



## Effet des traitements thermiques sur le couplage de la stabilité de la phase $Al_3Zr$ dans la matrice Al et la variation de la micro dureté de l'alliage Al-Zr à 9,6 % en poids de Zr.

H. A .BENHORMA<sup>1</sup>, B .BENHABIB<sup>1</sup>, S.BENARRACHE<sup>1</sup> & O. ALLAOUI<sup>2</sup>

(1) Laboratoire de mécanique université de Laghouat

(2) Laboratoire de Génie des procédés université de Laghouat

\*\*Corresponding author: [benhormaha@yahoo.com](mailto:benhormaha@yahoo.com)

### Résumé

L'utilisation correcte des matériaux, quelle que soit leur nature et leurs structures, nécessite une bonne et complète caractérisation, que soit mécanique, physique, structurale et etc... Dans cette perspective, ce travail consiste à apporter une contribution à l'étude de la stabilité structurale (phases coexistantes) dans l'alliage Al-Zr à 9.6% de Zr en poids. L'alliage étudié présente, en dessous de 660 °C à l'état d'équilibre thermodynamique, la coexistence des deux phases ; à savoir la phase  $\alpha$  CFC en Al (matrice) et  $\beta$  tétragonale  $Al_3Zr$ . L'analyse par diffraction des rayons X, des échantillons qu'ont subi un protocole de traitement thermique (apport énergétique), montrent l'existence de deux phases dans de l'alliage, avec des proportions et répartitions des grains des précipités  $Al_3Zr$ .

L'analyse de l'alliage, par diffractions des rayons X, révèle bien la présence des deux phases Al (matrice) et  $Al_3Zr$  (précipité). On remarque aussi une relative variation des hauteurs des pics (aire de pic) des plans réflecteurs des phases, et cela selon le mode des traitements thermique appliqué sur chaque échantillon. Par ailleurs, le suivie des variations de la micro dureté de ces échantillons a montré une légère variation de celle-ci, qui sera expliqué par le couplage de la dissipation des contraintes internes (réduction de la micro dureté) et la rétrodiffusion de Zr pour former la phase  $Al_3Zr$  dont le rôle d'augmenter la dureté de l'alliage.

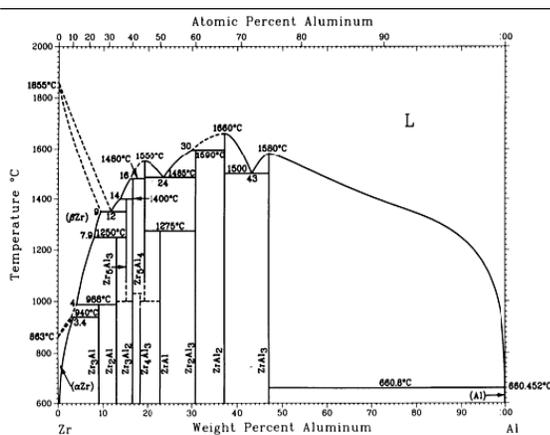
**Mot clé** : Aluminium, zirconium, dislocations, équilibre thermodynamique, Alliage Al-Zr à 9.6% de Zr en poids ; stabilité structurale micro dureté ; diffraction de rayons x

## Introduction

Le monde a connu une évolution rapide sur tous les plans grâce à la science dans tous les domaines; et en particulier l'industrie mécanique, spéciale, aéronautique et autres. Une contribution à l'étude des phénomènes de comportement mécanique (variation de la micro dureté) et structurale (stabilité ou non des phases coexistantes) de l'un des alliages d'aluminium utilisé dans l'industrie mécanique tel que AL-Zr à 9.6% Zr en poids qui occupe une place importante dans l'industrie mécanique.

La liaison entre l'évolution structurale et les propriétés mécanique suite à des apports énergétiques (traitements thermiques) dépend fortement de l'équilibre du système thermodynamique des phases de l'alliage.

Le suivi de l'évolution de la microstructure par microscopie optique et par diffraction des rayons X et la micro dureté de l'alliage selon chaque traitement thermique appliqué à celui-ci a montré le couplage de la microstructure et la dissipation (relaxation) des contraintes internes.



