



HAL
open science

Modélisation des processus de précipitation et prédiction des propriétés mécaniques résultantes dans les alliages d'aluminium à durcissement structural : Application au soudage par Friction Malaxage (FSW) de tôles AA2024

Valentine Legrand

► To cite this version:

Valentine Legrand. Modélisation des processus de précipitation et prédiction des propriétés mécaniques résultantes dans les alliages d'aluminium à durcissement structural : Application au soudage par Friction Malaxage (FSW) de tôles AA2024. Matériaux. Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris, 2015. Français. ⟨NNT : 2015ENMP0090⟩. ⟨tel-01565304⟩

HAL Id: tel-01565304

<https://pastel.hal.science/tel-01565304v1>

Submitted on 19 Jul 2017

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.



HAL Authorization

École doctorale n° 364 : Sciences Fondamentales et Appliquées

Doctorat ParisTech

T H È S E

pour obtenir le grade de docteur délivré par

l'École nationale supérieure des mines de Paris

Spécialité “ Mécanique Numérique et Matériaux ”

présentée et soutenue publiquement par

Valentine LEGRAND

le 8 décembre 2015

**Modélisation des processus de précipitation et prédiction des propriétés
mécaniques résultantes dans les alliages d'aluminium à durcissement
structural**

Application au soudage par Friction Malaxage (FSW) de tôles AA2024

Directeur de thèse : **Charles-André GANDIN**
Co-encadrement de la thèse : **Gildas GUILLEMOT**

Jury

M. Jean-Marie DREZET, Professeur, Ecole Polytechnique Fédérale de Lausanne

Mme Aude SIMAR, Professeur, Université Catholique de Louvain

M. Philippe MAUGIS, Professeur, Université Aix-Marseille

M. Charles-André GANDIN, Directeur de recherche CNRS, MINES ParisTech

M. Gildas GUILLEMOT, Chargé de recherche, MINES ParisTech

Mme Julie VAUDOUR, Ingénieur R&T, DAHER

Président
Rapporteur
Rapporteur
Examineur
Examineur
Invitée

**T
H
È
S
E**

**MINES ParisTech
CEMEF-UMR CNRS 7635**

1 rue Claude Daunesse, BP 207 06904 Sophia-Antipolis Cedex, France

REMERCIEMENT

Je tiens tout d'abord à remercier les membres du jury d'avoir accepté d'évaluer mon travail de thèse : merci à Aude Simar et Philippe Maugis d'avoir été rapporteurs et du temps qu'ils ont consacré à la relecture fine du manuscrit, merci à Jean-Marie Drezet, qui a présidé ce jury. Je les remercie sincèrement de la discussion scientifique qui s'en est suivie et de l'intérêt que vous avez porté à mon travail.

Ce travail a été réalisé au CEMEF avec Charles-André Gandin et Gildas Guillemot. Merci à eux de m'avoir fait confiance au cours de ces 3 années. Je remercie Charles-André pour les conseils scientifiques et techniques ainsi que pour l'aide précieuse qui m'a souvent permis de prendre du recul pour mieux avancer sur mon sujet de thèse. Je tiens à remercier Gildas pour sa patience, sa grande disponibilité et pour la formation à la rigueur numérique dont j'avais impérativement besoin pour mener à bien ce travail. Je tiens à les remercier tous les deux pour leur écoute et leurs encouragements tout au long de cette thèse.

J'aimerai remercier Daher Socata pour avoir participé au financement de mes travaux de thèse. J'ai apprécié travailler pendant ces 3 ans sur des problématiques aéronautiques via l'étude du procédé FSW pour l'allègement des structures afin de réduire des gaz à effets de serre. Je tiens à remercier Julie Vaudour et Jean-Jacques Rousse pour le suivi de ce projet. J'aimerai surtout remercier Sabrina Gastebois, doctorante avant moi sur ces thématiques, qui malgré un emploi du temps chargé, s'est toujours rendue disponible pour m'expliquer ses développements, adapter ses simulations à mes besoins.

La partie numérique de mon code a été rendue possible par le service informatique et notamment Carole et Hallem qui ont toujours répondu présentes et fait en sorte que je puisse travailler avec toutes les licences nécessaires ! Je remercie particulièrement mes collègues de bureau, experts et passionnés de code : Thi Thuy My, Carole, Ali, Shijia, Qiang qui m'ont sorti de mes faux-pas avec le sourire et aussi pour toutes les discussions et les bons moments partagés.

Pour la partie expérimentale, je souhaite particulièrement remercier Suzanne, pour son infinie patience sur mes aluminiums, et aussi Nathalie Bozzolo pour ses conseils en métallographie. Merci à Mohamed Sennour, du centre des matériaux d'Evry pour sa disponibilité, son accueil et toutes les observations MET. J'aimerai également remercier Meriem et Marie pour les discussions métallurgiques et musicales autour d'un polissage ! J'aimerai remercier Christophe, Gilbert, Francis et Marc et tout l'atelier, pour leur disponibilité, leur bonne humeur, leur aide pour mes éprouvettes de traction. Je souhaite particulièrement remercier Gaby pour son aide, sa curiosité et sa disponibilité afin qu'on puisse utiliser la DSC pour la caractérisation d'alliages d'aluminium.

Enfin, concernant la vie au CEMEF, je souhaite remercier mes compagnons de thèse, Jérôme, Guillaume, Valentin, Lucas, Yamina, Ghazza, Nela, Stéphanie et leur souhaiter bonne chance pour la suite ... Je remercie aussi Marie-Françoise et Geneviève pour toute la partie administrative. Merci à Françoise pour le soutien pendant la thèse.

J'aimerai également remercier les centres amis, notamment PERSEE : Noémie pour toutes les pauses thé et son optimisme ! Laetitia pour la bienveillance sur tout ce petit monde et de m'avoir fait découvrir l'Ultimate, Guillaume, Maxime et Fabien pour m'avoir laissée les battre sur des paris footballistiques, Ghislain, Etta, Fiona, Thibault et Lucia pour tous les cafés pris dans leur bureau lors de la difficile période de rédaction et pour leur bonne humeur.

Un grand merci au CMA, (pour la dérogation d'utilisation du patio au soleil), merci surtout pour votre constante bonne humeur et toutes les discussions scientifiques tellement actuelles sur l'énergie et l'environnement, merci de les rendre compréhensibles pour des personnes éloignées du domaine. Je remercie surtout leurs incroyables doctorants Steph Frite, Paul le voyageur, François le décroissant, Thomas l'accordéoniste breton, Vincent qui voit la vie en rose et Seb le grimpeur de l'extrême ... pour leur humour potache, belge, décalé, noir, pour

les parties de frisbee, leur bienveillance, leur amitié, leur soutien infailible au cours de la thèse et aussi au cours la rédaction ... avoir des compagnons de galère pour partager en l'espace d'une semaine la joie de devenir Docteur ... 1, 2 et 3 Docteurs, c'est la fête !!

Je les remercie aussi de m'avoir supporté au quotidien dans la belle et énigmatique MAISON du BONHEUR !! Que de bons moments avec mes nombreux colocs dans cette ambiance auberge espagnole avec ses soirées karaokés, ses soirées à thème, ses barbecues, ses challenges culinaires (adieu lactose et gluten), ses discussions philosophiques sur le monde actuel Une maison comme celle-là c'est de l'organisation et de la bonne humeur, de l'humanité et de la bienveillance : merci donc aux colocs non thésards : Vic, Geo, Camille et Raph, Jérôme et Manon. Je tiens tout spécialement à remercier les 3 personnes qui ont été présents pendant l'été de rédaction. Ils ont assurés l'intendance de la maison pour me permettre de rédiger cette thèse dans de bonnes conditions : Vadim, Daria et Clem. Merci à eux, en ne parlant jamais de thèse, de m'avoir offerts de belles et agréables pauses au cours de ces soirées d'été ... J'aimerais remercier Alice, entre soutiens et galères à distance sur nos thèses respectives. Je retiens surtout de beaux souvenirs à la découverte de la côte d'Azur et de la Provence à travers des WE remplis de belles randonnées, découvertes culinaires et musicales !

Je voudrais remercier mes parents à qui je dois beaucoup, ils m'ont appris la rigueur, le goût du travail bien fait, ils m'ont encouragé dans mes différents choix et tout au long de mes études. Je souhaite également remercier mes grands-parents qui ont toujours été attentifs à mes résultats scolaires et à mon épanouissement. Je remercie également Tatie Dominique, Tonton Pierre et Vereine qui m'ont fait le plaisir d'assister à la soutenance de thèse, qui ont toujours été présents pour ma famille ... merci beaucoup ! J'ai une pensée pour mon petit grand frère et notre belle complicité.

Une thèse, c'est des hauts et des bas ... je remercie tout spécialement les 3 personnes qui m'ont soutenue et aidée lors de ma traversée du désert : Cyrielle, ma collègue de bureau qui malgré sa dure rédaction de thèse, prenez le temps de prendre un thé et de discuter, j'ai énormément appris à tes côtés ... merci, Merci à Helga qui m'a recueillie tant de midi et m'a remonté le moral pour que l'après-midi je cherche encore et toujours mon erreur numérique, merci d'avoir toujours été là pour moi, merci de m'avoir accueillie chez toi avec bienveillance, merci mille fois ! Enfin j'aimerais remercier Matthieu, un des joyeux habitants de cette maison, sans aucun doute la plus belle rencontre de ma thèse ... tu es vraiment une personne merveilleuse. Merci d'embellir ma vie au quotidien, merci pour tes sourires, ton optimisme, et tes rêves fous !

TABLE DES MATIERES

Liste des principaux symboles	v
Introduction	7
Chapitre I : Etat de l'art	12
1. Procédé FSW	11
1.1. Principe	11
1.2. Propriétés résultantes	14
1.3. Techniques d'analyse	15
1.4. Phénomènes à modéliser	17
2. Phénomène de précipitation	18
2.1. Physique du phénomène	18
2.2. Choix du type de modèle numérique	24
2.3. Phénomène de germination	28
2.4. Phénomène de croissance/dissolution	29
2.5. Phénomène de coalescence	35
3. Lien microstructure-propriétés mécaniques	36
3.1. Durcissement par solution solide	37
3.2. Contribution des précipités	37
3.3. Contributions diverses	38
3.4. Lois de mélange	39
4. Application à l'alliage AA2024	40
4.1. Intermétalliques	40
4.2. Contribution des précipités	40
4.3. Séquence de précipitation	41
4.4. Modélisations existantes	46
Chapitre II : Modèle numérique	49
1. Couplage du modèle avec la simulation macroscopique du procédé	49
2. Hypothèses du modèle	51
3. Equations du modèle	52
3.1. Equations de conservation	52

3.2. Introduction des précipités dans le modèle	54
3.3. La germination	55
3.4. Calcul de la vitesse de croissance ou dissolution d'un précipité	57
3.5. La distribution de particules	62
3.6. Les valeurs moyennes	65
3.7. Les critères de convergence	66
3.8. Simulation de la DSC (Differential scanning calorimetry)	67
3.9. Les caractéristiques mécaniques	68
4. Algorithme général	68
5. Calibration du modèle microstructural	72
5.1. Diffusion numérique du modèle	72
5.2. Validation pour l'utilisation sur le AA2024 et apport de la solution d'Aaron	76
6. Conclusion	84

Chapitre III : Méthodes et matériaux 87

1. Méthodes expérimentales	87
1.1. Essai FSW	87
1.2. Calibration du modèle numérique	89
1.3. Caractérisation de la microstructure	90
1.4. Caractérisation mécanique	98
2. Matériau étudié	100
2.1. Analyse granulaire	100
2.2. Observation et analyse chimique	101
2.3. Quantification des précipités	105
2.4. Propriétés mécaniques	106
3. Conclusion	107

Chapitre IV : Calibration du modèle numérique 109

1. Influence des paramètres matériaux sur les résultats du modèle numérique	109
1.1. Influence de la densité de sites de germination	109
1.2. Influence de l'angle de mouillage	112
1.3. Influence de l'énergie interfaciale	114
2. Simulation d'un essai DSC	116
2.1. Observations expérimentales	116

2.2. Initialisation de la teneur en zones GPB	117
2.3. Calibration des paramètres de la phase S	126
2.4. Influence des deux phases sur le signal DSC	131
3. Lien microstructure – Propriétés mécaniques	134
3.1. Résultats expérimentaux	135
3.2. Simulation numérique	140
4. Choix des paramètres pour la modélisation en FSW	145
Chapitre V : Etude du procédé FSW	147
<hr/>	
1. Résultats expérimentaux	147
1.1. Analyse macroscopique des soudures	148
1.2. Etude de l'évolution microstructurale	150
1.3. Etude de l'évolution des propriétés mécaniques	154
1.4. Influence de la vitesse d'avance sur les propriétés de la soudure	156
2. Simulation macroscopique d'une soudure	158
3. Simulation microscopique d'une soudure	161
3.1. Modélisation de la soudure à 1 mm.s^{-1}	161
3.2. Influence de la vitesse de soudage	171
3.3. Discussions et perspectives	173
Conclusion et perspectives	179
<hr/>	
Bibliographie	183
<hr/>	
Annexe 1 : Données thermodynamiques	187
<hr/>	
Annexe 2 : Présentation brève du modèle macroscopique	191
<hr/>	
Annexe 3 : Présentation des résultats DSC pour les soudures à 2 mm.s^{-1} et 4 mm.s^{-1}	197
<hr/>	

TABLE DES SYMBOLES

Caractères latins

a	Coefficient des matrices pour le calcul de la distribution	$m.s^{-1}$
b	Vecteur de burgers	m
c	Constante 1 de l'équation de dureté	MPa
d	Constante 2 de l'équation de dureté	MPa
D	Coefficient de diffusion	$m^2.s^{-1}$
F	Terme de normalisation	–
f	Fraction massique	–
$f(r_k)$	Fonction de distribution discrète	–
$f(\theta)$	Fonction de mouillage	–
g	Fraction volumique	–
G	Enthalpie libre	J
G^{ref}	Enthalpie libre de référence	J
G^{id}	Enthalpie libre de solution idéale	J
G^{ex}	Enthalpie libre d'interaction entre les différents éléments	J
h_m	Enthalpie massique	$J.kg^{-1}$
H_v	Dureté Vickers	Hv
J_s	Vitesse de germination	$m^{-3}.s^{-1}$
K_c	Constante de contournement	MPa
k_b	Constante de Boltzmann	$J.K^{-1}$
K_{GT}	Produit de solubilité prenant en compte l'effet Gibbs-Thomson	–
K	Produit de solubilité	–
l	Longueur de la particule	–
m	Masse	kg
M	Masse molaire	$kg.mol^{-1}$
M^p	Facteur de Taylor	–
N	Densité de particules	m^{-3}
n	Nombre de moles	mol
N_{av}	Nombre d'Avogadro	mol^{-1}
NBC	Nombre de classes de la distribution utilisée	–
P	Pression	Pa
Q	Flux de chaleur associé à la DSC	$W.kg^{-1}$
r	Rayon de particule	m
R^*	Rayon critique de germination	m
R_c	Rayon critique cisaillement/contournement	m
R_l	Rayon arithmétique moyen	m
R_2	Rayon arithmétique moyen pondéré par la fraction volumique	m
R_g	Constante des gaz parfaits	$mol^{-1}.K^{-1}$
S	Terme source volumique	$m^{-3}.s^{-1}$
S_p	Surface du précipité	m^2
t	Temps	s
T	Température	K
v	Vitesse	$m.s^{-1}$
V	Volume	m^3
V_m	Volume molaire	$m^3.mol^{-1}$
X	Composition atomique	–
Z	Facteur de Zeldovich	$m^{-3}.s^{-1}$

Caractères grecs

α	Constante de cisaillement	MPa
β	Facteur de cinétique d'accroche	s^{-1}
ΔG^p	Force motrice de germination	J

ΔG_v^p	Energie volumique associée à la formation d'un germe	$J.m^{-3}$
ΔG^*	Energie critique de germination	J
ΔP	Surpression liée à la présence d'un précipité	–
ΔR	Pas de rayon de la distribution	m
$\Delta\sigma_{cis}$	Contribution mécanique liée au cisaillement des précipités	–
$\Delta\sigma_{cont}$	Contribution mécanique liée au contournement des précipités	–
$\Delta\sigma_D$	Contribution mécanique liée à la présence de dislocation	–
Δt	Incrément de temps	s
ε_{Js}	Critère de convergence sur la vitesse de germination	–
ε_{Xm}	Critère de convergence sur la composition de la matrice	–
γ	Energie interfaciale	$J.m^{-2}$
λ_i	Distance inter-atomique dans la matrice	m
λ	Constante cinétique	–
μ	Module de cisaillement	MPa
Ω	Sursaturation dans la matrice	–
ρ	Masse volumique	$kg.m^{-3}$
ρ_D	Densité de dislocation	m^{-2}
σ	Ecart-type de la distribution	–
σ_r	Contribution du précipité à la dureté	MPa
σ_{ss}	Contribution de la solution solide à la dureté	MPa
σ_{HP}	Contribution de l'effet Hall Petch à la dureté	MPa
σ_y	Limite d'élasticité	MPa
τ	Temps d'incubation	s
θ	Angle de mouillage	°
ξ	Ratio d'une particule non sphérique	–
χ	Fraction molaire	–
ω	Vitesse de rotation	rpm

Indices

<i>d</i>	Distorsion
<i>D</i>	Dislocation
<i>éq</i>	Valeur à l'équilibre thermodynamique
<i>GT</i>	Effet Gibbs Thomson
<i>HP</i>	Effet Hall-Petch
<i>i</i>	Elément d'alliage
<i>ini</i>	Valeurs initiales du système
<i>j</i>	Itération dans la boucle de convergence
<i>k</i>	Classe dans l'histogramme
<i>m</i>	Valeur massique
<i>M</i>	Valeur molaire
<i>rot</i>	Rotation autour de l'outil FSW
<i>s</i>	Surface
<i>tot</i>	Quantité totale
<i>v</i>	Volume

Exposants

<i>a</i>	Atome
<i>m</i>	Matrice
<i>min</i>	Valeur minimale
<i>max</i>	Valeur maximale
<i>m/p</i>	Interface matrice/précipité
<i>p/m</i>	Interface précipité/matrice
<i>o</i>	Valeur nominale
<i>p</i>	Précipité
*	Valeur critique de germination

INTRODUCTION

Les alliages d'aluminium des séries 2xxx (Al-Cu-Mg) et 7xxx (Al-Zn-Mg) sont très largement utilisés dans l'industrie aéronautique du fait d'excellentes propriétés mécaniques, notamment en termes de résistance à la fatigue, pour un poids moindre. En outre, ces alliages d'aluminium possèdent une résistance à la corrosion élevée.

Dans le contexte actuel de l'allègement des structures, plusieurs solutions techniques existent : améliorer le dimensionnement des pièces, adapter le choix du matériau, et affiner la réalisation de la structure globale. Dans cette étude, le dimensionnement des pièces n'est pas étudié, le choix des nuances d'aluminium est déjà effectué et une innovation technique permettant l'amélioration de l'assemblage des pièces en aluminium est développée.

Le fuselage d'un avion est fabriqué par l'assemblage de lisses constituant les éléments de l'armature et de la peau faisant référence à la surface extérieure de l'avion. Ces deux éléments sont présentés sur la Figure 1. Ils sont actuellement assemblés par rivetage, technique adaptable à différents types de matériaux métalliques et présentant des temps d'assemblage corrects dans le cadre d'une chaîne industrielle. Néanmoins, cette technique présente des inconvénients en induisant un surpoids important au niveau de la structure avion. De plus, elle induit une concentration des contraintes au niveau des rivets réduisant ainsi la tenue à la fatigue de la pièce rivetée. La jonction hétérogène de deux matériaux différents implique également un risque de corrosion sous contrainte plus élevé.

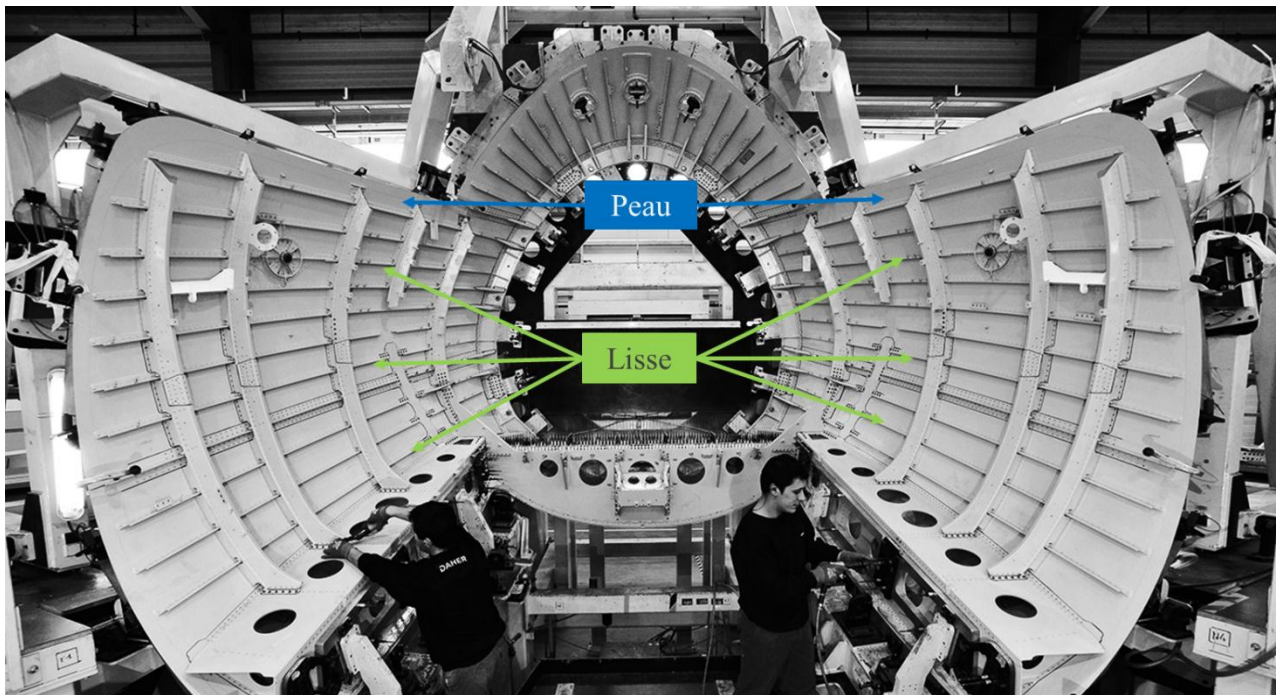


Figure 1 : Image d'un fuselage d'avion assemblé par l'équipementier aéronautique DAHER – Mise en évidence des deux éléments à assembler : les lisses et la peau. (Image DAHER)

Dans un contexte de gain de masse, conduisant à l'allégement des structures tout en garantissant les propriétés du produit final, un nouveau procédé de soudage par friction-malaxage (FSW – Friction Stir Welding) pour des alliages d'aluminium est à l'étude afin de remplacer la technique actuelle de rivetage. Cette technique a été découverte en 1991 par The Welding Institute et est apparue comme une des solutions innovantes permettant de supprimer le poids des éléments de liaison. Elle présente l'avantage d'assembler les matériaux tout en restant à l'état solide d'où la suppression des problèmes liés à la solidification et à l'apparition de la fissuration à chaud, phénomène très dommageable dans le cas des alliages d'aluminium. Elle devrait également permettre, d'un point de vue industriel, de diminuer le temps d'assemblage. Néanmoins, cette technique doit être développée en garantissant la conservation des propriétés finales de l'assemblage. Une bonne connaissance de ce procédé est nécessaire pour s'assurer de la qualité. Ce procédé est actuellement utilisé par Dassault sur les panneaux de fuselage type Falcon 5X et par Airbus pour les planchers de l'A400M. Eclipse Aviation Corporation utilise également cette technologie pour le fuselage du jet Eclipse 500 permettant la suppression de 60% des rivets et ainsi un allégement de la structure avion.

Dans le cadre de la chaire industrielle DAHER, l'équipementier aéronautique DAHER vise à développer une expertise sur le procédé FSW. La simulation numérique du soudage a été choisie comme support pour mieux comprendre le mécanisme de soudage par friction-malaxage. Dans un premier temps, une thèse [Gas15] a été réalisée au CEMEF sur la simulation macroscopique du procédé afin de développer un outil précis et efficace adapté à la configuration de soudage industrielle (tôle sur tôle). Afin de simplifier le travail de simulation, une seule nuance d'aluminium a été utilisée : AA2024-T3. Ce modèle macroscopique permet la prédiction de la formation de défauts de type trous ou bavures au sein du cordon de soudure lors d'une phase de soudage stationnaire. De plus, il permet la prédiction de la température au sein du cordon de soudure et d'estimer les contraintes thermomécaniques induites par le procédé. Dans un second temps, la compréhension à l'échelle microscopique des modifications induites par le soudage est réalisée afin de prédire les propriétés mécaniques finales du joint soudé. Cette seconde étude est l'objet du présent document.

Les alliages d'aluminium de type AA2024-T3 tirent leurs propriétés mécaniques du phénomène de durcissement structural, c'est-à-dire de la présence de précipités. L'état de précipitation dans le matériau va permettre de durcir ou adoucir le matériau et dépend de l'histoire thermique subie. Ainsi, lors d'une soudure par friction-malaxage, cet état va être modifié et les propriétés mécaniques vont être affectées. Le chapitre 1 présente les différents phénomènes se produisant au cours du procédé FSW résultats d'une analyse bibliographique portant sur les études expérimentales et la modélisation numérique.

La simulation de l'évolution de la précipitation choisie est basée sur un modèle de classe basé initialement proposé par Kampman et Wagner [Kam84] et couplé au logiciel de calculs d'équilibre thermodynamiques Thermocalc [The01]. Connaissant la distribution des précipités et leur taille, il est possible de définir les propriétés mécaniques selon des modèles

empiriques proposés par Genevois [Gen04]. Le modèle développé est présenté dans le chapitre 2.

Dans le troisième chapitre, les techniques expérimentales utilisées sont détaillées et les conditions initiales du matériau de l'étude en termes de nature de précipités et de composition initiale du système sont définies.

Le modèle a été calibré sur des cas simples à la fois pour des régimes isothermes et anisothermes. La calibration anisotherme a été réalisée via un essai de calorimétrie différentielle à balayage (DSC) et a permis d'initialiser la teneur des phases en présence ainsi que la définition des paramètres matériaux propres à l'alliage étudié. Afin de calibrer le modèle de durcissement structural, l'essai isotherme a été choisi. Le lien entre état de précipitation et propriétés mécaniques a été mis en évidence. Ces développements sont présentés dans le chapitre 4.

Ayant défini les différents paramètres matériaux et mécaniques de la simulation, le modèle développé a été appliqué à la prédiction des propriétés mécaniques dans le joint soudé. Le chapitre 5 présente les résultats d'analyses expérimentales pour différentes vitesses d'avance et les résultats de la simulation numérique du procédé FSW.

Pour finir, une conclusion générale sur l'analyse développée est présentée. Elle permet également de mettre en avant les perspectives d'amélioration de la simulation développée dans le cas du soudage FSW.

1. Procédé FSW

Le terme Friction Stir Welding (FSW) se traduit, en langue française, par ‘procédé de soudage par friction-malaxage’. Ce procédé a été découvert en 1991 en Grande-Bretagne par ‘The Welding Institute’ (TWI), un organisme d’enseignement et de recherche spécialisé dans les procédés d’assemblages. Il doit son origine à des études visant l’amélioration du soudage par friction. Dans ce procédé, la soudure est réalisée en phase solide sans apport de matière ce qui permet de supprimer les phénomènes de fissuration à chaud formés lors de la solidification d’un métal. Toutefois, ce procédé génère des modifications microstructurales et des contraintes résiduelles difficiles à maîtriser et pouvant être à l’origine de détériorations des propriétés d’usage. Le soudage par FSW est principalement appliqué sur des matériaux difficilement soudables par des procédés conventionnels (TIG,MIG), notamment les alliages d’aluminium [Caz13]. Les basses températures de fusion de ces derniers, qui peuvent poser des problèmes en soudage à l’arc, facilitent leur assemblage par FSW, en permettant d’atteindre plus aisément les domaines de températures nécessaires au malaxage.

1.1. Principe

Schéma de soudage

Les tôles prêtes à être soudées sont positionnées sur un support permettant leur mise en contact ainsi que le déplacement à force constante de la tête de soudage le long du joint comme le montre la Figure. I.1. Ce procédé est généralement réalisé en une passe.

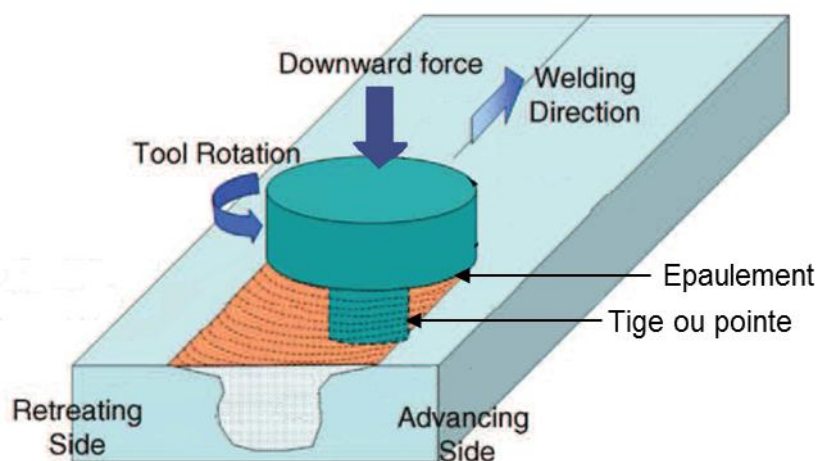


Figure I. 1 : Schéma du procédé FSW [Mis05]

La tête de soudage est constituée d'un mandrin tournant et possédant un épaulement sur lequel est fixé en bout la tige ou pointe (cf. Figure I. 1). La chaleur engendrée par la friction de la tête de soudage permet de 'ramollir' le métal, sans développer de phase liquide puisque la température du procédé est inférieure à la température de fusion du matériau soudé. La tige est introduite jusqu'à l'épaulement (cf. Figure I. 1) permettant de limiter sa pénétration. Afin d'obtenir une liaison complète, la tige doit avoir une longueur quasiment égale à l'épaisseur des tôles à souder. Cet épaulement empêche également la matière de fluer vers le haut, et de restreindre le fluage autour de l'outil. Ce fluage est dissymétrique et se réalise de l'avant vers l'arrière permettant l'établissement de liaisons entre les deux plaques et donc la réalisation de la soudure. Ainsi, deux côtés sont distingués sur la Figure I. 1 : le côté d'avance (advancing side) où la vitesse d'avance est parallèle à la vitesse de rotation et le côté de retrait (retreating side) où ces deux vitesses sont de sens opposés. Il existe également une assymétrie entre le haut et le bas de la soudure [Caz13, Mis05, Gen04].

Paramètres du procédé

Trois paramètres procédés existent qui vont guider la conduite et la qualité de l'assemblage [Feu12]. Le premier paramètre du soudage est la forme de l'outil et notamment des filetages présents sur la tige ou pointe qui permettent d'augmenter l'effet de malaxage du métal afin de faciliter la formation de la soudure. Le matériau constitutif de l'outil doit être résistant à l'usure pour une plage de fonctionnement en température de 300 °C-400 °C. L'angle d'enfoncement et la pression fournie par l'épaulement doivent être optimisés. Le second paramètre est la vitesse de rotation de l'outil comprise entre 100 et 1500 tr/min. Cette vitesse est maintenue constante pendant le soudage et dépend du matériau soudé. Enfin, le dernier paramètre est la vitesse de soudage généralement de l'ordre du mètre par minute. Cette vitesse est plus faible que dans le cas des procédés par fusion pour permettre à la matière de fluer correctement. Toutefois, plus cette vitesse est faible, plus elle favorisera la coalescence des précipités et une zone affectée par la soudure plus large.

Ces trois paramètres procédés vont influencer les évolutions thermiques et mécaniques au cours de la soudure. L'utilisation des modèles macroscopiques thermomécaniques ou de thermocouples rend possible la définition précise des propriétés locales dans la ZAT. Dans le noyau, seule la modélisation permet de définir la température du matériau [Mis05]. Des thermocouples peuvent néanmoins être placés dans l'outil au niveau des épaulements et de la tige [Gas15]. Ces dernières vont être à l'origine des modifications microstructurales dans le cordon de soudure telles que l'évolution de la précipitation ou l'importance de la recristallisation.

Il apparaît ainsi sur la Figure I. 2 que les évolutions thermique et mécanique permettent de déterminer les propriétés métallurgiques qui sont à leur tour souvent utilisées [Gen04, Kha08, Her10] pour définir les propriétés mécaniques finales du joint soudé telle que l'évolution de la microdureté dans le cordon de soudure. Le schéma classique revient à considérer sur la Figure I. 2, la dépendance des caractéristiques mécaniques avec la température, les transformations

métallurgiques et les dépendances des caractéristiques mécaniques avec la microstructure. Cependant, les contraintes induites par le procédé et les évolutions de chaleur latente dues aux transformations métallurgiques sont souvent négligées [Kha08,Her10,Bas06]. Comme illustré sur la Figure I. 2, l'évolution métallurgique va influencer l'évolution thermique, de manière limitée, mais encore plus l'évolution mécanique du domaine soudé en affectant la rhéologie du matériau. Bastier [Bas06] a tenu compte de ces différents phénomènes et de leur influence les uns par rapport aux autres dans son modèle de simulation du soudage FSW. Cependant, il n'a considéré, pour l'aspect métallurgique, que les processus de dissolution des précipités.

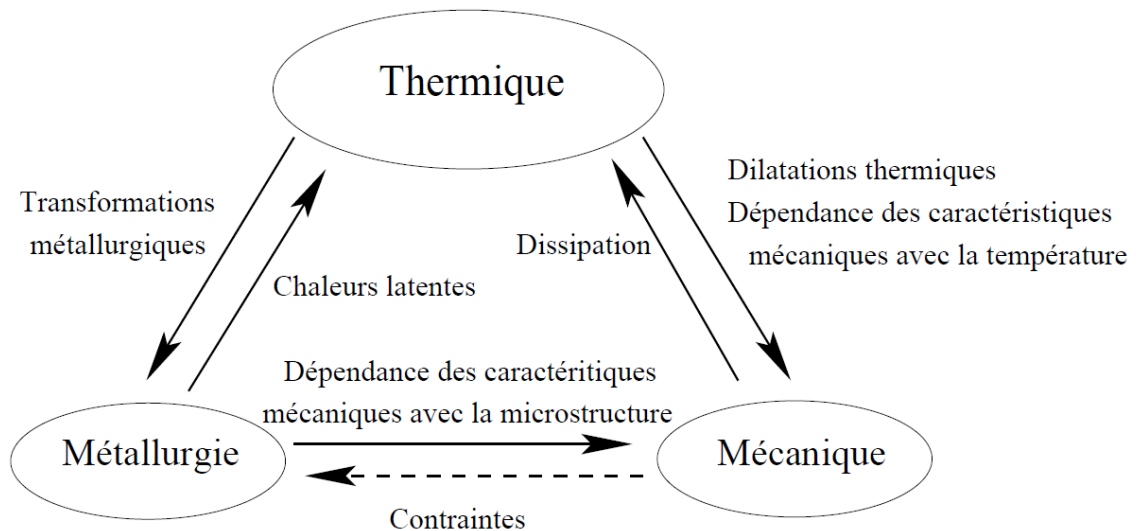


Figure I. 2 : Lien entre métallurgie, mécanique et thermique dans les procédés de soudages [Bas06]

Avantages et inconvénients

Il est à noter que les défauts internes de procédés de soudure par fusion tels la fissuration à chaud, la formation d'oxydes à haute température ou encore la ségrégation d'éléments d'alliage n'apparaissent pas dans le procédé FSW, et permettent en conséquence d'améliorer les propriétés mécaniques du cordon de soudure. Les contraintes résiduelles sont également plus faibles que dans les procédés de soudure par fusion [Caz13, Gal08].

De plus, cette soudure est effectuée sans apport de matière et permet de développer une soudure chimiquement homogène, limitant les phénomènes de corrosion par couplage galvanique. Ce procédé est considéré comme propre, peu dangereux et peu consommateur en énergie [Caz13].

Les contacts outil/pièce et le bridage des plaques constituent des sources de problèmes d'un point de vue pratique. Ils peuvent être à l'origine de défauts en pied de cordon, d'abattement des propriétés en fatigue et de ruptures intergranulaires de type fragile. Des problèmes peuvent également intervenir lors de l'établissement du régime stationnaire avec

des propriétés différentes en début et fin de soudure. De plus, la vitesse de soudage est également plus faible que dans d'autres procédés [Gen04].

1.2. Propriétés résultantes

Propriétés microstructurales résultantes

Lorsque le matériau a été assemblé par FSW puis refroidi, quatre zones caractéristiques du cordon de soudure peuvent être définies (Figure I. 3).



Figure I. 3 Macrographie de la zone soudée [Mis05]

La première zone constitue le **noyau de soudure (welded nugget)**, et est relative au métal ayant subi la friction et le brassage. Les températures lors du processus de soudage sont estimées de l'ordre de 425 °C à 500 °C dans les alliages d'aluminium [Mis05]. La forme du noyau peut être variable, par exemple elliptique avec une microstructure allongée en bande concentrique de type *onion ring*. La forme dépend du type d'alliage, de la conductivité thermique du matériau et des paramètres du procédé. Les fortes déformations plastiques subies induisent une recristallisation dynamique engendrant un affinement de la microstructure ainsi qu'une diminution de la densité de dislocation. Les grains présentent une microstructure équiaxe ayant une taille comprise entre 2 µm et 12 µm pour les alliages de la série 2xxx [Feu12], comparativement à une taille initiale de 20 à 30 µm. L'augmentation de la température lors du soudage va favoriser l'obtention d'une microstructure avec des tailles de grains plus importantes. A contrario, l'augmentation du degré de déformation va avoir tendance à réduire la taille de grain. Ainsi, ces deux paramètres vont être en compétition lors du procédé et devront être pris en compte afin d'optimiser la soudure. De plus, la taille de grain augmente en haut de la zone soudée et diminue de part et d'autre de la ligne centrale du fait de déformations et d'échauffements plus importants sous l'épaule. Les précipités durcissants sont remis en solution lors du soudage. Une précipitation hétérogène apparaît lors du refroidissement/maturation permettant d'effacer l'influence des effets thermiques antérieurs et d'obtenir une dureté correcte par la suite [Dum06]. Des zones de Guinier Preston (GP) germent dans les régions où la sursaturation est suffisante. La frontière avec la zone suivante est très marquée par une recristallisation partielle le long de la frontière [Pee03].

La seconde zone immédiatement périphérique au pion constitue la **zone affectée thermomécaniquement ZATM (Thermo-mechanically affected zone : TMAZ)** dans laquelle le matériau a subi une déformation plastique induisant une désorientation de la microstructure. Cette partie a également été affectée thermiquement. Les températures atteintes sont comprises entre 300 °C et 400 °C [Mis05]. Cependant aucun phénomène de recristallisation n'a lieu dans cette zone car la déformation est insuffisante. Certains précipités durcissants vont être dissouts alors que la précipitation hétérogène et plus grossière de précipités non durcissants pourra être observée. Ainsi, comme on peut le voir sur la Figure I. 4, cette zone constitue le minimum de dureté du joint [Mis05, Her10, Gal08, Feu12, Gen05].

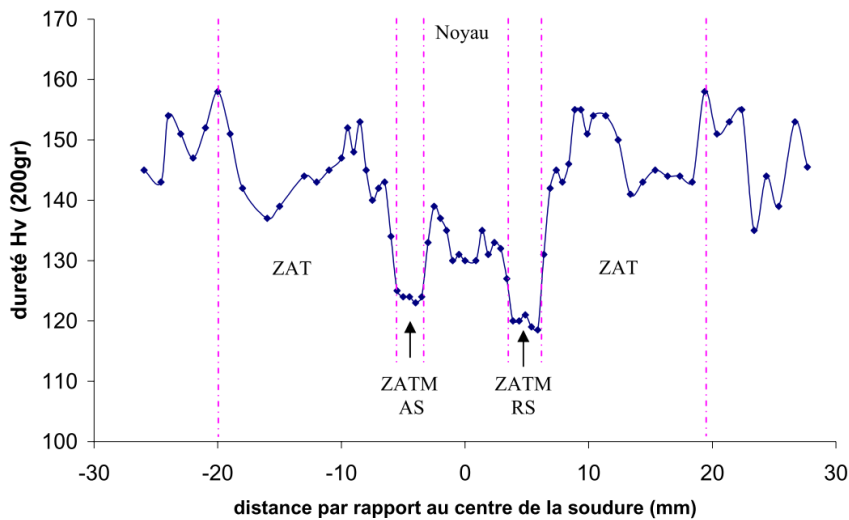


Figure I. 4 : Profil de dureté dans le cordon de soudure [Gen04]

La troisième zone constitue la **zone affectée thermiquement ZAT (Heat Affected Zone : HAZ)** dans laquelle le matériau a subi une élévation de température jusqu'à 250 °C. La taille des grains est identique au matériau de base. Elle présente de faibles transformations microstructurales. Il y a croissance puis remise en solution de la précipitation durcissante initiale d'où un minimum de dureté atteint à la limite entre la ZAT et la ZATM. La taille de la PFZ (Precipitate Free Zone) augmente [Mis05, Her10, Gal08, Feu12, Gen05].

La quatrième zone constitue le **métal de base (base metal)**. Dans cette région, l'apport thermique a été trop faible pour générer des changements de microstructures [Mis05, Her10].

La dureté dans le joint soudé a un profil caractéristique en W. Le minimum de dureté se situe dans la partie affectée thermomécaniquement qui constitue la partie la plus dommageable de la soudure.

1.3. Techniques d'analyse

Estimer précisément l'évolution de la précipitation nécessite, dans le cas des alliages d'aluminium, le recours à des techniques expérimentales pointues permettant de définir la fraction volumique, la taille et la nature des précipités [Gen05, Dub12].

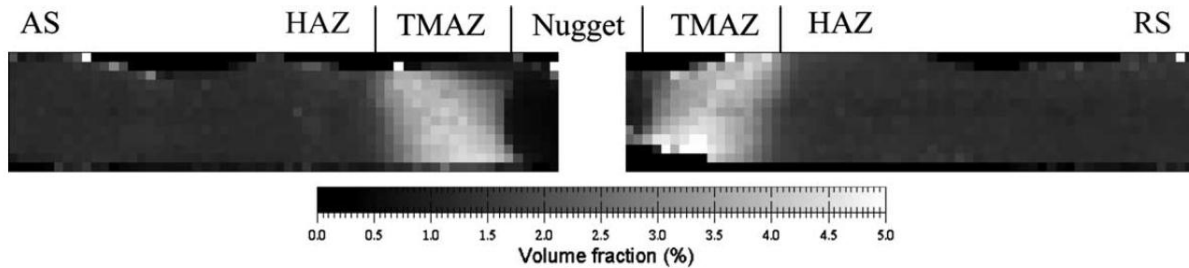


Figure I. 5 : Analyse SAXS d'un cordon de soudure AA2024-T351 [Gen05]

Pour définir la fraction volumique, deux techniques sont généralement utilisées de manière couplées : la calorimétrie différentielle à balayage (DSC) et la diffraction centrale de rayons X aux petits angles (SAXS). La DSC permet de visualiser les transformations exothermiques (précipitation) ou endothermiques (dissolution) successives d'une séquence de précipitation et de définir ainsi la fraction relative de ces précipités contenue dans le matériau [Gre10]. La SAXS [Gen04, Deg12] est utilisable pour une certaine gamme de rayon de précipités (5 nm à 35 nm) et permet de définir précisément la fraction volumique (Figure I. 5). Néanmoins, il est dans ce cas impossible de différencier la nature des précipités dans le cas de l'alliage d'aluminium AA2024. La diffraction des phases en présence est très similaire et ne permet pas leur différenciation contrairement aux précipités T1 et T2 dans un alliage d'aluminium AA2196 [Dec12]. La technique SAXS nécessite de connaître précisément la morphologie, la taille et la nature chimique des phases présentes afin d'éviter des erreurs importantes [Des03].

Il est important de coupler l'analyse SAXS à l'analyse DSC afin de définir la fraction volumique exacte d'une phase de nature chimique connue. L'exemple des deux résultats est montré sur la Figure I. 6. Cette méthode est appliquée à la mesure de l'évolution, au sein d'un cordon de soudure FSW de deux phases différentes définies ici comme étant la phase 1 et la phase 2. La fraction volumique totale des phases précipités est mesurée en SAXS (en bleue) pour une taille définie entre un rayon r_1 et r_2 . La fraction relative de phase 1 obtenue via l'analyse DSC est représentée en rose. De ces deux courbes, l'évolution de la fraction volumique de phase 1 peut être déduite. Par exemple, pour une distance au centre de la soudure supérieur à 10 mm, la fraction volumique mesurée a une valeur proche de 1,25 alors que la fraction relative de phase 1 est nulle. Il peut être conclu que la fraction volumique mesurée en SAXS est la fraction volumique de phase 2. A contrario, les évolutions des fractions relative et volumique de la phase 1 sont similaires pour une distance à l'axe comprise entre 5 mm et 10 mm. Ainsi, la fraction volumique mesurée correspond à la phase 1. Par contre au centre de la soudure, il apparaît que la fraction volumique mesurée en SAXS

semble sous-estimer la présence de phase 1. Ceci est dû à la non-détection de précipités de phase 1 ayant une taille supérieure à r_2 .

Afin d'observer la taille des précipités dans les alliages d'aluminium, la microscopie électronique en transmission (MET) est nécessaire. Toutefois, dans le cas de géométrie de précipités sous forme de plaquettes, il est difficile de mesurer précisément leur taille.

La taille de grains évolue dans le cordon de soudure et pour la définir, il est préférable d'utiliser le MEB-EBSD notamment dans le noyau puisque les grains peuvent atteindre un diamètre de 2 μm dans ce domaine, ce qui devient difficilement observable avec la microscopie optique.

Pour déterminer les propriétés mécaniques locales, des essais en microdureté peuvent être effectués, permettant d'obtenir des cartographies précises de dureté. Il est également possible de prélever des éprouvettes de traction parallèlement à la soudure pour définir les limites d'élasticité pour une distance à l'axe de soudure connue. Afin de vérifier la qualité de la soudure ou de mettre en évidence le comportement en traction de cette soudure, des éprouvettes de traction peuvent être prélevées, dans une direction nécessairement perpendiculaire à l'axe de soudage.

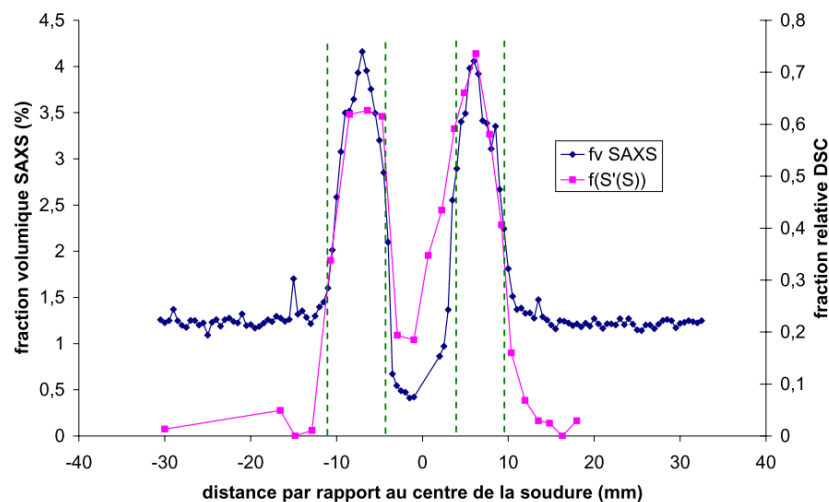


Figure I. 6 : Utilisation de la DSC et de la SAXS pour déterminer respectivement la fraction relative de la phase S et la fraction volumique de toutes les phases ayant un rayon compris entre 5 et 15 nm dans un AA2024 [Gen04].

1.4. Phénomènes à modéliser

Lors du procédé FSW, les précipités peuvent, en résumé, évoluer de trois manières différentes :

- Dissolution complète
- Dissolution partielle et/ou coalescence
- Nucléation/croissance des précipités

Pour une soudure, le phénomène le plus dommageable est la coalescence puisqu'il ne permet pas au matériau de récupérer ses propriétés mécaniques lors d'un traitement thermique postérieur ou d'une maturation à l'ambiante [Feu12, Gen06]. Les déformations plastiques pendant la soudure peuvent également avoir des effets secondaires sur les cinétiques de précipitation.

Modéliser précisément le phénomène de précipitation va permettre de définir les propriétés mécaniques finales du joint soudé. De plus, aucune des trois étapes de ce phénomène ne peut être négligée [Car10].

2. Phénomène de précipitation

2.1. Physique du phénomène

Définition

La précipitation est une transformation structurale mettant en jeu différents paramètres thermiques, mécaniques ou chimiques, qui vont être à l'origine de la formation de précipités soit stables, soit métastables. La formation de précipités métastables sera favorisée notamment si les facteurs d'énergie interfaciale ou élastique rendent leur germination plus facile. Ainsi, les aspects thermodynamiques, cristallographiques, cinétiques et morphologiques doivent être pris en compte [Dub12].

La précipitation est considérée comme une transformation hétérogène puisqu'elle implique au minimum deux phases. La croissance des précipités est, de manière générale, activée thermiquement et est régie par les flux de diffusion des atomes. Ce processus de précipitation peut se produire par étapes successives résultant de la formation de précipités de nature chimique différentes. Une séquence de précipitation intervient alors, définie par la succession des différents processus de précipitation.

Pour caractériser la précipitation qui peut avoir lieu lors d'un refroidissement lent ou d'un maintien en condition isotherme après trempe, ou durant un traitement de revenu, il est nécessaire de connaître la taille, la forme et la nature des précipités.

Précipitation homogène

Dans le cas d'une germination homogène, se développant de manière uniforme dans le grain, plus le degré d'insaturation sera important, plus il y aura de germes. En effet, tous les atomes sont alors considérés comme étant des sites potentiels de germination. Les précipités obtenus sont fins et dispersés pour des températures de revenu peu élevées [Dub12].

Précipitation hétérogène

La précipitation hétérogène se produit sur des défauts de réseaux tels que les joints de grains ou sous-joints de grains. Leur germination est favorisée car ils peuvent, sur ces sites, se développer pour des variations d'énergie libre plus faibles. De plus, le transport de soluté y serait nettement plus rapide que dans le matériau massif d'où une croissance également favorisée [Kam06]. La croissance des précipités sur les joints de grains entraîne l'appauvrissement en soluté et lacunes par diffusion, d'où la formation de domaines de zones dépourvues de précipités appelées communément PFZ (Precipitate Free Zone). La précipitation y est également plus grossière.

La précipitation hétérogène peut se former sur les dislocations. Dans ce cas, le système va libérer de l'énergie élastique liée au champ de déformation des dislocations. La diffusion de soluté est également plus rapide et la croissance va également être accélérée. Les dislocations sont souvent considérées comme des court-circuits de diffusion, c'est-à-dire des lieux de diffusion facilitée pour les espèces chimiques, dont il est très difficile de déterminer le coefficient de diffusion exact. Elles agissent également comme des puits de solutés en appauvrissant en soluté le matériau massif.

Dans le cas des alliages d'aluminium commercialisé actuellement, la précipitation serait uniquement hétérogène [Per08].

