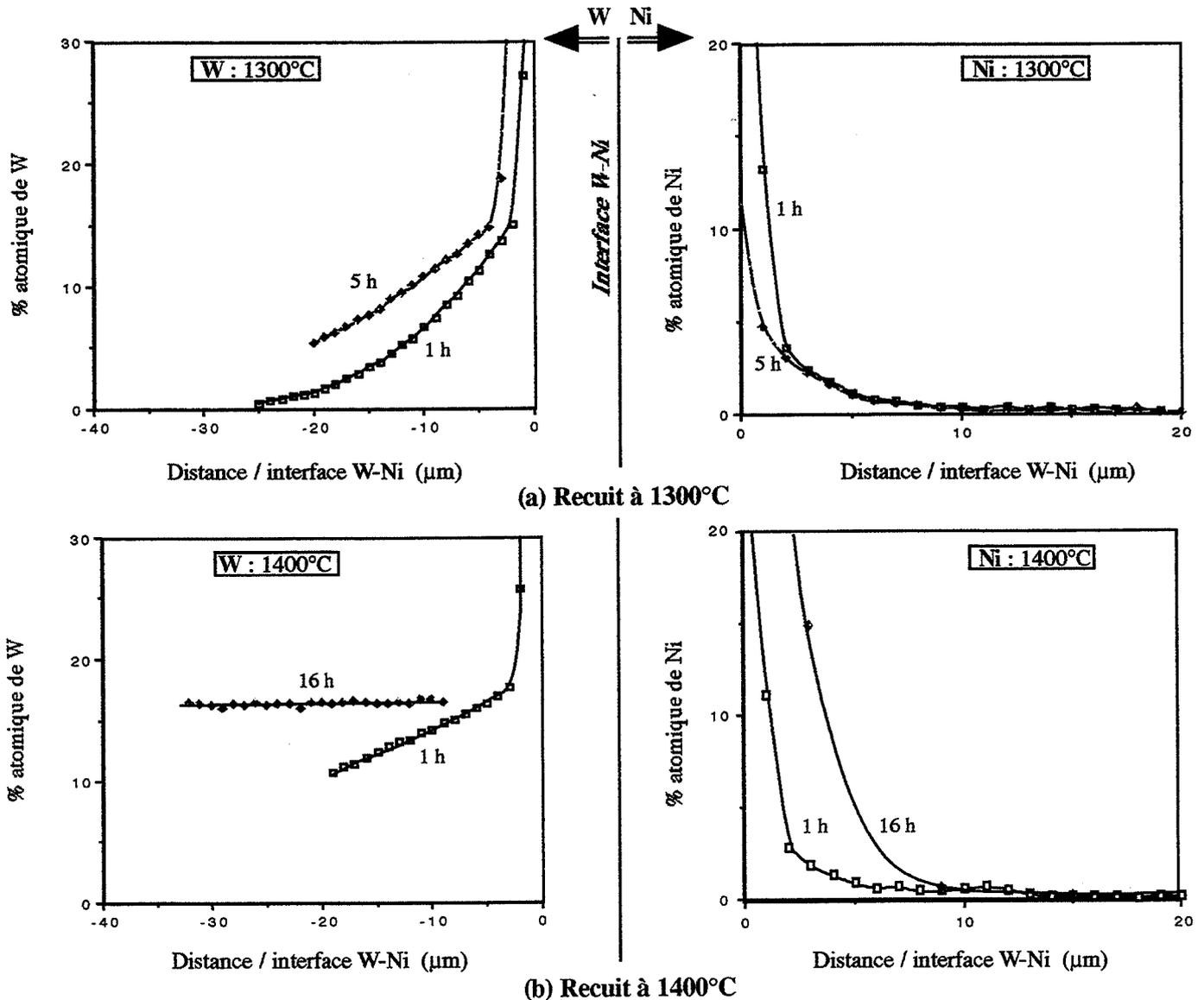
Les microsondes E.D.S. et W.D.S. nous ont permis d'étudier l'interdiffusion volumique des deux espèces (W, Ni) de part et d'autre de l'interface (fil de W - dépôt de Ni) en fonction de la température (900-1400°C) et du temps de recuit (1 et 5 heures) :

- Diffusion du nickel dans le fil de tungstène
- Diffusion du tungstène dans le dépôt de nickel

Les mesures (dimension de la sonde : 16 μm^3 pour E.D.S. et 1 μm^3 pour W.D.S.) ont consisté à décaler la zone d'analyse de la périphérie des fils nickelés vers le centre des fils (de part et d'autre de l'interface W-Ni).



Figures III.18 a et b : Interdiffusion (E.D.S.) du W dans Ni (a) de Ni dans W (b) en fonction de la température de recuit.



Figures III.19 a et b : Interdiffusion W/Ni (W.D.S.) à 1300 et 1400°C en fonction du temps de recuit.

- Diffusion du tungstène dans le dépôt de nickel -



* La *Figure III.18 (a)* représentant des mesures obtenues par spectrométrie E.D.S. permet de constater une nette évolution du profil de diffusion du tungstène (dans le dépôt de nickel) avec la température de recuit :

- A 900-1100°C, le tungstène diffuse légèrement dans le nickel sur une distance d'environ 15 μm . D'après [Ochiai 75], un recuit de 1 min à 900°C suffit à induire la diffusion du tungstène.
- Pour des températures supérieures à 1100°C, le tungstène a envahit presque totalement le dépôt de nickel.

* Les profils représentés sur les *figures III.19 (a) et (b)* et obtenus avec la spectrométrie W.D.S. montrent l'influence du temps de recuit à deux températures : 1300°C (1-5 h) et 1400°C (1-16 h).

- La précision de cette microsonde permet d'obtenir des profils plus réguliers que précédemment : courbes de décroissance de la concentration en fonction de la profondeur de diffusion.
- On mesure ainsi la forte sensibilité de cette diffusion à la température et au temps de recuit: la profondeur de diffusion et la concentration varient en fonction de la température et du temps de recuit.
- Le tungstène atteint la surface du dépôt (épaisseur $\approx 40 \mu\text{m}$) pour un recuit à 1300°C compris entre 1 et 5 heures. La diffusion du tungstène continue tant que la concentration maximale n'est pas atteinte en tout point. Cet état est obtenu pour un recuit à 1400°C-16 h : la concentration en tungstène est alors constante en tout point du dépôt et équivaut à 16,7 % at (ou 38,5 % poids). Or cette valeur correspond exactement à la limite de solubilité du tungstène dans le nickel à cette température.

- Diffusion du nickel dans le fil de tungstène -



* On observe par contre aucune évolution des profils de diffusion du nickel (dans le fil de tungstène) en fonction de la température de recuit (*Figure III.18 b : Méthode E.D.S.*) alors que les observations microstructurales ont montré la présence d'un anneau de R.I. dès 1100°C.

On relève, toutefois et ce indépendamment du recuit, des traces de nickel dans le fil de tungstène (constante en tout point du fil) qui est due vraisemblablement au polissage.

* Etant donné la faible solubilité du nickel dans le tungstène (0,125 % at à 1400°C), l'utilisation de la spectrométrie W.D.S. s'est avéré plus concluante que la E.D.S., son seuil de détection étant plus bas (0,01 % at contre 0,1 % at).

Les profils ainsi obtenus sont présentés sur les figures III.19 (a, b) et correspondent aux recuits suivants : - 1300°C - 1 heure et 5 heures (a)
- 1400°C - 1 h et 16 heures (b)

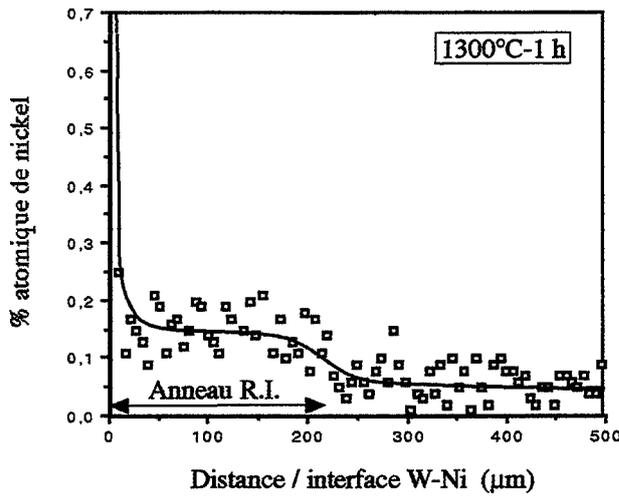
Nous observons :

- Une décroissance de la concentration (de type exponentielle ou en erfc) sur une distance de 4-5 μm à partir de l'interface. Ceci correspond vraisemblablement à une diffusion volumique (diffusion faible et limitée) : à 2 μm de l'interface, la concentration est de l'ordre de 3 % at, ce qui correspond à une sursaturation en nickel.
- Entre 8 et 15 μm , la concentration en nickel devient constante : environ 0,2 % at pour 1300 et 1400°C (Figure III.19 a et b). Cette valeur n'évolue pas avec le temps de recuit (entre 1 h et 5 h : Figure III.19 a).

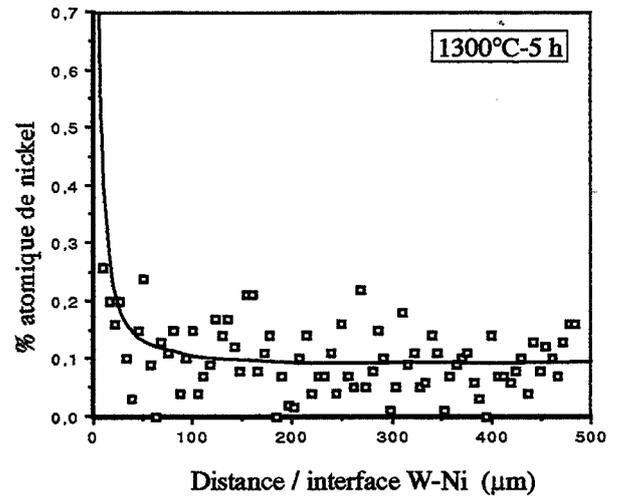
- En résumé -

- Ces mesures permettent donc de vérifier que le tungstène diffuse en volume plus facilement dans le nickel que l'inverse. Toutefois, l'interdiffusion est suffisamment faible pour ne pas déplacer l'interface W-Ni (plan de Matano).
- Le phénomène de réaction interfaciale W/Ni se décompose donc en deux phénomènes (pour une température située entre 1100 et 1300°C) :
 - 1- Formation d'une zone plus dure dans le dépôt de nickel : zone de diffusion du tungstène.
 - 2- Formation d'une zone fragilisante par diffusion du nickel dans le tungstène : Anneau R.I.

Si une légère diffusion du tungstène permet d'améliorer la résistance de l'interface W/Ni (ex : 1 min à 900°C) [Ochiai et coll. 75], une trop grande diffusion du tungstène (profondeur de diffusion grande et concentration élevée) risque d'induire un durcissement qui peut s'avérer néfaste à la ductilité du dépôt et par conséquent nuire à l'élaboration du composite.

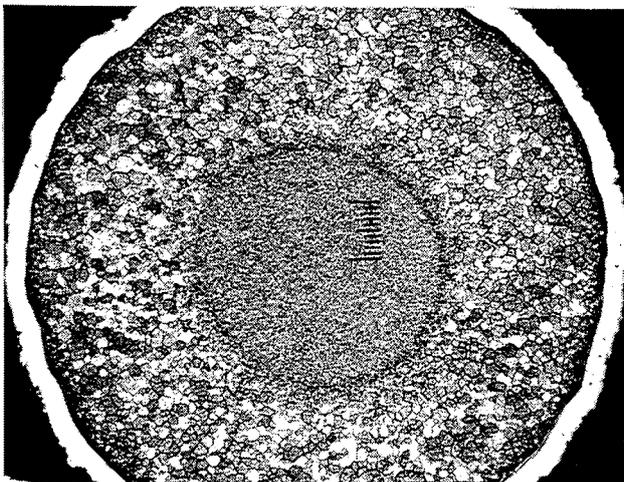


(a) Recuit 1300°C - 1 h

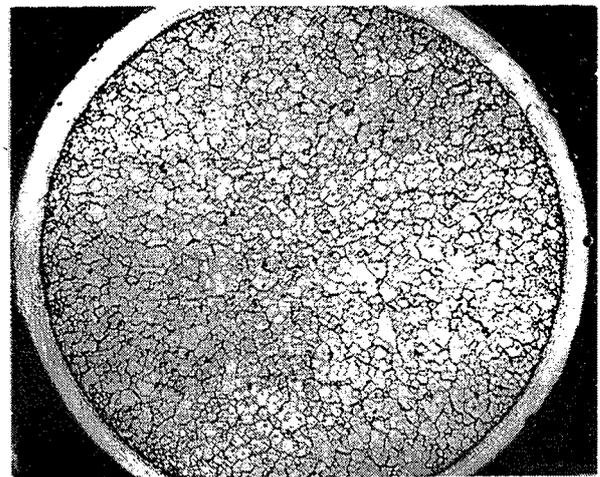


(b) Recuit 1300°C - 5 h

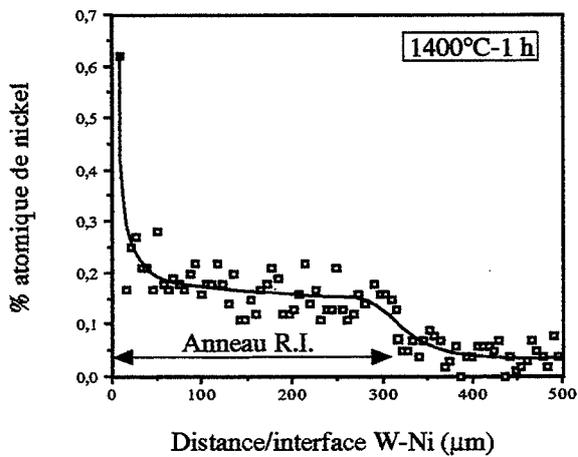
Figures III.20 a et b : Diffusion du nickel (à 1300°C) dans le fil de tungstène dopé.



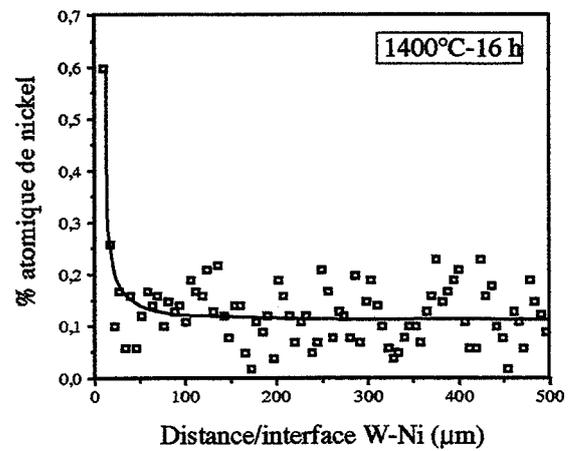
Micrographie III.1 : Section polie et attaquée.



Micrographie III.2 : Section polie et attaquée.



(a) Recuit 1400°C - 1 h



(b) Recuit 1400°C - 16 h

Figures III.21 a et b : Diffusion du nickel (à 1400°C) dans le fil de tungstène dopé.

III.3.1 - b - Analyse du nickel dans le fil de tungstène

Nous avons donc recherché la présence de nickel à l'intérieur de l'anneau de recristallisation R.I. en décalant la sonde W.D.S. (volume analysé : $5 \times 0,6 \mu\text{m}^3$) le long du rayon du fil de l'interface W-Ni vers le coeur du fil.

Les mesures ont été prises sur des fils dopés nickelés ayant subis différents recuits :

- 1300°C - 1 h et 5 h
- 1400°C - 1 h et 16 h (*Micrographies III.1 et III.2*)

Pour un recuit à 1300°C :

- Pour 1 heure de recuit (*Figure III.20 a*), nous vérifions la présence effective de nickel à l'intérieur de l'anneau R.I. (épaisseur d'anneau égale à $\approx 190 \mu\text{m}$) donnant lieu à un profil caractérisé par une chute de concentration à l'endroit exact de l'interface anneau R.I.-coeur fibreux. Le nickel détecté à coeur ($\approx 0,05 \%$ at) est vraisemblablement dû au polissage.

A l'intérieur de l'anneau, la concentration en nickel oscille entre 0,1 et 0,2 % at. En retranchant la concentration parasite (0,05 % at), nous obtenons une concentration moyenne de 0,1 % at, valeur voisine de la limite de solubilité du nickel dans le tungstène ($\approx 0,09 \%$ at à 1300°C : *Figure III.17 b*).

La dispersion des mesures ne permet pas d'établir l'existence ou non d'un gradient de concentration en fonction de la profondeur de diffusion. En moyenne, nous pouvons considérer que la concentration en nickel est uniforme à l'intérieur de l'anneau.

- Pour 5 heures de recuit (*Figure III.20 b*), le fil est totalement recristallisé R.I.; la concentration en nickel est alors uniforme en tout point du fil.

Pour un recuit à 1400°C :

- Pour 1 heure de recuit (*Figure III.21 a*), le profil de concentration est similaire à celui obtenu avec le recuit effectué à 1300-1h si ce n'est que le nickel est détecté plus profondément : la chute de concentration se produisant à une profondeur ($\approx 300 \mu\text{m}$) coïncidant avec l'interface anneau R.I.-coeur fibreux.

La profondeur de diffusion du nickel équivaut donc à l'épaisseur de l'anneau R.I.

La dispersion des mesures ne permet toujours pas d'observer un gradient de concentration dans l'anneau R.I. en fonction de la profondeur de diffusion du nickel.

Entre 1300 et 1400°C, on observe une très légère augmentation de concentration en nickel dans l'anneau R.I. : valeur moyenne $\approx 0,12 \%$ at ($= 0,17 - 0,05$), valeur équivalente à la limite de solubilité du nickel dans le tungstène à 1400°C.

- Pour 16 heures de recuit (*Figure III.21 b*), on observe comme pour 5 heures de recuit à 1300°C une totale recristallisation R.I. du fil (*Micrographie III.2*) donnant lieu à la présence uniforme de nickel à l'intérieur du fil.

Malgré une dispersion importante des mesures, il semble que la concentration en nickel ne varie ni en fonction de la profondeur de diffusion (y) ni en fonction du temps de recuit puisque nous mesurons toujours une concentration voisine de la limite de solubilité.

III.3.1 - c - Analyse du nickel à l'intérieur des grains R.I.

L'analyse minutieuse (volume analysé : $\sim 1 \mu\text{m}^3$) de la concentration du nickel à l'intérieur des grains R.I. va permettre d'évaluer la répartition volumique du nickel et d'établir l'existence ou non d'un profil de diffusion du nickel à partir des joints de grains (Diffusion type B [Harrison 61]).

Pour cette étude, nous avons effectué un repérage préalable des grains à analyser : sur les sections polies et légèrement attaquées (H_2O_2 à chaud) des fils, quelques indentations par micro-dureté ont été effectuées de manière à repérer le trajet que devra suivre la microsonde, ce trajet (*Figure III.22 a*) correspondant au passage obligé de la sonde par un joint de grain. L'attaque chimique est ensuite effacée par un léger polissage qui évite de faire disparaître les repères de micro-dureté.

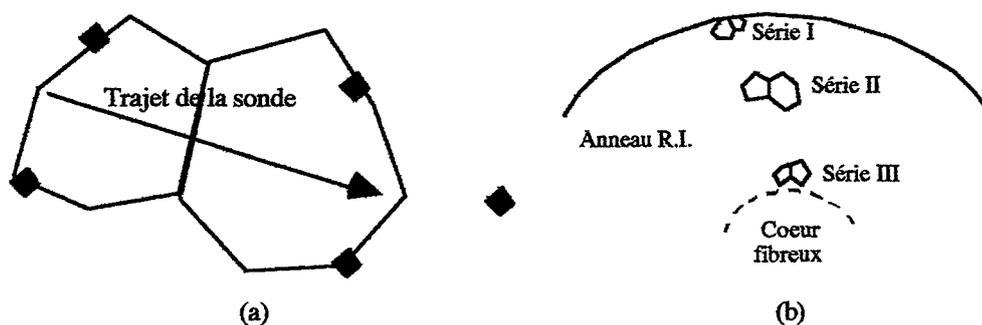


Figure III.22 : Schéma de principe pour l'analyse du nickel à l'intérieur des grains R.I.

Deux échantillons ont ainsi été analysés :
 - Fil recuit à 1400°C - 1 heure
 - Fil recuit à 1400°C - 16 heures

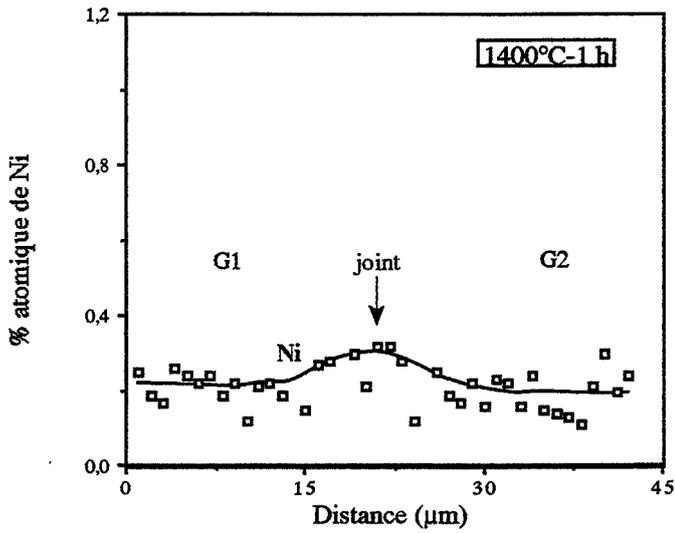
Ces deux échantillons se différencient microstructuralement :

- Le recuit de 1 heure donne lieu à un anneau R.I. d'épaisseur $300 \mu\text{m}$ et une taille de grains R.I. de $13,5 \mu\text{m}$ en moyenne (*Micrographie III.1*).
- Le recuit de 16 heures donne lieu à une totale recristallisation R.I. du fil et une taille des grains R.I. de $15,5 \mu\text{m}$ en moyenne (*Micrographie III.2*).

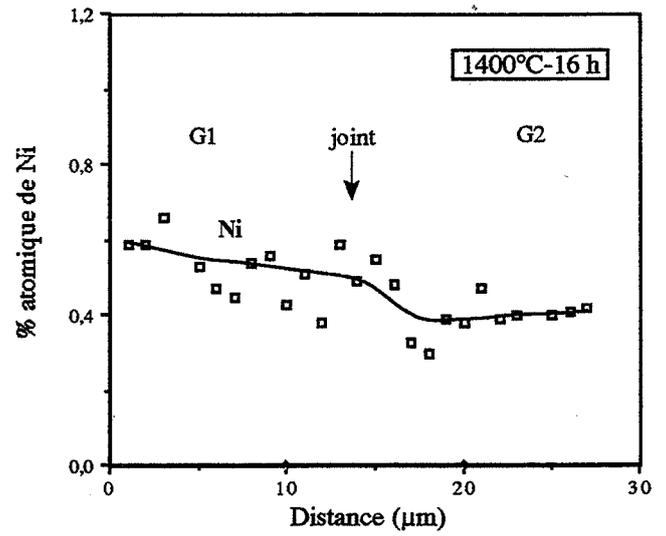
Trois séries de mesures ont été effectuées sur chaque fil (*Figure III.22 b*) correspondant à une position des grains de plus en plus éloignée de l'interface W-Ni. Ceci a pour but de déceler l'existence ou non d'un gradient de concentration (en nickel) des grains en fonction de la profondeur de diffusion.

Temps de recuit = 1 heure

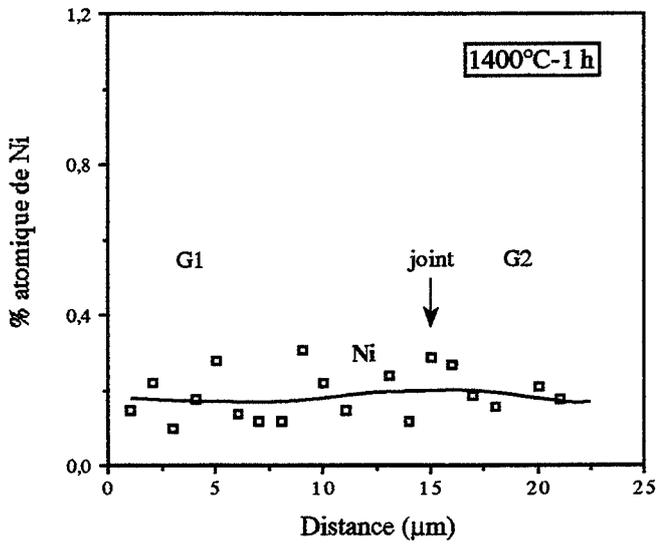
Temps de recuit = 16 heures



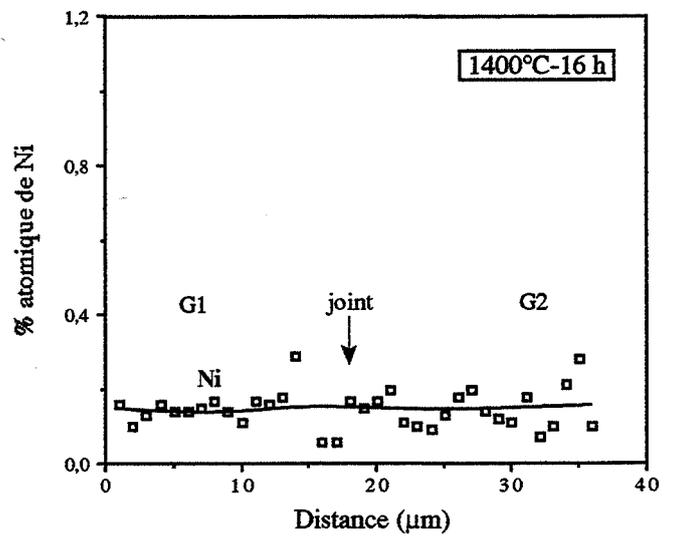
(a) A 30-80 μm de l'interface W-Ni



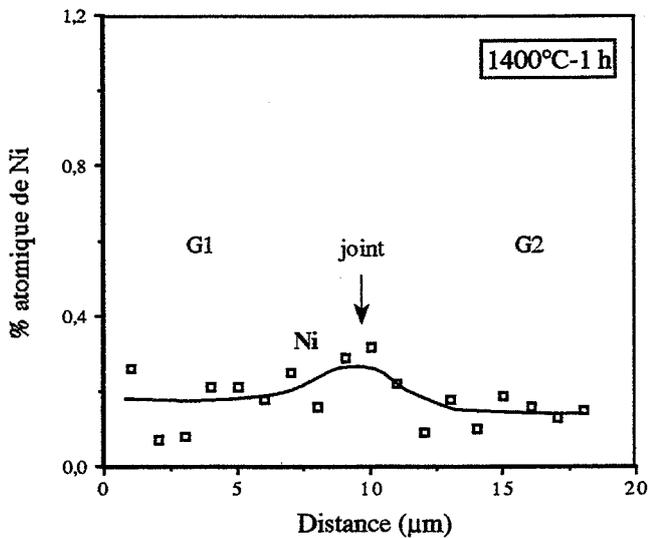
(α) A l'interface W-Ni



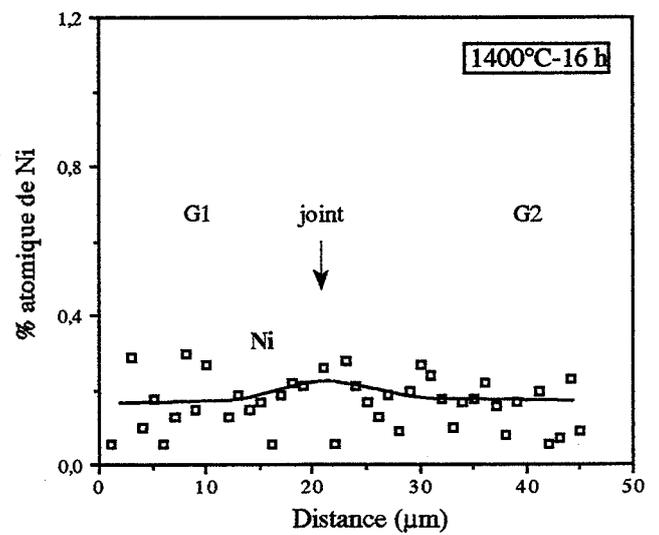
(b) A 100 μm de l'interface W-Ni



(β) A 50 μm de l'interface W-Ni



(c) A 110-130 μm de l'interface W-Ni



(γ) Au centre du fil

Figures III.23 a,b,c,α,β,χ : Concentration en nickel à l'intérieur des grains R.I.

Les profils de concentrations obtenus sont présentés sur les *figures III.23 (a,b,c)* pour 1 heure de recuit et (α, β, γ) pour 16 heures de recuit.