**Fig. (1) :** Diagramme binaire d'équilibre Al-Zr [1] [2]

## Traitements thermique d'homogénéisation

Les traitements dits d'homogénéisation consistent à maintenir l'alliage à une température en dessous de la température de fusion et pendant des temps prolongés en général durant 6 heures jusqu'à 48h, afin d'assurer la répartition homogène des phases existantes dans l'alliage par effet de diffusion et rétrodiffusion des éléments en addition. L'homogénéisation chimique et structurale à l'état solide d'un alliage se fait par transfert de

matière d'une zone à une autre, sous l'effet d'un gradient chimique qui est thermiquement activée.

D'après la deuxième loi de FICK :

$$C(x, t) = \frac{M}{\sqrt{\pi Dt}} e^{-\frac{x^2}{4Dt}} \quad (1)$$

Et une conservation

$$D = D_0 \exp(\Delta H/RT) \quad (2)$$

une bonne homogénéisation doit se faire à une température plus ou moins élevée (sans changement de phase) pendant un temps prolongé qui permet une bonne diffusion, et puis un refroidissement très long qui permet de garder l'équilibre thermodynamique du système des phases coexistantes.

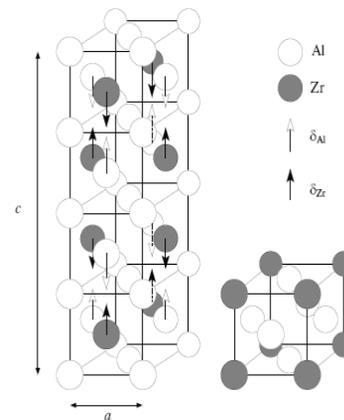
$$\Delta G = \Delta H - T\Delta S \quad (3)$$

Le système  $(Al \rightleftharpoons ZrAl_3Zr)$

varie dans le sens formation ou dissolution de la phase  $Al_3Zr$ , dépend de la variation de l'enthalpie libre du système en fonction de la température; dans le cas de la stabilité de système  $\partial\Delta G/\partial T$  doit être nulle. [1] [2]

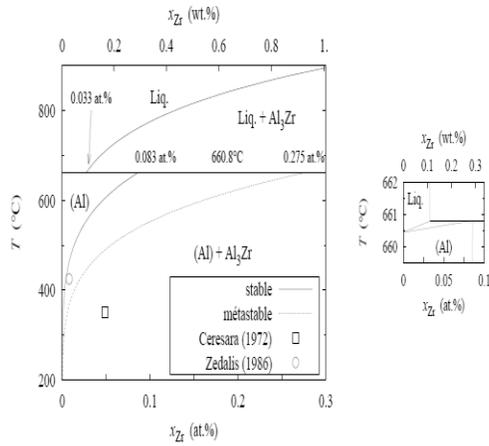
Le composé le plus riche en  $Al_3Zr$  du diagramme de phase Al-Zr possède une structure stable  $DO_{23}$ , structure tétragonale centrée basée sur la maille c.f.c. avec 8 atomes par maille élémentaire. Les positions de certains atomes peuvent être relaxées par rapport aux positions correspondant au réseau c.f.c. [5-6], ce sont ces relaxations qui confèrent sa stabilité dans la structure  $DO_{23}$

par rapport aux autres structures ( $L1_2$  et  $DO_{22}$ ) possibles d' $Al_3Zr$ .



**Fig. (2):** Structure  $DO_{23}$  (à gauche) et  $L1_2$  (à droite)  $Al_3Zr$

Le composé  $\text{Al}_3\text{Zr}$  possède une structure métastable L12. Cette structure, également basée sur la maille c.f.c. est cubique simple, les atomes Zr occupant un des 4 sous réseaux de la maille c.f.c. Le paramètre de la maille de cette structure est  $a = 4.093 \text{ \AA}$ .



**Fig.(3) :** évolution de la limite de solubilité de Zr dans Al en fonction de la température [6]

### Cinétique de précipitation de $\text{Al}_3\text{Zr}$

Une addition de zirconium à un alliage d'aluminium conduit à la formation de deux types de précipités, des précipités sphériques et des précipités en forme de bâtonnet [8] [9] [10] [11] [12]. Ces derniers présentent un contraste composé de deux lignes parallèles suivant la direction longue du précipité. En outre, certains de ces bâtonnets se révèlent, en fait, composés de plusieurs précipités individuels plus ou moins parallélépipédiques.