Cristallographie

D'un point de vue cristallographique, la notion de cohérence à l'interface précipité/matrice est très importante. Elle peut être assurée par une distorsion élastique dans le cas d'une interface cohérente. La plupart des morphologies collectives et des microstructures des alliages diphasés dépendent de l'énergie élastique induite. Dans le cas d'une interface semi-cohérente, des dislocations d'accommodation ou des relations d'épitaxie apparaissent. Une relation d'épitaxie est une relation de parallélisme entre plans ou directions cristallographiques de la matrice et ceux du précipité. Les précipités cohérents ont une taille généralement inférieure à 5 nm [Dub12].

Thermodynamique

D'un point de vue thermodynamique, pour que la précipitation ait lieu, il est nécessaire d'avoir un écart à l'équilibre. La thermodynamique permet de définir le domaine d'existence des phases et également la limite de solubilité. La force motrice de germination et l'effet Gibbs-Thomson découlent de cette description thermodynamique.

L'enthalpie libre d'une phase, G , s'écrit [*Scientific Group Thermodata Europ (SGTE)*] :

$$G = G^{ref} + G^{id} + G^{ex} \quad \text{Equation I. 1}$$

Elle se décompose en trois termes, le premier est l'enthalpie libre de référence, G^{ref} . Le second terme, G^{id} , est l'enthalpie libre de solution idéale. Le dernier terme, G^{ex} , permet de considérer les interactions entre les différents constituants de l'alliage. Il sera nul lorsque ces interactions seront négligées.

Trois principales approximations existent dans la littérature. Elles sont regroupées dans le Tableau I. 1. L'approximation la plus utilisée est celle de la solution idéale diluée. Cependant, dans le cas d'alliages multi-composés, elle ne peut être utilisée ainsi, il est préférable d'utiliser la solution régulière dont les données thermodynamiques sont fournies par Thermocalc [The01]. Ce logiciel permet de prédire les équilibres thermodynamiques et d'accéder ainsi aux valeurs de composition à l'équilibre dans la matrice et le précipité pour une composition nominale et une température donnée. Il est également possible de connaître la force motrice de germination et les coefficients de diffusion. Cette approche a été utilisée par Serrière [Ser02] et TC-PRISMA [TCP01]. Elle donne un accès direct à cette grandeur thermodynamique.

	Solution idéale diluée	Solution idéale	Solution régulière
Hypothèses	<ul style="list-style-type: none"> - Concentration en soluté dans le précipité proche de 1 - Pas d'interactions entre les différents constituants de l'alliage ($G^{ex} = 0$) 	<ul style="list-style-type: none"> - Pas d'interactions entre les différents constituants de l'alliage ($G^{ex} = 0$) 	<ul style="list-style-type: none"> - Aucune
Limites d'utilisation	<ul style="list-style-type: none"> - Seulement applicable aux alliages binaires ou pseudo-binaires 	<ul style="list-style-type: none"> - Aucune 	<ul style="list-style-type: none"> - Aucune
Littérature	[Her10, Gal08, Sim07, Bar14, Des99]		[Ser02, TCP01]

Tableau I. 1 Différentes approximations thermodynamiques usuellement utilisées pour les calculs thermodynamiques.

L'objectif de toute transformation est de réduire au minimum l'enthalpie libre (ou énergie de Gibbs) du système, conduisant à minimiser cette grandeur pour définir un équilibre thermodynamique. Pour cela, on se réfère à la variation de l'énergie de Gibbs (ΔG) du système entre l'état courant et l'état précipité. Si elle est positive, il va être nécessaire d'apporter de l'énergie au système pour que le phénomène se produise. Si elle est négative, la transformation peut se réaliser spontanément. Ce terme permettant de savoir si la germination va se produire ou non, se décompose en trois variables :

$$\Delta G = \Delta G_v + \Delta G_s + \Delta G_d \quad \text{Equation I. 2}$$

Le premier terme, ΔG_v , est l'énergie volumique de formation d'un germe. Elle correspond au produit de la variation d'enthalpie libre par volume de précipité, Δg_v , par le volume du précipité formé V . Elle est toujours négative et dépend de la température et de la composition du système. Les deux autres termes sont toujours positifs et vont avoir tendance à augmenter la variation d'énergie libre du système et contrarier le processus de précipitation.

ΔG_s est la variation d'enthalpie libre par unité de surface entre le précipité et la matrice. Cette variation correspond ainsi au produit de la surface du germe (S) par l'énergie interfaciale de la phase (γ). Cette énergie sera d'autant plus élevée que le degré d'incohérence entre le précipité et la matrice sera important. Elle est généralement comprise entre 100 et 300 mJ.m^{-2} pour une interface incohérente. Le dernier terme, ΔG_d , correspond à la variation de l'énergie élastique due à la distorsion du réseau. Ce terme est négligé notamment dans le cas d'une interface incohérente.

La variation d'énergie de Gibbs s'exprime, en conséquence, généralement ainsi :

$$\Delta G = V\Delta g_v + S\gamma \quad \text{Equation I. 3}$$

Il est donc possible de faire également une hypothèse sur la géométrie du germe : sphère (Serrière [Ser04]) ou plaquette (Bardel [Bar14]). La force motrice de germination ΔG est définie et est spécifique à la géométrie du précipité. Le phénomène de germination se produit à partir d'une certaine valeur de rayon R^* que l'on définit en dérivant l'équation précédente en fonction du rayon de la particule. La valeur de cette force est définie comme l'énergie critique de germination. Le principe est représenté sur la Figure I. 7. Le rayon critique R^* correspond à la valeur du rayon pour laquelle la dérivée est nulle, et donc la variation d'énergie libre est maximale. Au-delà de ce rayon critique, les variations d'énergie libre du système sont négatives et la croissance du précipité se développe librement. Les équations spécifiques aux différentes géométries sont indiquées dans le Tableau I. 2.

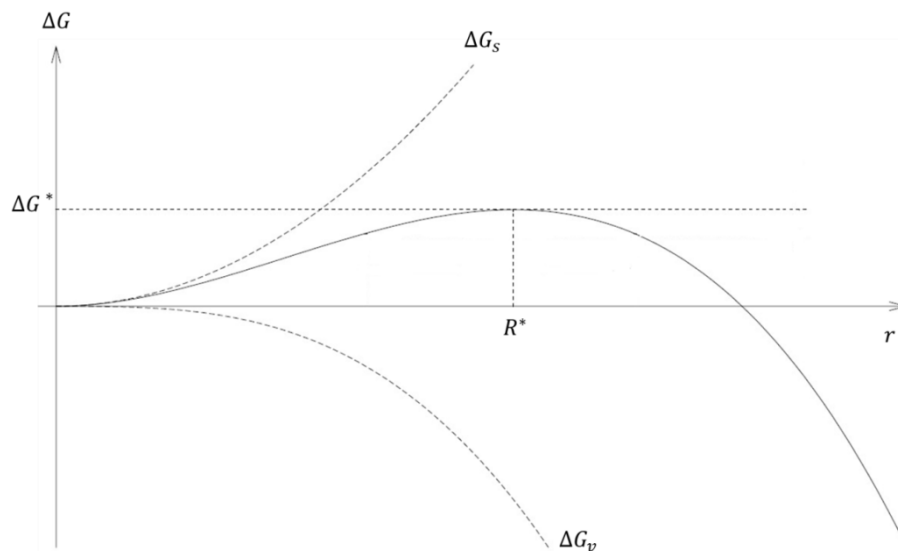


Figure I. 7 : Schéma de principe présentant l'évolution de l'énergie libre du précipité en fonction de son rayon [Ser02]

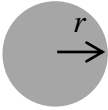
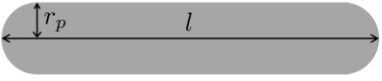
	Sphère	Plaquette
Géométrie	 Sphère de rayon r	 Facteur de forme de la plaquette $\xi = l/r_p$
ΔG	$\frac{4}{3}\pi r^3 \Delta g_v + 2\pi r^2 \gamma$	$\left(\frac{3\xi}{4} - \frac{1}{2}\right) \frac{4}{3}\pi r^3 \Delta g_v + \frac{\xi}{2} 4\pi r_p^2 \gamma$
	Avec Δg_v force volumique motrice de germination et γ énergie interfaciale	
ΔG^*	$\frac{16\pi\gamma^3}{3\Delta g_v^2}$	$\frac{16\pi\gamma^3}{3\Delta g_v^2} \cdot \frac{2\xi^2}{(3\xi - 2)^2}$
R^*	$\frac{2\gamma}{\Delta g_v}$	$\frac{2\gamma}{\Delta g_v} \frac{2\xi}{3\xi - 2}$
Référence	Perez [Per08]	Bardel [Bar14]

Tableau I. 2 : Définition du rayon critique de germination

Dans le cas d'une germination hétérogène, à l'image de ce qui a été décrit et utilisé par Serrière [Ser02], la germination a lieu sur un site particulier et l'interface du germe est considéré comme celui correspondant à la jonction de deux calottes sphériques. Pour pondérer le fait que les germes ne soient pas, ainsi, parfaitement sphériques, un terme de facteur de forme également appelé fonction de mouillage est introduit. Elle est définie selon la fonction suivante :

$$f(\theta) = \frac{1}{2}(2 + \cos\theta)(1 - \cos\theta)^2 \quad \text{Equation I. 4}$$

Avec θ l'angle de mouillage de la particule. La représentation géométrique de cet angle est présentée sur la Figure I. 9.

Pour que la description soit complète, il faut définir la variation d'enthalpie libre par unité de volume en fonction de la force motrice de germination (Equation I. 5). Ce terme volumique dépend ainsi de la sursaturation dans la solution solide et de sa concentration en éléments d'alliage, ainsi que de la température. Les courbes d'énergie libre sont utilisées pour la définir comme présenté sur la Figure I. 8.

$$\Delta g_v = \frac{\Delta G^p}{V_m} \quad \text{Equation I. 5}$$

Les approximations usuelles permettent de la déterminer et les équations associées sont regroupées dans le Tableau I. 3. X^m représente la composition moyenne dans la matrice, X_{eq}^m est la composition dans la matrice à l'équilibre et X_{eq}^p représente la composition à l'équilibre dans le précipité.

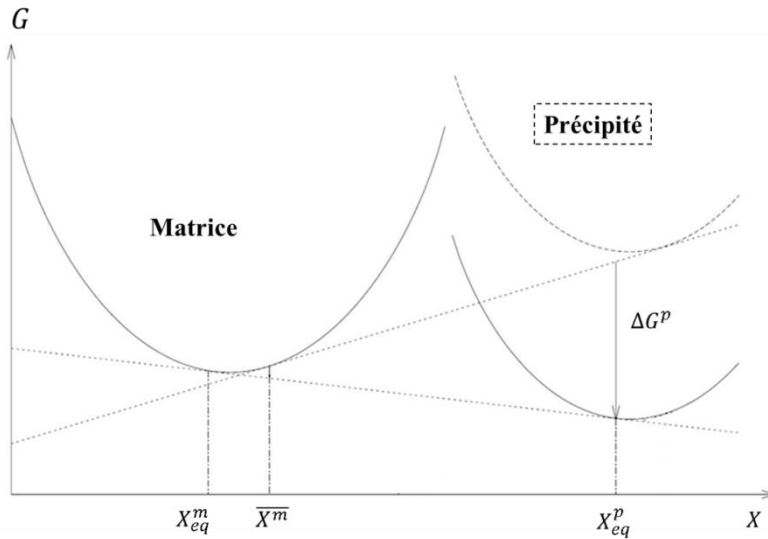


Figure I. 8 : Coupe binaire du diagramme de Gibbs lors de la germination

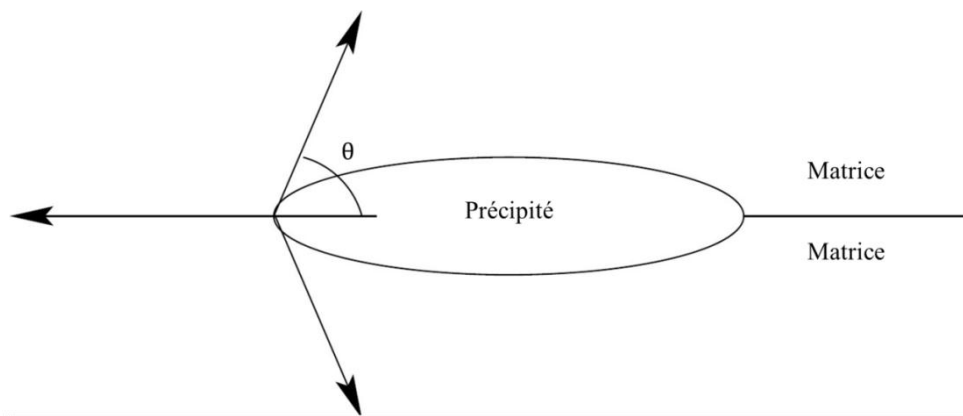


Figure I. 9 : Schéma de principe de l'angle de mouillage.

	Solution idéale diluée	Solution idéale	Solution régulière
Force motrice de germination ΔG^p	$RT \ln \left(\frac{X^m}{X_{eq}^m} \right)$	$RT \ln \left[X_{eq}^p \ln \left(\frac{X^m}{X_{eq}^m} \right) + (1 - X_{eq}^p) \ln \left(\frac{1 - X^m}{1 - X_{eq}^m} \right) \right]$	- Thermocalc

Tableau I. 3 : Equations permettant le calcul de la force motrice de germination en fonction de l'approximation utilisée

Un équilibre thermochimique entre deux phases présentes est défini par les compositions de ces phases, en fonction de la composition moyenne du système. Elle peut également être déterminée, de manière simplifiée, à température donnée, par un produit de solubilité K_{eq} reliant les compositions chimiques des phases entre elles. Il s'exprime ainsi en fonction des compositions à l'équilibre des compositions chimiques atomiques dans les deux phases : matrice ($X_{eq,i}^m$) et précipité ($X_{eq,i}^p$).

$$K_{\acute{e}q} = \prod_{i=1}^n (X_{\acute{e}q,i}^m)^{X_{\acute{e}q,i}^p} \quad \text{Equation I. 6}$$

La précipitation est impactée par le facteur de forme du précipité qui, de par la courbure de l'interface, induit une surpression, ΔP , dans le précipité et dans la matrice. Cette variation de pression est donnée par l'Equation I. 7 et uniquement valable dans le précipité. Elle est fonction de l'énergie interfaciale, $\gamma^{m/p}$, et du rayon de courbure r .

$$\Delta P = \frac{2\gamma^{m/p}}{r} \quad \text{Equation I. 7}$$

L'effet sur la matrice de cette courbure interfaciale, du fait de son volume, peut être négligé, limitant l'effet de courbure au seul précipité. Ce phénomène de variation d'enthalpie libre induit par la courbure interfaciale est appelé effet Gibbs-Thomson. Il modifie l'énergie libre de Gibbs du précipité. L'énergie de Gibbs étant fonction de la pression et du volume, la variation totale s'écrit :

$$\Delta G_{GT} = \Delta P \cdot V_m^p = \frac{2 \cdot V_m^p \cdot \gamma^{m/p}}{r} \quad \text{Equation I. 8}$$

Avec r le rayon de la particule et V_m^p le volume molaire de la particule.

Ce phénomène modifie le produit de solubilité $K_{GT}(T, r)$ selon :

$$K_{GT}(T, r) = K_{eq}(T) \exp\left(\frac{2 \cdot V_m^p \cdot \sigma^{m/p}}{r \cdot R_g \cdot T}\right) \quad \text{Equation I. 9}$$

Avec R_g la constante des gaz parfaits et T la température.

2.2. Choix du type de modèle numérique

Différents modèles de précipitation existent dans la littérature. Les phénomènes de germination, croissance, dissolution et coalescence sont complexes à modéliser de manière simultanée. Les principaux modèles de précipitation existant dans la littérature sont décrits dans cette partie. Leurs avantages et leurs inconvénients sont indiqués et servent à justifier le choix qui est fait dans le cadre de ce travail.

Monte-Carlo

La méthode de Monte Carlo pour simuler les processus de germination/croissance des précipités ne peut être utilisée que pour des faibles volumes (10^6 atomes) : elle est considérée comme étant un modèle atomistique [Kov12, Clo10, Mao12]. Pour pouvoir utiliser cette méthode, il est nécessaire de connaître les énergies d'interactions entre atomes puisque cette donnée permet de déterminer le mouvement de l'atome considéré. Cette méthode est dite probabiliste et sa principale difficulté consiste à modéliser les fréquences de saut et la manière dont elles dépendent de la configuration atomique dans le cas de phénomènes de diffusion. Elle permet également de mettre en évidence l'influence de la diffusion atomique sur la morphologie d'interfaces de précipités, et peut également être couplée à des modèles d'interactions chimiques afin d'évaluer son influence sur la cinétique de précipitation ou de prendre en compte la complexité des chemins cinétiques, c'est-à-dire du mouvement des atomes, notamment quand les éléments de l'alliage ont des coefficients de diffusion très différents.

Contrairement aux modèles mésoscopiques présentés ensuite et faisant l'hypothèse d'une maille cristalline rigide, l'approche de Monte Carlo permet d'avoir une meilleure prise en compte des effets élastiques et de relaxation suivant le chemin cinétique. Néanmoins, ce modèle est très coûteux en temps de calcul et limité à des alliages binaires ou ternaires. De plus, aucune distinction entre les différents régimes de la précipitation, c'est-à-dire germination, croissance et coalescence, n'est prise en considération. En effet, il reste limité à la simulation numérique des processus de précipitation dans des volumes réduits de matière. Il est également à noter que la phase mère et la phase fille doivent être décrites dans la même maille cristalline ce qui induit que les phases modélisées doivent impérativement être cohérentes. Cette méthode ne peut être utilisée telle qu'elle est habituellement décrite dans la littérature dans cette étude [Kov12, Clo10], et, pour cette raison, ne pourra être reprise dans le modèle développé ici.

Dynamique des amas

La méthode des clusters dynamiques ou dynamique des amas permet de décrire d'un point de vue mésoscopique la compétition entre la mobilité atomique et la stabilité

thermodynamique [Clo04, Guy06, Lep09]. Elle permet non seulement de prédire la germination hétérogène mais également de suivre le changement de composition chimique des précipités au cours du temps, comme par exemple dans le cas d'un alliage Al(Zr,Sc). Cette méthode permet de prendre en compte les trois étapes de la précipitation à savoir la germination, la croissance et la coalescence.

Un amas est constitué, dans le cas d'un alliage ordonné, d'une série d'atomes de soluté connectés dans la position de premier voisin par la maille cristalline. Dans le cas contraire, il faut prendre en compte les énergies d'interactions entre premier et second voisins. Dans cette modélisation, le volume considéré correspond à la taille de l'amas. Les hypothèses faites et à vérifier pour ce modèle sont au nombre de deux. La première hypothèse concerne la solution solide qui doit pouvoir être approximée comme étant une solution idéale. La seconde hypothèse porte sur les échanges entre amas qui ne vont prendre en compte que l'adsorption ou la désorption de monomère ou atomes sur l'amas qui sera considéré de forme sphérique.

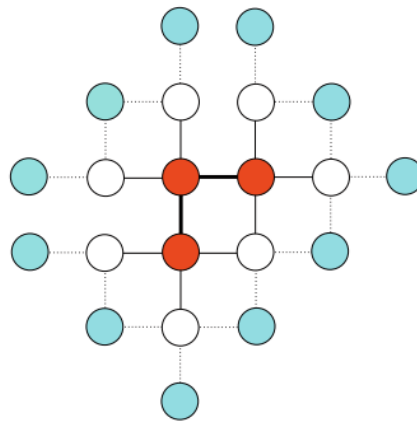


Figure I. 10 : Formation d'un amas avec en rouge le cœur de l'amas, en blanc la première couronne et en bleue la dernière couronne [Lep09]

L'originalité de ce modèle est que la dynamique des amas ne nécessite pas d'avoir des lois explicites pour la germination/croissance/coalescence puisqu'elle dépend de son propre modèle thermodynamique permettant d'évaluer l'énergie libre du système. Cette dernière est définie comme étant la somme de l'énergie libre des amas isolés à l'équilibre thermodynamique et de l'entropie de l'ensemble des amas qui va dépendre de leur répartition dans le système. Les deux variables de ce modèle sont la concentration atomique de chaque classe et la taille de classe qui est égale au nombre d'atomes de solutés dans un amas.

Afin d'utiliser ce modèle, il est nécessaire de définir la vitesse d'adsorption/désorption de monomère/atome sur l'amas en fonction du coefficient de diffusion et de la concentration du soluté dans la matrice ainsi que de la surface disponible pour capturer l'espèce mobile. L'utilisation de ce modèle pour des alliages ayant des concentrations en solutés non négligeables n'est pas envisageable [Guy06, Lep09]. De plus, cette méthode est proche de la méthode de Monte-Carlo dans le sens où elle prend en compte les mouvements d'atomes par

rapport à un amas de manière probabiliste. Le temps de calcul risque de ce fait d'être très élevé par rapport à l'application souhaitée dans cette étude. De plus, il n'y a pas de prise en compte de l'élasticité induite dans la matrice par l'amas formé [Guy06, Lep09].

Johnson-Mehl-Avrami

Il existe également des modélisations des processus de précipitation par des approches globales via les courbes TTT (temps-température-transformation). Dans les alliages d'aluminium, l'étape de germination va dépendre de la diffusion et de la sursaturation en éléments de soluté. L'objectif va donc être de déterminer la position de la courbe en fonction de la température et de la sursaturation. La loi de Johnson-Mehl-Avrami [Avr39, Joh39] peut être utilisée et est considérée comme étant un modèle phénoménologique :

$$y = 1 - \exp(-k(T)t^{p(t)}) \quad \text{Equation I. 10}$$

Avec y la fraction de phase transformée, $p(t)$ le coefficient tenant compte de l'effet transitoire de la germination et k le paramètre dépendant de la température

Cette loi part de l'hypothèse que la croissance est uniforme dans les trois directions de l'espace. Toutefois ce modèle est difficilement adaptable pour des traitements thermiques non isothermes. Des approches additives existent pour le calcul de ces transformations, mais restent imprécises. Comme on l'a vu dans le cas du soudage par FSW, la température imposée va dépendre de la distance du point considéré à l'axe de soudage et elle ne peut être considérée comme un palier isotherme. Il est à noter que cette méthode calcule uniquement la fraction volumique et pas l'échelle et les dimensions de la microstructure transformée, dernier point essentiel afin de comprendre les propriétés mécaniques de la pièce [Esm03]. Comme la précipitation dépend de la température et de l'avancée de la transformation avec un appauvrissement dans la matrice et que le modèle ne prend pas en compte ces éléments, il ne peut être utilisé dans notre cas.

Modèle de classe

Le modèle de classe permet de définir la germination, la croissance et la coalescence de façon simultanée. Il a été développé par Kampman et Wagner [Kam84], repris et amélioré par Myhr et Grong [Myh00]. Robuste et rapide, il a été choisi à de nombreuses reprises pour modéliser l'évolution de la précipitation dans les alliages d'aluminium à durcissement structural. Il est possible de modéliser tant le phénomène de germination que celui de coalescence ce qui dans le cas de la simulation de l'évolution de la précipitation dans un cordon de soudure FSW est primordial. De plus ce modèle permet de tenir compte d'une évolution d'une distribution en taille de particules afin de prédire, ultérieurement, le plus finement possible les propriétés mécaniques. Dans notre cas, ce modèle apparaît idéal pour le

compromis précision et rapidité de calcul [Khan08, Her10, Gal08, Myh01, Myh04, Sim07, Sim12].

Champ de phase

La méthode des champs de phase est basée sur un modèle physique mésoscopique pour nécessiter le moins d'informations initiales nécessaires pour la calibration. L'un des principaux avantages de cette méthode est de pouvoir simuler la totalité de la microstructure pour des systèmes ayant de fortes fractions volumiques et des interactions élastiques entre les précipités cohérents et la matrice. De plus, elle permet de générer la forme et l'équilibre du précipité en prenant en compte la relaxation induite par le précipité. Il est également possible de visualiser des pertes de cohérences entre le précipité et la matrice. L'une des principales difficultés de cette approche est de simuler la germination et la croissance de manière simultanée, comme cela se produit expérimentalement. Ainsi, pour utiliser ce modèle, Simmons *et al.* [Sim00], s'appuie sur une germination aléatoire suivie d'une croissance immédiate du germe créé. Il définit la germination locale en fonction des sursaturations locales de la solution solide et utilisent la théorie de Jonhson-Mehl-Avrami-Kolmogorov. La méthode développée dans cet article se divise en deux algorithmes : un pour la croissance et un suivant le modèle de champ de phase 2D. Toutefois ce modèle ne permet que de traiter la germination homogène et les conditions sont isothermes ce qui, dans le cas d'une soudure ne peut pas être envisagée [Sim00, Jep11].

2.3. Phénomène de germination

Afin de caractériser l'étape de germination, il est nécessaire de définir la force motrice de germination qui est fonction du modèle thermodynamique considéré. Il est possible de connaître cette force via l'utilisation du logiciel de données thermodynamiques Thermocalc. Le rayon critique à partir duquel la croissance du germe va être possible doit également être calculé pour permettre, par la suite, de connaître l'énergie critique de germination. Ces deux paramètres sont décrits par les approches thermodynamiques détaillées précédemment.

La vitesse de germination peut quant à elle, être définie de manière statistique par la théorie classique de germination. Elle est généralement définie par l'équation suivante [Rus70] :

$$J_s^p = Z^p \beta^p (N_{tot}^p - N^p) \exp\left(-\frac{\Delta G^{p,*}}{k_B T}\right) \exp\left(-\frac{\tau^p}{t}\right) \quad \text{Equation I. 11}$$

où N_{tot}^p représente le nombre total de sites de germination et N^p la densité totale de précipités déjà formés. Ainsi le terme $(N_{tot}^p - N^p)$ correspond à la quantité de sites de germination disponibles. Ce terme dépend de deux facteurs : le facteur de Zeldovich Z^p et le facteur de cinétique d'accroche β^p .

Il peut également exister un régime transitoire, expliquant l'introduction d'un temps d'incubation, τ , dans la formule. Il est défini suivant la formule:

$$\tau = \frac{1}{2\beta^p Z^p} \quad \text{Equation I. 12}$$

Le premier facteur, Z , permet de rendre compte de la fluctuation du nombre d'atomes constituant le germe ce qui induit une variation de la taille du germe qui peut être supérieure, R_+^* , ou inférieure R_-^* à la taille du germe critique. Cependant pour un rayon inférieur à R_-^* , le germe va être dissous, tandis que pour un rayon supérieur à R_+^* , le germe va croître. Le schéma de principe est illustré sur la Figure I. 11. Ce facteur se définit suivant l'équation suivante [Zel43]:

$$Z = \sqrt{\frac{-1}{2\pi N_{av} k_B T} \cdot \left(\frac{\partial \Delta G^p}{\partial n} \right)_{R^*}} \quad \text{Equation I. 13}$$

où N_{av} représente le nombre d'Avogadro, k_B la constante de Boltzmann et n le nombre d'atomes constituant le germe.

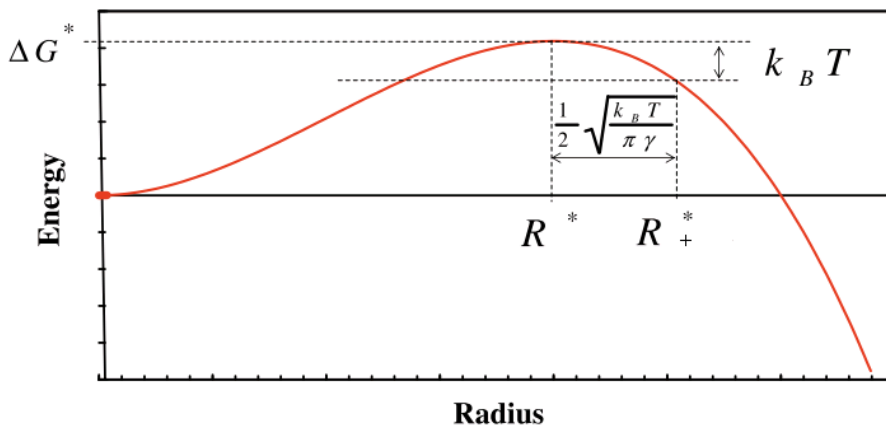


Figure I. 11 : Principe du facteur de Zeldovich [Per09]

Le second facteur, β^p permet de prendre en compte la probabilité d'ancrage d'un atome de soluté sur le germe en considérant les propriétés de diffusion et de composition dans la matrice de chaque espèce chimique. Afin de calculer la vitesse de germination, seul le facteur de cinétique d'accroche minimum va être considéré. En effet, la germination est limitée par l'élément chimique ayant le coefficient de diffusion le plus faible.

$$\beta^p = \frac{S^p}{\lambda^{m^4}} \text{Min}(D_i^m X_i^m) \quad \text{Equation I. 14}$$

Avec S^p la surface du précipité considéré, λ^m la distance inter-atomique dans la matrice, D_i^m le coefficient de diffusion associé à l'élément i dans la matrice m et X_i^m la composition atomique de l'élément i dans la matrice m .

2.4. Phénomène de Croissance/Dissolution

Le régime de croissance ou de dissolution est lié à la sursaturation dans la matrice. Le modèle utilisé doit pouvoir rendre compte de la croissance ou de la dissolution des précipités connaissant les conditions aux limites, c'est-à-dire la concentration de la matrice à l'interface du précipité et la concentration du précipité à l'interface de la matrice ainsi que la concentration à l'infini dans la matrice de l'ensemble des éléments d'alliages. Comme l'interface précipité/matrice doit être à l'équilibre thermodynamique, il est possible de calculer les concentrations à l'interface. Leur connaissance est essentielle pour définir la croissance.

La croissance repose sur la diffusion des espèces chimiques au sein de l'alliage étudié. En se plaçant dans un référentiel lié aux atomes et en négligeant la présence de lacune, la loi de Fick est utilisée [Aar70]:

$$D_i^m \nabla^2 X_i^m = \frac{\partial X_i^m}{\partial t} \quad \text{Equation I. 15}$$

Avec D_i^m le coefficient de diffusion et X_i^m la concentration qui dépend du temps et de la position.

Pour un précipité sphérique et en faisant un bilan pour un élément de soluté donné, la conservation locale du précipité se traduit par l'équation suivante :

$$D_i^m \left[\frac{\partial^2 X_i^m}{\partial r^2} + \frac{2}{r} \frac{\partial X_i^m}{\partial r} \right] = \frac{\partial X_i^m}{\partial t} \quad \text{Equation I. 16}$$

Avec D_i^m le coefficient de diffusion de l'élément i , X_i^m sa composition atomique et r le rayon du précipité. Lorsqu'on travaille avec des précipités planaires, en une dimension, l'équation à résoudre est :

$$D_i^m \left(\frac{\partial^2 X_i^m}{\partial r^2} \right) = \frac{\partial X_i^m}{\partial t} \quad \text{Equation I. 17}$$

Approximations couramment utilisées

La résolution de ces équations peut-être complexe à mettre en place localement, dans le cadre d'une modélisation de la croissance d'une population de précipités à l'échelle mésoscopique. En effet, l'objectif est alors de suivre les cinétiques de croissance de différentes classes de précipités. Trois principales approximations existent. Elles sont

regroupées dans le Tableau I. 4. La dernière ligne du tableau retrace l'utilisation de ces approximations dans la littérature.

Pour pouvoir comparer ces approximations entre elles, il est nécessaire de se référer aux graphiques de Aaron [Aar70] prenant en compte l'évolution de la constante cinétique λ qui définit la vitesse de croissance du précipité en fonction de la sursaturation Ω dans un alliage binaire. Dans le cadre de la germination d'un précipité au temps $t = 0$, la valeur du rayon R d'un précipité prend, au temps t , la valeur:

$$R = \lambda\sqrt{t} \quad \text{Equation I. 18}$$

La sursaturation prend pour expression :

$$\Omega = \frac{X^m - X^{m/p}}{X^p - X^{m/p}} \quad \text{Equation I. 19}$$

où X^m représente la composition dans la matrice, $X^{m/p}$ la composition à l'interface matrice précipité et X^p la composition dans le précipité, considéré de composition uniforme. Les schémas représentatifs sont présentés dans le Chapitre II sur la Figure II-5.

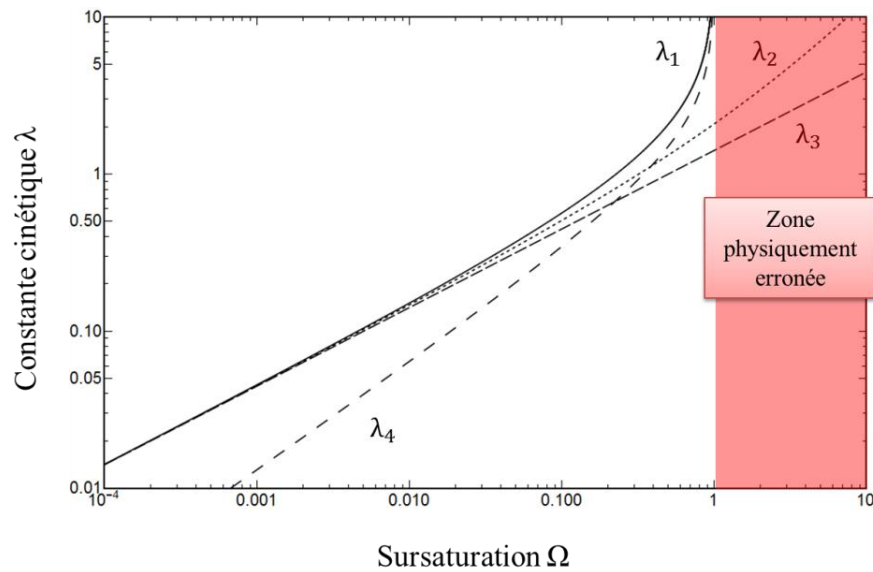


Figure I. 12 : Comparaison des différentes approximations à la solution analytique dans le cas de la croissance d'un précipité sphérique, pour un système binaire

Les constantes cinétiques varient en fonction des approximations utilisées. Afin de définir quelle approximation peut être utilisée dans le cas de croissance étudié, la Figure I. 12 est utilisée. Elle est uniquement valable dans le cas d'un précipité sphérique. De plus les différents axes doivent être interprétés pour chaque élément d'alliage étudié. Comme on peut le voir en fonction de la sursaturation, il va être préférable d'utiliser certaines approximations comme celle de Laplace (λ_3) dans le cas de faible sursaturation ou celle du gradient linéarisé (λ_4) dans le cas de fortes sursaturations. Ces différentes approximations et leurs hypothèses respectives sont présentées dans le Tableau I. 4. L'utilisation d'approximations s'avère

nécessaire notamment dans le cas de la dissolution puisqu'aucune solution analytique exacte n'existe pour déterminer la cinétique de ce processus de dissolution. L'approximation du gradient linéarisé s'avère également trop complexe dans le cas de la dissolution pour la réalisation du calcul. L'approximation de Laplace, représentée par la courbe du paramètre λ_3 permet non seulement une description fiable de la croissance mais également est utilisable en dissolution. Pour ces deux raisons, cette approche a été largement utilisée dans la littérature. Toutefois, afin d'être plus précis pour la description de la cinétique de croissance, la solution d'Aaron sera choisie dans cette étude et comparée à l'approximation de Laplace. Toutefois dans le cas d'un précipité sous forme de plaquette, cette approximation ne peut être utilisée et il sera préférable d'utiliser l'approximation du gradient linéarisé qui est alors définie pour un régime de croissance et de dissolution.

Solution d'Aaron	Approximation quasi-stationnaire	Approximation du champ invariant (Laplace)	Approximationapp (Zener)
Hypothèses	<p>Faible variation de la taille du précipité :</p> $\frac{dr}{dt} \rightarrow 0$ <p>Néglige l'effet du mouvement à l'interface sur le champ de diffusion</p>	<p>Champ de concentration dans la matrice indépendant du temps</p> $\frac{\partial x}{\partial t} = 0$	<p>Champ de concentration linéaire autour du précipité</p> $\frac{\Delta X}{\Delta r} = cste$
Limites	<ul style="list-style-type: none"> ▪ Pas de prise en compte des champs de recouvrement ▪ Impossible de décrire la dissolution dans le cas d'un précipité sphérique 	<ul style="list-style-type: none"> ▪ Uniquement utilisable dans le cas de précipité sphérique ▪ Utilisable pour une sursaturation inférieure à 0,7 	<ul style="list-style-type: none"> ▪ Valable si sursaturation supérieure à 1 pour un précipité sphérique ▪ Ecriture impossible en dissolution pour un précipité sphérique ▪ Excellente approximation dans le cas des précipités non sphériques
λ (sphérique)	λ_1	λ_2	λ_4
Référence			[Gal08,Ser02,Khn08,Her10, Myh01] [Per08 ,Bar14,Per09,Kam06, Zen49]

Tableau I. 4 : Les différentes approximations usuelles utilisées pour la prédiction de l'évolution de la précipitation au cours du temps

Application à des alliages multicomposés

Les approches précédentes ont été définies dans le cas d'un alliage binaire et doivent donc être étendues à un alliage multicomposé. Dans ce cas, la cinétique de croissance propre à une espèce chimique peut être définie, en utilisant l'une des approximations précédemment décrite. Cela conduit à définir une vitesse de croissance propre à une espèce donnée à partir des bilans à l'interface précipité/matrice. Cependant la vitesse calculée doit être identique quel que soit l'élément de soluté. Le système d'équation posé reliant les compositions d'une espèce chimique i , doit ainsi aboutir à l'expression d'une vitesse de croissance v_i (ou d'un rayon, ce qui est équivalent) commune à toutes les espèces :

$$v_1 = v_2 = \dots = v_n \quad \text{Equation I. 20}$$

La cinétique de croissance ou dissolution va être limitée par l'élément diffusant le moins rapidement ou celui en plus faible quantité. Dans le cas de l'approximation de Laplace, plusieurs études font l'hypothèse d'une solution quasi-binaire et ne considère donc qu'un seul élément pour résoudre ce système. D'autres modèles sont actuellement développés pour définir le point de fonctionnement à l'interface à partir de données thermodynamiques précises. Par exemple, Chen [Che08] étend le modèle exact à la diffusion croisée en introduisant un critère de diffusion effective. Néanmoins, dans son article, seul le phénomène de croissance est étudié et la dissolution ne semble pas pouvoir être modélisée. Rougier [Rou14] a repris ce modèle et l'a utilisé pour décrire un régime de coalescence. Néanmoins, si les évolutions globales des rayons semblent correctes, le modèle semble donner des résultats mathématiques physiquement erronés. L'approche de Serrière [Ser02] sera utilisée pour la suite de cette étude comme élément de comparaison permettant d'observer l'apport de la solution d'Aaron sur l'approche de Laplace dans le cas des cinétiques de croissance des précipités. Néanmoins, seule l'approche de Laplace sera utilisée pour définir les cinétiques de dissolution des précipités.

Evolution des distributions de particules

Pour décrire le plus précisément possible l'évolution de la précipitation, il est possible de discrétiser en taille de particules une population de précipité. La population de précipités est approximée sous la forme d'une loi de distribution discrétisée et fonction de la taille des précipités considérés. Pour cela, dans chaque classe de rayon r_i , un nombre de précipités est défini.

Deux méthodes principales existent pour tenir compte de l'évolution de distribution de particules : l'approche eulérienne considère un maillage fixe, l'approche lagrangienne considère un maillage évoluant avec la formation des germes.

L'approche eulérienne, utilisée par Myhr *et al.* [Myh01], Serrière [Ser02], den Ouden [Den13] et Robson [Rob03] considère un maillage fixe. Son principe est schématisé sur la Figure I. 13. Les précipités en croissance vont être amenés à passer dans la classe

supérieure. L'équation de conservation du nombre de particules est alors intégrée dans le temps et l'espace et les particules sont transportés à travers les différentes classes au cours de leur croissance. Généralement [Myh00, Ser04, Gal08], la résolution du système obtenu est effectuée par la méthode TDMA (Tri Diagonal Matrix Algorithm). Néanmoins, cette méthode peut induire un étalement de la distribution lié à une diffusion purement numérique de la population de précipité lors du calcul. La méthode de résolution de Robson via l'utilisation d'un schéma de Runge-Kutta du troisième ordre [Rob03] permet de limiter ce phénomène et de garantir une précision minimale de 0,1 nm à chaque pas de temps.

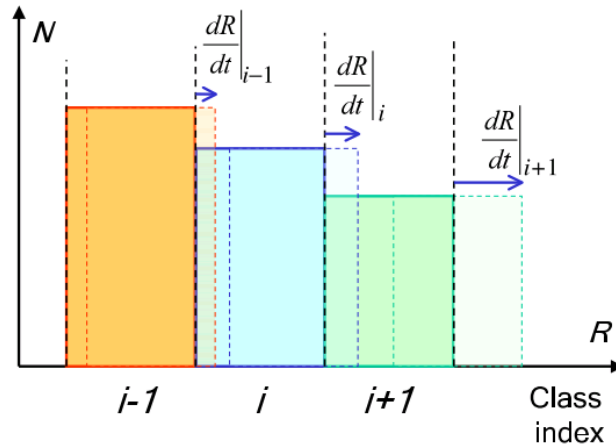


Figure I. 13 : Evolution de la distribution de précipités dans le cas d'une approche eulérienne [Per08]

La seconde approche développée plus récemment par Rougier [Rou14] et Perez [Per08] permet de germer une certaine quantité de précipités avec un rayon bien défini. Elle s'apparente à une approche Lagrangienne. Le schéma de principe est présenté sur la Figure I. 14. A chaque pas de temps, une nouvelle classe est formée contenant les nouveaux germes et les nouveaux rayons des précipités de toutes les autres classes vont être recalculés. La quantité de particules présentes dans une classe reste constante au cours du temps. Des optimisations sur le nombre de classes, les distances entre classes, l'apparition de nouvelles classes sont couramment utilisées afin de garder un nombre correct de classes. Perez [Per08] propose notamment une optimisation du pas de temps pour trouver un compromis entre le nombre de classe trop élevé dus à un pas de temps trop court et les instabilités numériques liées à un pas de temps trop long.

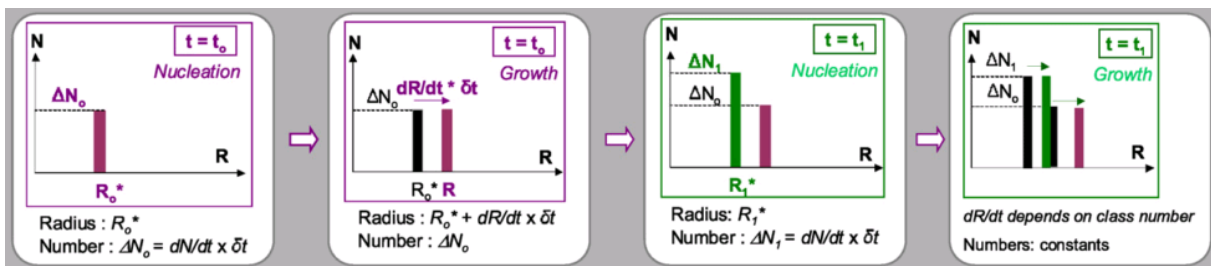


Figure I. 14 : Evolution de la distribution de particules dans le cas d'une approche Lagrangienne [Per08]

Une comparaison [Per08] entre les résultats fournis par ces deux approches a été réalisée dans un cas simple de traitement thermique de réversion à 950 °C d'un alliage Fe-0,5% pds C – 0,2% pds V et pour une distribution initiale de précipité de type log-normale définie par des observations expérimentales. Ces résultats sont présentés sur la Figure I. 15 et permettent de comparer les deux méthodes en termes d'évolution du rayon moyen et de densité totale de particules. Initialement, une distribution en taille de particules a été fixée identique pour chaque approche (Figure I. 15-a). L'évolution du rayon des précipités (Figure I. 15-b) et de la densité de particules (Figure I. 15-c) en fonction du temps de maintien à 900°C a été étudiée. Les deux approches donnent des résultats identiques. L'avantage de l'approche eulérienne repose sur l'utilisation de pas de temps constants ne nécessitant pas d'optimisation du maillage lors du régime de coalescence.

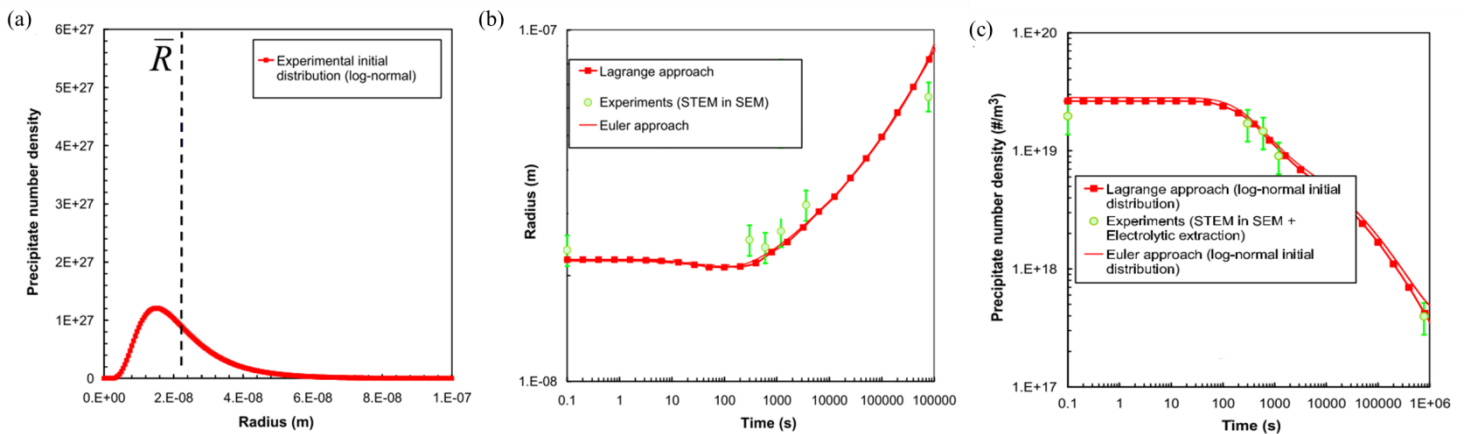


Figure I. 15 : Comparaison entre approche eulérienne et lagrangienne [Per08] (a) Distribution de particules initiale dans le système, (b) Evolution du rayon moyen, (c) Evolution de la densité de particules

2.5. Phénomène de coalescence

La coalescence ou maturation d'Ostwald se produit lorsque l'équilibre thermodynamique est atteint, c'est-à-dire quand il n'y a plus de force motrice pour développer le processus de germination. Parallèlement, la sursaturation étant très faible, la croissance est limitée. L'effet Gibbs-Thomson va permettre la dissolution du précipité dans le volume de la matrice. Ce phénomène est représenté sur la Figure I. 16. La composition d'équilibre à l'interface va être affectée par l'effet de courbure. Ainsi la composition interfaciale du précipité le plus petit, le précipité (2), est supérieure à celle du précipité (1), de plus grande dimension ($R^{p2} > R^{p1}$). Ainsi, un gradient de concentration apparait entre les précipités et induit un flux de diffusion des petits précipités vers les précipités de plus grande taille. Ceci conduit également à une minimisation de l'énergie totale du système, la surface globale correspondant à l'interface matrice/précipité étant réduite. Le gain d'énergie de Gibbs due à la courbure (positive) diminue au bénéfice de l'énergie de Gibbs volumique (négative).

Cette dissolution se caractérise d'un point de vue expérimental par une fraction volumique constante et une augmentation significative du rayon moyen. La théorie de Lifshitz, Slyozov et Wagner (LSW) [Lif61, Wag61] est à la base de la description analytique du phénomène.

Les hypothèses initiales du modèle sont d'avoir, soit un système très dilué, soit une fraction volumique de précipité tendant vers 0 mais constante au cours du temps. Les particules doivent être sphériques et la vitesse, dans cette approche théorique, est calculée selon l'approximation de Laplace, ce qui peut être justifié au regard des faibles sursaturations ou des faibles vitesses en jeu. L'expression analytique permet de mettre en évidence une dépendance temporelle du rayon moyen en $t^{1/3}$ et de la densité de particules en $t^{-1/2}$. Elle a par la suite été étendue à des alliages multi composés et des précipités non sphériques [Myh01, Ser02, Bar15].

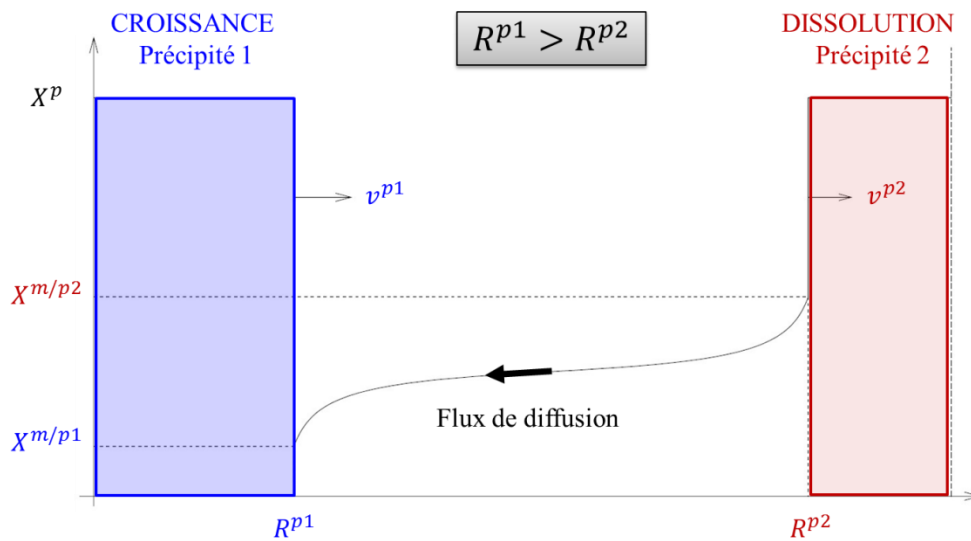


Figure I. 16 : Phénomène de coalescence : Dissolution d'un petit précipité (P2) au profit d'un précipité de taille plus grande (P1) [Ser02]

3. Lien microstructure-propriétés mécaniques

La précipitation va induire des variations de volume et générer ainsi des microcontraintes internes. Ainsi, elle influence la limite d'élasticité, la plasticité et l'endommagement du matériau (propriétés en fatigue, ténacité). Dans le cas présent, seule son influence sur la limite d'élasticité sera détaillée. Elle est définie comme la contrainte seuil nécessaire à l'écoulement irréversible des dislocations. Cette dernière peut être multipliée par un facteur 4 en présence de précipités mais elle dépend également de plusieurs facteurs tels que la solution solide, la quantité initiale de dislocations présentes, les contraintes internes du réseau et effets de texture. Deux approches existent pour comprendre ces phénomènes : une approche mécanique basée sur la résistance à l'échelle d'un grain ou d'un précipité au passage des dislocations et une approche physique fondée sur la nature des obstacles. Cette dernière approche sera utilisée dans cette étude puisqu'elle est plus complète et permet de mieux appréhender différents phénomènes physiques. Nous allons décrire ici les principaux mécanismes expliquant les évolutions des propriétés mécaniques des matériaux métalliques lors des processus de précipitation.