- On vérifie bien que les grains R.I. sont constitués d'une solution solide W/Ni à faible teneur en nickel (entre 0,16 et 0,2 % at ou plutôt entre 0,11 et 0,15 si on retranche les 0,05 % at (voir § précédent)).
- La concentration en nickel est **uniforme** dans le grain R.I. et n'évolue pas avec la profondeur de diffusion du nickel.

Toutefois, on remarque avec la *figure III.23 α* (recuit à 1400°C - 16 h), que les grains qui touchent l'interface W/Ni ont une concentration en nickel légèrement supérieure (0,45 à 0,55 % at), concentration supérieure à la limite de solubilité. Ces grains se situent dans la zone de diffusion volumique dont l'épaisseur a été évaluée précédemment à 4-5 μm .

Ceci indique une sursaturation en nickel donnant lieu probablement à la formation de précipités type WNi ou NiW₂ non visibles.

- Cette méthode n'a pas permis de détecter la présence de nickel aux joints des grains (diffusion intergranulaire) sous forme d'un pic de concentration à l'aplomb des joints de grains. Toutefois, on distingue parfois, sur certains profils, une très légère augmentation de la concentration (de 0,2 à 0,3 % at) à l'aplomb du joint.

La faible détection du nickel (à l'aplomb des joints) résulte vraisemblablement d'un effet de moyenne due à la finesse du joint (volume $\approx 100 \text{ nm} \times (1 \times 0,6) \mu\text{m}^2$) comparativement au volume analysé par la microsonde ($\approx 1 \mu\text{m}^2 \times 0,6 \mu\text{m}$) (*Figure III.24*).

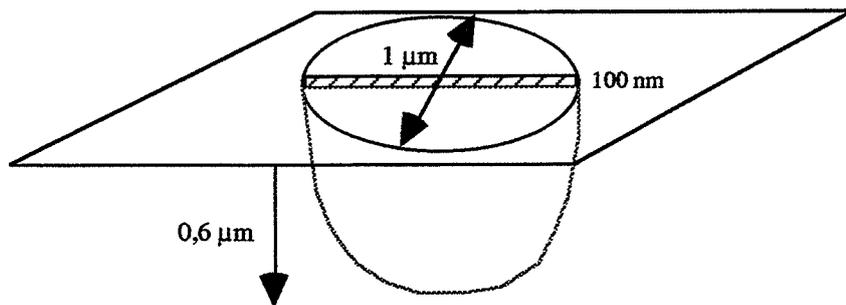
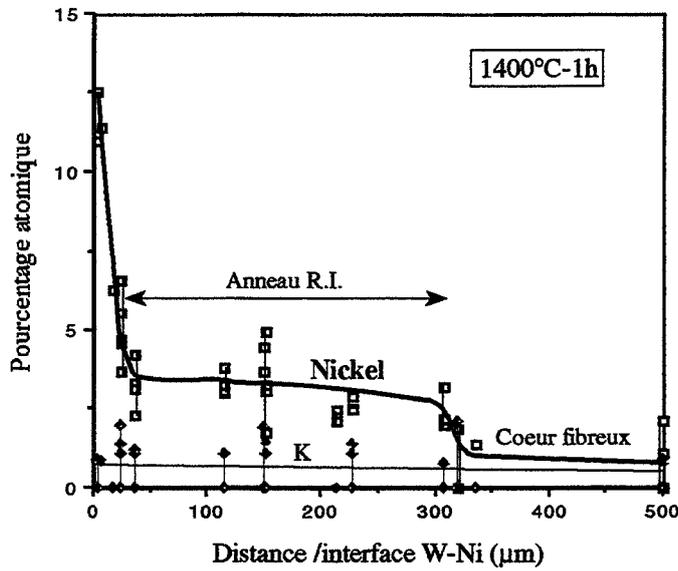
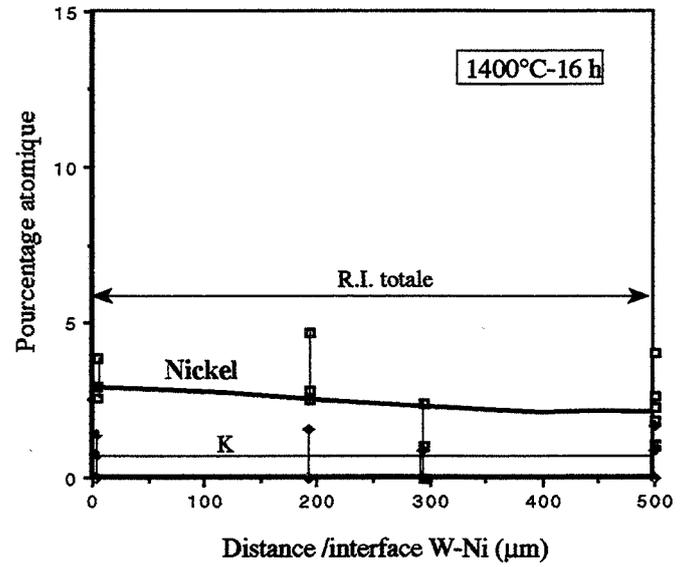


Figure III.24 : Microanalyse sur surface polie à l'aplomb d'un joint de grain.

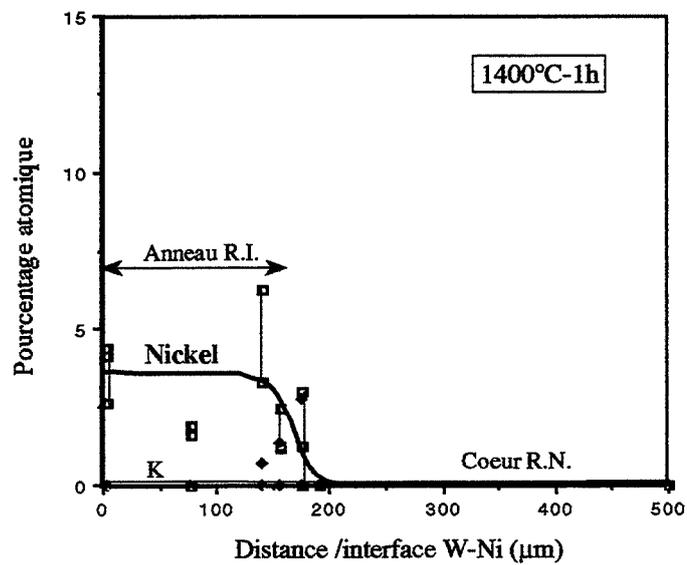


(α) Recuit à 1400°C- 1 heure



(β) Recuit à 1400°C- 16 heures

(a) Fil dopé



(b) Fil pur

Figures III.25 a et b : Microanalyse E.D.S des joints de grains du fil de tungstène. (sur surfaces de rupture)

III.3.1 - d - Analyse du nickel aux joints des grains du tungstène

- Microanalyse E.D.S des joints de grains -

Avec la microsonde E.D.S., nous avons cherché à détecter la présence du nickel aux joints des grains R.I. en analysant les surfaces de rupture (semi-)intergranulaire obtenues suite aux essais de traction à l'ambiante (§ II.1)

Les mesures ont été prises sur :

- Deux fils dopés recuits à 1400°C :
 - l'un pendant 1 heure (*Figure III.25 aα*) : Anneau R.I. (300 μm) et coeur fibreux.
 - l'autre pendant 16 heures (*Figure III.25 aβ*) : fil totalement recristallisé R.I.
- Un fil pur recuit à 1400°C - 1 heure (*Figure III.25 b*) : Anneau R.I. (190 μm) et coeur R.N.

Etant donné les faibles concentrations en nickel, plusieurs mesures ont été effectuées en chaque point d'où les barres d'erreur. Nous avons, cependant, pu vérifier la présence de nickel aux joints des grains de l'anneau R.I. pour les fils (dopé et pur) recuits à 1400°C-1 heure et en tout point du fil pour le fil recuit 16 heures. La concentration en nickel mesurée y est en moyenne constante (environ 3-4 % at) aussi bien sur le dopé que le pur, indépendamment du temps de recuit et de la profondeur de diffusion.

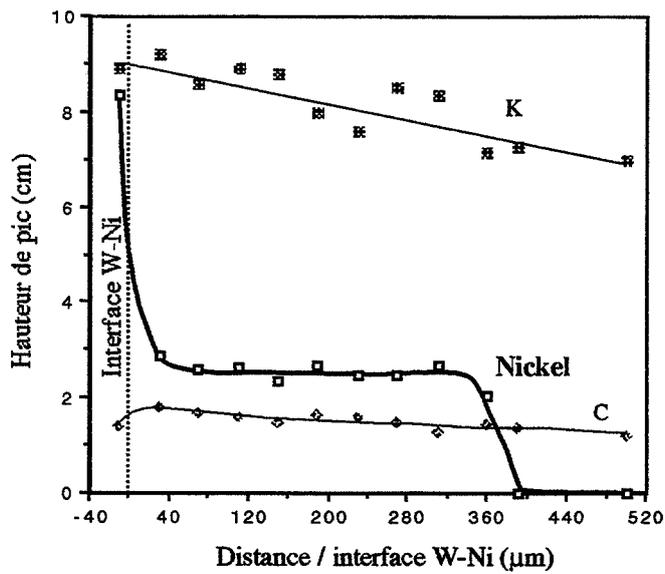
Remarque :

Le dosage simultané du potassium prouve l'assez bonne fiabilité de cette technique pour la mesure des très faibles concentrations puisque l'on vérifie bien que :

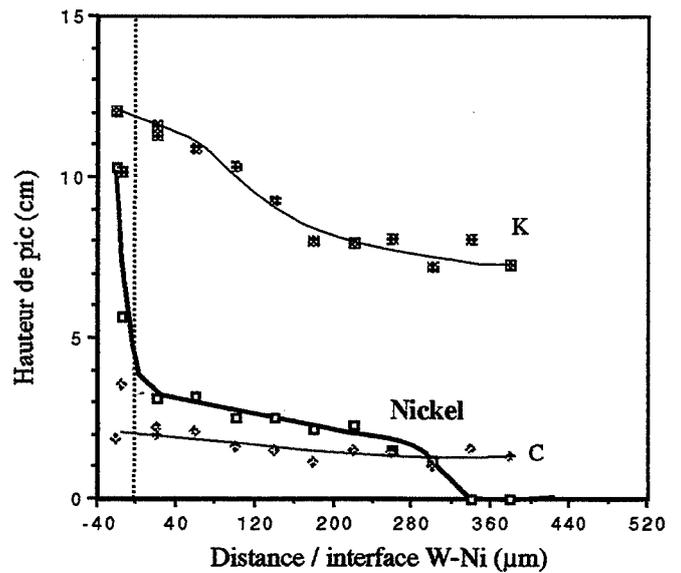
- *En moyenne, la concentration en potassium est constante dans les fils et indépendante du temps de recuit .*
- *La ségrégation du potassium dans les fils "purs" est quasiment nulle (en volume, les fils purs ne contiennent que 10 ppm pds au lieu de 70 ppm pds pour les dopés d'après l'analyse chimique § II.1).*

- Analyse par spectrométrie Auger -

La spectrométrie en électrons Auger permettant une analyse semi-quantitative des premières couches atomiques de la matière est toute indiquée pour vérifier la présence du nickel aux joints des grains et donc sa diffusion intergranulaire. L'anneau de recristallisation R.I. rendant le fil très fragile et donnant lieu à une rupture intergranulaire partielle à température ambiante, permet donc une analyse aisée des éléments présents aux joints de grains R.I. Pour éviter toute contamination de la surface l'éprouvette est rompue in-situ sous ultra-vide. La sonde (volume analysé $< 2.10^{-3} \mu\text{m}^3$) est déplacée de la périphérie vers le coeur du fil tous les 40 μm environ.



(a) Echantillon A



(b) Echantillon B

Figures III.26 a,b : Analyse en spectrométrie Auger des éléments ségrégués aux joints des grains R.I. de fils dopés recuits à 1400°C-1 h.

Les fils analysés sont des fils dopés recuits à 1400°C-1 heure (Anneau R.I. et Coeur fibreux) : échantillons A et B.

Sur les figures III.26 a et b, nous avons donné une représentation pseudo-quantitative des éléments présents aux joints de grains, obtenue à partir de spectres en mode dérivé ($E.N'(E_c) = f(E_c)$), par la mesure des hauteurs des pics de référence (Tableau III.2) (l'intensité (ou nombre N) d'électrons Auger d'énergie cinétique E_c étant proportionnelle à la concentration de l'élément donnant le pic). Pour ces mesures, nous avons utilisé un dispositif Auger caractérisé par la coaxialité du canon à électron et de l'analyseur (miroir cylindrique type C.M.A. Riber), la face analysée étant perpendiculaire au faisceau incident

Eléments	E_c des pics mesurés (ev)
	Spectre dérivé $E_p = 3 \text{ Kev}$
W	176
Ni	848
K	252
P	120
C	272
O	510

Tableau III.2 : Energies des pics de référence.

Nous n'avons pas pu quantifier la concentration des éléments aux joints en raison du manque de précision qu'aurait donné l'utilisation de la méthode de Palmberg [73].

En effet, cette méthode suppose que :

- Le matériau est homogène sur tout le volume analysé.

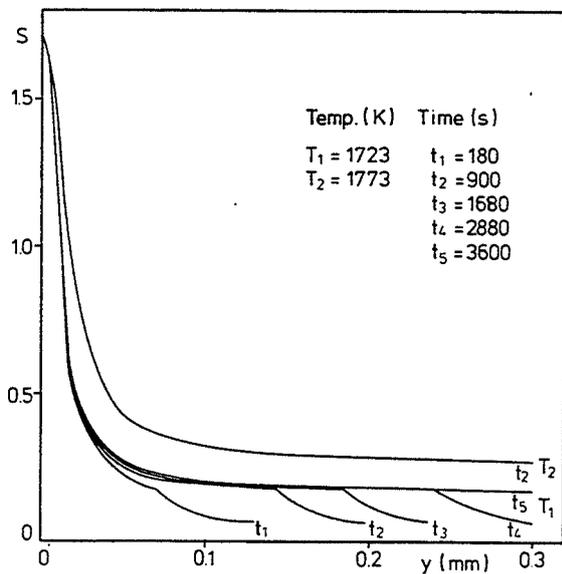
Or, la ségrégation intergranulaire ne mettant en jeu que quelques couches atomiques, cette condition ne peut être appliquée à notre système.

- Le libre parcours moyen des électrons Auger ainsi que les facteurs de rétrodiffusion doivent être similaires pour tous les éléments.

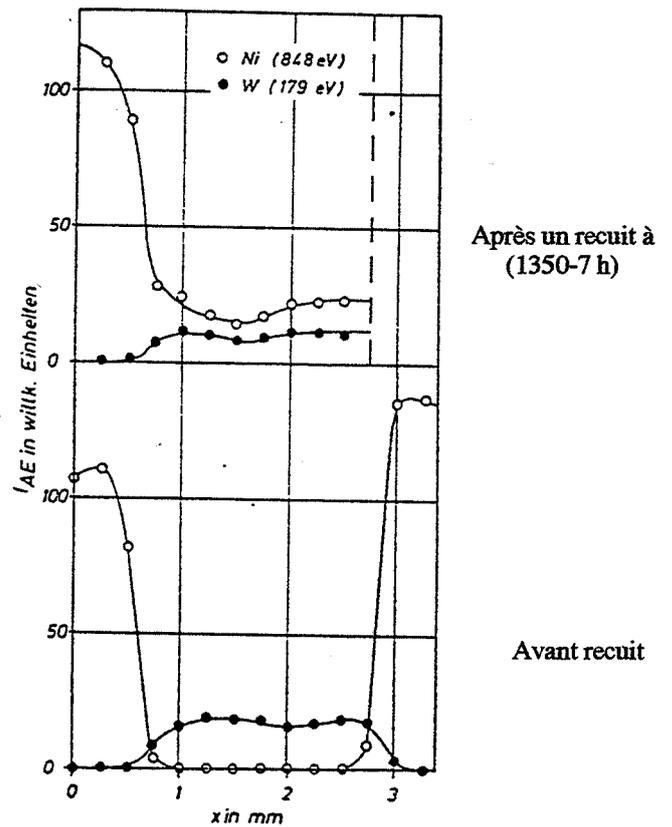
Ces conditions ne sont, là aussi, pas vérifiées, le libre parcours moyen du nickel étant nettement supérieur à ceux des autres éléments (le libre parcours moyen est fonction de la racine carré de l'énergie du pic de référence) et les facteurs de rétrodiffusion différents.

Ces analyses mettent en évidence une forte ségrégation de potassium (K), une ségrégation de carbone (C), d'oxygène (O), de phosphore (P) (parfois) et la présence de nickel (Ni) uniquement aux joints de la structure recristallisée R.I. à un taux quasi-constant à l'intérieur l'anneau R.I.

Remarque : Signalons que, d'après l'analyse chimique des fils (fournies par Plansee), les éléments K, C, P, O et Ni sont des impuretés des fils de tungstène aux taux respectifs de 70 (pour le fil dopé), 50, 30, 30, 20 ppm poids.



(a) Fil ($\phi = 0,6$ mm) [Kozma-Hening 1982]



(b) Fil ($\phi = 0,3$ mm) [Hofman et coll. 1974]

Figures III.27 a et b : Profils de diffusion intergranulaire du nickel dans un fil de tungstène obtenus en spectrométrie Auger.

Le profil de nickel (*Figure III.26 a*) est en accord avec les données bibliographiques [NIEH 1984, KOZMA-HENING 1982, HOFFMANN et coll. 1974] : concentration en nickel à peu près constante dans tout l'anneau R.I. avec chute brutale au niveau du front de recristallisation (*Figure III.27 a et b*).

On prouve ainsi que la profondeur de diffusion est égale à l'épaisseur de l'anneau de recristallisation R.I. ($\approx 300 \mu\text{m}$ pour un recuit à $1400 - 1 \text{ h}$) et la concentration aux joints quasi-indépendante de la profondeur de diffusion (excepté à l'approche du front de diffusion).

Si on peut parler de ségrégation pour l'oxygène, le carbone et le phosphore, il n'en va certainement pas de même pour le nickel et le potassium puisque l'analyse par microsonde E.D.S. a permis de détecter ces deux éléments à la surface des joints. On peut donc considérer que ces deux éléments sont présents sur plusieurs couches atomiques.

Suite à une abrasion-Augér de 1 heure (15 nm/min), on ne détecte plus que du tungstène à la surface des joints. On en déduit donc que le nickel comme le potassium est présent aux joints de grains sur une épaisseur inférieure à 100 nm .

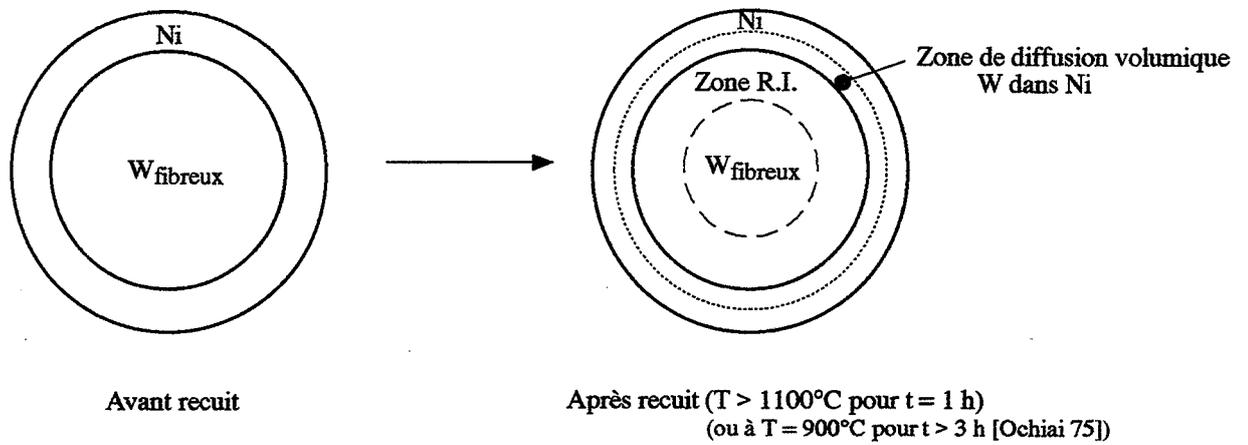


Figure III.28 : Réaction interfaciale sur un fil de tungstène nickelé.

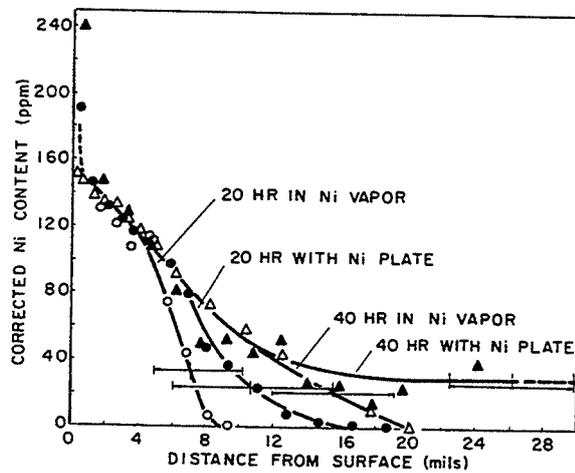


Figure III.29 : Profils de diffusion du nickel dans un fil dopé (40 ppm de K, $\phi = 1,65\text{ mm}$)
 (méthode spectrophotométrique : analyse volumique) [Friedmann-Brett 68]

Discussion - conclusion partielle

Ces analyses nous permettent donc d'établir les données suivantes sur la réaction interfaciale W-Ni :

- La réaction interfaciale W-Ni conduit, en raison de l'interdiffusion, à la formation de deux zones (*Figure III.28*) :
 - Une zone de Recristallisation Induite fragilisante à l'intérieur du fil de tungstène formant un anneau R.I.
Cet anneau recristallisé apparaît à une température supérieure ou égale à 1100°C ($t_{\text{recuit}} = 1 \text{ h}$) et donne lieu à une rupture intergranulaire.
 - Une zone de diffusion durcissante dans le dépôt de nickel : diffusion volumique du tungstène dans le nickel qui s'initie vers 800-900°C ($t_{\text{recuit}} = 1 \text{ h}$).
- L'épaisseur de l'anneau R.I. équivaut à la profondeur de pénétration du nickel.
Ceci montre donc la quasi-simultanéité de la recristallisation R.I. avec la diffusion du nickel. Notons par ailleurs qu'une autoradiographie réalisée par KOZMA-HENING [1981] (sur un fil de tungstène nickelé) indique que la diffusion du nickel ne précède que très légèrement l'avance du front de recristallisation.
- L'anneau R.I. présente, en volume, une teneur en nickel uniforme (en moyenne) en tout point car les grains R.I. de forme équiaxe sont constitués d'une solution solide W(Ni).
La teneur en nickel de cette solution solide est très faible, proche de la limite de solubilité qui pour des températures de recuit inférieures ou égales à 1400°C, est inférieure ou égale à 0,125 % at. Cette teneur ne varie pas en fonction du temps de recuit.
Contrairement à FRIEDMANN-BRETT [1968] (analyse volumique du nickel tranche par tranche : *Figure III.29*), nous n'avons pas visualisé (par la méthode W.D.S.) de gradient de concentration en fonction de la profondeur de pénétration.
- Le nickel est aussi présent aux joints de grains R.I.
Ceci a été vérifié aussi bien par spectrométrie Auger que par microsonde E.D.S.
 - * La présence de nickel aux joints des grains ne peut résulter d'un phénomène de ségrégation car l'analyse des joints de grains par microsonde E.D.S. a permis sa détection à une teneur non négligeable (3-4 % at). La présence de nickel est donc bien liée à un phénomène de diffusion intergranulaire.
Le nickel n'est donc pas sous forme d'une monocouche atomique aux joints des grains comme le supposaient HOFFMAN et coll. [1974]. L'épaisseur de nickel aux joints est vraisemblablement plus proche de 50 à 100 nm.

Cette valeur est intermédiaire avec d'autres estimations : 4 nm [NIEH 1984], 240 nm (tout en estimant qu'il s'agit d'une surestimation) [MOON-OH-KIM 1989] ou encore 1000 nm [GEGUZIN-KIBETS 1973 cités par MOON-OH-KIM 1989].

- * Ceci amène alors à se demander sous quelle forme se présente le nickel aux joints des grains: atomique, composé intermétallique ou film ayant les propriétés d'un nickel massif ? KOZMA-HENING [1972], ayant observé une augmentation de la quantité de nickel aux joints (donc de l'épaisseur du film riche en nickel) avec le temps de recuit (comme pour le frittage en phase liquide), considèrent qu'un recuit prolongé induit une accumulation de nickel aux joints qui peut conduire à la formation de la phase NiW_2 (ou à caractère NiW_2).

Toutefois en accord avec NIEH [1984], nous n'avons pas réussi à mettre en évidence, par diffraction aux R.X., la formation de composés intermétalliques W-Ni pour un temps de recuit inférieur ou égal à 5 heures.

La présence de nickel aux joints des grains est plus vraisemblablement sous forme atomique sans formation de film ayant les propriétés du nickel massif [GESSINGER-FISCHMEISTER 1972].

- * L'analyse des joints de grains par spectrométrie Auger ne nous a pas permis de quantifier la concentration de nickel aux joints.

D'après NIEH [1984], la concentration en Ni sur la surface de rupture (1400°C-1h) serait égale à 30-40 % at, ce qui correspondrait d'après la loi empirique établie par [SEAH-HONDROS 1973] : $\beta \approx (1 \text{ à } 10) / C_{Ni}^s$ à un enrichissement du joint supérieur à 100.

C_{Ni}^s étant la limite de solubilité du nickel dans le tungstène soit 0,125 % at à 1400°C, nous vérifions qu'il y a, en effet, un enrichissement en nickel aux joints de 800 à 8000 (soit un ordre de grandeur de 10^2 à 10^3).

Toutefois, nous avons pu vérifier, outre le nickel, la présence intergranulaire d'un certain nombre d'impuretés : Phosphore (ségrégation fragilisante pour le tungstène), carbone, oxygène, potassium (uniquement sur les fils dopés). Si la présence de phosphore, carbone, oxygène peut résulter d'un phénomène de ségrégation, il n'en va pas de même pour le potassium puisqu'il est détectable par la microsonde E.D.S.

Rappelons que le potassium insoluble dans le tungstène est initialement présent dans les fils de tungstène sous forme de fines particules alignées en rangées le long des joints des fibres. Lors du recuit, le potassium se volatilise et forme des bulles aux joints des grains (§ II.1.1).

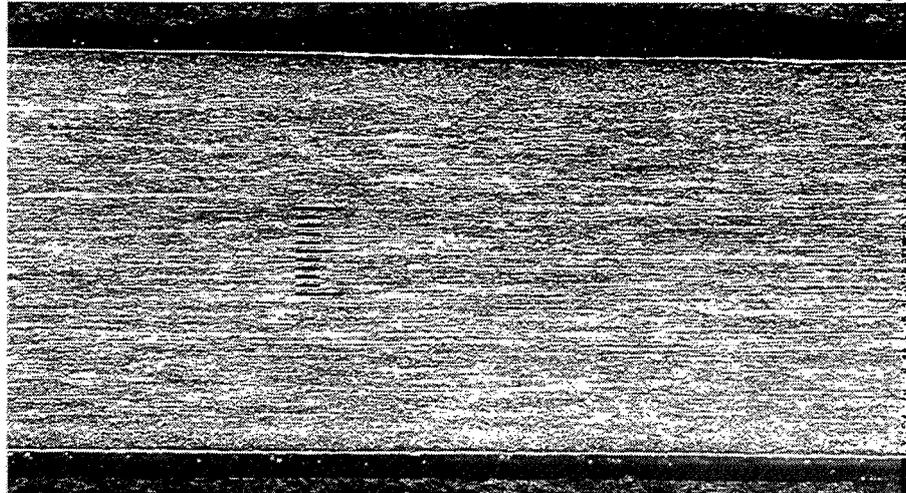
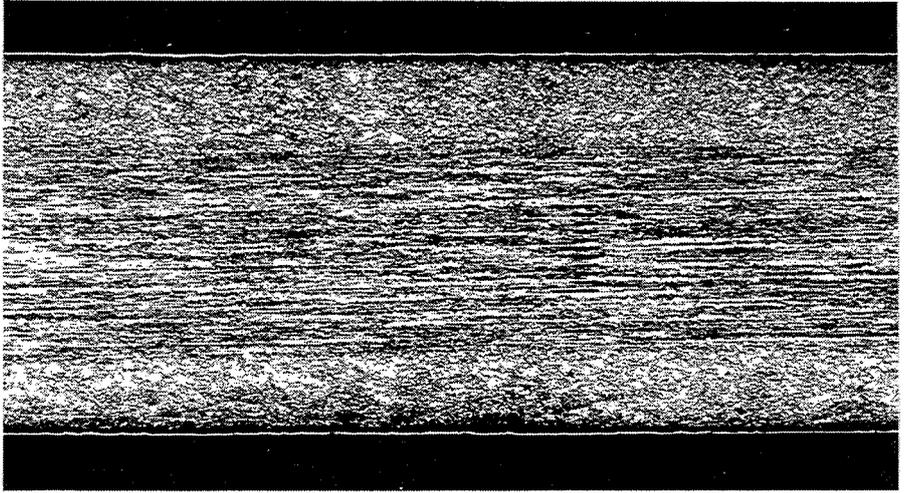
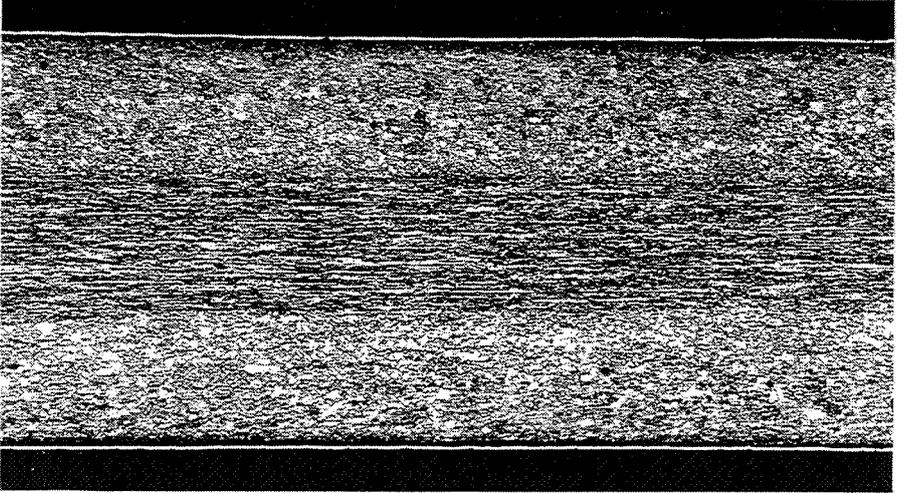
Température de recuit (Temps de recuit = 1 h)	Fil DOPE
1200°C	
1300°C	
1400°C	

Planche micrographique III.3 : Progression de la R.I. en fonction de la température de recuit sur coupes longitudinales des fils dopés.

