

Etude de composites Al/ ω -Al-Cu-Fe : Mécanisme de formation de la phase ω -Al-Cu-Fe et caractérisation des propriétés mécaniques de la matrice Al

A. Joseph¹, V. Gauthier-Brunet¹, A. Joulain¹, C. Tromas¹, F. Brisset², S. Dubois¹,
J. Bonneville¹, J-P. Monchoux³

¹ Institut PPRIME, CNRS / Université de Poitiers / ENSMA, 86962 Futuroscope-Chasseneuil, FRANCE

² ICMMO, CNRS / Université Paris-Sud-Paris-Saclay, 91400 Orsay, FRANCE

³ CEMES - CNRS, 31055 Toulouse, FRANCE

Contexte : composites à matrice métallique

❑ Composites à matrice métallique

Matrice : assure la cohésion d'un matériau de renfort

Renfort : supporte les efforts mécaniques appliqués

❑ Renforcement par ajout de particules dures

- **Direct** : *transfert de charge entre matrice et particules renfort via interfaces*

- **Indirect** : *modification microstructure matrice par ajout de renfort pendant élaboration*

Solution solide, précipités dans matrice, ...

=> Problématiques générales de la science des matériaux à différentes échelles

❑ Composites à matrice aluminium

Matrice légère et ductile + dispersion de particules de renfort dures

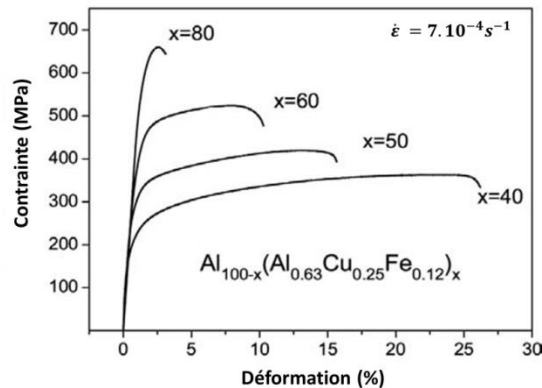
=> Gain de poids considérable et caractéristiques mécaniques intéressantes

=> Matériaux de substitution dans industrie du transport

Contexte : renforts quasi-cristallins

- ❑ Composites Al / alliage quasicristallin (1993)
=> Applications tribologiques ou mécaniques à RT

Essais de compression @ RT [Schurack, 2003]



- ❑ Alliage quasi-cristallin à structure icosaédrique i-Al-Cu-Fe le plus utilisé
 - Facilité d'élaboration et faible coût production
 - Propriétés mécaniques excellentes / Al
 - Dureté élevée : entre 7 et 10 GPa
 - Module d'Young élevé : $E \sim 180$ GPa

Contexte : renfort ω -Al-Cu-Fe

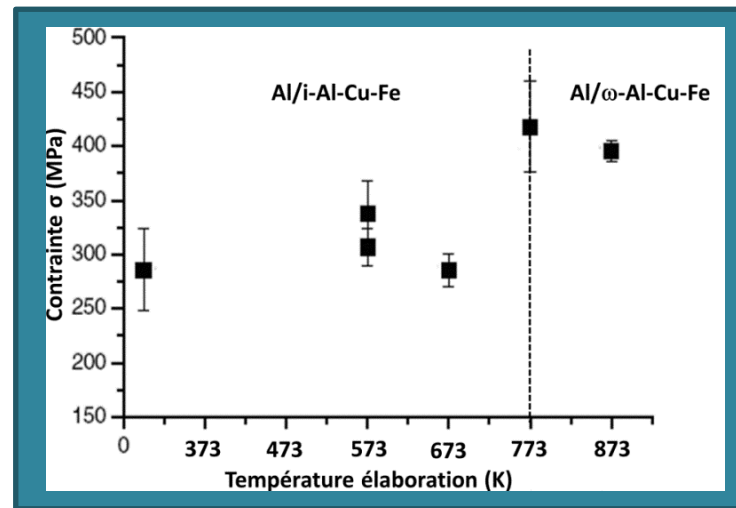
- Compaction à chaud d'un mélange de poudres Al + i-Al-Cu-Fe [Tsai, 1993]

T=673K => Composite Al/i

T=873 K => Composite Al/ ω Al + i-Al_{63,5}Cu_{24,0}Fe_{12,5} => ω -Al₇₀Cu₂₀Fe₁₀ (quadratique)

- Contrainte d'écoulement : $\sigma_{Al/\omega} > \sigma_{Al/i}$

Essais compression à RT [Kaloshkin, 2004]



% masse renfort = 10%

Composites élaborés par mécanosynthèse
+ compaction uniaxiale à chaud

ANR FutureAlCo
Nov 2013 - Nov 2017



Objectifs

- ① **Elaboration d'un composite Al / 40% vol. ω -Al-Cu-Fe à pureté optimisée par métallurgie des poudres**

=> Etude de la transformation de phase α -Al-Cu-Fe en ω -Al-Cu-Fe

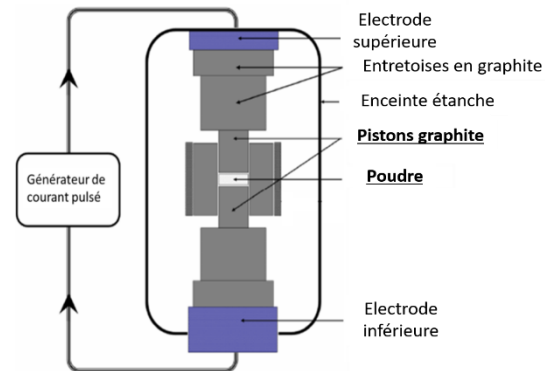
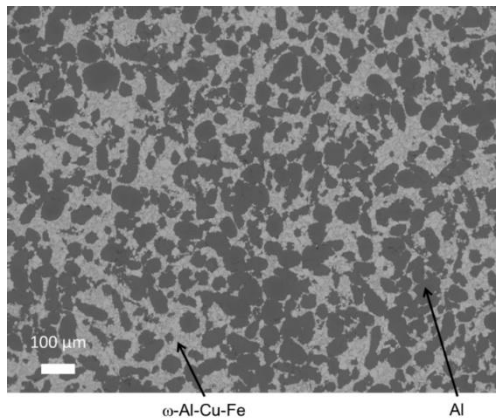
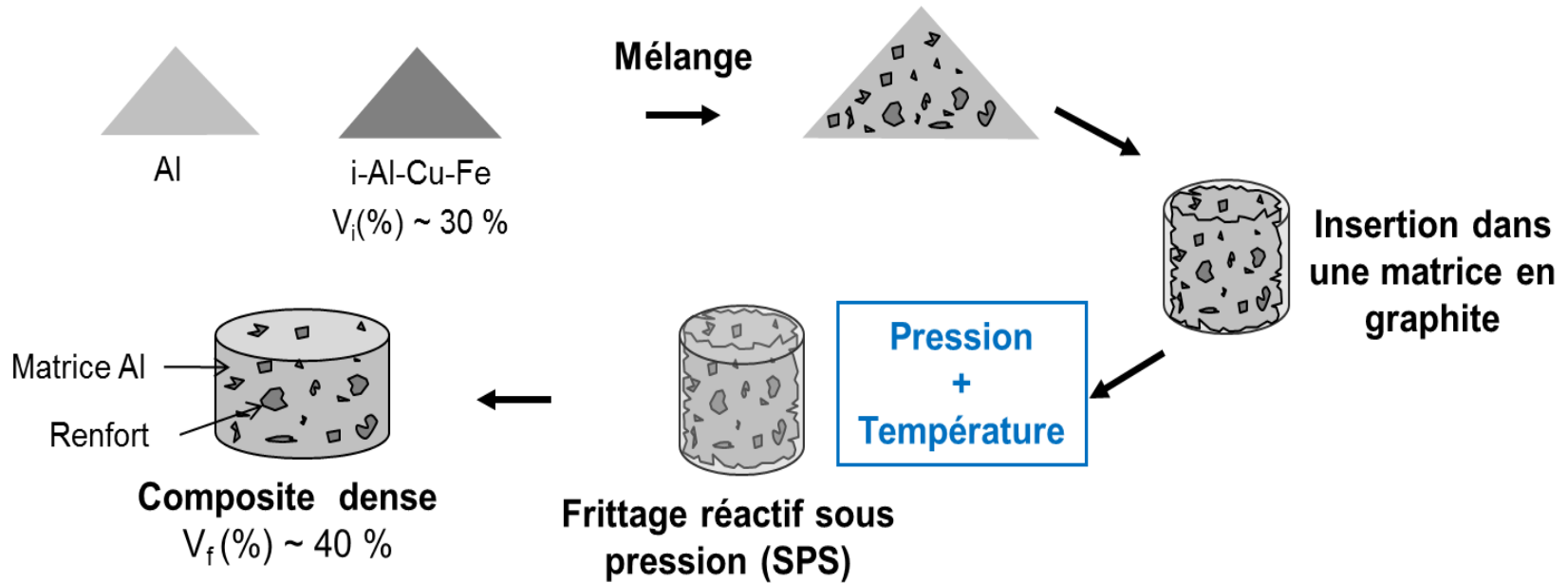
Frittage flash SPS, MEB-FEG avec platine chauffante, EDXS

- ② **Propriétés mécaniques multi-échelles des composites Al/ ω -Al-Cu-Fe**

=> Caractérisation locale des propriétés mécaniques de la matrice Al, lieu de déformation plastique du composite

Nanoindentation, MEB-FEG, EDXS

70 % vol. Al + 30 % vol. i-Al-Cu-Fe \rightarrow Al + 40 % vol. ω -Al-Cu-Fe



Quels échantillons ? Quelle démarche ?

□ Transformation durant élaboration SPS (avec pression)

+ Observations MEB-FEG ^(a) et analyses EDXS ^(b) post-mortem

- Composite Al/i-Al-Cu-Fe partiellement transformé en Al/ ω -Al-Cu-Fe
- Echantillon modèle à interface plane Al/i-Al-Cu-Fe

□ Transformation in-situ (sans pression) au moyen d'un MEB avec platine chauffante

+ Observations MEB-FEG ^(c) in-situ et analyses EDXS ^(b) post-mortem

- Composite Al/i-Al-Cu-Fe

(a) MEB-FEG Jeol 7001F-TTLS (Institut P' -Poitiers)

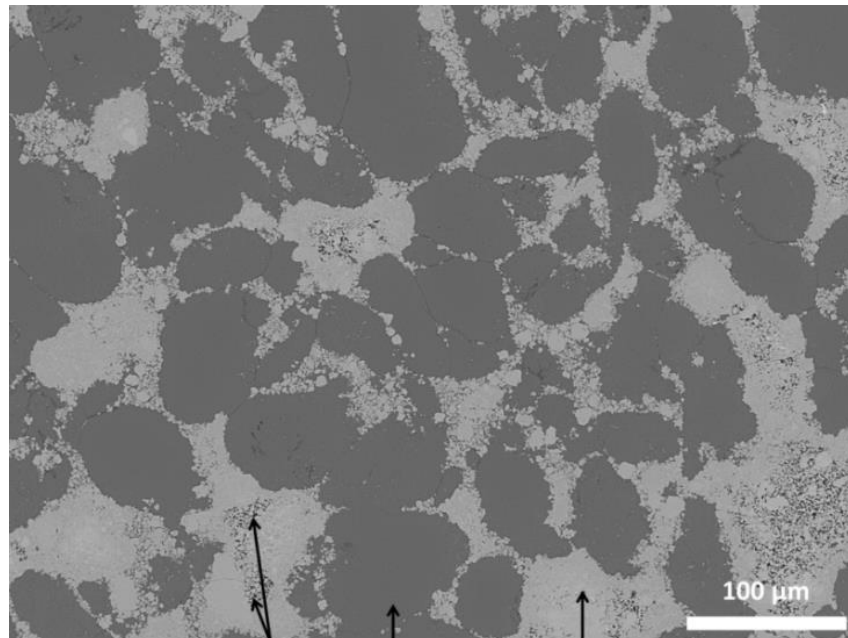
(b) EDXS Oxford XMax50 (Institut P' -Poitiers)

(c) MEB-FEG Zeiss Supra 55VP + platine chauffante Gatan (ICMMO)

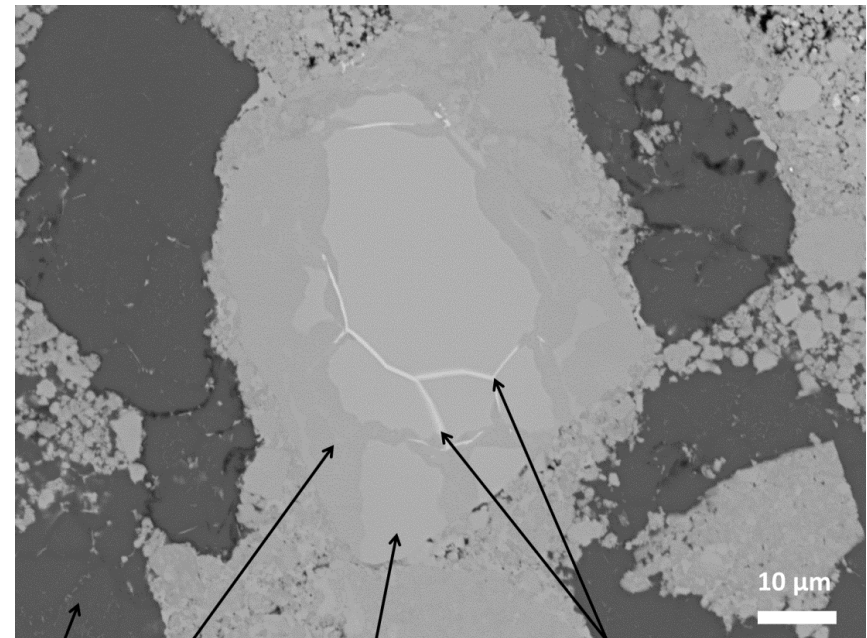
Composite Al/i-Al-Cu-Fe partiellement transformé en Al/ ω -Al-Cu-Fe