3.1. Durcissement par solution solide

Les processus de précipitations engendrent une évolution de la composition moyenne en élément d'alliages des différentes phases solides, et notamment de la matrice. La présence d'atomes en solution solide perturbe le mouvement des dislocations via trois mécanismes majeurs : l'effet de taille, l'effet d'ordre à courte distance et l'effet de module. Le premier est lié à la variation du paramètre de maille de la matrice dû à la présence d'atomes étrangers. Le second résulte de la destruction des effets d'ordre lors du passage d'une dislocation. La différence entre les constantes d'élasticités du soluté et du solvant est à l'origine du troisième effet. Ces trois effets vont générer des distorsions élastiques qui vont s'opposer au mouvement des dislocations [Dub12].

3.2. Contribution des précipités

Cette contribution est, naturellement, la plus importante dans l'évolution des propriétés mécaniques du matériau lors du processus de précipitation, elle résulte de l'interaction dislocation-précipité via l'effet de module, l'effet d'ordre, les fautes d'empilement, les effets de cohérence liés au champ élastique autour du précipité qui va attirer ou repousser les dislocations et les effets chimiques liés à la formation d'une nouvelle interface. Pour déterminer son impact sur la dureté, et plus généralement sur les propriétés mécaniques,, il va être nécessaire de définir la force résultant de cette interaction.

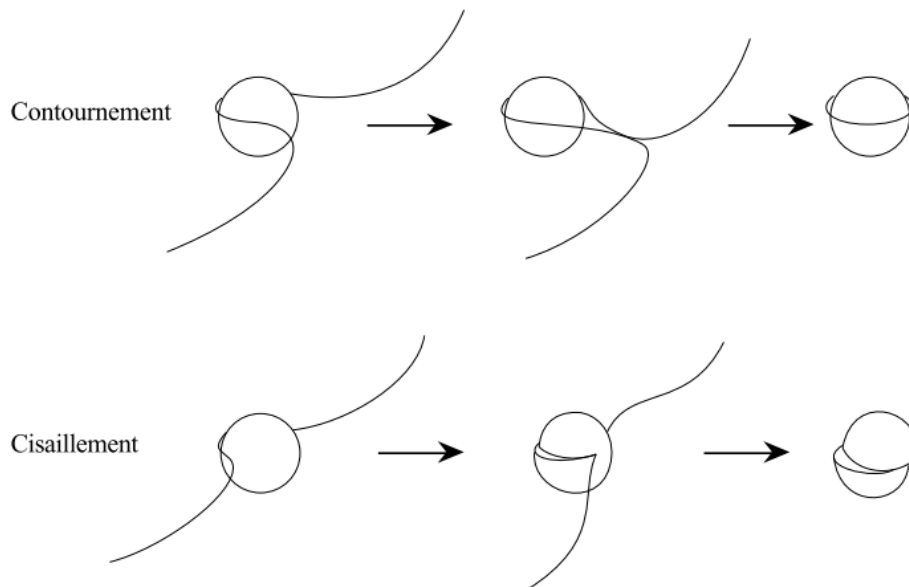


Figure I. 17 : Mécanismes de franchissement d'un précipité par une dislocation [Gen04]

Deux mécanismes de franchissement des précipités par les dislocations existent : le cisaillement ou le contournement. Ils sont illustrés par la Figure I. 17.

Contournement

Lorsque le précipité est incohérent ou de taille trop importante, la dislocation ne peut plus cisailer le précipité et il va alors être contourné. Le mécanisme d'Orowan permet de décrire ce phénomène [Dub12]. La dislocation évite par contournement le précipité en restant dans son propre plan de glissement. Cependant, il a été très peu observé dans les alliages d'aluminium où il se produit un contournement par glissement dévié donnant lieu à la formation de crans sur la ligne de dislocation [Dub12]. De plus, des débris vont être générés jouant par la suite également le rôle d'obstacle au mouvement des dislocations. Ce phénomène se traduit par l'équation suivante :

$$\sigma_{cont} = 0,6\mu Mb \frac{\sqrt{g}}{r} \quad \text{Equation I. 21}$$

avec μ le module de cisaillement, M le coefficient de Taylor, b le vecteur de burgers, g et r la fraction volumique et le rayon de la particule.

Cisaillement

Ce phénomène se produit si le précipité est cohérent avec la matrice et si la dislocation glisse de manière continue entre la matrice et le précipité. C'est un phénomène à courte distance [Dub12]. La force requise pour que ce phénomène se produise est difficile à exprimer car elle doit prendre en compte la répartition des particules et la raideur de ligne de dislocations. Ainsi, il va être considéré que la force d'obstacle est proportionnelle au rayon du précipité.

Elle s'exprime ainsi selon l'équation suivante :

$$\sigma_{cis} = 0,7\mu M \alpha^{3/2} \sqrt{\frac{gr}{b}} \quad \text{Equation I. 22}$$

avec α la constante de cisaillement.

3.3. Contributions diverses

D'autres contributions existent et sont, suivant les modèles, généralement négligées. Néanmoins, lors du procédé FSW, la taille de grain et la densité de dislocation vont varier au sein du cordon de soudure. L'écroutissage se traduit par une présence de dislocation qui va affecter la limite d'élasticité. Ce paramètre est pris en compte par Kamp [Kam06] et se traduit par l'équation suivante :

$$\sigma_D = K\mu Mb \sqrt{\rho_D} \quad \text{Equation I. 23}$$

avec K une constante de proportionnalité, à estimer selon le matériau, M le facteur de Taylor et ρ_D la densité de dislocations stockées.

La loi d'Hall-Petch permet de prendre en compte l'influence de la taille des grains. En effet, plus ceux-ci auront une taille faible et plus le déplacement des dislocations sera limité. Dans ce cas, les joints de grains jouent le rôle d'obstacles au mouvement des dislocations. Ce phénomène est pris en compte par Genevois [Gen04] dans son travail de modélisation du procédé FSW. Il est défini par l'équation suivante :

$$\sigma_{HP} = \sigma_0 + K_{HP} \frac{1}{\sqrt{D}} \quad \text{Equation I. 24}$$

avec σ_0 limite d'élasticité du matériau initial, K_{HP} une constante à ajuster et D le diamètre moyen des grains.

3.4. Lois de mélange

Plusieurs contributions décrites précédemment existent habituellement pour faire évoluer les propriétés mécaniques du matériau et il va être nécessaire de les additionner afin de déterminer la limite d'élasticité finale du matériau. Dans le cas où deux obstacles différent de plus d'un ordre de grandeur comme par exemple la contribution de la solution solide et celle de la précipitation, une addition simple permettra de tenir compte de ces contributions. Toutefois, dans le cas de deux types d'obstacles différents ayant une contribution du même ordre de grandeur mais ayant une densité fortement différente dans le matériau, c'est-à-dire qu'un des deux obstacles a une quantité par volume plus importante que l'autre, l'addition au carré sera utilisée [Gen04].

En considérant que deux natures de précipités P1 et P2 existent, il est possible de définir deux contributions mécaniques, σ^{p1} et σ^{p2} , qui sont calculés, connaissant leur rayon moyen et leur fraction volumique, en se référant aux équations du cisaillement et du contournement. Ces deux natures de précipités peuvent avoir une densité différente au sein du matériau, mais des contributions du même ordre de grandeur, ainsi elles seront additionnées au carré. En prenant en compte l'effet Hall-Petch, l'influence de la solution solide, la présence des deux précipités de nature chimique différentes et la contribution des dislocations, la loi de mélange s'écrit, dans le cas d'un alliage d'aluminium généralement ainsi [Gen04]:

$$\sigma_y = \sigma_{HP} + \sigma_{SS} + \sqrt{\sigma^{p1^2} + \sigma^{p2^2} + \sigma_D^2} \quad \text{Equation I. 25}$$

4. Application à l'alliage AA2024

L'alliage AA2024 est un alliage d'aluminium de la série 2xxx riche en cuivre et magnésium [Stu11]. Les compositions exactes sont définies dans le Chapitre II. Sa bonne résistance mécanique et son bon comportement en fatigue lui permettent d'être utilisé dans les structures d'avions. Plusieurs types d'hétérogénéités composent cet alliage : les intermétalliques, les dispersoïdes et les précipités durcissant de taille nanométrique.

4.1. Intermétalliques

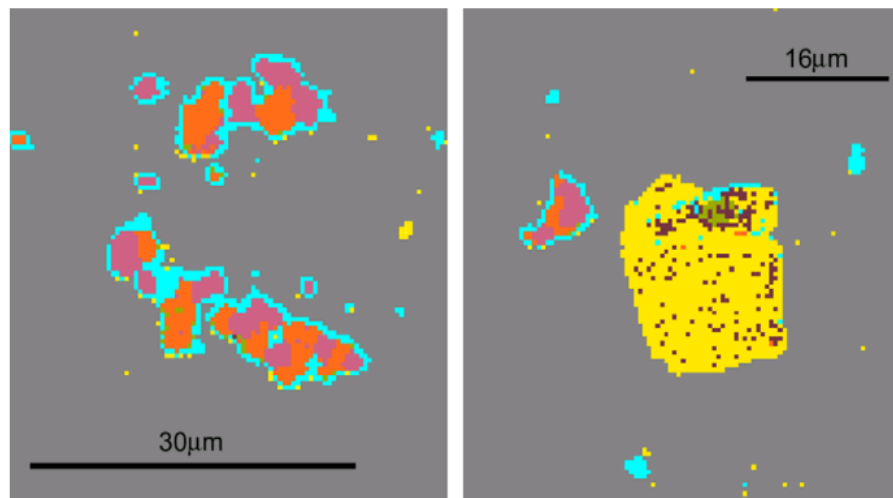


Figure I. 18 : Les deux principaux types d'intermétalliques
(Matrice en gris, Al_2CuMg en mauve, Al_2Cu en orange, $\text{Al}_{20}(\text{Cu,Fe,Mn})_5\text{Si}$ en jaune, $\text{Al}_3(\text{Cu,Fe,Mn})$ en marron, $\text{Al}_7\text{Cu}_2\text{Fe}$ en vert et en bleu des phases non identifiées) [Boa09]

Les intermétalliques sont de taille micrométrique, et se forment lors de la solidification. Ils sont alignés dans la direction de laminage et peuvent servir de site pour la précipitation hétérogène [Dub12]. L'étude de ces intermétalliques a été réalisée via l'utilisation de la microsonde de Castaing permettant l'identification par diffraction des rayons X des phases [Boa09]. Deux types d'intermétalliques existent essentiellement dans les alliages 2024 étudiés dans ce projet (Figure I. 18). Les premiers types d'intermétalliques sont des amas d' Al_2CuMg (mauve) et d' Al_2Cu (orange) entourés de phases en périphérie (bleue) non identifiées dans l'étude menée [Boa09].

Le second type a une nature chimique plus complexe à déterminer. Genevois considère que ce sont des $\text{Al}_6(\text{Cu,Fe,Mn})$ tandis que Boag *et al.* [Boa09] améliorent leur définition. On retrouve ainsi une phase majoritaire de nature $\text{Al}_{20}(\text{Cu,Fe,Mn})_5\text{Si}$ contenant des sous-phases $\text{Al}_3(\text{Cu,Fe,Mn})$ en marron et $\text{Al}_7\text{Cu}_2\text{Fe}$ en vert (Figure I. 18).

4.2. Dispersoïdes

Les dispersoïdes ont une taille de 10 à 100 nm et sont incohérents avec la matrice. Ils sont riches en manganèse et en cuivre [Gen04] et sont présentés sur la Figure I. 19.

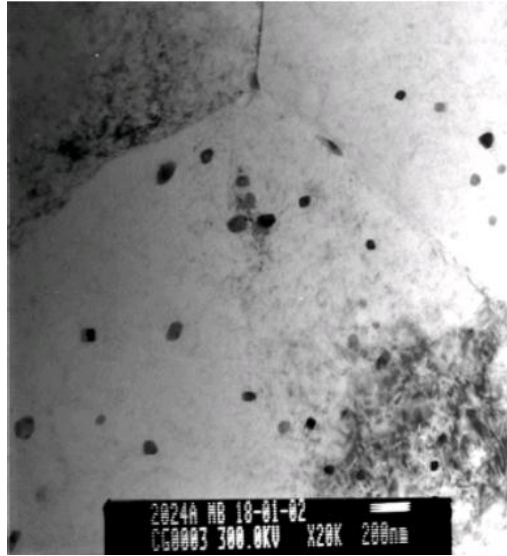


Figure I. 19 : Observation MET de dispersoïdes riches en Cu et Mn [Gen04]

4.3. Séquence de précipitation

En fonction de la composition chimique de l'alliage, la nature des précipités durcissant varie comme l'illustre la Figure I. 20. Celui-ci présente un diagramme de l'évolution des phases présentes sur un système ternaire Aluminium-Cuivre-Magnésium, selon la composition des deux éléments d'addition, à 200 °C. Il a été réalisé avec le logiciel Thermocalc. Dans un alliage AA2024, en se restreignant dans cette présentation aux seuls éléments Cuivre et Magnésium, un diagramme de phase isotherme peut être tracé et la zone permettant de définir les phases en présence est représentée en vert sur la Figure I. 20. Deux bornes pour chaque élément sont définies. Elles correspondent respectivement à la composition nominale maximale et minimale contenue dans les normes [Asn11]. Ainsi, une zone de travail apparaît clairement et permet de définir la nature des phases étudiées soit dans ce cas la matrice α , les phases $S(Al_2CuMg)$ et $\theta(Al_2Cu)$. Néanmoins, sur ce type de graphique, il est impossible de connaître l'évolution des phases métastables.

L'utilisation de la DSC (Calorimétrie différentielle à balayage) permet de définir plus précisément les transitions caractéristiques de la précipitation soit la dissolution (pic endothermique) ou la croissance (pic exothermique). Cette technique a été appliquée à un alliage AA2024-T351 avec une vitesse de chauffe de 50°C/min [Gen04]. Il est représenté sur la Figure I. 21.

L'alliage AA2024 dans un état T351 a été homogénéisé à haute température (495°C) puis trempé, détensionné et enfin laissé à l'ambiante pour qu'une maturation se produise. Un alliage AA2024 dans un état T3, c'est-à-dire qu'il n'a pas été détensionné, diffère du premier de par la densité initiale de dislocation. Deux phénomènes sont clairement visibles sur la figure I.19: une dissolution (pic A) vers 250 °C, associé à la dissolution des zones de Guinier-

Preston et une précipitation (pic B) vers 300 °C, liée à la formation de la phase S. Via cette technique, il est possible de mettre en évidence la présence des zones GPB, qui n'apparaissent pas sur l'observation en MET (Figure I. 19) où seuls les dispersoïdes sont visibles.

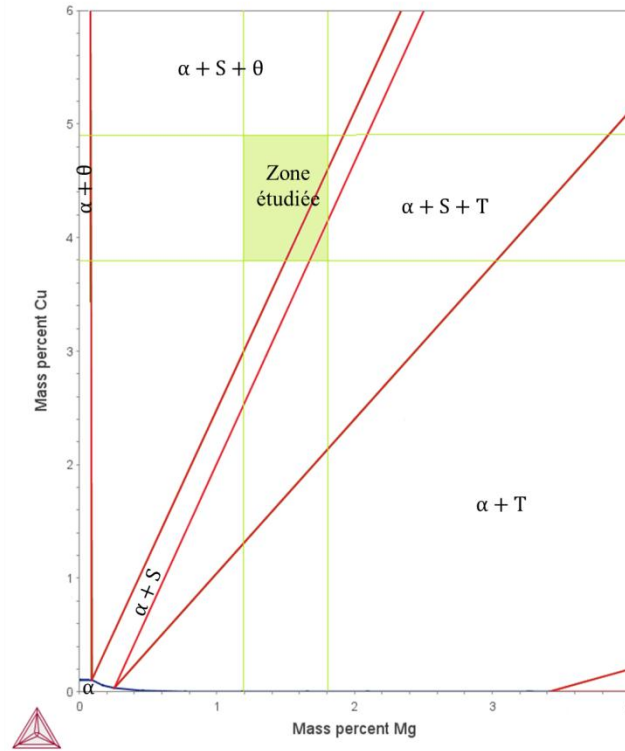


Figure I. 20 : Diagramme de phase d'un alliage ternaire AlCuMg à 200°C [Ther01]

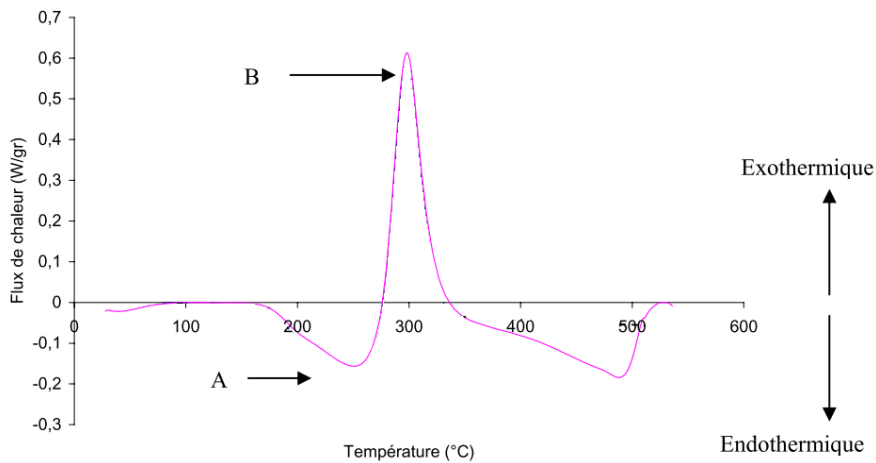


Figure I. 21 : Signal DSC d'un alliage AA2024 dans un état T351 [Gen04]

Dans la littérature, un débat porte sur la séquence de précipitation dans le AA2024 avec six phases évoquées (co-cluster, GPBI, GPBII, S'', S', S) alors que seule deux apparaissent

dans les analyses DSC, comme interprété pour la Figure I.19. Les débats portent sur la taille de maille, l'ordre de précipitation et la possibilité d'observer les phases énoncées.

Co-cluster ou GPB ?

Starink *et al.* [Sta04] préfèrent considérer la présence de co-cluster plutôt que de parler de zones de Guinier-Preston. La formation de dimère Mg-Cu dans un alliage ternaire Al-Cu-Mg qui peuvent être seuls ou s'assembler entre eux est représentée sur la Figure I. 22. L'influence du cisaillement au passage d'une dislocation sur leur présence y est également schématisée. Au vu de leur taille (0,2 nm), les dimères sont cisailés tout comme la matrice. Cela induit soit leur conservation (Figure I. 22-a), soit leur disparition (Figure I. 22-b), soit leur formation (Figure I. 22-c).

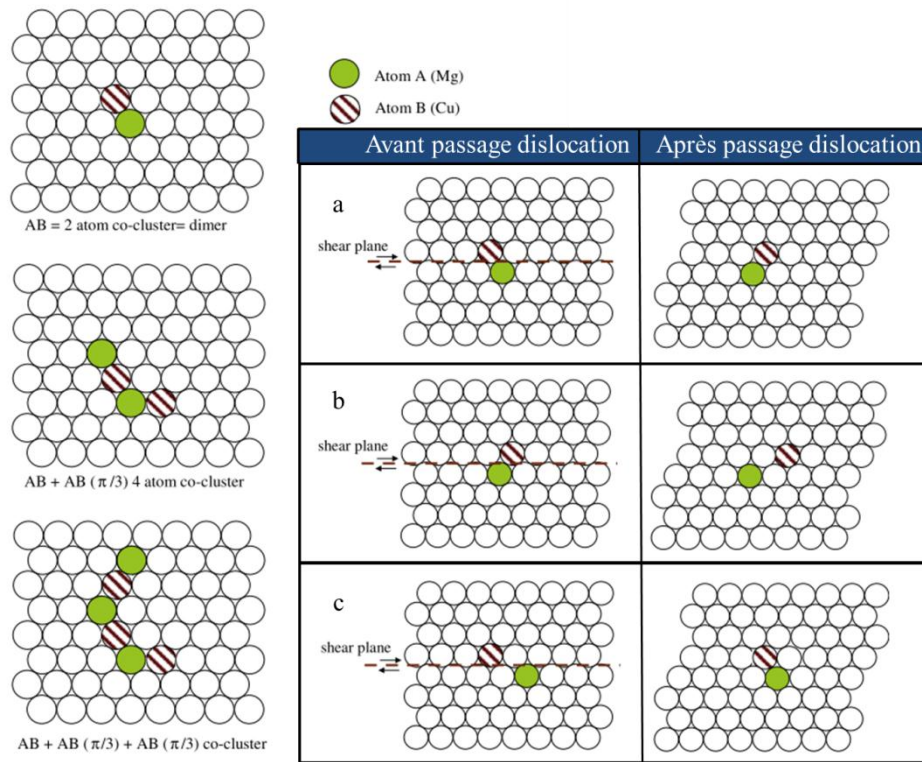


Figure I. 22 : Exemples d'association des atomes de Magnésium et Cuivre dans un alliage ternaire Al-Cu-Mg et influence du passage des dislocations sur un dimère [Sta09]

Starink *et al.* [Sta09] expliquent le phénomène de durcissement structural par l'utilisation de dimères pouvant s'assembler entre eux. Ils ont développé un modèle permettant de définir leur formation et d'en déduire les propriétés mécaniques. Le choix du modèle de précipitation utilisé pour la simulation de ces phases métastables ressemble fortement à une approche selon une approximation pseudo-binaire pour une solution idéale diluée. Afin d'en déduire les propriétés mécaniques, l'influence de la présence de dislocation et l'impact de la composition chimique du dimère sont pris en compte. Ce module mécanique ne pourra être considéré par la suite de cette étude car il se place à une échelle trop petite. Toutefois, une analyse DSC et des essais de dureté sont utilisées pour valider cette étude et le principe peut être applicable

dans notre démarche. Toutefois, aucune observation avec une forte résolution n'est utilisée dans le cas de l'étude de Starink pour valider cette approche.

Kovarik *et al.* [Kov08] ont observé en HAADF STEM (imagerie par diffusion incohérente en microscopie électronique en transmission et balayage) les structures formées au sein d'un alliage d'aluminium de la série 2xxx. Ils considèrent que les zones de Guinier-Preston sont bien observées et qu'elles se décomposent en unités structurales. Elles sont représentées par des cercles sur la Figure I. 23. Sur la Figure I. 23-a, des paires de triangles dans différentes orientations constituent les unités structurales tandis que sur la Figure I. 23-b ce sont des assemblages de plusieurs unités structurales. Ces deux GPB différents mettent en évidence deux formes de structure différentes.

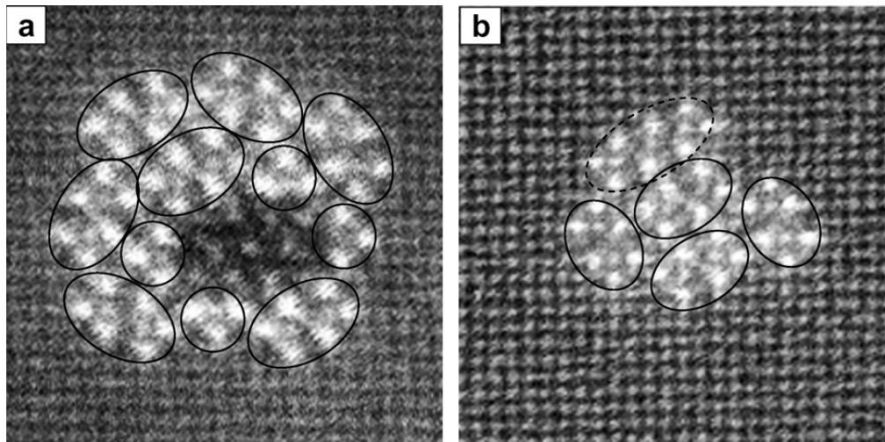


Figure I. 23 : Observation en STEM-HAADF des structures GPB dans un alliage d'aluminium Al-1Cu-3Mg (%wt) [Kov08]

Si deux noms différents sont employés pour décrire la phase responsable du durcissement structural lors de la maturation ambiante, les mêmes mécanismes physiques sont évoqués. La différence porte sur la taille finale des amas pour les alliages 2024. Kovarik *et al.* [Kov08] estiment qu'ils ont une forme de plaquette et un diamètre compris entre 1 et 2 nm pour une longueur de 4 à 8 nm.

Présence de GPBII ou S''

Le doute persiste quant à l'existence d'une phase GPBII ou S''. Kovarik *et al.* [Kov08] observent une structure type core-shell qu'ils interprètent comme la présence d'un cœur constitué de GPBI et d'une enveloppe GPBII (Figure I. 23-a). L'alliage étudié dans ce cas est, cependant, très riche en magnésium par rapport au cuivre et ne correspond pas à l'alliage AA2024 étudié ici. Au niveau du signal DSC, aucune autre phase ne semble être détectable (Figure I. 21). Chen *et al.* [Che14] considèrent que ces deux phases n'existent pas et n'arrivent pas à les observer expérimentalement. Beaucoup d'auteurs [Dum06, Feu12, Gen05, Her10, Kha08, Pee03] ignorent leur présence et dans la suite de ce travail, elles ne seront pas considérées.

S' et S' ?

Beaucoup d'auteurs [Bas06, Feu45, Pee03, Per08] considèrent que la phase S' est une version légèrement distordue de la phase S. La transition entre ces deux mailles cristallines légèrement différente induirait une perte de cohérence entre la matrice et le précipité. Ce changement peut également se traduire par une transition entre cisaillement et contournement par les dislocations. Ces deux phases ont une maille orthorhombique et une composition chimique stœchiométrique Al_2CuMg . Par la suite, on considère que les phases S et S' ne sont qu'une seule phase que l'on appellera phase S. Cette phase se présente sous forme de bâtonnets qui ont une épaisseur comprise entre 8 et 62 nm [Gen04] dans le cadre d'une soudure FSW. Pour Hersent et Khan, un facteur d'élongation constant existe. Cependant, Genevois [Gen06] met en évidence l'influence de la déformation initiale du matériau avant un traitement thermique sur la morphologie de la phase S (Figure I. 24). Ainsi, il peut être déduit que ce paramètre n'est pas constant au sein du cordon de soudure. En effet, la présence de dislocations va augmenter le nombre de sites de germination, favoriser des courts-circuits de diffusion et ainsi augmenter la cinétique de croissance ou la probabilité d'ancrage d'un germe. La recristallisation va diminuer le nombre de sites de germination et donc limiter la présence de précipités.

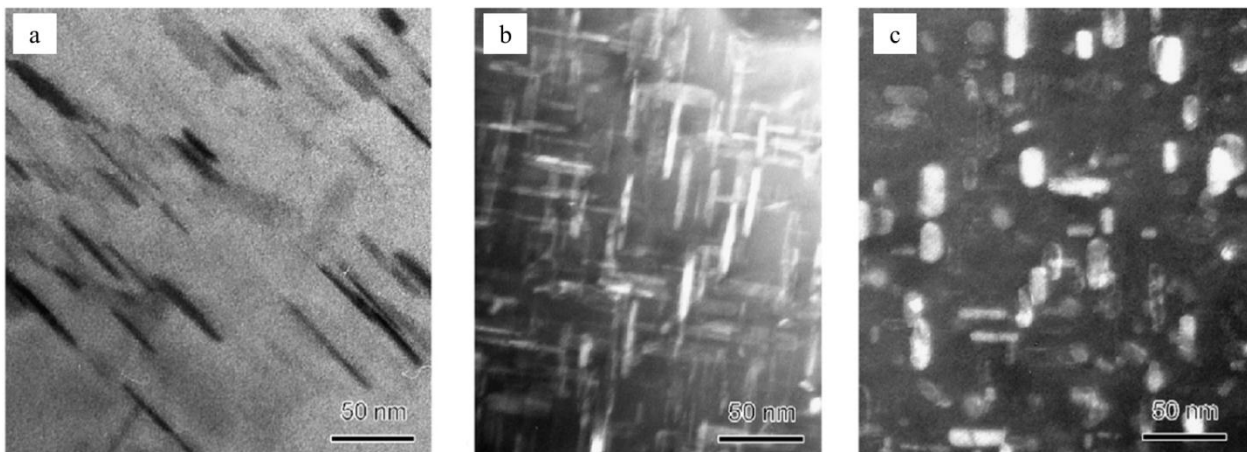


Figure I. 24 : Observation en MET pour des traitements thermo-mécaniques réalisés à 300°C et en fonction du taux de déformation (a) 0% (b) 10% (c) 50% [Gen06]

La déformation plastique d'un matériau génère la mise en concurrence de différents phénomènes physiques. Par exemple, la diffusion va être augmentée grâce à une présence de défauts de réseau plus importante ce qui favorise la précipitation qui peut bloquer les phénomènes de recristallisation ou restauration. Toutefois, la déformation induit une interaction précipité/dislocation qui peut déstabiliser les précipités. Genevois [Gen06] observe qu'au-dessus d'une certaine température (300°C), la déformation a peu d'influence sur la cinétique de précipitation mais modifie la morphologie de la phase S (Figure I. 24). En dessous de cette température, la cinétique de précipitation est fortement modifiée. Cette étude démontre l'importance de la prise en compte de la déformation pour la compréhension des propriétés mécaniques finales d'un joint soudé en FSW.

Evolution de la précipitation dans un cordon de soudure FSW

L'évolution de la précipitation dans un cordon FSW en AA2024 a été étudiée en détail dans la thèse de Genevois [Gen04] à l'aide d'observation en MET, d'analyses en DSC et de diffraction en SAXS. Cette étude a permis la mise au point de techniques expérimentales ainsi que la description fine des interactions entre déformation mécanique et évolution thermique. Elle a permis une meilleure compréhension du rôle des précipités et de leur nature sur les propriétés durcissantes. Cette étude a été menée pour des états initiaux différents : un alliage traité en T6 où la phase S durcissante est initialement présente dans sa quantité maximale, la dissolution des précipités durcissants gouverne les propriétés mécaniques. Dans la ZATM, leur dissolution est maximale et les propriétés sont les plus faibles. Par contre dans le cas d'un alliage AA2024 à l'état T3, seules les zones GPB sont initialement présentes. Elles vont pouvoir se dissoudre mais la forte augmentation des propriétés mécaniques est liée à la précipitation durcissant de phase S fine qui va durcir le matériau.

4.4. Modélisations existantes

Deux principaux modèles [Her10, Khs08] basés sur l'approche de Kampman et Wagner [Kam84] existent pour suivre l'évolution de l'état de précipitation suite à un traitement de soudage. La séquence de précipitation utilisée est :



Ces deux modèles utilisent deux types de modèles thermodynamiques pour calculer d'une part l'évolution des GPB/co-cluster et d'autre part la précipitation de la phase S.

Pour les premiers, seule la fraction volumique transformée est calculée :

$$g_{cl} = \frac{\bar{X}_i - X_{i,eq}^{cl}}{X_i^{cl}} \quad \text{Equation I. 26}$$

Avec g_{cl} la fraction volumique de co-cluster, \bar{X}_i la composition moyenne dans la matrice, $X_{i,eq}^{cl}$ la composition à l'équilibre de co-cluster définie suivant une approche de solution idéale et X_i^{cl} la composition dans les co-clusters.

Le calcul de la seconde phase se base sur une approche pseudo-binaire en cuivre et magnésium et utilise l'approximation de Laplace. Khan [Khs08] considère une approche de rayon moyen tandis que Hersent [Her10] semble utiliser une approche discrétisée sans préciser laquelle (Eulérienne ou Lagrangienne). Cette approximation ne peut être utilisée pour des précipités sous forme de plaquette. Néanmoins, pour corriger la quantité de précipités utilisés, le volume calculé (Equation I. 28) est modifié par un facteur de forme α défini par l'équation suivante :

$$\alpha = \frac{l}{2r} \quad \text{Equation I. 27}$$

Avec l la longueur de la plaquette et r son rayon. Ce facteur est pris constant et égal à 20.

$$V = \pi r^2 l = 2\pi r^3 \alpha \quad \text{Equation I. 28}$$

Toutefois, on peut considérer cette approche comme erronée car la géométrie du précipité n'est pas prise en compte dans l'équation de vitesse et que cela fausse les résultats du modèle. Ainsi, il est préférable de travailler avec un précipité purement sphérique ou sous forme de plaquette afin de respecter au mieux les aspects cinétiques du modèle choisi.

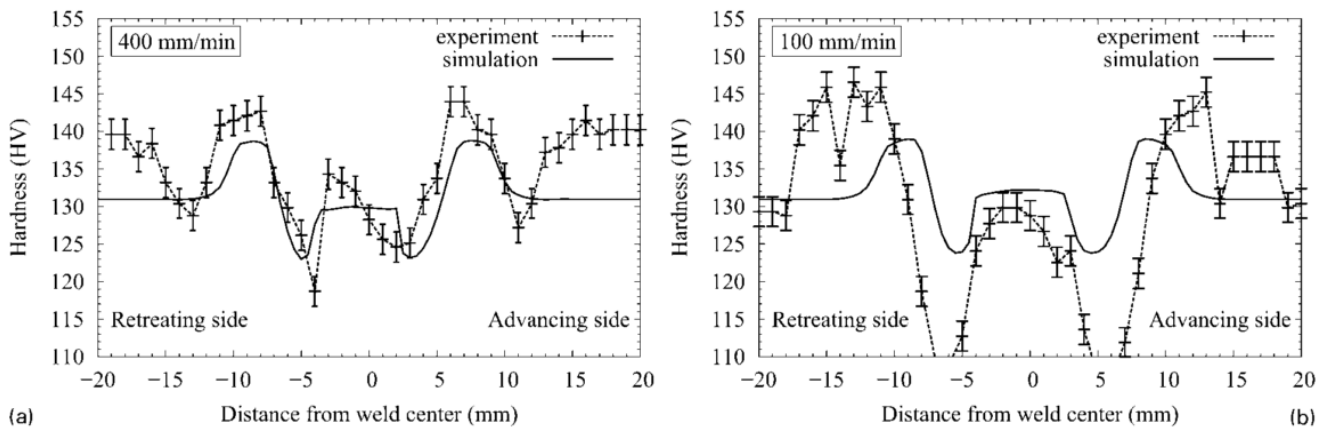


Figure I. 25 : Prédiction de la dureté sur des joints soudés pour différentes vitesses d'avance (a) 400 mm/min (b) 100 mm.min⁻¹ [Her10]

Ces deux modèles sont validés via la prédiction de la dureté du matériau connaissant son histoire thermique et sur des essais anisothermes en DSC. Hersent [Her10] a par la suite appliqué ce modèle au FSW via un couplage avec un code macroscopique. Son modèle est robuste pour de fortes vitesses d'avance (Figure I. 25-a) mais surestime la dureté pour de faibles vitesses d'avance au niveau de la ZATM (Figure I. 25-b), zone permettant de valider ou non la soudure. Ainsi, il va être nécessaire d'améliorer la description du minimum de dureté.

Un autre type de couplage entre un modèle thermo-mécanique et un modèle microstructural a été utilisé par Sonne et *al.* [Son13] et a pu être appliqué à la modélisation de l'évolution de la microdureté Vickers dans le cas d'une soudure FSW pour un alliage AA2024-T3. Le modèle microstructural prend uniquement en compte la dissolution des zones GPB selon le modèle de Myhr et Grong [Myh91]. Il est à noter qu'aucune simulation de la phase S est réalisée. La dureté obtenue via cette modélisation est présentée sur la Figure I. 26. Dans le noyau, la dureté obtenue est plus faible que celle mesurée. La formation des zones GPB après soudage lors d'une maturation à l'ambiante [Gen04] permet d'obtenir une dureté qui ne soit pas minimale. L'utilisation de ce modèle ne se basant que sur la dissolution des zones GPB, ignorant la germination de ces phases ne permet pas de rendre compte ce phénomène. De plus, Genevois [Gen04] observe la formation et donc la présence de la phase

S dans les différentes zones du cordon de soudure (ZAT, ZATM et noyau). Elle lie la présence de la phase S aux propriétés mécaniques et notamment à l'augmentation de la dureté dans la ZAT (Figure I. 26), phénomène non simulé par Sonne et *al.* [Son13].

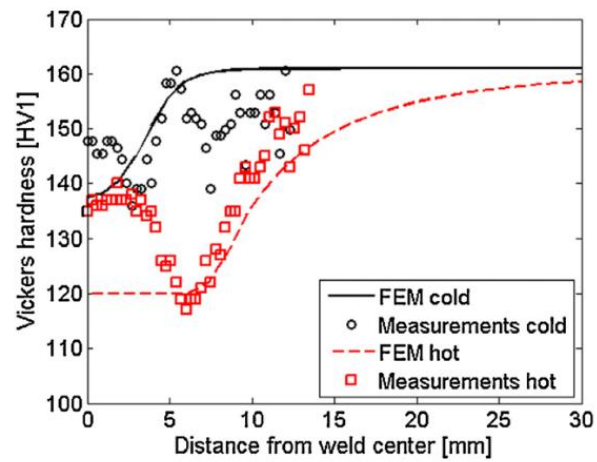


Figure I. 26 : Prédiction de la dureté Vickers dans le cas d'une soudure froide (200 mm.min^{-1}) et d'une soudure chaude (100 mm.min^{-1}) [Son13]

Afin de pouvoir décrire l'évolution des propriétés mécaniques locales lors d'un soudage FSW d'un alliage AA2024, il est nécessaire de prédire l'état structural et notamment la précipitation. Cela constitue un modèle, ici qualifié de microscopique, car travaillant à la prédiction de l'état microstructural. La précipitation va notamment être influencée par l'histoire thermique au cours du soudage utilisée comme donnée d'entrée d'un modèle microstructural. Les évolutions de température sont obtenues via un modèle macroscopique [Gas15] présenté dans la première partie de ce chapitre. Le couplage entre les prédictions macroscopiques et microscopiques sera également détaillé.

Le modèle microscopique doit intégrer les processus de germination, de croissance et de dissolution de manière simultanée afin de prédire de manière fiable l'évolution de la précipitation. Il s'appuie ainsi sur une discrétisation en classes. Le modèle développé présente des hypothèses qui seront détaillées dans la seconde partie. Les équations du modèle seront ensuite détaillées et l'algorithme général du problème sera présenté. Les hypothèses donnent lieu à des ajustements via des paramètres d'entrée traduisant des phénomènes physiques tels que la densité de sites de germination ou purement numériques tels que la discrétisation en taille de classe ou le pas de temps.

Afin de s'assurer que le modèle microscopique retrouve bien, dans les simulations développées, les évolutions physiques attendues, une dernière partie précise la démarche de calibration numérique nécessaire pour ce modèle, afin d'ajuster les grandeurs physiques mal connues.

1. Couplage du modèle avec la simulation macroscopique du procédé

Afin de déterminer les évolutions microstructurales, il est essentiel de connaître l'évolution thermique au cours du soudage, endurée par une quantité de matière donnée, de composition moyenne fixée par cellule d'étude, cette dernière pouvant être considérée comme un volume élémentaire représentatif pour le modèle microscopique. L'évolution de la température est ici déterminée par la simulation macroscopique du procédé FSW de Gastebois [Gas15]. Dans cette simulation thermomécanique, la matière n'est pas fixe dans l'espace. Les évolutions de la position et de la température de la cellule d'étude au cours du temps sont prédites. Par la suite, la dureté finale et les propriétés microstructurales, chimiques et mécaniques du volume de matière ainsi suivi peuvent être comparées aux données expérimentales.

Le modèle macroscopique résout le problème thermomécanique du procédé. Il prend en compte le principe de conservation de masse, traduit sous la forme de l'équation de continuité, l'évolution de la quantité de mouvement et la résolution de l'équation de conservation de la chaleur. L'alliage d'aluminium étudié est considéré rigide viscoplastique

incompressible. Son comportement sera décrit par une loi de type Norton-Hoff dans laquelle l'écoulement est négligé et la dépendance en température est prise en compte. Les équations et coefficients utilisés sont présentés dans l'Annexe 2.

La résolution thermique du problème permet de définir l'évolution locale de la température du système. Dans le cas du FSW, il existe deux phénomènes générant de la chaleur : la déformation plastique par le pion et le frottement entre l'outil et la plaque essentiellement au niveau de l'épaulement. Il existe également des échanges par conduction non seulement entre la plaque et l'outil mais également entre la plaque et la plaque support en acier dans le cas étudié (Figure II. 1). La formulation ALE (Arbitrairement Lagrangienne Eulérienne) a été utilisée pour résoudre toutes ces équations. Les détails de l'implémentation numériques sont donnés dans [Gas15].

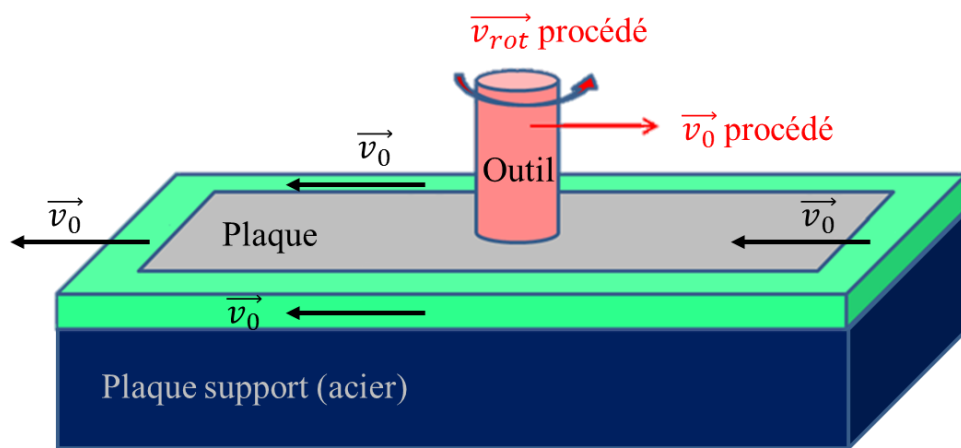


Figure II. 1 : Cinématique du procédé [Gas15]

Dans le cas du procédé FSW, la plaque est bridée sur un support et l'outil FSW se déplace avec une certaine vitesse de rotation, v_{rot} , et d'avance, v_0 , afin de réaliser la soudure. Dans le modèle numérique développé, le choix de simulation inverse a été fait et est représenté sur la Figure II. 1. L'outil en rotation est considéré fixe par rapport à la plaque. Le domaine représentant la plaque est fixe à ses extrémités. Il est représenté par la zone verte sur la Figure II. 1. Afin de tenir compte du déplacement relatif de la plaque par rapport à l'outil sans accroître le domaine de calcul, il est traversé en continu par un flux de matière ayant la même vitesse v_0 , en entrée et en sortie. Dans ce modèle, l'utilisation d'une description ALE de la plaque se traduit par une régularisation de maillage à chaque pas de temps permettant de traiter correctement les grandes déformations et de modéliser l'apparition de défauts macroscopiques de types bavures ou trous (Figure A2.2). A l'opposé, l'outil est en rotation dans la plaque mais sa position est fixe par rapport à la plaque. Il ne nécessite pas de remaillage pour permettre le calcul en thermique en son sein. Il faut également noter que les phases de plongée (le pion entre dans la matière) et de dwelling (l'outil est immobile et chauffe localement la matière avant la phase de soudage), réalisées préalablement au soudage, ne sont pas modélisées, seul le régime permanent étant recherché.

La résolution du problème thermique étant faite par le modèle macroscopique, il est donc possible de connaître l'évolution de la position et de la température d'une cellule donnée en fonction du temps. Ces évolutions peuvent être utilisées pour déterminer la dureté finale, liée à l'évolution de sa microstructure. La simulation des profils de dureté est alors rendu possible par la connaissance des évolutions spatiale et thermique de plusieurs cellules régulièrement espacées. Pratiquement, les cellules correspondant à un point de maillage dans le code macroscopique et à une cellule dans le code microscopique sont introduites sous forme de capteurs dont la position est prédéfinie avant de commencer le calcul macroscopique. Elles apparaissent comme des points blancs sur la Figure II. 2. Lors du procédé, certaines cellules sont entraînées par le pion, les trajectoires ne sont donc pas rectilignes. Il est possible d'obtenir les évolutions en temps de la température suivant les trajectoires représentées sur la Figure II. 2. Le couple temps/température défini pour chaque trajectoire sera utilisé comme donnée d'entrée dans le code microstructural développé dans cette thèse.

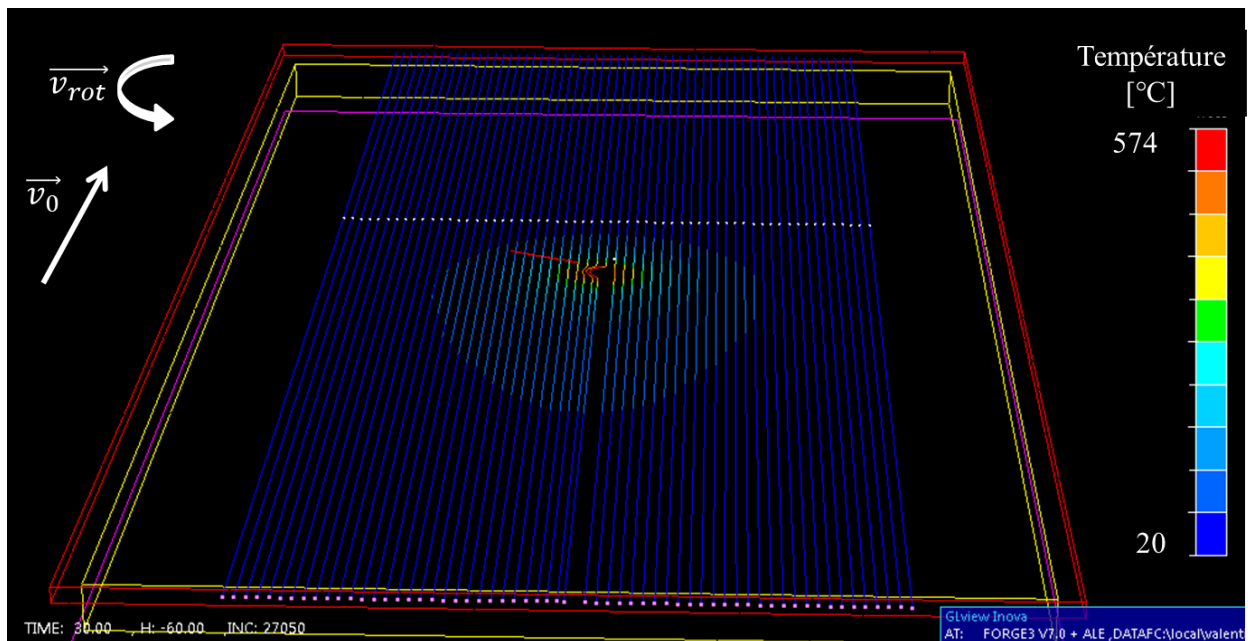


Figure II. 2 : Introduction des capteurs dans le code macroscopique

2. Hypothèses du modèle

Une des principales hypothèses du modèle de précipitation à l'état solide développé est de considérer que la germination est uniquement hétérogène, c'est-à-dire que les germes peuvent se former seulement sur des défauts de réseaux tels que des dislocations, des lacunes ou des joints de grains. Cette quantité se traduit par une densité de sites de germination disponibles et pouvant être activés selon l'importance de la vitesse de germination. Dans le cas de cette étude, la présence de grains n'est pas prise en considération. L'hypothèse du champ moyen consiste à considérer la composition de la matrice comme étant chimiquement homogène en l'absence de précipités. Néanmoins, des gradients de composition existent puisqu'ils permettent de définir la cinétique de précipitation. Toutefois, loin des précipités, la matrice est

supposée chimiquement homogène en soluté. Concrètement, cela se traduit par le fait que tous les précipités interagissent avec une même matrice ayant une composition moyenne connue du modèle. Il n'y a donc pas d'interaction mutuelle directe entre les précipités.

Plusieurs hypothèses concernent les précipités. La première suppose que la diffusion est infinie dans le précipité ce qui induit une composition homogène dans celui-ci. Cette hypothèse semble cohérente avec les données thermodynamiques des phases étudiées via le logiciel de calcul Thermocalc qui renvoie, quel que soit la température du domaine d'étude (30 °C à 500 °C) une valeur stœchiométrique de la composition du précipité. La seconde considère que les précipités sont de formes sphériques. Cette dernière hypothèse est plus discutable notamment dans le cas de l'alliage étudié où les précipités sont sous forme de plaquettes (cf. Chapitre 1), ce qui correspond à l'une des limites du modèle. Néanmoins, dans le cas de la germination, un angle de mouillage est introduit permettant de prendre en compte la non-sphéricité du germe.

Afin de pouvoir calculer l'évolution de la précipitation, l'interface entre un précipité et la matrice est supposée à l'équilibre thermodynamique local. Cet équilibre est calculé, dans l'approche numérique, par l'utilisation des bases de données Thermocalc, et des bibliothèques de calcul associée à ce logiciel. Cet outil permet de déterminer si le précipité est en régime de croissance ou de dissolution en comparant les compositions d'équilibre aux compositions moyennes de la matrice comme cela sera détaillé ultérieurement. Afin de prendre en compte les effets de recouvrement des champs de diffusion et de dissolution des particules et de modéliser le phénomène de murissement d'Ostwald, l'approximation de Laplace ou la solution d'Aron étendue à un alliage multi-composés peuvent être utilisées pour résoudre l'équation de conservation interfaciale, définissant la cinétique de croissance adoptée par le précipité. La nature cohérente ou incohérente de l'interface se traduit par l'utilisation d'un paramètre ajustable : l'énergie interfaciale. Plus elle est élevée et moins l'interface précipité/matrice est cohérente.

Suite aux différentes approximations, trois paramètres matériaux spécifiques aux phases précipitantes peuvent être ajustés. Ces paramètres sont l'énergie d'interface précipité/matrice $\gamma^{m/p}$, l'angle de mouillage θ , et le nombre de sites de germination N_{tot} . Dans certains modèles [Ser04], les coefficients de diffusion des éléments sont considérés comme étant des paramètres ajustables. Dans le cas présent, ces coefficients sont extrapolés des bases de données Thermocalc. Au cours du temps, la composition nominale de l'alliage est supposée fixe.

3. Equations du modèle

3.1. Equations de conservation

Dans le modèle proposé, il est primordial de conserver à la fois la masse des éléments chimiques et de définir une équation permettant de gérer les évolutions des classes de particules dans la distribution de taille.