Il faut noter également que pour ces fortes sursaturations, la précipitation peut devenir discontinue lorsque la température de revenu est basse. Les deux types de précipité, sphères et bâtonnets, ont la composition  $\text{Al}_3\text{Zr}$  et possèdent la structure métastable L12.[12]

### Techniques Expérimentales

L'alliage étudié est Al-Zr à 9,6% de Zr en poids, a été élaboré au laboratoire de physique de solide de l'école des mines de Nancy en France. L'ensemble de technique expérimentale a été réalisé au laboratoire de génie mécanique et au laboratoire de diffraction des rayons X à l'université d'Amman telidji - Laghouat -.

Un mode opératoire a été réalisé pour les différents échantillons utilisés pour les essais de

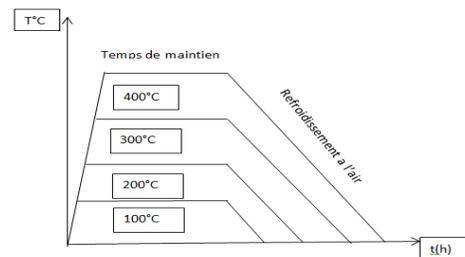
micro dureté, les traitements thermiques, les observations optique et les diffractions par des rayons x.

### Traitements thermiques (recuit)

Un protocole de traitements thermique a été suivi pour les différents échantillons comme indiqué par exemple sur la figure (4).

Des échantillons ont subis des chauffages à  $100^\circ\text{C}$  pendant des temps fixe 1h, 2h, 3h et 4h

Même chose pour d'autres échantillons qu'ont le même protocole à  $200^\circ\text{C}$ ,  $300^\circ\text{C}$  et  $400^\circ\text{C}$  ; suivie d'un refroidissement très lent.



**Fig. (4) :** Courbe de protocole de chauffage et refroidissement à temps de maintien fixe pendant  $t = 1\text{h}$

### Résultats obtenus

Les résultats obtenus après les différents traitements thermiques effectués sur l'alliage Al-Zr contenant 9,6 % (en masse) de Zr sont présentés sous forme de trois différents groupes de résultats.

Un premier groupe de résultats est basé sur la présentation de l'évolution des micrographies de l'alliage selon chaque type de traitement thermique.

La structure qui présente l'évolution et la répartition de la phase  $\text{Al}_3\text{Zr}$  dans la matrice Al de l'alliage suivant différents traitements thermique (Température fixe et temps de maintien variable puis à temps de maintien fixe et des températures variables). La taille de la phase  $\text{Al}_3\text{Zr}$  formée dans la matrice d'Al est aussi prise en considération dans ce groupe de résultats.

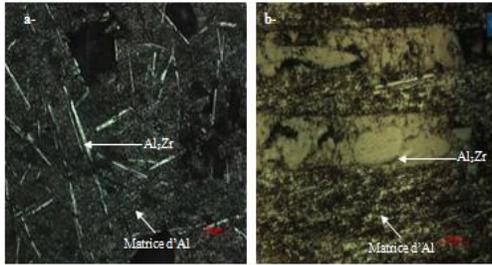


Fig (5) : Echantillon de l'alliage Al-9,6% Zr après un recuit à 100°C pendant 01 heure avec des amas de Al<sub>2</sub>Zr en forme d'aiguilles dispersées aléatoirement dans la matrice d'aluminium.  
 a)- Grossissement x 50  
 b)- Grossissement x 200

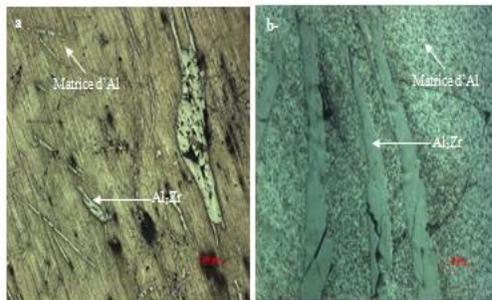
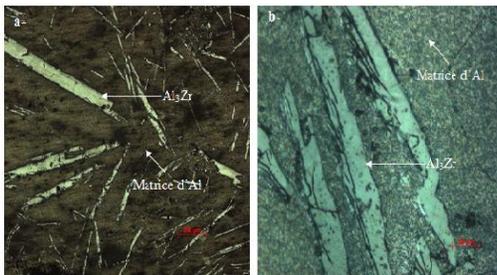