Frittage SPS 793K / 100MPa / 2min

70 % vol. Al + 30 % vol. i-Al-Cu-Fe \rightarrow Al + 40 % vol. ω -Al-Cu-Fe



Porosités Al Particules de renfort

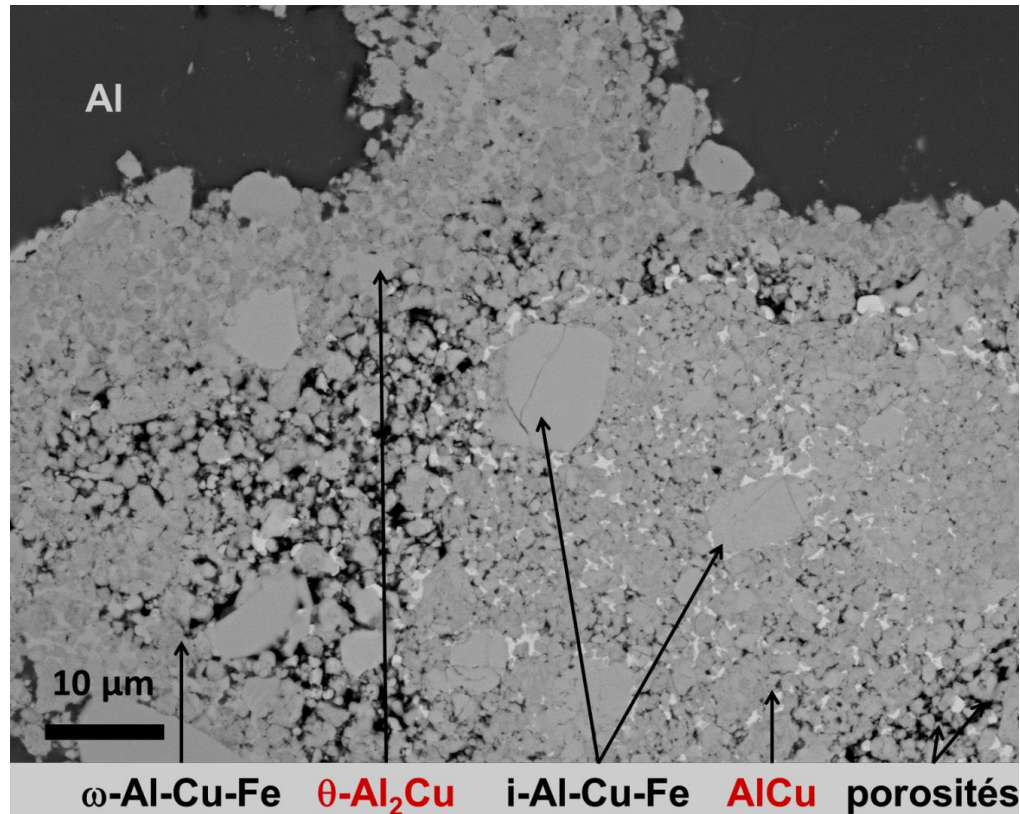


Al ω -Al-Cu-Fe i-Al-Cu-Fe Chemins de diffusion riches en Cu

- Transformation partielle i-Al-Cu-Fe en ω -Al-Cu-Fe
- Joints de grains enrichis en Cu et appauvris en Al
- Diffusion Cu dans Al : au maximum 3%at. Cu dans Al

Composite Al/i-Al-Cu-Fe partiellement transformé en Al/ ω -Al-Cu-Fe

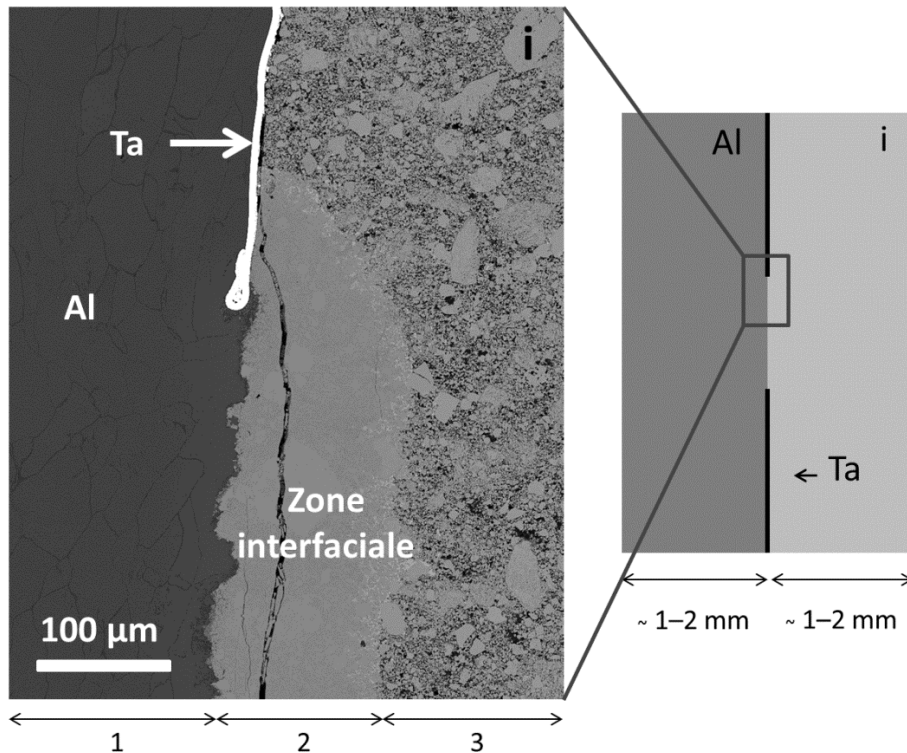
Frittage SPS 793K / 100MPa / 2min



**Formation phases secondaires
→ Microstructure complexe**

Echantillon modèle à interface plane

Frittage SPS 823K / 100MPa / 8min



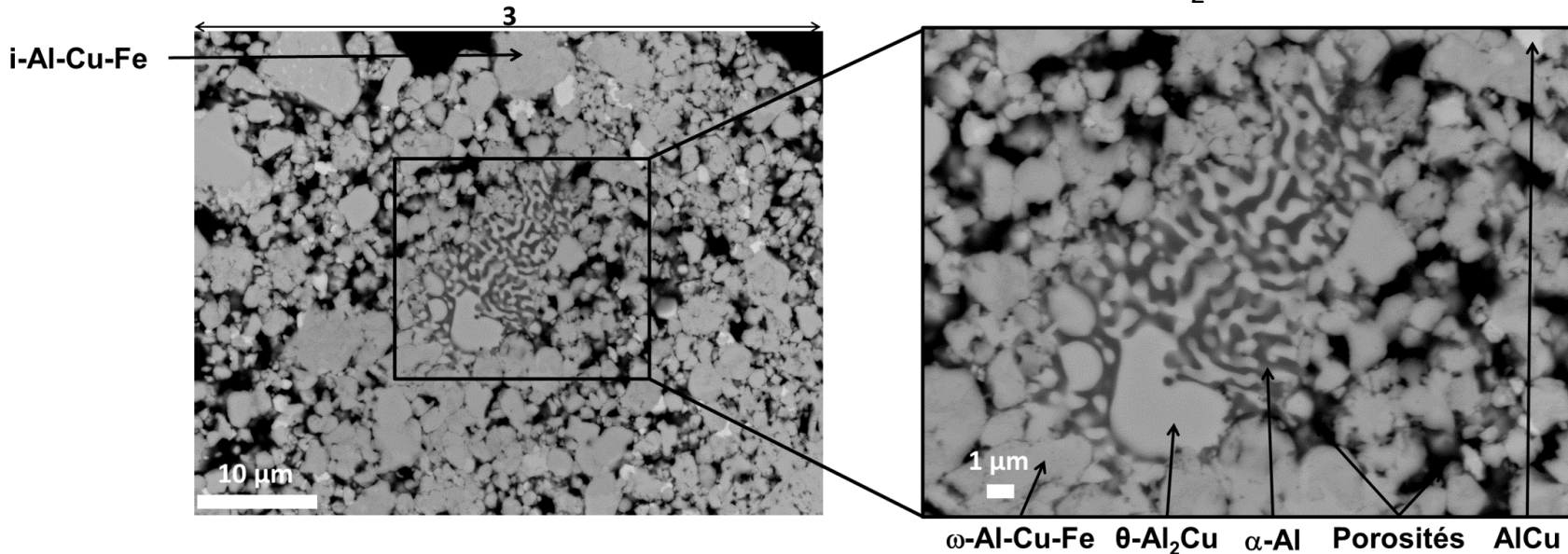
- Région 1 : Al dense
- Région 3 : $i\text{-Al}_{58-61}\text{Cu}_{26-29}\text{Fe}_{12-14}$ poreux
- Région 2 : **Formation zone interfaciale entre Al et $i\text{-Al-Cu-Fe}$**

Al diffuse vers les particules $i\text{-Al-Cu-Fe}$ afin de former la zone interfaciale durant le frittage réactif

Echantillon modèle à interface plane : région 3

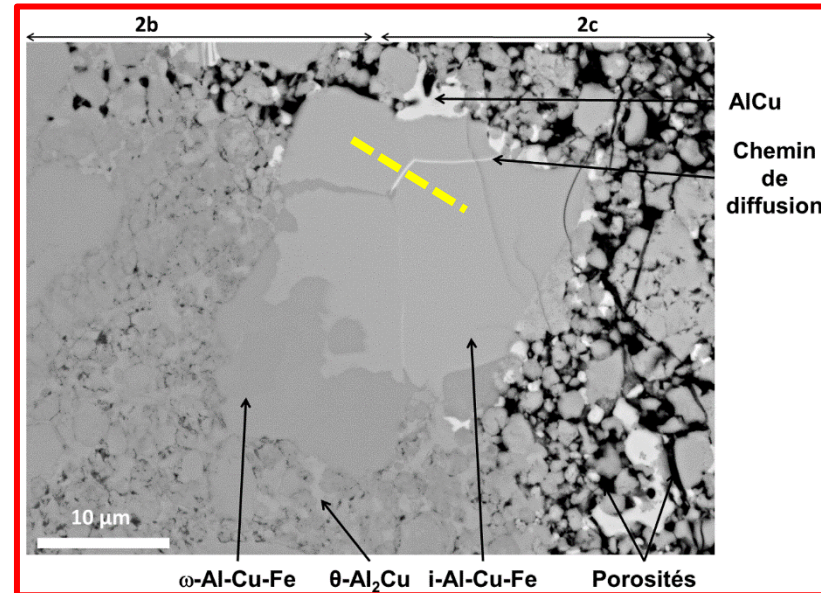
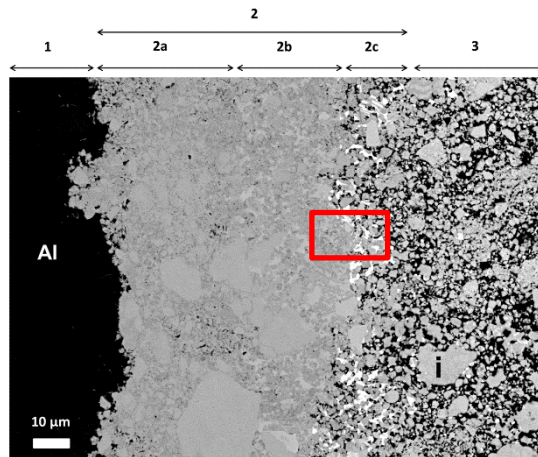
Structure eutectique : α -Al + θ -Al₂Cu

L \Rightarrow α -Al + θ -Al₂Cu à 821 K [Massalski, 1990]



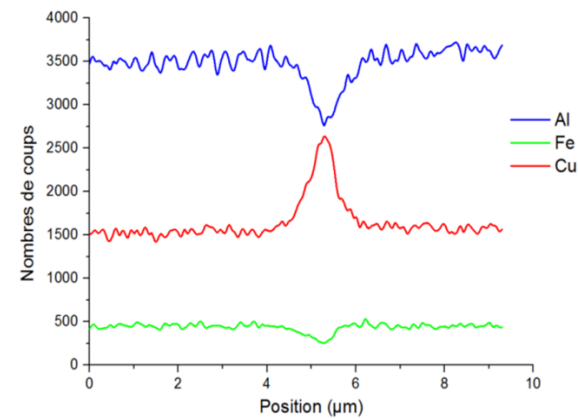
- Région 3 constituée majoritairement d'une couche poreuse de particules i-Al-Cu-Fe non-transformées
- Microstructure lamellaire eutectique (α -Al + θ -Al₂Cu) cohérente avec le diag. de phases Al-Cu
- Formation de ω -Al-Cu-Fe à partir de la phase liquide

Echantillon modèle à interface plane : interface région 3/région 2c

Particule i-Al-Cu-Fe partiellement transformée en ω -Al-Cu-Fe

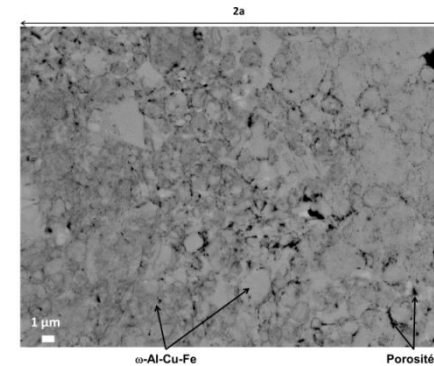
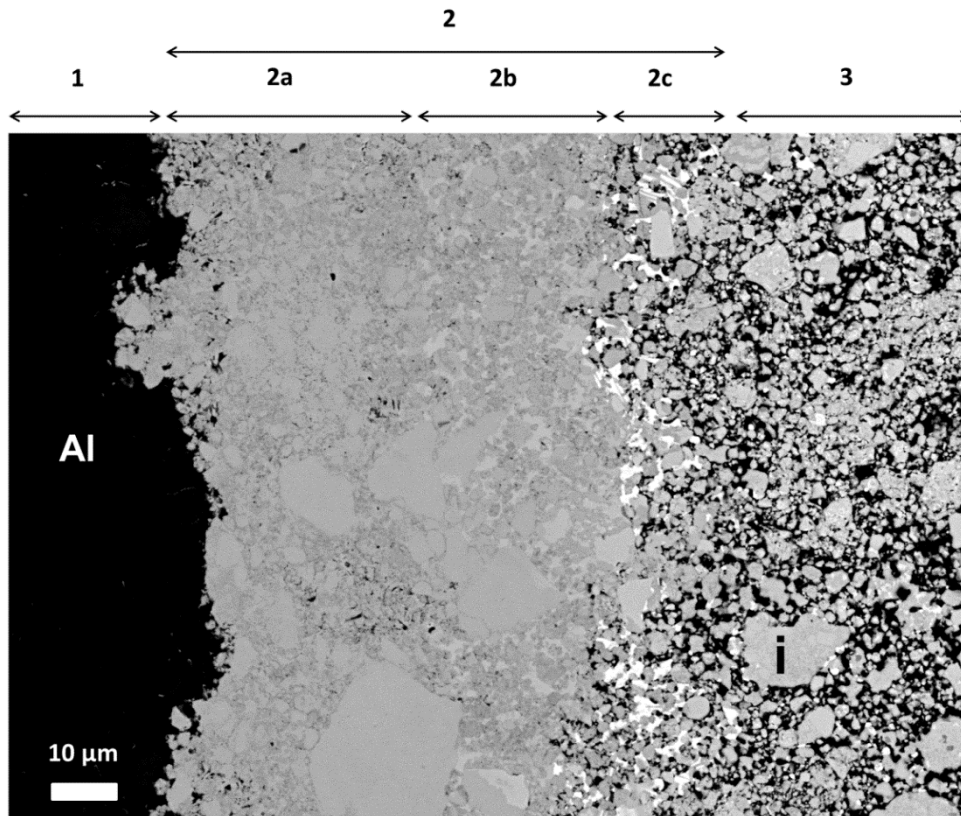
Microstructure similaire à celle du matériau composite partiellement transformé