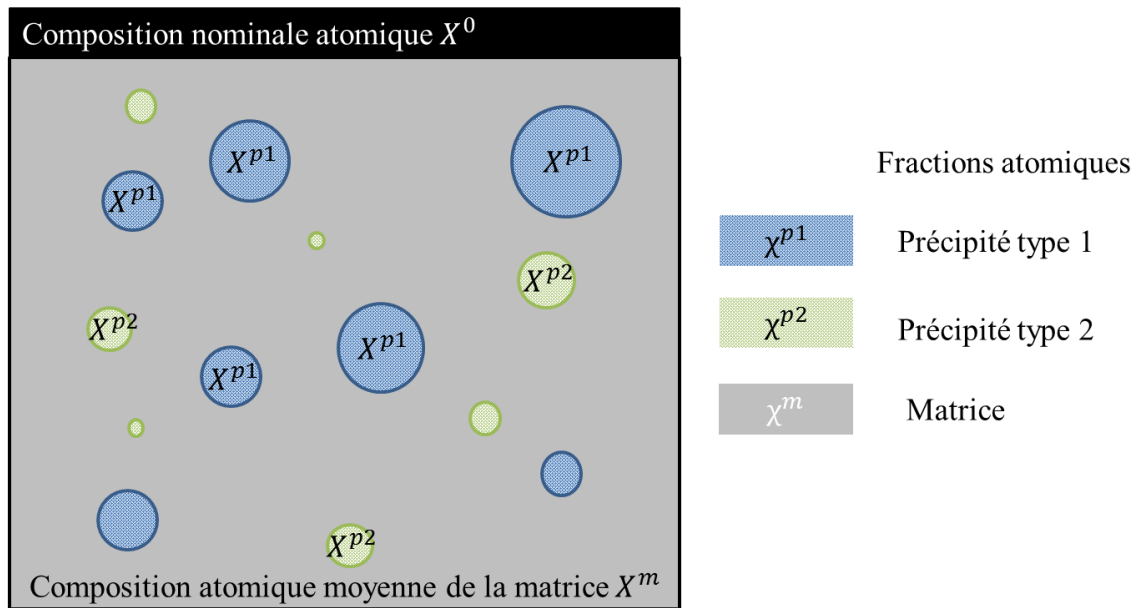


Figure II. 3 : Exemple d'une cellule contenant deux natures différentes de précipités notés p1 et p2 et présentation des compositions pour une des espèces étudiées

La Figure II. 3 représente une cellule contenant deux familles différentes de précipités. Lors du calcul, la composition de la matrice va évoluer en fonction de la croissance des précipités. Il en résultera un enrichissement ou un appauvrissement en éléments de soluté dans la matrice. Connaissant la composition atomique nominale de l'alliage, considéré commun à l'ensemble des cellules d'étude, et celle des différents précipités ainsi que leur fraction atomique, un bilan matière permet de définir la composition atomique moyenne de la matrice.

$$X_i^0 = \chi_i^m \cdot X_i^m + \sum_p \chi_i^p \cdot X_i^p \quad \text{Equation II. 1}$$

où X_i^0 représente la composition atomique nominale de l'élément i dans la cellule, cette composition étant supposée fixe, X_i^m la composition atomique de la matrice m , X_i^p la composition atomique du précipité p , χ_i^m la fraction atomique de matrice m , χ_i^p la fraction atomique de précipité p (Figure II. 3).

Pour traduire la conservation des particules, et également l'évolution de leur densité due à la germination, l'équation de Myhr et Grong [Myh00] est utilisée :

$$\frac{\partial N}{\partial t} = -\frac{\partial(Nv)}{\partial r} + S \quad \text{Equation II. 2}$$

où N désigne la densité de particules, v la vitesse de croissance/dissolution de la particule considérée, r le rayon de la particule. Pour introduire de nouveaux germes (particules) au cours du calcul liés au phénomène de germination, un terme source S est introduit. Il correspond à la vitesse de germination dont l'équation sera présentée ultérieurement.

3.2. Introduction des précipités dans le modèle

Dans le cas de l'alliage étudié, les phases GPB sont présentes initialement, et liées au vieillissement à température ambiante du matériau. Pour les introduire dans le modèle, l'utilisation d'une loi normale a été proposée. Une des hypothèses, parallèlement, est que la précipitation est monodisperse, c'est-à-dire que la distribution en taille sera centrée autour d'une valeur moyenne (Figure II. 4), ce que vérifie une loi normale.

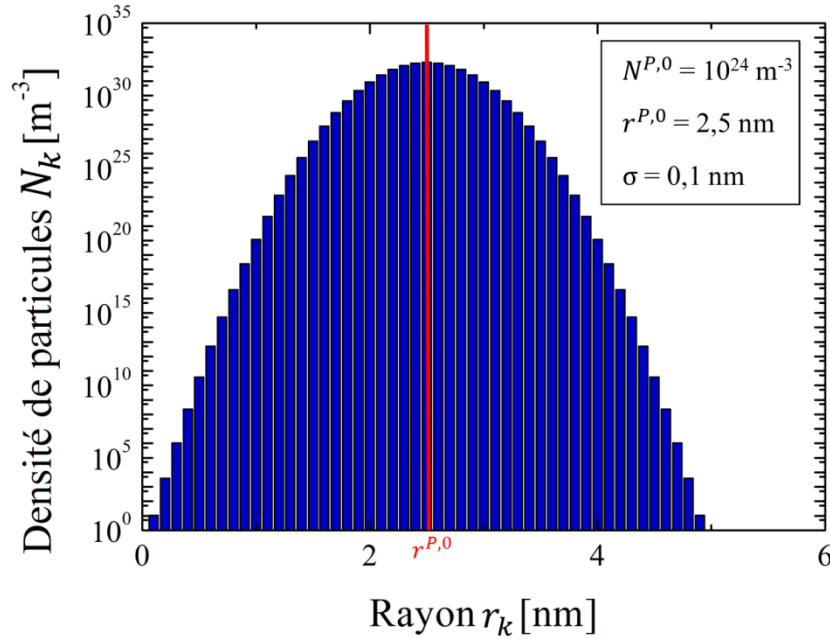


Figure II. 4 : Exemple de distribution initiale des précipités selon une loi normale.
La distribution est centrée sur r_{ini} , d'écart-type σ .

Pour pouvoir définir cette distribution, il faut donner le rayon moyen initial $r^{p,0}$, la densité initiale $N^{p,0}$ et l'écart-type initial de la distribution $\sigma^{p,0}$.

Pour chaque classe k de l'histogramme, la loi de distribution discrète $f^p(r_k^p)$ est calculée sous la forme.

$$f^p(r_k^p) = \frac{1}{\sigma^{p,0}\sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{1}{2}\left(\frac{r_k^p - r^{p,0}}{\sigma^{p,0}}\right)^2\right) \quad \text{Equation II. 3}$$

Cette fonction est sommée sur toutes les classes afin de définir le terme de normalisation F^p .

$$F^p = \sum_k f^p(r_k^p) \quad \text{Equation II. 4}$$

Il est maintenant possible de définir la densité de particules dans chaque classe de la distribution $N_k^{p,0}$. Si la valeur de densité obtenue est trop faible pour une classe de particules, c'est-à-dire inférieure à 10^{-90} m^{-3} , elle est fixée comme étant nulle.

$$N_k^{p,0} = \frac{f^p(r_k^p)}{F^p} \cdot N^{p,0} \quad \text{Equation II. 5}$$

3.3. La germination

Pour caractériser l'étape de germination, il est nécessaire de définir le rayon critique de germination, la vitesse de germination et la force motrice de germination, cette dernière étant fonction du modèle thermodynamique considéré. Afin de définir l'état d'équilibre du système, l'appel aux bases de données Thermocalc est réalisé, par l'intermédiaire de l'utilisation d'une librairie informatique. Dans notre cas, la masse, m , et la pression, P , sont constantes et fixées respectivement à 1 kg et 101325 Pa. Ces variables fixées, qui seront utilisées par la suite pour définir l'état des cellules de calcul, pour Thermocalc, permettent de réduire la variance du système, et de définir un état d'équilibre thermodynamique. Cependant, le travail étant réalisé par l'utilisation et le calcul de composition, relativement au nombre total de moles du système, les résultats sur les équilibres ne seraient pas modifiés pour un choix différent de la variable additive m , qui a été choisi ici, de manière arbitraire, égale à cette valeur de 1 kg. La température, T , et la composition, X , sont des variables du système de calcul. La cellule de calcul a été précédemment présentée Figure II. 3. Afin d'être le plus juste possible, pour calculer la quantité restant à précipiter pour atteindre l'équilibre thermodynamique et donc pouvoir germer, le calcul d'équilibre est effectué en tenant compte de la composition de la matrice. Initialement, si aucun précipité n'est considéré comme préalablement formé, cette composition est égale à la composition nominale de l'alliage. Dans le cas contraire, un bilan d'espèce est réalisé pour définir la composition initiale de la matrice.

Force motrice volumique de germination

Pour calculer cette donnée, deux méthodes existent : celle définie selon l'hypothèse de solution idéale et celle calculée sans approximation. Le choix de l'une ou l'autre de ces hypothèses est laissé libre à l'utilisateur et est donc un paramètre du modèle. L'application du modèle permettra de déterminer l'approximation la mieux appropriée à ce travail dans la suite de l'étude présentée.

L'hypothèse de solution idéale consiste à considérer que les interactions entre les différents éléments d'alliage sont nulles [Ser04]. Dans le cadre de cette étude, la composition dans la matrice et la composition d'équilibre sont supposées être proche induisant ainsi une contribution matricielle nulle. Dans ce cas, l'énergie associée à la formation d'un germe, ΔG_v^p , se calcule selon la formule suivante :

$$\Delta G_v^p = \frac{R_g \cdot T}{V_m^p} \left[\sum_{i=1}^n X_i^p \cdot \ln \left(\frac{X_i^m}{X_{eq,i}^m} \right) \right] \quad \text{Equation II. 6}$$

avec R_g la constante des gaz parfaits, T la température, V_m^p le volume molaire de la phase précipitante p , X_i^p la composition de l'élément i dans le précipité p , X_i^m la composition de l'élément i dans la matrice m , $X_{eq,i}^m$ la composition de l'élément i dans la matrice m à l'équilibre thermodynamique, et n le nombre total d'espèces chimiques présentes dans le système (élément majoritaire inclus).

L'énergie de formation d'un germe, ΔG^p de rayon r se déduit de la force motrice volumique de germination selon la formule suivante :

$$\Delta G^p = \frac{4}{3} \pi r^3 \Delta G_v^p + 2 \pi r^2 \gamma^{m/p} \quad \text{Equation II. 7}$$

avec $\gamma^{m/p}$, l'énergie interfaciale matrice/précipité

Rayon critique de germination

Le rayon critique de germination, $R^{p,*}$, correspond à la taille à partir de laquelle les germes peuvent se former. Les précipités seront stables si leur rayon est supérieur à cette valeur critique et pourront ainsi croître librement. Dans le cas contraire, ils se dissolvent progressivement. Pour calculer cette valeur, la dérivée de l'énergie de formation d'un germe en fonction du rayon est calculée. L'annulation de cette dérivée permet de définir le rayon critique en obtenant l'expression suivante :

$$R^{p,*} = \frac{2 \gamma^{m/p}}{\Delta G_v^p} \quad \text{Equation II. 8}$$

Energie critique de germination

L'énergie critique de germination, $\Delta G^{p,*}$, correspond à l'énergie nécessaire pour la création d'un germe de rayon $R^{p,*}$ et se déduit ainsi de l'Equation II. 7 et de l'Equation II. 8. Pour prendre en compte l'effet de la forme du germe sur sa formation, l'énergie critique de germination est multipliée par la fonction de mouillage $f(\theta^p)$.

$$\Delta G^{p,*} = \frac{4\pi f(\theta^p) R^{p,*2} \gamma^{m/p}}{3} \quad \text{Equation II. 9}$$

La fonction de mouillage dépend de l'angle de mouillage θ^p et se calcule suivant la formule suivante :

$$f(\theta^p) = \frac{1}{2}(2 + \cos \theta^p)(1 - \cos \theta^p)^2 \quad \text{Equation II. 10}$$

L'angle est défini entre le germe et la matrice à l'interface précipité / matrice (Figure I.9)

Vitesse de germination

Cette vitesse correspond au nombre de germes de précipité p pouvant se former à chaque instant. Il est défini par la relation [Rus70] :

$$J_s^p = Z^p \beta^p (N_{tot}^p - N^p) \exp\left(-\frac{\Delta G^{p,*}}{k_B T}\right) \quad \text{Equation II. 11}$$

avec N_{tot}^p le nombre total de site de germination et N^p la densité totale de précipités déjà formés. Ainsi le terme $(N_{tot}^p - N^p)$ correspond à la quantité de sites de germination disponibles à un instant donné. La vitesse dépend également de deux facteurs : le facteur de Zeldovich Z^p et le facteur de cinétique d'accroche β^p .

Le premier facteur, Z^p , permet de rendre compte de la fluctuation du nombre d'atomes constituant le germe ce qui induit une variation de la taille du germe qui peut être supérieure $R_+^{p,*}$ ou inférieure $R_-^{p,*}$ à la taille du germe critique. Cependant pour un rayon inférieur à $R_+^{p,*}$, le germe va être dissous, tandis que pour un rayon supérieur à $R_+^{p,*}$, le germe va croître (Figure I.11). Ce facteur prend ainsi la valeur [Zel43, Ser04]:

$$Z^p = \frac{V_m^p (\Delta G_v^p)^2}{8\pi (\gamma^{m/p})^{3/2} N_{av} \sqrt{k_B T} f(\theta)} \quad \text{Equation II. 12}$$

où N_{av} représente le nombre d'Avogadro et k_B la constante de Boltzmann.

Le second facteur, β^p , permet de prendre en compte la probabilité d'ancrage d'un atome de soluté sur le germe en prenant en compte les propriétés de diffusion et de composition dans la matrice de chaque espèce chimique. Afin de calculer la vitesse de germination, seul le facteur de cinétique d'accroche minimum va être considéré. En effet, la germination est limitée par l'élément chimique ayant le coefficient de diffusion le plus faible.

$$\beta^p = \frac{4\pi R^{p,*2}}{\lambda^4} \text{Min}(D_i^m X_i^m) \quad \text{Equation II. 13}$$

avec λ , la distance inter-atomique dans la matrice, D_i^m le coefficient de diffusion associé à l'élément i dans la matrice m et X_i^m la composition de l'élément i dans la matrice m .

Afin d'éviter tout problème d'instabilité numérique, la vitesse de germination est fixée comme étant nulle si le test suivant est vérifié, correspondant à une présence trop faible de sites de germination libres :

$$\left| \frac{N_{tot}^p - N^p}{N_{tot}^p} \right| < \varepsilon \quad \text{Equation II. 14}$$

Où l'erreur critique, ε , est prise égale à 0,01. En effet, la germination est limitée aux nombres de sites de germination disponibles. Ainsi, une fois les sites occupés, la germination est bloquée. Si le phénomène de dissolution se produit, certains sites peuvent être libérés et le phénomène de germination pourrait se produire de nouveau sur ces sites libérés.

3.4. Calcul de la vitesse de croissance ou dissolution d'un précipité de rayon r

La vitesse de croissance ou de dissolution du précipité est liée aux flux de diffusion interfaciaux. Il faut pour cela définir les compositions de la matrice et du précipité à l'interface. Il est à noter que ces compositions dépendent également de la courbure des précipités, et donc de leur taille.

Pour chaque rayon r , un calcul de cinétique de croissance doit être réalisé. Pour chaque type de précipité étudié, le rayon critique de germination R^* est utilisé pour définir deux cas limites : la dissolution et la croissance. Les profils de composition à l'interface des deux régimes de dissolution et croissance sont représentés sur la Figure II. 5.

Si le rayon est inférieur au rayon critique, on se place en régime de dissolution. Deux cas de figure sont possibles. Le premier (type I) correspond à un précipité enrichi en élément d'alliage qui se dissout dans une matrice moins riche. Ceci se traduit par une composition à l'interface matrice/précipité supérieure à celle de la composition moyenne dans la matrice. Le second (type II) correspond à un précipité appauvri en un des éléments d'alliage et qui se dissout dans une matrice plus riche.

Si le rayon est supérieur au rayon critique, on se place en régime de croissance. Deux cas de figure sont également possible et sont représentés sur la Figure II. 5. Ils correspondent aux mêmes phénomènes que ceux décrits pour la dissolution. Il est à noter que l'ensemble des 4 situations décrites ici seront rencontrées dans l'étude du développement des précipités étudiés dans l'alliage AA2024. Elles découlent d'un bilan de soluté à l'interface m/p .

Les compositions des précipités et de la matrice sont supposées connues dans le modèle, à l'instant courant de temps t . Comme indiqué précédemment dans les hypothèses du modèle, les précipités ont une composition uniforme et égale à la composition à l'interface précipité/matrice (p/m). De même, les interfaces sont supposées à l'équilibre thermodynamique (égalité des potentiels chimiques dans le précipité et la matrice, pour

l'ensemble des espèces étudiées). L'ensemble des précipités interagit avec la matrice, et, en cela, leur cinétique sera déterminée par une composition loin de l'interface (i.e. composition à l'infini). Cette composition est prise identique pour l'ensemble des précipités, et égale à la composition moyenne de la matrice, suivant en cela le principe du champ moyen. De même aucune interaction mutuelle entre précipités voisins n'est considérée dans le modèle. La composition moyenne est définie à chaque pas de temps par le principe de conservation des éléments de soluté, et donc la résolution de l'équation de conservation des espèces.

Pour définir les vitesses, deux méthodes existent : la première est l'approximation de Laplace. Elle consiste, dans le calcul des évolutions de composition, défini par l'équation de conservation locale des espèces, à négliger la variation temporelle de la composition. Ainsi la solution est développée en supprimant la variation temporelle du profil de composition, même dans le régime où les compositions interfaciales sont stationnaires, et la croissance du précipité libre. Elle est très couramment utilisée car elle permet de décrire, de manière simple, les régimes de croissance mais surtout les régimes de dissolution. De plus, elle donne une expression directe de la vitesse de croissance à partir des compositions interfaciales et du rayon du précipité. Néanmoins, il est possible de définir une solution d'Aaron dans le cas d'un alliage multicomposé afin de décrire uniquement la croissance. En effet, en régime de dissolution, une telle solution n'existe pas [Aar70].

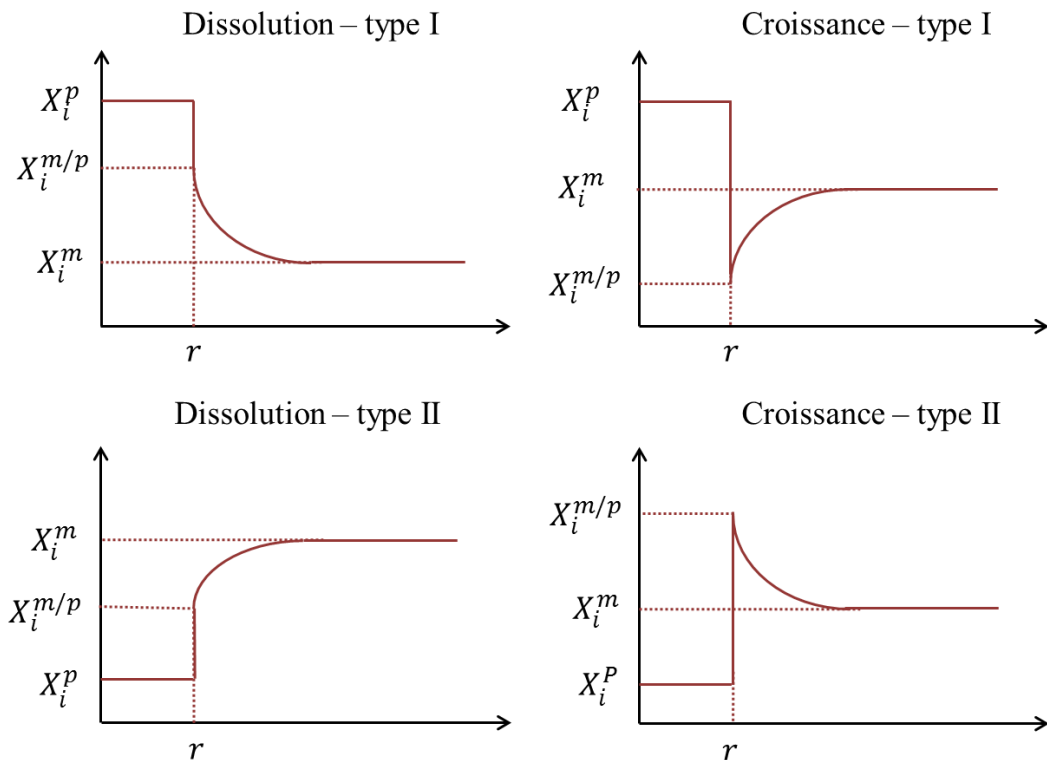


Figure II. 5 : Profils de composition à l'interface précipité/matrice pour un élément i

Dans le modèle développé, comme il est possible de savoir, connaissant le rayon de la particule, si l'on est en régime de croissance ou de dissolution, il est donc envisageable de

pouvoir travailler en utilisant les deux expressions de la cinétique de croissance, via deux cas de figure :

1. travailler uniquement avec l'approximation de Laplace (croissance et dissolution)
2. travailler avec la solution d'Aaron (croissance) et l'approximation de Laplace (dissolution).

Approximation de Laplace

L'approximation de Laplace se traduit par l'équation suivante pour le calcul de la vitesse associée au flux de diffusion interfaciale de l'élément i .

$$v_i^p = \frac{D_i^m}{r^p} \left(\frac{X_i^m - X_i^{m/p}}{X_i^p - X_i^{m/p}} \right) \quad \text{Equation II. 15}$$

avec X_i^m , X_i^p (égal à $X_i^{p/m}$ avec les approximations précédemment énoncées et $X_i^{m/p}$ respectivement la composition dans la matrice, dans le précipité et à l'interface matrice/précipité de l'élément i , D_i^m est le coefficient de diffusion dans la matrice et r^p le rayon du précipité considéré. La composition à l'interface matrice/précipité est alors définie en fonction de la vitesse selon l'équation suivante.

$$X_i^{m/p} = \frac{v^p r^p X_i^p - X_i^m D_i^m}{v^p r^p - D_i^m} \quad \text{Equation II. 16}$$

où v_i^p a été remplacé par v^p puisque, quel que soit l'élément considéré, la vitesse du précipité est unique et notée v^p .

Solution d'Aaron

Aaron [Aar70] définit la solution exacte pour un alliage binaire mais elle peut être étendue très simplement dans le cas d'un alliage multicomposé, sans diffusion croisée. Pour cela, une valeur $x_i^{p/m}$ est définie qui est propre à un élément d'alliage i diffusant dans la matrice m et au précipité p de rayon r^p , selon l'expression suivante :

$$x_i^{p/m} = \sqrt{\frac{2v^p r^p}{D_i^m}} \quad \text{Equation II. 17}$$

Il est alors possible de définir la valeur de la sursaturation Ω_i (cf. Chapitre 1 – Equation 18) puisqu'elle satisfait l'équation décrite par Aaron dans le cas d'un composé binaire pour la résolution exacte de la croissance d'une particule sphérique.

$$\frac{x_i^{p/m^2}}{2} \left[1 - \frac{x_i^{p/m}}{2} \sqrt{\pi} \exp\left(\frac{x_i^{p/m^2}}{2}\right) \operatorname{erfc}\left(\frac{x_i^{p/m}}{2}\right) \right] = \Omega_i \quad \text{Equation II. 18}$$

Connaissant la sursaturation, il est donc possible de connaître la composition à l'interface qui se déduit de l'équation

$$X_i^{m/p} = \frac{X_i^p \Omega_i - X_i^m}{\Omega_i - 1} \quad \text{Equation II. 19}$$

Méthode de résolution

En considérant l'interface à l'équilibre thermodynamique, une fonction vitesse est définie afin de calculer la composition de la matrice à l'interface matrice/précipité. Elle est considérée comme monotone sur l'intervalle de vitesse de résolution choisi (Tableau II. 1). Pour résoudre ce problème, la méthode de Brent est utilisée puisqu'elle garantit une convergence linéaire [Pre07]. L'équation résolue prend la forme :

$$K_{GT}(T, r^p) - \prod_{i=1}^n (X_i^{m/p})^{x_i^p} = 0 \quad \text{Equation II. 20}$$

avec $K_{GT}(T, r^p)$ correspondant au produit de solubilité tenant compte de l'effet de courbure du précipité. Pour calculer ce produit de solubilité, un calcul d'équilibre est nécessaire afin de pouvoir déterminer la composition de la matrice et du précipité à l'équilibre thermodynamique. Le calcul d'équilibre est actuellement effectué en prenant en compte, comme composition moyenne définissant les compositions d'équilibres interfaciaux, uniquement la composition dans la matrice. Un premier produit de solubilité, sans effet de courbure est ainsi défini. Il est propre à une famille de précipité indépendamment du rayon.

$$K_{eq} = \prod_{i=1}^n (X_{eq,i}^m)^{x_i^p} \quad \text{Equation II. 21}$$

Où n correspond au nombre d'éléments d'alliage en prenant en compte l'élément d'alliage majoritaire à savoir l'aluminium dans notre cas, $X_{eq,i}^m$ la composition en élément i dans la matrice à l'équilibre thermodynamique et X_i^p la composition en élément i dans le précipité considéré à l'équilibre thermodynamique.

Afin de tenir compte de l'effet de courbure, une correction sur le produit de solubilité est introduite pour chaque précipité de rayon r [Ser04].

$$K_{GT}(T, r) = K_{eq}(T) \exp\left(\frac{2 \cdot V_m^p \cdot \gamma^{m/p}}{r \cdot R_g \cdot T}\right) \quad \text{Equation II. 22}$$

Connaissant la composition à l'interface, il est alors possible de connaître la vitesse associée. Elle correspondra respectivement à la vitesse de croissance ou de dissolution du précipité de rayon r . Les vitesses sont calculées pour chaque rayon définissant la borne d'une classe de précipité.

Pour pouvoir déterminer la cinétique de croissance, les vitesses maximales et minimales doivent être déterminées suivant le régime de croissance ou dissolution du précipité.

Les maxima et minima des vitesses sont présentés dans le Tableau II. 1. La vitesse maximale possible de croissance du précipité va être celle correspondant à l'élément chimique ayant le coefficient de diffusion le plus faible dans la matrice afin de pouvoir garantir l'équilibre thermodynamique à l'interface puisque tous les éléments doivent avoir la même vitesse.

Tableau II. 1 : Bornes des valeurs de la vitesse

	Croissance	Dissolution
Vitesse minimale	0	-1
Vitesse maximale	$\min_i \left(\frac{D_i X_i^m}{r X_i^p} \right)$	0

3.5. La distribution de particules

Afin de calculer la densité d'une classe k , l'équation de conservation des particules est utilisée. Elle doit être discrétisée dans le temps et dans l'espace.

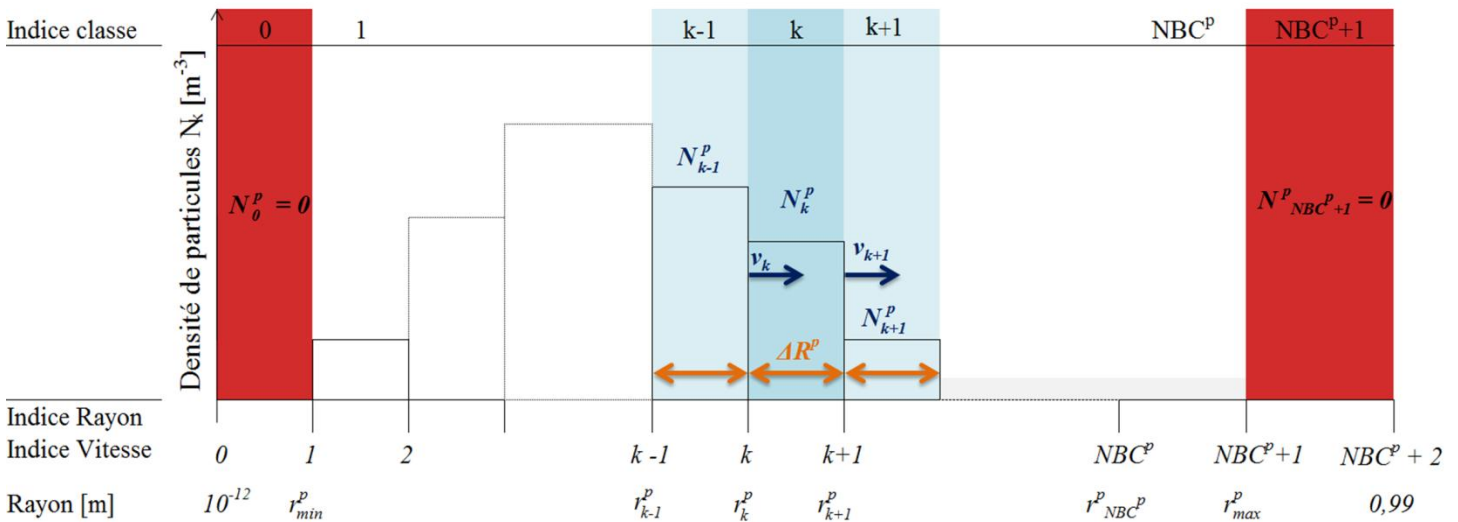


Figure II. 6 : Schéma de principe de la distribution en classe (NBC : nombre de classe définie par l'utilisateur)

Dans un premier temps, il faut choisir un domaine et définir ses conditions aux limites. Cette organisation est représentée sur la Figure II. 6. Afin d'éviter tout problème numérique,

deux classes limites sont créées. La première a une taille comprise entre 10^{-12} m et un rayon minium r_{min}^p défini par l'utilisateur du code correspondant à la taille minimale admise pour un précipité. Elle peut varier en fonction de la nature du précipité. La seconde a une taille comprise entre un rayon maximal r_{max}^p défini par l'utilisateur dépendant de la nature et taille des précipités formés et 0,99 m. Dans ces deux classes, la densité de précipité est maintenue nulle, comme on le précisera ultérieurement. Entre ces deux rayons définis par l'utilisateur, un nombre de classe, NBC^p , est défini. Chaque classe a une taille ΔR^p identique dans l'approche présente.

L'Equation II. 2 est discrétisée dans le temps et l'espace. Si cette discrétisation est effectuée sur la classe d'indice k et entre le temps précédent $t-\Delta t$ et le temps actuel t , l'équation de conservation suivante, sous forme intégrale, est obtenue :

$$\int_{r_k^p}^{r_{k+1}^p} \left[\int_{t-\Delta t}^t \frac{\partial N^p}{\partial t} dt \right] dr^p = \int_{t-\Delta t}^t \left[\int_{r_k^p}^{r_{k+1}^p} \left(-\frac{\partial (N^p v^p)}{\partial r} + S^p \right) dr^p \right] dt \quad \text{Equation II. 23}$$

$$\begin{aligned} & (N_k^{p,t} - N_k^{p,t-\Delta t}) \Delta R \\ & = \left(- \int_{t-\Delta t}^t [(N^p v^p)_{k+1} - (N^p v^p)_k] dt \right) \\ & + S^{p,t} \cdot \Delta r^p \cdot \Delta t \end{aligned} \quad \text{Equation II. 24}$$

La vitesse de croissance v_k du précipité de taille r_k va affecter la densité de précipité dans la classe $k-1$ et dans la classe k . La Figure II.7 permet d'illustrer cette évolution dans des classes où la germination ne se produit pas et en faisant l'hypothèse que les trois classes sont toutes en situation de croissance.

Dans ce cas, la densité totale de particule doit être conservée et satisfait donc l'Equation II. 23 en simplifiant pour ne pas tenir compte du terme source. Dans une approche eulérienne ce sont les particules qui, du fait de leur vitesse de croissance vont changer de classe. Ainsi, sur la Figure II. 7-a, la présentation de la densité de particules des trois classes impactées par les vitesses v_k et v_{k+1} à l'instant précédent $t-\Delta t$ est effectuée. Sur la Figure II. 7-b La zone en transparence bleu clair correspond à l'évolution de la distribution à l'instant courant t des densités. La zone hachurée va correspondre à la nouvelle densité de précipité dans la classe d'indice k . La Figure II.7 se traduit mathématiquement par l'Equation II. 25.

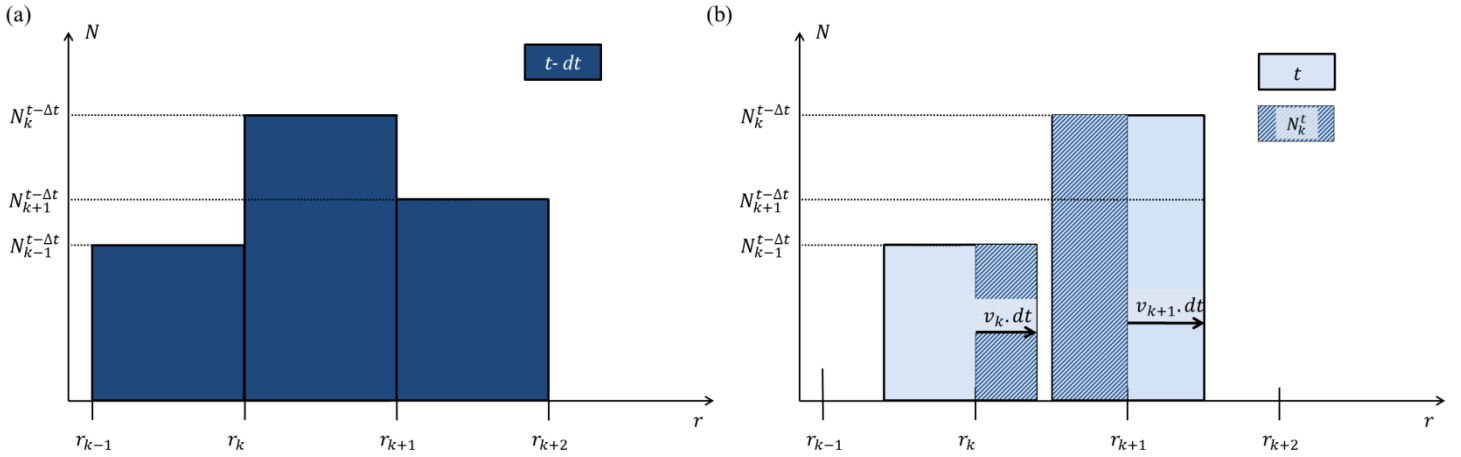


Figure II. 7 : Croissance des précipités selon une approche Eulérienne

$$(N_k^{p,t} - N_k^{p,t-\Delta t}) \frac{\Delta R^p}{\Delta t} = -[N_k^{p,t} \max(v_{k+1}^{p,t}, 0) - N_{k+1}^{p,t} \max(-v_{k+1}^{p,t}, 0)]$$

$$+ [N_{k-1}^{p,t} \max(v_k^{p,t}, 0) - N_k^{p,t} \max(-v_k^{p,t}, 0)] - S^p \Delta R^p$$

Equation II. 25

Tableau II. 2 : Coefficients de l'équation de densité

	$v_{k+1}^p > 0$ et $v_k^p > 0$	$v_{k+1}^p < 0$ et $v_k^p < 0$	$v_{k+1}^p > 0$ et $v_k^p < 0$
$a_{k-1}^{p,t}$	v_k^t	0	0
$a_k^{p,t}$	$\frac{\Delta R^p}{\Delta t} + v_{k+1}^{p,t}$	$\frac{\Delta R^p}{\Delta t} - v_k^{p,t}$	$\frac{\Delta R^p}{\Delta t} + v_{k+1}^{p,t} - v_k^{p,t}$
$a_{k+1}^{p,t}$	0	$-v_{k+1}^{p,t}$	0
$b^{p,t-\Delta t}$	$N_k^{p,t-\Delta t} \frac{\Delta R^p}{\Delta t} + S^{p,t} \Delta R^p$	$N_k^{p,t-\Delta t} \frac{\Delta R^p}{\Delta t} + S^{p,t} \Delta R^p$	$N_k^{p,t-\Delta t} \frac{\Delta R^p}{\Delta t} + S^{p,t} \Delta R^p$

Cette dernière équation (Equation II. 25) est simplifiée sous la forme de l'Equation II. 26 dont les coefficients sont répertoriés dans le Tableau II. 2. Il illustre les différents cas de croissance/dissolution qui peuvent être rencontrés, selon la position du rayon critique par rapport aux classes k et $k+1$, et le choix adopté pour les coefficients de l'équation de conservation des populations de précipités dans les différentes classes.

$$a_{k-1}^{p,t} N_{k-1}^{p,t} + a_k^{p,t} N_k^{p,t} + a_{k+1}^{p,t} N_{k+1}^{p,t} = b^{p,t-\Delta t}$$

Equation II. 26

Le terme source dépend de la vitesse de germination et est ajouté uniquement dans les classes où se produit la germination, soit la classe contenant le rayon critique $r^{p,*}$ et la suivante. Les équations et le principe d'introduction des nouveaux germes sont détaillés sur la

Figure II. 8. Considérant que les germes formés se répartissent entre la classe contenant le rayon critique, $r^{p,*}$, (classe d'indice k) et la classe suivante (classe d'indice k+1), le terme source doit donc être dissocié.

Le système général correspondant à l'ensemble des écritures de l'Equation II. 26 pour les différentes classes étudiées est résolu selon la méthode TDMA (Tri-Diagonal Matrix Algorithm) [Pre07].

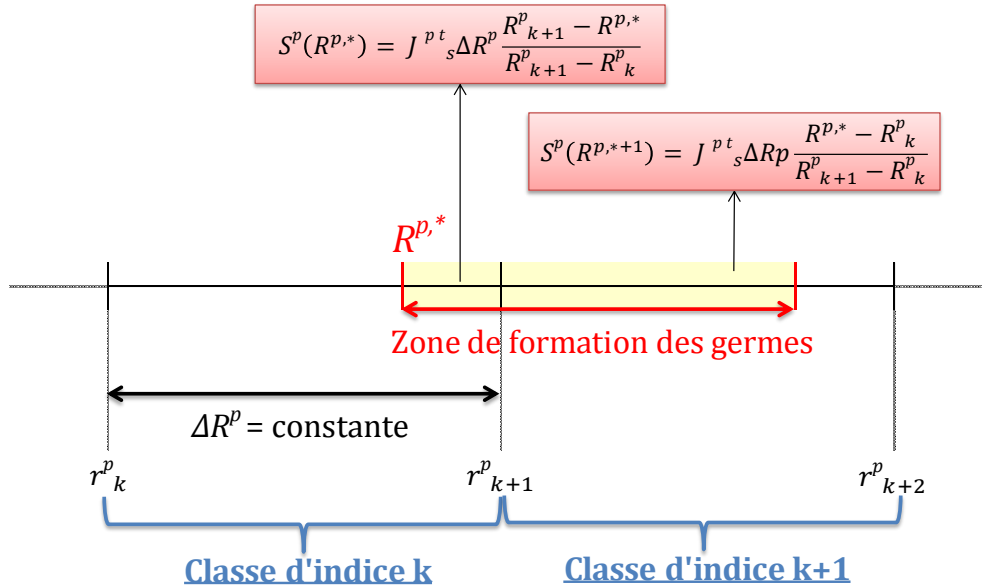


Figure II. 8 : Schéma de principe et équations pour tenir compte de la germination

3.6. Les valeurs moyennes

Il peut être intéressant de connaître les valeurs moyennes des grandeurs étudiées dans le modèle, notamment pour décrire l'évolution générale du système et plus particulièrement pour valider les différents régimes de croissance attendus. Plus spécifiquement, il sera nécessaire de vérifier que le rayon moyen suit bien une évolution en $t^{1/2}$ lors d'un régime de croissance [Aar70] ou en $t^{1/3}$ lors d'un régime de murissement d'Ostwald [Lif61, Wag61].

Deux possibilités de définition du rayon moyen existent. La première, notée R_1^p , pondère le rayon de chaque classe par la densité et est définie par l'Equation II. 27. La seconde, notée R_2^p , pondère le rayon par la fraction volumique et est définie par l'Equation II. 28. Le second choix conduira à des estimations généralement supérieures au premier choix car il donne une plus grande importance aux précipités de grandes tailles. Ce point constitue la principale différence entre les deux estimations :

$$R_1^p = \frac{\sum_{k=1}^{NBC^p} (r_k^p \cdot N_k^p)}{\sum_{k=1}^{NBC^p} (N_k^p)} \quad \text{Equation II. 27}$$

$$R_2^p = \frac{\sum_{k=1}^{NBC^p} \left(\frac{4}{3} \pi (r_k^p)^3 \cdot N_k^p \cdot r_k^p \right)}{\sum_{k=1}^{NBC^p} \left(\frac{4}{3} \pi (r_k^p)^3 \cdot N_k^p \right)} \quad \text{Equation II. 28}$$

avec NBC^p le nombre de classe de précipité p , r_k^p le rayon du précipité et N_k^p la densité de précipités dans la classe k .

D'autres valeurs sont essentielles à définir comme la fraction massique de précipités, afin de pouvoir calculer le flux de chaleur en vue d'une simulation d'un essai DSC mais aussi la fraction atomique pour définir la composition de la matrice lors du bilan de conservation des espèces chimiques. Le choix a été fait de définir ces deux valeurs à partir de la définition de la fraction volumique de précipités.

$$g^p = \sum_{k=1}^{NBC^p} \frac{4}{3} \pi r_k^p{}^3 N_k^p \quad \text{Equation II. 29}$$

La masse totale est définie comme constante dans le cas de cette étude. Connaissant la fraction volumique et la masse totale (m_{tot} en kg) de façon directe ainsi que la masse volumique de la phase considérée (ρ^p en $\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$) et le volume total (V_{tot} en m^3), il est possible de calculer la fraction massique de précipité selon l'Equation II. 29.

$$f^p = \frac{g^p \cdot V_{tot} \cdot \rho^p}{m_{tot}} \quad \text{Equation II. 30}$$

La fraction atomique est calculée connaissant la valeur de la masse molaire de la phase considérée M^p (g/mol) et le nombre de moles total fixe au cours du temps n_{tot} (mole).

$$\chi^p = \frac{g^p \cdot V_{tot} \cdot \rho^p}{M^p n_{tot}} \quad \text{Equation II. 31}$$

3.7. Les critères de convergence

Deux critères de convergence doivent être vérifiés lors des itérations successives qui aboutissent à la définition de l'état du système au temps courant. Ils portent sur la vitesse de germination ε_{j_s} et la composition de la matrice ε_{X^m} . Ils sont calculés entre la valeur obtenue à l'itération courante, (j), et la valeur calculée à l'itération précédente, ($j - 1$). Ils permettent de vérifier que le schéma d'intégration dans le temps de la densité de précipité est convergé.

$$\varepsilon_{J_s} = \left| \frac{J_s^{(j-1)} - J_s^{(j)}}{J_s^{(j)}} \right| < 0.01 \quad \text{Equation II. 32}$$

$$\varepsilon_{X^m} = \max_i \left| \frac{X_i^{m,(j-1)} - X_i^{m,(j)}}{X_i^{m,(j)}} \right| < 0.01 \quad \text{Equation II. 33}$$

3.8. Simulation de la DSC (Differential Scanning Calorimetry)

Afin de définir le flux de chaleur massique Q ($W \cdot kg^{-1}$), il faut définir les enthalpies de chaque phase. Ainsi, en fixant un système monophasé, il est possible de connaître ces enthalpies pour chaque température et composition spécifique. Le flux de chaleur représente l'évolution d'énergie massique du système entre deux instants et dépend des fractions massiques des précipités formés ou dissous.

$$Q = \frac{(h_m^m \cdot f^m + \sum_p h_m^p \cdot f^p)^t - (h_m^m \cdot f^m + \sum_p h_m^p \cdot f^p)^{t-\Delta t}}{\Delta t} \quad \text{Equation II. 34}$$

où h_m^p représente l'enthalpie massique du précipité p , f^p la fraction massique du précipité p , où h_m^m représente l'enthalpie massique de la matrice m , f^m la fraction massique de la matrice m et Δt le pas de temps.

3.9. Les caractéristiques mécaniques

Le phénomène de durcissement structural est lié à plusieurs phénomènes. Dans le cas de l'alliage d'aluminium étudié, Genevois [Gen04] propose les relations suivantes pour la détermination de la dureté du matériau, associée à une population spécifique de précipité. Ces relations traduisent la contribution apportée par différents processus à la dureté du matériau.

La première contribution correspond au durcissement par solution solide lié à la présence d'atomes de soluté induisant des distorsions dans la matrice. Elle est définie et calibrée par Genevois [Gen04] dans le cas d'un alliage AA2024 considéré comme étant pseudo-binaire, c'est-à-dire, ne tenant compte que des compositions en cuivre et magnésium. L'écriture obtenue correspond à l'équation suivante :

$$\sigma_{SS} = 52 + 26 \cdot (X_{Cu} + X_{Mn})^{3/2} \quad \text{Equation II. 35}$$

La seconde contribution σ_k^p est liée directement à la présence de précipités de phase p et de taille r_k^p . L'avantage du modèle de précipitation développé est que l'intégralité de la distribution est connue. Ainsi, il est possible de définir précisément la contribution d'une

classe de précipité suivant son rayon. En effet, un mécanisme de cisaillement intervient si le rayon r_k^p de la classe considéré est inférieur au rayon critique mécanique R_c^p . Dans le cas où le rayon r_k^p dépasse R_c^p , un mécanisme de contournement intervient. L'effet du cisaillement est défini par l'Equation II. 36 et celui du contournement par l'Equation II. 37.

$$r_k^p < R_c^p \rightarrow \sigma_k^p = 0.7M\alpha^{3/2}\mu \sqrt{\frac{r_k^p g_k^p}{b}} \quad \text{Equation II. 36}$$

$$r_k^p > R_c^p \rightarrow \sigma_k^p = K_c\mu \frac{b}{r_k^p} \sqrt{g_k^p} \quad \text{Equation II. 37}$$

avec M le facteur de Taylor, α le module de cisaillement de la matrice, K_c la constante de contournement, b le vecteur de Burgers, μ la constante de contournement, k l'indice de classe de la distribution et p correspondant à l'indice du précipité. Dans la littérature, les zones GPB sont considérées comme pouvant être uniquement cisailées de par leur taille et la phase S uniquement contournée [Gen04,Her10,Sta04]. Néanmoins, ces approches prennent en compte un rayon moyen pour calculer la contribution liée aux précipités et non une discrétisation en taille des particules comme cela est le cas dans cette étude. Cette discrétisation induit possiblement la présence de précipité ayant une taille correspondante au domaine cisailable et d'autres ayant une taille favorisant le contournement du précipité. Il apparait ainsi plus justifier de prendre en compte chaque classe de particules pour chaque phase afin de calculer la contribution mécanique totale. Les précipités constituent des obstacles aux mouvements des dislocations avec des contributions du même ordre de grandeur mais pouvant avoir des densités différentes dans le matériau. L'addition au carré est ainsi utilisée et permet d'obtenir l'Equation II. 38 qui définit la limite d'élasticité du matériau σ_y . Elle est reliée de façon linéaire à la dureté finale du matériau H_V selon l'Equation II. 39.

$$\sigma_y = \sigma_{SS} + \sqrt{\sum_p \left(\sum_k (\sigma_k^p)^2 \right)} \quad \text{Equation II. 38}$$

$$H_V = \frac{\sigma_y + c}{d} \quad \text{Equation II. 39}$$

L'ajustement des paramètres c , d , α et K_c sera détaillé dans la partie calibration du modèle mécanique.

4. Algorithme général

L'algorithme général du modèle est présenté sur la Figure II. 9. Il se décompose en plusieurs étapes détaillées ci-après.

Lecture des données

Lors de cette étape, les données numériques et matériaux sont définies. Les éléments d'alliage et les phases étudiés sont lus. Une vérification de leur correspondance avec les fichiers de données thermodynamiques (Thermocalc) est réalisée.

Pour chaque élément d'alliage, les coefficients de diffusion sont définis. Pour chaque phase, les paramètres de la distribution numérique et des paramètres matériaux sont introduits. La quantité initiale de chaque phase précipitante est également définie.

Initialisation du système général

Au temps 0 secondes, il faut définir la composition initiale de la matrice en fonction de la présence initiale de précipités et de la composition nominale initiale.

Initialisation de l'état du système à un instant t

Afin de pouvoir mener à bien le calcul, il est nécessaire de définir le temps, la température, les coefficients de diffusion selon la loi d'Arrhenius et la composition nominale.

Initialisation du système

Cette étape lors de la première itération permet de définir la composition de la matrice qui va servir de donnée d'entrée pour calculer l'équilibre thermodynamique via le logiciel Thermocalc. Elle a également pour objectif de définir les grandeurs globales du système tel que le volume total. En effet, le système est considéré comme ayant une masse constante. Comme la température et la quantité de précipité varient, le volume total va évoluer au cours du calcul.

Compositions à l'équilibre

Le système considéré prend en compte les précipités étudiés et la matrice avec la composition calculée précédemment, soit à l'initialisation du système, soit après le calcul de précipitation à l'itération précédente. La composition globale pour connaître les compositions d'équilibre est celle de la matrice. Cela permet de définir une force motrice de germination réaliste car elle sera réduite si des précipités sont déjà présents dans le système. Les compositions d'équilibre obtenues sont celles de la matrice et du précipité.

Germination

Lors de cette étape, les volumes molaires et masses volumiques des précipités sont définies via Thermocalc en considérant un système monophasé constitué de la seule phase précipitante. Ces paramètres vont permettre de calculer la vitesse de germination. La valeur de la vitesse de germination à l'itération précédente est conservée pour pouvoir calculer les critères de convergence.

Vitesse

Toutes les vitesses de la distribution sont définies selon la méthode expliquée précédemment. Dans un premier temps, les bornes de vitesse sont fixées, le calcul de la composition à l'interface matrice/précipité est définie soit en utilisant l'approximation de

Laplace (dissolution et/ou croissance) soit en utilisant la solution d'Aaron (uniquement pour la croissance). L'objectif est de définir une vitesse commune à tous les éléments d'alliage pour un précipité de rayon r_k^p . Pour cela, l'algorithme de Brent est utilisé pour résoudre l'Equation 21.

Densité de précipité par classe

Les vitesses calculées précédemment sont utilisées afin de connaître la distribution de particules dans chaque classe de l'histogramme. Les nouveaux germes créés sont également introduits dans le système. L'algorithme TDMA est utilisé pour résoudre le système posé (Equation II. 26). A ce stade, pour une itération donnée et un temps donné l'évolution d'une phase est définie.

Données générales

Les rayons moyens, fraction massiques et atomiques de la phase étudiée sont calculés afin de pouvoir, par la suite, définir le flux de chaleur et la composition de la matrice.

Composition de la matrice

Tous les paramètres des phases précipitantes ont été définis précédemment, donc la composition de la matrice peut être calculée pour un temps et une itération donnée. Avant de la calculer, la composition de la matrice à l'itération précédente est réactualisée afin de pouvoir par la suite vérifier les critères de convergence.

Test de convergence

Afin de vérifier que le schéma d'intégration a convergé et que l'ensemble des équations sont vérifiées, les deux critères de convergence doivent être vérifiés (Equation II. 32 et Equation II. 33). Pour s'assurer que la densité de précipité est correcte, il faut également vérifier qu'elle ne dépasse pas celle autorisée par le calcul. Si ces paramètres ne sont pas respectés, alors l'algorithme est itéré.

Initialiser les valeurs de densités à $t-\Delta t$

Pour pouvoir calculer au pas de temps suivant la distribution de précipités, les valeurs obtenues lors du calcul effectué sont mises à jour pour chaque classe de la distribution.

Flux de chaleur

Lors de la modélisation des essais DSC, le flux de chaleur du système est calculé (Equation II. 34).

Propriétés mécaniques

Connaissant la distribution des précipités, il est possible de définir précisément les propriétés mécaniques à un instant t telles que la limite d'élasticité (Equation II. 38) et la dureté (Equation II. 39).