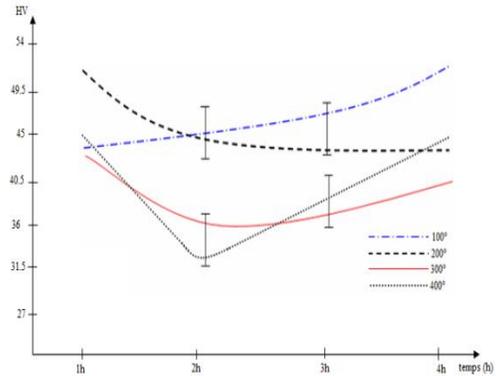
Fig (6) : Echantillon de l'alliage Al-9,6% Zr après un recuit à 200°C pendant 01 heures avec des amas de Al<sub>2</sub>Zr en forme d'aiguilles dispersées aléatoirement dans la matrice d'aluminium.  
 a)- Grossissement x 50  
 b)- Grossissement x 200



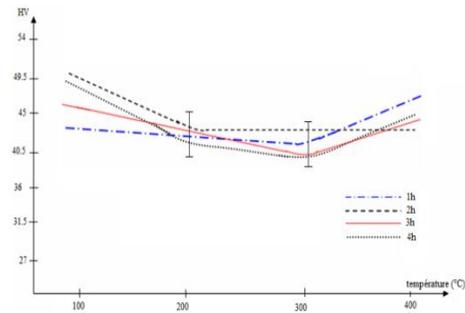
Fig(7): Echantillon de l'alliage Al-9,6% Zr après un recuit à 200°C pendant 04 heures avec des amas de Al<sub>2</sub>Zr en forme d'aiguilles dispersées aléatoirement dans la matrice d'aluminium.  
 a)- Grossissement x 50  
 b)- Grossissement x 200

Le deuxième groupe de résultats présente des courbes de mesure de micro dureté pour tous les échantillons de l'alliage étudié suivant chaque traitement thermique réalisé selon le protocole.

Nous remarquons que la variation de la micro dureté est très faiblement variable.



Fig(9) : variation de la micro dureté en fonction de la température e recuit



Fig(10) : variation de la micro dureté en fonction de la température e recuit

Le troisième groupe de résultats est donnée par un ensemble de diffractogrammes dont en remarque la mise en évidence des phases coexistantes dans l'alliage selon chaque traitement thermique préconisé par le protocole des TT.

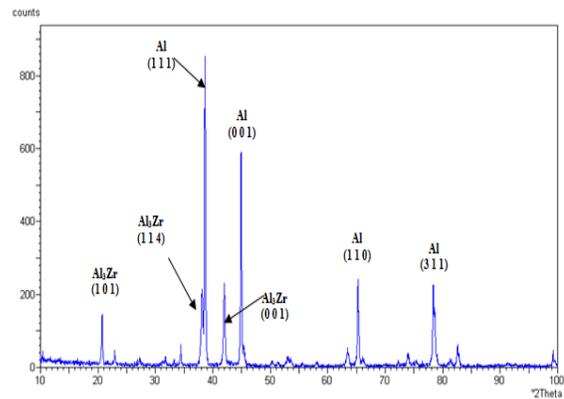
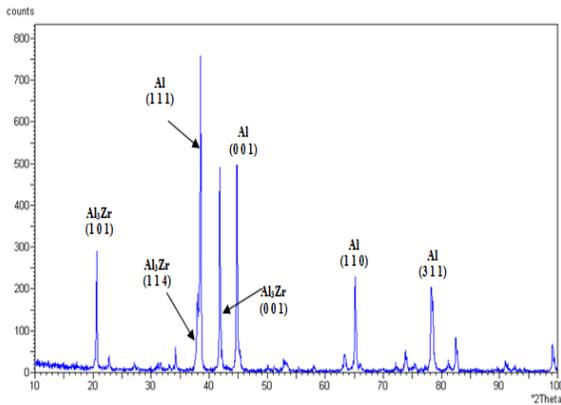


Fig. (11) : Diffractogramme d'échantillon Al-Zr Recuit à 100°C pendant t=1h



Fig(12) : Diffractogramme d'échantillon Al-Zr  
Recuit à 200°C pendant t=1h

### Discussion

L'alliage AL-Zr à 9.6% en poids, à l'état d'équilibre présente une microstructure définie par la présence de deux phases essentielles la phase  $\alpha$  AL (matrice) et la phase  $\beta$  ( $Al_3Zr$ ) sous forme de précipités en forme de bâtonnets qui s'émerge dans la matrice.