III.3.1 - e - Etude de la propagation du front R.I.

Etant donné que l'avance du front R.I. est simultanée à la diffusion du nickel (voir § précédent), nous aborderons l'étude (cinétique et énergétique) de la diffusion intergranulaire du nickel à travers l'avance du front R.I. par l'intermédiaire des mesures d'épaisseur d'anneau R.I. Cette étude sera menée sur des fils de tungstène **dopé** et **pur** afin d'évaluer l'influence du dopage, de la température (1100 à 1400°C) et du temps de recuit (1 à 5 heures).

- Avance du front R.I. en fonction de la température de recuit -

Nous avons étudié l'avance du front de recristallisation R.I. sur fils dopés et purs en fonction de la température de recuit pour les températures comprises entre 1100 et 1400°C (le temps de recuit étant fixé à 1 heure)(*Planche micrographique III.3*).

Les mesures d'épaisseur d'anneau R.I. ont été prises sur des faciès de rupture des fils recuits (en microscopie électronique à balayage).

La *figure III.30* permet de constater une évolution de type exponentielle de l'épaisseur de l'anneau de recristallisation en fonction de la température de recuit pour les deux types de fils :

- La recristallisation R.I. apparaît entre 1000 et 1100°C aussi bien sur les fils **purs** que **dopés**.
- Vers 1300°C, nous observons une inversion des tendances entre fil pur et fil dopé :

Pour $T < 1300^\circ\text{C}$, l'avance du front R.I. est plus rapide sur le fil pur.

Mais pour $T \geq 1300^\circ\text{C}$, on observe un ralentissement sur le fil pur (comparativement au fil dopé).

Ce ralentissement sur le fil pur coïncide avec un changement microstructural du coeur du fil : recristallisation R.N. ("normale" voir § II.1.1). La recristallisation R.N. se différencie de la recristallisation R.I. par une différence de taille des grains : les grains R.N. sont nettement plus petits que les grains R.I.

Le coeur des fils dopés, par contre, conservent à toute température une microstructure fibreuse grâce à la présence intergranulaire (fibres) de bulles de potassium qui bloquent la migration des joints de grains (§ I.2.1)).

On en conclut donc que :

- Le dopage, s'il est efficace vis à vis de la recristallisation R.N. (dans ce domaine de température), ne permet pas, en revanche, de retarder l'apparition de la R.I. (la température d'apparition de R.I. étant identique sur fil pur et dopé).
- La recristallisation R.N. du coeur freinant l'avance du front de recristallisation R.I., il se crée donc un phénomène de **compétition** entre R.I. et R.N. pour $T_{\text{recuit}} \geq 1300^\circ\text{C}$.
- Le dopage ne modifie que **faiblement** la cinétique d'avance du front de recristallisation R.I. (entre 1100 et 1300°C). De plus, en évitant la R.N. du coeur, il favorise, au contraire, l'avance du front de recristallisation sur les fils dopés (comparativement aux fils purs).

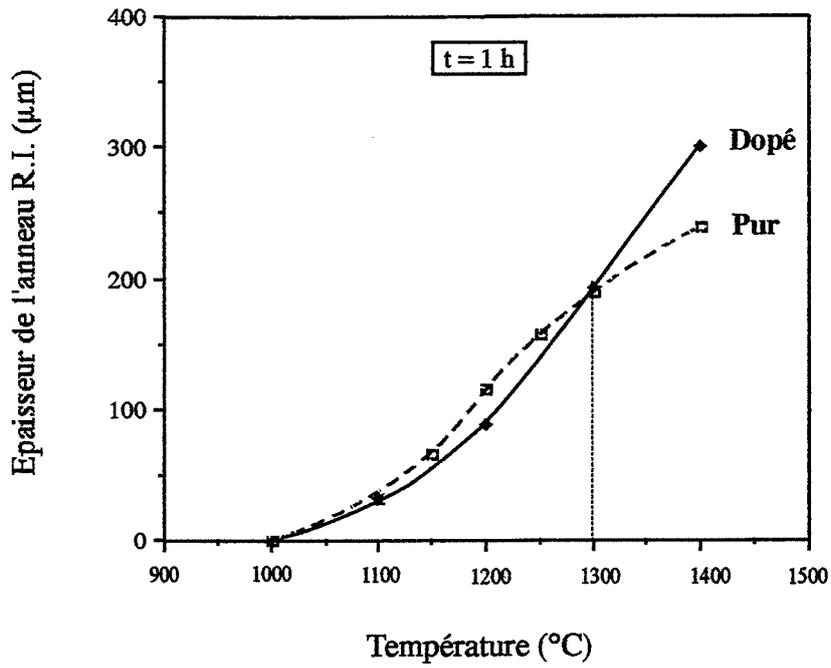


Figure III.30 : Avance du front de recristallisation R.I. en fonction de la température de recuit sur un fil de tungstène pur et un fil de tungstène dopé.

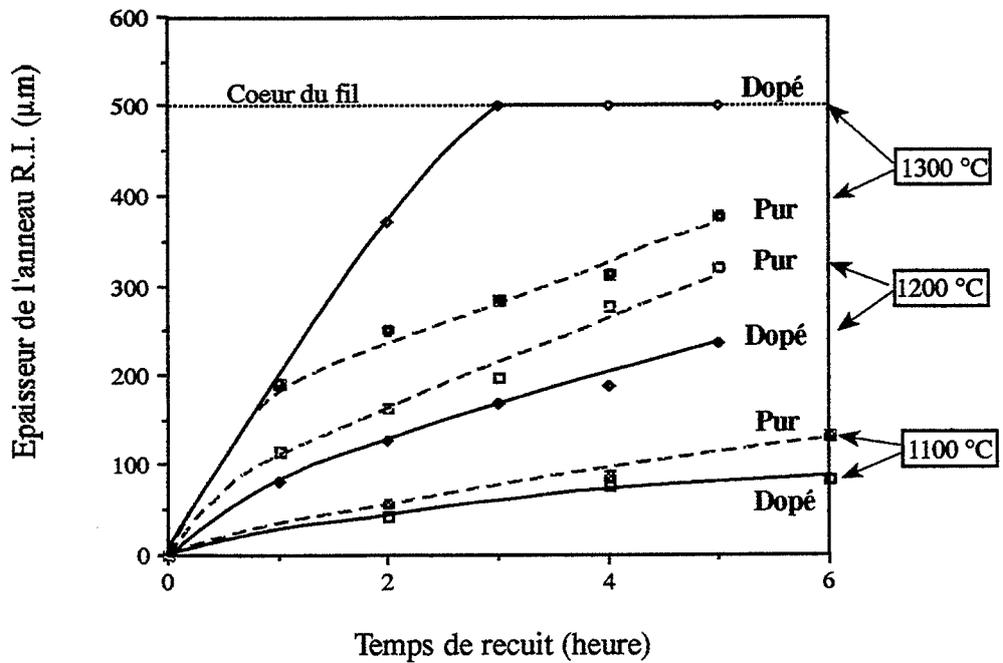


Figure III.31 : Avance du front de recristallisation en fonction du temps de recuit pour trois températures.

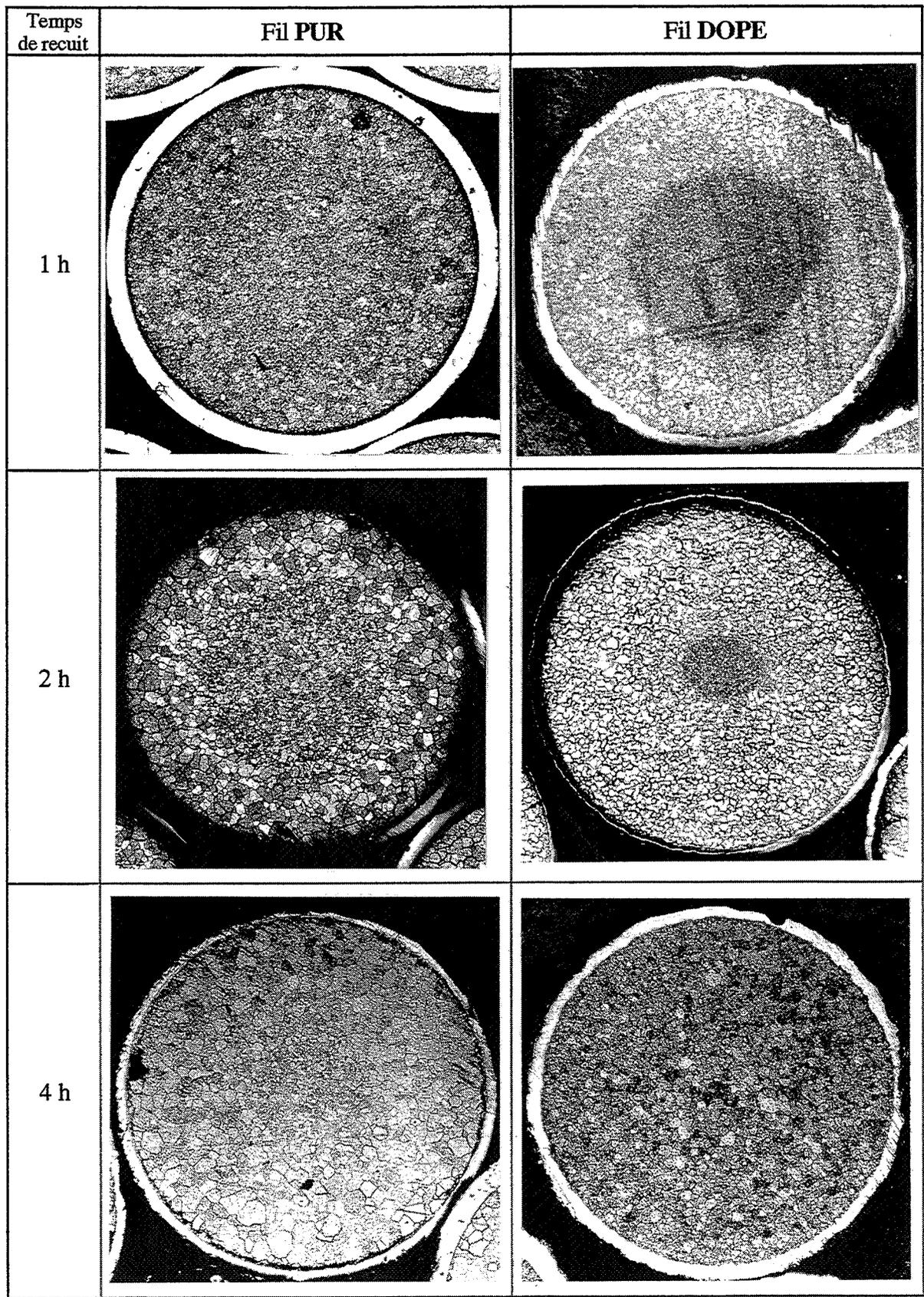
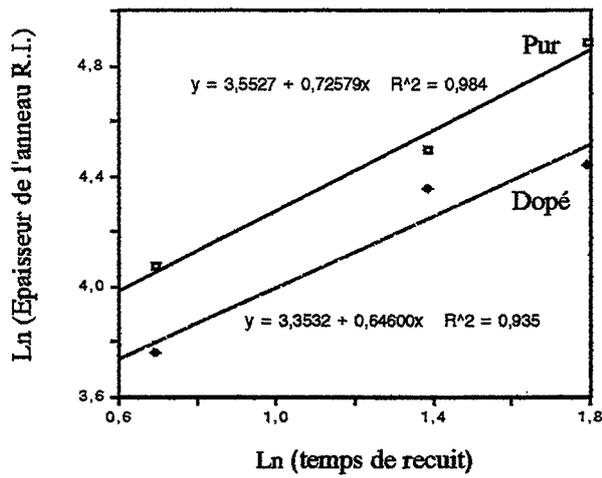
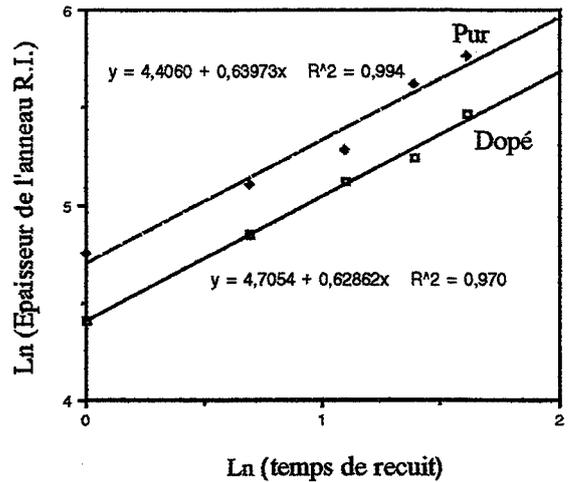


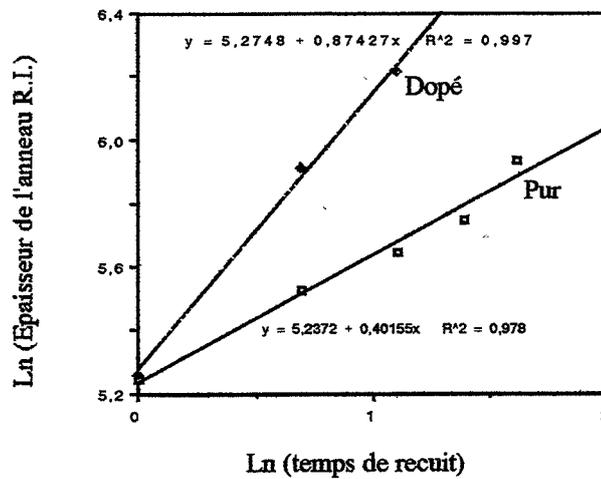
Planche micrographique III.4 : Evolution microstructurale des fils purs et dopés nickelés en fonction du temps de recuit pour une température de 1300°C.



(a) Pour $T_{\text{recuit}} = 1100^{\circ}\text{C}$

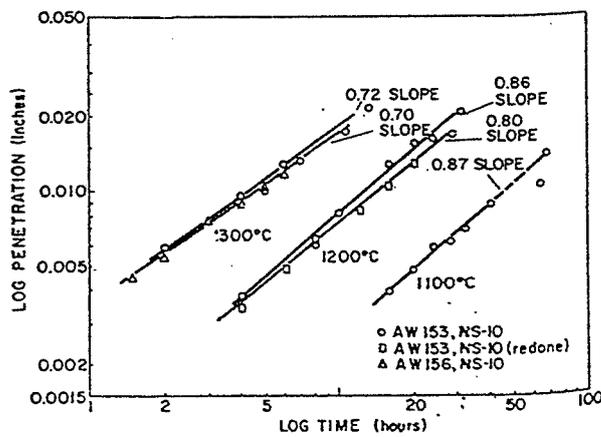


(b) Pour $T_{\text{recuit}} = 1200^{\circ}\text{C}$

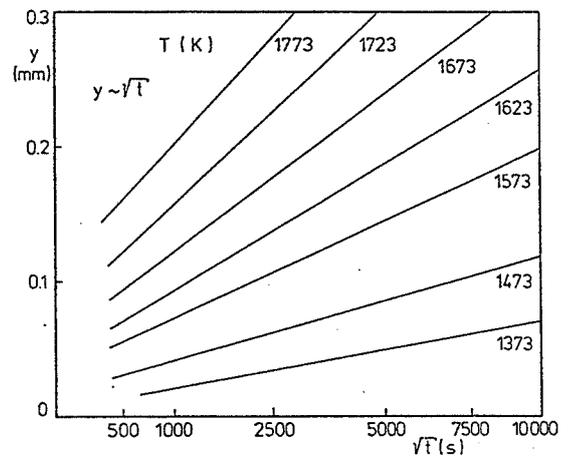


(c) Pour $T_{\text{recuit}} = 1300^{\circ}\text{C}$

Figures III.32 a, b, c : Cinétique de la recristallisation R.I.



(a) [Montalbano-Brett et coll. 1968]



(b) [Kozma-Hening 1982]

Figures III.33 a, b : Cinétique de la recristallisation R.I. (bibliographie)

- Cinétique d'avance du front R.I. -

L'étude cinétique de l'avance du front R.I. concerne trois températures de recuit : 1100, 1200 et 1300°C avec des temps de recuit variant entre 1 et 5 heures (*Planche micrographique III.4*).

La *figure III.31* permet donc de suivre l'évolution du front R.I. en fonction du temps de recuit pour chaque température aussi bien sur fil pur que sur fil dopé. On observe :

- Une confirmation de l'inversion des tendances qui se produit entre 1200 et 1300°C, la durée de recuit ne faisant qu'accentuer l'écart entre fil pur et dopé.
- Le ralentissement du front de recristallisation R.I. sur le fil pur se produit pour un temps de recuit légèrement supérieur à 1 heure (T = 1300°C). L'observation des faciès de rupture confirme que ce ralentissement coïncide avec la recristallisation R.N. totale du coeur des fils purs. Pour cette raison, sur le fil pur, la recristallisation R.I. totale du fil n'est jamais observée.
- Sur le fil dopé, pour un recuit de 1300°C-3 heures, le front de recristallisation atteint le coeur du fil. Le fil est donc entièrement recristallisé R.I.

- Lois cinétiques -

Les mesures d'épaisseur d'anneau de recristallisation R.I. (E_p) vont nous permettre de déterminer les lois puissances qui régissent les cinétiques d'avance du front de recristallisation R.I. (*Planche micrographique III.4*) :

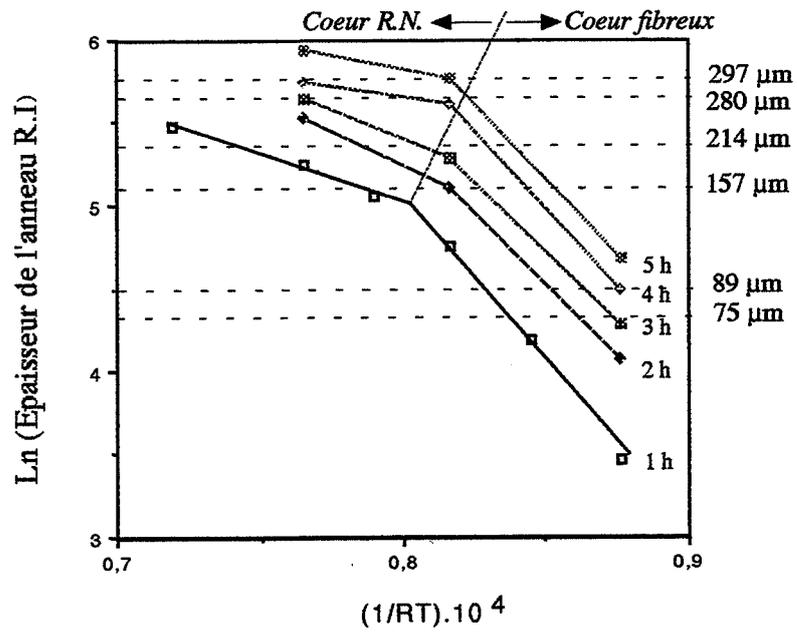
$$E_p \propto t^m$$

En traçant $\ln(E_p) = f(\ln(t))$ (*Figures III.32 a,b,c*), la pente des droites obtenues nous suggèrent les valeurs de m suivantes pour chaque nature de fil et chaque température de recuit (*Tableau III.3*) :

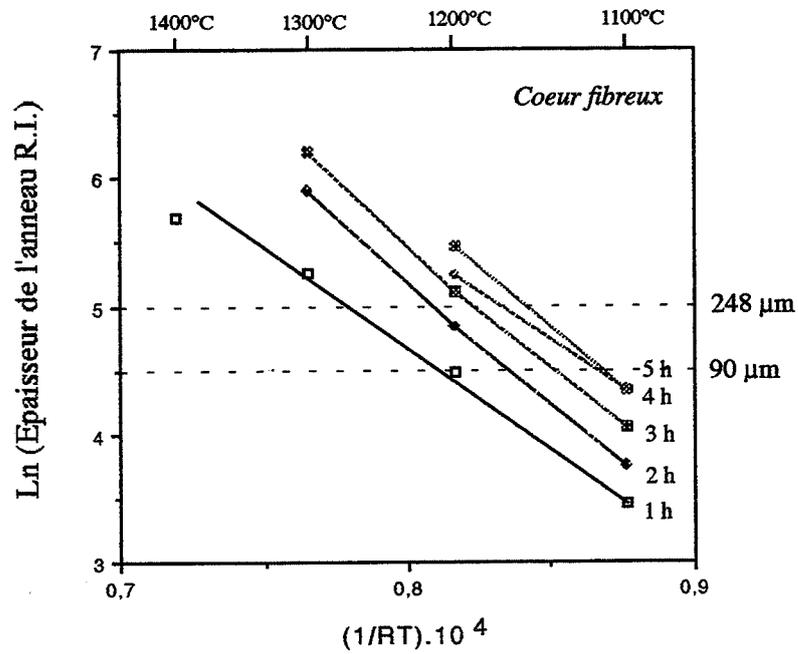
Température de recuit (°C)	m_{Pur}	$m_{\text{Dopé}}$
1100	0,72 Coeur fibreux	0,64 Coeur fibreux
1200	0,64 Début de R.N. à coeur pour $t \geq 2$ h	0,63 Coeur fibreux
1300	0,4 Coeur R.N.	0,87 Coeur fibreux

Tableau III.3 : Cinétique de diffusion du nickel ou avance du front R.I. dans un fil de tungstène.

- * Pour le fil dopé qui ne subit pas de transformation microstructurale à coeur, nous constatons :
 - Une cinétique d'avance du front R.I. identique à 1100 et 1200°C.
 - Une accélération de l'avance du front R.I. à 1300°C.
- * Pour le fil "pur" qui subit une recristallisation R.N. à coeur vers 1300°C, on observe au contraire un ralentissement dans l'avance du front de recristallisation R.I. (à 1300°C).



(a) Pour le fil de tungstène pur



(b) Pour le fil de tungstène dopé

Figures III.34 a, b : Epaisseur de l'anneau R.I. en fonction de la température (pour différents temps de recuit).

- Nos valeurs de m ne sont pas en accord avec celles obtenues par MONTELBANO-BRETT et coll. [1968]. En effet, avec des fils de tungstène dopé au silicate d'aluminium (et non au potassium, $\phi = 1,65$ mm), ils obtiennent une loi en $t^{0,87}$ à 1100°C , $t^{0,8-0,86}$ à 1200°C et $t^{0,72}$ à 1300°C (Figure III.33 a). Signalons que leurs valeurs concernent des fils ayant des teneurs en impuretés différentes des nôtres. En outre, leurs lois ont été établies avec des temps de recuit plus longs ($15 < t_{\text{recuit}} < 70$ heures pour 1100°C , $3 < t_{\text{recuit}} < 30$ heures pour 1200°C et $2 < t_{\text{recuit}} < 10$ heures pour 1300°C).
- KOZMA-HENING [1982] ont obtenu, quant à eux, une avance du front R.I. en \sqrt{t} (soit $m = 0,5$) sur des fils de composition chimique sensiblement identique à celle de nos fils dopés mais de diamètre plus petit ($\phi = 0,6$ mm) (Figure III.33 b).

- Energies d'activation -

L'avance du front de recristallisation R.I. étant liée à la diffusion du nickel dans la microstructure fibreuse, elle suit donc une loi d'Arrhénius permettant d'évaluer une énergie d'activation apparente (Q) :

$$V = V_0 \exp(-Q/RT)$$

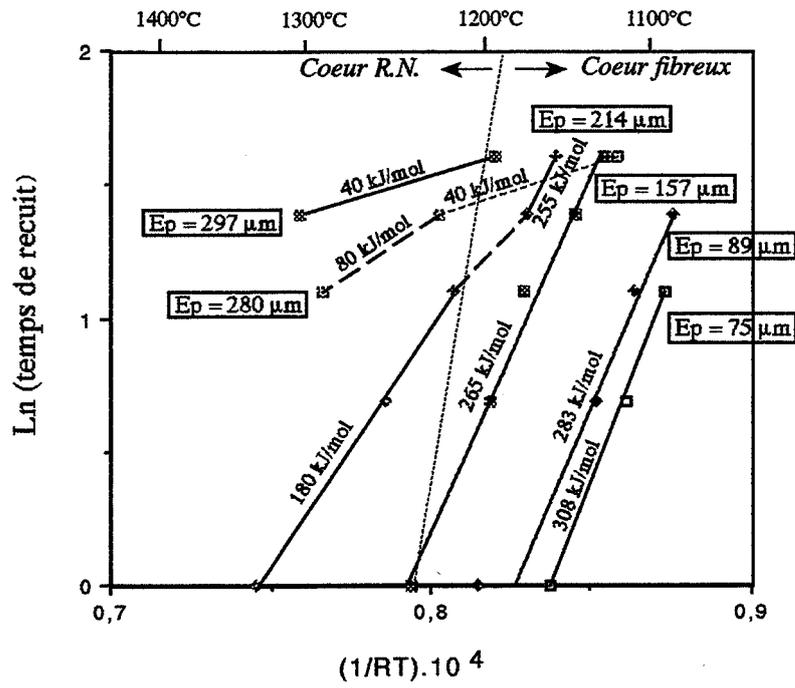
avec $V = \frac{d(E_p)}{dt}$ vitesse d'avance du front R.I.

Sur les figures III.34 a (fil pur) et b (fil dopé), est représenté, pour chaque temps de recuit, $\text{Ln}(E_p) \propto 1/RT$ (avec E_p l'épaisseur de l'anneau R.I. qui équivaut à y la profondeur de diffusion du nickel).

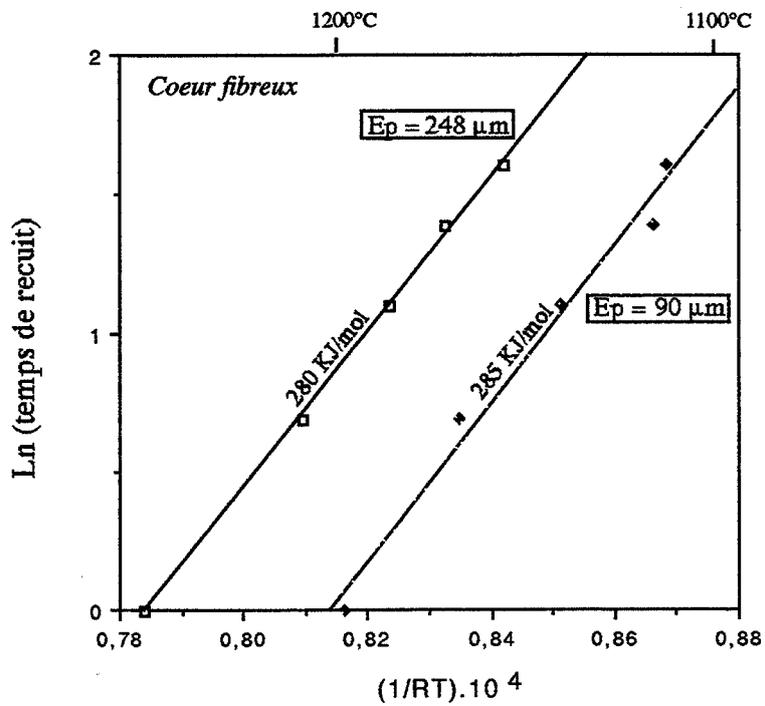
On observe, uniquement sur les fils purs, un changement de pente à hautes températures ($T > 1200^\circ\text{C}$). Cette rupture de pente coïncide avec l'apparition de la recristallisation R.N. à coeur donnant lieu à un ralentissement de l'avance du front de recristallisation R.I. et en conséquence de la diffusion du nickel dans le fil de tungstène.