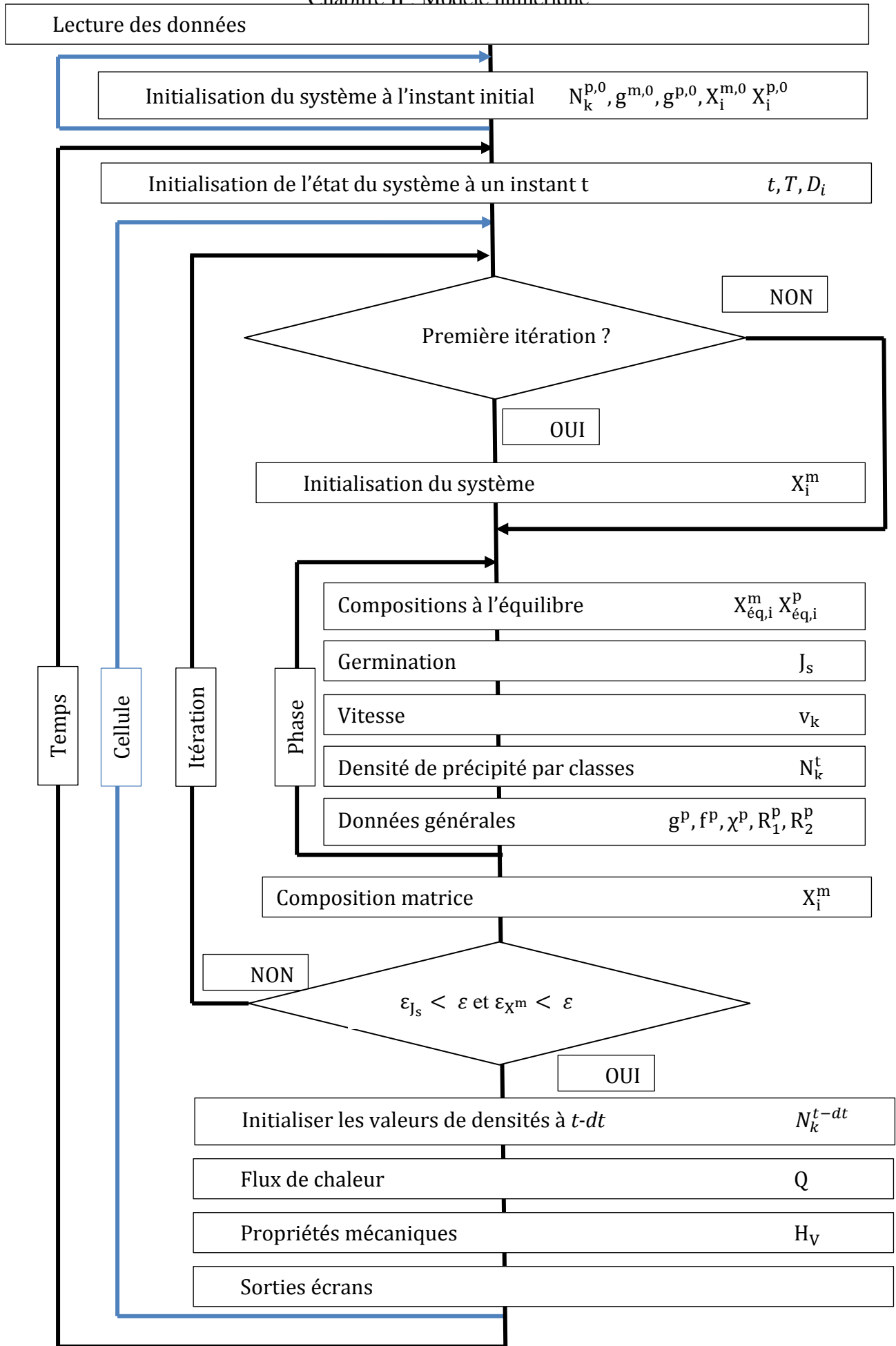


Figure II. 9 : Algorithme général

5. Calibration du modèle microstructural

Plusieurs questions se posent sur la validité de cet algorithme. La première concerne la diffusion numérique du modèle liée à l'utilisation d'un maillage fixe pour définir la distribution en taille de particules. La seconde est la validation de la modélisation des phénomènes de croissance et murissement d'Ostwald des précipités. Afin de s'assurer de la validité de l'approche, et de sa capacité à reproduire les évolutions physiques attendues, une simulation sera réalisée sur un alliage AA2024 en ne prenant en considération que la phase S pour une température de 270 °C. L'apport de la solution d'Aaron par rapport à l'utilisation de l'approximation de Laplace, pour le calcul de la cinétique de croissance, sera naturellement discuté dans cette partie.

5.1. Diffusion numérique du modèle

Afin d'étudier la diffusion numérique liée à l'utilisation d'une approche eulérienne de la distribution en taille de particules, les phénomènes de germination au cours de la simulation et de murissement d'Ostwald sont négligés puisqu'une vitesse de croissance constante quel que soit la taille du précipité est considérée dans l'étude présente. Elle ne dépend ni de la température, ni de la composition interfaciale à l'équilibre, ni de l'énergie de courbure. En faisant varier le pas de temps, il est alors possible de définir un ratio taille de classe/pas de temps limitant au mieux le phénomène de diffusion au cours du temps.

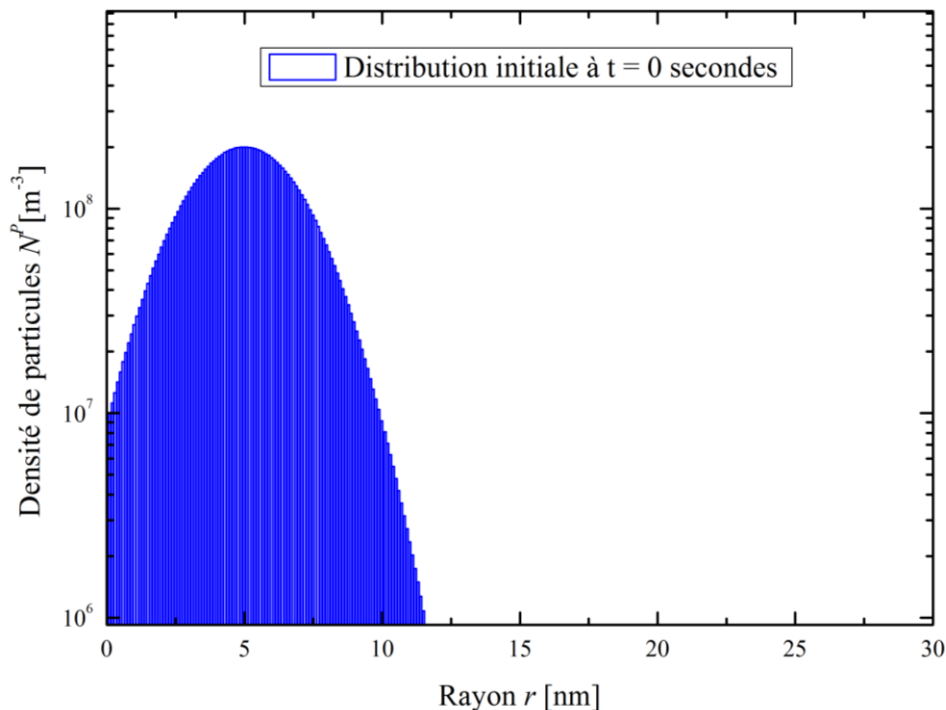


Figure II. 10 : Distribution initiale définie pour l'étude de la diffusion numérique ($r_m=0,1$ nm, $\sigma=2$ nm, $\Delta r = 0,1$ nm et $r_{max}= 30$ nm)

Le rayon seuil minimal de la distribution est fixé égal à 0,1 nm et le rayon seuil maximal de la distribution à 30 nm. La taille de classe est de 0,1 nm. L'écart-type initial est défini

comme étant de 2nm et le rayon moyen est de 5 nm afin d'être plus représentatif des distributions pouvant être obtenues dans le cas de la phase S. La densité initiale de particules est de 10^{10} m^{-3} . La distribution initiale est représentée sur la Figure II. 10. Lors du calcul, cette distribution se déplace à la vitesse de $0,1 \text{ nm.s}^{-1}$. Ainsi, en 1 seconde, les précipités se décalent d'une classe.

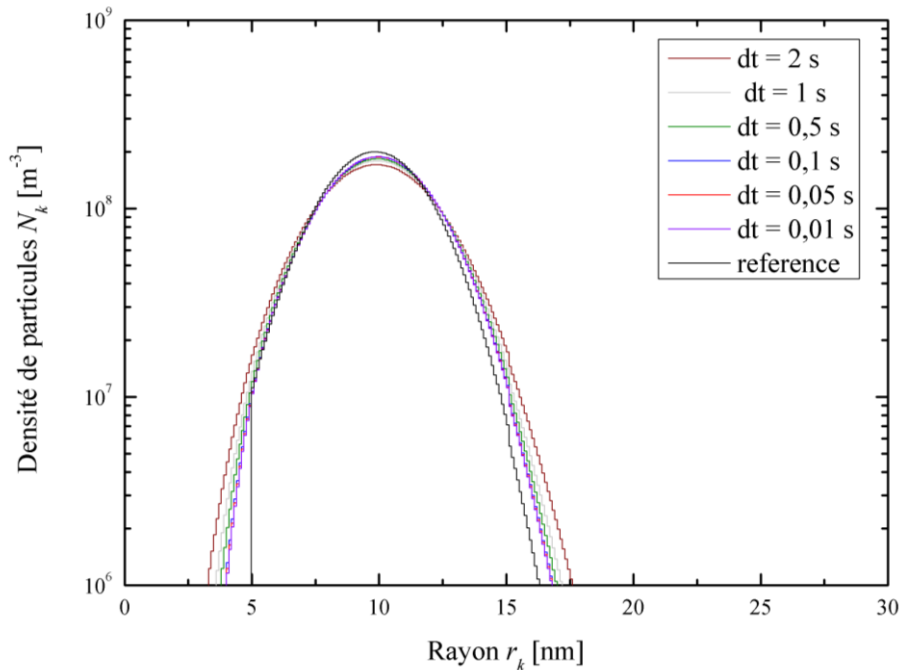


Figure II. 11 : Influence du pas de temps sur la densité de particules pour un temps commun à tous les calculs de 50 secondes

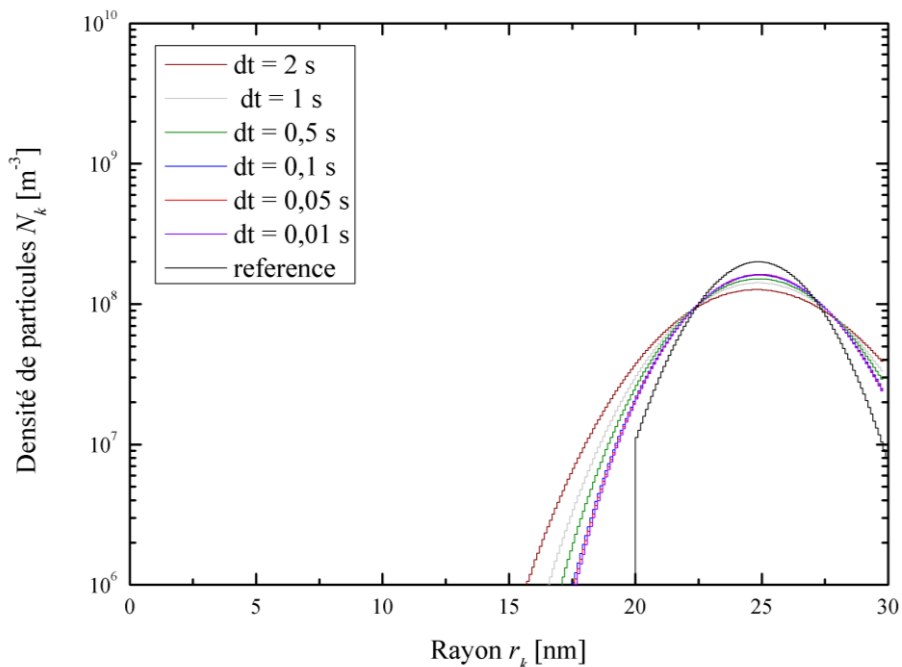


Figure II. 12 Influence du pas de temps sur la densité de particules pour un temps commun à tous les calculs de 200 secondes:

Pour étudier l'impact de la diffusion numérique, plusieurs pas de temps sont utilisés compris entre 0,01 s et 2 s. Une particule se décale d'une classe à chaque seconde au vu de la vitesse fixée et du maillage défini. Pour un même instant donné, les distributions correspondantes aux différents pas de temps sont tracées.

Dans le cas de la Figure II. 11, un étalement de la distribution est observé dès 50 secondes quel que soit le pas de temps choisis. Plus ce pas de temps est faible et plus l'étalement est réduit. La distribution apparait stabilisée pour un pas de temps de 0,1 s, cette distribution étant similaire à celle obtenue pour un pas de temps 2 fois plus faible, à 0,05 s, ou 10 fois plus faible, à 0,01 s. Sur la Figure II. 12, pour un temps de 200 secondes, une partie des précipités disparaissent puisque le rayon maximal autorisé (30 nm) est atteint. Dans le cas des simulations appliquées aux alliages d'aluminium, ce rayon maximal est choisi de sorte qu'aucune particule ne puisse physiquement l'atteindre. Afin d'éviter les effets de bords, les particules dépassant ce rayon maximal sont dissoutes immédiatement. Ainsi, l'écart-type va se réduire dû à la diminution du nombre de classe concernée par la croissance des précipités puisqu'à 300 secondes, la densité totale est fortement diminuée. Toutefois dans le cas d'un pas de temps important et du fait de la diffusion numérique, une certaine quantité de particules restent dans les classes de plus haut rayon ce qui se traduit sur la Figure II. 13 par une densité totale de particules non nulle. Dans tous les cas, ces résultats ne correspondent pas exactement à ceux attendus, qui devraient voir la distribution évoluer linéairement dans le temps, en gardant le profil de distribution initial.

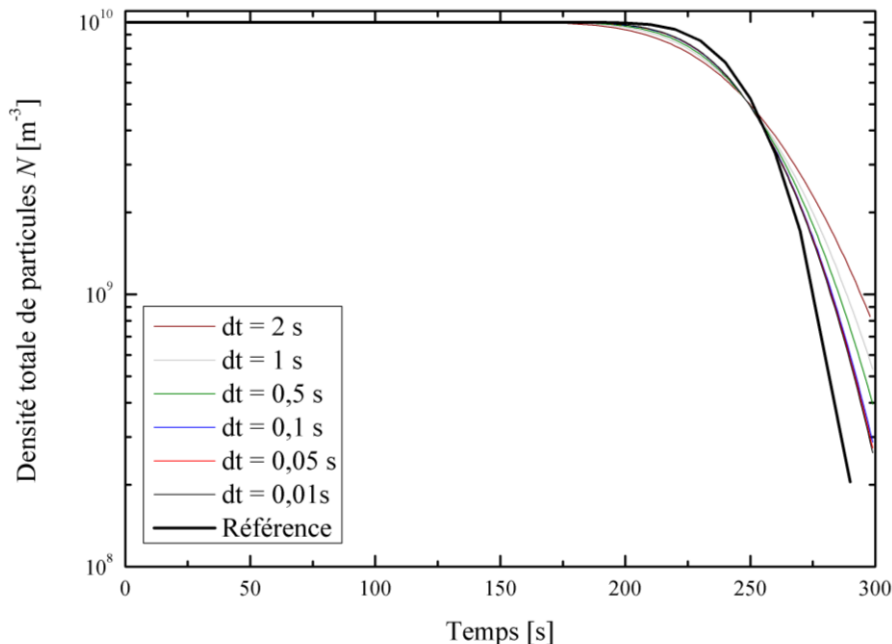


Figure II. 13 : Influence du pas de temps de calcul sur la densité de particules au cours du temps

Sur la Figure II. 13, l'évolution de la densité totale est représentée pour différents pas de temps. Ces évolutions sont à comparer avec la courbe de référence en noir et gras. Il apparait que la conservation du nombre de particules est respectée au début du calcul. Néanmoins, au-delà de 125 secondes et pour un pas de temps de 2 secondes, la densité totale diminue à cause

de la disparition de particules dans les dernières classes de l'histogramme tandis que dans le cas de référence, la diminution de cette valeur intervient plus tardivement et aux alentours de 150 secondes. La conservation du nombre total de particules est améliorée par un écart-type limité et donc par un pas de temps plus faible. Ainsi, pour un pas de temps de 0,01 seconde, l'évolution obtenue est plus proche de l'évolution théorique (courbe de référence).

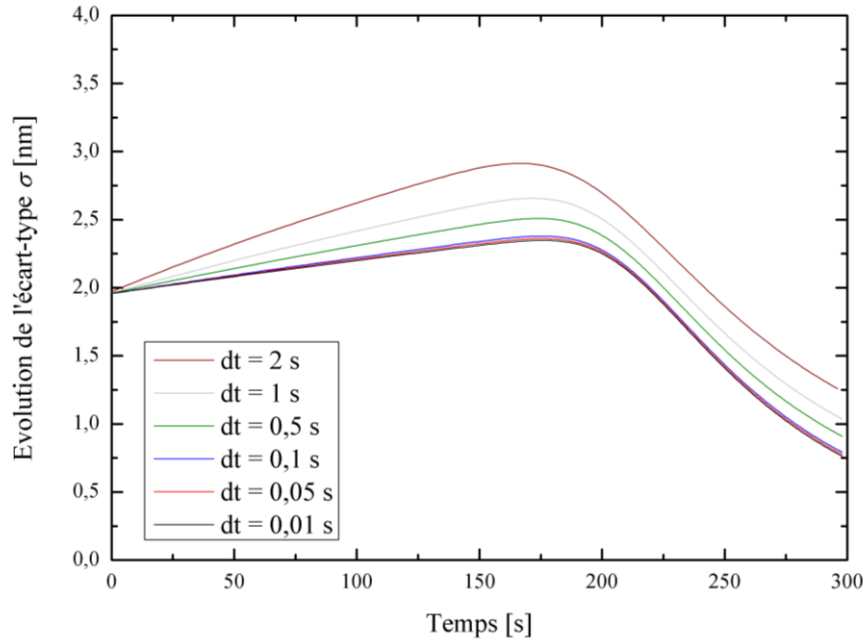


Figure II. 14 : Evolution temporelle de l'écart-type selon le pas de temps dt choisi

Sur la Figure II. 14, l'évolution de l'écart-type en fonction du pas de temps choisi est tracée : une augmentation de cet écart-type a lieu au départ et se réduit dès que les grands précipités disparaissent numériquement. Aucune stabilisation de cet écart-type ne semble avoir lieu, la distribution apparaissant s'étaler linéairement dans le temps. Néanmoins, il est possible de définir un pas de temps de 0,1 secondes en dessous duquel l'évolution de l'écart-type reste constante, comme montré précédemment sur la Figure II. 14.

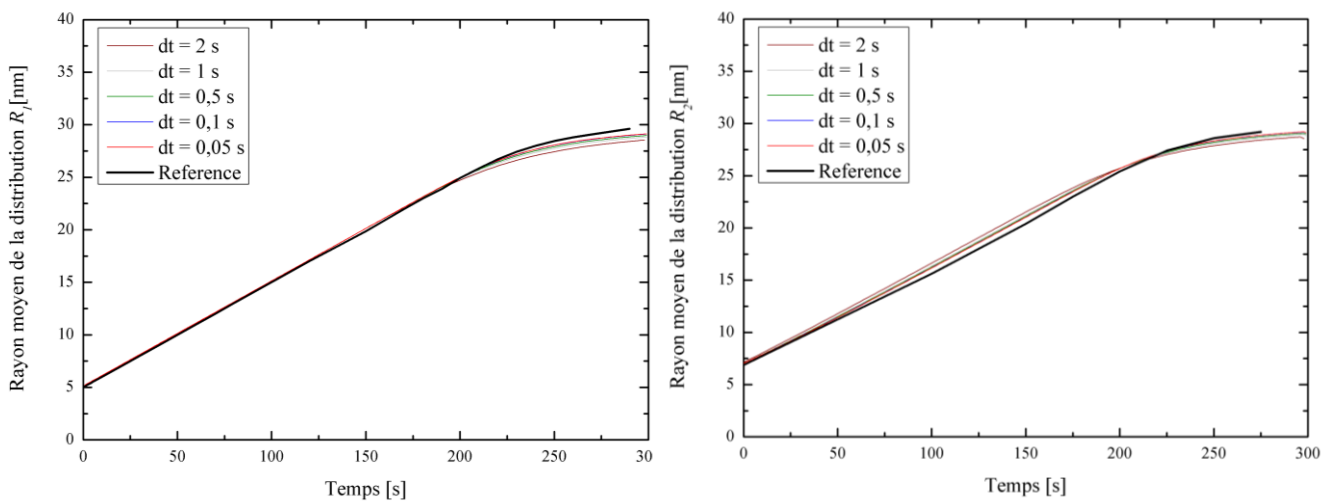


Figure II. 15 : Evolution temporelle du rayon moyen arithmétique R_1 (gauche) et du rayon moyen pondéré par la fraction volumique R_2 (gauche) selon le pas de temps dt choisi.

Afin d'observer l'impact de la diffusion numérique sur les valeurs moyennes, l'évolution du rayon moyen lors de cette simulation a été étudiée. Elle est présentée sur la Figure II. 15. Dans le cas du rayon moyen arithmétique, la superposition des valeurs obtenues par rapport aux rapports de référence est identique jusqu'à 200 secondes. Toutefois, dans le cas du rayon moyen pondéré par la fraction volumique, une surestimation de la valeur du rayon moyen est visible du fait de l'étalement de la distribution. Cet écart est de 0,6 nm pour des rayons calculés de 21 nm à 150 secondes soit un écart de 3% par rapport au rayon théorique. Ainsi, il peut être déduit que la diffusion numérique semble avoir une influence négligeable sur les valeurs moyennes, pour peu que la moyenne soit calculée arithmétiquement. Par la suite, seule cette valeur de calcul sera utilisée.

Pour conclure, afin de limiter la diffusion numérique, il faut choisir un pas de temps de sorte que la vitesse ne permette de croître que d'un dixième de la taille de classe choisie ce qui équivaut à vérifier l'équation suivante :

$$\Delta t < \frac{1}{10} \frac{\Delta r}{\max_k v_k} \quad \text{Equation II. 40}$$

Avec Δt le pas de temps, Δr la taille d'une classe de la distribution et v_k la vitesse maximale de croissance dans l'histogramme.

5.2. Validation pour l'utilisation sur le AA2024 et apport de la solution d'Aaron

Il est nécessaire de prouver que le modèle utilisé permet de retrouver les phénomènes physiques attendus. Cela consiste à vérifier l'intégration des lois de germination et de croissance et celle caractéristique d'un régime de murissement d'Ostwald en régime isotherme, c'est-à-dire de vérifier que les processus de germination, croissance et murissement d'Ostwald attendu sont bien retrouvés, au temps, et avec l'amplitude attendu. Il est, de plus, important de prouver que ce modèle peut être appliqué à l'alliage étudié : le AA2024-T3. Quatre éléments d'addition sont pris en compte: le cuivre, le fer, le manganèse et magnésium. Deux phases sont considérées : la matrice et une phase S, comme indiqué dans le chapitre bibliographique. La température de traitement choisie pour la validation numérique est de 270°C afin de permettre la visualisation des phénomènes de murissement d'Ostwald pour des temps de calcul raisonnables (10^5 secondes soit 24h). Dans le cas de traitement isotherme à 270°C, seule la phase S peut se former et les zones de Guinier-Preston sont dissoutes très rapidement [Gen05]. Elles seront donc négligées dans la suite de ce chapitre qui a pour but unique de démontrer la capacité du modèle à reproduire les processus physiques attendus.

Les données matériaux de cette étude sont regroupées dans le Tableau II. 3 pour les éléments d'addition et dans le Tableau II. 4 pour la phase S. La fraction atomique correspond à celle mesurée expérimentalement et présentée dans le chapitre suivante. Les coefficients D_0 et Q_0 représentent respectivement le terme pré-exponentiel de la loi de diffusion d'Arrhenius

et l'énergie d'activation et permettent de calculer le coefficient de diffusion Q_i pour un élément i diffusant dans la matrice cubique face centrée riche en aluminium à une température T donnée selon l'équation :

$$Q_i(T) = D_{0,i} \exp\left(-\frac{Q_{0,i}}{RT}\right) \quad \text{Equation II. 41}$$

Ces coefficients ont été obtenus par extrapolation à basse température d'après la loi d'Arrhénius d'après des données obtenues pour des températures supérieures à 250°C via l'utilisation de la base de données thermodynamique Thermocalc [The01]. Les autres données ont été choisies arbitrairement mais du même ordre de grandeur que les données estimées dans la littérature [Per12,Ser04] afin de pouvoir obtenir les différentes évolutions caractéristiques nécessaires pour la calibration du modèle numérique : germination, croissance et murissement d'Ostwald. La calibration exacte du modèle sera présentée dans le Chapitre IV.

Initialement, aucun précipité n'est présent, et le système est composé de la seule matrice, constituée des éléments aux fractions atomiques indiquées.

Tableau II. 3 : Données matériaux spécifiques aux éléments d'addition pour la simulation de la précipitation dans un alliage d'aluminium AA2024

	Fraction atomique X_i^0	$D_{0,i}[\text{m}^2.\text{s}^{-1}]$	$Q_{0,i} [\text{J}.\text{mol}^{-1}]$
Cu	0,01482	$4,69.10^{-5}$	134146
Fe	0,0003	$9,65.10^{-2}$	165147
Mg	0,01997	$1,99.10^{-5}$	120069
Mn	0,002	$1,41.10^{-7}$	126015

Tableau II. 4 : Données matériaux spécifiques à la phase précipitée pour la simulation de la précipitation dans un alliage d'aluminium AA2024

	Phase S (Al_2CuMg)
Energie interfaciale $\gamma^{m/p}[\text{mJ}.\text{m}^{-2}]$	102
Angle de mouillage $\vartheta^S [^\circ]$	30
Densité totale de sites de germination $N_{tot}^S [\text{m}^{-3}]$	10^{24}
Rayon maximal $r_{max}^S [\text{nm}]$	100
Rayon minimal $r_{min}^S [\text{nm}]$	0,1
Nombre de classes NBC^S	3000

Afin de valider la modélisation, les évolutions de densités de précipités (Figure II. 16), des rayons moyens (Figure II. 17) et de la fraction volumique (Figure II. 18) sont étudiées. L'explication des différents phénomènes est menée en ne prenant en considération que la simulation réalisée avec la solution d'Aaron dans le cas de la croissance et avec la solution de Laplace dans le cas de la dissolution. Néanmoins, la validation de ces approches par rapport à des évolutions théoriques est effectuée en parallèle pour la simulation prenant en compte croissance et dissolution avec l'approximation de Laplace. L'influence du choix de l'approximation de Laplace, par rapport à la solution d'Aaron dans le cas de la croissance des précipités, est présentée par la suite. Sur chaque figure, les courbes résultant de calcul via la

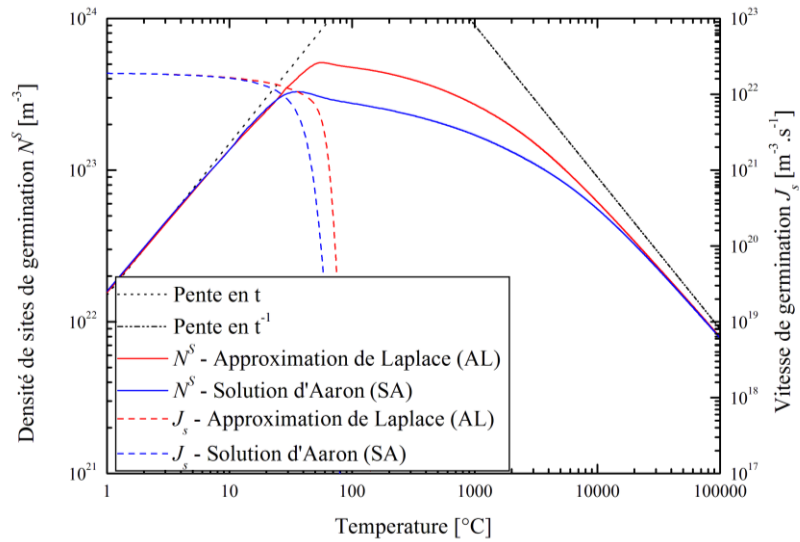


Figure II. 16 : Evolution de la densité de sites de germination (trait plein) et de la vitesse de germination (traits pointillés) de la phase S au cours d'un traitement isotherme à 270°C

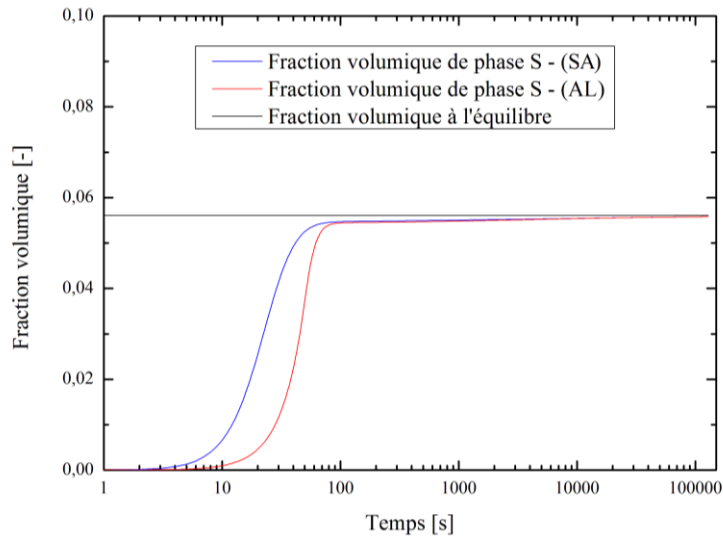


Figure II. 17 : Evolution du rayon critique de germination (pointillé) et du rayon moyen arithmétique R_1^p (trait plein) de la phase S lors d'un traitement isotherme à 270°C

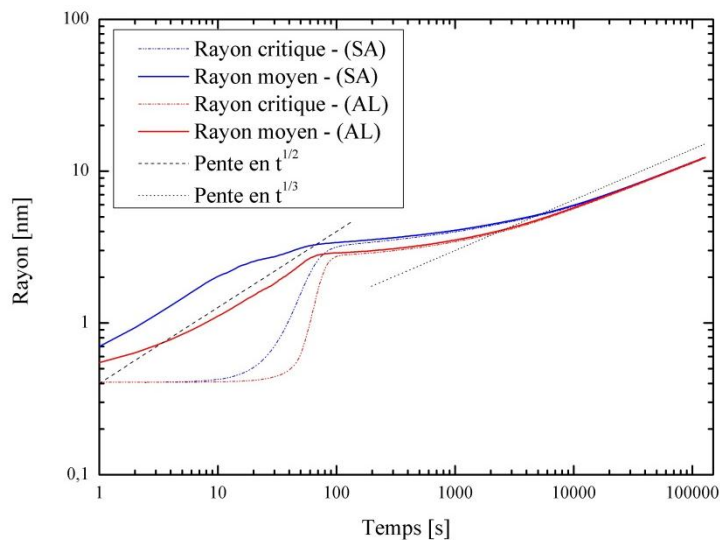


Figure II. 18 : Evolution de la fraction volumique de la phase S lors d'un traitement isotherme à 270°C

solution d'Aaron (SA) sont présentées en bleues et celles obtenues via l'approximation de Laplace (AL) sont présentées en rouge.

Germination/Croissance (1 à 80 secondes)

La germination correspond à l'apparition de nouveaux germes ayant un rayon égal au rayon critique de germination. Numériquement, ce phénomène se traduit par l'augmentation de la densité de particules (Figure II. 16) entre 1 et 30 secondes. Toutefois, au vu de l'augmentation forte du rayon moyen (Figure II. 17), le phénomène de croissance se produit de manière concomitante à la germination. Connaissant l'évolution de la distribution de précipités, il est possible de définir l'évolution de la fraction volumique. Trois régimes différents sont visibles dans ce cas : le premier se situe entre 0 et 5 secondes avec une évolution très lente, le second entre 5 et 30 secondes met en évidence un évolution très rapide et forte de la fraction volumique, le troisième entre 30 et 80 secondes se traduit par un ralentissement de l'évolution de la fraction volumique menant à une stabilisation. Il peut être déduit de ces observations que, entre 0 et 5 secondes, le phénomène de germination est prépondérant dans le système avec une forte évolution de la densité de particules mais avec un rayon encore trop faible pour affecter de manière significative la fraction volumique. Sur la Figure II. 17, un point d'inflexion sur la courbe du rayon moyen est visible à 2 secondes. Par la suite, le phénomène de croissance induit une augmentation rapide du rayon moyen qui se traduit par une augmentation forte de la fraction volumique. Enfin, vers 30 secondes, l'évolution du rayon moyen devient plus faible. En contrepartie, le rayon critique augmente fortement pour atteindre la même valeur que le rayon moyen traduisant la fin progressive de la germination. Ce phénomène est également visible sur la Figure II. 16 avec un arrêt de l'augmentation de la densité de particule à partir de 30 secondes.

Afin de valider cette partie, des pentes caractéristiques doivent être retrouvées. Dans le cas de l'évolution de la densité de particules, une pente en t , caractéristique d'un régime de germination, doit être observée [Ser04]. Elle est schématisée sur la Figure II. 16 par une courbe en pointillés fins. Cette droite est bien parallèle à la courbe obtenue, tant dans le cas d'une simulation avec l'utilisation de la solution d'Aaron que dans le cas d'une simulation avec l'approximation de Laplace, les deux cinétiques de croissance retrouvant la pente attendue. Dans le cas de l'évolution du rayon moyen, une pente en $t^{1/2}$, caractéristique d'un régime de croissance, doit être retrouvée. Elle apparaît sur la Figure II. 17 en pointillé sous forme de traits tirés. Dans les deux cas (solution d'Aaron et approximation de Laplace), cette droite est parallèle aux résultats obtenus, et la loi d'évolution attendue est retrouvée.

Les deux approches étudiées, tant l'approximation de Laplace classiquement utilisée dans la littérature, ou la solution d'Aaron étendue à un alliage multi-composés proposée ici, permettent de produire des résultats en accord avec les théories classiques de la germination et de la croissance et sont donc parfaitement utilisables dans le cadre de cette étude. Le modèle développé donne des résultats en accord avec les phénomènes physiques attendus, et retrouve bien l'ensemble des évolutions physiques des régimes de germination et de croissance.

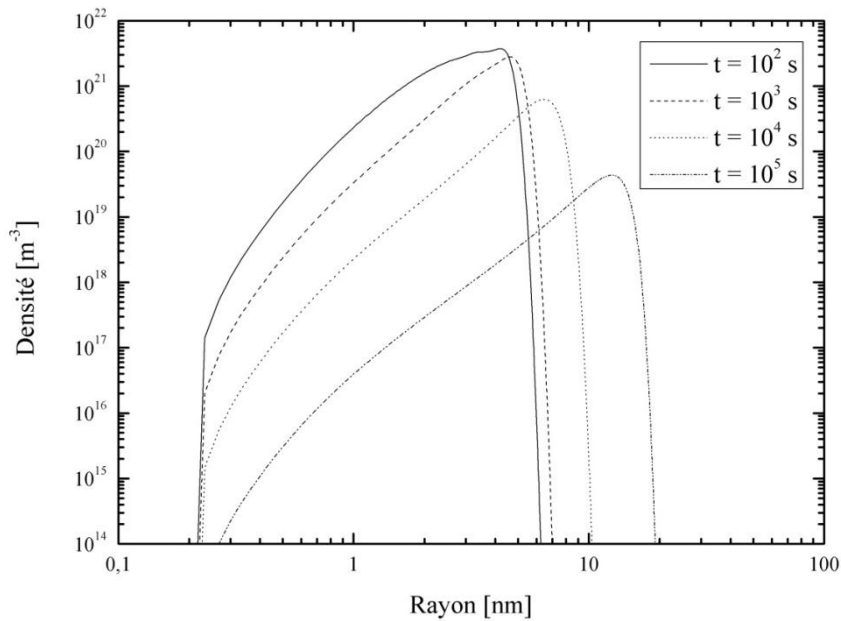
Transition

La transition entre les régimes de germination et de croissance est relativement longue dans le cas étudié (80 et 10000 secondes). Ce temps est lié à l'importance des coefficients de diffusion. Ce domaine de transition se traduit par une densité de germe diminuant sensiblement (Figure II. 16) (le rayon critique s'étant rapproché de R^*), un rayon moyen (Figure II. 17) augmentant légèrement et une fraction volumique (Figure II. 18) continuant de croître très faiblement.

Murissement d'Ostwald

Le régime de murissement d'Ostwald se traduit par la dissolution des précipités ayant de faibles rayons au profit de précipités de rayons plus grands. A partir de 10000 secondes, la fraction volumique (Figure II. 18) est constante au cours du temps, la densité de particule (Figure II. 16) diminue en suivant la pente en t^{-1} caractéristique du régime de murissement d'Ostwald et le rayon moyen (Figure II. 17) augmentent en suivant la pente en $t^{1/3}$ également caractéristique d'un régime de murissement d'Ostwald selon la théorie LSW [Lif61, Sil60, Wag61]. Ces évolutions sont également visibles dans le cas de l'approximation de Laplace.

L'évolution de la distribution pour un régime de murissement d'Ostwald est présentée sur la Figure II. 19. Elle peut être comparée avec la distribution obtenue au cours des différents régimes. A 100 secondes, le régime de germination/croissance est fini et la distribution en trait plein est obtenue. Par la suite, la distribution pour le régime transitoire est présentée à 1000 secondes. La distribution se décale vers les précipités de rayons plus élevés en conservant toujours son allure initiale. Néanmoins, la légère diminution du nombre de particules observé sur la Figure II. 16 est due à une diminution de la densité de particules dans les classes de plus faibles tailles. Ce phénomène s'accroît à 10 000 secondes et marque le début du régime de murissement d'Ostwald. La distribution obtenue à 100 000 secondes, dans le cas d'un régime de murissement d'Ostwald, met en évidence une aire sous la courbe plus faible qu'aux temps précédents due à une diminution de la densité totale de particules. L'ensemble des classes de rayon inférieures à 10 nm voient leur densité de précipité diminuée, au bénéfice des classes de rayons supérieures à 10 nm. L'étalement de la distribution, observé simultanément, apparaît favorable aux précipités de rayons plus élevés et le rayon moyen continue de croître lentement, la sursaturation chimique étant plus réduite. A l'inverse, afin de pouvoir conserver une fraction volumique constante, les précipités de petites tailles se dissolvent ce qui se traduit par une diminution de leur densité au cours du temps, et un abaissement de la courbe de densité sur sa partie inférieure.



**Figure II. 19 : Evolution de la distribution en taille de particules au cours du temps
(100 secondes : trait plein, 1000 secondes : trait tirés sous forme ,
10 000 secondes : traits pointillés fins, 100 000 secondes :trait pointillé point-tiré alterné)**

La modèle utilisé permet de décrire le phénomène de murissement d'Ostwald correctement. Ceci est rendu possible par l'utilisation d'une distribution en taille de particules ainsi que par la prise en compte de l'effet Gibbs-Thomson lors des calculs d'équilibre interfaciaux, modifiant ainsi les compositions d'équilibres interfaciaux des différentes classes.

Solution d'Aaron/Approximation de Laplace

Deux approches sont étudiées dans cette partie. Les équations du système sont identiques en termes de germination, de calcul de la cinétique de dissolution et de calcul de la distribution. Elles diffèrent par les approches de calcul de vitesse de croissance des particules. La première méthode, la solution d'Aaron (SA) permet d'obtenir les valeurs de vitesse sans que l'évolution temporelle des compositions dans la matrice soit négligée, tandis que la seconde méthode, l'approximation de Laplace, considère que le champ de composition dans la matrice est indépendant du temps, au moins dans la démarche de calcul de la cinétique de croissance.

Sur la Figure II. 16, l'évolution de la densité dans le cadre de l'approximation de Laplace est caractéristique du régime de germination. Il apparait donc clairement qu'en début de calcul, jusqu'à 30 secondes, la germination n'est pas affectée par le choix fait sur le calcul des vitesses. Toutefois, au-delà de 30 secondes, la germination se poursuit dans le cas de l'approximation de Laplace tandis que ce régime a pris fin en solution d'Aaron. Cela est notamment dû au fait que les cinétiques de croissance étant différentes et les tailles de précipités évoluant plus rapidement avec la solution d'Aaron (Figure II. 16), la matrice voie

sa composition évoluer également plus rapidement vers la composition d'équilibre, ce qui interrompt précocement les processus de précipitation. Ainsi, il apparaît sur la Figure II. 20 que les éléments présents dans le précipité (cuivre et magnésium) vont voir leur concentration diminuer dans la matrice pour atteindre la valeur d'équilibre tandis que les éléments absents dans la composition du précipité (fer et manganèse) vont voir leur concentration augmenter dans la matrice.

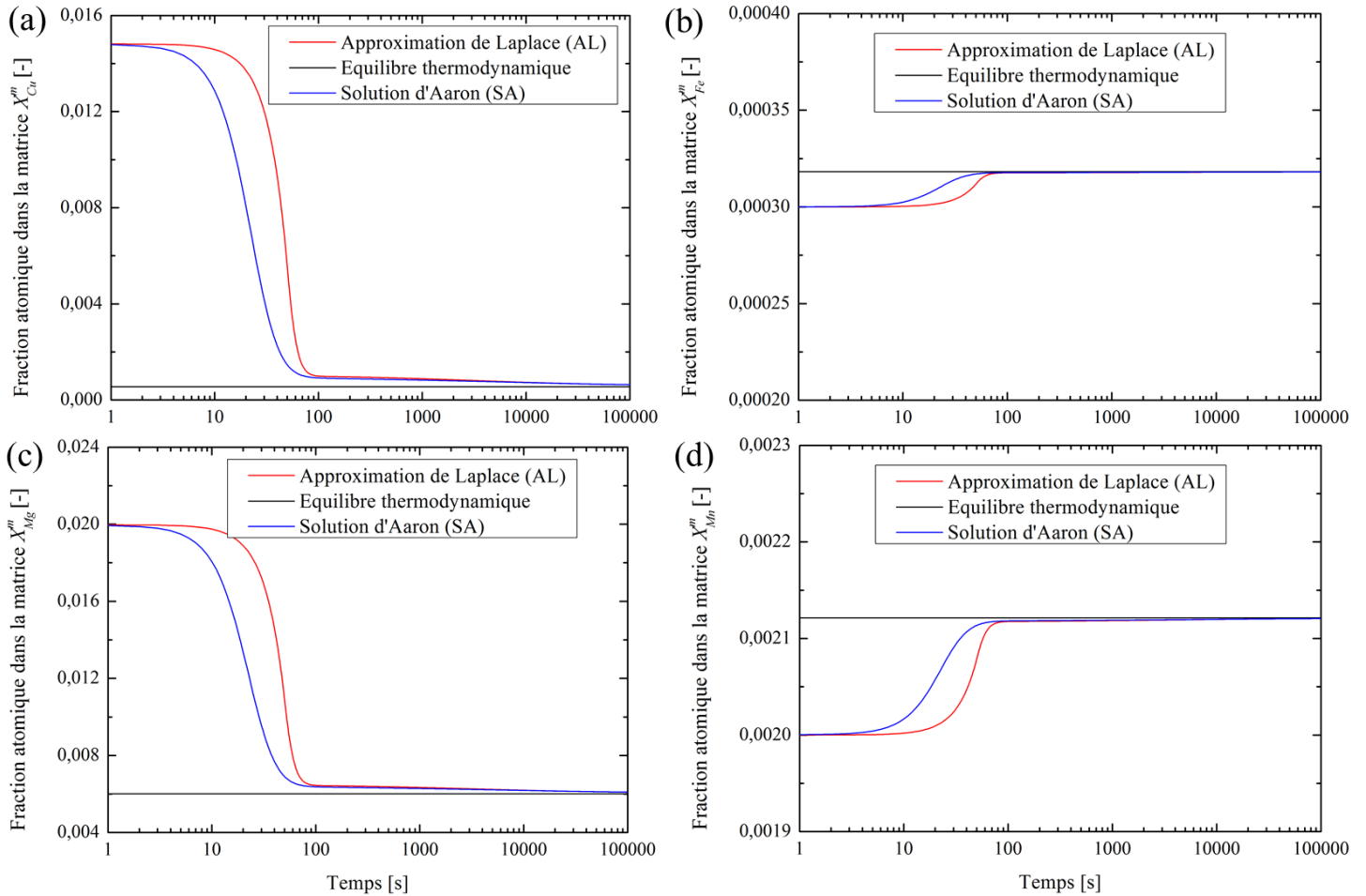


Figure II. 20 : Evolution des compositions des éléments d'alliages au cours du temps (a) cuivre, (b) fer, (c) magnésium et (d) manganèse pour un traitement isotherme à 270°C.

Sur la Figure II. 17, le rayon moyen calculé dans le cadre de l'approximation de Laplace est plus faible que celui obtenu avec la solution d'Aaron. De cette observation, il peut être déduit que la vitesse de croissance obtenue est plus faible dans le cas de l'approximation de Laplace. La différence est clairement mise en évidence sur la Figure II. 19 représentant les évolutions de la constante cinétique λ_i selon la valeur de la sursaturation Ω_i . On voit clairement que, à sursaturation donnée, la valeur de λ_i est plus faible dans l'approximation de Laplace que pour la solution d'Aaron, et donc la cinétique également plus réduite. Un facteur 2 est déjà visible pour une sursaturation de 0.5. Les cinétiques de croissance plus faibles avec l'approximation de Laplace se retrouvent sur la Figure II. 17, où les rayons moyens sont plus réduits. De même, la vitesse de croissance, v , est proportionnelle à la constante cinétique, λ_i

(pour une espèce chimique i donnée) et est défini pour un temps donné, t , par l'équation suivante :

$$v = \frac{\lambda_i \sqrt{D_i}}{2\sqrt{t}} \quad \text{Equation II. 42}$$

La diminution de la constante cinétique conduit donc à des vitesses également plus réduites.

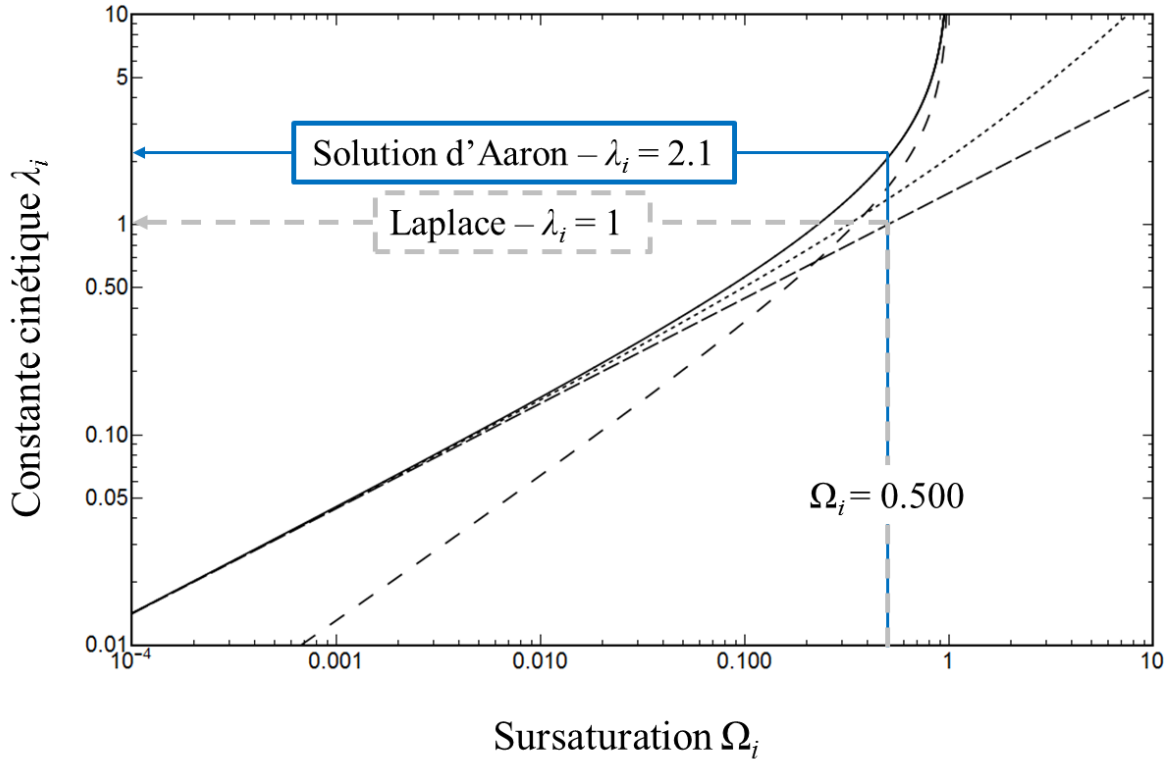


Figure II. 21 : Influence du choix du calcul de vitesse pour des sursaturations élevées.

Plus particulièrement, il faut noter le régime de valeur de Ω_i dans lequel le calcul se réalise, ce terme dépendant également des différents éléments d'alliages rencontrés. Dans le cas de cette étude, la sursaturation obtenue pour la vitesse convergée en début de calcul pour les différents éléments d'alliage est suffisamment faible ($< 0,3$) pour justifier l'égalité des deux expressions de la sursaturation, selon la Figure II. 21, sauf dans le cas du manganèse. Pour ce dernier élément, la sursaturation est trop élevée ($> 0,7$), et les deux expressions diffèrent. Ainsi, la constante cinétique est sous-estimée par l'approximation de Laplace et la valeur de vitesse est, au bilan, inférieure à celle attendue. Ce décalage explique l'écart observé au niveau des rayons moyens (Figure II. 17). De plus la phase de croissance étant ralentie, la fraction volumique va être inférieure à celle obtenue dans le cas de la solution d'Aaron pour le régime de germination/croissance. Les éléments de soluté ayant été moins consommés par la phase de croissance, ils sont disponibles pour la germination, et ce processus se produit plus longtemps. Ceci se traduit par une augmentation de la densité entre 30 et 60 secondes dans le cas de l'approximation de Laplace alors que la germination s'est arrêtée dans le cas de la solution d'Aaron (Figure II. 16). La forte augmentation de fraction volumique est également décalée dans le temps (Figure II. 18).

Néanmoins, la sursaturation du manganèse au cours du calcul diminue jusqu'à atteindre une valeur suffisamment faible pour permettre aux deux expressions (approximation de Laplace et solution d'Aaron) de donner les mêmes résultats. Ainsi, le régime de murissement d'Ostwald apparaît au même instant et les évolutions globales de densité (Figure II. 16), de rayon moyen (Figure II. 17) et de fraction volumique sont identiques via les deux approches (Figure II. 18).

Dans le cadre de cette étude sur l'influence du choix de calcul des vitesses de croissance des particules, il apparaît que, tant que les conditions en terme de sursaturation sont faibles (sursaturation inférieure à 0,3), l'approximation de Laplace est utilisable. Toutefois, elle n'est pas suffisamment robuste et génère des erreurs importantes dans le cas contraire. De plus, il faut noter que l'expression de la solution de Laplace n'interdit pas aux sursaturations de dépasser la valeur de 1 (Figure II. 19) alors que ce domaine de valeur n'est pas autorisé. Ainsi par la suite de cette étude, la vitesse de croissance des particules sera toujours calculée selon la méthode de la solution d'Aaron.

6. Conclusion

Toutes les hypothèses du modèle ont été explicitées dans ce chapitre. Les équations permettant la prise en compte de façon concomitante des phénomènes de germination, croissance et murissement d'Ostwald ont été détaillées. Les équations permettant la calibration du modèle suivant des essais DSC ou mécaniques ont été présentées.

Une étude sur les paramètres du maillage et sur l'étalement de la distribution a été effectuée afin de déterminer les conditions de calcul limitant les dispersions numériques du modèle, dues aux méthodes de résolution. L'application du modèle dans le cadre d'une simulation isotherme a également permis de prouver que les différents régimes au cours d'un maintien en température pouvaient être simulés correctement pour l'alliage d'étude. La nécessité d'utiliser la solution d'Aaron pour déterminer la cinétique de croissance des précipités a été démontrée.