L'analyse par rayons X présente les deux phases coexistant qui sont mises en évidences par la réflexion des plans (111) (110) (311) (001) de la matrice  $\alpha$  Al et ceux des plans réflecteurs (101) (114) (001) de la phase  $Al_3Zr$ .

L'analyse micrographiques des différentes échantillons montrent, bien que, les tailles et la répartition des amas de  $Al_3Zr$  dans la matrice Al, dont ils ont subi une variation des tailles et réorientation géométrique des précipite. Cette évolution microstructurale, sous l'effet de gain d'énergie  $\Delta H$ , se présente par une diminution de la quantité et le nombre des précipites  $Al_3Zr$  dans la matrice. Cette diminution de la quantité de la phase  $Al_3Zr$  s'explique par la dissolution de la phase  $Al_3Zr$  par effet de la diffusion de Zr dans Al moins saturée en Zr. Cette diffusion obéie à la loi de Fick.

Suite à l'augmentation du temps de maintien à des différentes températures (gain d'enthalpie de l'alliage, c'est à dire évolution vers l'équilibre thermodynamique du système), on observe le phénomène inverse, par effet de rétrodiffusion du Zr en sursaturation dans la phase Al pour former les précipites  $Al_3Zr$  (phase thermodynamiquement stable). Dans l'ensemble l'analyse des courbes de micro duretés montrent bien une diminution suivie d'une augmentation de la micro dureté de la matrice AL.

Selon les courbe  $HV = f(T)$  à des températures variables 200°C, 300°C et 400°C on observe bien une diminution de la micro dureté de la matrice pour des maintien de 1h à 2h ; cette diminution s'explique par deux phénomènes jumelés, à savoir la diminution du nombre des précipites dans la matrice (donc dissolution de  $Al_3Zr$  dans matrice Al) et par une relaxation des contraintes internes (dissipation de dislocations). Une dislocation se déplace avec une vitesse de mobilité qui dépend fortement de la température et le temps de maintien donc de la variation de l'enthalpie  $\Delta H$  suivant l'expression suivante :

$$V = \alpha \exp(\Delta H/KT) \quad (4)$$

A la température 200°C on remarque une diminution de micro dureté plus au moins forte pour un temps de maintien de 1 h à 2 h donc s'explique par une dissipation faible des contraintes internes (relaxation), accompagné de dissolution de la phase  $Al_3Zr$  (diminution des précipités) dont il est en évidence par une nette diminution des hauteurs des pics des plans réflecteur (101) (114) (001) de la phase  $Al_3Zr$  ; La courbe de la micro dureté mesurée à 100°C pour des maintien de 1h, 2h, 3h et 4h présente une augmentation contrainte plus au mois faible (42 HV à 51 HV), celle-ci s'interprète par une très faible dissipation des contraintes internes accompagné par une rétrodiffusion de Zr de la matrice Al, qui par la suite participe à l'augmentation de la quantité des précipités avec une très faible relaxation des contraintes.

Les figures (5) et (6) montrent bien que suite à la prolongation de temps de recuit de 1h à 100°C les pic (101);(001) la phase  $Al_3Zr$  sont en augmentation de la valeur de l'intensité  $I=180$  mA à 280 mA donc on peut conclure que la quantité des plan réflecteur est en augmentation donc la phase  $Al_3Zr$  est en formation d'avantage. cet état complexe, du point de vue énergétique, s'explique par l'évolution de la somme des différents enthalpie  $\Delta G_i$  qui évolue dans le sens de l'équilibre thermodynamique du système.

$$\Delta G = \sum \Delta G_i = \Delta G_1 + \Delta G_2 + \Delta G_{3(5)}$$

$\Delta G_1$ : enthalpie libre des phases.

$\Delta G_2$ : enthalpie libre des interfaces.

$\Delta G_3$ : enthalpie libre des défauts.