Pour une valeur donnée d'épaisseur d'anneau (tous temps de recuit confondus), on peut déterminer l'énergie d'activation (Q) pour la diffusion intergranulaire du nickel dans le fil de tungstène par la mesure de la pente donnée par : $\text{Ln}(t) \propto 1/RT$ (Figures III.35 a (fil pur) et b (fil dopé)).

- La microstructure du coeur des fils dopés restant fibreuse à toute température et temps de recuit, nous obtenons une seule valeur d'énergie d'activation (≈ 283 kJ/mol) (Figure III.35 b).
- Pour les fils purs, la microstructure initialement fibreuse du coeur du fil se transforme progressivement (en fonction du temps de recuit) en une microstructure à grains équiaxes sous l'effet de la recristallisation R.N. (pour $T > 1200^\circ\text{C}$). Ceci se traduit alors sur la figure III.35 a par une modification de la pente conduisant à une diminution de l'énergie d'activation.



(a) Pour le fil de tungstène pur



(b) Pour le fil de tungstène dopé

Figures III.35 a, b : Energie d'activation pour la recristallisation R.I.

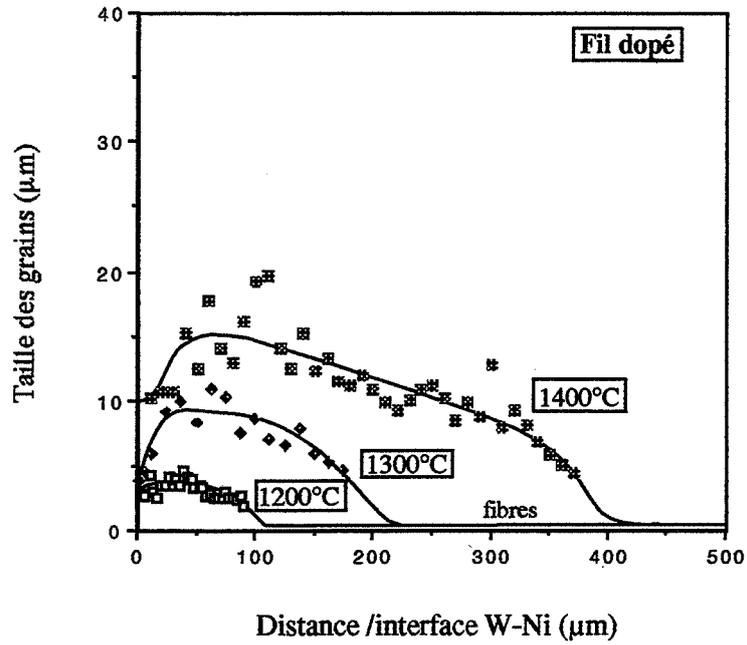
Lorsque la microstructure du fil pur est fibreuse à coeur, l'énergie d'activation mesurée (≈ 277 kJ/mol) est similaire à celle obtenue avec le fil dopé.

- En résumé -

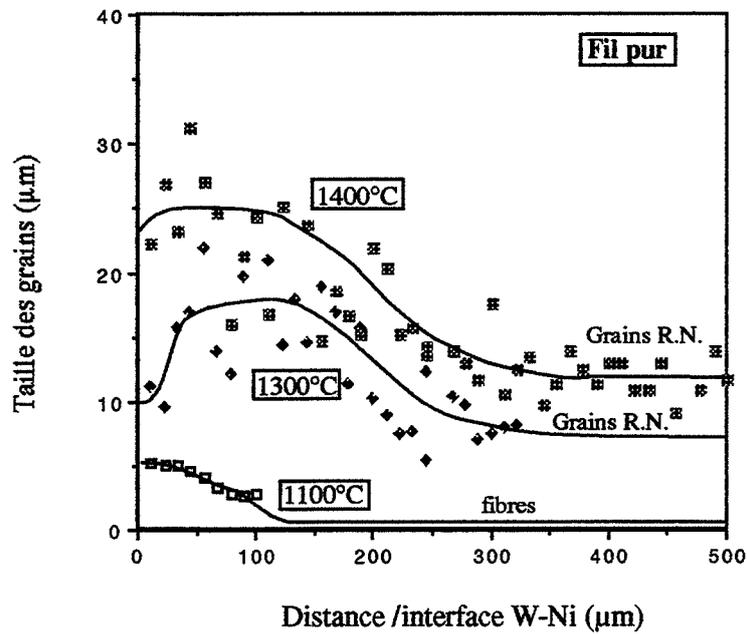
L'énergie d'activation pour la diffusion du nickel dans la microstructure fibreuse est donc approximativement de 280 kJ/mol.

Cette valeur est comparable à celle (217 kJ/mol) donnée par [Montelbano-Brett et coll. 68] (pour des fils de tungstène dopé au silicate d'aluminium et non au potassium, $\phi = 1,65$ mm) mais pas à celle (358 kJ/mol) calculée par [Nieh 84] (pour des filaments de tungstène purs, $\phi = 0,25$ mm).

La diffusion du nickel dans une microstructure fibreuse est plus rapide que sur une microstructure à grains équiaxes. La microstructure fibreuse constitue donc un facteur accélérateur du phénomène de recristallisation R.I.



(a)



(b)

Figures III.36 a et b : Evolution de la taille des grains dans un fil de tungstène en fonction de la température de recuit ($t_{\text{recuit}} = 1 \text{ h}$).

III.3.2 - Etude de la croissance des grains R.I.

La loi de croissance des grains s'exprime généralement sous la forme : $\bar{D}^n - \bar{D}_0^n = k t$

avec $k = \frac{4M\Omega\gamma}{\beta} \propto \exp(-Q/RT)$ (M mobilité du joint, γ énergie du joint, β facteur géométrique, Ω volume atomique)

Une mesure systématique de la taille des grains R.I. sur les fils dopés et purs a donc été effectuée en fonction de trois paramètres :

- Profondeur de pénétration
- Température de recuit
- Temps de recuit (de 1 à 5 heures) pour deux températures : 1200 et 1300°C.

Pour cela, nous avons eu recours à la méthode du segment intercepté circulaire (nombre de grains traversés par une ligne) en traçant des lignes équidistantes et parallèles à la circonférence du fil (sur éprouvettes photographiques de la section des fils métallographiquement attaqués).

- En fonction de la température de recuit -

Les figures III.36 a, b représentent sur fil dopé (a) et pur (b), l'évolution de la taille des grains en fonction de la profondeur et ce, pour différentes températures de recuit.

Ces figures permettent, en outre, de visualiser l'anneau R.I. et sa progression avec la température de recuit. Si sur les fils dopés, le coeur reste fibreux, la croissance des grains sur fils purs concerne aussi bien les grains de l'anneau R.I. que les grains R.N. du coeur.

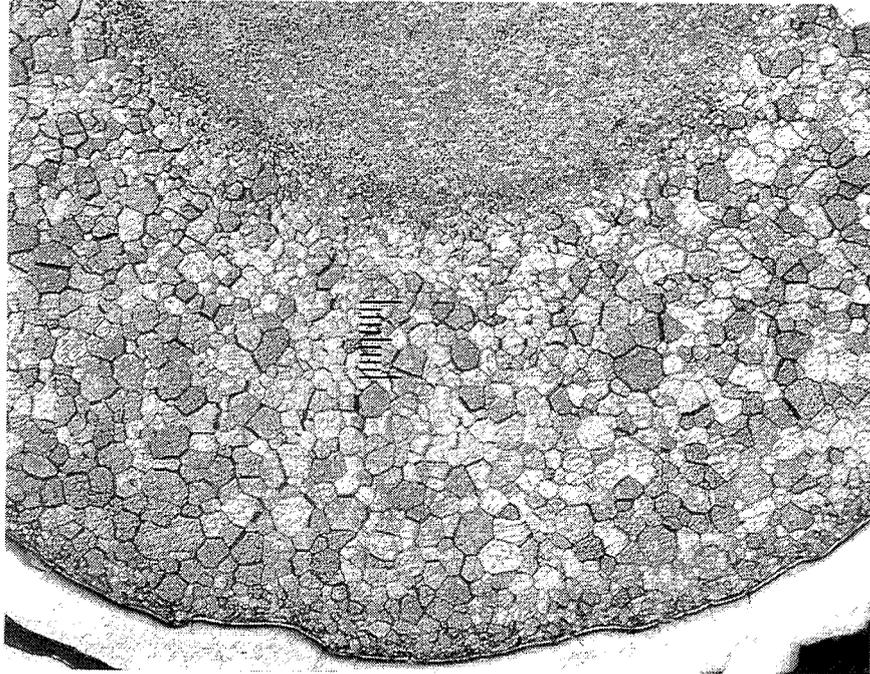
Ces mesures permettent de constater que :

- La taille de grains est à peu près uniforme dans l'anneau R.I. (*Micrographie III.5*) excepté près de l'interface W-Ni (*Micrographie III.6*) et à l'approche du front de recristallisation où les grains sont généralement plus petits.

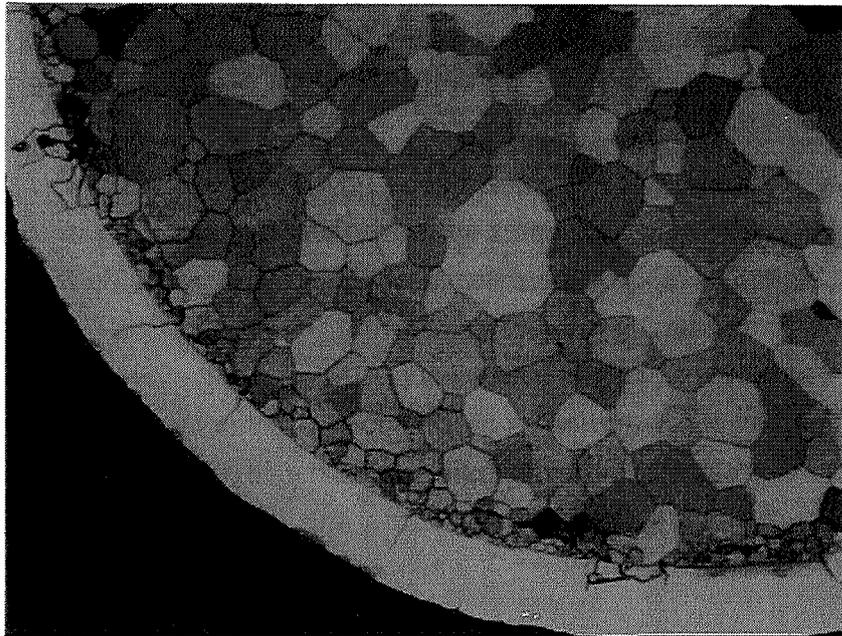
Comme nous l'avons vu précédemment (§ III.3.1-a-), les grains qui se situent près de l'interface présentent une concentration en nickel supérieure aux autres grains sur une distance de 4-5 μm . Ceci peut alors expliquer la faible croissance de ces grains.

La *micrographie III.5* permet de constater que la transition anneau R.I.-coeur fibreux est brutale. L'interface est très étroite : son extension est réduite à une trentaine de microns, indiquant que la transformation des fibres en grains équiaxes implique une phase de croissance très rapide (V_m grand).

- La germination des grains R.I. se produit entre 1000 et 1100°C aussi bien sur fils dopés que purs.
- La croissance des grains R.I. sur les fils purs est plus rapide que sur les fils dopés.



Micrographie III.5 : Anneau R.I. sur un fil dopé recuit à 1400°C-1h.



Micrographie III.6 : Grains R.I. près de l'interface W-Ni (fil pur 1400-16 h).

On en déduit alors que le dopage (sous forme de bulles de potassium) bien qu'il ne permette pas d'éviter le phénomène de recristallisation R.I. agit sur la croissance des grains R.I. en freinant la migration des joints de grains.

- En fonction du temps de recuit -

Les *Figures III.37 a et b* permettent d'évaluer la cinétique de croissance des grains sur fil dopé (*a*) et fil pur (*b et c*) en fonction du temps de recuit pour deux températures : 1200 et 1300°C.

- Indépendamment de la température de recuit, on vérifie que la taille des grains R.I. sur fils purs est toujours supérieure à celle sur fils dopés.
- Si on compare la cinétique de croissance des grains R.I. avec celle des grains R.N., on constate que les grains R.I. croissent plus vite que les grains R.N. (*Figure III.37 c*).
- Une fois le fil totalement recristallisé R.I. (cas du fil dopé recuit à 1300°C à partir de 3 heures : *Figure III.37 a*), on remarque que la taille des grains R.I. est uniforme dans le fil (pas de gradient en fonction de la profondeur).

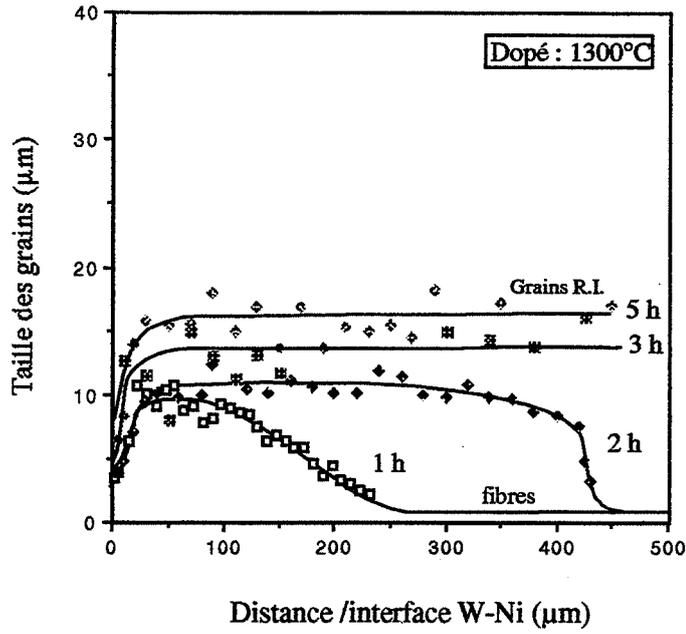
En considérant la taille moyenne des grains R.I. situés à mi-distance des deux interfaces (W-Ni et anneau-coeur), nous avons cherché à évaluer les lois de croissance des grains R.I. sur fil dopé et sur fil pur.

L'évolution de la taille moyenne des grains R.I. en fonction du temps est représentée sur les *figures III.38 (a : fil pur à 1200°C, b : fil pur et dopé à 1300°C)*. On constate alors un ralentissement dans la croissance des grains en fonction du temps aussi bien sur les fils dopés que purs.

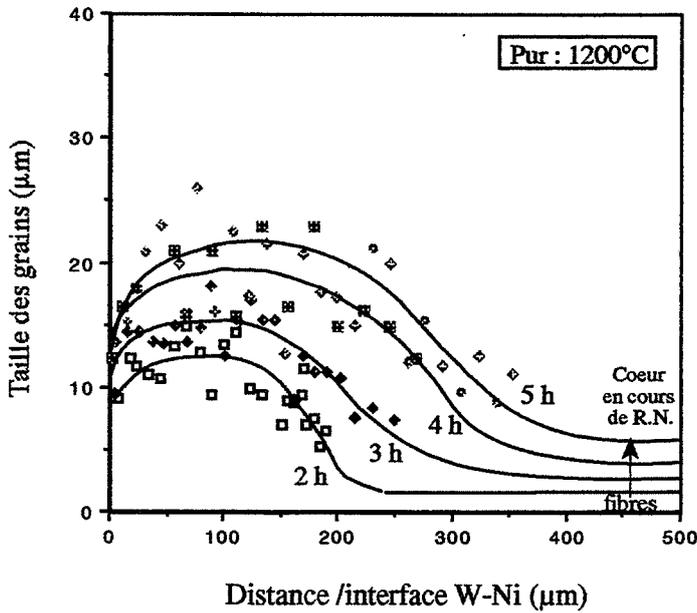
Signalons que ces valeurs moyennes reflètent assez mal l'hétérogénéité de taille des grains R.I. : certains atteignent, en effet, une taille nettement supérieure aux autres (Micrographie III.6). Pour autant, nous ne pouvons attribuer ceci à un phénomène de croissance exagérée ou recristallisation secondaire.

En traçant, à partir de ces données, $\text{Ln } \bar{D}_{\text{grains R.I.}} \propto \text{Ln}(t_{\text{recuit}})$ (*Figure III.39*), la pente permet de déterminer la valeur de l'exposant n qui caractérise la croissance des grains.

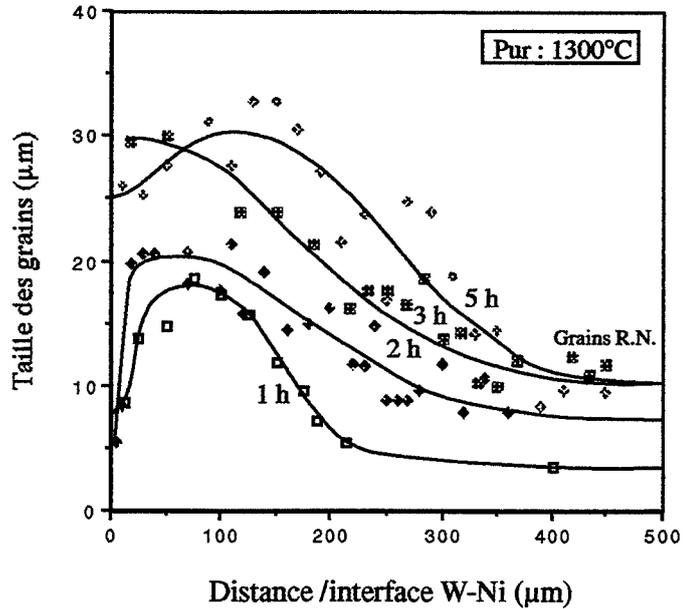
- Lorsqu'il y a recristallisation R.N. du coeur du fil ($t > 3 \text{ h}$ à 1300°C), on observe un ralentissement voir un arrêt de la croissance des grains R.I. sur les fils purs tandis que sur les fils dopés, même après totale recristallisation R.I. du fil, les grains R.I. continuent à croître.
- La croissance des grains R.I. est plus lente sur fils dopés que sur fils purs. Et même, à 1200°C, la croissance des grains sur fils purs est supérieure à celle obtenue sur fils dopés à 1300°C (*Tableau III.3*).



(a) Fil dopé recuit à 1300°C



(b) Fil pur recuit à 1200°C



(c) Fil pur recuit à 1300°C

Figures III.37 a, b, c : Evolution de la taille des grains d'un fil de tungstène (pur ou dopé) en fonction de la distance à l'interface W-Ni et du temps de recuit.

Nature du fil - Température de recuit	Pente	n
Fil pur - 1200°C	0,47	2,1
Fil pur - 1300°C	0,57 (t ≤ 3 h)	1,7 (t ≤ 3 h)
Fil dopé - 1300°C	0,43	2,3

Tableau III.3 : Lois cinétiques pour la croissance des grains R.I.

Si on considère que ces valeurs sont proches de 2, alors la croissance des grains sous l'effet d'une D.I.G.M. suit une loi similaire à celle d'une recristallisation normale (R.N.) :

$$\bar{D}^2 - \bar{D}_0^2 = k t$$

Rappelons qu'une telle loi caractérise aussi la croissance par migration d'un joint liquide en frittage en phase liquide. Ce n'est qu'après un temps de recuit suffisamment long (épaisseur de nickel au joint plus importante) qu'il se produit une modification cinétique de la croissance : n tend vers 3, signe que la croissance est limitée par le phénomène de diffusion du tungstène dans la phase liante (le nickel).

Ces mesures de taille de grains permettent aussi d'évaluer la vitesse de migration (V_m) des joints de grains en admettant que :

$$V_m = \frac{\bar{D} - \bar{D}_0}{2t}$$

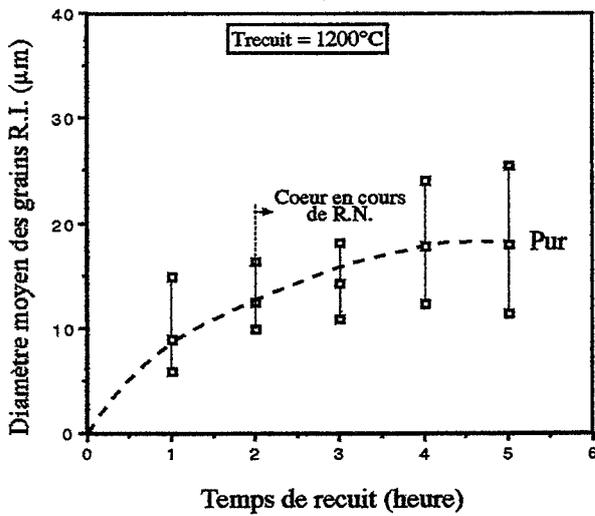
avec \bar{D}_0 et \bar{D} : diamètres moyens des grains initiaux et au temps t

Quelle que soit la nature du fil (pur ou dopé), la vitesse de migration des joints décroît avec le temps de recuit :

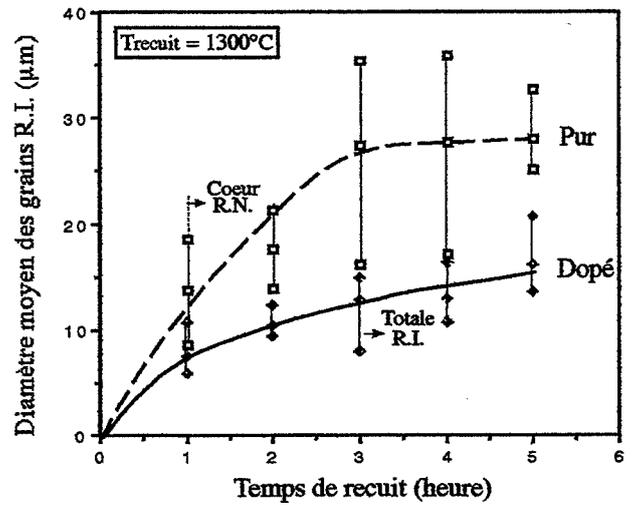
Nature du fil - Température de recuit	V_m^{moyen} ($\mu\text{m}/\text{min}$) (entre 0 et 1 heure de recuit)	V_m^{moyen} ($\mu\text{m}/\text{min}$) (entre 4 et 5 heures de recuit)
Fil pur - 1200°C	0,08	0,015
Fil pur - 1300°C	0,11	0,03
Fil dopé - 1300°C	0,06	0,03

Tableau III.4 : Vitesse de migration des joints de grains.

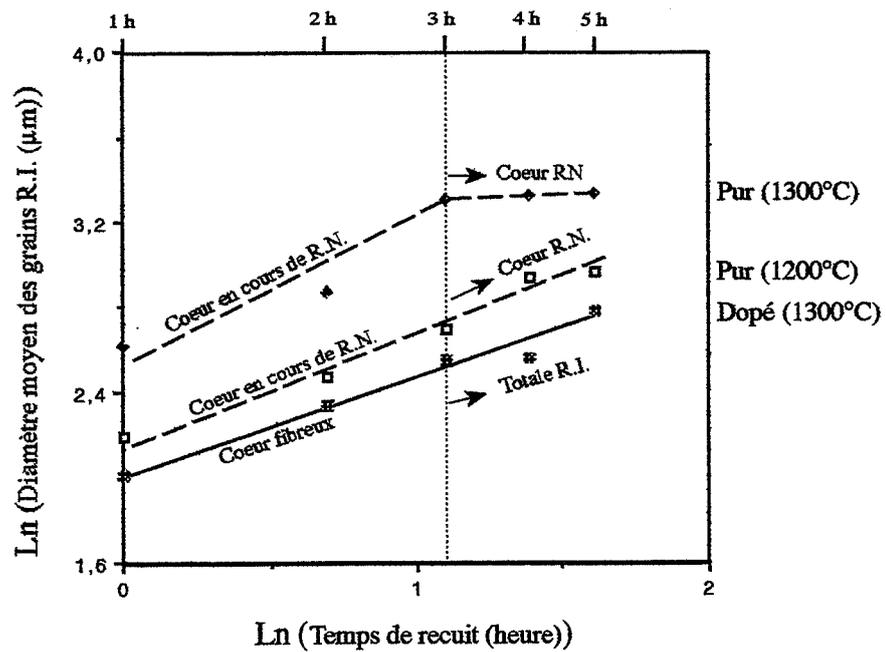
En nous reportant à la classification (Figure III.15 § III.2.3) établie par [CAHN-BALLUFFI 1979], ces valeurs moyennes de vitesse de migration vont nous permettre de désigner le régime



(a) Fil pur à 1200°C



(b) Fil pur et dopé à 1300°C



(c) Loi de croissance des grains R.I.

Figures III.38 a,b et c : Croissance des grains R.I sur fil pur et dopé en fonction du temps de recuit pour deux températures (1200°C et 1300°C).

diffusionnel qui correspond à chaque phase de l'évolution microstructurale. Cela nécessite de connaître la distance de diffusion volumique du nickel ($L_v = \sqrt{D_v t}$) et la distance de migration des joints ($L_m = V_m t$).

Pour la diffusion volumique du nickel dans le tungstène, les données bibliographiques sont pauvres, nous nous référons aux données de [MUSTER-YOON-HUPPMANN 1979] qui ont établi pour $T > T_{\text{fusion du nickel}}$:

$$D_v^{\text{Ni} \rightarrow \text{W}} = 0,5 (\text{cm}^2/\text{s}) \cdot \exp\left(\frac{-360 (\text{kJ/mol})}{RT}\right)$$

Par extrapolation, ils estiment le coefficient de diffusion volumique à 1200°C à $8.10^{-13} \text{ cm}^2/\text{s}$.

- *Entre 0 et 1 heure* à 1200°C, la distance de diffusion volumique est donc de 0,54 μm et la distance de migration de 4,8 μm .

La condition $\sqrt{D_v t} + Vt > \bar{D}_i$ (\bar{D}_i le diamètre initial des grains que nous prendrons égal à l'épaisseur des fibres soit 1 μm) étant vérifiée, on peut considérer qu'entre 0 et 1 heure, il s'établit un régime diffusionnel de type "S.O.M.M." dû notamment à une grande vitesse de migration.

- *Entre 4 et 5 heures*, la distance de migration est nettement plus faible ($\approx 0,9 \mu\text{m}$).

On vérifie dans ce cas les conditions suivantes : la condition $\sqrt{D_v t} + Vt \ll \bar{D}_i$ (\bar{D}_i le diamètre moyen des grains R.I. atteint au bout de 4 heures de recuit soit 19 μm), $Vt > \lambda$ (distance inter-atomique du tungstène = 0,27 nm) et $V\lambda < D_v$ ($6,75 \cdot 10^{-6} \mu\text{m}^2/\text{s} \approx 8 \cdot 10^{-5} \mu\text{m}^2/\text{s}$) indiquant que le régime diffusionnel qui s'installe au bout d'un certain temps de recuit est de type "M.I.D."

On en conclut donc que dans les fils de tungstène se superpose deux régimes diffusionnels :

- Pour la diffusion du nickel dans la microstructure fibreuse (soit au cours de la germination au niveau du front de recristallisation), le régime diffusionnel est de type "S.O.M.M." (Stationary Or Migrating boundaries, Multiple boundary diffusion).

- Dans l'anneau R.I., la taille des grains est plus grande; la vitesse de migration plus lente. Il y a alors évolution du régime de diffusion vers un régime de type "M.I.D." (Migrating boundaries, Isolated boundary diffusion, Diffusion occurs in lattice ahead of the boundaries).

III.3.3 - Rôle de l'énergie d'écroissage

L'objectif de ce paragraphe est de montrer l'influence de l'énergie d'écroissage des fils de tungstène sur le phénomène de recristallisation induite. Rares sont ceux qui se sont intéressés à ce facteur dans le cadre de la D.I.G.M. et les conclusions sont assez contradictoires :

- Pour le système Fe-Zn, il semble qu'une forte énergie d'écroissage n'ait aucun effet sur la D.I.G.M. [SHEWMON-ZU 83 cités par KING 87].
- Pour le système Cu/Zn par contre, l'apport d'une faible énergie d'écroissage permet de retarder l'instant d'arrêt de la D.I.G.M. [GARKE- KING 86 cités par KING 87].

III.3.3 - a - Etat de surface des fils de tungstène

Pour certains (§ III.2.3-c-), la germination des grains D.I.R. serait liée à la présence de défauts de polissage en surface de l'échantillon-substrat. Comme nous l'ont montré nos précédentes observations microstructurales (§ II.4.1-a-), l'interface W-Ni de nos fils de tungstène nickelés présente une certaine rugosité. Cet état de surface est vraisemblablement dû à une opération de grenailage de précontraintes effectuée avant nickelage sur les fils de tungstène (fournis par Plansee) afin d'améliorer l'adhérence du dépôt.