Afin de modéliser les évolutions microstructurales et pouvoir prédire les propriétés finales du cordon FSW, il faut connaître précisément l'évolution de température pour une particule donnée. Ainsi, l'utilisation de capteurs dans le code macroscopique développé par Gastebois permet de définir une évolution spatiale et thermique d'un point donné assimilé à un volume de matière, et dénommé cellule d notre modèle. Ce suivi constituera une entrée du modèle, et permettra de simuler l'évolution des populations de précipités dans la cellule d'étude et ses propriétés mécaniques finales. Par la suite, les cartes de duretés sur les soudures pourront être reconstruites.

CHAPITRE III : Méthodes et matériaux

Le modèle introduit dans le précédent chapitre doit être validé par l'intermédiaire de résultats expérimentaux, pour en montrer la représentativité et la fiabilité mais aussi mettre en évidence ces limites. Ainsi, dans ce chapitre, une présentation des différentes techniques utilisées pour obtenir ces résultats et mesures expérimentales est proposée.

Dans un premier temps, les méthodes expérimentales développées pour la caractérisation microstructurale et mécanique du matériau d'étude seront présentées. La réalisation des essais FSW est également détaillée dans cette partie. En s'appuyant sur les méthodes de mesures, les caractéristiques du matériau initial seront ainsi précisées dans une seconde partie. Ces caractéristiques permettront de justifier les hypothèses du modèle numérique.

1. Méthodes expérimentales

1.1. Essai FSW

La simulation des processus de précipitation dans les alliages d'aluminium, et de l'effet induit sur les propriétés mécaniques des assemblages, a pour cadre applicatif la modélisation du procédé de soudage FSW. Ce modèle doit pouvoir être calibré sur les évolutions microstructurales mesurées expérimentalement. A cet effet, des analyses ont été réalisées pour un ensemble de paramètres procédés permettant d'obtenir différentes évolutions thermomécaniques dans le cordon de soudure et donc différents états microstructuraux.

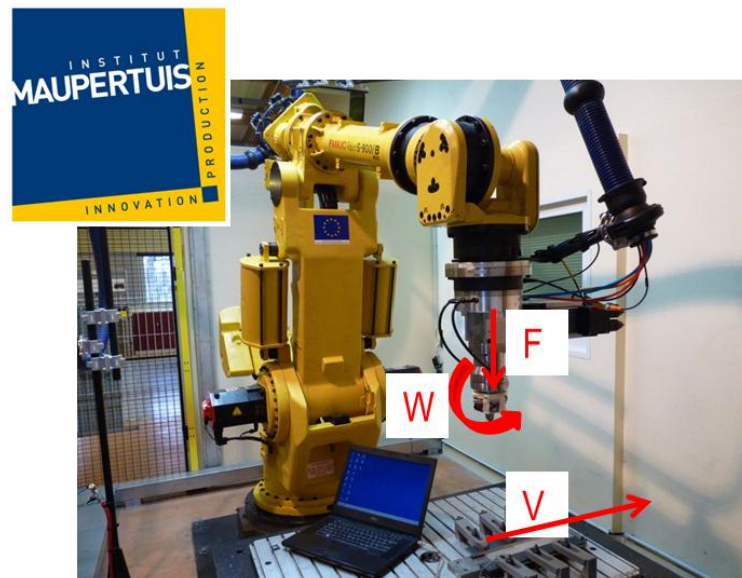


Figure III. 1 : Robot FSW utilisé pour la réalisation de soudures en pleine tôle d'épaisseur 2,5 mm, sur l'alliage AA2024 (institut Maupertuis – Rennes)

Ces essais ont été réalisés à l'institut Maupertuis (Rennes), dans le cadre d'une campagne menée par la société Daher pour développer l'application des procédés FSW à l'assemblage

de pièces aéronautiques. Ils ont permis la calibration des modèles macroscopiques (prédiction des défauts de soudure) et microscopiques (propriétés mécaniques finales). Dans le cadre de la seconde calibration et afin de pouvoir définir les évolutions de fraction volumique et des propriétés mécaniques dans le cordon de soudure, les essais décrits ici ont été effectués sur des tôles AA2024 d'épaisseur 2,5 mm. Cette configuration de soudage présente l'avantage de pouvoir prélever des échantillons nécessaires à la caractérisation de l'état de précipitation et également de réaliser des essais de traction pour établir le lien entre propriétés microstructurales et caractéristiques mécaniques. Les tôles ont préalablement été nettoyées à l'alcool et polies en surface afin de limiter la présence d'oxydes. Elles sont ensuite placées sur la plaque support en acier et bridées. La plaque support et les mors au nombre de 6, sont visibles en bas de la Figure III. 1. Le robot utilisé est un Fanuc S900iB/400 RJ3iB avec une tête adaptée au soudage FSW développée par l'institut Maupertuis. Cette tête est équipée d'un capteur de mesure d'efforts et effectue des trajectoires linéaires en contrôle de force (Figure III. 1, direction V). L'outil utilisé possède un diamètre de 3 mm, une hauteur de 2,3 mm et un épaulement de diamètre 9 mm. Le soudage est réalisé parallèlement à la direction de laminage.

Les paramètres procédés sont illustrés sur la Figure III. 1. Ils sont au nombre de 3 : la force de l'outil (F), la vitesse de rotation (W) et la vitesse d'avance du pion (V). Les deux premiers paramètres sont gardés constants au cours du procédé afin de pouvoir étudier l'influence du troisième pour lequel trois valeurs différentes sont choisies. Cependant dans le cas de l'essai A (essai lent/échauffement important), la force utilisée a dû être réduite à -4000 N pour éviter de casser l'outil. Cet essai permet de bien observer les différentes évolutions microstructurales pouvant avoir lieu lors d'un soudage FSW. L'effort utilisé pour cet essai diffère donc de celui utilisé pour les deux autres vitesses d'avance. Pour chaque jeu de paramètre procédé, trois soudures ont été effectuées afin de vérifier la répétabilité de l'essai réalisé. Les jeux de paramètres procédés retenus sont détaillés dans le Tableau III. 1.

Tableau III. 1 : Essais réalisés et paramètres procédés retenus

Essais	Vitesse d'avance (V) [mm·s ⁻¹]	Vitesse de rotation (W) [rpm]	Force (F) [N]
A	1	1200	-4000
B	2	1200	-4800
C	4	1200	-4800

Le jeu de paramètres de l'essai A va permettre d'obtenir des températures élevées dans le cordon de soudure et constituera ainsi la soudure la plus chaude de cette campagne d'essai. Les soudures effectuées avec le jeu de paramètres C seront les moins échauffées et seront donc considérées comme des soudures froides ici. Pour chaque essai une macrographie a été effectuée afin de vérifier la qualité de la soudure ainsi que la reproductibilité des défauts.

Des découpes adaptées à la morphologie de chaque soudure ont été effectuées pour pouvoir être analysées en DSC et caractériser l'état microstructural de précipitation. Il est à noter que les essais de microdureté Vickers, réalisés sur les soudures FSW étudiées, ont été effectués au même instant de vieillissement que les échantillons caractérisés en DSC pour

s'assurer d'une corrélation la plus fiable possible entre microstructure et propriétés mécaniques.

1.2. Calibration du modèle numérique

Le procédé FSW induit des déformations mécaniques importantes et des évolutions thermiques non mesurables en cœur de soudure (noyau). Il est donc impossible de calibrer directement un modèle microscopique sur ce type d'essai en raison de la complexité de l'évolution thermomécanique des matériaux lors de l'assemblage et de l'impossibilité de réaliser des mesures locales de cette évolution. Ainsi, deux essais, plus simples et conduisant à faire subir au matériau d'étude des évolutions thermiques connues sont développés. Ces essais s'apparentent à des traitements thermiques. Le premier essai est anisotherme et destiné à vérifier que le modèle suit bien la cinétique de croissance observée pour les précipités. Le second essai est isotherme pour définir un lien entre microstructures et propriétés mécaniques.

Essai anisotherme

Afin de pouvoir calibrer la cinétique du modèle de précipitation, la simulation des courbes DSC (Differential Scanning Calorimetry) est effectuée, selon le modèle détaillé au chapitre II. Deux vitesses de chauffe sont choisies : $10\text{ °C}\cdot\text{min}^{-1}$ et $300\text{ °C}\cdot\text{min}^{-1}$. Avec l'augmentation de la vitesse de chauffe les pics caractéristiques de la précipitation et de la dissolution vont être décalés vers les plus hautes températures.

Dans le cas des caractérisations en chauffe, le matériau de base est utilisé et subit la montée en température. Ainsi, les hypothèses initiales du modèle sont appliquées. Les zones de Guinier-Preston sont en quantité maximale et la phase S n'est pas présente.

Essai isotherme

Afin de définir le lien entre état microstructural et propriétés mécaniques, un essai isotherme à 190 °C a été effectué pour observer l'évolution de la phase S, principale phase durcissante considérée dans cet alliage. Pour cela, plusieurs lots sont introduits dans un four préchauffé à 190 °C , ceci afin de limiter les phénomènes d'overshoot (le four atteint une température supérieure à la température de consigne pendant quelques instants) Chaque lot contient 2 éprouvettes de traction, 2 pastilles DSC et 1 pièce permettant l'étude de la microstructure et la mesure de la microdureté. Le lot est retiré du four à un instant donné et trempé à l'eau pour figer la microstructure et donc pouvoir observer les évolutions des états métallurgiques selon le temps de maintien.

Les tailles et morphologies des précipités S sont étudiées en MET (microscopie en transmission), la fraction relative de précipités est déterminée par analyse DSC. Via l'analyse en MET-EDS (Energy dispersive spectrometry), il est possible de mesurer l'évolution de la

composition de la matrice avec la formation des précipités. Les propriétés mécaniques sont obtenues via des analyses en microdureté et essais de traction pour permettre de déterminer les coefficients liant la dureté à la limite d'élasticité.

1.3. Caractérisation de la microstructure

Une observation métallographique a été réalisée sur les pièces d'alliage AA2024. Ces observations ont portées sur le matériau de base autant que sur les pièces soudées par FSW. Les échantillons analysés sont prélevés dans la tôle et observés dans l'épaisseur. Pour chaque type d'observation, une préparation spécifique doit être mise en place.

Analyse granulaire

L'analyse granulaire peut être effectuée via deux approches en fonction de la taille des grains. Dans le cas du matériau de base, le microscope optique est utilisé alors que dans le cas de l'étude du domaine soudé par FSW, l'EBS (Electron Back Scattering Diffraction) effectué au MEB (Microscopie électronique à balayage) est choisi. En effet, dans ce dernier cas, les grains ont une taille de l'ordre du micron et il est impossible de les distinguer en microscopie optique.

Dans les deux cas, les échantillons sont polis mécaniquement jusqu'à 1 μm . Ensuite, une attaque au réactif de Keller (Tableau III. 2) est effectuée pendant 50 secondes à température ambiante pour les échantillons observés en microscopie optique.

Tableau III. 2 : Fraction volumique des composés chimiques présents dans le réactif de Keller (en %volumique)

H ₂ O	HCl	HNO ₃	HF
95,5	1,5	2,5	0,5

Dans le cas de l'EBS, le polissage mécanique à la pâte diamantée est complété par un polissage à la silice colloïdale pure, en utilisant de l'éthanol comme diluant, afin d'éviter la formation de peau d'orange qui rend par la suite toute mesure impossible.

Analyse chimique : MEB-EDS

Les échantillons utilisés ont suivi la même préparation que les échantillons utilisés en EBS. L'observation en MEB a été effectuée en utilisant uniquement les électrons rétrodiffusés pour observer les différentes phases macroscopiques en présence et donc révéler les hétérogénéités chimiques. Les phases ayant les atomes possédant les numéros atomiques les plus élevés vont apparaître plus claires que les autres phases. Cette observation nous permet de définir une fraction surfacique d'intermétalliques. Pour connaître leurs compositions chimiques, des analyses EDS (Energy Dispersive Spectrometry) sont également effectuées. Cette technique est fondée sur la mesure de l'énergie des rayons X émis par les

atomes excités par le faisceau incident d'électrons. Ces analyses ont été effectuées avec le MEB-XL30 FEI Philips pour des tensions d'accélération (E_0) de 20 kV. Pour avoir un ordre de grandeur de la profondeur de la poire d'interaction (z_{max}) liée à l'interaction des électrons avec la matière, la densité de l'aluminium (ρ) sera considérée étant prise égale à $2,7 \text{ g}\cdot\text{cm}^{-3}$, l'Equation III. 1 indique une profondeur de $4 \text{ }\mu\text{m}$ soit largement supérieure à la taille des précipités durcissants. Ils ne pourront donc pas, via ce type d'analyse, être dissociés de la matrice.

$$z_{max} = 0,066 \frac{(E_0)^{1,7}}{\rho} \quad \text{Equation III. 1}$$

Cette analyse donne accès à la composition initiale du système et notamment à la valeur moyenne des compositions de la matrice. Cependant, concernant les intermétalliques, elle permet uniquement de fournir une estimation de leur enrichissement en éléments d'alliage mais ne renseigne pas sur leur nature chimique précise. Pour cela, le MEB-FEG a été utilisé car il permet de coupler les deux méthodes EDS et EBSD afin d'en déduire la nature chimique et cristalline des intermétalliques. Il a également été utilisé pour les observations des soudures FSW qui nécessitent une plus forte précision.

Observation des précipités : MET

Les précipités étudiés responsables du durcissement structural ont des tailles nanométriques trop petites pour pouvoir être détectés et donc observés avec le MEB. Ainsi la microscopie électronique à transmission a été utilisée pour pouvoir les visualiser. Cependant, il est impossible de mesurer une fraction volumique puisque les images se font dans l'épaisseur et donc ne permettent pas de connaître le volume exact de ces précipités. Les essais en MET ont été réalisés au Centre des Matériaux d'Evry (MINES ParisTech, Evry, France) sur un microscope TECNAI F20-ST fonctionnant à 200 kV.

Les échantillons sont prélevés à mi-épaisseur dans la tôle (Figure III. 2) et pour cela ont été polis mécaniquement au papier 4000 jusqu'à une épaisseur comprise entre 100 et 150 μm schématisée en noir sur la Figure III. 2. Ils ont été ensuite poinçonnés pour obtenir des pastilles de 3 mm de diamètre qui, ultérieurement, sont percées par voie électrochimique dans une solution composée de 150 mL d'acide nitrique dans 250 mL de méthanol. La solution est refroidie à $-25 \text{ }^\circ\text{C}$ et le perçage est effectué en utilisant une tension de 20 V [Gen05,Kar08].

Au cours de ces analyses, il a également été possible d'utiliser la technique EDS présentée précédemment pour connaître la composition de la matrice ou préciser la nature chimique des éléments présents dans les précipités. Les échantillons observés ont été prélevés sur des échantillons ayant des évolutions thermiques données et non dans le FSW. Pour définir la taille exacte des précipités, il aurait fallu avoir recours à la méthode EELS mais elle n'était pas utilisable dans les temps impartis aux essais.

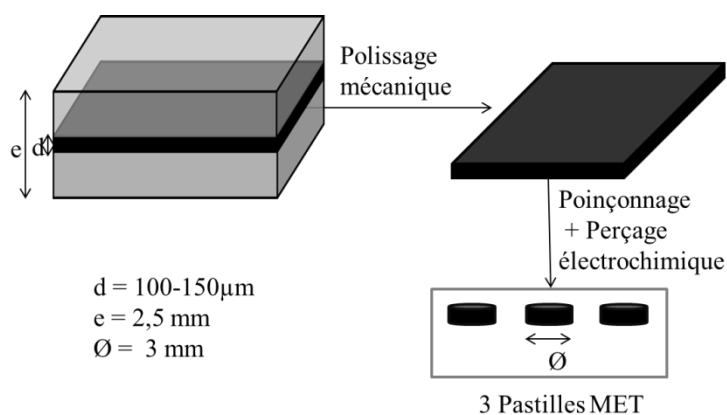


Figure III. 2 : Préparation des pastilles MET

Quantification des précipités : Analyse DSC

Dans le cas des alliages d'aluminium, les transitions de phases telles que la précipitation ont des effets de volume trop faibles pour pouvoir être observés par dilatométrie. De plus, les précipités ne sont visibles qu'en MET. Pour pouvoir caractériser de manière fiable l'évolution de la précipitation, la DSC (Differential Scanning Calorimetry) est utilisée. En effet, cette méthode permet non seulement d'observer les transformations de type endothermiques (dissolution) et exothermiques (précipitation) mais aussi de mener une étude quantitative sur l'évolution des fractions relatives de précipités.

Prélèvement des pastilles de DSC

Il est important d'avoir un excellent contact entre la capsule et l'échantillon. Pour cela, l'échantillon doit être le plus plan possible. Deux types de pastilles existent : celles provenant du matériau brut ou traité thermiquement et celles permettant de caractériser la soudure.

Le premier type de pastille est circulaire et prélevé à mi épaisseur dans le matériau brut ou traité thermiquement comme illustré sur la Figure III. 2. Contrairement aux pastilles MET, le diamètre est plus important (5 mm) et il n'y a pas de polissage électrochimique effectué par la suite. Percer pour prélever les pastilles va induire un fort écrouissage qui sera négligé dans cette étude. La masse de ces échantillons est comprise entre 10 et 15 mg.

Le second type de pastille utilisée pour caractériser les zones soudées est prélevé comme indiqué sur la Figure III. 3. Cette figure montre le domaine de prélèvement des pastilles dans les tôles AA2024 sur lesquelles le procédé de soudage FSW a été développé. L'incertitude liée au prélèvement des pastilles est de 0,2 mm et est lié au positionnement initial de la lame. L'échantillon observé a été attaqué au réactif de Keller ce qui permet de révéler, en plus clair, la zone où il y a eu recristallisation. Ces pastilles ont une épaisseur de 0,8 mm (Figure III. 3), une hauteur de 2,5 mm (épaisseur des tôles) et une largeur de 5 mm afin de pouvoir définir de la manière la plus fiable possible l'évolution des quantités de phase le long de la soudure. Cela correspond à un poids compris entre 20 et 30 mg. Néanmoins, il existe une incertitude de

position de 1 mm liée à la présence de la bavure et au positionnement initial de la micro tronçonneuse. Cette dernière à une lame d'épaisseur 0,29 mm (Figure III. 3) qui induit une perte de matière à chaque découpe. Pour chaque soudure la distance entre l'axe de la soudure et la zone de prélèvement est notée et l'échantillon numéroté.

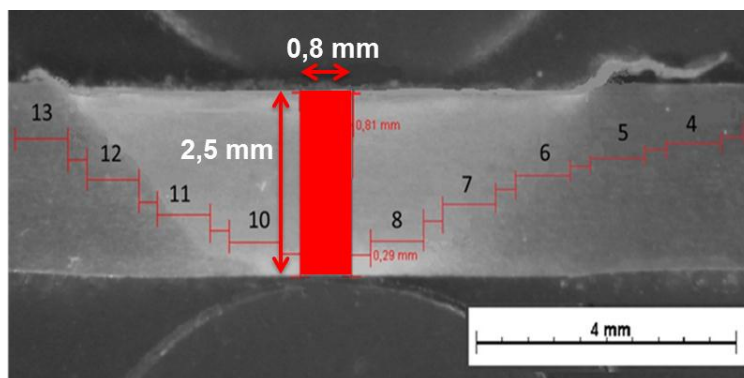


Figure III. 3 : Schéma de prélèvement de pastilles DSC dans la zone soudée – Essai A

Lignes de base

Dans le cas présent, le gaz de balayage utilisé est de l'azote. Deux appareils de DSC ont été utilisés dans cette étude. Le premier (DSC 4000 Perkin Elmer) est à flux de chaleur, c'est-à-dire que l'échantillon de référence et celui contenant le matériau à analyser sont placés dans le même four. Le second est un appareil à compensation de puissance (DSC 8005 Perkin Elmer). Dans cette configuration, l'échantillon de référence et l'échantillon à analyser sont placés dans deux fours séparés qui ont leur propre résistance platine chauffante et un élément chauffant. Ils sont placés dans un bloc maintenu à une température constante [Gre13]. La différence de flux thermique nécessaire pour maintenir la température égale dans les deux fours est mesurée (Figure III. 4). La DSC à compensation de puissance se doit d'être calibrée en température et en énergie afin de pouvoir analyser au mieux les résultats. Pour cela l'indium est utilisé puisque sa température de fusion (160,8 °C) et son énergie associée (28.45 J.g⁻¹) sont connues. Cette calibration est effectuée pour les différentes vitesses utilisées soit 10 °C.min⁻¹ et 300 °C.min⁻¹.

Du fait de la sensibilité de l'appareillage, il est fréquent qu'un déséquilibre en température entre les deux fours se produise dû à des différences de masse entre les deux fours. Sur la Figure III. 5, le signal brut a été tracé. La capacité calorifique peut être calculée dans les deux cas. Initialement le flux de chaleur est mesuré pour une température définie. En divisant cette valeur par la vitesse de chauffe, la capacité calorifique expérimentale est obtenue. Dans le cas de la DSC à flux de chaleur, la capacité calorifique définie à 50 °C est de 840 J.K⁻¹.kg⁻¹ tandis qu'elle est de 1080 J.K⁻¹.kg⁻¹ dans le cas de la DSC à compensation de puissance. En utilisant le logiciel de données thermodynamiques Thermocalc, la capacité calorifique du système étudié pour une température de 50 °C est de 911 J.K⁻¹.kg⁻¹ (ou 0,152 W.g⁻¹ à 10 °C.min⁻¹) ce qui correspond à une différence de 7,8 % dans le cas de la DSC à flux de chaleur et de 18,5 % dans le cas de la DSC à compensation de puissance. Pour cette raison, pour calibrer le modèle pour une vitesse de chauffe à 10 °C/min, la courbe brute

obtenue en DSC à flux de chaleur est choisie. Toutefois l'amplitude des phénomènes physiques est fortement similaire pour les deux techniques utilisées.

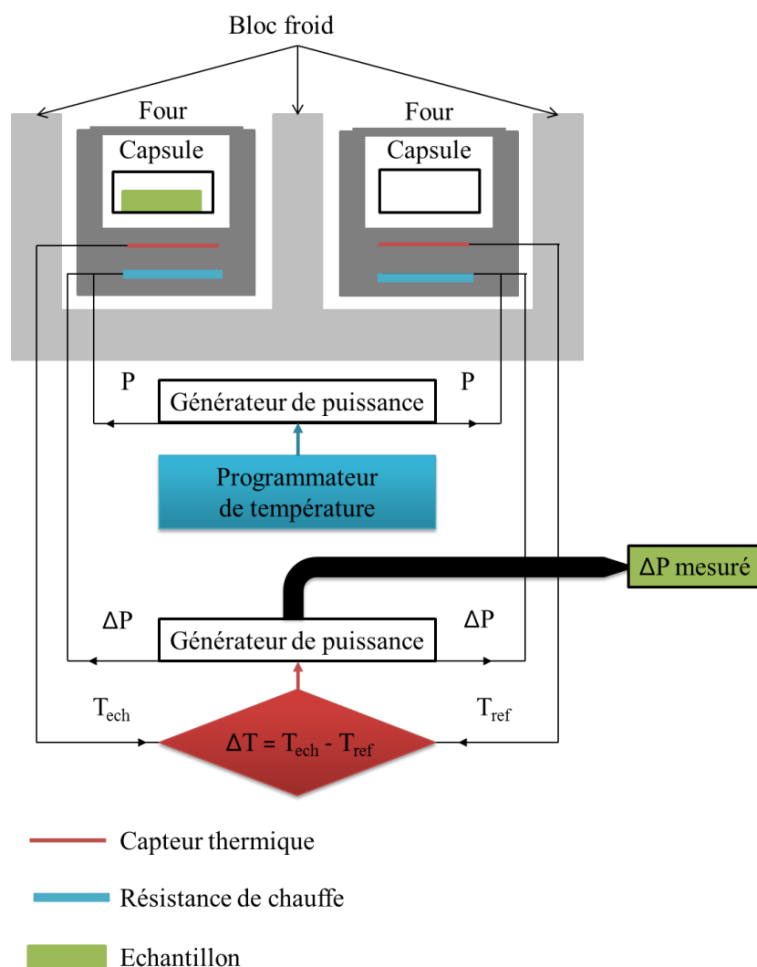


Figure III. 4 : Schéma de principe du fonctionnement d'une DSC à compensation de puissance

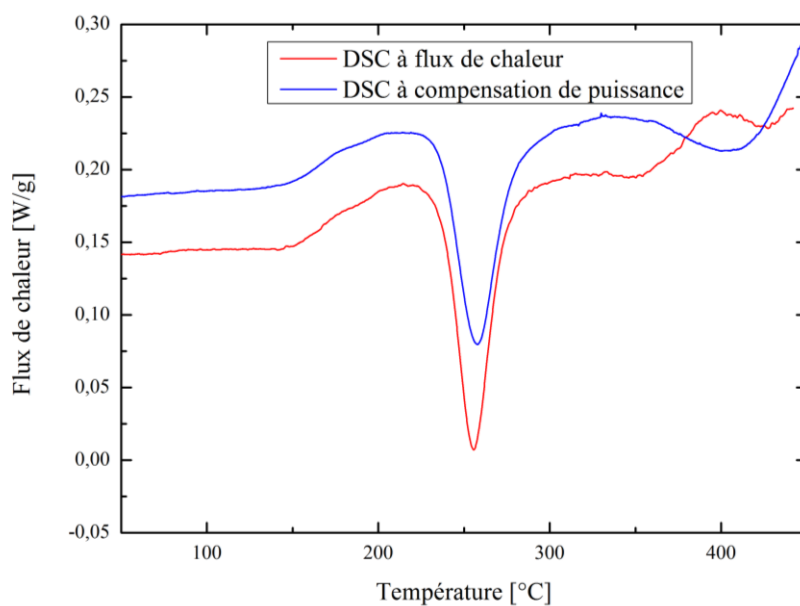


Figure III. 5: Signal brut pour une vitesse de chauffe à 10°C/min obtenu dans les deux DSC utilisées (Flux de chaleur en rouge, Compensation de puissance en bleu) (endo up)

Lors du procédé FSW, les vitesses de chauffe étant très élevées, il est important de calibrer pour des vitesses les plus importantes possible la cinétique de précipitation. Ainsi, il est nécessaire d'utiliser la DSC à compensation de puissance puisqu'elle permet d'obtenir des vitesses de chauffe jusqu'à $300\text{ }^{\circ}\text{C}\cdot\text{min}^{-1}$ impossibles à obtenir dans le cas de la DSC à flux de chaleur.

Le signal, dans le cas de la DSC à compensation de puissance, doit être redressé en ôtant une ligne de base qui caractérise la dérive de la cellule. La différence de flux thermique entre deux capsules graphites vides est mesurée pendant un cycle thermique similaire. Deux essais de ce type sont réalisés avant et après l'essai contenant l'échantillon à analyser pour minimiser l'impact des dérives de l'appareil qui deviennent importantes pour des températures supérieures à $350\text{ }^{\circ}\text{C}$. Leur moyenne est retirée à la courbe expérimentale pour obtenir la courbe noire sur la Figure III. 6. Afin d'avoir une meilleure lisibilité des graphes obtenus, une correction linéaire correspondant à la capacité calorifique, considérée comme évoluant linéairement durant l'essai, est retirée [Sta04]. Cela revient à soustraire, à la courbe noire, la droite en bleue pour obtenir la droite rouge illustrée sur le schéma de principe (Figure III. 6).

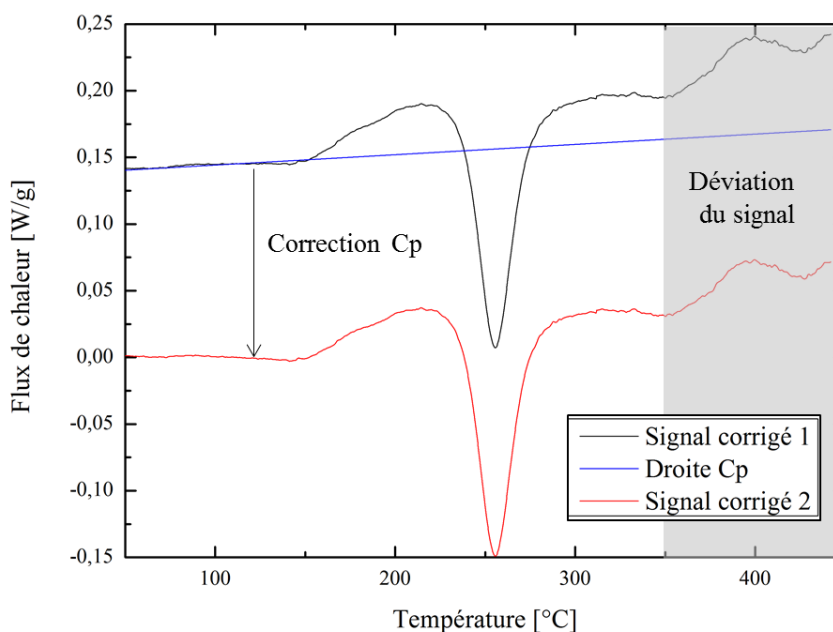


Figure III. 6 : Schéma de principe de la correction des lignes de bases en DSC (endo up) pour une vitesse de chauffe à $10\text{ }^{\circ}\text{C}\cdot\text{min}^{-1}$.

Fraction relative des différentes familles de précipités

Une méthode expérimentale de quantification des précipités permet de définir les fractions relatives des phases pour un matériau dans un état métallurgique donné. La vitesse de chauffe est de $10\text{ }^{\circ}\text{C}\cdot\text{min}^{-1}$ pour caractériser le matériau. Les pics de précipitation de la phase S et de dissolution des zones de Guinier-Preston sont considérés séparés. Dans ce cas, il est alors possible de mesurer les aires au-dessus ou en-dessous de la courbe correspondant à ces phénomènes, respectivement dans les cas de réaction exothermique et endothermique. Ces aires correspondent au flux thermique émis ou consommé et sont proportionnelles à l'intensité

des phénomènes étudiés. Il devient ainsi possible de définir les fractions relatives des deux phases si le système initial ou final est connu [Gen05].

La Figure III. 7 présente deux résultats obtenus dans le cadre d'essais DSC. La courbe bleue représente le flux de chaleur pour le matériau dans son état de réception, c'est-à-dire à l'état T3. Cet échantillon est considéré comme le matériau « référence ». La courbe rouge représente le flux de chaleur pour un échantillon maintenu 1 h à 190 °C puis trempé pour figer la microstructure. Ce traitement thermique induit une dissolution des zones de Guinier-Preston et la précipitation de la phase S. Ces phénomènes se traduisent par une évolution des aires sous la courbe, caractéristiques de ces phénomènes physiques. La Figure III. 7 (a) présente les aires sous la courbe, A_0 et B_0 correspondant respectivement à la dissolution des zones de Guinier-Preston et à la précipitation de la phase S pour le matériau référence. La Figure III. 7 (b) présente les aires sous la courbe, A et B correspondant aux mêmes phénomènes physiques mais pour un matériau dans un état microstructural différent. Ainsi, la Figure III. 7 met en évidence l'influence de l'état microstructural sur les aires mesurées et donc sur le signal DSC. Ces courbes permettent d'expliquer la démarche développée pour quantifier les phases S et de Guinier-Preston.

La quantité de zones de Guinier-Preston formée est maximale dans un état T3 et permet de définir l'aire initiale sous la courbe de dissolution des pics A_0 . Elle correspond à l'aire de référence pour calculer par la suite l'évolution de leur teneur dans les différents états métallurgiques observés. En effet, un état métallurgique différent implique des différences d'aire mesurée en DSC correspondant à une quantité initiale de zones de Guinier-Preston moindre dans le cas étudié et à une aire sous la courbe A plus faible. Comme mentionné précédemment, les différentes aires sont indiquées sur la Figure III. 7. La fraction relative de zones de Guinier-Preston présente se déduit, en considérant une relation directe entre l'aire sous la courbe et la fraction de précipité formée, de la formule suivante :

$$f_{r,GP} = \frac{A}{A_0} \quad \text{Equation III. 2}$$

Si le système est considéré initialement comme ayant atteint l'équilibre thermodynamique, avec une population de précipité GPB en équilibre avec le système, il est possible de définir la teneur totale en fraction volumique au cours du temps en multipliant la fraction relative par la fraction d'équilibre. La fraction d'équilibre, dans le cas des zones GPB correspond à la fraction renvoyée par le logiciel Thermocalc pour un calcul d'équilibre à 30°C avec une masse constante et une composition égale à la composition nominale (Tableau III. 3).

Initialement, la phase S est supposée non présente. Dans ce cas, l'aire B_0 mesurée correspond au maximum de phase S pouvant se former dans le matériau. Si l'alliage est dans un état métallurgique différent, cela peut se traduire par une quantité de phase S préexistante. Ainsi, il est possible de mesurer l'aire sous la courbe B (b) correspondant à cet état et d'en déduire la fraction relative de phase S suivant la formule suivante :

$$f_{r,S} = \frac{B_0 - B}{B_0} \quad \text{Equation III. 3}$$

De la même façon que pour les zones de Guinier-Preston, si la quantité de phase S formée est connue à l'équilibre thermodynamique, il est possible de définir une fraction volumique de phase S dans le matériau. Pour cela, le logiciel de données thermodynamiques Thermocalc [The01] est utilisé pour effectuer un calcul d'équilibre prenant pour données d'entrée : une température fixée à 190°C (température du traitement thermique), une masse fixe et la composition nominale de l'alliage (Tableau III. 3).

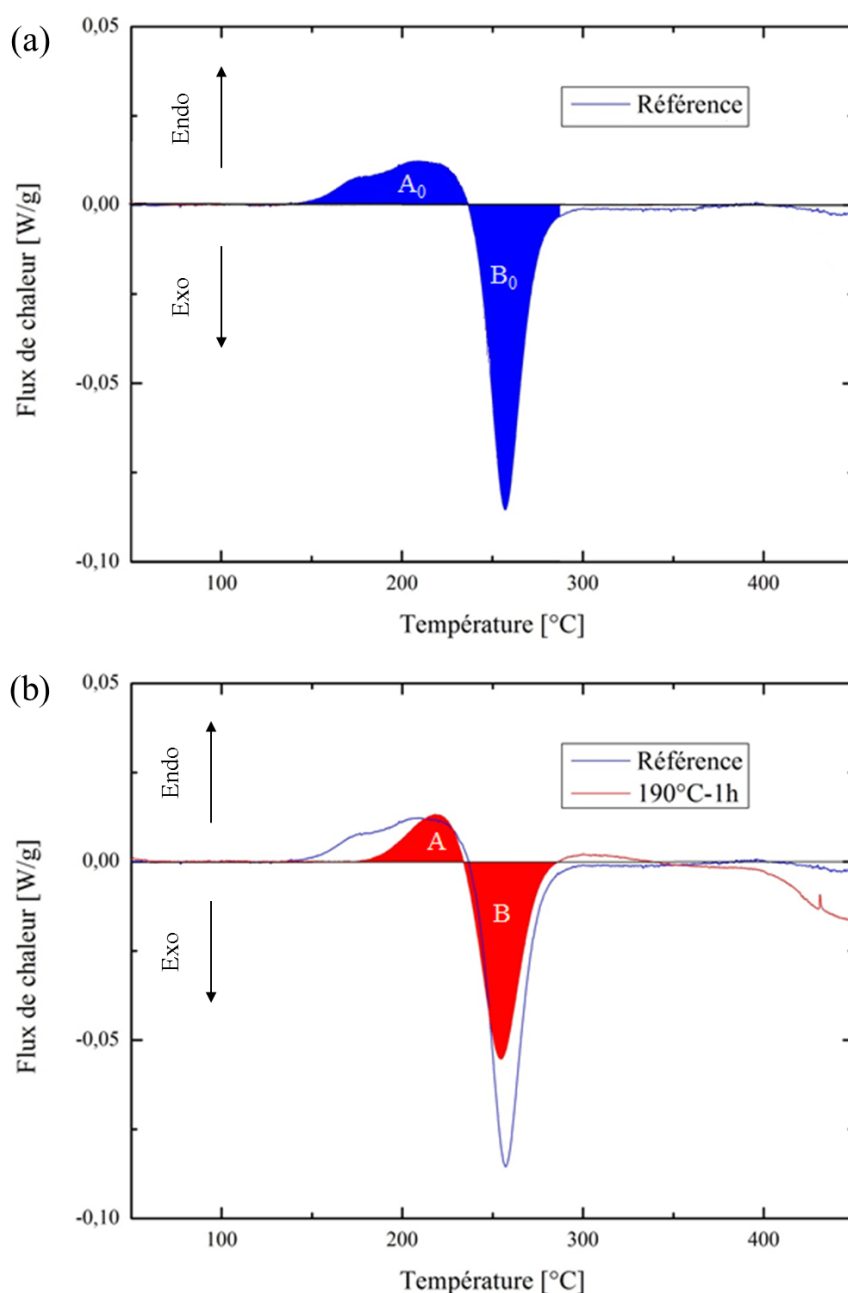


Figure III. 7 : Schéma de principe de l'approche développée pour la détermination des fractions relatives de précipités pour une vitesse de chauffe de 10 °C.min⁻¹

1.4. Caractérisation mécanique

Afin de mesurer les propriétés mécaniques dans les différentes zones de la soudure et de définir sur des cas simples un modèle mécanique numérique, deux types de tests mécaniques ont été choisis : la microdureté et la traction. Les propriétés mécaniques de dureté et de limite d'élasticité dans les matériaux métalliques étant liées, il est également possible d'établir un lien entre les informations obtenues de ces deux essais.

Essais de micro-dureté

Les échantillons à analyser sont polis mécaniquement jusqu'à $1\ \mu\text{m}$ pour éliminer l'écaillage de surface. Les essais sont effectués avec une charge de 200 g. La dureté est mesurée dans l'épaisseur de la tôle et pour différentes hauteurs. Pour les essais sur des matériaux non soudés 15 mesures sont réalisées qui correspondent à 5 colonnes d'analyse ayant chacune 3 pointés à des positions définies dans l'épaisseur de la tôle. L'écart-type est de $2\ \mu\text{m}$ sur la mesure de la diagonale ce qui correspond à une incertitude de 4 HV.

Dans le cas des essais de dureté appliqués à la caractérisation des soudures, l'analyse est faite perpendiculairement à l'axe de soudage. Les mesures sont effectuées à 3 hauteurs définies dans l'épaisseur (Figure III. 8). Les mesures sont ensuite espacées perpendiculairement à l'axe de soudage de 0,5 mm dans le noyau, la ZATM et la zone de transition entre ZATM et ZAT. Elles sont espacées de 1 mm pour l'analyse de la ZAT. En effet, les différences de dureté sont moins marquées à mesure qu'on s'éloigne de la zone soudée et ainsi, le pas de mesure a été espacé. Ces valeurs sont moyennées (3 valeurs à différentes hauteurs) pour pouvoir être comparées avec les résultats concernant la fraction relative de différentes phases obtenues en DSC.

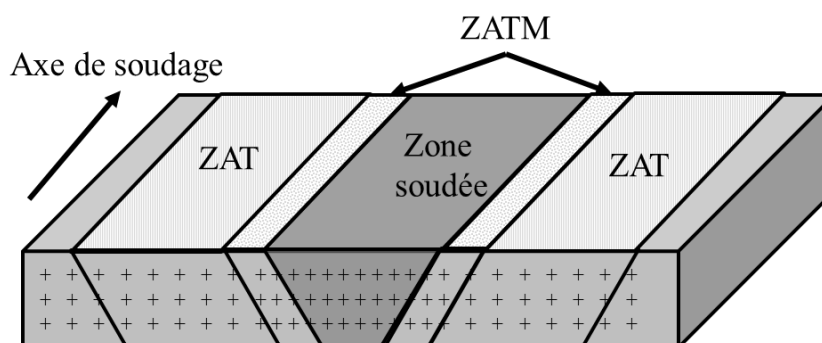


Figure III. 8 : Schéma de principe de l'analyse en microdureté des soudures

Essais de traction

Les essais de traction réalisés sur le matériau brut ou traité thermiquement ont pour objectif de définir la limite d'élasticité. Le comportement ultérieur en déformation plastique ne sera pas étudié ici, seule la valeur limite correspondant au début de déformation plastique

($\varepsilon_p = 0,2 \%$) est retenue dans l'étude mécanique. L'objectif est de prédire le profil de dureté dans le joint soudé et pour cela, dans le cas des alliages d'aluminium, un lien entre limite d'élasticité et dureté existe. Ces essais doivent permettre de le déterminer.

D'autres tests de traction sont réalisés sur des éprouvettes macroscopiques prélevées dans des tôles soudées dans la direction perpendiculaire à la soudure et donc au sens de laminage. Ces essais ont pour objectif de visualiser les différentes zones affectées par le soudage via des hétérogénéités de déformation mesurées.

Pour ces deux types d'essais, la même géométrie d'éprouvette est choisie et ses dimensions sont précisées sur la Figure III. 9. La vitesse des essais est fixée à $4 \text{ mm} \cdot \text{min}^{-1}$ et le logiciel de corrélation d'image Vic-3D est utilisé pour obtenir des déformations locales fiables. L'éprouvette de traction est recouverte d'une couche uniforme de peinture blanche puis un mouchetis gris est appliqué. Une calibration des deux caméras est effectuée à l'aide d'une mire. Ces caméras prennent, au cours de l'essai, une image de l'éprouvette selon deux angles différents, permettant la reconstruction dans l'espace de la position des surfaces observées. En considérant l'image de référence initiale, il est ainsi possible de définir la déformation locale de l'éprouvette, et de suivre le champ de déformation en surface de l'éprouvette, au cours de l'intégralité de l'essai.

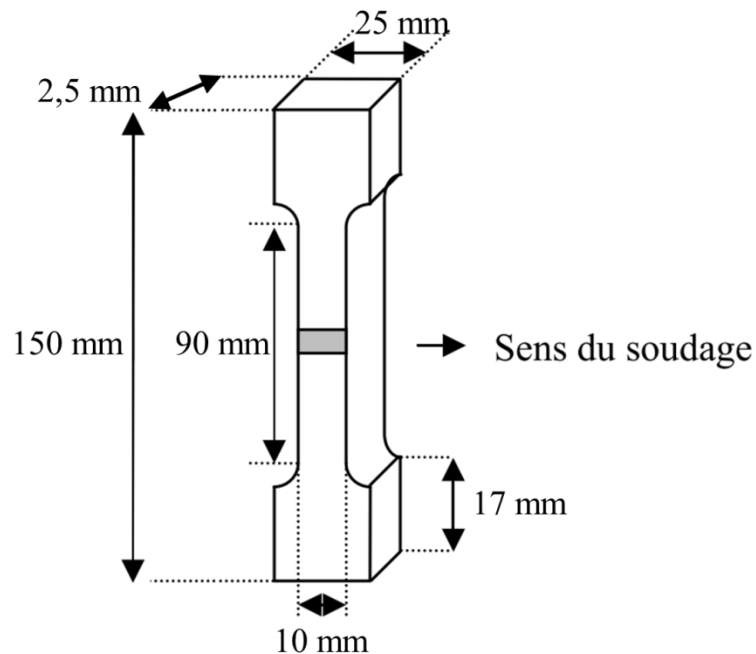


Figure III. 9 : Schéma et dimensions de l'éprouvette de traction

2. Matériau étudié

L'alliage d'aluminium AA2024 est très utilisé dans l'aéronautique puisqu'il présente un bon compromis entre la résistance mécanique et la tenue en fatigue. Les principaux éléments d'alliages sont le cuivre et le magnésium. A l'état T3, correspondant à l'état de réception du matériau, les éléments d'alliage ont été remis en solution à une température de 495 °C puis l'échantillon a été trempé à l'eau à 40 °C afin d'obtenir une solution solide sursaturée présentant peu d'amas de cuivre [DocInt]. Un vieillissement à température ambiante se produit, donnant lieu à la précipitation des zones de Guinier-Preston (GPB). La tôle analysée a été laminée et possède une épaisseur de 2,5 mm. La séquence de précipitation est considérée comme étant la suivante [Gen05, Her10]:



La nature chimique des phases considérées pour la séquence de précipitation sont décrites dans le Chapitre I.

2.1. Analyse granulaire

Les tôles reçues sont déjà laminées. La structure est donc définie suivant les directions de laminages (L : direction de laminage, TL : Travers Long, TC : Travers court) qui sont présentées sur la Figure III. 10. Les images obtenues pour la face TC/TL et L/TC ont été effectuées de sorte que le haut corresponde à la face L/TL et que le bas corresponde au milieu de l'épaisseur de la tôle. Les zones de prélèvement des échantillons sont représentées par des rectangles rouges sur la Figure III. 10. Il est à noter que, en raison du polissage, la face L/TL ne correspond pas à l'extrême surface de la tôle mais plutôt à une profondeur de 0,7 mm. Une direction préférentielle de laminage est visible pour la face TC/TL. Cela induit une élongation des grains. Concernant les observations de la zone soudée, seule la face TC/TL sera observée. La direction de soudage est parallèle à la direction de laminage. Dans cette configuration (TC/TL), le diamètre moyen des grains est d'environ 26 μm .

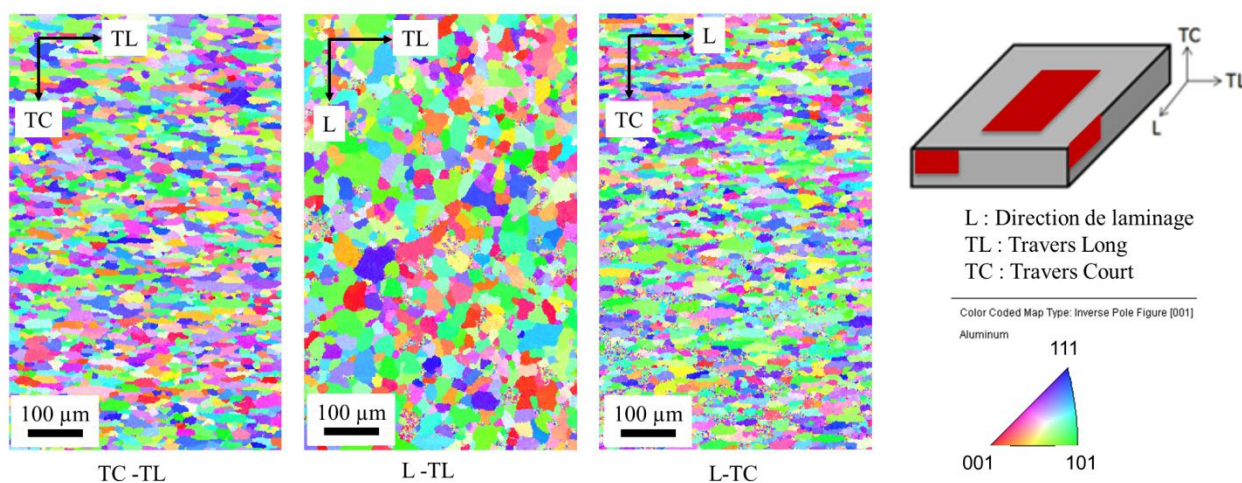


Figure III. 10 : Observation en EBSD de la structure granulaire des tôles reçues

2.2. Observation et analyse chimique

La première observation réalisée au MEB permet de mettre en évidence la présence d'intermétalliques de tailles micrométriques. Ils apparaissent en blanc sur la Figure III. 11. Afin de mesurer les compositions de notre matériau, une analyse sur la surface d'observation a été réalisée et donne une mesure de la composition nominale. Ces mesures ont été effectuées sur 20 observations à différentes position dans la tôle et les données ont été moyennées pour obtenir la composition nominale du AA2024 (Tableau III. 3). Pour chaque élément d'alliage, sa teneur est comprise entre les bornes minimale et maximale définies par les normes (Tableau III. 3), comme attendu.

Sur la même zone, cinq pointés sont effectués pour définir la composition de la matrice loin des intermétalliques. Ces pointés sont schématisés par des croix jaunes. Les résultats obtenus correspondent à ce qui est attendu sachant que les intermétalliques sont riches en cuivre et en fer. La matrice est ainsi appauvrie dans les éléments d'alliage constituant les intermétalliques et donc leur teneur est plus faible dans cette matrice que les valeurs nominales précédemment mesurées. Du fait de l'héritage de la solidification, les compositions peuvent également varier dans l'épaisseur. Il a été, en effet, observé que la composition en élément d'alliage est plus faible au milieu de la tôle que dans les extrémités. Cette évolution dans l'épaisseur est présentée sur la Figure III. 12. Dans un premier temps, ces variations de composition seront négligées. La composition moyenne est définie comme la moyenne de ces différentes valeurs.

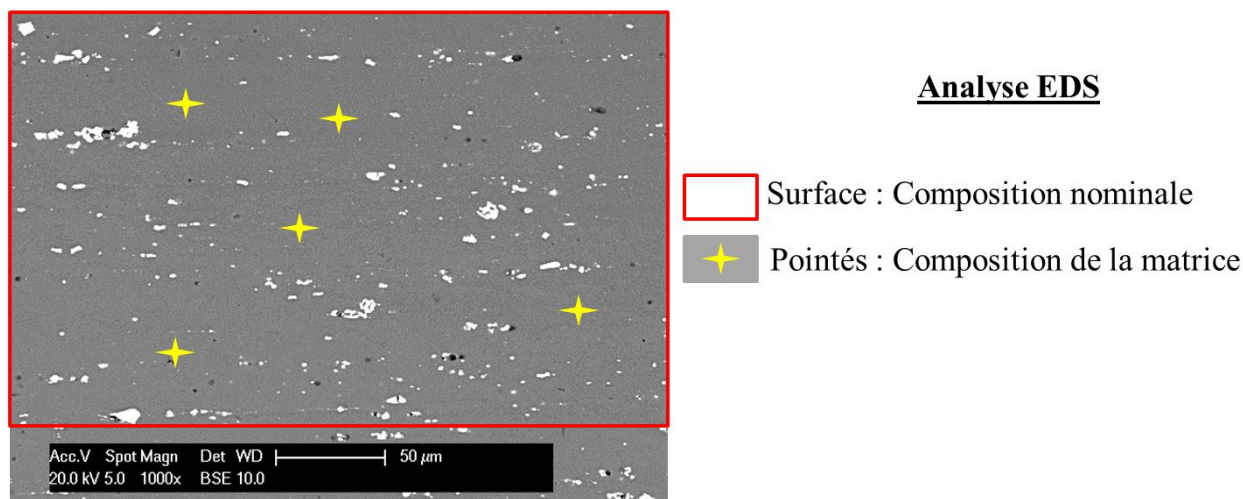


Figure III. 11 : Observation en MEB-BSE de l'échantillon à l'état T3 et principe d'analyse EDS

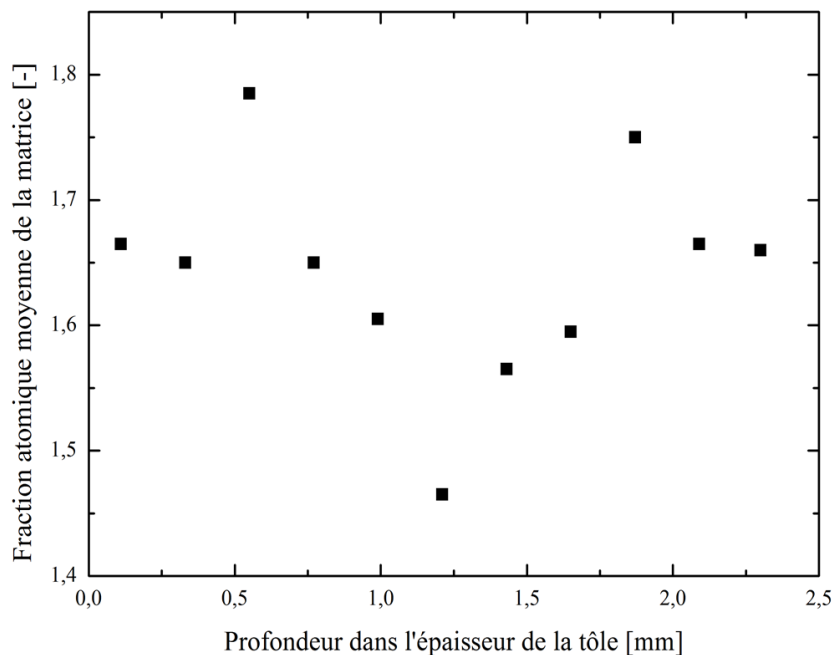


Figure III. 12 : Evolution de la fraction atomique de magnésium dans la matrice en fonction de la profondeur dans la tôle étudiée de profondeur 2,5 mm

Tableau III. 3 : Compositions du système dans les différents domaines d'observations (%massique)

Éléments	Al	Cu	Mg	Mn	Fe
Composition nominale minimale [ASN11]	-	3,8	1,2	0,30	0
Composition nominale maximale [ASN11]	-	4,9	1,8	0,90	0,50
Composition nominale mesurée	-	4,4	1,6	0,50	0,15
Composition matrice loin intermétalliques	-	3,8	1,5	0,42	0,04

Pour définir la nature chimique de ces éléments, il est intéressant d'utiliser le logiciel Thermocalc pour obtenir un chemin de Scheil en considérant comme donnée d'entrée la composition nominale mesurée. La Figure III. 13 est ainsi obtenue et il est alors possible d'avoir une idée générale des phases formées au cours du refroidissement. Lorsque le matériau est totalement solidifié, cinq phases stables sont présentes : la matrice (FCC_A1#1), Al_6Mn , $Al_{28}Cu_4Mn_7$, phase S de nature chimique Al_2CuMg (S_PHASE) et la phase θ de nature chimique Al_2Cu (THETA_PRIME). La phase Al_7Cu_2Fe n'est pas représentée sur ce graphique puisque sa fraction massique est trop faible pour être visible. Lors du calcul du chemin de Scheil, elle apparaît néanmoins avec une fraction massique d'équilibre faible. Les zones de Guinier-Preston ne peuvent être prédites par Thermocalc lors d'un chemin de Scheil. Les fractions d'équilibre massique de chaque phase pour une température de 50°C sont répertoriées dans le Tableau III. 4.