=> Analyses sur échantillons modèles à interface plane représentatives du comportement du matériau composite

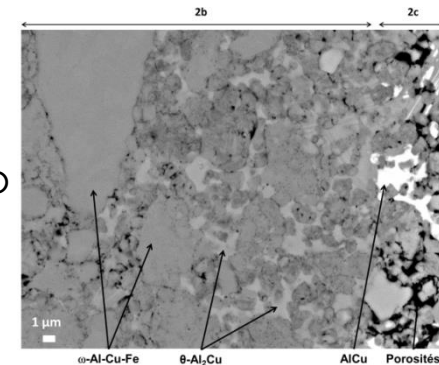


Echantillon modèle à interface plane

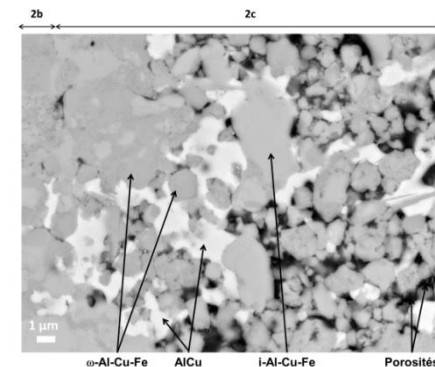
Frittage SPS 823K / 100MPa / 8min



Région 2a



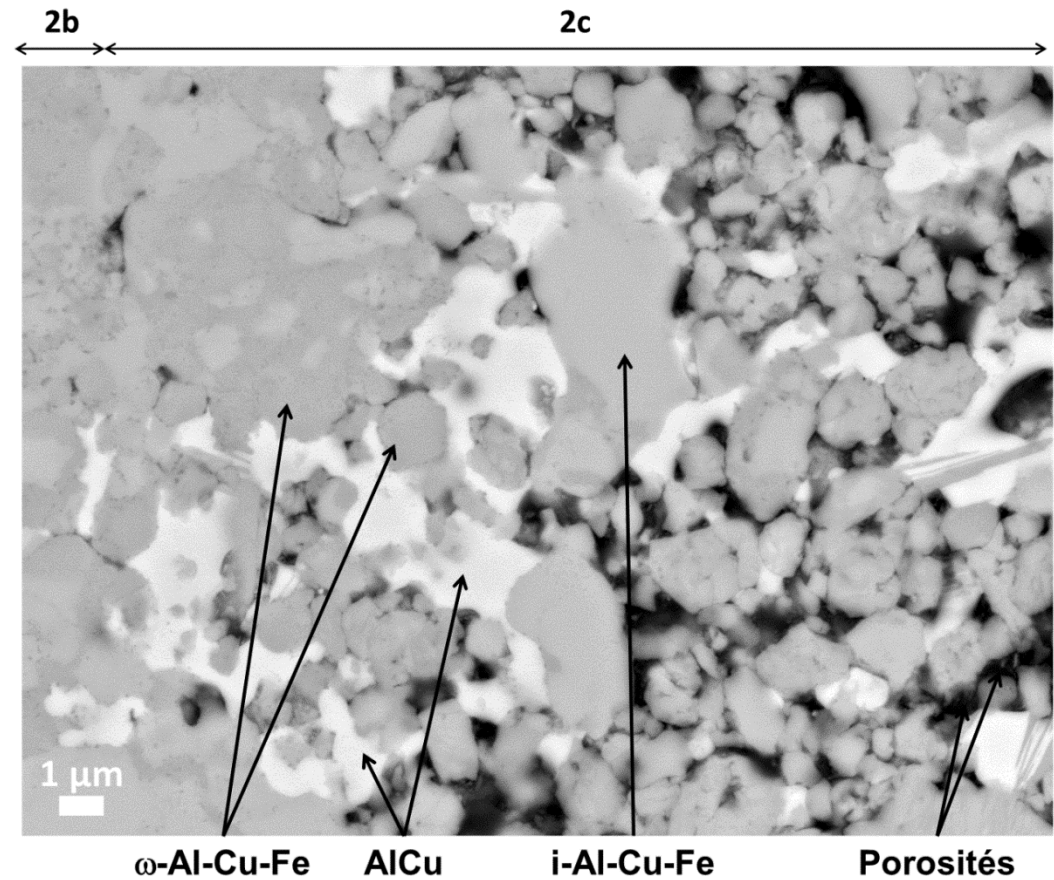
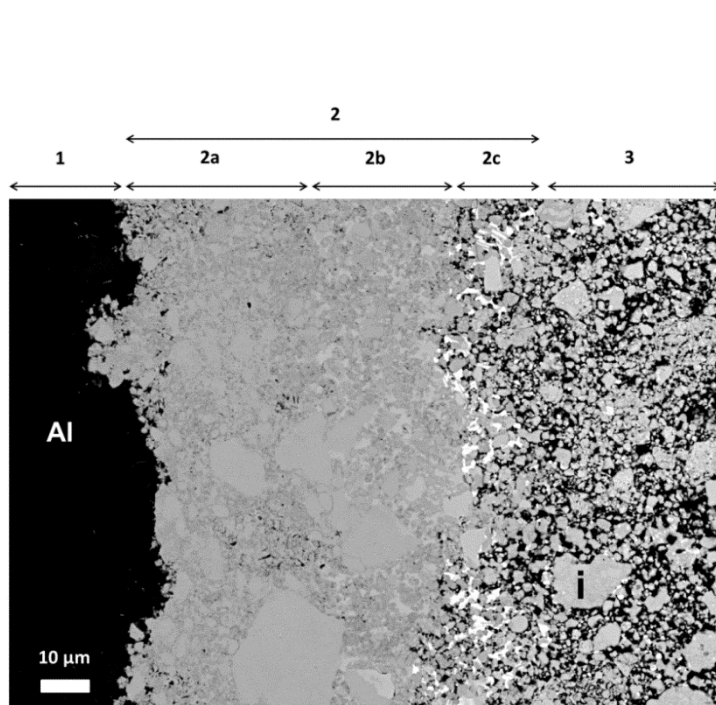
Région 2b



Région 2c

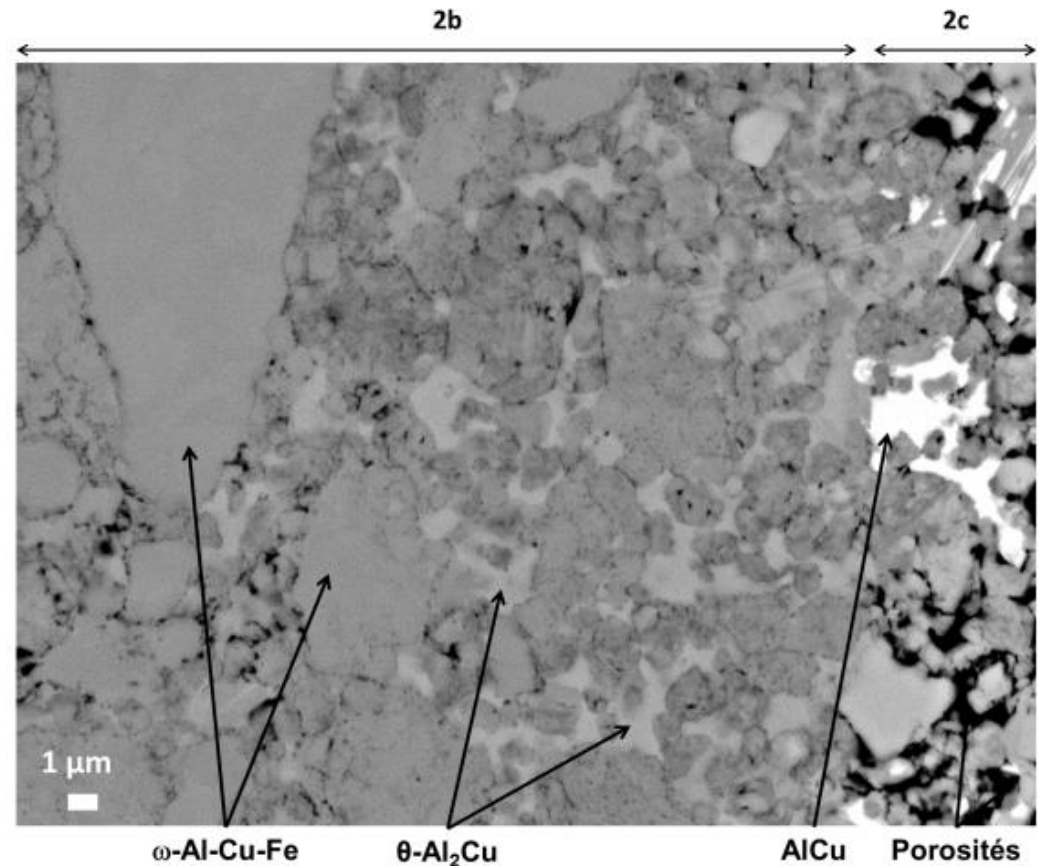
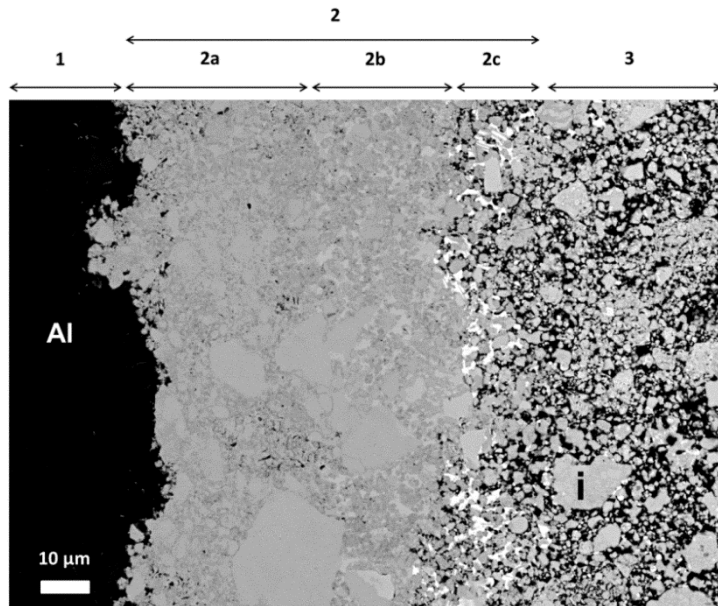
- Largeur l'interface (région 2) constante (~ 80μm) et indépendante du temps de maintien (2, 8, 15 min)
- 3 sous-régions observables au sein de la région 2
- Evolution porosité

Echantillon modèle à interface plane : région 2c



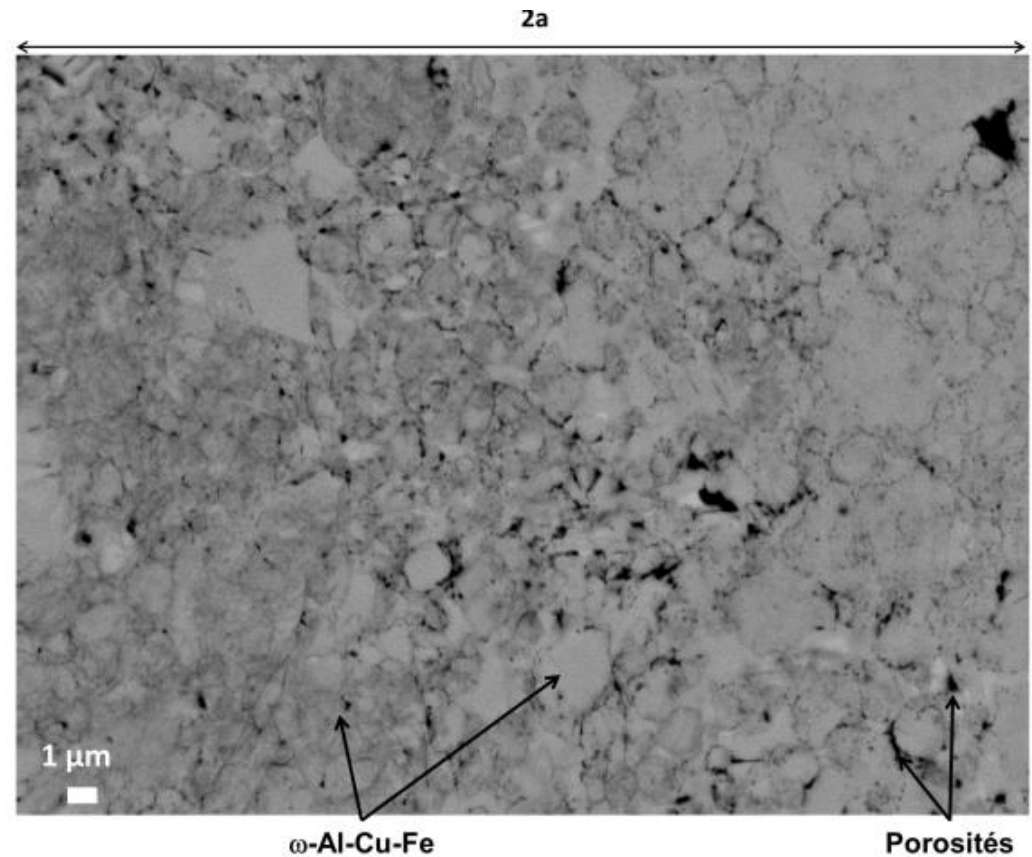
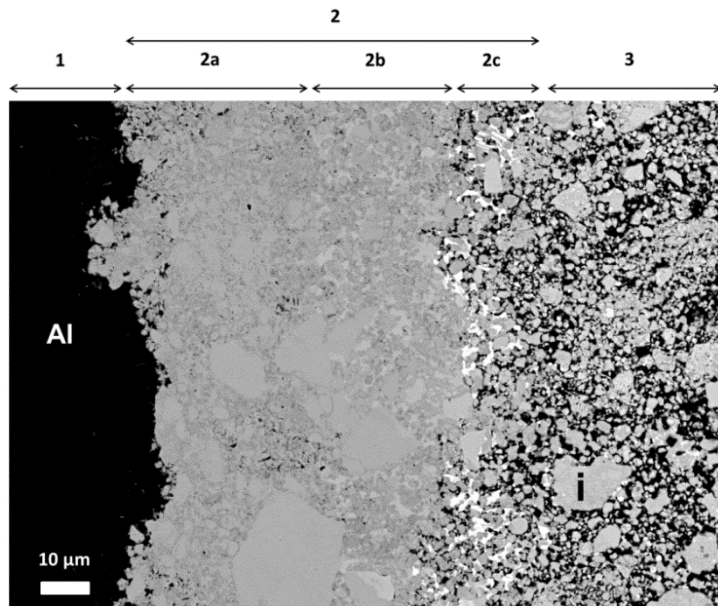
Co-existence de particules i-Al-Cu-Fe et de AlCu au sein de certaines porosités