Ceci montre donc que dans notre cas, on ne peut écarter l'idée que l'écroissage de la surface du substrat puisse jouer un rôle sur l'apparition du phénomène de R.I. Toutefois, cette écroissage superficiel ne peut, à lui seul, expliquer l'extension en profondeur de la zone de recristallisation R.I.

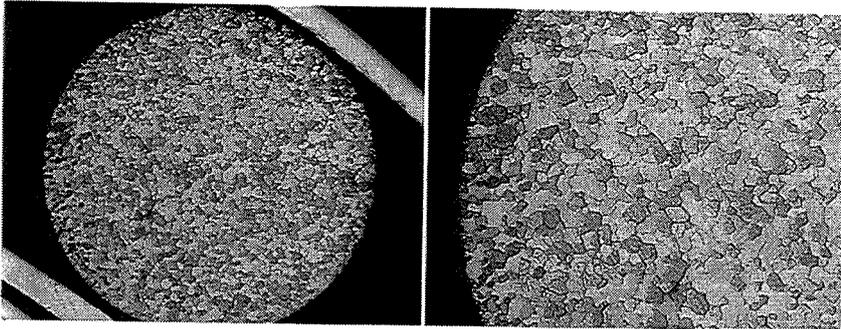
III.3.3 - b - Recristallisation R.I. sur microstructure recristallisée

Afin d'évaluer l'influence de l'énergie d'écroissage (due au tréfilage), nous avons réalisé l'expérience qui consiste à faire un recuit de diffusion sur un fil de tungstène nickelé pré-recristallisé R.N.

Une telle expérience a déjà été effectuée par deux équipes différentes ([FRIEDMAN-BRETT 1968] et [MOON-OH-KIM 1989]) dont les résultats sont contradictoires :

FRIEDMANN-BRETT [1968] constatent, après un recuit à 1200°C, aucune modification microstructurale des fils de tungstène (dopés, $\phi = 0,65$ mm) et observent une très faible diffusion du nickel tandis que [MOON-OH-KIM 89] observent, sur des fils de tungstène pur ($\phi = 250$ μm), une croissance des grains (R.N.) sous l'effet de la diffusion intergranulaire du nickel (recuit à 1400°C).

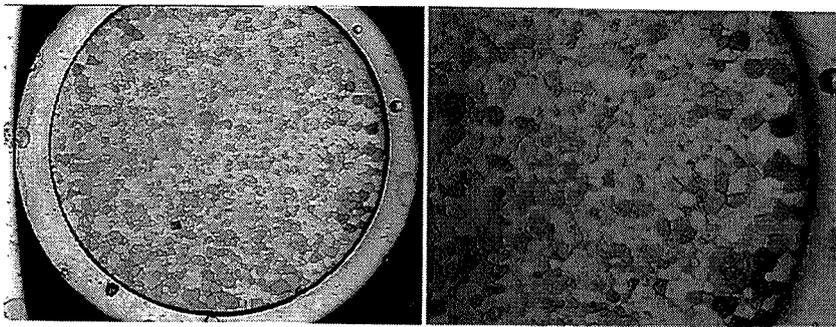
On notera qu'entre ces deux expériences, trois facteurs divergent : le diamètre des fils, la nuance du tungstène (dopé, pur) et la température de recuit.



Echelle : 1 cm = 224 μ m

1 cm = 112 μ m

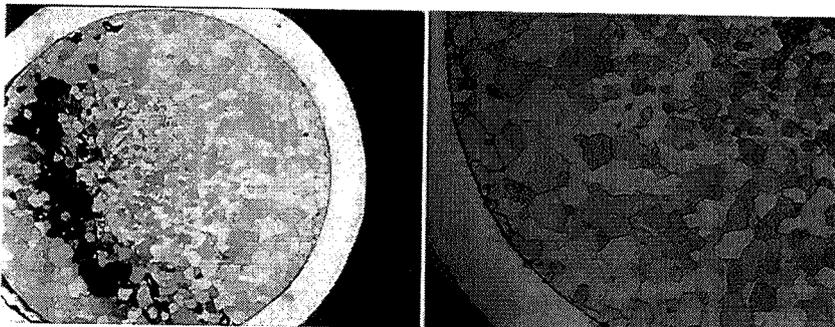
Micrographie III.7 :
Témoïn 1 =
 Fil "Pur" recristallisé R.N.
 à 1400°C-1h.



Echelle : 1 cm = 224 μ m

1 cm = 112 μ m

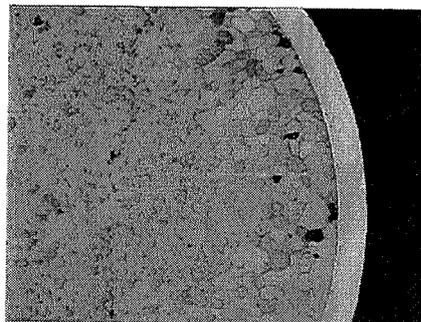
Micrographie III.8 :
Résultat 1 =
 Témoïn 1 nickelé et recuit
 à 1300°C-1h.



Echelle : 1 cm = 224 μ m

1 cm = 112 μ m

Micrographie III.9 :
Résultat 2 =
Résultat 1 recuit 1300°C-2h
 (équivalent à : témoïn 1 nickelé et
 recuit à 1300°C-3 h)



Echelle : 1 cm = 224 μ m

Micrographie III.10 :
Témoïn 2 =
 Fil "Pur" nickelé recristallisé R.N.
 et R.I. (recuit 1300°C-1h)

Nous avons donc tenté la même expérience sur nos fils "purs" de manière à vérifier l'un ou l'autre des résultats. Le mode opératoire que nous avons suivi est le suivant :

- Un fil de tungstène pur non nickelé a été pré-recuit à 1400°C-1 h afin d'obtenir une microstructure recristallisée R.N. ($\phi_{\text{grain}} \approx 8 \mu\text{m}$) : *Micrographie III.7*
- Ce fil a ensuite été nickelé puis recuit à 1300°C- 1 heure (*Micrographie III.8*). De manière à mieux visualiser le changement microstructural, nous avons effectué un recuit supplémentaire à 1300°C-2 heures (*Micrographie III.9*)

Ces micrographies permettent de confirmer les résultats de MOON-OH-KIM [1989] puisqu'on observe effectivement une croissance de grains plus importante en périphérie du fil qu'à coeur. Ces grains plus grossiers forment alors un anneau dont la progression suit vraisemblablement celui du front de diffusion intergranulaire du nickel.

Par contre, on constate que cette croissance de grains ne s'accompagne pas d'un phénomène de germination. On en déduit donc que sur une microstructure pré-recristallisée R.N., la diffusion intergranulaire du nickel induit un phénomène de D.I.G.M. (croissance des grains) plutôt qu'une D.I.R.

De manière à évaluer si l'énergie d'écrouissage constitue un facteur accélérateur pour la cinétique d'avance du front de recristallisation R.I. (ou de diffusion du nickel), nous avons comparé les épaisseurs d'anneau R.I. obtenues sur un fil écroui recuit à 1300-1h (*Micrographie III.10*) et sur un fil pré-recristallisé recuit dans les mêmes conditions (*Micrographie III.8*).

Ces mesures montrent une différence d'épaisseur assez faible : $\approx 150 \pm 10 \mu\text{m}$ pour le fil pré-recristallisé contre $\approx 185 \pm 10 \mu\text{m}$ pour le fil écroui.

Remarque :

Nous noterons que l'échantillon témoin (fil pur écroui recuit à 1300°C-1 h) présente une recristallisation R.N. du coeur. En conséquence, on peut considérer que cet échantillon témoin fournit une sous-estimation de l'épaisseur d'anneau R.I. par rapport à ce qu'on aurait eu si le fil avait conservé tout au long du recuit un coeur fibreux. En se référant à la figure III.30 et en imaginant que le fil pur ne recristallise pas R.N., on peut alors supposer une évolution de l'anneau similaire à celle du dopé. Dans ce cas, au lieu d'avoir un anneau de 185 μm après 1 heure de recuit à 1300°C, on aurait un anneau d'épaisseur 240 μm environ.

Dans ce cas, l'écart d'épaisseur d'anneau entre le fil témoin et le fil pré-recristallisé est nettement plus important indiquant que l'énergie d'écrouissage est un facteur accélérateur pour la diffusion du nickel donc l'avance du front R.I. De plus, comme nous l'avons vu précédemment, il favorise la germination de grains R.I.

Cette étude met aussi en évidence une différence de croissance entre grains R.N. et grains soumis à une D.I.G.M. En effet, pour une taille de grain initiale uniforme, on observe une croissance des grains D.I.G.M plus rapide que celle du coeur (R.N.). En conséquence, notre étude sur la cinétique de croissance des grains R.I. (entre 1 h et 5 h de recuit) aurait dû nous fournir une valeur de n inférieure à 2. Cette contradiction peut, toutefois, s'expliquer si on suppose que la vitesse de croissance des grains décroît en fonction du temps : elle est très rapide dans les premiers instants (arrivée du flux de nickel) puis décroît et rejoint celle d'une croissance normale.

On peut évaluer l'effet D.I.G.M. sur la croissance des grains en mesurant, en moyenne, la différence de taille de grain entre les grains de l'anneau (D.I.G.M.) et ceux du coeur (R.N.) (*Micrographie III.9*): la différence est importante $\phi^{\text{Anneau}} - \phi^{\text{Coeur}} \approx 13,5 \mu\text{m}$ (*Tableau III.5*).

On prouve ainsi que la diffusion intergranulaire du nickel induit une force motrice supplémentaire pour la migration des joints et par conséquent la croissance des grains.

Toutefois, nous n'avons pas réussi à visualiser de zone alliée (D.I.G.M.) entourant chaque grain de l'anneau comme c'est le cas pour de nombreux systèmes D.I.G.M.

Type de grains	Témoin 1 (1400°C-1h) = pré-recristallisation (μm)	Témoin 2 (1300°C-1)	Résultat 1 = Témoin 1 + (1300-1h) (μm)	Résultat 2 = Témoin 1 + (1300-3h) (μm)
Grains R.N.	12,6	/	/	/
Grains R.N. à coeur	/	$\approx 13,5$	$\approx 14,5$	$\approx 16,5$
Grains de l'anneau D.I.G.M.	/	/	$\approx 21,5$	≈ 30
Grains de l'anneau R.I.	/	≈ 18	/	/

Tableau III.5 : Diamètre moyen des grains après différents recuits.

Quant à l'influence de l'énergie d'érouissage sur la croissance des grains R.I., on tentera de l'évaluer à travers les mesures de taille de grains : $\phi^{\text{Anneau}} - \phi^{\text{Initial}}$ pour un fil initialement éroui et un fil pré-recristallisé R.N. ayant tous deux subis un même recuit (1300°C-1h).

- $\phi^{\text{Anneau}} - \phi^{\text{Initial}} = 18 - 3 = 15 \mu\text{m}$ pour le fil initialement éroui (*Tableau III.5*)

Remarque : Sur la section du fil, on considère que la taille des fibres à l'état initiale est égale à la moyenne entre son épaisseur ($\approx 1 \mu\text{m}$) et sa largeur ($\approx 5 \mu\text{m}$) soit $3 \mu\text{m}$.

- $\phi^{\text{Anneau}} - \phi^{\text{Initial}} = 21,5 - 12,6 = 9 \mu\text{m}$ pour le fil pré-recristallisé (*Tableau III.5*)

L'écart entre les deux est suffisamment grand pour en déduire que l'énergie d'érouissage est une force motrice pour la croissance des grains.

III.4 - CONCLUSIONS ET DISCUSSION GENERALE DU CHAPITRE III

La réaction interfaciale qui caractérise un fil de tungstène nickelé résulte de l'interdiffusion W-Ni. Elle se décompose donc en :

- La diffusion du tungstène dans le dépôt de nickel (dès 900°C) qui provoque un durcissement du dépôt de nickel.
- La diffusion intergranulaire du nickel dans le fil de tungstène (dès 1100°C) qui induit une recristallisation R.I. fragilisante (rupture intergranulaire) pour le fil.

De part et d'autre de l'interface, la réaction interfaciale entraîne une perte de ductilité. Toutefois, une diffusion limitée du tungstène dans le dépôt de nickel peut s'avérer bénéfique car permettre de renforcer la cohésion de l'interface W-Ni.

La Recristallisation Induite observée se caractérise par la recristallisation de la microstructure fibreuse des fils de tungstène sous l'effet de la diffusion intergranulaire du nickel. Ce phénomène peut se décomposer en trois phénomènes de base que sont :

- Ⓐ L'avance du front de recristallisation
- Ⓑ La germination des grains R.I.
- Ⓒ La croissance des grains R.I.

Tous sont une conséquence de la diffusion intergranulaire du nickel.

L'ensemble de nos expériences nous ont permis de faire les constatations suivantes :

Ⓐ *L'avance du front R.I. :*

- L'avance du front R.I. est contrôlée par la diffusion du nickel dans la microstructure fibreuse des fils (diffusion dans les nombreux courts-circuits : joints de fibres et réseaux de dislocations de la sous-structure des fibres). En conséquence, le front R.I. avance de manière parfaitement concentrique vers le coeur du fil conduisant à la formation d'un anneau de recristallisation au dépens de l'ancienne microstructure fibreuse.
- L'épaisseur de l'anneau R.I. équivaut donc à la profondeur de diffusion du nickel.
- L'avance du front R.I. est une fonction croissante de la température et du temps de recuit.
- L'avance du front de R.I. est ralentie par la recristallisation R.N. du coeur (fait observé sur les fils purs).
- L'avance du front R.I. est peu modifiée par le dopage (bulles de potassium). L'énergie d'activation pour l'avance du front R.I. est donc quasiment la même sur fil pur et dopé (~280 kJ/mol).

⑤ *La germination des grains R.I. :*

- La température d'apparition du phénomène R.I. est de 1100°C (pour 1 heure de recuit) aussi bien sur fils dopés que purs.
- Elle est donc inférieure à celle de la recristallisation R.N. qui est de 1250°C pour le fil pur et supérieure à 1400°C pour le fil dopé.
- Le dopage s'il permet de retarder la germination des grains R.N. est donc totalement inefficace face au processus de germination R.I.

⑥ *La croissance des grains R.I. :*

- La croissance des grains R.I. résulte d'un phénomène de D.I.G.M. c'est à dire de la migration de joint induite par la diffusion intergranulaire du nickel dans une microstructure à grains équiaxes.
- La taille des grains R.I. est une fonction croissante à la fois de la température et du temps de recuit. On ne mesure pas véritablement de gradient dans la taille des grains en fonction de la profondeur de diffusion si ce n'est à l'approche du front de R.I.
- Leur cinétique de croissance est très rapide dans les premiers instants du recuit puis décroît progressivement avec le temps de recuit (entre 1 et 5 h).
- La croissance des grains R.I. est freinée par le dopage au potassium : les grains R.I. sont toujours plus petits sur les fils dopés que sur les fils purs (pour 1400°C-1 h, le diamètre moyen des grains R.I. est de 13,5 µm sur un fil dopé et de 22 µm sur un fil pur).
- Les mesures par microsonde ont montré que ces grains étaient formés d'une solution solide W(Ni) avec une concentration en nickel **quasi-uniforme** en tout point de l'anneau R.I. (dans les limites de la précision des mesures) : pas de gradient en fonction de la profondeur de diffusion.

On notera que contrairement à nos observations sur la R.I., la D.I.R. (Diffusion Induced Recrystallisation) est caractérisée par une décroissance de la concentration en soluté en fonction de la profondeur de pénétration accompagnée d'une décroissance de la taille des grains (*Figure III.11 et III.12*).

Les données obtenues sur ces trois phénomènes de base nous permettent donc d'élucider certains aspects de la Recristallisation Induite (R.I.) :

1- Influence de la microstructure des fils

- * Ayant montré que la recristallisation R.N. du coeur des fils (purs) induisait un ralentissement de l'avance du front R.I. comparativement aux fils (dopés) qui préservaient un coeur fibreux, on en déduit que la **microstructure fibreuse des fils favorise la diffusion du nickel en**

raison notamment d'un nombre important de courts-circuits qu'elle renferme : nombreux joints de fibres et nombreux réseaux de dislocations dans la sous-structure des fibres.

Le rôle de l'écrouissage sur la recristallisation R.I. réside donc principalement dans le fait qu'il donne aux fils une microstructure extrêmement fine, orientée avec de nombreux courts-circuits permettant ainsi une "infiltration" (par diffusion) du nickel plus importante et plus rapide.

L'état fibreux des fils constitue donc un facteur **accélérateur voire amplificateur** du phénomène de recristallisation R.I.

Ceci est en accord avec DEN BROEDER-NAKAHARA [1983] qui font remarquer que la microstructure originelle du solvant et notamment la taille des grains conditionne l'extension du phénomène D.I.R. : les germes restent confinés aux joints de grains si la taille de grains du solvant est importante ou remplacent la microstructure originelle si celle-ci est constituée de grains de petite taille (§ III .2.3-c-).

* Contrairement aux expériences de FRIEDMAN-BRETT [1968], nos expériences en accord avec celles de MOON-OH-KIM [1989] ont montré que même si la microstructure initiale des fils de tungstène est à l'état recristallisé, la diffusion intergranulaire du nickel induit une croissance des grains. La croissance des grains soumis à la diffusion intergranulaire étant plus rapide que celle des autres (croissance R.N.), on en déduit que la diffusion intergranulaire engendre une force motrice supplémentaire pour la migration des joints.

Par contre, ces expériences ont montré que sur une microstructure recristallisée, le phénomène de germination ne se produit pas. Seul le phénomène de croissance par D.I.G.M. est observé.

On peut alors supposer soit que l'énergie d'écrouissage apporte la force motrice nécessaire à la germination soit que le phénomène de germination observé sur les fils à l'état fibreux n'est en réalité qu'un phénomène de croissance de sous-grains et non de fibres.

Cette dernière hypothèse est confortée par les données bibliographiques concernant la recristallisation R.N. des filaments de tungstène (§ I.2.1-d-) où il a été montré par un certain nombre de chercheurs que la germination R.N. résultait de la croissance de sous-grains polygonisés privilégiés. On peut alors supposer que la présence de nickel dans les sous-joints ne fait qu'accélérer le processus de croissance.

Plus qu'un phénomène de germination, on parlera plutôt d'un phénomène de D.I.G.M. appliquée aux sous-grains.

Dans ce cas, on peut considérer que le phénomène de R.I. diffère du phénomène de D.I.R. qui, lui, met réellement en jeu un phénomène de germination puisqu'on visualise bien l'apparition des germes aux joints des anciens grains équiaxes.

* En ce qui concerne l'effet du dopage sur la recristallisation R.I. on peut dire que :

- Le dopage via la formation de bulles de potassium aux joints des grains ne permet pas d'enrayer la germination des grains R.I. contrairement à la recristallisation R.N. La diffusion intergranulaire du nickel annihile donc l'effet du potassium en induisant une force motrice supérieure à celle du freinage.

Par contre, une fois les grains formés, le dopage joue son rôle puisqu'il ralentit la croissance des grains R.I. : pour un même recuit, la taille des grains R.I. sur fils dopés est toujours nettement inférieure à celle des grains R.I. sur fils purs.

- L'avance du front R.I. est peu sensible au dopage. La diffusion intergranulaire du nickel est donc peu gênée par la présence intergranulaire des bulles de potassium.

2- La présence de nickel dans les fils n'est pas seulement intergranulaire mais aussi volumique puisque les grains R.I. sont formés d'une solution solide W(Ni).

Cette présence ne résulte pas d'une diffusion volumique mais d'un phénomène de D.I.G.M. (migration de joint induite par diffusion intergranulaire d'un soluté) : la croissance des grains impliquant la migration des joints, la solution solide des grains représente la zone alliée balayée par le joint au cours de sa migration (§ III.2.3-a-).

Cette solution solide est à très faible teneur en nickel, teneur proche de la limite de solubilité ($\leq 0,125$ % at pour $T \leq 1400^\circ\text{C}$). Ces valeurs étant proches des seuils de détection des appareils de mesure (microsonde E.D.S. et W.D.S.), nous obtenons une forte dispersion des mesures ne permettant pas d'établir un gradient de concentration en fonction de la profondeur de diffusion. Nos mesures semblent plutôt indiquer une concentration en nickel des grains R.I. uniforme en tout point de l'anneau excepté à l'approche immédiate du front R.I. (concentration décroissante) et dans les petits grains qui touchent l'interface W-Ni (concentration plus élevée).

A l'intérieur de chaque grain, la concentration est là aussi uniforme. Notons que cette uniformité se retrouve aussi en D.I.G.M. à l'intérieur de la zone alliée lorsque la migration des joints est de type monolithique (§ III.2.3-a-).

3- Diffusion intergranulaire du nickel :

La recristallisation R.I. est une **conséquence quasi-instantanée** de la diffusion du nickel. L'avance du front R.I. est donc contrôlée par la diffusion intergranulaire du nickel dans la microstructure **fibreuse** du fil de tungstène.

Ce net changement microstructural permet de visualiser l'avance du front de diffusion du nickel sans avoir recours à des méthodes plus complexes comme l'autoradiographie. Il facilite donc l'étude de la diffusion du nickel.

Mais il faut tenir compte du fait que la formation d'un anneau de recristallisation s'interposant entre le dépôt de nickel et le front de diffusion peut entraîner une modification

de la cinétique de diffusion du nickel. Etant donné que l'avance du front R.I. est conditionnée par l'apport continu de nickel provenant de la surface des fils, le nickel est obligé de transiter dans l'anneau R.I. où s'installe un phénomène de diffusion intergranulaire sur joints mobiles (D.I.G.M.). La mobilité des joints devrait induire, selon certains, une augmentation de la diffusivité (§ III.2.3).

Or d'après notre étude sur la cinétique d'avance du front R.I. ($E_p \propto t^m$), nous obtenons une décroissance de la vitesse d'avance du front de diffusion avec le temps de recuit (m étant inférieur à 1). Ceci signifie donc que, au lieu d'avoir une augmentation de la diffusivité du nickel, on a une diminution en fonction du temps. On peut alors supposer que cette diminution est une conséquence soit de la diminution de la vitesse de migration des joints de grains au cours du temps (*Figure III.38*), soit de la diminution du nombre de courts-circuits qui approvisionnent le front de recristallisation (diminution imputable à la croissance des grains R.I. et à l'augmentation de l'épaisseur de l'anneau recristallisé R.I. (*Figure III.38*)).

Notre étude ne nous a pas permis de déterminer le coefficient de diffusion du nickel dans le fil de tungstène ($P_j^{Ni} = K\delta D_j^{Ni}$ avec K facteur de ségrégation et δ épaisseur du joint) en raison notamment du fait que nous n'avons pas pu obtenir un gradient de concentration en fonction de la profondeur de diffusion. Différentes études sur la D.I.G.M. ont, en effet, établi qu'il existait une relation de type exponentielle entre la concentration et la profondeur de diffusion :

$$\ln \frac{C}{C_0} = - \sqrt{\frac{V}{K\delta D_j}} \cdot y \quad [\text{SCHMELZLE et coll. 1992, MISHIN-RAZUMOVSKII 1992}].$$

La mesure de la pente étant nécessaire à la détermination de la diffusivité.

Toutefois, nous avons pu déterminer l'énergie d'activation pour la diffusion du nickel dans le fil de tungstène qui est d'environ 280 kJ/mol.

Le phénomène de R.I. pourrait s'interpréter de la manière suivante :

* On peut supposer que les forces motrices permettant l'apparition du phénomène de R.I. sont :

- L'effet thermique :

La recristallisation R.I. apparaît dès 1100°C or cette température coïncide avec une brisure de la loi d'Arrhénius pour l'autodiffusion du tungstène donc au dessus de cette température, il se produit une soudaine augmentation de la diffusivité intergranulaire (§ III.2.2).

- L'énergie d'érouissage due au tréfilage et la rugosité de la surface des fils :

Du fait que le tréfilage engendre une microstructure très fine avec une sous-structure, il favorise, en quelque sorte, le processus de diffusion et par la même accélère la recristallisation R.I.

Pour la croissance proprement dite des grains R.I. par effet D.I.G.M., on peut évoquer trois mécanismes (ou forces motrices) possibles dont les deux premiers ont été proposés pour la D.I.G.M. dans la littérature (§ III.2.3-b-) :

- Force chimique liée à l'énergie de mélange (Modèle de HILLERT) :

La faible teneur en nickel des grains montre que, pour avoir lieu, le phénomène de recristallisation (R.I.) ne nécessite pas une grande énergie de mélange ($\Delta G_m \approx RT C_{Ni}$ approximation valable pour de faibles concentrations [CHONGMO-HILLERT 1981]).

Cette force motrice repose donc sur la modification du paramètre de maille du solvant par l'entrée d'atomes de soluté. Or concernant le systèmes W-Ni, il a été constaté, soit aucune variation du paramètre de maille par l'addition de nickel (paramètre de maille de la solution W(Ni) égal à celui du tungstène pur : $a_W = 3,165 \text{ \AA}$ [BEKER-EBERT 1923, ELLINGER-SYKE 1940 cités par NAGENDER-NAIDU et coll. 1986]), soit une légère diminution du paramètre de maille ($a_{W(Ni)} = 3,158 \text{ \AA}$ pour une solution solide W(Ni) à saturation obtenue après un recuit à 1150°C-17 h [EPREMIAN-HARKER 1949]).

Dans ce cas, on peut difficilement expliquer la R.I. sur le système W-Ni par le modèle de HILLERT qui considère que la force motrice repose sur la perturbation du paramètre de maille.

- La différence de coefficient de diffusion intergranulaire des deux espèces (W, Ni) (Modèle de BALLUFFI-CAHN ou SMITH-KING 1981). Ce modèle théorique établi pour un bicristal et basé sur un mécanisme se situant à l'échelle atomique est difficilement vérifiable sur notre système polycristallin à microstructure très fine. La vérification de ce modèle nécessiterait de vérifier que la migration du joint résulte de l'existence d'un gradient de concentration en solutés le long du joint.

- L'accélération de l'autodiffusion intergranulaire du tungstène.

Ce point de vue que nous proposons s'appuie sur les données bibliographiques concernant la théorie du frittage activé (§ III.2.1) et l'autodiffusivité du tungstène ou l'hétérodifusivité (W/Co) (§ III.2.2).

La recristallisation R.I. et donc la croissance des grains reposent sur une accélération de la migration des joints de grains. Or, la cinétique de migration d'un joint est étroitement liée à celle de l'autodiffusion intergranulaire puisque d'un point de vue atomique, la migration d'un joint résulte d'un échange unidirectionnel d'atomes entre deux grains séparés par un joint : sous effet thermique, les atomes se détachent d'un grain et vont se déplacer dans le joint où ils restent jusqu'à ce qu'ils trouvent un site propice dans l'un ou l'autre des grains adjacents [HOFMAN-HAESSNER 1971 cités par DIMITROV 1975].

Le déplacement unidirectionnel des atomes nécessite une différence d'énergie libre entre les deux grains, les atomes du grain d'énergie plus élevée (I) se déplaçant vers celui d'énergie plus basse (II).

La migration d'un joint de grains met donc en jeu trois processus thermiquement activés représentés d'un point de vue énergétique sur la *Figure III.39* :

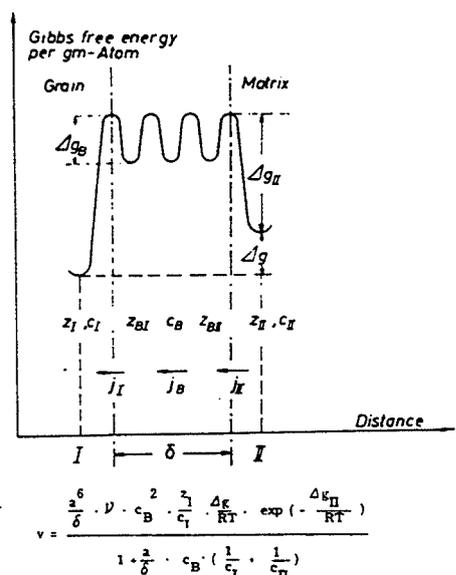
- Le détachement d'atomes d'un réseau cristallin (I) vers le joint.
- Le déplacement des atomes au coeur du joint.
- La fixation sur un site propice d'un des réseaux cristallins adjacents (II).

Avec Δg la différence d'énergie libre entre deux grains adjacents et Δg_{II} la barrière énergétique à franchir par l'atome pour intégrer le joint.

On peut alors supposer que l'accélération du processus d'échange atomique aux joints est due au flux de diffusion intergranulaire du nickel qui faciliterait par exemple le détachement des atomes de tungstène en abaissant l'énergie ΔG_{II} .

Ce raisonnement nous apparaît plus convainquant faute de pouvoir vérifier le modèle de BALLUFFI.