Tableau III. 4 : Fractions massiques à 50°C lors d'un calcul de Scheil sur le matériau étudié

Matrice	Al_6Mn	$Al_{28}Cu_4Mn_7$	Al_7Cu_2Fe	Al_2CuMg	Al_2Cu
0,9152	0,0138	0,0012	0,00004	0,0472	0,0226

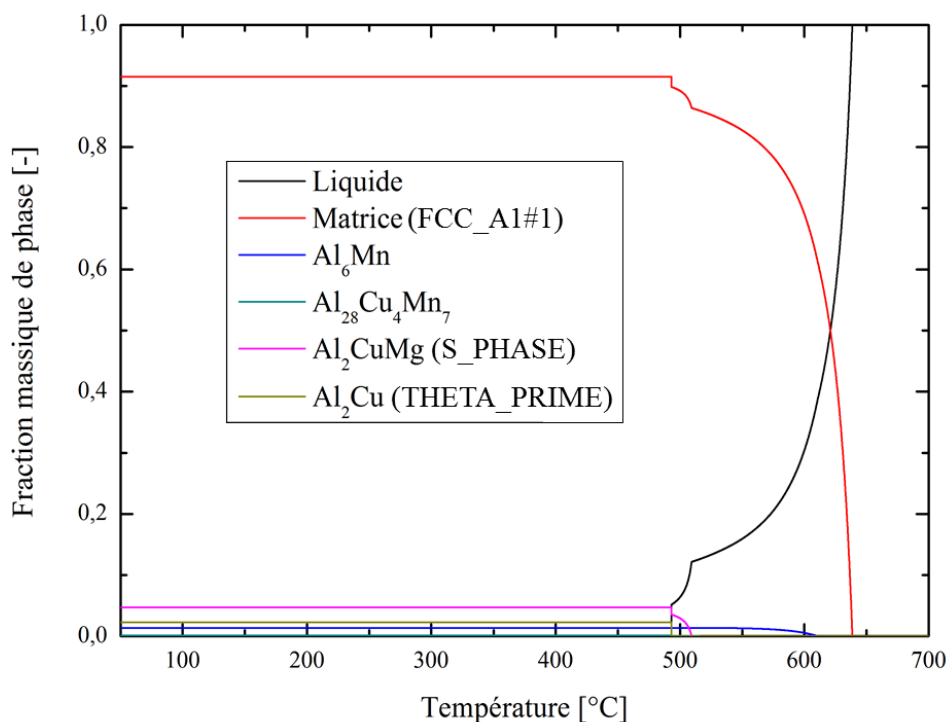


Figure III. 13 : Diagramme de Scheil de l'alliage AA2024 à partir des compositions nominales moyennes mesurées

Sur la Figure III. 11, la présence d'intermétallique est mise en évidence. Deux types de morphologies apparaissent : ceux sous forme d'amas et ceux qui semblent compacts. Pour connaître précisément la nature des intermétalliques, le MEB-FEG a été utilisé puisqu'il permet le couplage entre EDS et EBSD. En couplant ces deux techniques, le premier type d'intermétallique, présent sous forme d'amas (Figure III. 14), est composé de deux phases : S (en rouge) et θ (en rose fuchsia). La matrice apparaît en jaune et vert. Le second type (Figure III. 15) est constitué de la même phase Al₇Cu₂Fe (en bleu) qui apparaît dense mais qui est en réalité composé d'un amas de grains de la même nature chimique.

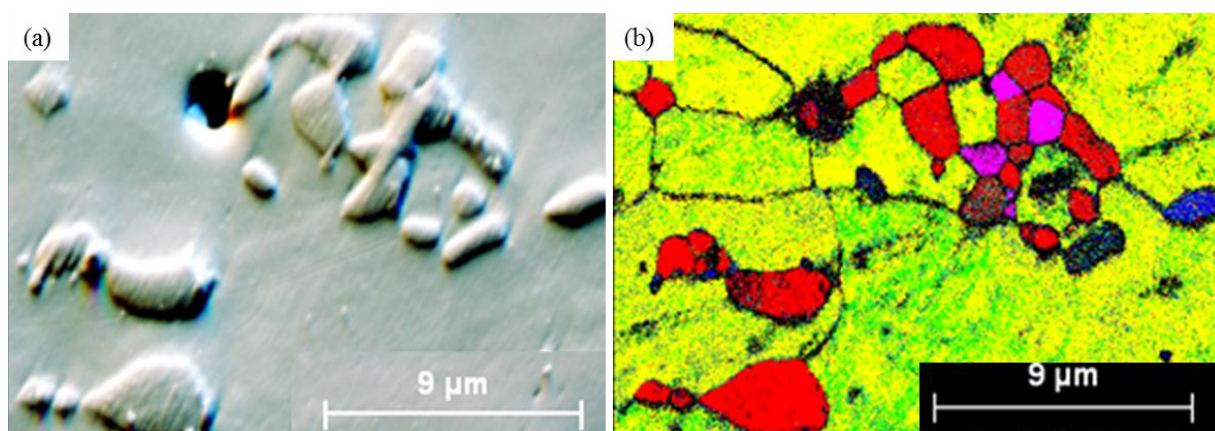


Figure III. 14 : Amas de phase S et θ (a) observation MEB (b) couplage des techniques EDS et EBSD permettant de différencier la nature chimique et cristallographique des 2 phases

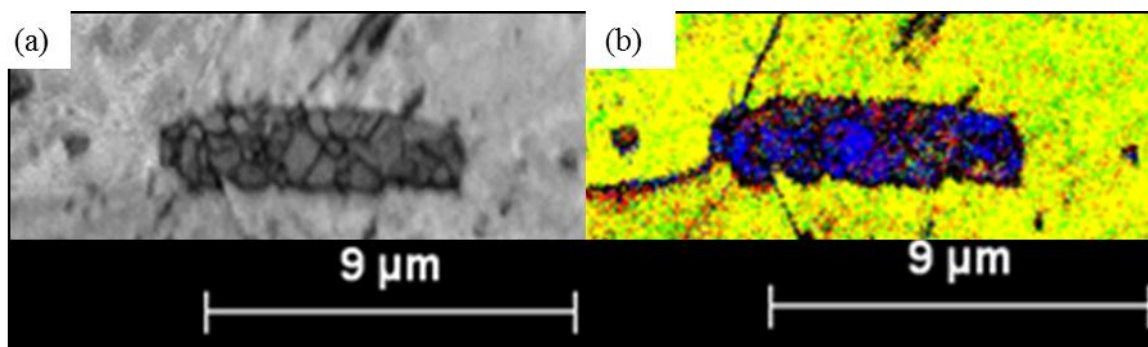


Figure III. 15: Amas de phase Al₇Cu₂Fe (a) observation MEB (b) couplage EDS et EBSD

Une caractérisation de la microstructure initiale a été effectuée en MET pour s'assurer des hypothèses initiales : absence de phase S et présence de zones GPB. Il est impossible de visualiser la phase S et les positions caractéristiques des zones GPB ne sont pas visibles sur les clichés de diffraction. Pour s'assurer de leur présence, il est indispensable d'utiliser la DSC.

Néanmoins, les images MET (Figure III. 16) permettent de mettre en évidence la présence de dispersoïdes. En utilisant l'EDS couplé au MET, il est possible de connaître les éléments les composant. Ils sont très riches en cuivre et manganèse. Leur nature chimique semble être proche de Al₂₈Cu₄Mn₇. La phase Al₆Mn indiquée dans le calcul d'équilibre thermodynamique ne semble pas être présente dans le matériau étudié puisque les intermétalliques sont riches en fer et les dispersoïdes sont riches en cuivre lors des pointés EDS en MET ou en MEB. Les dispersoïdes sont considérés comme n'ayant pas d'influence sur la dureté du matériau et donc leur présence ne sera pas prise en compte dans la simulation des évolutions microstructurales. Cette hypothèse a été effectuée à de nombreuses reprises dans la littérature [Gen04, Her10, Sta09].

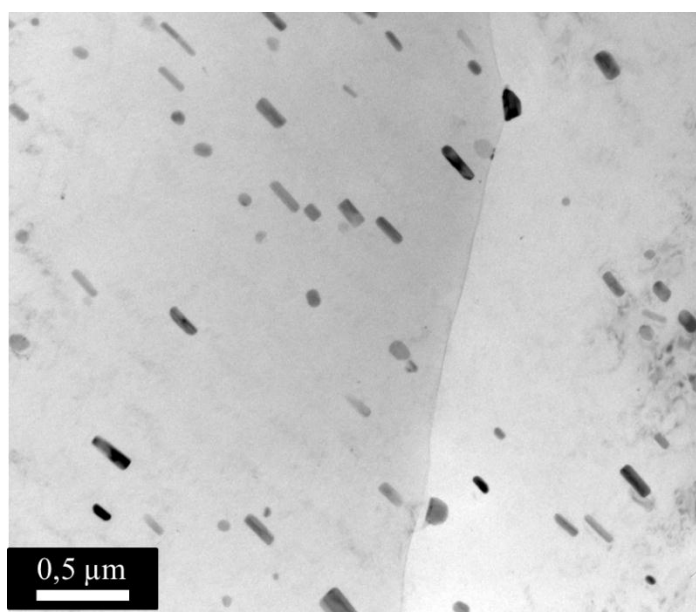


Figure III. 16 : Observation en MET des dispersoïdes riches en manganèse dans la matrice

2.3. Quantification des précipités

Une analyse d'image via le logiciel ImageJ permet de définir la fraction surfacique initiale des intermétalliques. La quantification des différentes phases d'intermétalliques est possible également via un couplage avec l'EBSD mais s'applique à une surface petite nécessitant une analyse couteuse. Cette quantification a cependant permis de lever l'incertitude sur les différentes natures de ces phases mais n'a pas été utilisée par la suite. En effet, les intermétalliques ne sont pas affectés par les évolutions thermiques et leur présence va donc être négligée. Ils ont une fraction surfacique de 5,5 %. Il est possible de définir une taille moyenne mais cela n'aurait pas réellement de sens dans la mesure où les amas peuvent être perçus par le logiciel comme n'étant qu'un seul intermétallique alors qu'ils peuvent être composés de quatre ou cinq intermétalliques de nature différente. Concernant les dispersoïdes visibles en MET, il est impossible de définir une fraction volumique ou surfacique via une analyse d'image classique.

Les intermétalliques et dispersoïdes observés précédemment n'ont pas d'influence sur le signal DSC [Gen04, Sta04]. Seules les zones de Guinier-Preston et la phase S peuvent être considérées. Dans ce cas, le premier pic endothermique correspond à la dissolution des zones de Guinier-Preston et le second pic exothermique correspond à la précipitation de la phase S (Figure III. 17).

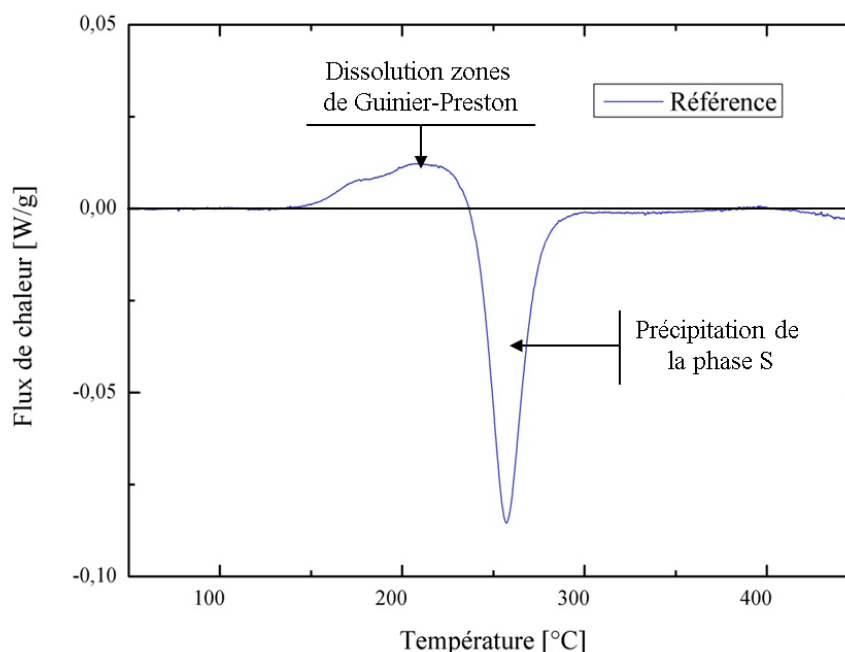


Figure III. 17 : Signal DSC de l'échantillon référence (AA2024-T3) – 10 °C.min⁻¹ (endo up)

Aucune de ces deux phases n'a pu être observées en MET et il pourrait être déduit qu'elles sont toutes les deux non présentes initialement. Pour la phase S, la visualisation d'un pic de précipitation permet de valider l'hypothèse que le pic correspond au maximum de la quantité pouvant précipiter. De plus, ceci est en parfait accord avec les données de la littérature pour l'alliage AA2024 dans son état T3. Par contre, pour les zones de Guinier-

Preston, un pic de dissolution est visible et indique que, même si elles ne sont pas visibles en MET, elles sont présentes initialement dans le matériau. Par la suite, l'hypothèse du maximum de zones de Guinier-Preston présentes à l'état initial sera conservée.

2.4. Propriétés mécaniques

Le matériau initial possède une dureté de 143,5 HV. Sa limite d'élasticité à 0,2 % est de 306 MPa et sa résistance est de 552,6 MPa dans le sens Travers Long. Ces valeurs sont en accord avec les fiches matériaux du fournisseur [ASN11] qui indiquent une limite d'élasticité minimale de 290 MPa, une résistance supérieure à 440 MPa et une absence de striction. Cette dernière information se visualise bien sur la Figure III. 18.

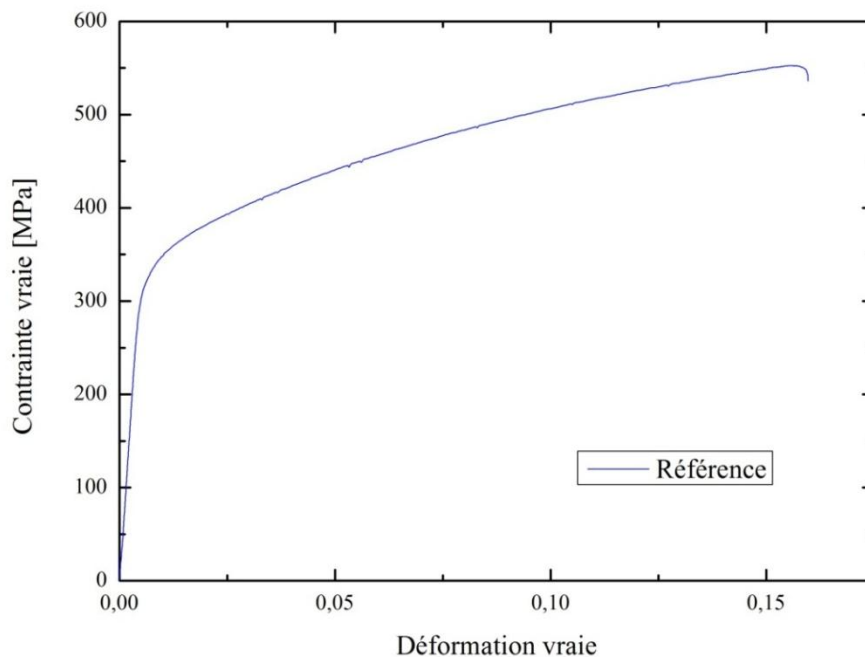


Figure III. 18 : Courbe de traction pour l'alliage AA2024 à sa réception

3. Conclusion

Afin de conclure ce chapitre, un tableau récapitulatif est présenté. Pour chaque observation souhaitée, la méthode choisie est indiquée. De plus, ce tableau permet de détailler les données initiales du matériau dans son état de réception, c'est-à-dire d'un alliage AA2024-T3 d'épaisseur 2,5 mm.

Information	Techniques	Etat initial
Taille des grains	MEB couplé à un EBSD	Morphologie caractéristique d'une tôle laminée Diamètre moyen 26µm
Compositions des phases grossières	MEB couplé à l'EDS	3 natures chimiques : <ul style="list-style-type: none"> ▪ Al₂Cu, ▪ Al₂CuMg, ▪ Amas Fer,Mn,Cu Hypothèse : <ul style="list-style-type: none"> ▪ Non affectés par les traitements thermiques
Taille de la précipitation fine	MET	Absence de phase S Présence de dispersoïdes
Fraction de précipités	DSC	Maximum de zones de Guinier-Preston Absence de phase S
Mesures de dureté	Micro-dureté Vickers 200g	143,5 HV
Limite d'élasticité	Essai de traction	306 MPa

Avant de pouvoir appliquer le modèle de précipitation à la simulation du processus FSW, il est nécessaire de calibrer le modèle sur des cas simples dont les évolutions thermiques sont parfaitement connues, et les évolutions des processus de précipitation également déterminées.

Dans un premier temps, l'influence des propriétés des matériaux sur l'évolution de la précipitation, et notamment des paramètres guidant la germination, est mise en évidence afin de comprendre comment calibrer le modèle. Dans ce cadre, une étude théorique est réalisée à travers la simulation d'un traitement isotherme à 270°C et le suivi des populations de précipités.

Ensuite, la simulation des essais en DSC est réalisée et la méthode de calibration est détaillée. Cette partie permet d'ajuster la quantité initiale de précipités et les paramètres matériaux : nombre de sites de germination, angle de mouillage et énergie interfaciale.

Connaissant les propriétés des matériaux, il devient possible d'utiliser le code de précipitation, de manière fiabilisée, et de définir les paramètres des équations régissant la mécanique.

1. Influence des paramètres matériaux sur les résultats du modèle numérique

Le cas de référence correspond aux données présentées dans le chapitre précédent. Les données matériaux utilisées sont répertoriées dans le Tableau II. 3 et le Tableau II. 4. Les évolutions de la densité totale de précipité, du rayon moyen, du rayon critique et de la fraction volumique seront analysées afin de comprendre l'influence des différents paramètres matériaux sur la germination, la croissance et la coalescence. Ces paramètres matériaux sont au nombre de trois : le nombre de sites de germination, l'angle de mouillage et l'énergie interfaciale. Les coefficients de diffusion sont définis par extrapolation numérique à partir de la base de données MOBAL3 du logiciel Thermocalc, spécifique aux alliages d'aluminium.

1.1. Influence de la densité de sites de germination

La densité de sites de germination correspond au nombre total de sites présents dans le matériau permettant la formation de germes (1 site = 1 précipité) par unité de volume considéré. Dans le cas d'une germination homogène, chaque atome peut être un site potentiel de formation du germe. La densité de sites associée, dans cette situation, représenterait le maximum possible de sites de germination par unité de volume. Il serait déterminé à partir de la constante d'Avogadro N_{av} et du volume molaire de l'alliage V_m^0 suivant l'équation :

$$N_{tot}^{max} = \frac{N_{av}}{V_m^0} = \frac{6,02 \cdot 10^{23}}{10^{-5}} = 6,02 \cdot 10^{28} \text{ m}^{-3} \quad \text{Equation IV. 1}$$

Toutefois, dans le cadre de cette étude, la valeur de la densité de sites de germination sera considérée comme étant inférieure à celle calculée selon une hypothèse de germination

homogène puisque, dans le cas d'alliage d'aluminium industriel, la germination est considérée hétérogène [Per08]. Les germes se forment alors sur des défauts de réseaux comme des joints de grains ou des dislocations. Ainsi, cette densité est très difficile à mesurer expérimentalement et doit être ajustée, indirectement, par rapport aux résultats expérimentaux obtenus. Pour comprendre l'influence de ce paramètre, trois valeurs sont étudiées par la suite : 10^{20} m^{-3} , 10^{22} m^{-3} et 10^{24} m^{-3} , qui seront représentées respectivement par les courbes rouge, bleue et verte dans les figures suivantes (Figure IV. 1, Figure IV. 2, Figure IV. 3) représentant les évolutions de la population de précipités pour le traitement à 270°C simulé.

Le nombre de site de germination intervient dans l'équation de la vitesse de germination (Equation II.11). Si ce nombre augmente, la vitesse de germination sera proportionnellement plus importante. La Figure IV. 1 représente l'évolution de la densité de précipités présents dans une cellule de calcul, au cours du temps, pour les 3 densités de sites de germination étudiées. Ainsi, en début de calcul, pour un temps de 1 seconde, la densité (Figure IV. 1) a une valeur de l'ordre de 10^{22} m^{-3} dans le cas d'un nombre de site de germination de 10^{24} m^{-3} alors que cette valeur n'est que de l'ordre de 10^{18} m^{-2} dans le cas d'une densité de site de germination de 10^{20} m^{-3} . Initialement, les courbes suivent la même pente et sont donc parallèle, c'est-à-dire que seul le phénomène de germination se produit. Toutefois, dans le cas d'une valeur importante de sites de germination, le phénomène de germination s'arrête à 30 secondes pour un nombre initial de sites de 10^{24} m^{-3} tandis qu'il continue jusqu'à 200 secondes pour un nombre de sites fixé à 10^{20} m^{-3} .

La valeur maximale de densité est plus importante dans le cas d'une valeur élevée de ce nombre. En effet, lorsque la germination est favorisée, la croissance des précipités est limitée à cause du nombre plus important de précipités formés limitant la quantité d'élément d'alliage disponible pour favoriser la croissance. Ainsi sur la Figure IV. 2, l'étape de germination/croissance s'arrête, dans le cas d'une densité de site de 10^{24} m^{-3} à 80 secondes tandis qu'elle se poursuit jusqu'à 10000 secondes dans le cas d'une densité de site plus faible de 10^{20} m^{-3} . Ceci se traduit par une chute plus rapide de la vitesse de germination dans le cas de la densité de sites maximale (Figure IV. 1).

Du fait de la rapidité de la phase de germination/croissance, la fraction volumique d'équilibre est atteinte plus rapidement pour un nombre de sites de germination plus élevé (Figure IV. 3). Un début de régime de coalescence à partir de 10000 secondes est visible sur la Figure IV. 1 et Figure IV. 2 pour une densité de sites de germination de 10^{24} m^{-3} . Toutefois, ce régime n'est pas observable pour une densité de sites plus faible, pour lequel il se développe plus tardivement (Figure II. 19).

En conclusion, augmenter le nombre de sites de germination revient à augmenter la vitesse de germination et donc à retarder la croissance des précipités puisque le rayon moyen obtenu est plus faible. Les précipités sont alors de petites dimensions et leur densité plus importante, ce qui influence également les propriétés mécaniques futures. La fraction d'équilibre est atteinte plus rapidement et le phénomène de coalescence se produit plus tôt.

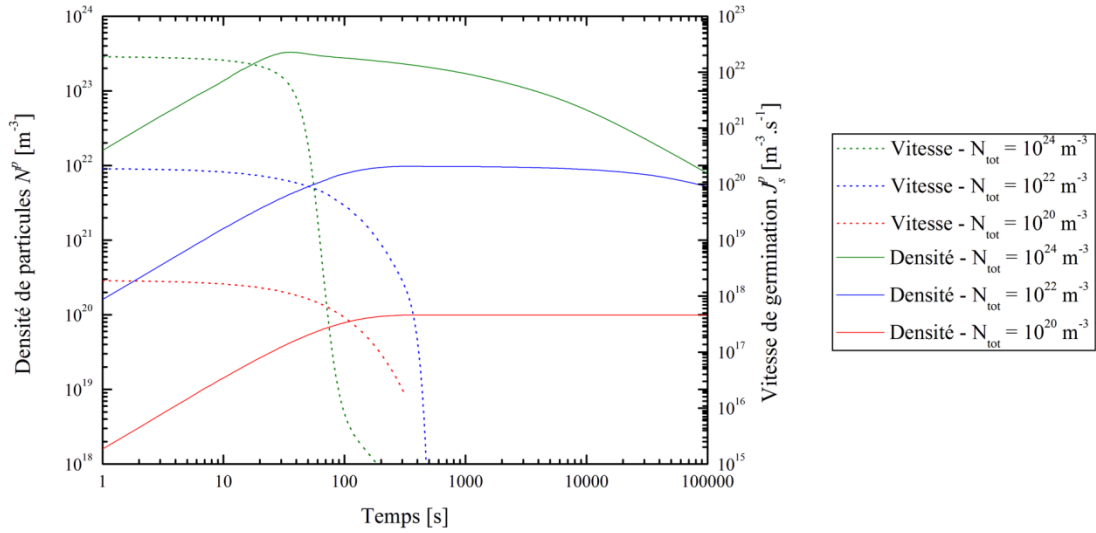


Figure IV. 1 : Influence de la densité de sites de germination sur l'évolution de la densité et de la vitesse de germination lors d'un traitement isotherme à 270°C

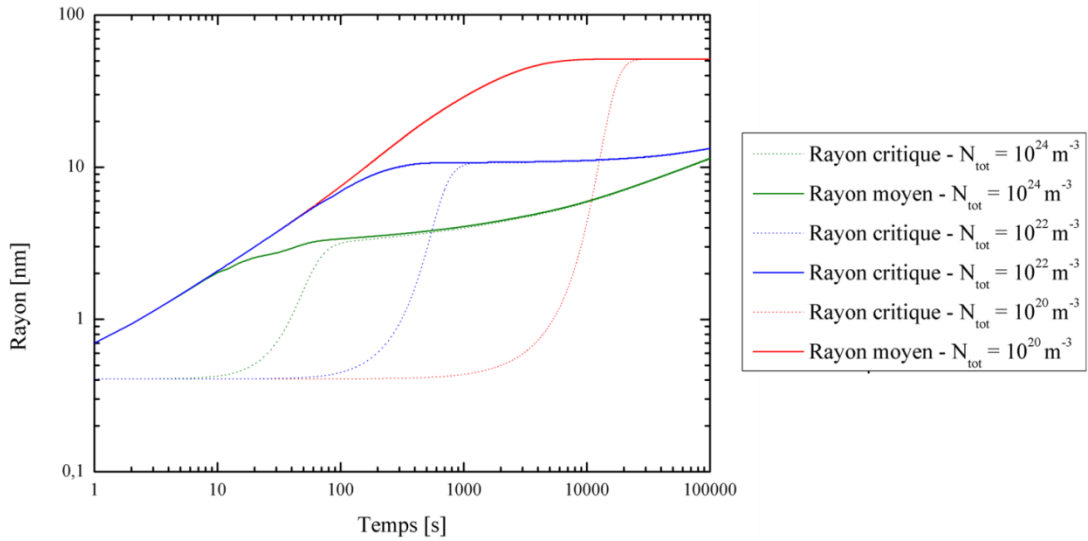


Figure IV. 2 : Influence du nombre de sites de germination sur l'évolution des rayons lors d'un traitement isotherme à 270°C.

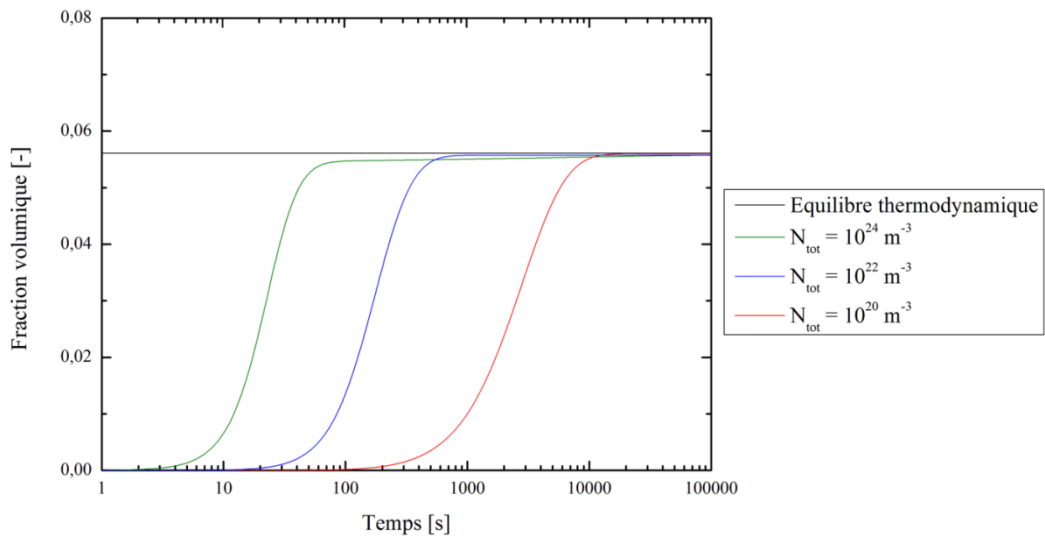


Figure IV. 3 : Influence du nombre de sites de germination sur l'évolution de la fraction volumique lors d'un traitement isotherme à 270°C

1.2. Influence de l'angle de mouillage

L'angle de mouillage est également une grandeur inconnue influençant le processus de précipitation. Il convient donc de calibrer ce terme, par rapport aux données expérimentales, pour reproduire fidèlement les évolutions des populations de précipités. Ce terme est lié à la morphologie du germe lors de sa création. Il intervient dans le calcul de l'énergie critique de germination (Chapitre II – Equation 8) qu'il impacte. Cette énergie intervient dans le calcul de la vitesse de germination (Chapitre II – Equation 11) dans le terme exponentiel. Ainsi plus l'angle de mouillage va être élevée, moins la vitesse de germination sera importante. Dans le cadre de cette étude, trois angles de mouillage ont été choisis : 30° (courbe rouge), 40° (courbe bleue) et 50° (courbe verte) pour montrer l'influence de cette grandeur.

Physiquement, l'augmentation de l'angle se traduit par une phase de germination/croissance plus longue durant laquelle la croissance est favorisée au détriment de la germination. Simultanément, la densité maximale obtenue dans le matériau est plus faible (Figure IV. 4) tandis que le rayon moyen est plus élevé à la fin du régime de germination/croissance (Figure IV. 5). La stabilisation de la fraction volumique à sa valeur d'équilibre intervient donc plus tardivement (Figure IV. 6) d'où un décalage du début de régime de coalescence. Néanmoins, à partir de 70000 secondes, les évolutions de la densité (Figure IV. 4) et du rayon moyen (Figure IV. 5) sont identiques quel que soit l'angle de mouillage choisi initialement. En effet, pour des temps longs, la vitesse de germination est nulle et le phénomène de coalescence tend à stabiliser le système en favorisant la dissolution des petits précipités au profit des plus gros. Les processus de germinations sont très réduits et n'influencent plus l'évolution du système.

L'équilibre thermodynamique du système ne dépend pas de l'angle de mouillage et il est donc attendu que ces valeurs soient identiques pour des temps longs. Ainsi, augmenter la valeur de l'angle de mouillage influence le système de la même façon que la diminution de la densité totale de site de germination.

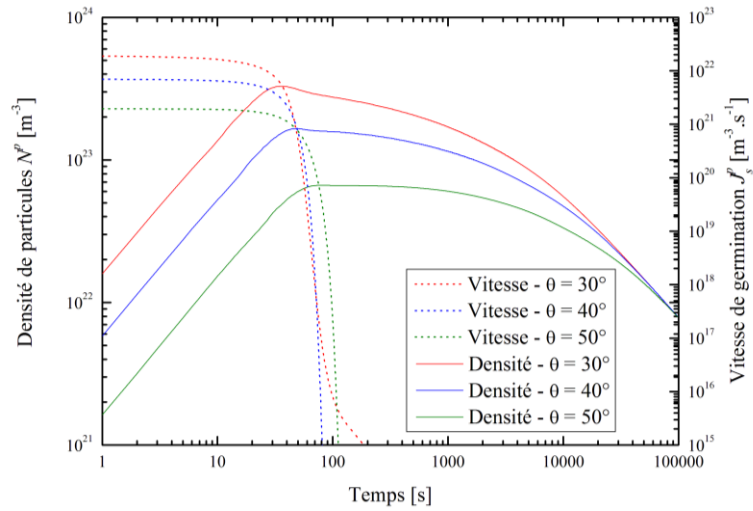


Figure IV. 4 : Influence de l'angle de mouillage sur l'évolution de la densité lors d'un traitement isotherme à 270°C

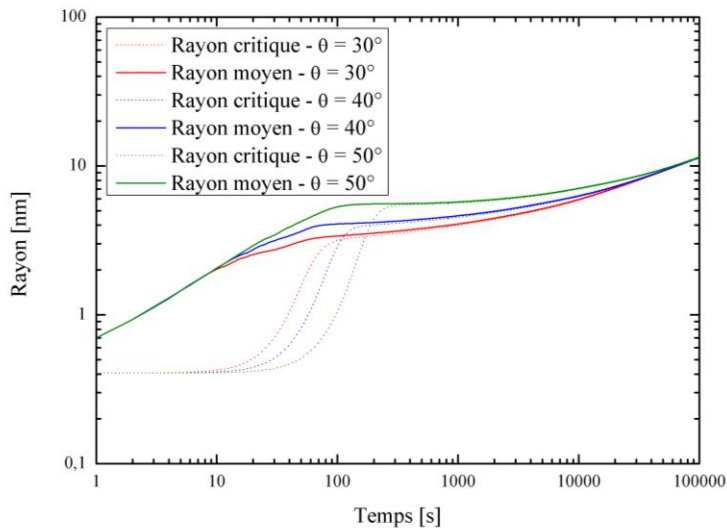


Figure IV. 5 : Influence de l'angle de mouillage sur l'évolution des rayons lors d'un traitement isotherme à 270°C

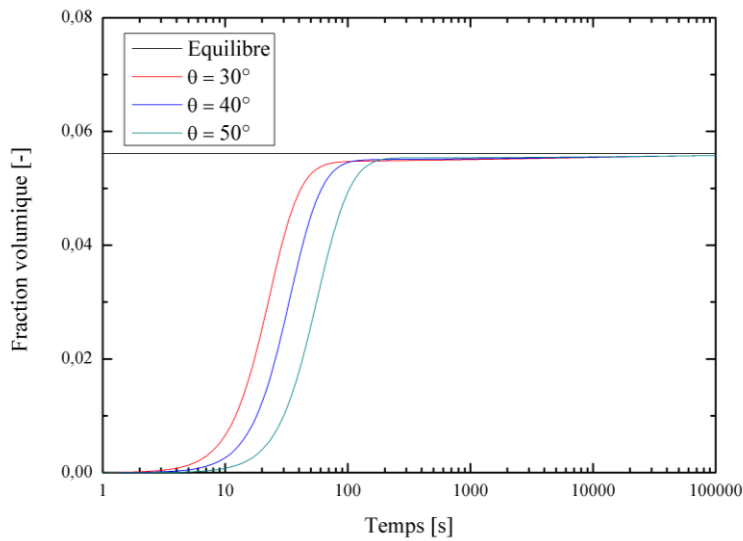


Figure IV. 6 : Influence de l'angle de mouillage sur l'évolution de la fraction volumique lors d'un traitement isotherme à 270°C

1.3. Influence de l'énergie interfaciale

L'énergie interfaciale intervient dans le calcul de l'énergie critique de germination (Equation II.8), dans le calcul de la vitesse de germination et également dans le calcul de la cinétique de croissance des précipités. Ce paramètre a un effet similaire à celui de l'angle de mouillage et son augmentation conduit aux mêmes évolutions dans un régime de germination/croissance. Ainsi, diminuer l'énergie interfaciale va favoriser la germination, et augmenter la population de précipité sur l'ensemble du processus. Sur la Figure IV. 7, pour une énergie de 100 mJ.m^{-2} en début de calcul, la valeur de la densité est de l'ordre de $1,5.10^{22} \text{ m}^{-3}$ tandis que pour une énergie de 200 mJ.m^{-2} , la valeur de la densité n'est que de $4,5.10^{21} \text{ m}^{-3}$. Durant la phase de germination/croissance, les courbes sont parallèles et caractéristiques d'un régime de germination. La densité maximale obtenue est plus importante dans le cas d'une faible énergie interfaciale puisque la vitesse de germination est plus élevée.

L'énergie interfaciale intervient également dans le calcul du rayon critique. Augmenter d'un facteur 2 cette énergie, revient à multiplier par 2 la valeur du rayon critique d'après l'Equation II.9. Ceci est observable sur la Figure IV. 8. Pour un temps de 1 seconde et pour une énergie interfaciale de 100 mJ.m^{-2} , le rayon critique est de 0,4 nm. En doublant la valeur de l'énergie (200 mJ.m^{-2}), la valeur du rayon critique obtenue au même instant est de 0,8 nm. La vitesse de germination étant plus faible, le temps nécessaire pour que le phénomène de croissance soit visible est plus élevé ce qui conduit à l'observation d'une inflexion de la courbe sur le rayon moyen à 3 secondes. Ainsi, pour une énergie interfaciale de 200 mJ.m^{-2} , le phénomène de croissance n'intervient pas de façon instantanée mais au bout de 3 secondes. La densité maximale obtenue étant plus faible, le régime de germination/croissance se poursuit légèrement plus longtemps avec un phénomène de croissance favorisé, lié à une variation plus lente de la composition en élément d'alliage de la matrice, d'où un rayon moyen, à la fin du processus de croissance supérieur à celui obtenu avec une énergie plus faible. Ce décalage dans le temps est également visible sur l'évolution de la fraction volumique (Figure IV. 9).

L'équilibre thermodynamique est atteint en fin de calcul : la fraction volumique devient égale à sa valeur d'équilibre (Figure IV. 9) Toutefois, contrairement à ce qui avait été montré précédemment dans le cas de l'angle de mouillage, la densité et le rayon moyen ne tendent pas vers la même valeur lors du processus de coalescence. Leur évolution est parallèle. En effet, l'énergie interfaciale intervient dans la formulation rendant compte de l'effet Gibbs-Thomson (Equation II.22) et donc modifie les équilibres interfaciaux, à la différence de l'angle de mouillage. L'état d'équilibre thermodynamique vers lequel le système tend est donc affecté d'où la simulation du régime de coalescence dans ce calcul sans avoir à prendre en compte la théorie LSW [Lif61, Sil60, Wag61]. Néanmoins, l'Equation IV. 2 propre à la description de l'évolution du rayon moyen dans le cadre de la théorie LSW tient compte de l'énergie interfaciale dans l'expression de l'évolution du rayon en fonction du temps.

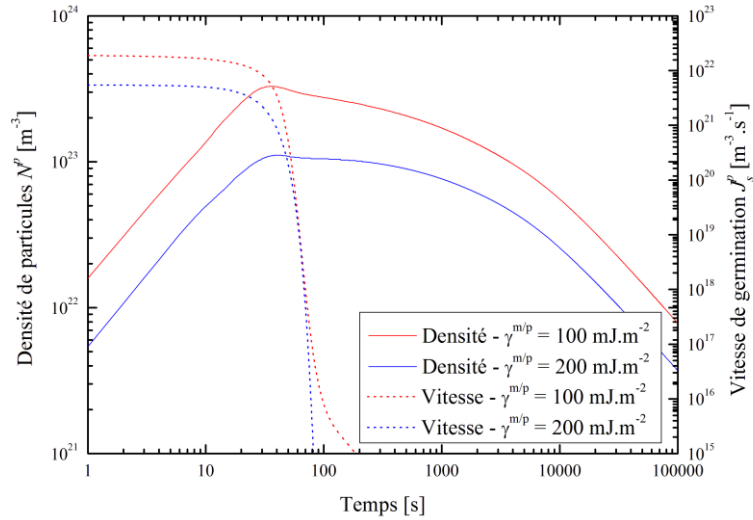


Figure IV. 7 : Influence de l'énergie interfaciale sur l'évolution de la densité totale de particules lors d'un traitement isotherme à 270°C

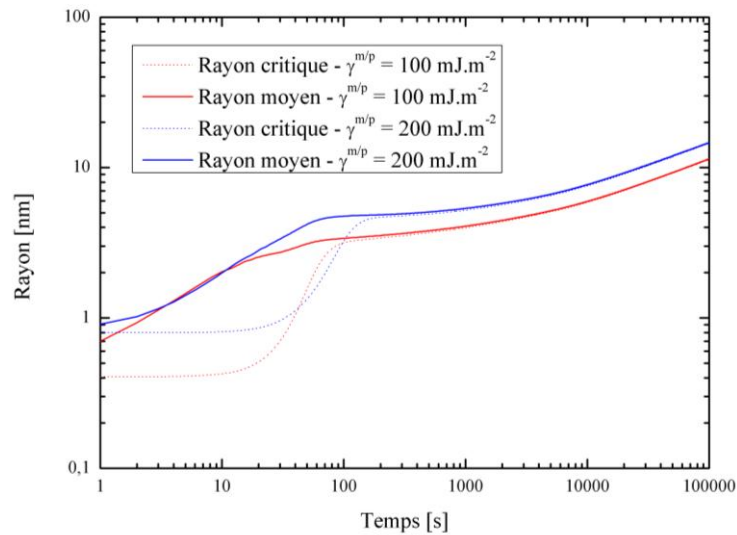


Figure IV. 8 : Influence de l'énergie interfaciale sur l'évolution des rayons moyens et critiques lors d'un traitement isotherme à 270°C

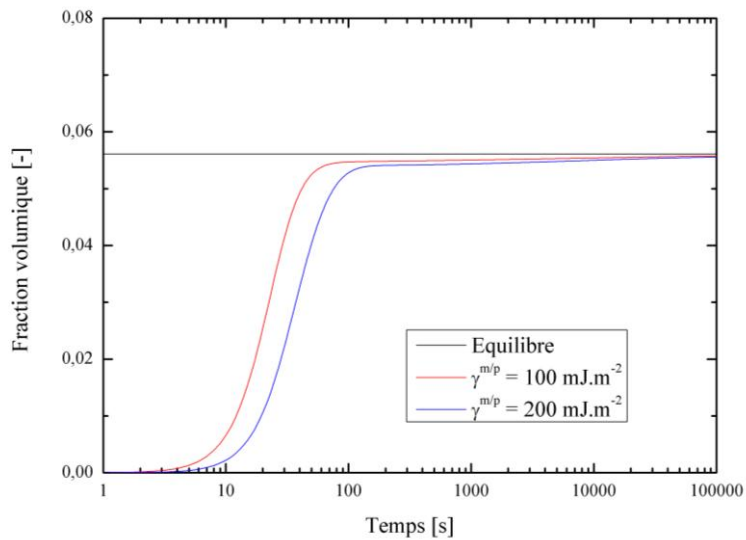


Figure IV. 9 : Influence de l'énergie interfaciale sur l'évolution de la fraction volumique

$$r^3 = \frac{8}{9} D \frac{X_{eq}^m}{X^p - X_{eq}^m} \frac{V_m^m}{RT} \gamma^{m/p} t \quad \text{Equation IV. 2}$$

Avec r le rayon moyen de la particule, D le coefficient de diffusion, X^p la composition du précipité, X_{eq}^m la composition à l'équilibre de la matrice, V_m^m le volume molaire de la matrice, R la constante des gaz parfaits, T la température, $\gamma^{m/p}$ l'énergie interfaciale et t le temps.

Pour expliquer les évolutions observées, il est donc possible de se référer à l'Equation IV. 2 et à l'expression du rayon r en fonction du temps t . Dans le cas d'un traitement isotherme, la température, les coefficients de diffusion et les compositions de la matrice à l'équilibre sont identiques dans les deux cas étudiés. De plus, la phase S est un composé défini selon Thermocalc et sa composition ne varie pas au cours du temps. Cette valeur est, en conséquence, également identique dans les deux cas. Le paramètre variable est donc l'énergie interfaciale et affecte en puissance 1/3 la pente du régime de coalescence ce qui se traduit par des droites parallèles dans le cas de graphes avec des échelles de temps logarithmique (Figure IV. 8). Le rapport des rayons moyens entre les deux évolutions est donc celui des énergies, à la puissance 1/3, soit environ 1,26, ce qui est bien retrouvé dans les rapports des rayons moyens calculés à 100 000 secondes. Le modèle étudié rend donc bien compte non seulement de la coalescence mais également de ses propriétés en retrouvant les évolutions attendues de la théorie LSW.

2. Simulation d'un essai DSC

La DSC est une technique d'analyse qui a été présentée au Chapitre II. Elle permet d'observer la dissolution des zones GPB et la précipitation de la phase S. Elle est utilisée pour calibrer la teneur initiale en zones GPB en accord avec les données de la littérature. Elle permet également d'ajuster les paramètres matériaux propres à la phase S et aux zones de Guinier-Preston. De plus, la DSC permet de valider la cinétique de précipitation pour différentes vitesses de chauffe.

2.1. Observations expérimentales

Pour calibrer le modèle pour une vitesse de chauffe à $10 \text{ }^\circ\text{C}\cdot\text{min}^{-1}$, la courbe brute obtenue en DSC à flux de chaleur est choisie. En effet, elle permet de valider la droite de la capacité calorifique pour la simulation et de valider l'intensité des pics. Néanmoins, la DSC à compensation de puissance a été utilisée pour une vitesse de $300 \text{ }^\circ\text{C}\cdot\text{min}^{-1}$ (Chapitre II).

L'utilisation de deux vitesses différentes génère des intensités différentes et des décalages des phénomènes. Plus la vitesse de chauffe sera rapide, plus les flux de chaleur auront une valeur élevée (Figure IV. 10 -courbe rouge) et plus les phénomènes se produiront à des températures élevées. Les phénomènes de dissolution et précipitation sont gouvernés par la

cinétique de diffusion des espèces et par les équilibres thermodynamiques interfaciaux. Cependant la vitesse de chauffe n'étant pas infiniment lente, les compositions interfaciales ne sont pas en équilibre par rapport à la composition moyenne de la cellule. Ce phénomène explique l'effet observé de la vitesse de chauffe.

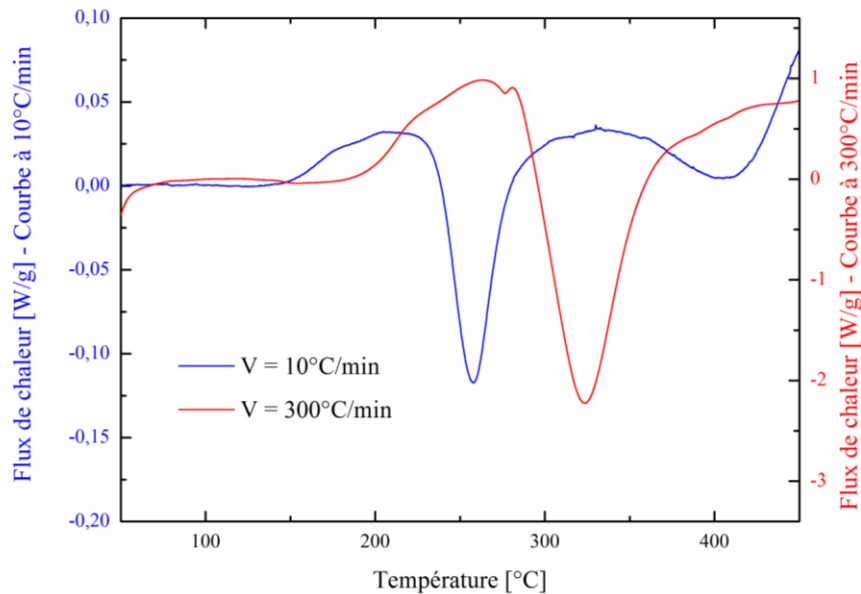


Figure IV. 10 : Influence de la vitesse de chauffe sur l'intensité du signal
(10 °C.min⁻¹ -axe de droite –bleue, 300 °C.min⁻¹ axe de gauche – rouge)

2.2. Initialisation de la teneur en zones de Guinier-Preston

Le phénomène de dissolution des zones GPB intervenant avant la précipitation de la phase S, seules les zones GPB seront considérées dans cette première étude. L'objectif est de déterminer l'état initial de cette précipitation, et son évolution lors d'un processus de chauffe tel celui induit par le soudage FSW.

Dans un premier temps, le mécanisme de dissolution des zones GPB est présenté afin de mieux comprendre l'influence des différents paramètres matériau. Par la suite, l'influence du rayon moyen initial, de la densité de particules initialement présentes et de l'écart-type de la distribution initiale sera étudiée. Tous ces paramètres sont analysés dans le cas de la simulation d'une rampe en DSC à 10 °C.min⁻¹.

Dissolution des zones GPB

Afin d'étudier l'influence des différents paramètres sur le signal DSC, des valeurs de référence correspondant à la calibration finale des GPB ont été choisies comme référence dans cette étude. Les paramètres seront étudiés un à un par la suite et seule la valeur d'étude sera modifiée. Les données de référence sont présentées dans le Tableau IV. 1 et dans le Tableau IV. 2.

Tableau IV. 1 : Données matériaux pour la simulation des processus de dissolution/croissance des zones GPB dans le AA2024 dans son état T3

	Densité totale de sites de germination (N_{tot}) [m^{-3}]	Angle de mouillage (θ)	Energie interfaciale (σ) [$mJ.m^{-2}$]
Valeurs numériques	1.10^{26}	30	100

Tableau IV. 2 : Caractéristique de la distribution initiale de précipités GPB dans le AA2024 dans son état T3.