On peut expliquer ce phénomène par l'évolution de chaque  $\Delta G_i$  suivant la variation  $\Delta H_i$  à des températures variables.

## Conclusion

Notre étude a été entreprise dans une thématique de suivi de l'évolution des propriétés structurales et celles de la micro dureté, l'une des propriétés mécaniques, qui a des relations d'évolution très étroites avec la cinétique de la variation de la microstructure de l'alliage Al-Zr à 9.6% de Zr, (variations d'enthalpie et gradient de température).

L'idée consiste à mettre en évidence l'influence des variations des gradients de température qui génère une diffusion du Zr du précipité vers la matrice (dissolution de la phase  $Al_3Zr$ ) suivie de rétrodiffusion de Zr en sursaturation dans la matrice (pour former  $Al_3Zr$ ) sur l'état de stabilité structurale et l'évolution la micro dureté. C'est une caractérisation structurale et mécanique (par micro dureté); suite à un protocole de traitement thermique qui fait intervenir les variations des gradients de température et les temps de maintien (donc variation des enthalpies et des entropies) des phases et des interfaces ainsi que l'état des contraintes internes. Cette étude a montré une bonne stabilité structurale de la phase  $\beta$  ( $Al_3Zr$ ) dans celle de  $\alpha$  (Al). Cette stabilité est confirmée par l'analyse des diagrammes des rayons X pour tous les échantillons dans tout le domaine des variations des températures de maintien et les variations des durées de maintien. Les différentes tailles des grains de la phase  $\beta$  ( $Al_3Zr$ ) dans celle de  $\alpha$  (Al), avec une répartition plus ou moins homogène dans la matrice, affectent directement la valeur de la micro dureté de la matrice Al, ce qui nous informe grossièrement sur la variation du module de Young de l'alliage qui est lié directement aux taux des contraintes internes et les joints des grains.

[1] J. Murray, A. Peruzzi, and J. P. Abriata, J. Phase Equilibria, 13(3), 277-291 (1992)

[2] A. Peruzzi, J. Nucl. Mater., 186(1), 89-99 (1992).

[3] RENOARD (M) et NAVARRO (J) – Le traitement thermique dit d'homogénéisation, ses effets sur les propriétés des alliages d'aluminium. Rev. Métallurgie, p. 839-48, 1 tabl., 25 fig., bibl. 14 réf., oct. 1961.

[4]. RENOARD (M.) Influence des traitements thermiques d'homogénéisation en cours de fabrication sur la facilité d'élaboration et la valeur

d'usage des alliages légers. Rev. Métallurgie, XLVII, no 10, p. 761-8, 1 tabl., 10 fi

[5] Clouet E., Sanchez J M et Sigli C. First-principles study of the solubility of Zr in Al. Phyc. Rev. B65(2002), p. 094105.

[6] Amador C., Hoyt J J., Chakoumakos B.C. et de Fontaine D. Theoretical and experimental study of relaxation in  $Al_3Ti$  and  $Al_3Zr$  ordered phases. Phys. Rev. Lett. 74(1995), p. 4955.

[7] Ceresara S., Conserva M. et Fiorini P. Recovery and recrystallization of an al-0.18wt.%Zr alloy cold worked at -196C. Mater. Sci. Eng. 9(1972) ,p.19.

[8] Sanders N. Calculated stable and metastable phase equilibria in Al-Li-Zr alloys. Z. Metallkd .80(1989), p. 894.

[9] Robson J.D. et Prangnell P.B. Modelling  $Al_3Zr$  dispersoid precipitation in multicomponent aluminium alloys .Mater .Sci.Eng. A352(2003), p. 240.

[10] Nes E. Precipitation of the metastable cubic  $Al_3Zr$ -phase in subperitectic Al-Zr alloys. Acta Metall. 20(1972), p. 499.

[11] Robson J.D., James M.J. et Prangnell P.B. extension of the N-model to predict competing homogeneous and heterogeneous precipitation in Al-Sc alloys .Acta Mater, 51(2003), p.1453;

[12] Emmanuel Clouet .séparation de phase dans les Alliages Al-Zr-Sc du saut des atomes à la croissance de précipité ordonnés, thèse doctorat. sciences des matériaux. école centrale des arts et manufactures (l'école centrale Paris ). fév 2004.