Echantillon modèle à interface plane : région 2b



- Réduction porosité / régions 2c et 3
- Coexistence de particules ω -Al-Cu-Fe et de θ -Al₂Cu au sein des porosités

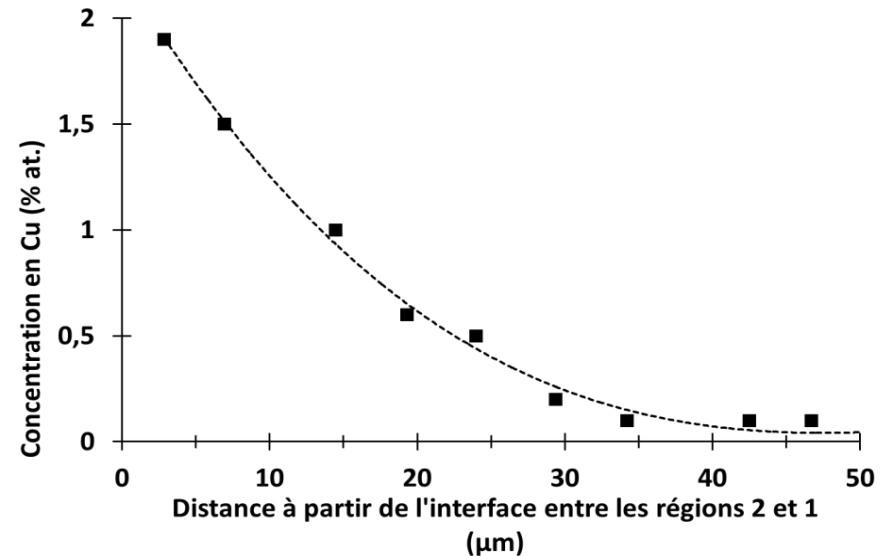
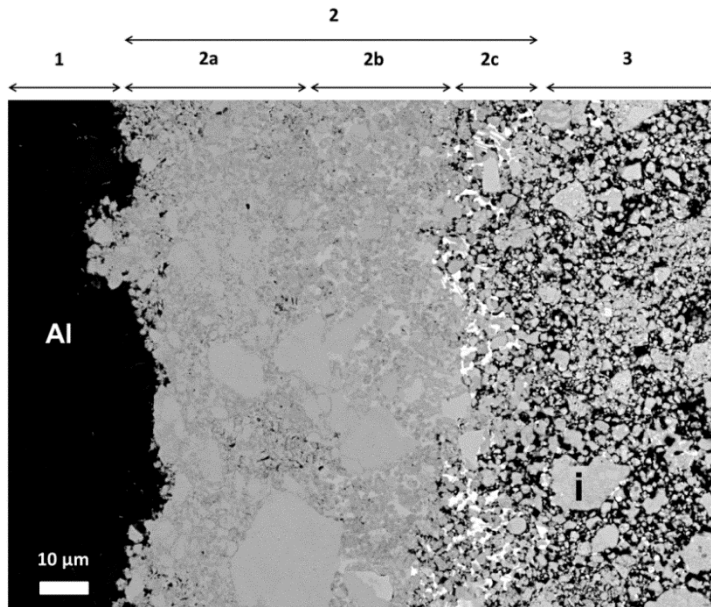
Echantillon modèle à interface plane : région 2a



- Réduction porosité / régions 2c et 3
- Formation ω -Al-Cu-Fe quel que soit le contraste des particules

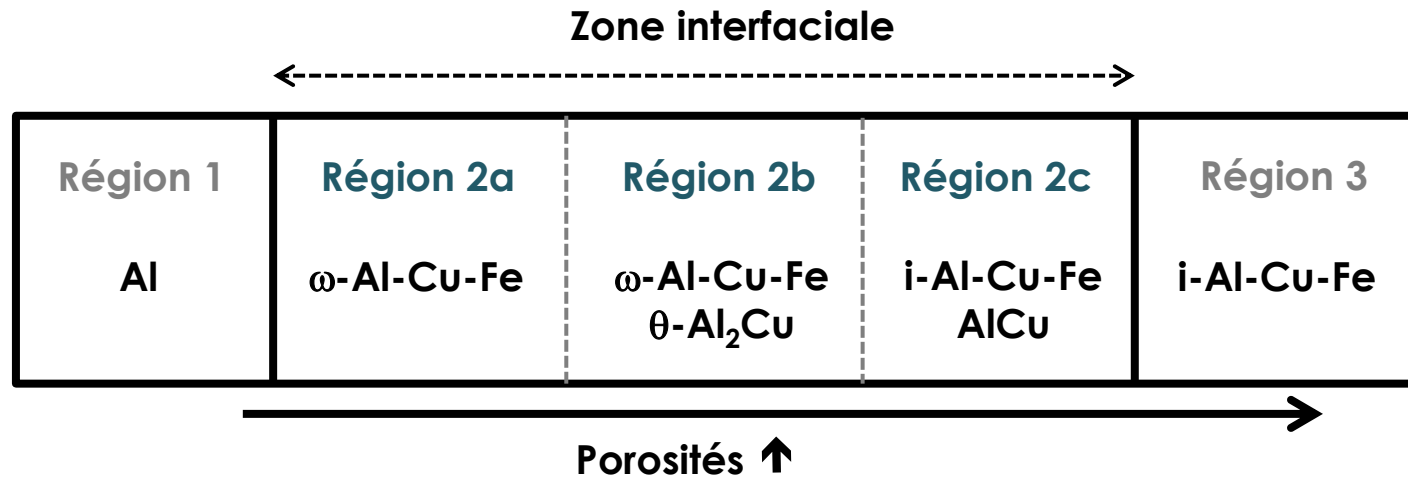
Echantillon modèle à interface plane : région 1

Frittage SPS 823K / 100MPa / 8min



- Couche Al dense
- Cu des particules i-Al-Cu-Fe diffuse dans Al : au max ~ 2 at. % Cu dans Al
- Longueur de diffusion de Cu dans Al similaire après 8 et 15 min de frittage (~ 50 μm)

Echantillon modèle à interface plane : conclusions



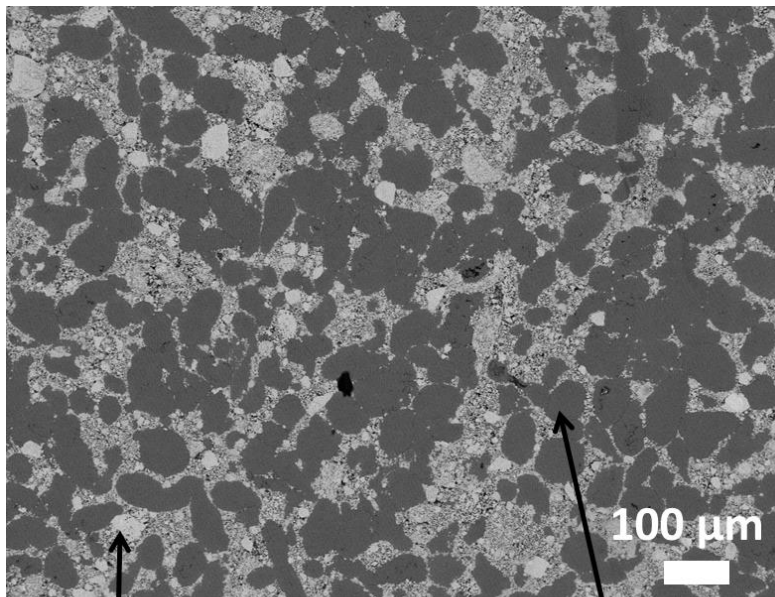
- **Gradient de composition**
 - Côté i-Al-Cu-Fe : phase riche en Cu (AlCu)
 - Côté Al : phase riche en Al (θ -Al₂Cu et ω -Al-Cu-Fe)
- **Formation phases AlCu et θ -Al₂Cu** (*idem pour composites et interfaces planes*)
Séquence spatiale ~ séquence temporelle : AlCu et θ -Al₂Cu = phases intermédiaires
AlCu et θ -Al₂Cu comblent les porosités entre les particules Al-Cu-Fe
- **Diffusion de Cu dans Al** (*idem pour composites et interfaces planes*)
Longueur de diffusion (~ 50 μ m) identique quelque soit le temps de maintien (2, 8, 15 min)
 - ω -Al-Cu-Fe ne constitue pas une source de Cu : **ω -Al-Cu-Fe est stable**
- **Largeur zone interfaciale** : 80 μ m dès 2 min de frittage
 - **Incompatible avec processus diffusion état solide seul**

Traitement thermique in-situ d'un composite Al/i-Al-Cu-Fe

(Coll. F. Brisset, ICMMO, Paris-Sud)

Composite Al/i-Al-Cu-Fe

élaboré par frittage SPS 773K / 100MPa / 2min

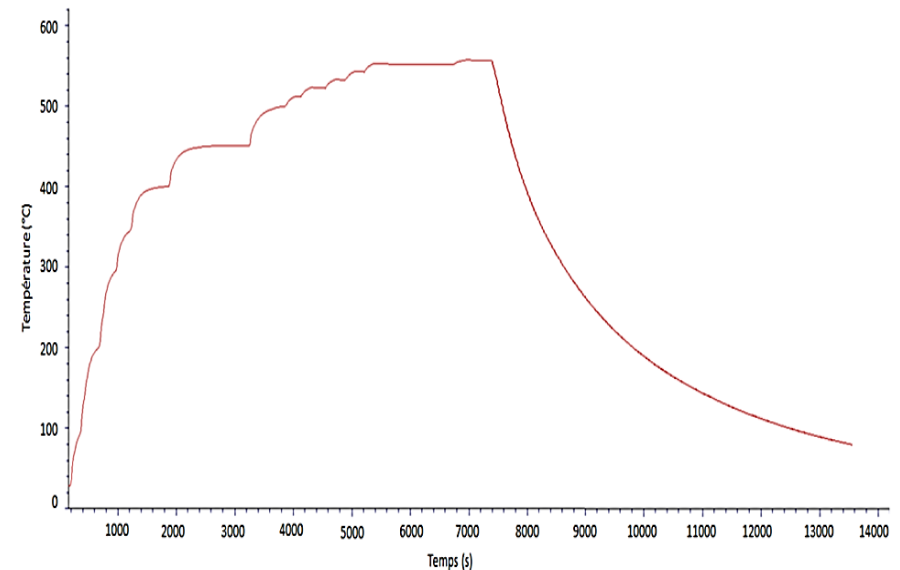


i-Al-Cu-Fe

Al

Cycle thermique

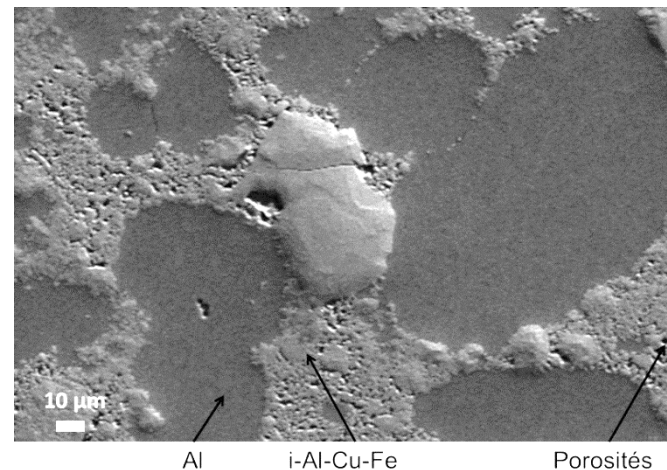
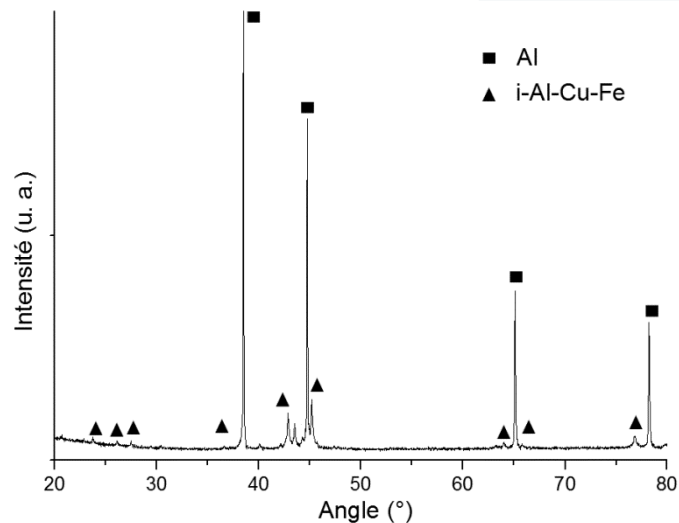
MEB-FEG Zeiss Supra 55VP