En conclusion, nous dirons que cette étude menée sur la réaction interfaciale du système (fil de tungstène nickelé) a permis de mettre en évidence que la recristallisation R.I. peut être considérée comme une représentation particulière du phénomène de D.I.G.M. dont l'originalité provient de la finesse de la microstructure écrouie des fils de tungstène.



(expression de la vitesse de migration)

Figure III.39 : Variation d'énergie libre au cours d'un saut atomique à travers le joint de grain dans la formulation détaillée du processus de saut individuel.

[Modèle de Haessner-Hofman 1971 cités par Dimitrov 1975]

- CONCLUSION GENERALE -

Dans le but d'améliorer les performances des projectiles flèches, il a été envisagé de remplacer les alliages lourds habituellement utilisés par un matériau composite unidirectionnel à base de tungstène. L'intérêt de ce choix réside dans l'utilisation de tungstène sous forme de fils dont la résistance à la traction comme à la compression est exceptionnelle. Pour conserver une densité élevée, ce matériau doit avoir une forte fraction volumique de fibre ($V_f \approx 80\%$). Pour cette raison, le nickel ne joue pas vraiment un rôle de matrice mais plutôt de liant.

Pour mettre en forme ce matériau, aux méthodes d'infiltration en phase liquide qui ont l'inconvénient de diminuer les propriétés mécaniques des fils, nous avons préféré celle de l'électroformage : nickel déposé électrolytiquement à la surface des fils (épaisseur de dépôt $\approx 40\ \mu\text{m}$, diamètre des fils = 1 mm) et mise en forme du matériau (empilement de fils introduit dans un container) par martelage rotatif.

L'objectif de notre travail était alors triple :

- 1- Etudier la faisabilité de l'élaboration de ce matériau tant en laboratoire qu'industriellement.
- 2- Vérifier par la caractérisation mécanique du composite que l'on dépassait bien avec ce matériau les performances des alliages lourds.
- 3- Obtenir une meilleure compréhension du phénomène de "diffusion-recristallisation" qui caractérise très spécifiquement la réaction interfaciale sur un fil de tungstène nickelé.

Premier point :

- Cette étude a prouvé qu'il était possible par martelage rotatif de mettre en forme un tel matériau composite sous la forme d'un barreau cylindrique aux dimensions suivantes : longueur de 70 mm, diamètre d'environ 8 mm.
- L'étude préliminaire visant à caractériser microstructuralement les fils de tungstène et mécaniquement les constituants de base (fils de tungstène, nickel, inox) a permis de mieux appréhender les problèmes pouvant surgir au cours de la mise en forme et d'établir les données nécessaires à l'approche micromécanique du composite.
- L'étude des déformations dues au martelage à 4 marteaux (machine industrielle) effectuée aussi bien sur un matériau homogène que sur l'empilement de fils, nous a permis de définir les différentes composantes de déformation et ainsi de fixer le mode opératoire pour l'élaboration du composite.

- La caractérisation microstructurale du composite ainsi formé a permis de fixer les conditions de mise en forme {température de mise en forme ($T \approx 900^\circ\text{C}$) et domaine de taux de martelage ($23\% < \epsilon_M < 35\%$)} pour l'obtention d'un matériau microstructuralement optimal : matériau rectiligne, absence de porosité, interfaces nickel-nickel et gaine-composite W/Ni parfaitement soudées, absence d'endommagement (fissuration ou recristallisation des fils).
- Le passage d'une élaboration en laboratoire vers une élaboration industrielle a nécessité quelques adaptations : modification de la géométrie du container, décaler le domaine de taux de martelage vers des valeurs plus élevées ($\epsilon_M \geq 38\%$).

Ce mode d'élaboration présente toutefois certaines limites liées notamment aux dimensions du matériau. Augmenter la longueur ou le diamètre du matériau composite risque d'engendrer des complications (au niveau de l'aspect rectiligne du barreau, de la torsion longitudinale...) et/ou remettre en cause les paramètres définis précédemment.

Second point :

- La caractérisation mécanique en compression uniaxiale du matériau composite a prouvé que ce type de matériau atteignait un niveau de résistance très élevé ($\approx 1800\text{ MPa}$).
- Ce matériau composite présente en plus une très bonne ténacité en compression longitudinale en raison de la très forte résistance des interfaces W/Ni qui freinent la propagation des fissures et de la microstructure fibreuse des fils : la fissuration d'un fil ne conduit pas à une rupture franche, quelques fibres suffisent à maintenir la cohésion du fil endommagé. De ce fait, l'endommagement croissant du composite ne conduit jamais à la ruine totale du composite.

- Comparativement aux alliages lourds, le composite présente une résistance un peu plus élevée, une densité comparable (≈ 18), des interfaces moins sujettes aux fragilisations (ségrégation intergranulaire d'éléments fragilisant lors de l'élaboration par frittage).

Toutefois, cette amélioration des performances se fait au détriment de l'isotropie du matériau. En compression transversale, nous avons pu constater la piètre résistance du matériau composite et surtout sa faible ténacité dues principalement à la forte fraction volumique de fils.

- Influence de la réaction interfaciale sur la mise en forme et les performances du composite : La Recristallisation Induite des fils de tungstène induit la perte de la texture $\langle 110 \rangle$ et une fragilité intergranulaire.

Contrairement à ce que l'on présageait, nous avons pu montrer que cet état microstructural des fils n'a pas été néfaste à la mise en forme du composite par martelage rotatif puisque malgré la fragilité intergranulaire des fils, le martelage n'a pas provoqué la fissuration des fils.

Au contraire même, on obtient une meilleure configuration géométrique de l'empilement : l'empilement et la section des fils prennent une forme parfaitement hexagonale.

Du point de vue de la résistance à rupture du composite par contre, cette recristallisation est néfaste dans le sens où la ténacité du matériau est nettement moins bonne : la fissuration de fils conduit assez vite à la ruine du matériau.

- Nous avons aussi montré que pour la réalisation du composite, il était préférable d'utiliser la nuance dopée (au potassium) des fils de tungstène, ceux-ci permettant d'améliorer la résistance du composite d'environ 250 MPa.
- Les essais de compression réalisés sur matériau composite avec gaine ont montré que l'interface gaine-composite (W/Ni) n'était pas très résistante (décollement relativement facile).
- Par l'étude bibliographique et la comparaison avec nos données expérimentales, nous avons prouvé que la loi des mélanges permettait de prévoir correctement les caractéristiques mécaniques de notre composite. Ceci est dû au caractère isotrope transverse du matériau et au fait que le martelage ne modifie presque pas les caractéristiques mécaniques des constituants de base.

Troisième point :

Afin de mieux comprendre la fragilisation des fils de tungstène nickelés à hautes températures, nous nous sommes intéressés au phénomène de Recristallisation Induite (R.I.).

Cette recristallisation qui apparaît vers 1100°C aussi bien sur les fils purs que dopés est un phénomène contrôlé par la diffusion intergranulaire du nickel.

La diffusion du nickel dans la microstructure fibreuse du tungstène entraîne donc sur son passage une transformation microstructurale du fil (fibres en grains équiaxes). Ceci se traduit par la formation d'un anneau R.I. : avance concentrique du front de recristallisation vers le coeur du fil et une croissance des grains R.I.

Nos mesures de concentration nous ont permis de vérifier la présence intergranulaire du nickel mais aussi sa présence volumique puisque les grains R.I. sont constitués d'une solution solide W(Ni) à très faible teneur en nickel ($\leq 0,125$ % at).

En nous basant sur les théories du frittage W/Ni et sur les modèles proposés pour le phénomène de D.I.G.M. (Migration de joint de Grains Induite par Diffusion intergranulaire), nous avons pu proposer un modèle pour expliquer le phénomène de R.I. et établir que la R.I. était une représentation particulière du phénomène de D.I.G.M. due à la microstructure fibreuse très spécifique des fils de tungstène.

Perspectives :

- Le matériau composite étant destiné à la réalisation de projectiles flèches, il reste à tester le comportement du prototype-composite en dynamique et notamment à vérifier la bonne tenue des interfaces. Il reste aussi à vérifier les conditions de perçage des blindages, étant donné l'anisotropie du matériau.
- Il serait aussi envisageable de tester le comportement de ce matériau à chaud.
- Des essais de résilience sur le composite permettraient d'apporter des éléments supplémentaires concernant le comportement transversal du matériau.
- Malgré la complexité des déformations par martelage rotatif, on pourrait envisager de modéliser le martelage rotatif (σ - ϵ) en intégrant la cinématique du martelage à quatre marteaux pour permettre une meilleure maîtrise des paramètres industriels.
- Afin d'améliorer la résistance du composite, on peut envisager d'utiliser des fils de tungstène-rhénium de résistance plus élevée ou un empilement plus complexe (points triples occupés par les fils plus fins et donc plus résistants).
- En ce qui concerne le phénomène de Recristallisation Induite, on pourrait envisager d'utiliser la microscopie en transmission pour suivre l'évolution microstructurale (fibres en grains équiaxes) sous l'effet de la diffusion intergranulaire du nickel et valider ainsi l'hypothèse selon laquelle les grains R.I. résulteraient plus d'une croissance privilégiée de sous-grains que d'une réelle germination.

ANNEXES

Caractéristiques	Fils de tungstène	Nickel	Dépôt de nickel	Acier Z12CNS 25-20
Physiques				
Structure cristallographique	CC	CFC		CFC
Densité (g/cm ³)	19,32	8,9		7,9
Température de fusion (°C)	3410	1453		1450
Température de forgeage (°C)	/	800 à 1250 (forgeage important)		1175 à 1000
Température de recristallisation (°C)	1000-1200 (W pur) 2000 (W dopé)	600		/
Résilience (KCV enJ/cm ²)		élevée (KU=310 J) (V l'état : recristallisé ou écroui)		KCV = 100 à 200
Energie de rupture (KU en J)				/
Facteur d'intensité de contrainte (K _{Ic} en MPa√m)	20	100-350		/
Mécaniques à l'ambiante				
Module d'élasticité (GPa)				
E (en traction-compression)	410	210		193
G (en torsion)	177	77		/
Tension interne (MPa)	/	/	120 à 200	/
Coefficient de poisson	0,28	0,31		0,3
Limite élastique en traction (MPa)				
σ _e	(selon le diamètre)	40 à 100	220	
σ _{0,2%}	> 1000	100 à 200		>230
Résistance à la traction (MPa)	(selon le diamètre) 1722 - 4134	270 à 560	400	245 à 275
	(selon le diamètre)			540 à 620
Allongement (%)	1 à 3	20 à 50	27 à 30	40-50
Dureté				
vickers	450-530 (écroui)	85 (recristallisé)	160 à 200	200
Brinell		200 (écroui)		
Thermiques				
Conductivité thermique (W/m°C)	129 (à 20 °C) 107-120 (à 900°C)	74-84 (à 20 °C)		14,6 (à 20°C) 23 (à 900°C)
Coefficient de dilatation thermique entre 20 et 1000°C (10 ⁻⁶ /°C)	4,67	13,3		14-19,5

ANNEXE A : Caractéristiques physiques, mécaniques et thermiques des constituants de base du matériau composite.

ANNEXE B

Comportement mécanique des constituants de base du matériau composite

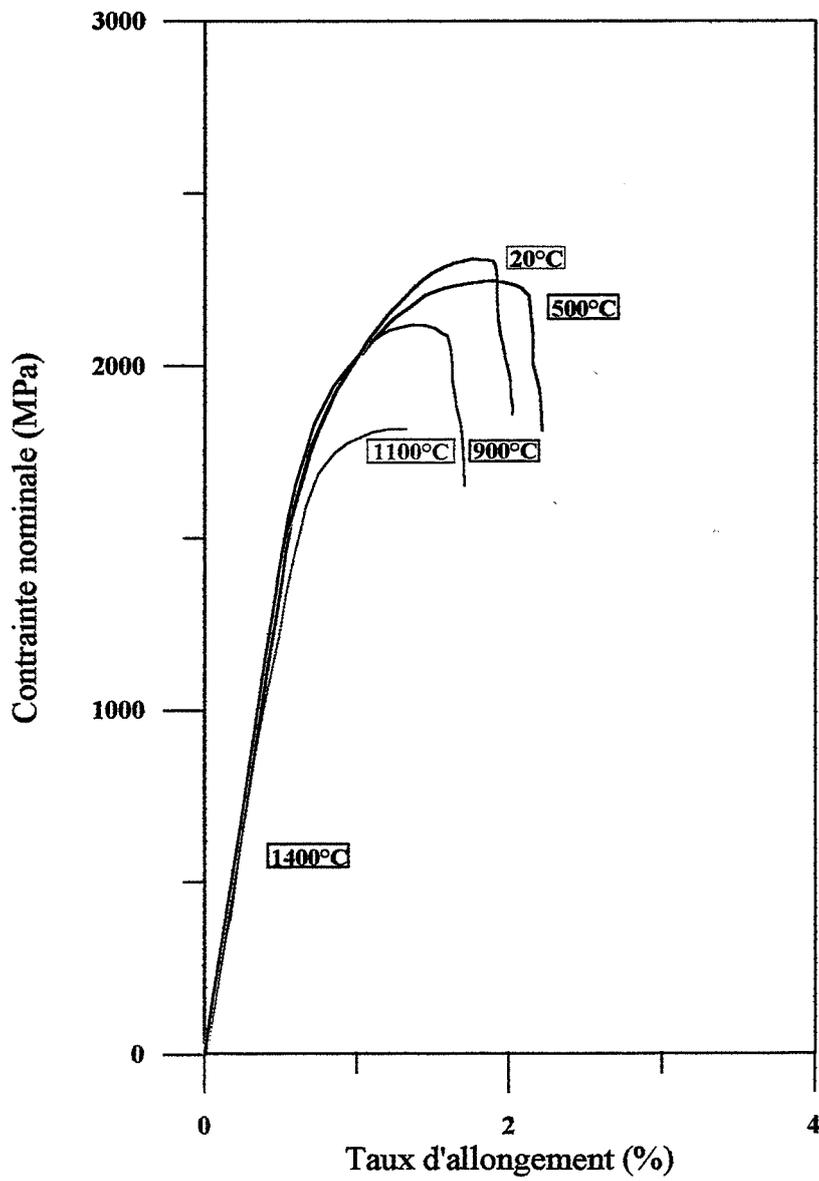


Figure B-1 : Courbes $\sigma - e$ en traction (à l'ambiante) de fils Dopés Nickelés après différents recuits.

Temp. d'essai (°C)	Fils Plansee						Fils Cime-Bocuze								
	Dopé non nickelé (φ = 1 mm)			Dopé nickelé (φ = 1 mm)			Temp. d'essai (°C)			Pur nickelé (φ = 1 mm)			Temp. d'essai (°C)		
	Rm (Mpa)	A(%)	Z(%)	Rm (Mpa)	A(%)	Z(%)				Rm (Mpa)	A(%)	Z(%)			
200	1782			1961	1,8		197			1719	2,17		300		
385	1630			1610	1,3	66,6	250			1502	2,05		497		
400	1604	1,77		1706			391			1426	7,30	79,6	600		
500	1598			1578			(10 mm)								
550	1502	1,50		1681			400			1413	1,55		687		
596	1490	2,00		1528	1,2	67,2	500			1350	1,42		800		
600	1502	1,80		1477		73	503			1375	1,55	76	900		
650	1464	1,37		1464	1,42		510			1222	1,10		980		
700	1400	1,65		1477	1,20		550			1299	1,62				
710	1426		70	1362	0,95	72,4	560			1311	1,40				
750	1350	1,25		1375	1,05		583			1184	1,30				
800	1324			1375	1,00		600			1216	1,47				
816	1362	1,60		1299	1,30	75	(11 mm)			1273	1,47	78			
850	1299	1,05		1264	1,07		(13 mm)			1197	1,10				
900	1251			1273	1,25		707			1133	1,20				
916	1273	0,97	69	1159	0,87		730			1234		51 (Th)			
920	1197			1146	0,97		746			1171	1,32	79			
937	1178			1197	0,92		750			1171	1,2				
960	1025	0,92	75	904	1,15		800			917	1,14	82,6			
970	1071			1095	0,85	84,5	(13 mm)			1184					
993	1069	0,90		1184			810			1216					
1015	1006	0,87	85	993	0,97	87,3	(13 mm)			1073	1,16				
1031	948	0,90		1025	0,96		901			1099	1,30				
1050	917	0,85		999	0,90		904			1151	0,87	95			
1100	875	0,85	85	831	0,97	88	(14 mm)								
1187	649	1,02		662	1,02		950			980	1,15				
1209	598	1,02	86	598		89 (c)	1000			923	1,12				
							1050			1005	1,15	96			
							(16 mm)			668					
							1050			732	1,17				
							1100			573	1,20				
							(16 mm)								
							1108			725	0,9				
							1160			573	1,05	59 (Th)			
							1190			547	1,22	98			
							1200			509	1,20				

Tableau B : Caractéristiques mécaniques des fils en traction à chaud.

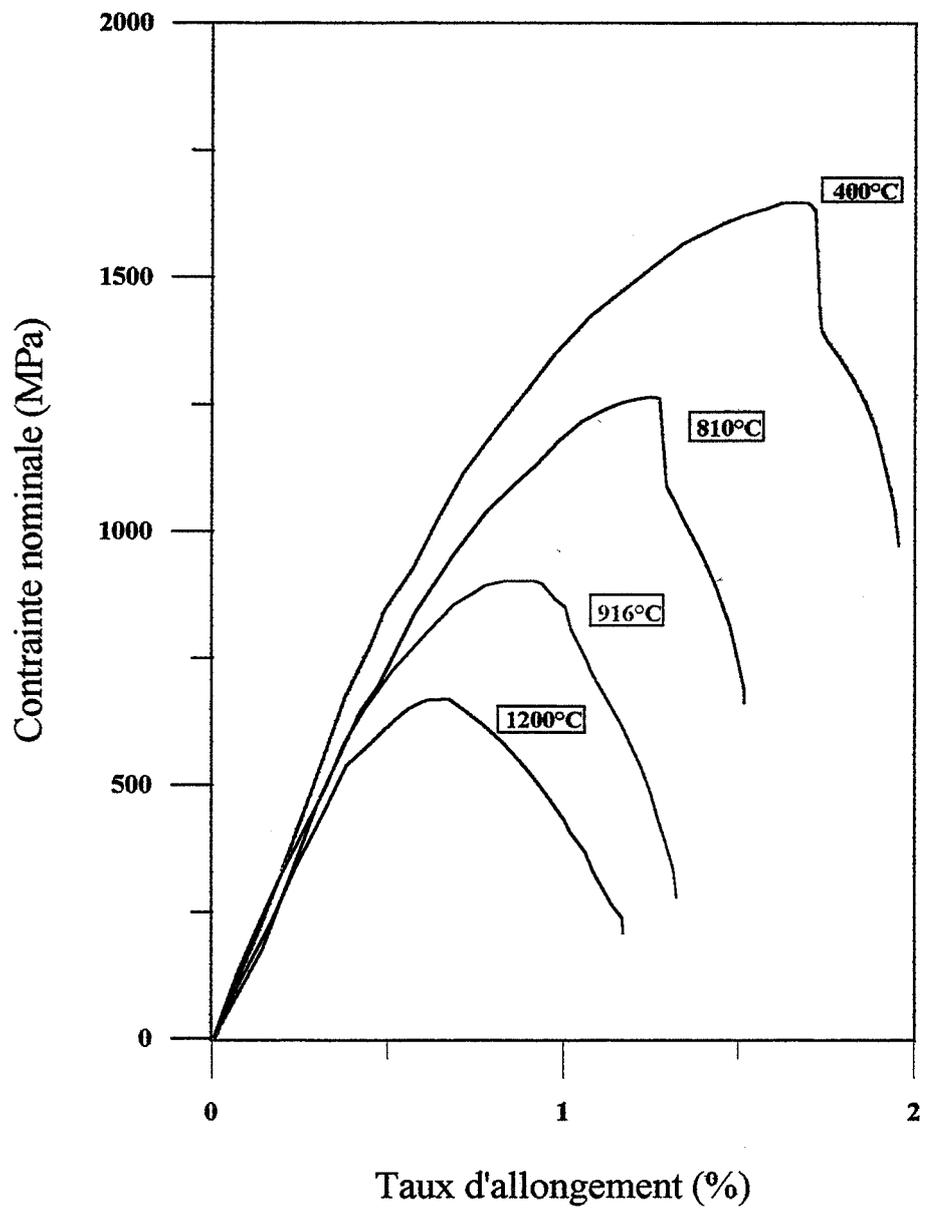


Figure B-2: Courbes σ - ϵ de traction à chaud des fils dopés nickelés (1 mm)

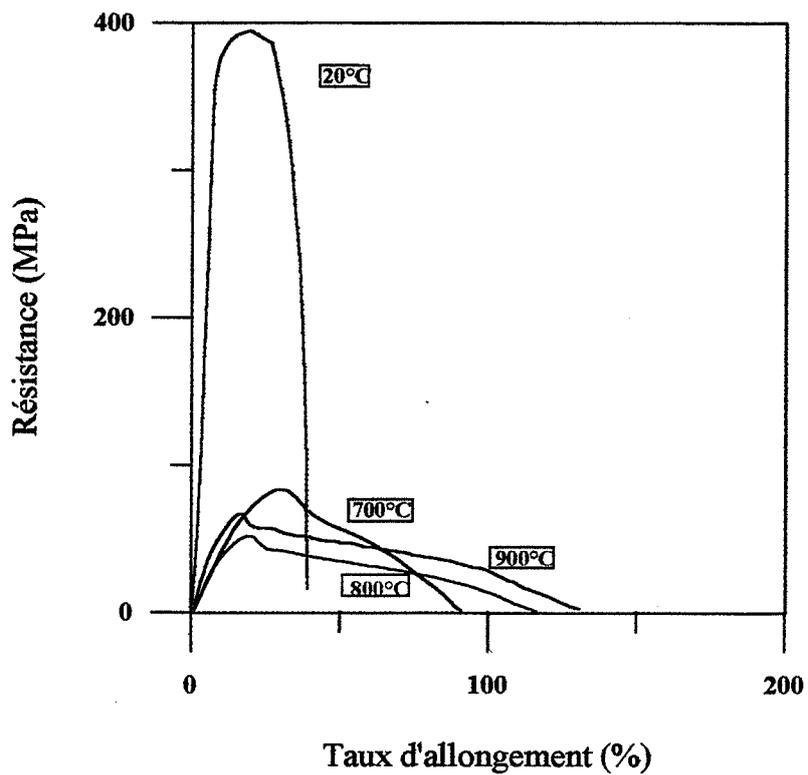


Figure B-3 : Courbes σ - ϵ en traction à chaud du nickel

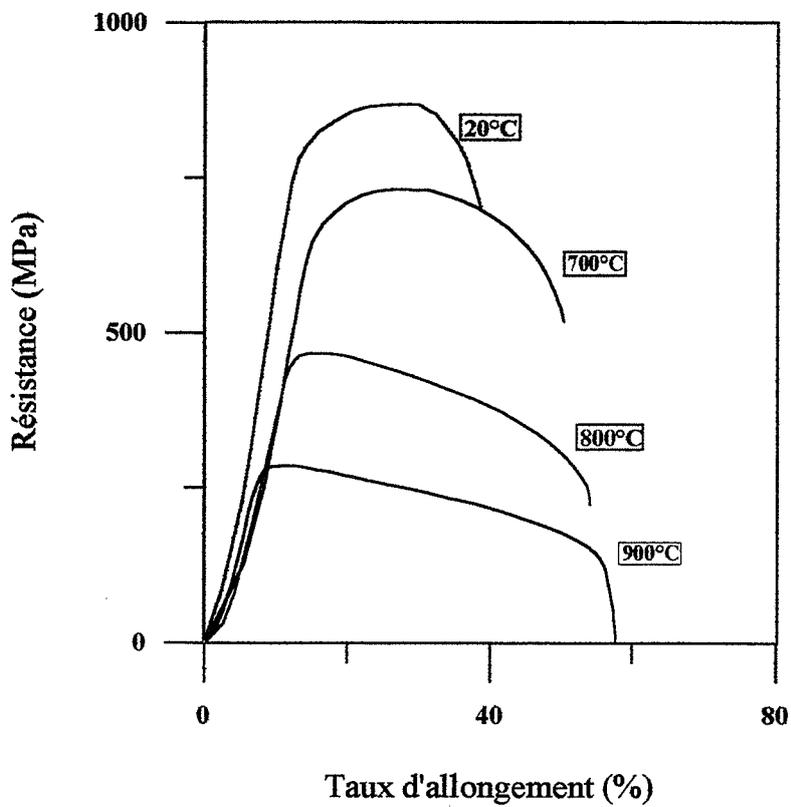


Figure B-4 : Courbes σ - ϵ en traction à chaud de l'acier Z12CNS 25-20

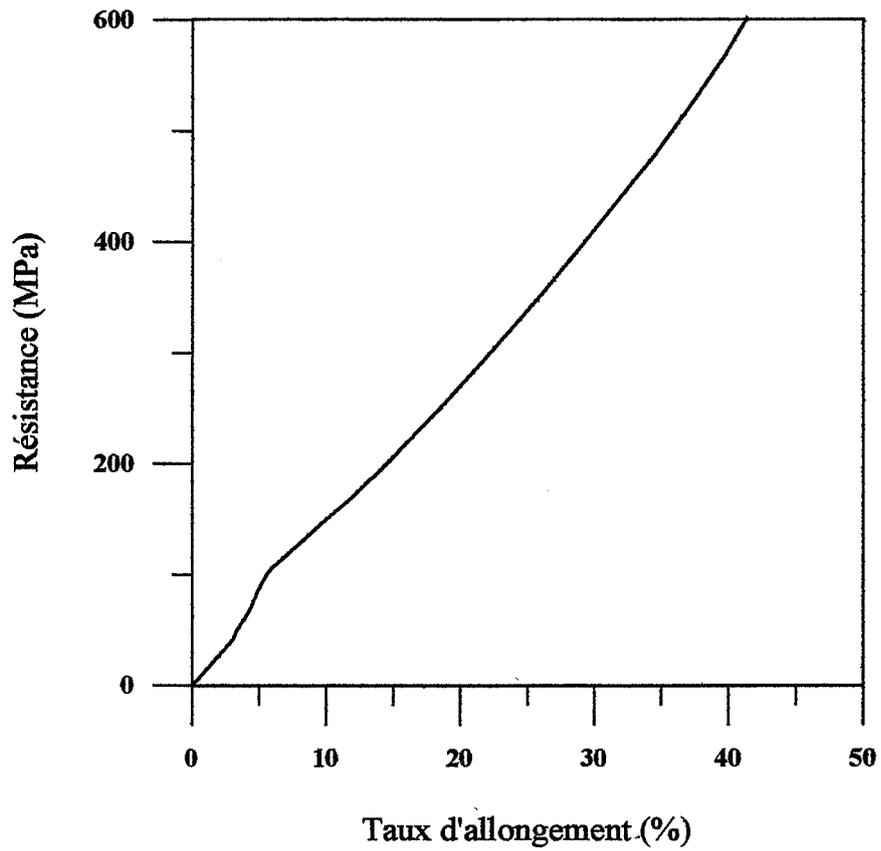


Figure B-5 : Courbe σ - ϵ en compression d'un nickel à gros grains

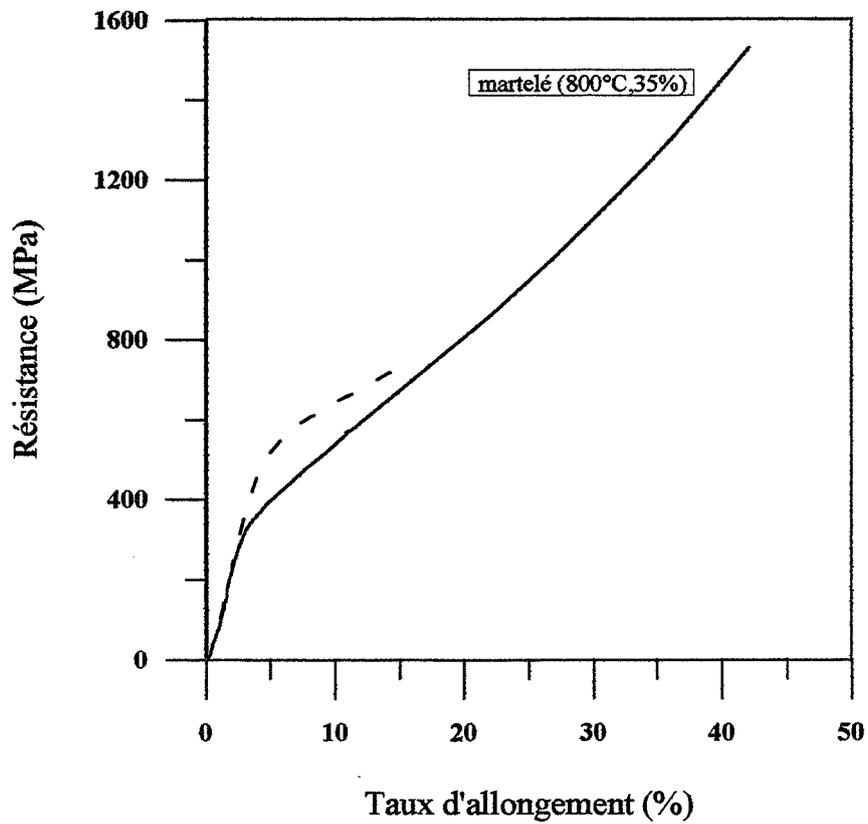


Figure B-6 : Courbes σ - ϵ en compression de l'acier Z12CNS 25-20

ANNEXE C

Densité théorique du matériau composite

Le calcul de la densité du matériau composite revient à calculer celle du fil nickelé:

$$\rho = V_W \cdot \rho_W + V_{Ni} \cdot \rho_{Ni}$$

ou ce qui est équivalent $\rho = S_W \cdot \rho_W + S_{Ni} \cdot \rho_{Ni}$

$$S_W = \left(\frac{d}{d + 2e} \right)^2 \quad \text{fraction surfacique de tungstène}$$

$$S_{Ni} = 1 - S_W \quad \text{fraction surfacique de nickel}$$

$$\rho_W = 19,3 \quad \text{densité du tungstène}$$

$$\rho_{Ni} = 8,9 \quad \text{densité du nickel}$$

Le calcul de la densité donne lieu à une équation à 3 inconnues:

$$4(\rho - 8,9) e^2 + 4d(\rho - 8,9) e + d^2(\rho - 19,3) = 0$$

Cette loi est représentée sur les figures C-1 et C-2 pour respectivement un fil de tungstène de diamètre 1 mm et 1,5 mm.

* Pour un fil de diamètre 1 mm :

On atteint la densité minimale acceptable de 17 pour une épaisseur de nickel de 60 μm , une densité de 17,81 pour 40 μm et une densité de 18 pour 30 μm .

* Pour un fil de diamètre 1,5 mm :

On atteint la densité minimale acceptable de 17 pour une épaisseur de nickel de 90 μm et une densité de 18 pour une épaisseur de 50 μm .

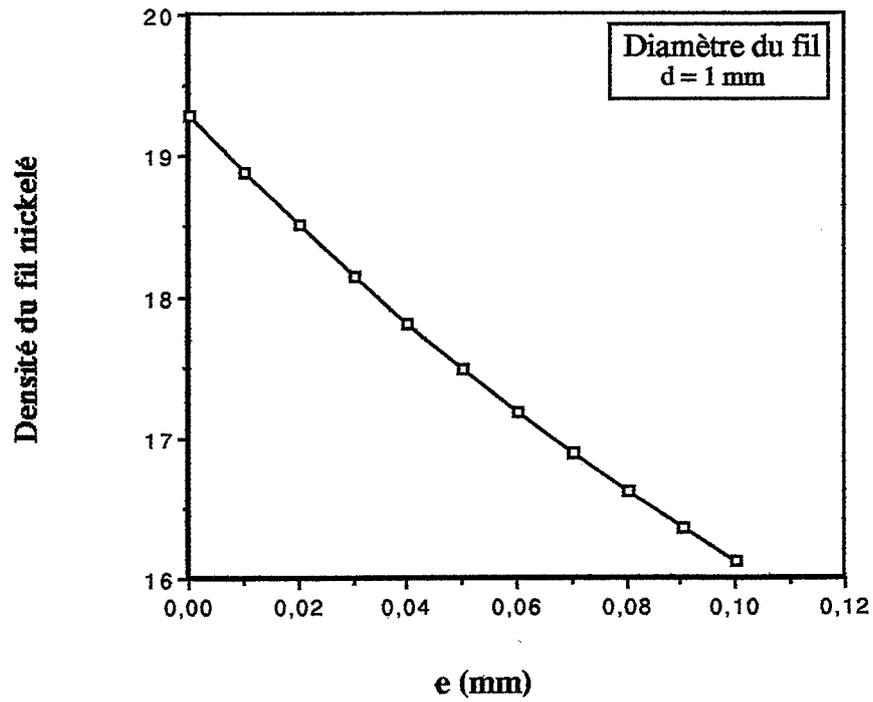


Figure C-1: Densité d'un fil nickelé de diamètre 1 mm en fonction de l'épaisseur du dépôt de nickel .

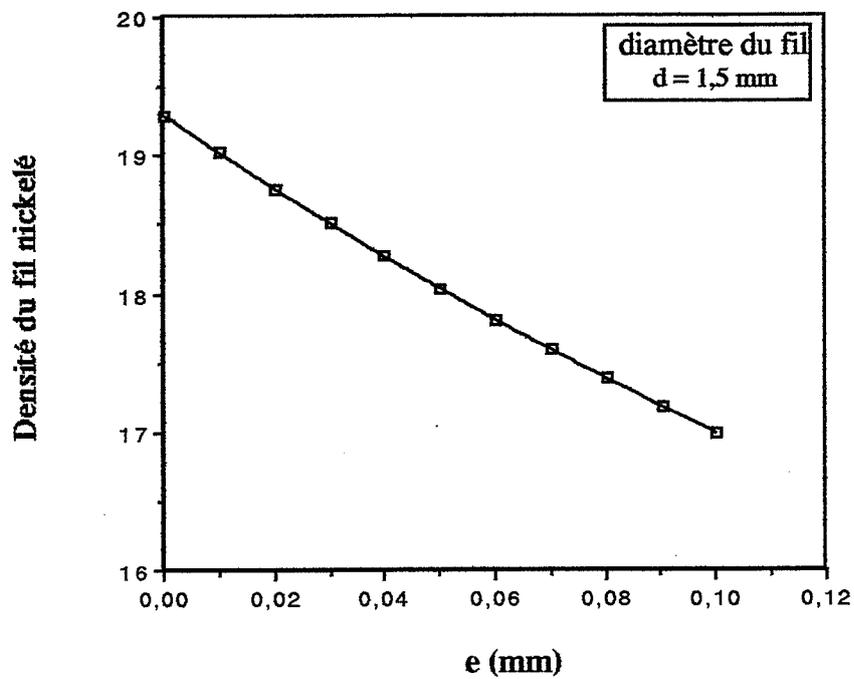


Figure C-2 : Densité d'un fil nickelé de diamètre 1,5 mm en fonction de l'épaisseur du dépôt de nickel .

ANNEXE D

Aspect théorique de la déformation de l'empilement de fils

par martelage rotatif

Analyse des déformations après martelage

La compaction d'un ensemble de fil réalisée par martelage peut donner lieu à des résultats très divers qui dépendent d'une part du taux de martelage mais aussi des capacités de déformation ou d'allongement des matériaux mis en présence et de leur interactivité.

Le nickel étant nettement plus ductile que le tungstène à la température de martelage, le martelage induira forcément une déformation importante du nickel.

Les fils de tungstène ont une faible ductilité et une forte résistance à cette température. On peut donc prévoir que leur déformation sera faible voir négligeable.

L'estimation de l'épaisseur minimale de nickel qu'il faut déposer pour préserver les fils de tungstène d'un trop fort endommagement nécessite d'envisager deux cas extrêmes pour la compaction des fils de tungstène résultant du martelage :

Cas 1 : Les fils de tungstène sont indéformables

La compaction et l'élimination de la porosité résultent de la seule déformation du nickel

Cas 2 : Les fils de tungstène se déforment homothétiquement avec le nickel

On se limitera à une déformation due à la seule modification géométrique de la section du fil sans réduction d'aire.

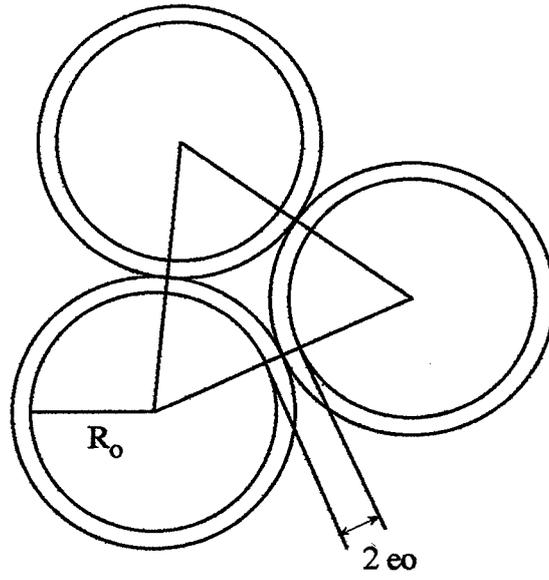
En réalité, l'observation des éprouvettes ont montré que les fils de tungstène s'allongent par martelage. Cette déformation donne lieu à une réduction de la section du fil. On constate aussi que cette déformation s'accompagne parfois d'une déformation géométrique de la section des fils. Ces déformations ne sont pas uniformes dans le matériau composite dans le sens où certains fils sont plus touchés que d'autres. Nous allons donc considérer un troisième et un quatrième cas plus proches de la réalité puisqu'ils tiennent compte de la réduction de section des fils :

Cas 3 : La section des fils de tungstène conserve l'aspect de disque (cas 1).

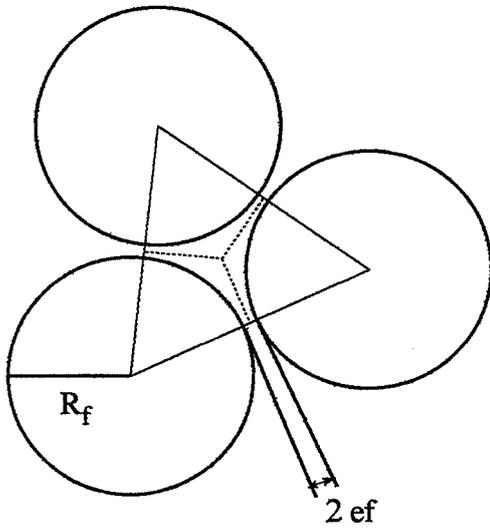
+ Les fils se déforment homothétiquement avec le nickel = allongement
=> réduction d'aire de la section de chaque fil.

Cas 4 : La section des fils de tungstène se déforme et devient un hexagone (cas 2).

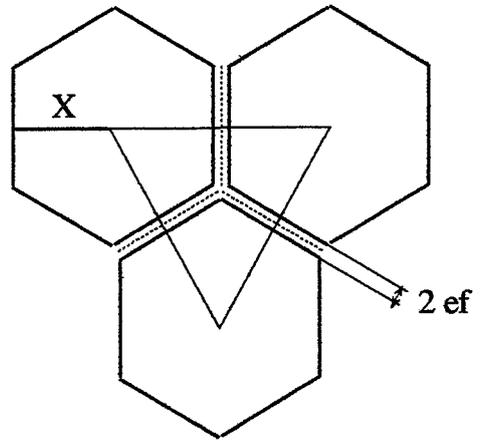
+ Les fils se déforment homothétiquement avec le nickel = allongement
=> réduction d'aire de la section de chaque fil.



(a) Avant martelage



(b) après martelage (cas 1)



(c) après martelage (cas 2)

Figure D-1: Schématisation de l'empilement élémentaire des fils avant et après martelage

En considérant pour tous les cas que l'épaisseur initiale du dépôt de nickel vaut e_0 et l'épaisseur finale (après martelage) vaut e_f , nous établissons, pour chacun des cas, la relation liant e_0 à e_f .

A partir d'une configuration élémentaire de l'empilement avant martelage (*Figure D-1a*), nous avons représenté sur les *figures D-1b* et *D-1c* celle résultant du martelage respectivement pour le cas 1 et pour le cas 2.

*** Cas 1 : Fils de tungstène indéformables**

L'établissement de la relation liant e_0 à e_f nécessite de faire l'hypothèse que la porosité centrale est comblée uniquement par le nickel inclus dans le triangle (*Figure D-1a*).

La conservation surfacique de matière conduit à la relation suivante:

$$S_i^{Ni} = 3 \cdot \frac{1}{6} [(R_0 + e_0)^2 - R_0^2]$$

$$S_f^{Ni} = \sqrt{3} (R_0 + e_f)^2 - \frac{\pi}{2} R_0^2 \quad (\text{Figure D-1b})$$

soit

$$\boxed{\frac{\pi}{2} (R_0 + e_0)^2 = \sqrt{3} (R_0 + e_f)^2}$$

Pour un fil de rayon $R_0 = 0,5$ mm, cette relation est représentée sur la *figure D-2*.

Pour une épaisseur de nickel de $40 \mu\text{m}$, $e_f = 14 \mu\text{m}$

L'épaisseur de la matrice située entre deux fils sera donc de $28 \mu\text{m}$.

*** Cas 2 : Fils de tungstène déformables**

On considère l'hypothèse extrême selon laquelle les fils de tungstène se déforment au point de former un réseau parfaitement hexagonal (*Figure D-1c*). Chaque hexagone conserve la surface originelle du fil du fait de l'incompressibilité du tungstène.

La relation liant e_0 à e_f devient alors égale à :

$$S_i^{Ni} = 3 \cdot \frac{1}{6} \pi [(R_0 + e_0)^2 - R_0^2]$$

$$S_f^{Ni} = 3 \cdot \frac{1}{6} \cdot 2\sqrt{3} [(X + e_f)^2 - X^2]$$

soit

$$\frac{\pi}{2} (2R_0e_0 + e_0^2) = \sqrt{3} (2Xe_f + e_f^2)$$

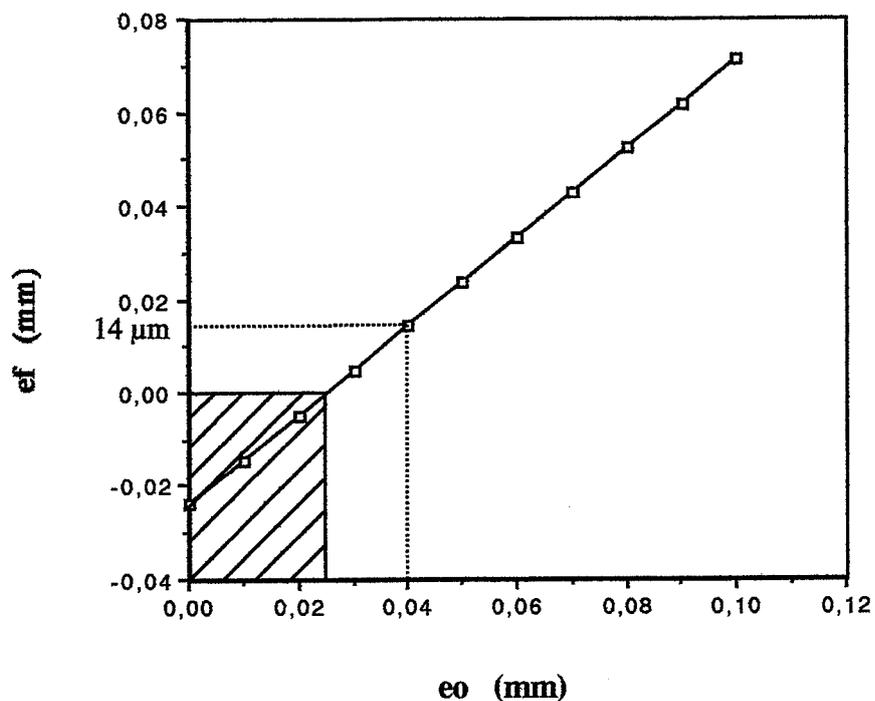


Figure D-2: Cas 1 = Evolution de l'épaisseur finale du nickel (e_f) en fonction de l'épaisseur du dépôt de nickel (e_0) pour un fil de diamètre 1mm.

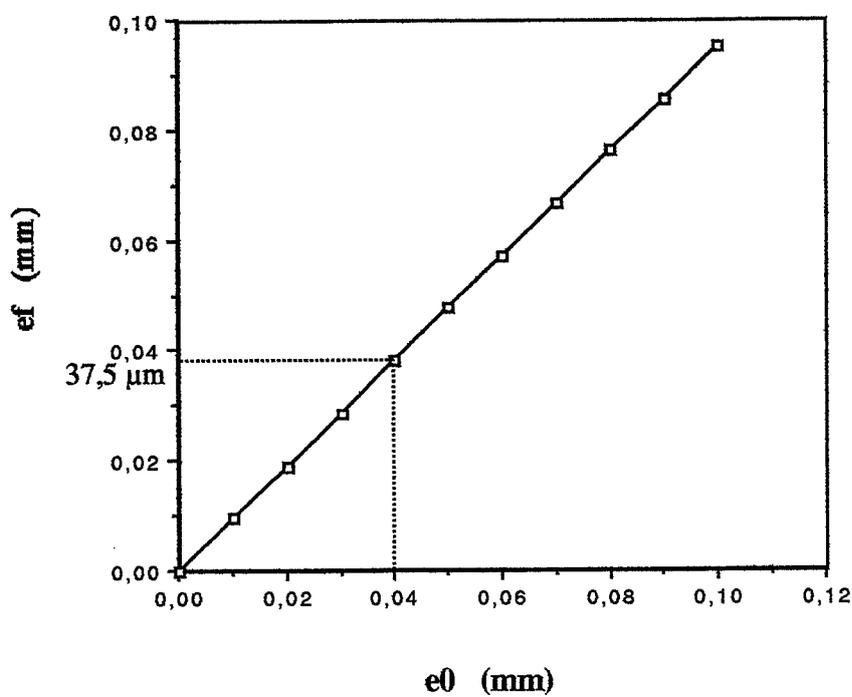


Figure D-3: Cas 2 = Evolution de l'épaisseur finale de nickel (e_f) en fonction de l'épaisseur finale (e_0) pour un fil de diamètre 1mm.

Incompressibilité du tungstène :

$$\pi R_0^2 = 2\sqrt{3} X^2 \quad X = \sqrt{\frac{\pi}{2\sqrt{3}}} R_0$$

En remplaçant X par R, la relation devient:

$$e_f^2 + 2 \sqrt{\frac{\pi}{2\sqrt{3}}} R_0 e_f - \frac{\pi}{2\sqrt{3}} (2R_0 e_0 + e_0^2) = 0$$

Pour un fil de rayon $R_0 = 0,5$ mm, cette relation est représentée graphiquement sur la *figure D-3*.
Pour une épaisseur de nickel de $40 \mu\text{m}$, $e_f = 37,5 \mu\text{m}$.

L'épaisseur de la matrice située entre deux fils sera donc de $76 \mu\text{m}$.

* **Cas 3 : Sections des fils indéformables mais avec réduction d'aire**

Les expériences nous ont montré que contrairement à ce qu'on attendait le martelage induit un allongement des fils de tungstène non négligeable. Il est donc nécessaire de tenir compte dans le modèle de la réduction de section des fils pour l'estimation de e_f .

1ère hypothèse :

Nous ferons cependant l'hypothèse simplificatrice que la déformation est homogène en tout point du matériau composite. Ceci revient à considérer que tous les fils subissent le même taux de déformation ($\epsilon_{\text{moy}}^{\text{fil}}$).

$$\epsilon_{\text{moy}}^{\text{fil}}(\%) = 2 \text{Ln} \frac{R_f}{R_0}$$

2nd hypothèse :

D'après l'étude structurale des matériaux composites en fonction du taux de martelage (§ II.4), les mesures expérimentales ont montré qu'il existait grossièrement une différence de 10% entre le taux de martelage (ϵ_M) et le taux de déformation réel des fils de tungstène ($\epsilon_{\text{moy}}^{\text{fil}}$). Considérons, par conséquent, la relation suivante :

$$\epsilon_M(\%) = \epsilon_{\text{moy}}^{\text{fil}}(\%) + 10\%$$

En l'absence de toute déformation radiale du fil, la réduction d'aire relative au taux de déformation donne lieu à la relation suivante:

$$R_f = R_0 \exp\left(\frac{\epsilon_M - 10}{200}\right)$$

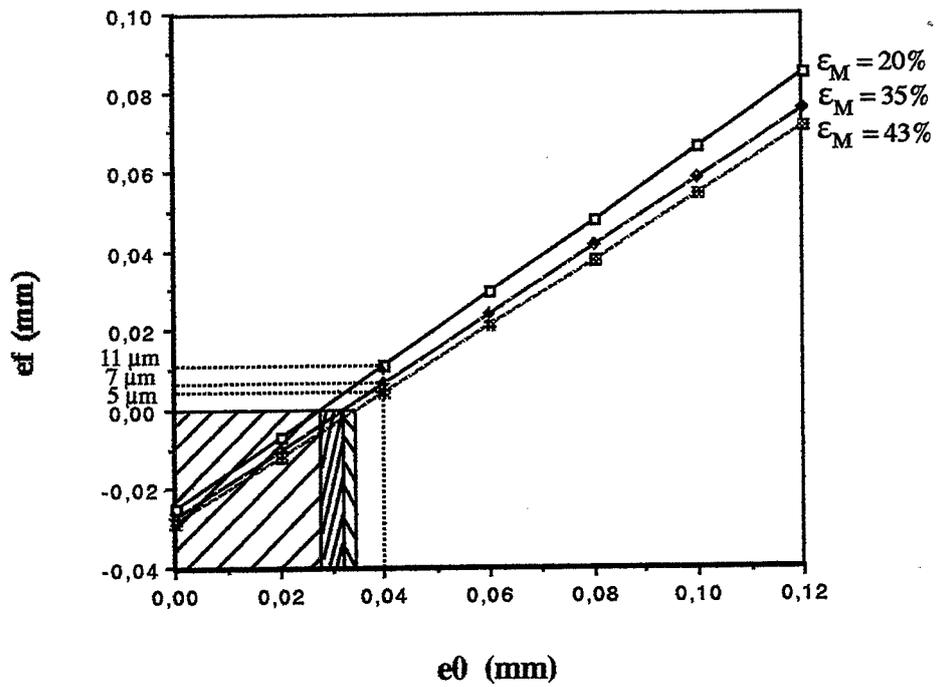


Figure D-4 : Cas 3 = Evolution de l'épaisseur finale de nickel (e_f) en fonction de l'épaisseur du dépôt initial (e_0) pour trois taux de martelage (pour un fil de diamètre 1mm)

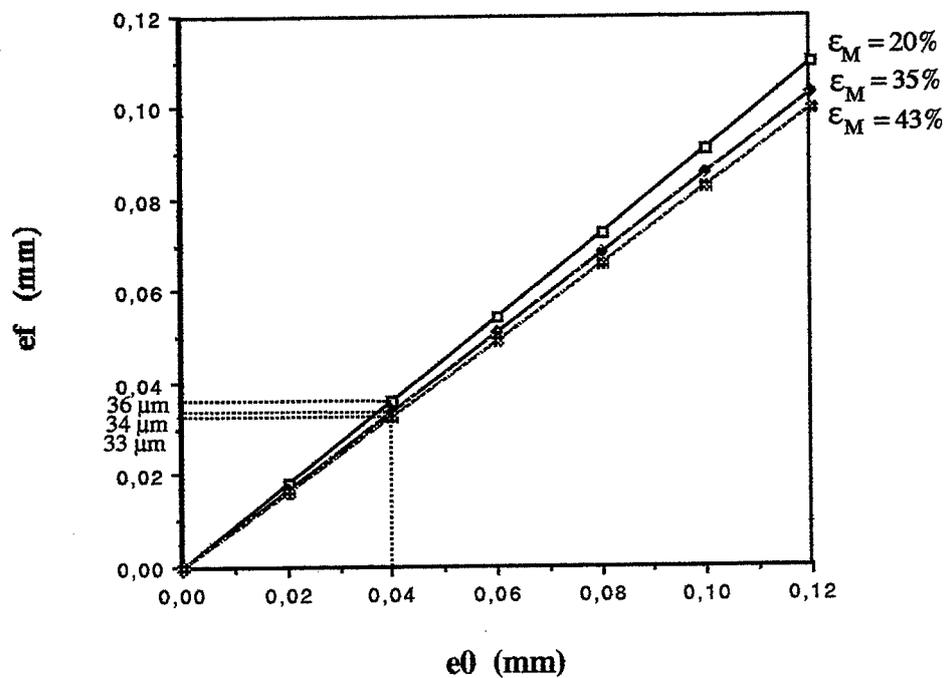


Figure D-5 : Cas 4 = Evolution de l'épaisseur finale de nickel (e_f) en fonction de l'épaisseur du dépôt (e_0) pour trois taux de martelage (pour un fil de diamètre 1mm)

La conservation surfacique de matière conduit à l'égalisation des données suivantes:

$$S_i^{Ni} = 3 \cdot \frac{1}{6} [(R_0 + e_0)^2 - R_0^2]$$

$$S_f^{Ni} = \sqrt{3} (R_f + e_f)^2 - \frac{\pi}{2} R_f^2$$

soit

$$e_f^2 + 2 R_0 \exp\left(\frac{\epsilon_M - 10}{200}\right) \cdot e_f + \frac{1}{4} \left(1 - \frac{\pi}{2\sqrt{3}}\right) R_0^2 \exp\left(\frac{\epsilon_M - 10}{100}\right) - \frac{\pi}{2\sqrt{3}} (2R_0e_0 + e_0^2) = 0$$

La *figure D-4* nous donne l'estimation de e_f en fonction de e_0 pour un fil de rayon $R_0 = 0,5$ mm et ceci pour trois taux de martelage différents (20% , 35% et 43%).

L'hypothèse selon laquelle le fil de tungstène ne se déforme pas en hexagone au cours du martelage conduit à des épaisseurs de nickel entre fils très faibles.

Pour une épaisseur de nickel de $40 \mu\text{m}$, $2e_f = 22 \mu\text{m}$ pour 20%

= $14 \mu\text{m}$ pour 35%

= $10 \mu\text{m}$ pour 43%

* Cas 4 : Sections des fils déformables et réduction d'aire

Les hypothèses 1 et 2 citées pour le cas 3 sont toujours valables .

3ème hypothèse :

La déformation radiale (ou géométrique) du fil en hexagone se fait avec conservation de l'aire :

$$\pi R_f^2 = 2\sqrt{3} X^2$$

soit
$$X = \sqrt{\frac{\pi}{2\sqrt{3}}} R_0 \exp\left(\frac{\epsilon_M - 10}{200}\right)$$

L'équation du second degré devient :

$$e_f^2 + 2 \sqrt{\frac{\pi}{2\sqrt{3}}} R_0 \exp\left(\frac{\epsilon_M - 10}{200}\right) \cdot e_f - \frac{\pi}{2\sqrt{3}} (2R_0e_0 + e_0^2) = 0$$

Pour un fil de rayon $R_0 = 0,5$ mm, cette relation est représentée sur la *figure D-5* en fonction de trois taux de martelage (20, 35, 43%). L'augmentation du taux de martelage n'entraîne pas une grande différence dans l'épaisseur de nickel finale entre deux fils ($2e_f$).