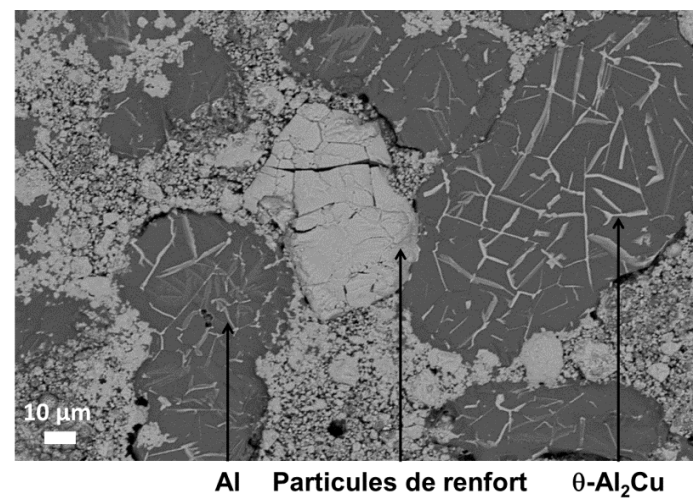
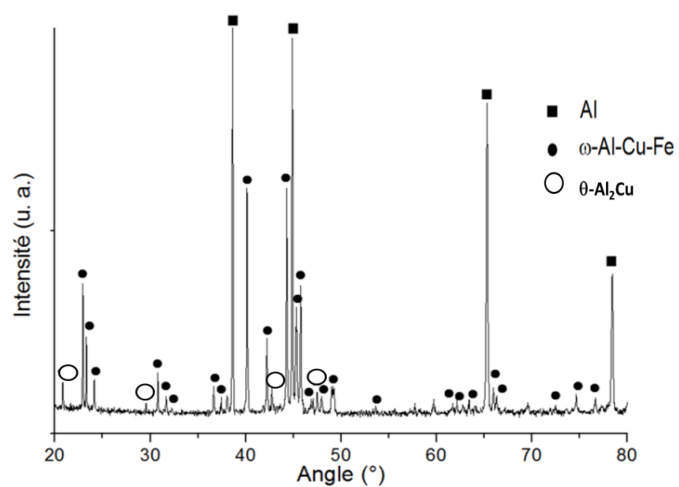
- Chauffage $T_{\max} = 823$ K
- Sans pression

Traitement thermique in-situ d'un composite Al/i-Al-Cu-Fe

Avant traitement thermique

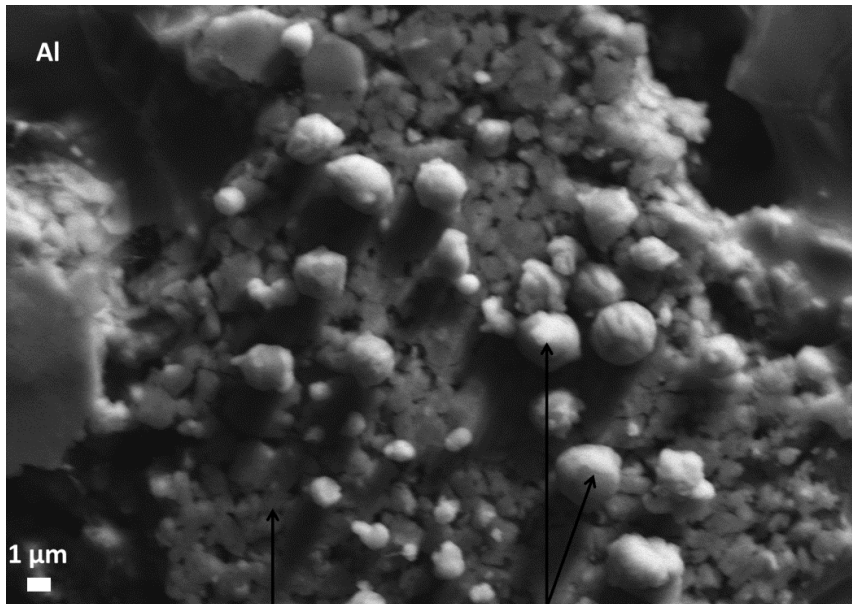


Après traitement thermique



Traitement thermique in-situ d'un composite Al/i-Al-Cu-Fe

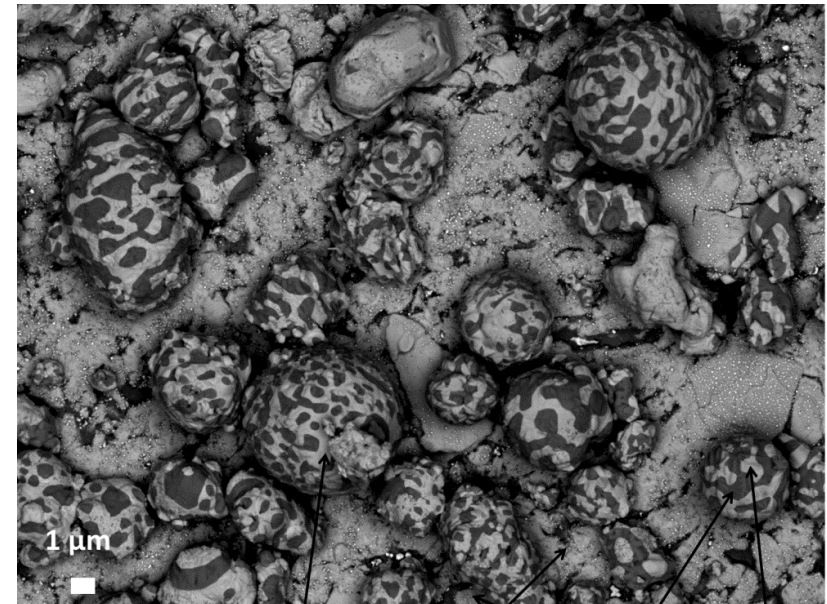
Pendant le traitement thermique



Particules de renfort

Gouttelettes

Après le traitement thermique



Gouttelette eutectique Particules de α -Al θ -Al₂Cu

Entre 673 et 773K :

- Sur particules de renfort : Formation gouttelettes (eutectique α -Al + θ -Al₂Cu après solidification)
- Formation ω -Al₆₇₋₇₁Cu₁₇₋₂₀Fe₁₂₋₁₄ (à partir de i-Al_{63,5}Cu₂₄Fe_{12,5}) autour des gouttelettes

Résumé

1^{er} scénario : Transformation directe i-Al-Cu-Fe en ω -Al-Cu-Fe

- Par enrichissement en Al de i-Al-Cu-Fe

2^{ème} scénario : Formation de ω -Al-Cu-Fe au sein des porosités dans la couche de particules i-Al-Cu-Fe => densification

À partir de :

- Phases intermédiaires : θ -Al₂Cu et AlCu (avec un peu de Fe)
- Eutectique α -Al + θ -Al₂Cu (plus rare)

=> Transformation i- en ω -Al-Cu-Fe ne se fait pas uniquement à l'état solide

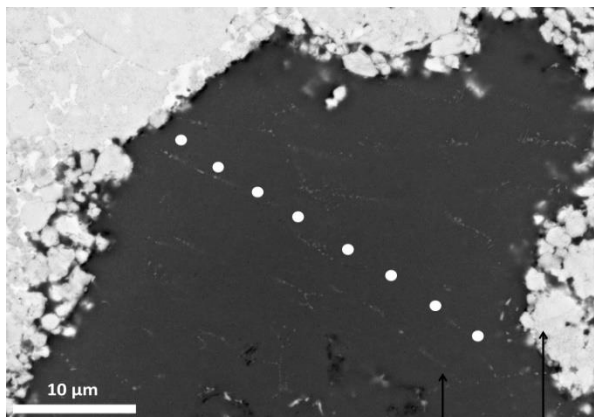
Cohérent avec :

- ✓ Largeur zone interfaciale 80 μ m dès 2 minutes
- ✓ Morphologie des phases au sein des régions 2b et 2c

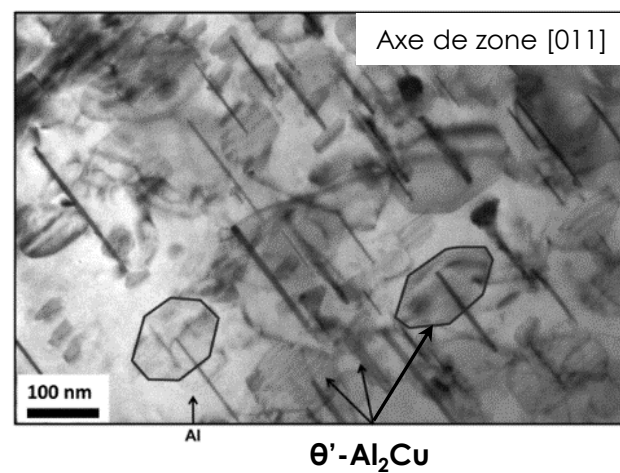
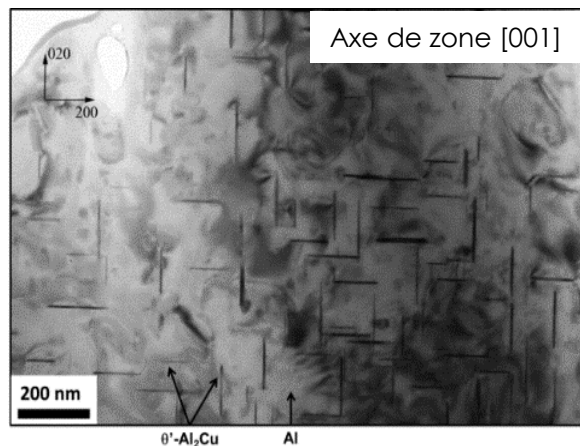
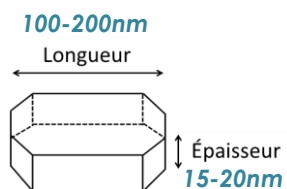
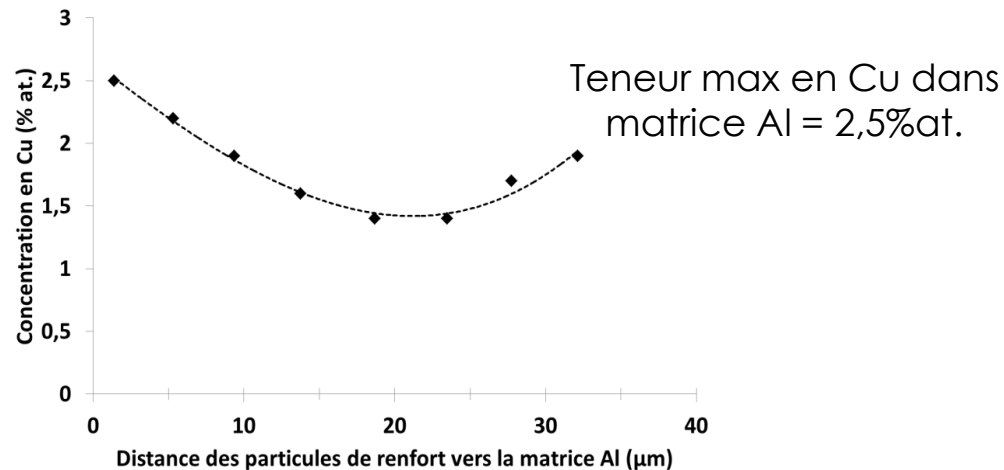
Particules de renfort i-Al-Cu-Fe = source de Cu et de Fe

=> Diffusion de Cu dans matrice Al

Diffusion Cu dans matrice Al



(b)

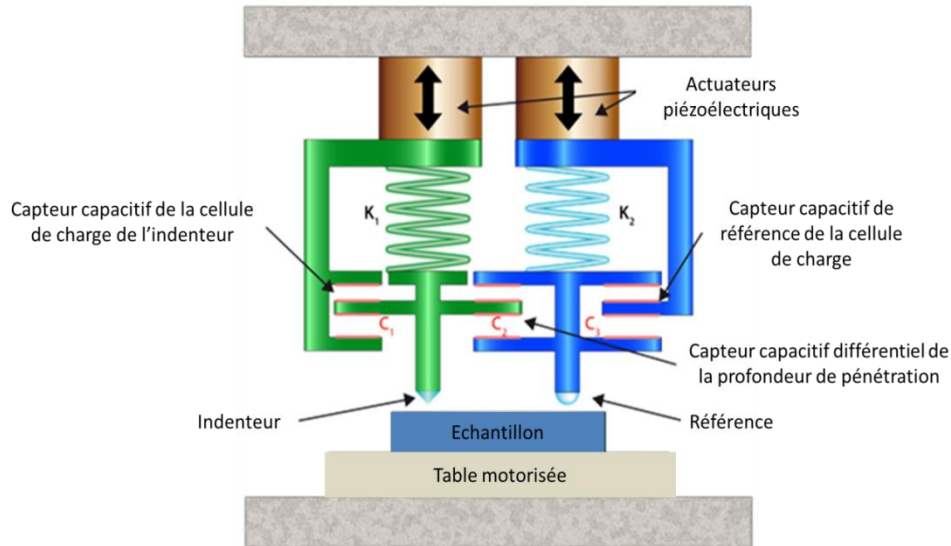
Matrice Al
Particules Al-Cu-Fe

Matrice Al = lieu de déformation plastique du composite

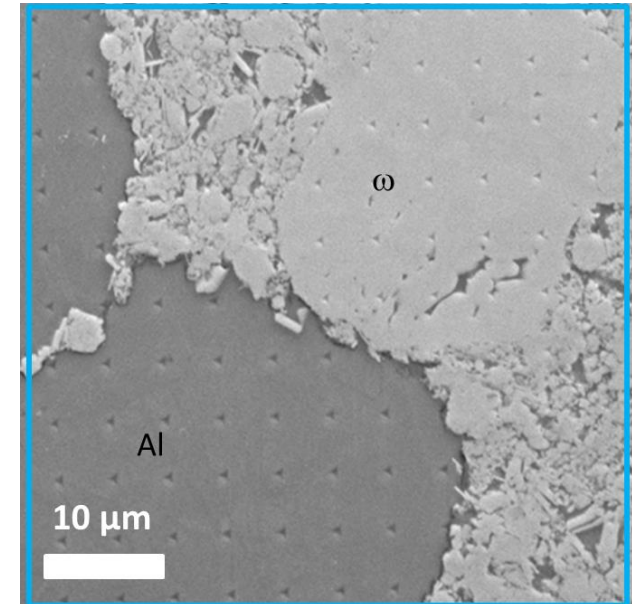
Cu en solution solide + précipités θ' -Al₂Cu => Impact sur propriétés mécaniques du composite ?

Propriétés mécaniques de la matrice Al

Nanoindenteur U-HNT Anton-Paar Indenteur Berkovich



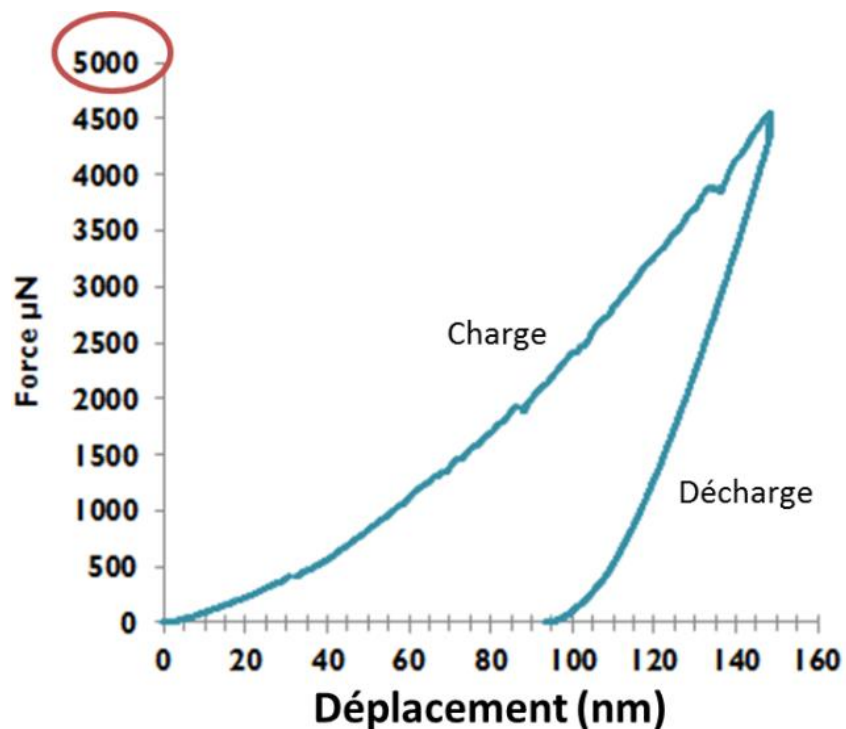
Coll. C. Tromas (Pprime, Poitiers)



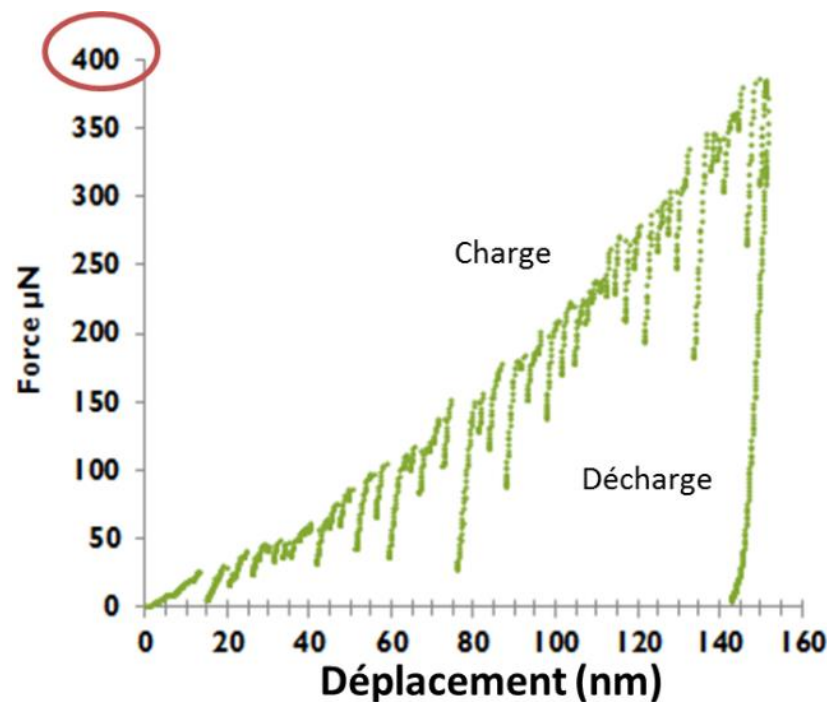
- **12 * 12 = 144 indentations**
- **Pas : 5 μ m**
- **Déplacement imposé : 150 nm**
- **Fréquence d'acquisition : 20 Hz**
- **Vitesse de déplacement : 150 nm/min**

Courbes force-déplacement

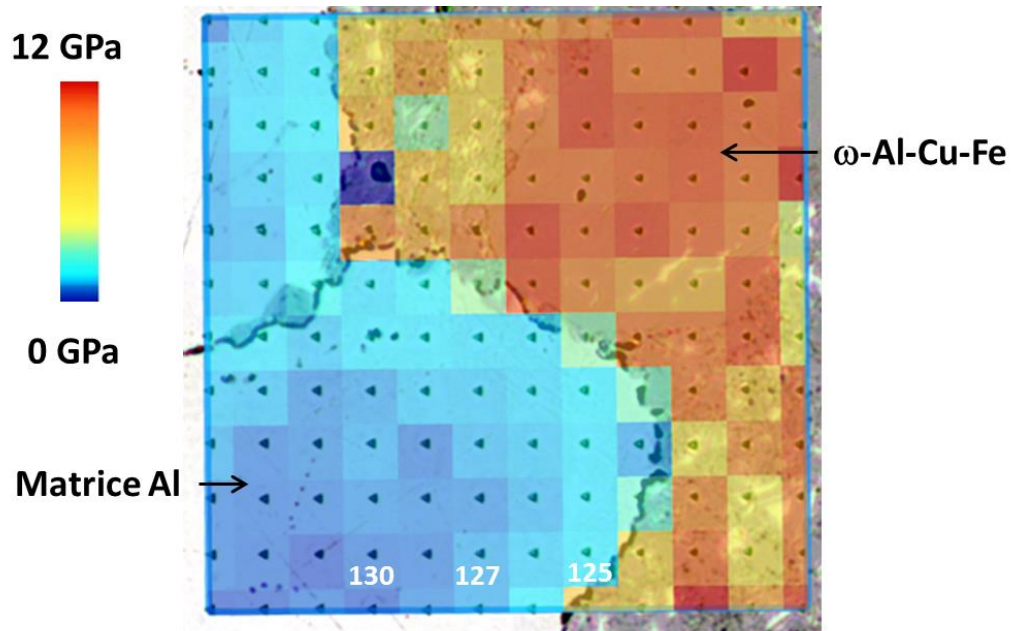
Particules ω -Al-Cu-Fe



Matrice Al

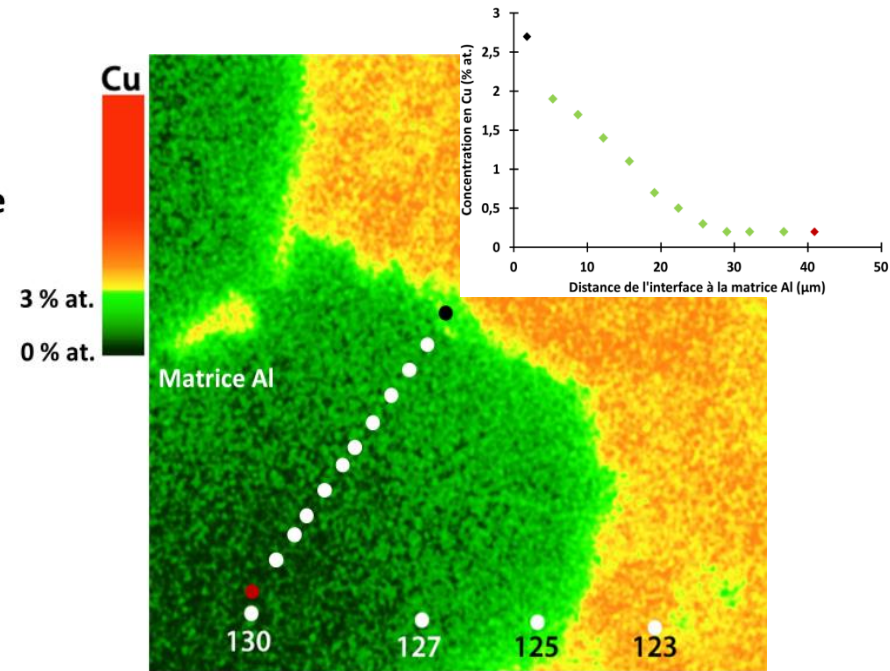


Cartographie de dureté et cartographie chimique du Cu



Dureté matrice Al
0,5-2 GPa

Dureté ω -Al-Cu-Fe
10-12 GPa



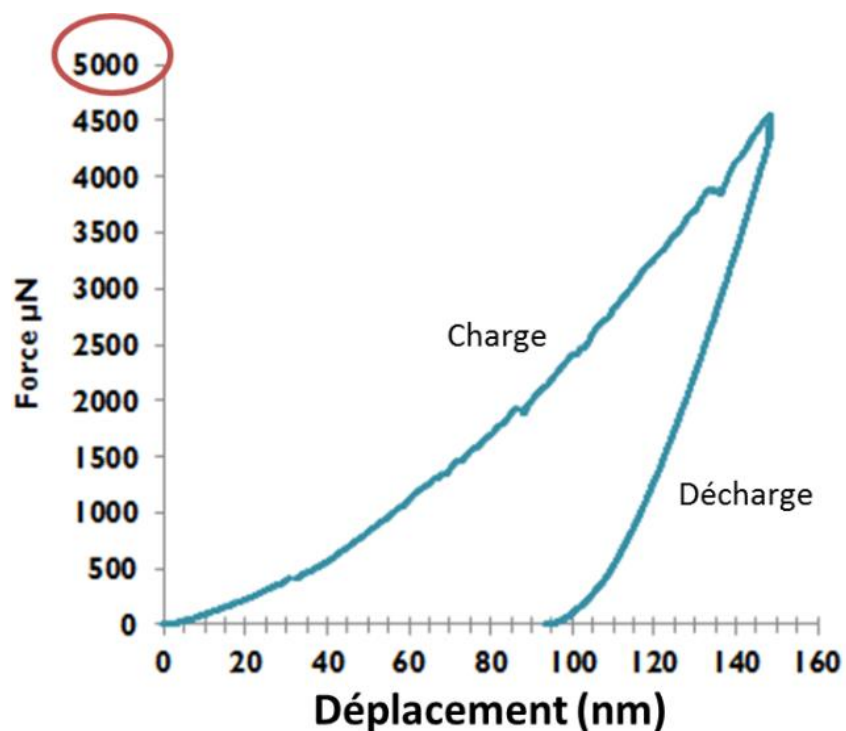
Corrélation gradient dureté et gradient concentration en Cu

La dureté de la matrice augmente en se rapprochant de l'interface matrice/renfort enrichie en cuivre

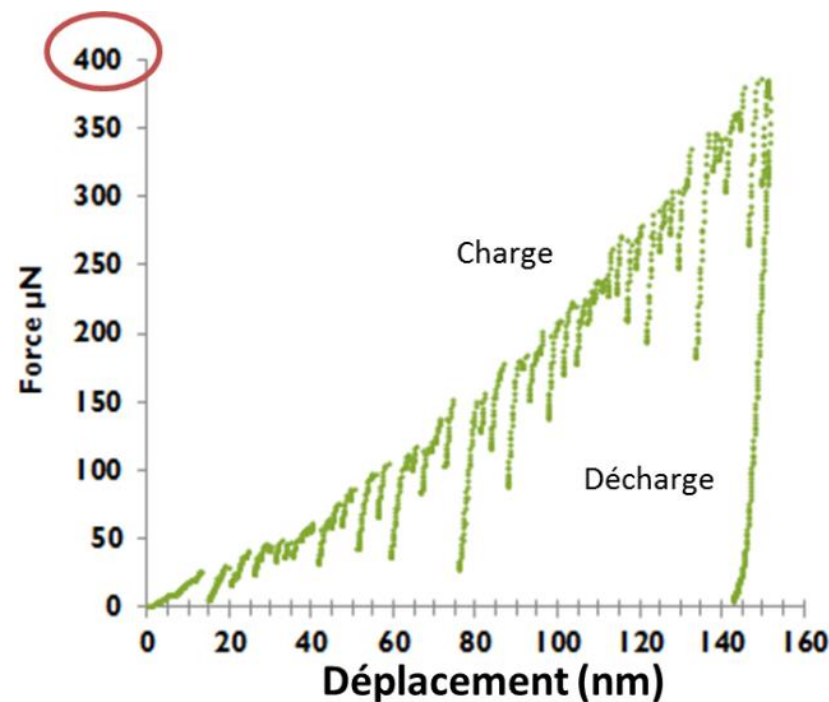
Soluté de Cu = obstacles au mouvement des dislocations => durcissement de la matrice