Pour une épaisseur de nickel de $40 \mu\text{m}$, $2e_f = 72 \mu\text{m}$ pour 20%

= $68 \mu\text{m}$ pour 35%

= $66 \mu\text{m}$ pour 43%

ANNEXE E

Loi de remplissage des containers par les fils

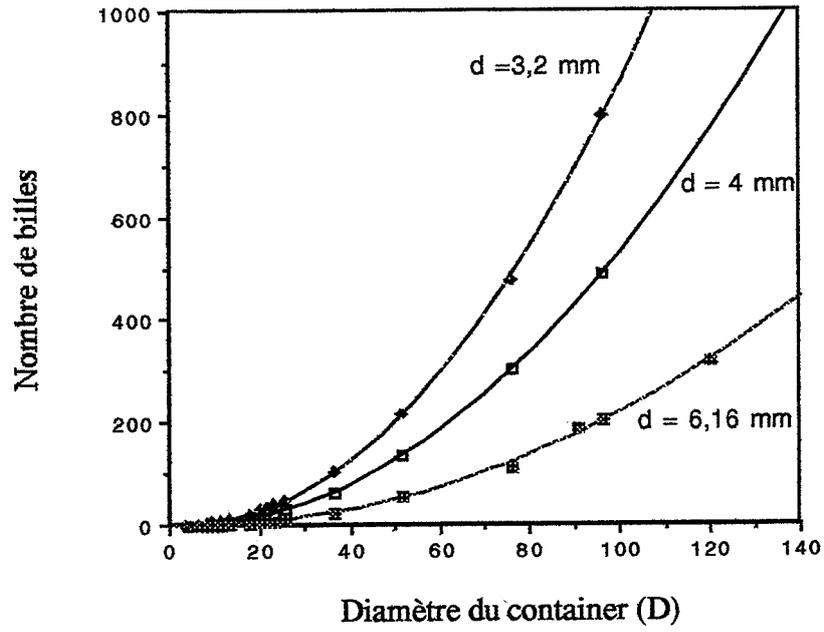


Figure E.1 : Loi de remplissage $N = f(D)$

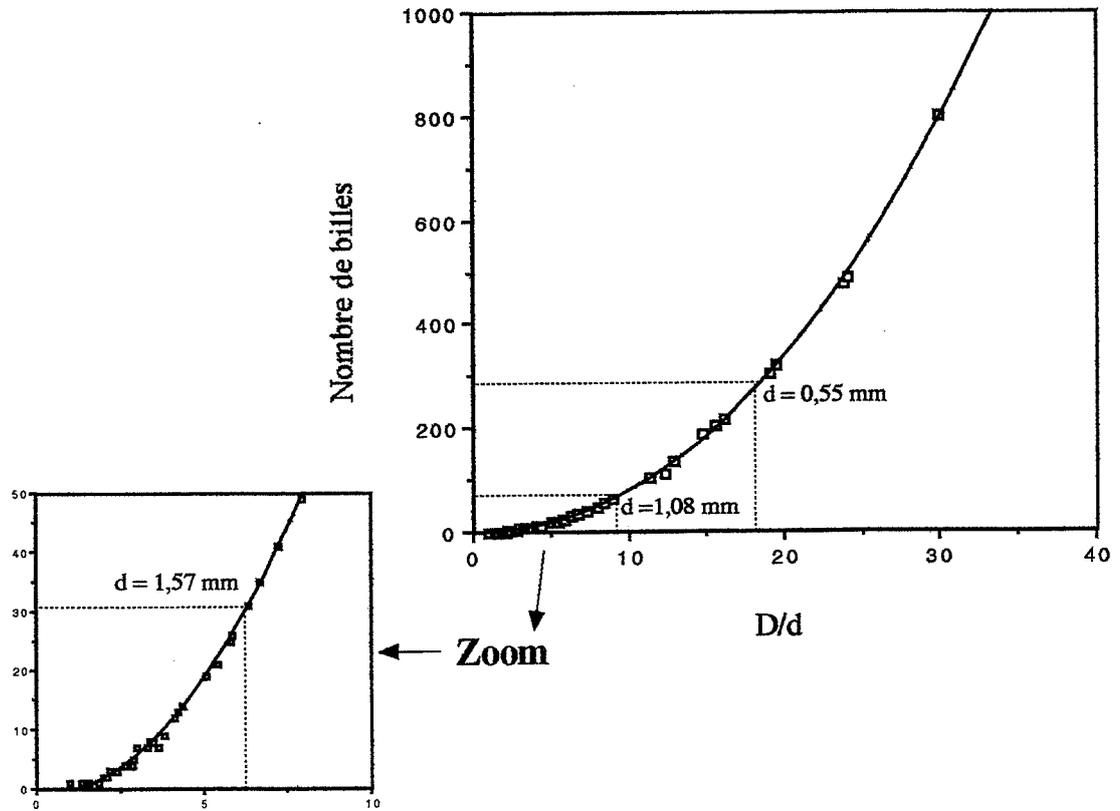


Figure E.2 : Loi de remplissage $N = f(D/d)$.
 D/d : rapport diamètre du container / diamètre de la bille

E.1 - Estimation du nombre de fils à introduire dans les containers

Pouvoir prévoir le nombre maximum de fils (N) que l'on va introduire dans un container devient indispensable dans le contexte d'une fabrication industrielle et d'autant plus si on souhaite faire varier le diamètre des fils et/ou le diamètre intérieur du container. Nous avons donc été amenés à effectuer une étude sur le remplissage avec des billes d'acier de diamètres variables (figurant les fils) et des contenants de diamètres eux aussi variables. Nous avons utilisé trois types de billes (diamètre d variable) : 3,2 ; 4 ; 6,16 mm. Les diamètres des contenants utilisés varient entre 3,2 et 75,8 mm.

Nous avons alors pu établir la loi : $N = f(D)$ pour chaque valeur de d (*Figure E.1*).

En traçant la loi : $N = f(D/d)$ (*Figure E.2*), on constate que les courbes établies pour chaque diamètre de billes se superposent, ce qui permet de déduire une loi de remplissage générale valable quelque soit les valeurs d et D.

Cette relation peut s'exprimer sous la forme d'une loi en puissance 2 de la manière suivante:

$$N = 2,4 - 1,64 \left(\frac{D}{d} \right) + 0,93 \left(\frac{D}{d} \right)^2$$

En reportant sur le graphe, les coordonnées (D/d et N) correspondant aux dimensions des fils et du container que nous avons expérimentés :

D toujours pris égal à 10 mm

Diamètre des fils nickelés (mm)	Nombre maximum de fils introduits
0,55 (0,5 + épaisseur de nickel de 25 µm)	284
1,08 (1,0 + épaisseur de nickel de 40 µm)	68
1,57 (1,5 + épaisseur de nickel de 35 µm)	31

On constate une adéquation parfaite des données expérimentales sur les fils avec la loi générale établie avec des billes de diamètres plus grands.

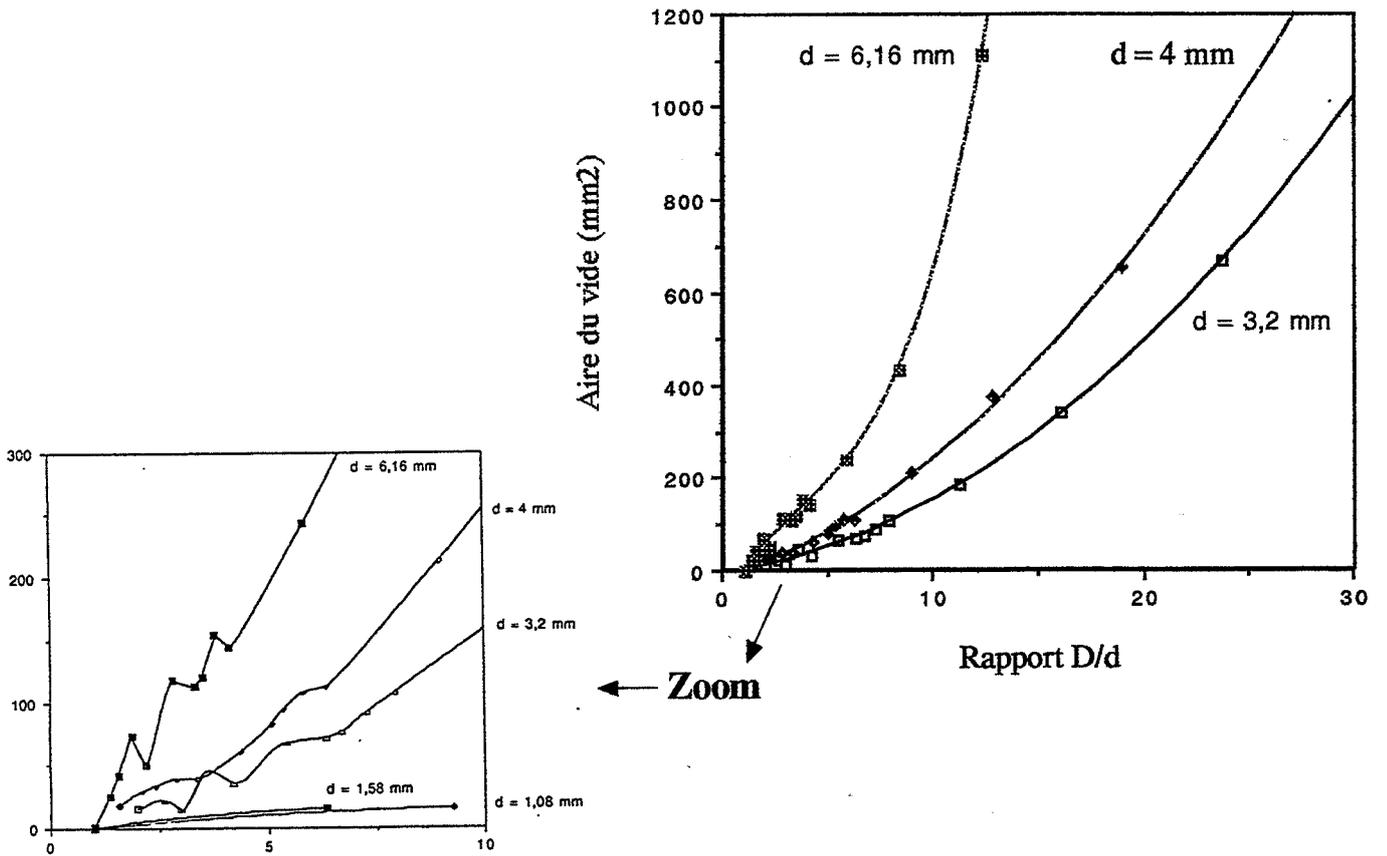


Figure E.3 : Aire occupée par le vide (ou interstices entre fils) en fonction du rapport D/d obtenue expérimentalement pour les trois types de billes.

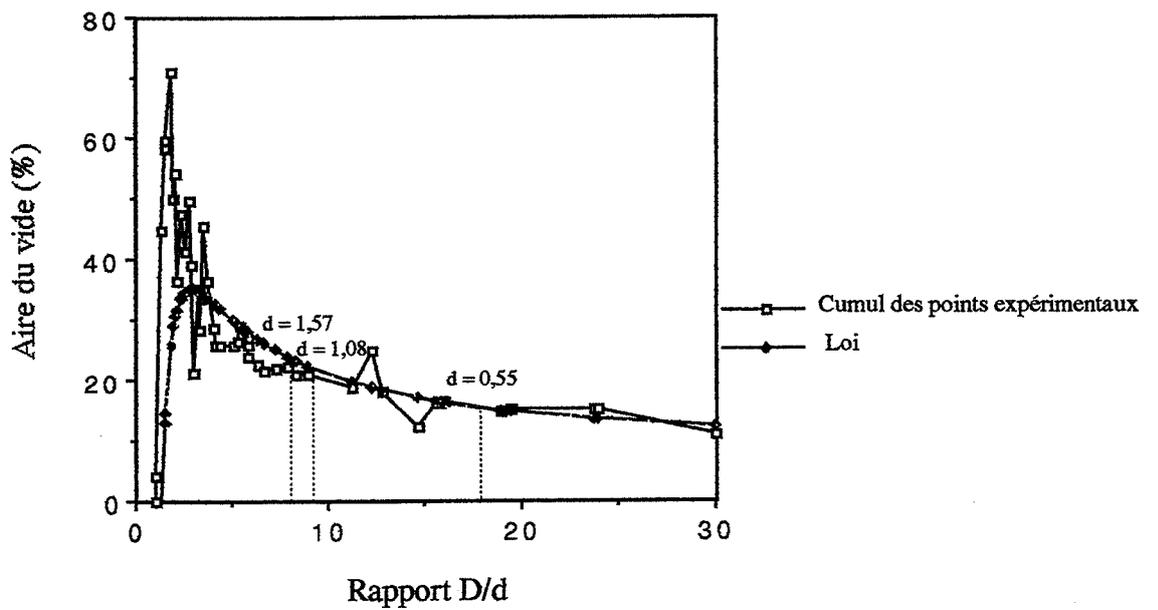


Figure E.4 : Aire (%) minimale occupée par le vide à l'intérieur du contenant en fonction du rapport D/d .

E.2 - Estimation du taux minimum de martelage à partir de l'aire occupée par les interstices.

A partir des mesures précédentes, il est possible de déterminer l'aire occupée par le vide (S_v) ou plus précisément l'aire occupée par les interstices entre billes à l'intérieur du contenant et ce en faisant varier aussi bien le diamètre du contenant que le diamètre des billes.

$$S_v = S_{\text{cont.}} - S_{\text{billes}} = \frac{\pi \cdot d^2}{4} \left[\left(\frac{D}{d} \right)^2 - N \right]$$

avec S_{cont} l'aire intérieure du contenant

S_{billes} l'aire occupée par les billes

Sur la *figure E.3*, est représentée l'évolution de cette aire en fonction du rapport D/d pour les trois valeurs de d séparément. On peut constater essentiellement aux basses valeurs de D/d pour lesquelles nous avons plus de points expérimentaux que cette valeur croît tout en oscillant. Ceci signifie que pour certaines valeurs discrètes du rapport D/d , on minimise l'aire occupée par le vide et donc on optimise le remplissage du container.

Sur la *figure E.4*, est représentée l'évolution de l'aire occupée par le vide en pourcentage de la surface interne du container (cumul des points expérimentaux : tout diamètre de billes confondus)

$$S_v (\%) = \left[\frac{S_{\text{cont.}} - S_{\text{billes}}}{S_{\text{cont}}} \right] \cdot 100 = \left(\frac{d}{D} \right)^2 \left[\left(\frac{D}{d} \right)^2 - N \right] \cdot 100$$

et la courbe S_v obtenue en remplaçant N par la loi générale établie ci-dessus.

$$S_v (\%) = \left[0,07 + 1,64 \left(\frac{d}{D} \right) - 2,4 \left(\frac{d}{D} \right)^2 \right] \cdot 100$$

On constate une assez bonne adéquation si ce n'est que les oscillations ne sont pas reproduites. En utilisant cette formule pour estimer l'aire relative occupée par le vide pour les trois diamètres de fils expérimentés, on obtient :

Pour des fils nickelés de diamètre 0,55 mm : $S_v \approx 15,3 \%$

Pour des fils nickelés de diamètre 1,08 mm : $S_v \approx 21,9 \%$

Pour des fils nickelés de diamètre 1,57 mm : $S_v \approx 26,8 \%$

La comparaison de ces valeurs avec celles calculées en se basant sur la géométrie des éléments (Tableau ci-dessous), indique que cette formule permet une assez bonne estimation de l'aire occupée par le vide.

Diamètre des fils nickelés (mm)	S_v %	S_{fils} %	S_{nickel} %
0,55 (0,5 + épaisseur de nickel de 25 μm)	14,1	71	14,9
1,08 (1,0 + épaisseur de nickel de 40 μm)	20,7	68	11,3
1,57 (1,5 + épaisseur de nickel de 35 μm)	23,6	69,7	6,7

Cette formule tout en permettant d'estimer directement en fonction du diamètre interne du container (D) et du diamètre du fil nickelé (d) l'aire occupée par le vide, va permettre de déterminer le taux de martelage minimale que nous devons appliquer pour s'assurer d'une parfaite élimination des interstices (densification) au cours du martelage.

Références bibliographiques

- Ahmad I., Greco V.P., Barranco J.M. *J. composite materials*, Vol 1, pp 18- 29, (1967).
- ASM committee on rotary swaging "Rotary swaging of bars and tubes", *Techn. de l'ingénieur*, pp 333-346.
- Babcock S.E., Balluffi R.W. *Acta met.*, vol 37 n°9, pp 2357-2365, (1989).
- Balluffi R.W., Cahn J.W. *Scripta Met.*, vol 13, pp 499-502, (1979).
Acta.Met., vol 26, pp 493-500, (1981).
- Barna A., Gaal I., Geszti-Herkner O, Radnoczi G., Uray L. *High Temp.-High pressures*, Vol 10, pp 197-205, (1978).
- Brett J, Friedman S. *Metal. Trans.*, vol 3 , pp 769-778, (1972).
- Briant C.L., Walter J.L. *Proc. 12th international Plansee Seminar*, Vol 1, RM 12, pp 151-170, (1989).
- Cermak J. *Phys. Stat. sol. (a)*,120, pp 351-361, (1990).
- Chaki T.K. *Philos. Mag. Letters*, vol 58 n°3, pp 135-138, (1988).
- Chen F.S., King A.H. *Acta met.*, vol 36 n° 10, pp 2827-2839, (1988).
- Chen F.S., Dixit G., Aldykiewicz A.J., King A.H. *Metal. trans. A*, vol 21A, (1990).
- Chongmo L., Hillert M. *Acta Met.*, vol 29, pp 1949-1960, (1981).
- Cratchley D. *Metallurgical reviews*, vol 10, n°37, pp 79-144 (1965).
- Den Broeder F.J.A. *Acta Met.*, vol 20, (1972).
Thin solid films vol 124, pp 135, (1985).
- Den Broeder F.J.A., Kerk M. *Acta met.*, vol 31 n°2, pp 285-291, (1983).
- Den Broeder F.J.A., Nakahara S. *Scripta met.*,vol 17, pp 399-404, (1983).
- Diet F., Petit Ph. *Rapport de stage ingénieur E.N.S.M.*, (1989)
- Diet F. *Rapport de stage DEA ENSMS*, (1989).
Rapport contrat ENSME-DRET, (1990).
- Dimitrov O. *Journal de physique*, Coll C4, Tome 36, pp 319-332, (1975).
- Epreman E., Harker D. *Metals Trans.*, p.267-273, (1949).
- Farrell K., Schaffhauser A.C., Houston J.T. *Metal. Trans.*, Vol 1, pp 2899- 2905, (1970).
- Fournelle R.A., Giakupian B., Gust W., Predel B. *J. de phys.*, coll. C5, suppl.au N° 10, Tome 49, (1988).
- Friedman S., Brett J. *Trans. of aime*, vol 242, pp 2121-2127, (1968).
- Funkenbusch A., Bacon F., Lee D. *Met. Trans. of AIME*, pp 1085-1091, (1979).
- German R.M. *Science of sintering*, vol 15 n°1, pp 27-42, (1983).
Powder Metallurgy science. Chap.6, ed. MPIF, pp 145-189, (1984).
Liquid phase sintering. chap. 3, ed. Plenum, pp 43-63, (1985).
Progress in powder Metal., vol 43, pp 65-77, (1987).
- Gessinger G.H., Fishmeister H.F. *Journal of less common Metals* vol 27, pp 129-141, (1972).
- Giakupian B., Schmelzle R., Mayer C., Gust W., Fournelle R.A. *Scr.ip. met.*,vol 26, pp 895-900, (1992).
- Glaeser A.M., Evans J.W. *Acta Metall.*, vol 34 n°8, pp 1545-1552, (1986).
- Gottstein G., Shvindlerman L.S. *Scripta Metall. mater*, vol 27, pp 1515-1526, (1992).
- Grabianowski A., Danda A. , Ortner B., Stuwe H.P. *Mech. research commu.*, Vol 7, pp 125-126, (1980).
- Grabianowski A., Baliga W , Ortner B. *Arcives of metallurgy*, Vol 37, pp 351-361, (1992).
- Gust W., Hintz M.B., Predel B. *J. de physique*, Coll. C4, suppl. au n°4, Tome 46, pp 529-536, (1985).

- Haessner F.** Recrystallization of metallic materials. Dr. Riederer-Verlag GMBH Stuttgart (1978).
- Hillert M.** Scripta Met., vol 17, pp 237-240, (1983).
- Hillert M., Purdy G.R.** Acta. Met, vol 36, pp 333-340, (1978).
- Hoffmann J., Hofmann S., Tillmann L.** Z. Metallkunde, Bd. 65, H.11, p 721, (1974).
- Hosford W.F.** Trans. of Metal. society of AIME, Vol 230, pp 12-15, (1964).
- Jahn R-J., Bristowe P.D.** Scripta met., vol 24, pp 1313-1318, (1990).
- Jahn R-J., King A.H.** Acta Met. mater., vol 40 n°3, pp 551-558, (1992).
- Joshi A; Stein D.F.** Met. trans., vol 1, pp 2543-2546, (1970).
- Kang T.K., Yoon D.Y.** Met. Trans., vol 9A, pp 433-438, (1978).
- Kaysser W.A., Petzow G.** Modern dev. in powder Metallurgy, vol 12, pp 397-408, (1981).
- Kaysser W.A., Puckert F., Petzow G.** Powder Met. International, vol 12 n°4, pp 188-191, (1980).
- Kelly A., Davies G.J.** Metal. reviews, vol 10, n°37, pp 1-77, (1965).
- Kelly A., Tyson W.R.** J. Mech. Phys. Solids, vol 13, n°37, pp 329-349, (1965).
- Kelly A., Lilholt H.** Phil. Mag, 20, pp 311-328, (1969).
- Kim W., Meyrick G., Shewmon P.G.** Scripta met., vol 17, (1983).
- King A.H.** International Mat. Reviews, vol 32 n°4, pp 173-189, (1987).
- King A.H., Dixit G.** Journal de physique, coll. C1, suppl. au n°1, tome 51, (1990).
- Kozma L., Labar J.** Proc. 10th Plansee Seminar, RM 38, pp 237-245, (1981).
- Kozma L., Hening E.-Th.** Proc. 5th Int. Round Table Conf. on sintering, pp 313-319, (1982).
- Jones F.O.** Recueil de conf., Université de Sheffield sept. 60, ed. Quarrel, pp 150-158, (1961).
- Lee J.S., Kim T.H., Lee K.H.** Mater. Science forum, vol. 126-128, pp 399-402, (1993).
- Lee J.S., Klockgeter K., Herzig C..** J. de physique, Coll. C1, suppl. au n°1, tome 51, pp 569-574 (1990).
- Lesage B., Huntz A-M.** Proc. 19^{ème} coll. de métallurgie, CEN Saclay, vol 1, (1976).
- Lücke K, Detert K.** Acta. Met, vol 5, p 628, (1957).
- Lhuire E.** Thèse INPL (1984).
- Ma C.Y., Laub W., Fournelle R.A., Gust W., Predel B.** Z. metallkunde, vol 83n°8, pp 633-637, (1992).
- Mc Danels D.L., Jech R.W., Weeton J.W.** Trans. of Met. soc. of AIME, Vol 233, pp 636-642, (1965).
- Meieran E.S., Thomas D.A.** Trans. of Metal. society of AIME, Vol 233, pp 937-943, (1965).
- Mishin Y.M., Razumovskii I.M.** Acta. Met. mater, vol 40 n°4, pp 839-845, (1992).
- Moon D.M., Koo R.C.** Metal. Trans. ,Vol 2, pp 2115-2122 (1971).
- Moon I-H. , Oh S-T., Kim Y-L.** Journal of the less-Common Metals, 153, pp 275-283, (1989).
- Montelbano T., Brett J., Castleman L., Seigle L.** Trans. of aime , vol. 242, pp 1973-1979, (1968).
- Muster W.J., Yoon D.N., Huppmann W.J.** J. of the less common Metals, vol 65, pp.211-216, (1979).
- Nagender-Naidu S.V., Sriramamurthy A.M., Rama Rao P.** J. of alloy phase diagrams , vol. 2 n°1, pp 1-11, (1986).
- Nieh T.G.** Scripta Met, vol 18, pp 1279-1282, (1984).
- Ochiai S., Shimomura K, Murakami Y.** Metal. science, Vol 9, pp 535-540, (1975).
Trans. JIM, Vol 16, pp 463-471, (1975).
Trans. JIM, Vol 17, pp 649-654, (1976).
- Olander D.R., El-Said U.M.** Acta. Met. mater, vol 40 n°6, pp 1329-1336, (1992).

- Ortner B., Grabianowski A., Danda A.** Metall., Vol 37, pp 804-806 (1983).
- Ovens W.G., Bartholomew E.L., Biederman R.R.** J. of Engineering for Industry, pp 1121-1124, (1976).
- Pan J.D., Balluffi R.W.** Acta Met., vol 30, pp.861-870, (1982).
- Parthasarathy T.A., Schewmon P.G.** Scripta Met., vol 17, pp 943-946, (1983).
- Peck J.F., Thomas D.A.** Trans. of Metal. society of AIME, Vol 221, pp 1240-1247, (1961).
- Petrasek D.W., Weeton J.W.** Trans. of Metal. society of AIME, vol 230 n°37, pp 1967-990, (1964).
- Philibert J.** *Diffusion et transport de matière dans les solides*. ed. de physique (1975-1990).
- Poole W.J., Embury J.D., Mc Ewen S., Kocks U.F.** Phil. Mag, A, Vol 69, n°4, pp 645-665 (1994).
Phil. Mag, A, Vol 69, n°4, pp 667-687, (1994).
- Poulsen K.E., Rubæk S., Langer E.W.** Scripta Metallurgica, vol 8, p.1297-1300, (1974).
- Prewo K.M., Kreider K.G.** Met.Trans., vol 3, p 2201-2211, (1972).
- Rickmann J.M., Phillipot S.R., Wolf D., Woodraska D.L., Yip S.** J. mater. Res., vol 6 n°11,
pp 2291-2304, (1991).
- Rhines F.N., Wray P.J.** Trans. of the ASM, Vol 54, pp 117-128, (1961).
- Schmelzle R., Giakupian B., Muschik T., Gust W., Fournelle R.A.** Acta metall. mater., vol 40,
pp 997-1007, (1992).
- Schrank J., Ortner B., Stuwe H.P., Grabianowski A.** Mater.sci. and techn., Vol 1, pp 544-549, (1985).
- Schrank J., Stuwe H.P.** Z. metallkunde Bd. 77, pp 107-111, (1986).
- Smidoda K., Gottschalk W, Gleiter H.** Acta met.,vol 26, pp 1833, (1978).
- Simonetta-Perrot M-Th.** Thèse de doctorat ENSME, (1994).
- Smith D.A., King A.H.** Philosophical magazine A, vol 44, pp 333, (1981).
- Smith D.A., Smith G.D.W** Proc. 3rd Int. conf. on the strenght of Metals and Alloys, vol I, pp 144-148, (1973).
- Snow D.B.** Metal. Trans.A, Vol 5, pp 2375-2381, (1974).
Metal. Trans.A, Vol 7, pp 783-794, (1976).
Metal. Trans.A, Vol 10A, pp 815-821, (1979).
- Stokes R., Li C.** Trans of Aime, vol 230, pp 1104-1110, (1964).
- Taya M., Arsenault R.J.** *Metal Matrix Composites Thermomechanical behaviour*. Pergamon press, (1989)
- Thompson-Russell K.C., Prozeé Ch** Proc. 4th int. conf. on texture and the propr. of materials, Cambridge,
pp 110-120, (1975).
- Thorsen K.A** Proc. 12th international Plansee Seminar, Vol 1, RM 1, pp 1-35, (1989).
- Tieyong Z., Zhongchun C., Meiling Z.** Proc. 12th int.. Plansee Seminar, Vol 4, RM 41, pp 33-39, (1989).
- Toshiro K., Purdy G.R.** Scripta met., vol 17, pp 455-458, (1983).
- Vennett R.M., Wolf S.M., Levitt A.P.** Metal. Trans., Vol 1, pp 1569-1575, (1970).
- Walsh J.M., Donachie M.J.** Met.Trans., vol 4, p.2854-2855, (1973).
- Walirmont H., Necker G., Shultz H.** Z. Metallkunde, 66(5), pp 279- 286, (1975).
- Walter J.L** Trans. of Metal. society of AIME, Vol 239, pp 272- 286, (1967).
- Walter J.L, Briant C.L., Koch E.F.** Met. Trans. of AIME, Vol 13, pp 1501- 1510, (1982).
- Yih S.W.H., Wang C.T.** *Tungsten, sources, metallurgy, Properties and applications*. ed Plenum press, (1979).
- Yoon D.N., Huppman W.J.** Acta Met., vol 27, pp 693-698, (1979).
Acta Met., vol 27, pp 973-977, (1979).
- Zahl D.B., Schmauder S., Mc Meeking R.M.** Acta. Met. Mater., Vol 9, n°4, pp 2983-2997, (1994).

N° D'ORDRE : 138 TD

Nom : Laurence DELFAUT

Sujet : Elaboration et caractérisation d'un matériau composite nouveau à base de tungstène.

Spécialité : Science et génie des matériaux

Mots clés : Matériau composite, isotrope transverse, fils, tungstène, nickel, acier austénitique, électroformage avec martelage rotatif, traction-compression à chaud et à l'ambiante, loi des mélanges, endommagement, réaction interfaciale W-Ni, recristallisation induite, diffusion intergranulaire.

Résumé :

Pour la réalisation de projectiles-flèches, il a été envisagé de remplacer les alliages lourds frittés par un nouveau matériau plus performant. Nous avons donc élaboré un matériau composite unidirectionnel constitué d'une forte fraction volumique de fils de tungstène (diamètre 1 mm) et d'une matrice en nickel. Ce matériau vise à exploiter au maximum les propriétés des fils de tungstène telles que une densité et une résistance très élevées, une microstructure fibreuse conférant une certaine ductilité.

Pour la mise en forme du matériau, nous avons choisi d'utiliser une technique peu exploitée mais parfaitement adaptée au matériau recherché (matériau isotrope transverse et à forte fraction volumique de fils en tungstène, utilisation de fils nickelés) qui est l'électroformage avec martelage rotatif "à chaud" (Température < 1000°C).

Pour l'obtention d'un matériau parfaitement densifié et sans endommagement, il a été nécessaire de définir les paramètres de mise en forme qui sont principalement la température et le taux de martelage à travers l'observation microstructurale du composite mais aussi à travers une étude sur l'évolution microstructurale et mécanique des fils de tungstène nickelés en fonction de la température de recuit ou d'essai.

Ceci nous a amené à étudier le phénomène de réaction interfaciale qui se produit entre le tungstène et le dépôt de nickel à température supérieure à 1000°C et qui se caractérise par une recristallisation du fil de tungstène induite par une diffusion intergranulaire du nickel.

Des essais en compression statique menés sur le matériau composite ont permis de montrer la forte résistance du composite (1800 MPa) ainsi qu'un bon comportement vis à vis de l'endommagement.

Grâce à ces essais, nous avons pu montrer qu'une approche micromécanique (loi des mélanges) permet de prévoir correctement les caractéristiques mécaniques du composite en compression mais aussi en traction.