Courbes force-déplacement

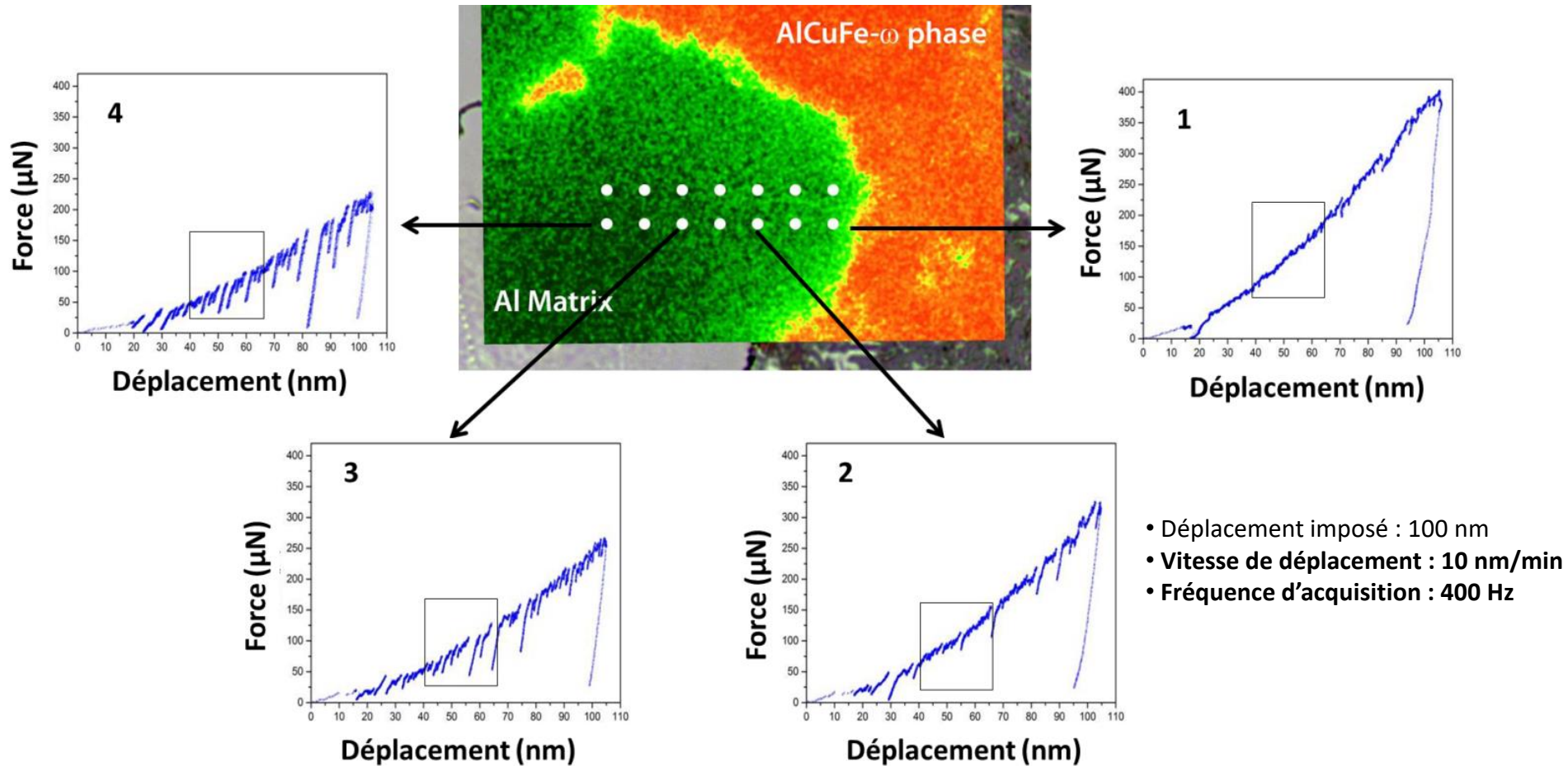
Particules ω -Al-Cu-Fe



Matrice Al



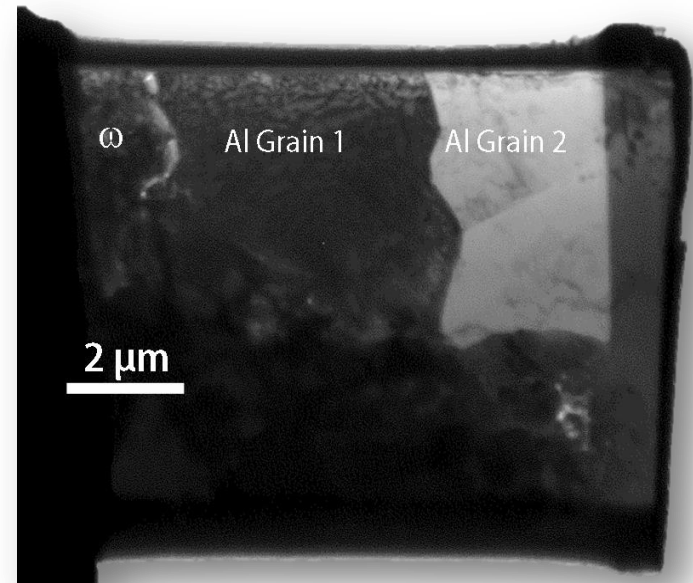
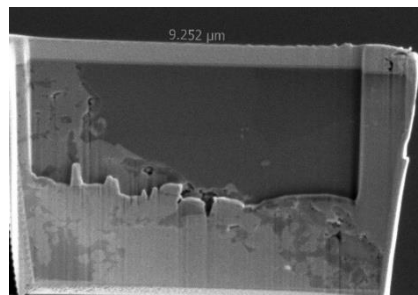
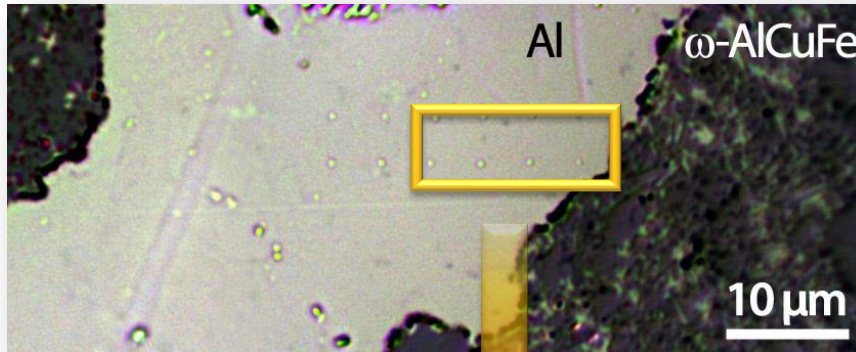
Analyses des chutes de force

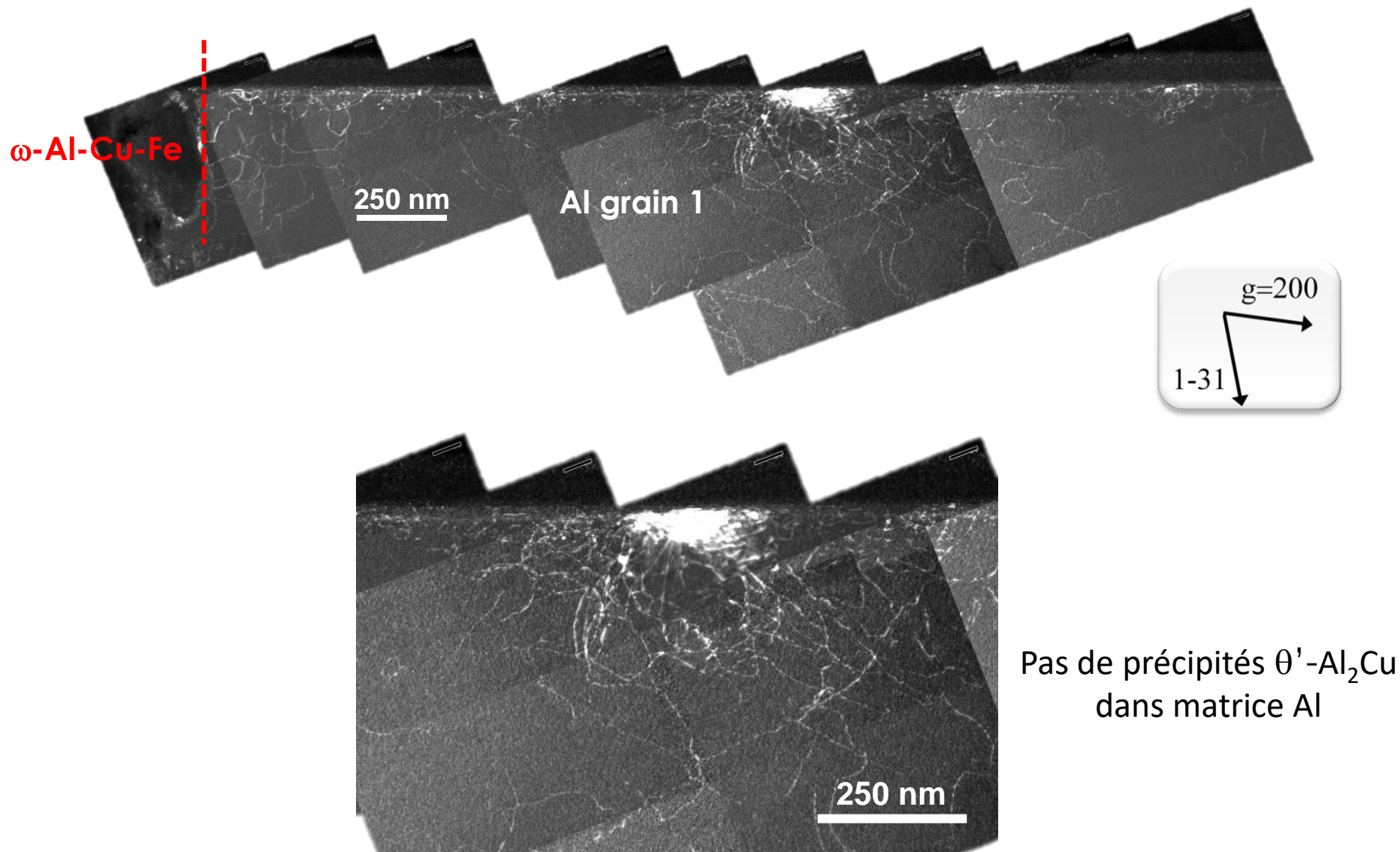


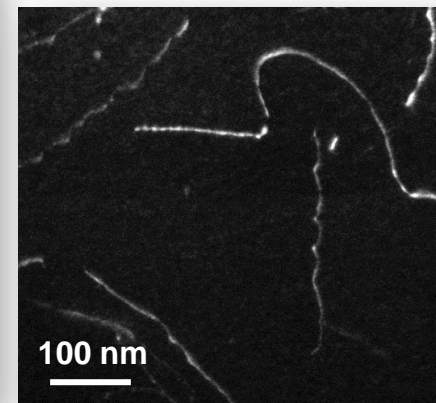
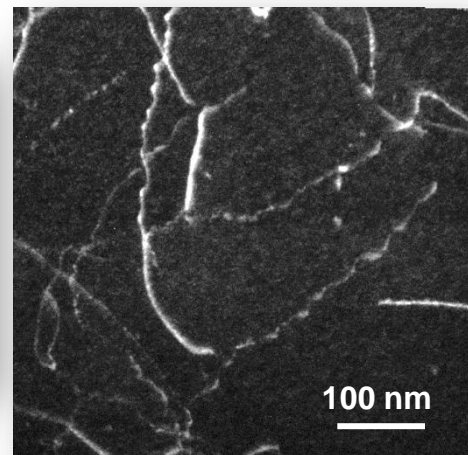
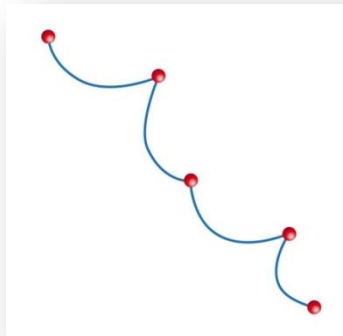
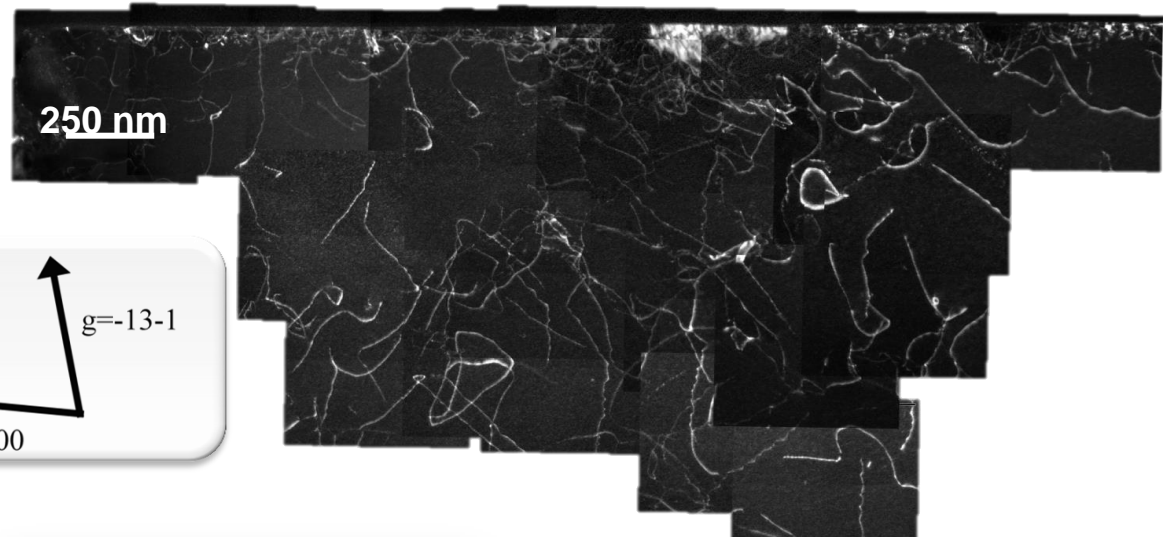
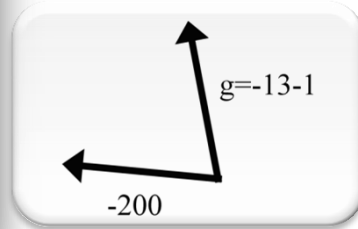
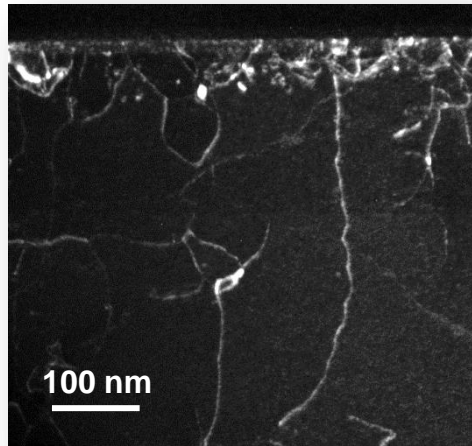
Amplitude et fréquence chutes de force = $f(\text{concentration en Cu})$
 Amplitude et fréquence augmentent avec la concentration en Cu

=> Déformation due à interactions entre dislocations mobiles et atomes de soluté

Extraction lames minces pour MET







Epinglage des dislocations par les atomes de soluté (Cu) présents dans matrice Al
=> Caractéristique des instabilités de déformation plastique (chutes de force)
observées sur les courbes force-déplacement

Résumé

- Nanoindentation + MEB/EDXS

Corrélation gradient de dureté au sein de la matrice Al et concentration Cu

- Courbes force-déplacement

Chutes de force durant phase de charge dans matrice Al dont l'amplitude et la fréquence sont fonction de la concentration en Cu

- Observation MET à l'aplomb des indentations

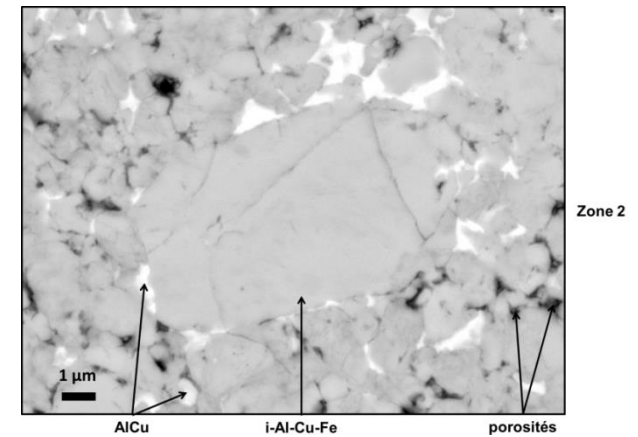
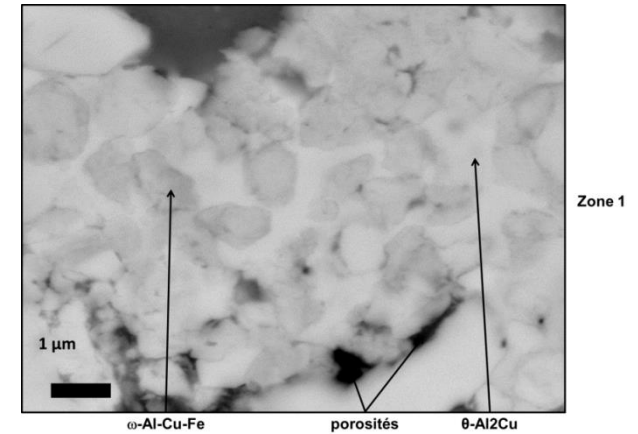
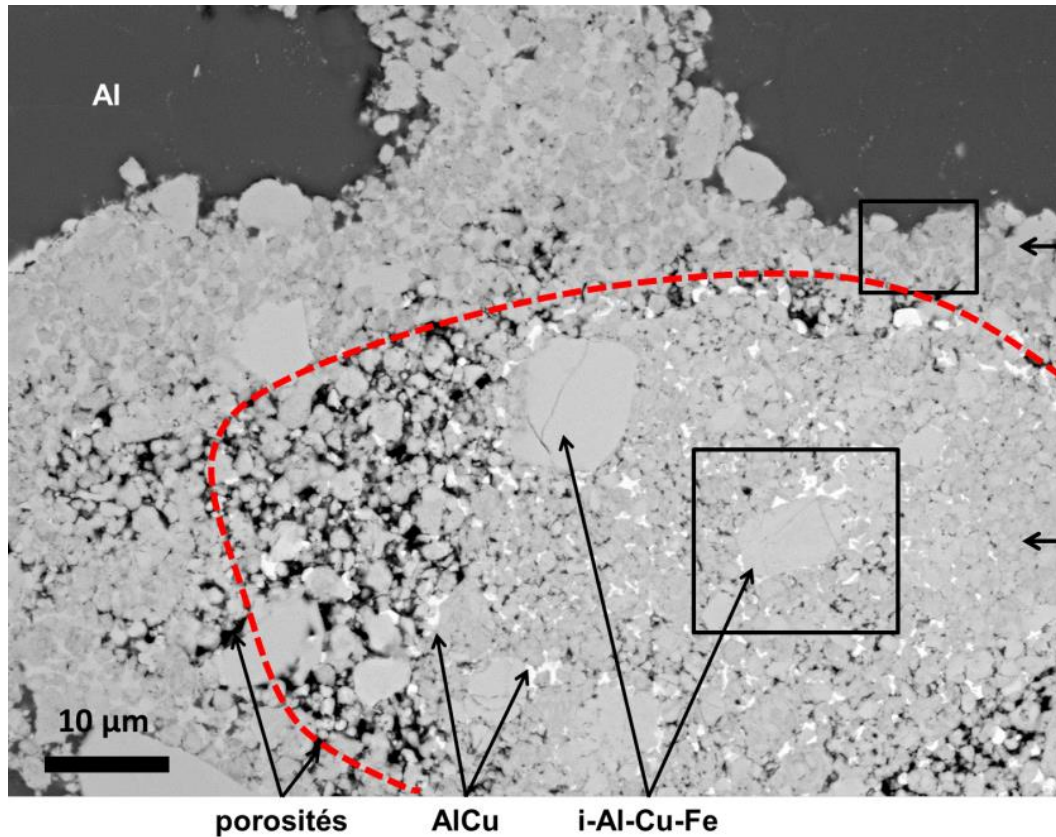
Instabilités de déformation plastique liées à l'épinglage des dislocations par les atomes de Cu en solution dans Al

=> Interaction dynamique atomes en soluté de Cu et dislocations mobiles

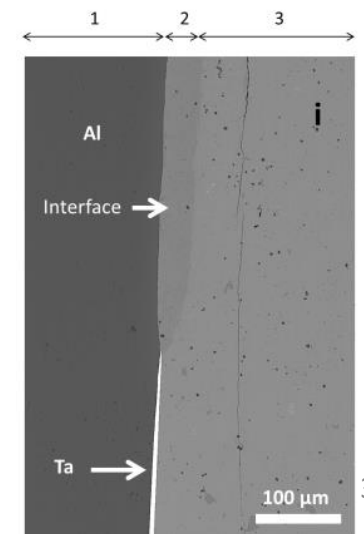
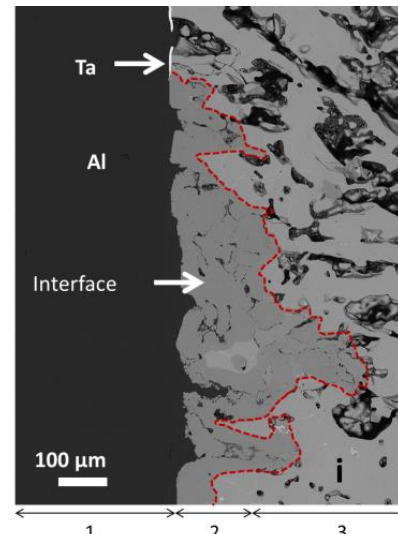
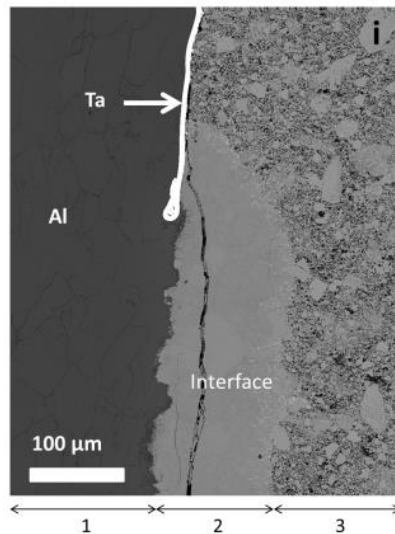
Merci de votre attention

→ Composite Al/ ω -Al-Cu-Fe partiellement transformé

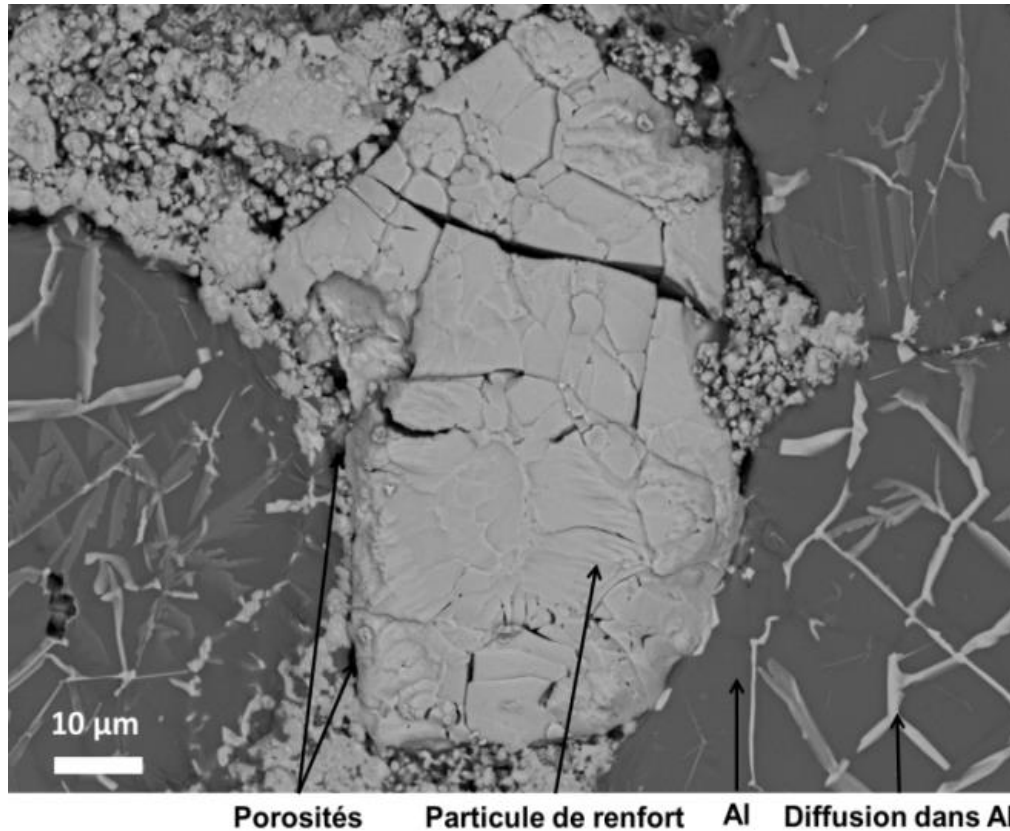
Région partiellement transformée



| | Echantillon modèle à interface plane (Poudre) | Echantillon modèle à interface plane (Plaque i) | Echantillon modèle à interface plane (Plaque i) |
|------------------------------------|--|--|---|
| | 823-100-8-interface-poudre | 823-50-15-interface-massif-1 | 823-50-15-interface-massif-2 |
| Caractéristiques interfaces | Gradient de porosités qui diminue en direction de Al Plusieurs phases secondaires Cas similaire aux composites | Larges porosités Plusieurs phases secondaires | Peu de porosités Aucune phase secondaire |
| Phases à l'interface | ω -Al-Cu-Fe θ -Al ₂ Cu AlCu | ω -Al-Cu-Fe θ -Al ₂ Cu AlCu β -Al ₅₀ Cu _{50-x} Fe _x Eutectique | ω -Al-Cu-Fe |
| Largeur de l'interface | 80 - 90 μ m | $\geq 100 \mu$ m | 40 μ m |
| Diffusion de Cu dans Al | 45 μ m | 25 μ m | 35 μ m |



→ Chauffage in-situ d'un composite Al/i-Al-Cu-Fe



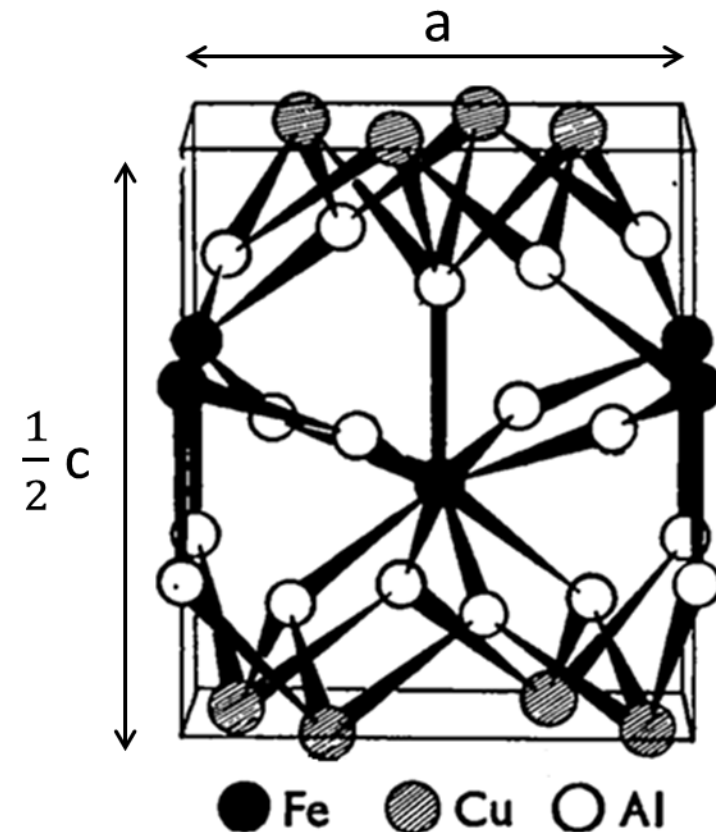
- Fissuration particules de renfort durant transformation de phase
- Transformation i-Al-Cu-Fe → ω -Al-Cu-Fe
- Précipitation θ -Al₂Cu dans la matrice Al durant le refroidissement

Phase ω -Al₇Cu₂Fe

- Composition : ω -Al₆₈₋₇₂Cu₁₉₋₂₁Fe₉₋₁₁ [5]
- Maille quadratique [6]
 $a = 6,336 \pm 0,001 \text{ \AA}$
 $c = 14,870 \pm 0,002 \text{ \AA}$
- 40 atomes / maille
- Synthèse de ω -Al-Cu-Fe [7] par SPS (873 K – 80 MPa)



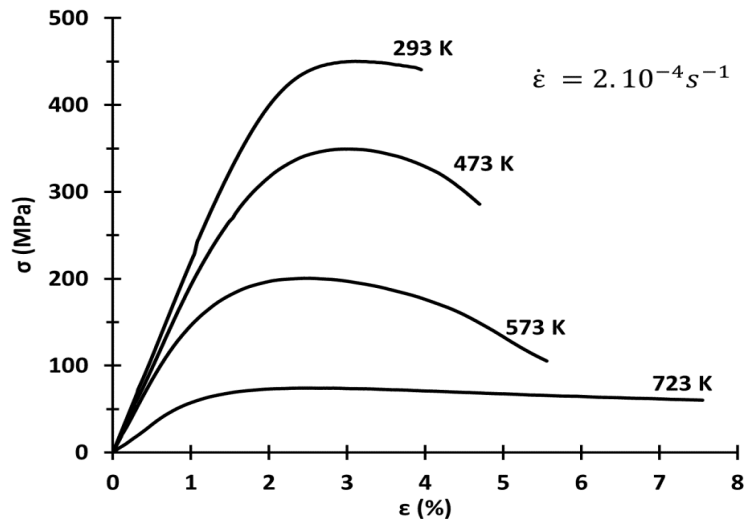
Demi-maille ω -Al₇Cu₂Fe



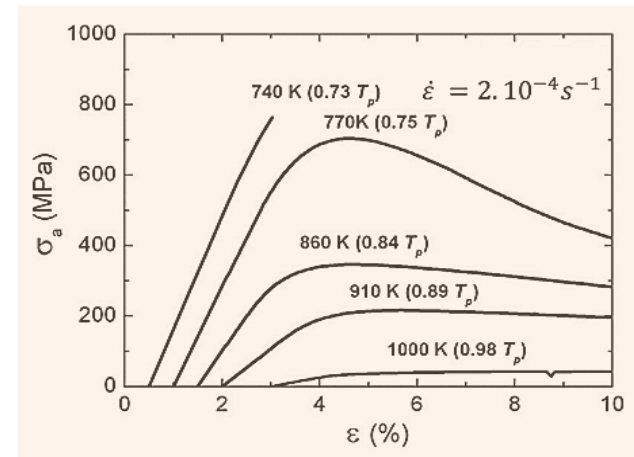
Propriétés mécaniques des composites Al/ ω -Al-Cu-Fe

Essais de compression en température

Al/ ω (frittage flash SPS)



ω -Al-Cu-Fe [Laplanche, 2014]



[Laplanche, 2014] Intermetallics, 50, p. 54-58.

Déformation élastique de ω -Al-Cu-Fe dans la gamme de températures étudiées

=> **Matrice Al = lieu de déformation du composite**