	Densité initiale de sites de germination (N_i) [m^{-3}]	Rayon initial de la distribution [nm]	Ecart-type initial de la distribution [nm]
Valeurs numériques	$1,5.10^{24}$	2	0,2

Dans cet exemple simple et illustratif, la dissolution des zones GPB intervient à partir de 180 °C. Sur la Figure IV. 11, la fraction volumique chute alors fortement. Néanmoins, à partir de 270 °C et au-dessus de 300°C, cette fraction augmente de nouveau avant de se dissoudre de nouveau et définitivement. La densité totale de particules (Figure IV. 12) est initialement de $1,5.10^{24} m^{-3}$ et se dissout en trois temps : à 125 °C, une première chute s’amorce jusqu’à un plateau de $2,5.10^{22} m^{-3}$ atteint à 255 °C. Cette première stabilisation semble être liée à la présence d’une vitesse de germination (Figure IV. 12) non négligeable. L’augmentation rapide de cette vitesse est probablement liée à la libération de sites de germination suite à la dissolution de précipités les occupant. Sur la Figure IV. 13, la chute de la densité et de la fraction volumique correspondent à un rayon moyen inférieur au rayon critique. Cette zone est indiquée en vert. La chute de la vitesse de germination engendre une diminution de la densité puisque le phénomène de germination ne semble plus compenser la dissolution des zones GPB. Une seconde chute de la densité est visible jusqu’à un plateau de $7.10^{20} m^{-3}$. Cette seconde stabilisation de la densité et de la fraction volumique vers 270°C correspond à un rayon moyen supérieur au rayon critique induisant un phénomène de croissance qui se traduit par une augmentation de la fraction volumique (Figure IV. 13). A 320°C, le rayon critique devient supérieur au rayon moyen d’où une dissolution des zones GPB, phénomène visible également sur les courbes de densité (Figure IV. 12) avec une chute brutale et définitive. A 350°C, toutes les zones GPB ont été dissoutes. En effet, le rayon moyen ayant une valeur nulle, la courbe associée ne peut être représentée sur la Figure IV. 13. Cette zone apparaît en rouge et correspond à l’absence totale de zones GPB.

Sur la Figure IV. 12, la vitesse de germination est présentée. Sa valeur comprise entre $10^{15} m^{-3}.s^{-1}$ et $3.10^{20} m^{-3}.s^{-1}$ est largement inférieure à la densité totale de particules d’où un impact négligeable sur l’évolution de la fraction volumique et donc du signal, sur la durée totale des processus de précipitation/dissolution étudiés, de l’ordre de 100 à 1 000 secondes. Ainsi, l’angle de mouillage et la densité totale de sites de germination propre à la phase GPB devraient avoir un impact mineur sur l’évolution des phénomènes lors d’une rampe de chauffe à $10 °C.min^{-1}$.

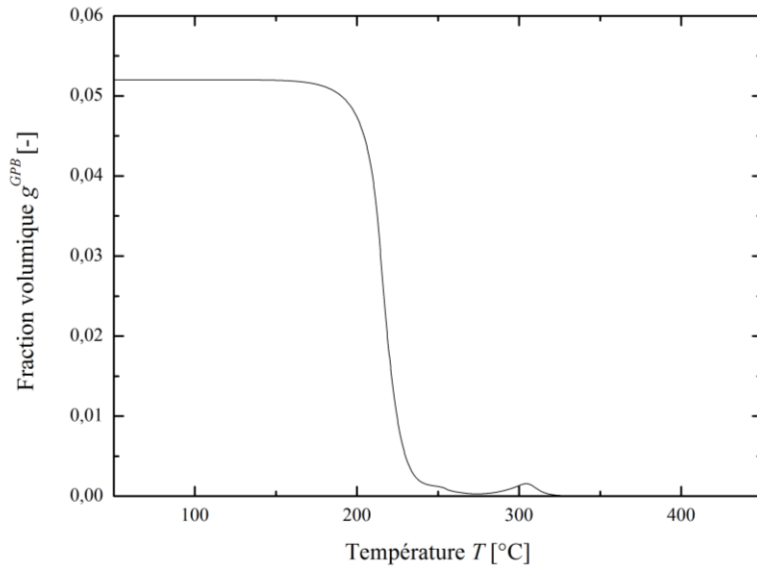


Figure IV. 11 : Evolution de la fraction volumique de zones GPB lors d'un essai de DSC à $10^{\circ}\text{C}\cdot\text{min}^{-1}$

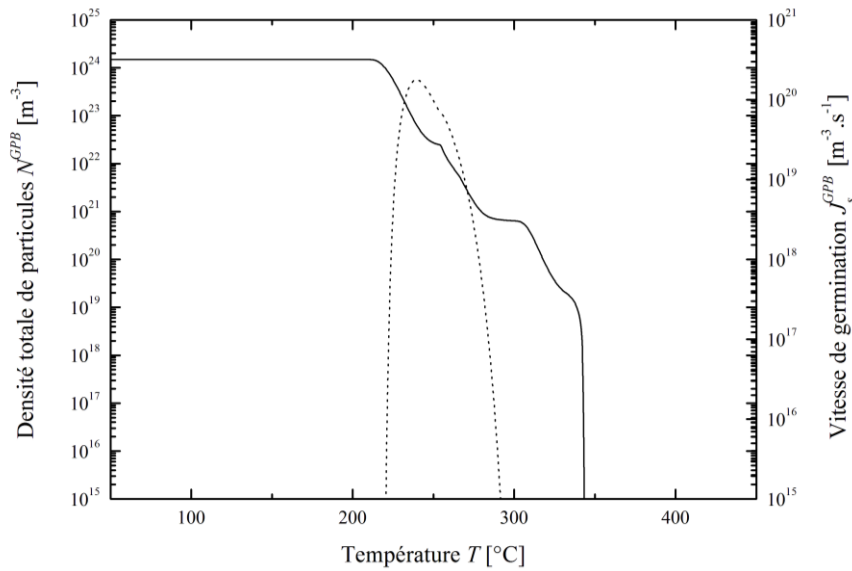


Figure IV. 12 : Evolution de la densité de particules et de la vitesse de germination lors d'un essai de DSC à $10^{\circ}\text{C}\cdot\text{min}^{-1}$

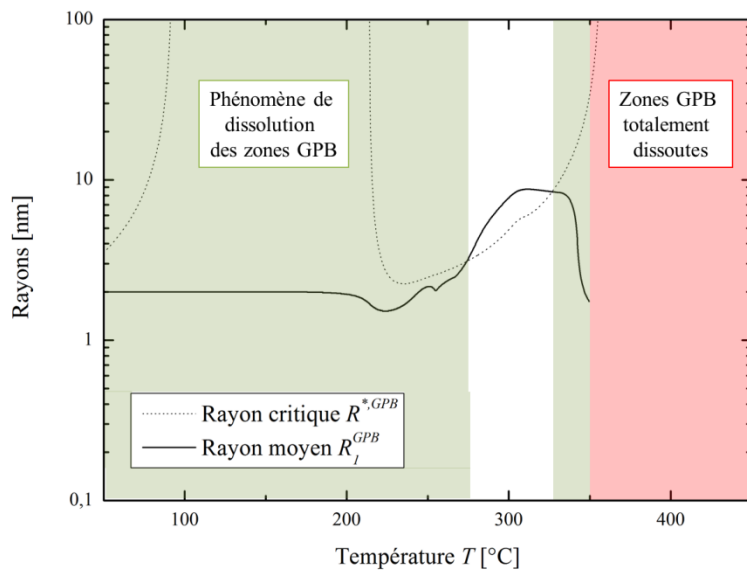


Figure IV. 13 : Evolution des rayons (moyen et critique) lors d'un essai de DSC à $10^{\circ}\text{C}\cdot\text{min}^{-1}$

Influence de l'angle de mouillage

Sur la Figure IV. 14, le signal de l'essai expérimental apparaît en noir. L'objectif est de définir un jeu de paramètres permettant de retrouver les amplitudes et positions des phénomènes physiques observés lors d'un essai DSC. Dans cette partie, seule le pic endothermique de dissolution des GPB est étudié. Le signal simulé avec les paramètres indiqués dans le Tableau IV. 1 et le Tableau IV. 2 est présenté en rouge. L'augmentation de l'angle de mouillage produit un signal présenté en traits interrompus bleus. Ce signal est identique au signal simulé initialement, les deux courbes apparaissant superposées. En effet, l'angle de mouillage affecte uniquement la vitesse de germination et son impact est trop faible pour modifier les flux de chaleur simulés lors d'un essai de DSC à $10^{\circ}\text{C}\cdot\text{min}^{-1}$. Ainsi, les deux signaux pour deux valeurs d'angle de mouillage différentes pour les phases GPB sont parfaitement superposés indépendamment du choix de l'angle.

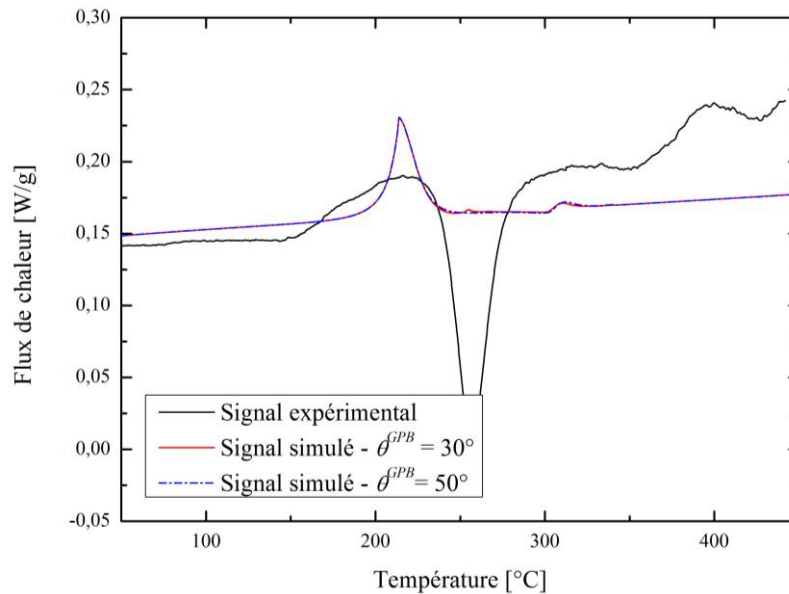


Figure IV. 14 : Influence de l'angle de mouillage sur le flux de chaleur correspondant à la dissolution des zones GPB à $10^{\circ}\text{C}\cdot\text{min}^{-1}$ (endo up)

Influence du nombre de sites de germination

Augmenter la valeur de densité totale de sites de germination induit une augmentation proportionnelle de la vitesse de germination de la même amplitude. Ainsi, le maximum de cette vitesse aura une valeur de $10^{24} \text{ m}^{-3}\cdot\text{s}^{-1}$ soit du même ordre de grandeur que la densité de sites occupés. Ceci se traduit par un léger pic à 260°C sur la courbe en pointillée bleue de la Figure IV. 15. Néanmoins, l'intensité du pic à 230°C n'est pas affectée par cette valeur. Cette densité totale doit être supérieure à la densité initiale de particules présentes dans le matériau. Elle peut, dans le cas des zones GPB s'approcher de la valeur limite de 10^{28} m^{-3} valable dans le cas d'une germination homogène.

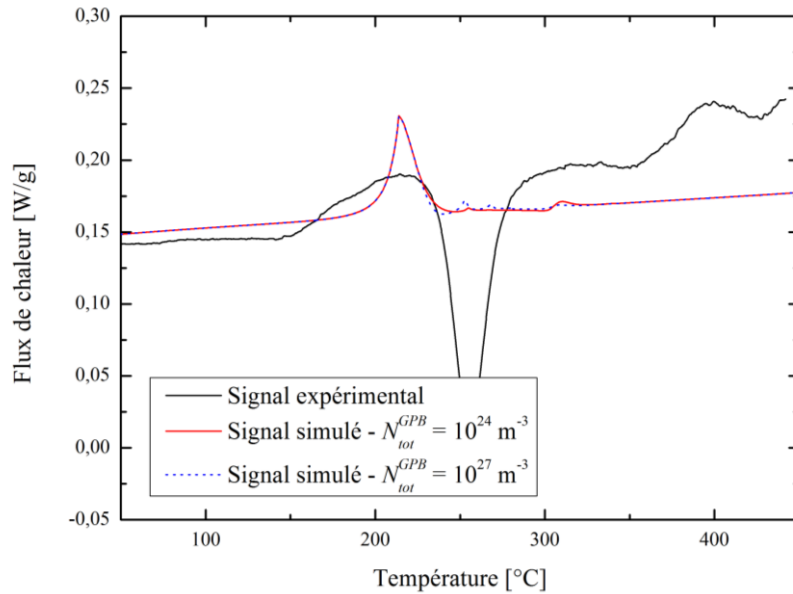


Figure IV. 15 : Influence de la densité totale de sites de germination présents dans le matériau sur le flux de chaleur dans le cadre d'un essai de DSC à $10^{\circ}\text{C}.\text{min}^{-1}$ (endo up)

Influence de l'énergie interfaciale

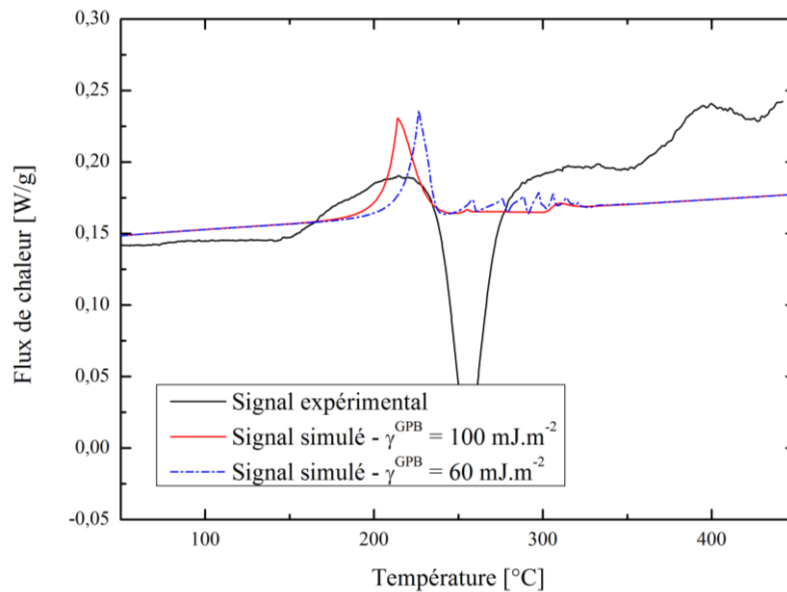


Figure IV. 16 : Influence de l'énergie interfaciale sur le signal DSC lors d'une rampe de chauffe à $10^{\circ}\text{C}.\text{min}^{-1}$

L'énergie interfaciale influence la germination mais impacte également le rayon critique. Diminuer cette énergie va induire une diminution du rayon critique et donc diminuer le nombre de particules en dissolution. Néanmoins, cette énergie est également présente dans le calcul de l'effet Gibbs-Thomson et affecte ainsi la cinétique. Cette valeur dans le cas d'une phase métastable est comprise entre $50 \text{ mJ}.\text{m}^{-1}$ et $100 \text{ mJ}.\text{m}^{-1}$ [Ser04,Dub12]. Sur la Figure IV. 16, deux simulations sont présentées pour des valeurs d'énergie de $60 \text{ mJ}.\text{m}^{-1}$ et

100 mJ.m⁻¹. L'énergie interfaciale induit un déplacement du pic vers les plus hautes températures, due à un retard dans les processus de dissolution. Ainsi, il peut être déduit que la vitesse de dissolution est abaissée par la présence d'une énergie interfaciale moindre. Abaisser cette énergie interfaciale semble générer des instabilités à plus haute température qui pourraient être liées à des régimes alternés entre précipités en croissance et précipités en dissolution.

Influence de la fraction volumique

Il est très difficile de définir expérimentalement la fraction volumique et la taille des zones de Guinier-Preston. Comme énoncé dans le Chapitre III, les zones GPB sont supposées être à l'équilibre thermodynamique, c'est-à-dire que la fraction volumique des zones GPB initialement présente correspond à la fraction volumique d'équilibre qui est déterminée à l'aide du logiciel Thermocal. En fonction des phases considérées dans le calcul d'équilibre thermodynamique, cette valeur varie entre 0,0586 dans le cas d'un système purement bi-phasé (S phase + GPB), en plus de la phase matrice, à 0,0546 si les dispersoïdes Al₂8Cu₄Mn₇ sont pris en compte. Genevois [Gen04] estime que dans le cas de l'alliage AA2024, la fraction volumique est de 0,055.

Dans le cadre de cette étude, la fraction volumique n'est pas fixée comme donnée d'entrée. Elle est calculée à partir du rayon moyen, de la densité initiale de particules et de l'écart-type de la distribution (Equation II.30). Ainsi, trois paramètres sont ajustables afin d'obtenir une fraction volumique proche de la valeur d'équilibre. Les données sont répertoriées dans le Tableau IV. 3.

	Rayon moyen R_1^{GPB} [nm]	Densité initiale de particules N^{GPB} [m ⁻³]	Ecart-type de la distribution σ^{GPB} [nm]	Fraction volumique initiale g^{GPB} [-]
Référence	2	1,5.10 ²⁴	0,2	0,052
Essai 1	2	1,2.10 ²⁴	0,2	0,042

Tableau IV. 3 : Caractéristique de la distribution initiale des précipités GPB dans le AA2024 dans son état T3 permettant la comparaison de l'influence de la quantité initiale de zones GPB dans le système.

La Figure IV. 17 montre l'influence de la fraction volumique initiale sur l'importance du signal de dissolution simulé à 200 °C. Il apparaît clairement que l'intensité du signal dépend fortement de la quantité initiale de zones GPB présentes. Le signal est plus important dans le cas d'une fraction volumique importante. Toutefois, si l'aire sous la courbe semble mieux correspondre dans le cas d'une fraction de 0,052, l'allure de la courbe pour une fraction de 0,042 semble plus proche du signal expérimental. La transition pour une fraction volumique plus faible apparaît être moins brutale.

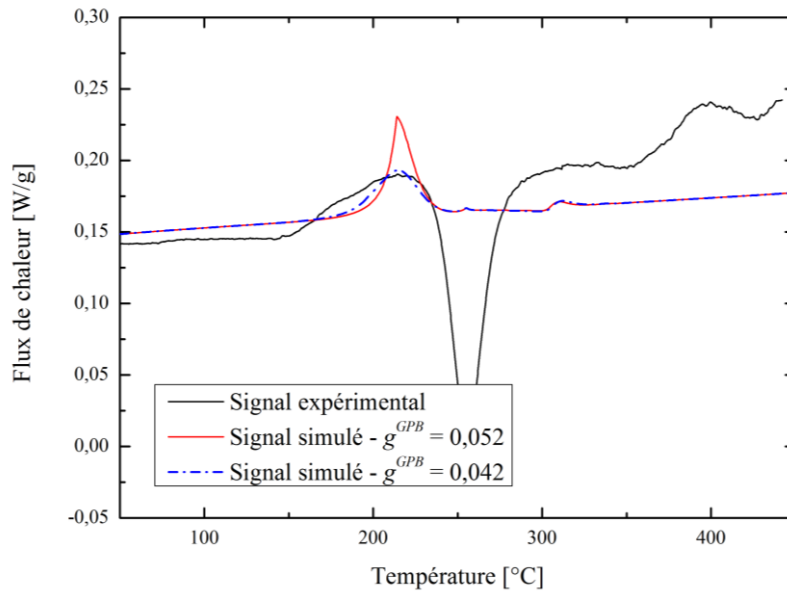


Figure IV. 17 : Influence de la fraction volumique sur l'intensité du signal de dissolution lors d'une rampe thermique à $10\text{ °C}\cdot\text{min}^{-1}$

Influence du rayon moyen

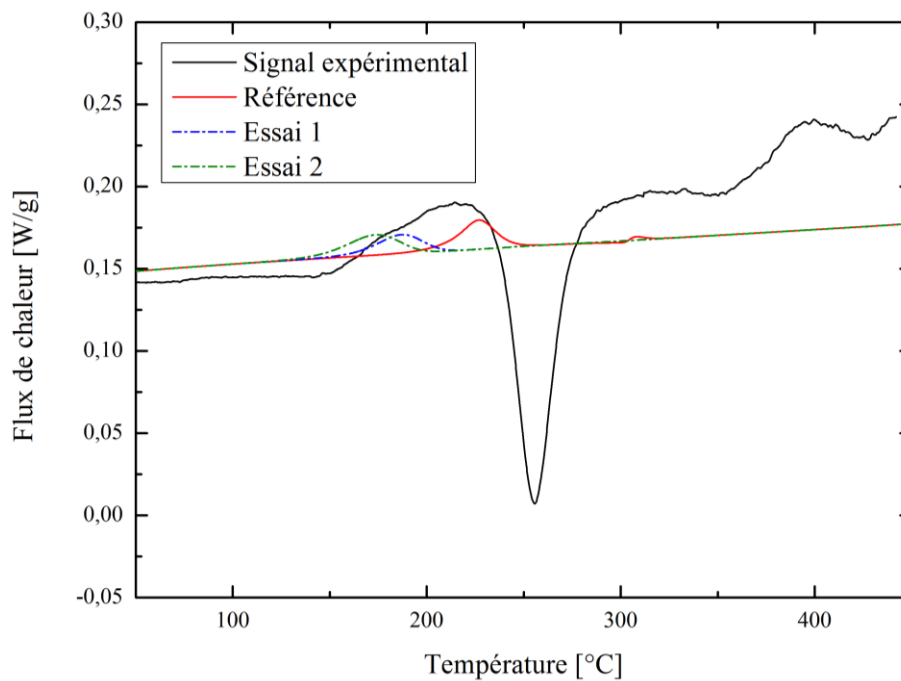


Figure IV. 18 : Influence du rayon moyen sur le positionnement du pic de dissolution lors d'un essai en DSC à $10\text{ °C}\cdot\text{min}^{-1}$

Il est difficile d'estimer la valeur du rayon moyen puisque les zones GPB sont difficilement observables. Pour avoir un ordre de grandeur, il est possible de se référer aux

données de la littérature. Silcok [Sil60], Charaï [Cha00] et Genevois [Gen04] considèrent que les zones GPB ont une morphologie de plaquettes. Silcok [Sil60] estime l'épaisseur des zones GPB comme étant comprise entre 1 et 2 nm et leur longueur comme étant comprise entre 4 et 8 nm. Pour Charaï [Cha00], l'épaisseur est de 0,2 nm pour une longueur de 4 nm. Genevois [Gen04] estime le rayon moyen comme étant égal à 0,75 nm. Ainsi, trois valeurs différentes ont été choisies : 0,8 nm, 1 nm et 2 nm pour développer un travail de comparaison de l'évolution des populations de précipités GPB par notre modèle. Les densités initiales de particules ont été ajustées afin d'avoir des fractions volumiques de précipités comparables et donc des aires sous la courbe similaire. Les valeurs choisies sont données dans le Tableau IV. 4. L'écart-type est identique quel que soit le jeu de paramètre.

	Rayon moyen R_1^{GPB} [nm]	Densité initiale de particules N^{GPB} [m^{-3}]	Ecart-type de la distribution σ^{GPB} [nm]	Fraction volumique initiale g^{GPB} [-]
Référence	2	$5 \cdot 10^{23}$	0,14	0,017
Essai 1	1	$4 \cdot 10^{24}$	0,14	0,0162
Essai 2	0,8	$7 \cdot 10^{24}$	0,14	0,0166

Tableau IV. 4 : Caractéristique de la distribution initiale des précipités GPB dans le AA2024 dans son état T3 permettant la comparaison de l'influence du rayon initial sur la position du pic de dissolution.

Lorsque le rayon moyen est de 0,8 nm, le phénomène de dissolution intervient à 175 °C tandis que lors que le rayon moyen est plus élevé (1 nm), ce phénomène se produit plus tardivement (195 °C). (Figure IV. 18). En fait, le rayon critique atteint la valeur du rayon moyen plus tôt (phénomène présenté sur la Figure IV. 13) pour ce rayon de 0,8 nm et ainsi le phénomène de dissolution peut se produire de manière précoce.

Lorsque le rayon moyen est de 2 nm, le phénomène de dissolution intervient à plus haute température (235 °C). Le rayon critique au-dessous duquel se produit la dissolution augmente progressivement au cours du chauffage (Figure IV. 13). La dissolution pour des précipités ayant un rayon plus grand est donc activée plus tardivement.

Influence de l'écart-type

Les zones GPB sont supposées être déjà formées dans le cas de cette étude. Néanmoins, rien n'indique que ces zones aient exactement le même rayon initial. Ainsi un écart-type est introduit. Les trois distributions initiales étudiées sont présentées sur la Figure IV. 19.

Plus l'écart-type est faible et plus l'étalement est limité. Ceci est visible pour l'écart-type de 0,01 nm sur la Figure IV. 19. En faisant l'hypothèse que toutes les particules ont le même rayon initial, lorsque le rayon critique devient supérieur à ce rayon, la totalité des particules sont dissoutes. Le phénomène de dissolution intervient donc brusquement pour des écarts-types réduits et se traduit par un pic abrupt sur le signal de DSC. Ce type de phénomène

brusque est particulièrement visible pour le plus faible écart-type de 0,01 nm sur la Figure IV. 20, et apparaît plus réduits pour les écarts-types plus larges.

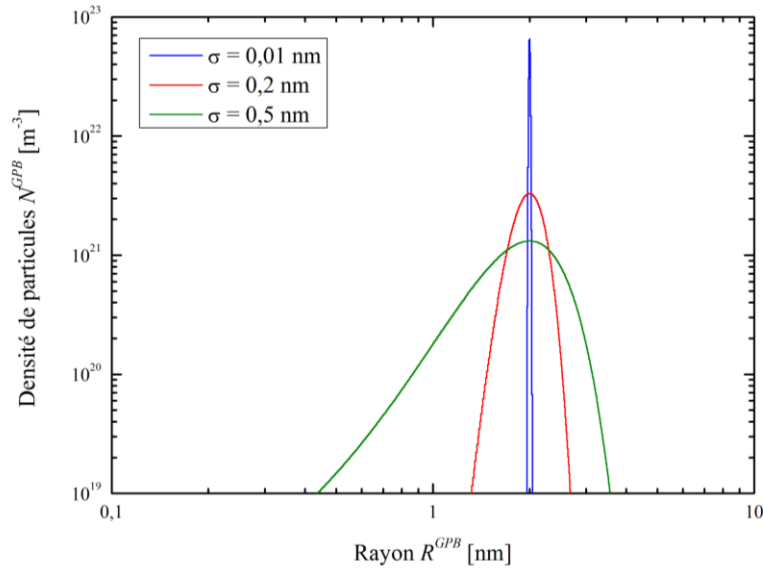


Figure IV. 19 : Distribution initiale pour un même rayon moyen (2 nm), et une même densité initiale de particules ($5 \cdot 10^{23} \text{ m}^{-3}$) mais avec un écart-type σ différent

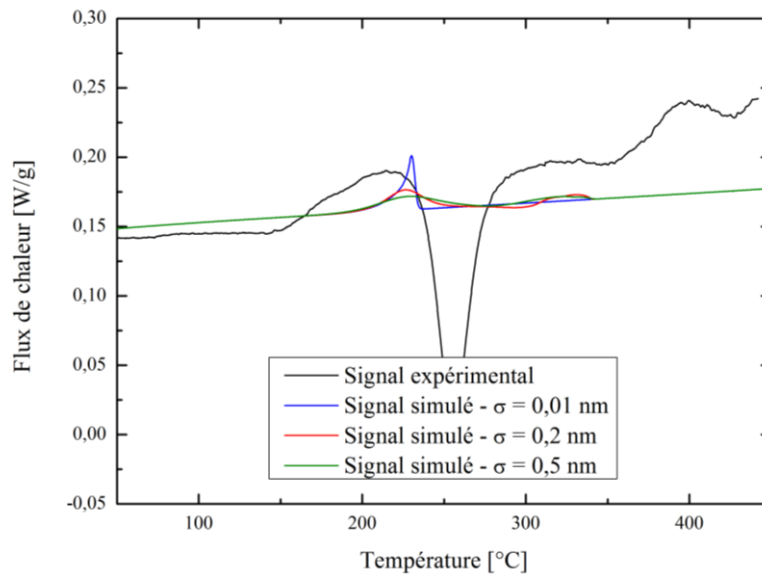


Figure IV. 20 : Evolution du flux de chaleur en fonction de l'écart type pour un essai DSC à $10 \text{ }^\circ\text{C} \cdot \text{min}^{-1}$

Ainsi, dans le cas d'un étalement plus important de la distribution en taille des précipités, les classes qui contiennent des particules sont nombreuses. Ainsi, lorsque le rayon critique atteint la valeur du rayon le plus petit, le rayon le plus grand n'est pas affecté. Le processus de dissolution s'étale dans le temps, en suivant l'augmentation continue du rayon critique, sur l'ensemble de l'évolution thermique imposée. Ce phénomène est donc plus progressif et sur la Figure IV. 20, la courbe verte présentant l'écart-type le plus important est celle montrant un signal de dissolution plus étalé dans le temps, de 200 °C à 250 °C.

Choix des paramètres matériaux définitifs

Les paramètres propres à la germination ont peu d'influence sur le signal de DSC pour le processus de dissolution des précipités GPB, la phase S n'étant pas prise en compte dans cette étude. Pour l'angle de mouillage une valeur faible a été choisie. Elle permet de favoriser la germination des zones GPB. L'énergie interfaciale choisie peut paraître élevée dans le cas d'une phase métastable cohérente mais permet une bonne localisation du pic de dissolution. Pour ajuster la densité totale de sites de germination, il est nécessaire de définir la densité initiale de sites occupés par les zones GPB. En effet, il faut que la première valeur soit supérieure à la seconde. Dubost [Dub12] considère que la densité de zones GPB est comprise entre 10^{23} m^{-3} et 10^{24} m^{-3} . Le rayon moyen permettant une bonne localisation du pic est de 2 nm (cf. Figure IV. 18). Ce rayon est en accord avec les données de la littérature [Cha00]. La fraction volumique initiale de précipités proposée est de 0,042. La densité initiale de précipités associée pour obtenir cette fraction volumique initiale proche des estimations de la littérature et du logiciel Thermocalc, (0,05) est de $1,2 \cdot 10^{24} \text{ m}^{-3}$. Elle est légèrement supérieure aux encadrements proposés par Dubost de cette valeur de densité mais induit une fraction volumique inférieure de 17% aux valeurs estimées. Néanmoins cette valeur de fraction volumique de 0,042 permet d'obtenir une aire sous la courbe proche de celle observée sur le signal expérimental. Ainsi, la comparaison avec le signal expérimental a été favorisée dans le cadre de cette étude et les données matériaux et d'initialisation sont regroupées dans le Tableau IV. 1 et le Tableau IV. 2.

2.3. Calibration des paramètres de la phase S

La phase S est initialement non présente dans le matériau, ainsi il n'est pas nécessaire de calibrer sa distribution initiale. Par contre, lors de la chauffe, la phase S va se former et il va être possible de calibrer les paramètres matériaux guidant la cinétique de germination et de croissance/dissolution des précipités associés de manière fiable. Les zones GPB ne seront pas prises en considération dans cette étude.

Dans un premier temps, l'explication des phénomènes se produisant pendant le cycle de chauffe en DSC et propre à la phase S sera détaillée. Dans un second temps, l'explication de l'influence des paramètres matériaux sur le flux de chaleur sera présentée. Enfin, les valeurs retenues pour la calibration seront données, à l'image de l'analyse développée précédemment pour la phase GPB. Ce travail permettra d'aboutir à définir un ensemble de paramètres propres à décrire l'évolution des processus de précipitation de l'ensemble des phases étudiées.

Phénomène de précipitation de la phase S lors d'un cycle DSC

Pour comprendre le phénomène de précipitation de la phase S au cours du chauffage, des paramètres matériaux guidant la cinétique ont été choisis, à partir des valeurs proposées dans la

littérature. Ces premières estimations des paramètres vont servir de référence et de support à la compréhension de l'influence des paramètres matériaux sur le flux de chaleur lié à la phase S. Les données matériaux sont regroupées dans le Tableau IV. 5. Par la suite, seule la variable étudiée diffère de la valeur présente dans le tableau.

Tableau IV. 5 : Paramètres matériaux utilisés pour comprendre l'influence de la variation du flux de chaleur

	Densité totale de sites de germination (N_{tot}) [m^{-3}]	Angle de mouillage (θ)	Energie interfaciale (σ) [$mJ.m^{-2}$]
Valeurs numériques	5.10^{23}	40	125

Pour pouvoir étudier les phénomènes responsables de la formation de la phase S, il est nécessaire d'analyser l'évolution des rayons critique et moyens (Figure IV. 21), de la densité de site, de la vitesse de germination (Figure IV. 22) et de la fraction volumique (Figure IV. 23) au cours d'un essai en chauffe à $10\text{ }^{\circ}C.min^{-1}$. Lors du cycle de chauffe, les précipités S vont se former. Le phénomène de germination est présent dès le départ comme le montre la Figure IV. 21 qui présente la valeur de rayon moyen initialement calculée. Cette valeur est sensiblement supérieure à la valeur du rayon critique. La germination devient plus importante à partir de $120\text{ }^{\circ}C$ avec une forte augmentation de la vitesse de germination (Figure IV. 22) induisant une augmentation rapide de la densité totale de particules formées (Figure IV. 22). A $245^{\circ}C$, la vitesse de germination chute fortement et la densité maximale est obtenue. La fraction volumique de précipités S atteint la fraction volumique d'équilibre, donnée par Thermocalc[Ther01], même si un léger écart est visible. Le rayon critique augmente fortement au point de rejoindre la valeur du rayon moyen traduisant également la fin du régime de germination.

La croissance se poursuit puisque la valeur du rayon moyen continue d'augmenter (Figure IV. 21). Cependant, la densité totale de précipités S diminue (Figure IV. 22). Il peut être déduit de ces observations que les petites particules vont se dissoudre au bénéfice des grosses particules qui vont continuer à se développer. Ce phénomène de dissolution des particules est également lié à la diminution de la fraction volumique d'équilibre avec la température (Figure IV. 23). Plus la température augmente, moins la phase S est stable. Le système évolue donc en suivant l'équilibre thermodynamique à partir du moment où cet équilibre est atteint.

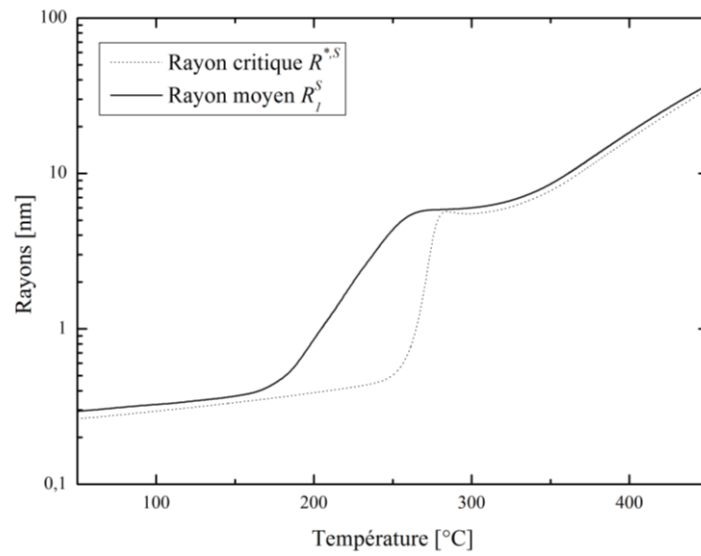


Figure IV. 21 : Evolution des rayons (moyens et critique) de la phase S au cours d'une chauffe à $10\text{ °C}\cdot\text{min}^{-1}$

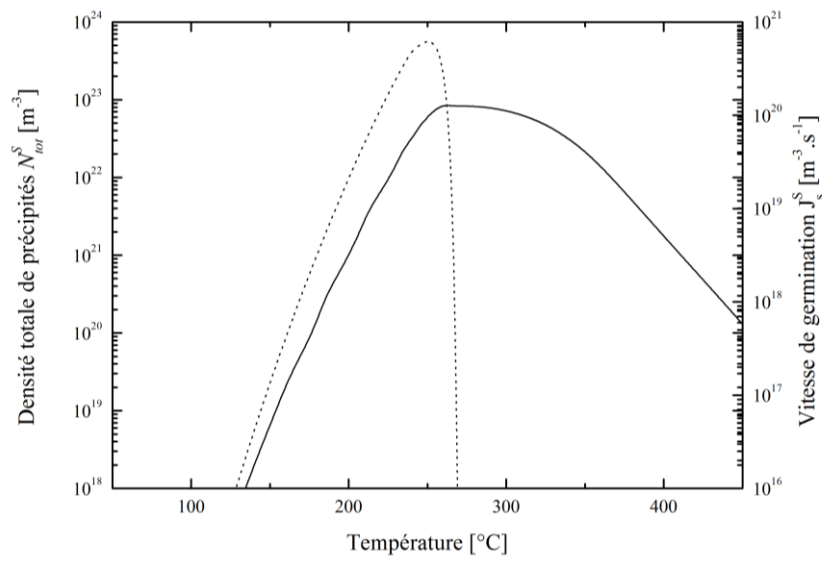


Figure IV. 22 : Evolution de la densité de précipités (traits pleins) et de la vitesse de germination (traits pointillés) de phase S au cours d'une chauffe à $10\text{ °C}\cdot\text{min}^{-1}$

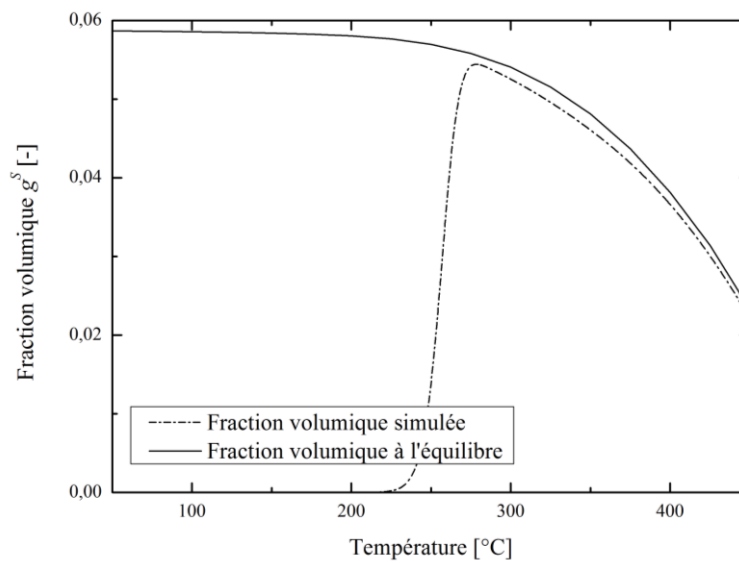


Figure IV. 23 : Evolution de la fraction volumique de précipité simulée et de la fraction volumique de la phase S en fonction de la température au cours d'une chauffe à $10\text{ °C}\cdot\text{min}^{-1}$.

Influence de l'angle de mouillage

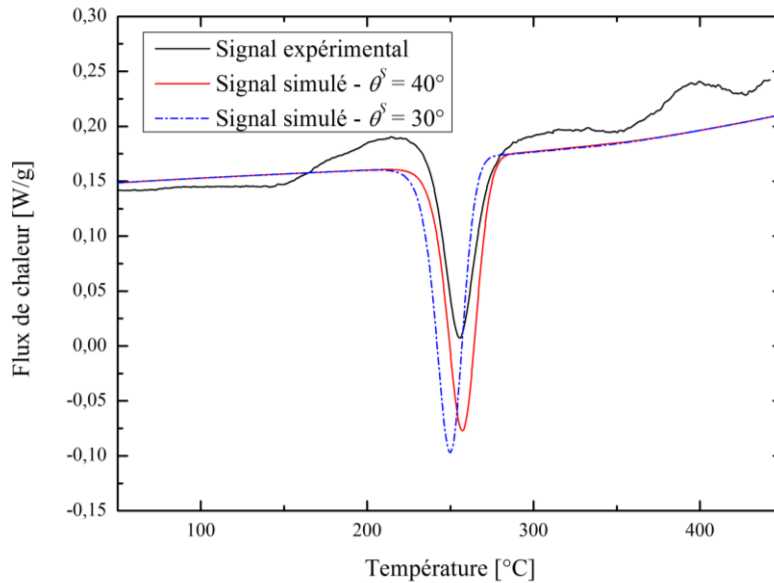


Figure IV. 24 : Influence de l'angle de mouillage sur le signal en DSC pour une vitesse de chauffe à $10\text{ }^{\circ}\text{C}\cdot\text{min}^{-1}$

L'angle de mouillage influence la vitesse de germination comme discuté précédemment pour les phases GPB. Un angle de mouillage plus grand permet de diminuer cette vitesse et donc décale le processus de germination dans le temps. De plus, comme la fraction volumique d'équilibre diminue avec l'augmentation de la température, l'amplitude du signal est plus faible. Ce phénomène est visible sur la Figure IV. 24. Elle présente le signal obtenu expérimentalement et deux signaux simulés en ne tenant compte que de la phase S et en faisant varier uniquement la valeur de l'angle de mouillage (30° en bleu et 40° en rouge). L'objectif est de calibrer les paramètres afin de simuler au mieux le pic exothermique caractéristique de la précipitation de la phase S. Ainsi le signal simulé pour un angle de mouillage de 30° apparaît décalé d'une dizaine de degrés, et également plus important, ce qui montre un processus de précipitation plus marqué.

Influence de la densité de sites de germination

La densité de sites de germination est fonction du type de germination. Elle sera plus élevée dans le cas d'une germination homogène et une valeur limite de 10^{28} m^{-3} est alors définie. Dans le cas présent, la phase S germe de manière hétérogène ainsi, la densité sites de germination sera alors inférieure à celle typique d'une germination homogène. Serrière [Ser04] propose dans le cas d'une germination hétérogène l'utilisation de valeurs comprises entre 10^{18} m^{-3} et 10^{24} m^{-3} . Afin de comprendre l'évolution de la précipitation dans le cas de la germination, deux valeurs de densité, 10^{22} m^{-3} et 5.10^{23} m^{-3} sont choisies pour appliquer notre modèle. Ils permettent de visualiser l'influence de ce paramètre sur la position du pic exothermique caractéristique de la précipitation de la phase S observé expérimentalement

(Figure IV. 25). Diminuer ce nombre revient à diminuer la vitesse de germination. Ainsi, pour un nombre de sites de germination de 10^{22} m^{-3} , la germination se produit plus tardivement et le pic caractéristique de la précipitation apparaît plus tard soit à une température plus haute.

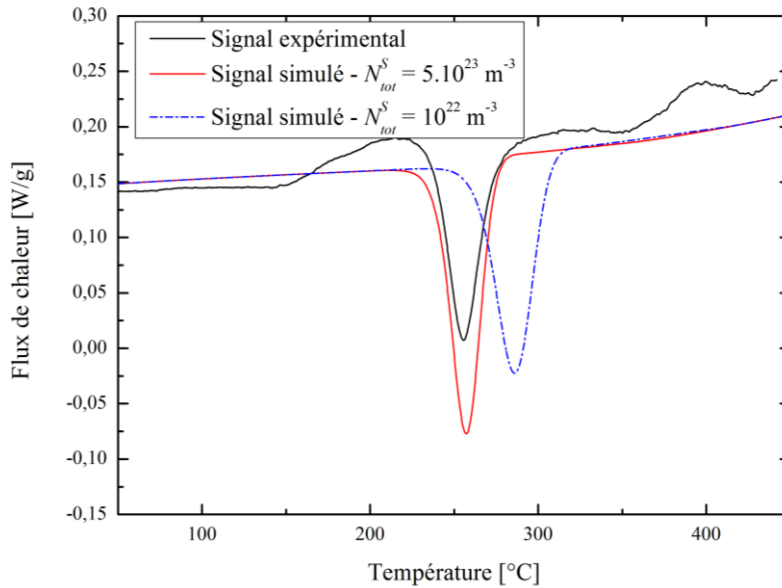


Figure IV. 25 : Evolution du signal DSC simulé obtenu pour deux densités de sites de germination et une vitesse de chauffe de 10 °C.min^{-1}

Influence de l'énergie interfaciale

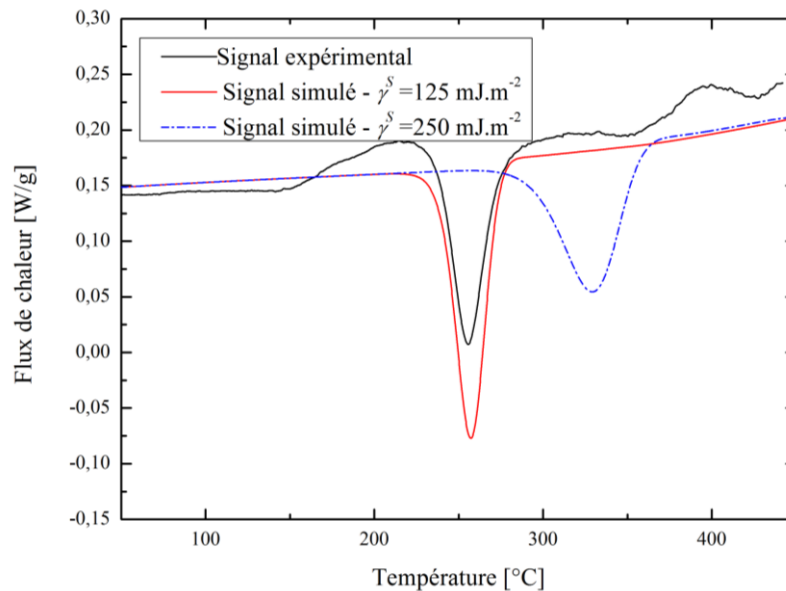


Figure IV. 26 : Evolution du signal DSC simulé obtenu pour deux valeurs d'énergie interfaciale pour une vitesse de chauffe à 10 °C.min^{-1}

Augmenter la valeur de l'énergie interfaciale va induire un décalage du phénomène qui se produira à une température plus haute. Le terme exponentiel (Equation II.12) gouverne alors

le processus de germination. Ce phénomène est mis en évidence sur la Figure IV. 26. Cette valeur, dans le cas de la phase S qui est une phase stable peut être comprise entre 100 et 300 mJ.m^{-2} [Ser04].

2.4. Influence des deux phases sur le signal DSC

Afin de s'assurer de la cinétique du phénomène de dissolution des zones GPB et de la précipitation de la phase S, les essais en simulation sont menés avec deux vitesses de chauffe différentes. Du fait de l'influence de la cinétique sur la précipitation, augmenter la vitesse va induire un décalage vers les plus hautes températures soit plus tard.

Simulation essai DSC pour une vitesse de chauffe de $10\text{ }^{\circ}\text{C.min}^{-1}$

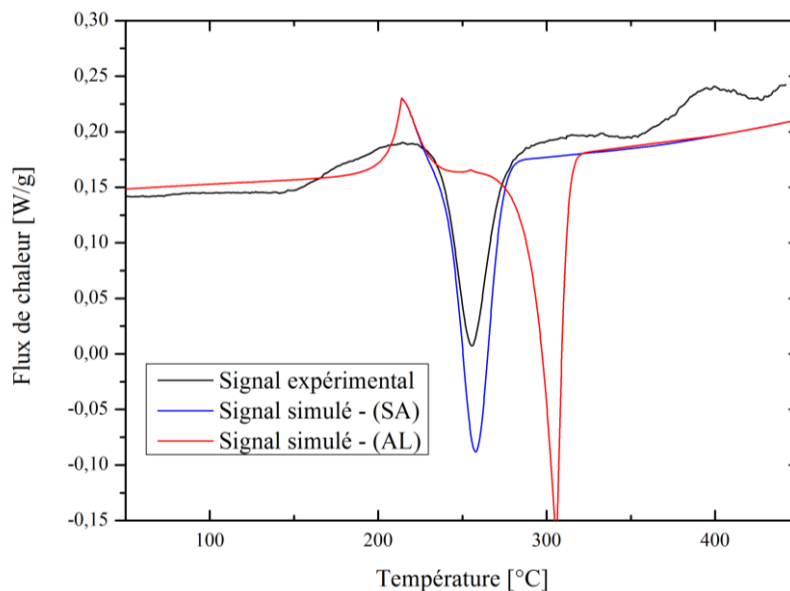


Figure IV. 27 : Comparaison du signal simulé selon l'approximation de Laplace (AL) et selon la solution d'Aaron (SA) avec le signal expérimental pour une rampe thermique à $10\text{ }^{\circ}\text{C.min}^{-1}$

Une simulation d'un essai DSC, avec les paramètres proposés précédemment (Tableau IV. 2, Tableau IV. 3 et Tableau IV. 5) est réalisée sur la base du modèle proposé en utilisant les deux possibilités concernant le calcul des vitesses de croissance : l'approximation de Laplace (AL) et la simulation d'Aaron (SA). La dissolution des phases GPB et la croissance de la phase S sont modélisées, au cours d'un même processus de chauffe à $10\text{ }^{\circ}\text{C.min}^{-1}$ (Figure IV. 27). La comparaison du signal expérimental avec le signal simulé sur la DSC à flux de chaleur est effectuée considérant la courbe non corrigée par la droite représentative de la capacité calorifique. Il apparaît ainsi que la simulation permet d'obtenir la droite caractéristique de la capacité calorifique (domaine hors des processus de précipitation/dissolution) et qu'elle est bien parallèle entre $50\text{ }^{\circ}\text{C}$ et $150\text{ }^{\circ}\text{C}$ à celle obtenue expérimentalement. La capacité calorifique expérimentale est ainsi retrouvée. De même, le modèle numérique permet de retrouver les résultats expérimentaux.

La simulation de la dissolution des zones GPB intervient numériquement entre 170°C et 220°C tandis qu'une dissolution débute plus tôt (150°C) dans le cas des observations expérimentales. Toutefois, la localisation du pic simulé est en adéquation avec la localisation du pic expérimental soit à 210 °C. L'aire sous la courbe est similaire à celle obtenue expérimentalement et il peut être conclu de cette simulation que le comportement de dissolution des zones GPB est bien reproduit par le modèle. De plus, le signal reste identique entre les deux approches de simulation. En effet, le système est en dissolution et ainsi aucun impact de la cinétique de croissance des phases S n'est visible à ce stade.

La simulation de la précipitation de la phase S est parfaitement centrée dans le cas de la solution d'Aaron, le phénomène étant observé expérimentalement à 255 °C. Les données matériaux calibrées permettent donc d'obtenir le bon signal et sont validées par cette simulation. Toutefois, l'amplitude du pic est plus importante dans le cas de la simulation. Cet écart d'amplitude entre simulation et expérience peut provenir d'une mauvaise estimation de la composition de la matrice due à la présence de dispersoïdes riches en cuivre et magnésium (Chapitre III). Dans le cadre de cette étude, il est impossible de connaître de manière exacte la teneur en élément d'addition dans la matrice, au-delà de ce qui a été mesuré expérimentalement (Tableau III.1). De plus, la simulation de la dissolution des zones GPB étant correcte pour une fraction volumique initiale de GPB de 0.052, il pourrait être possible de réduire la teneur initiale en cuivre dans le système afin de ne conserver que la quantité nécessaire de cuivre dans le système et ainsi réduire la valeur de la fraction volumique à l'équilibre thermodynamique. Ainsi, malgré une incertitude sur la hauteur du pic, la composition sera gardée constante et identique à celle mesurée. Les dispersoïdes définis au Chapitre I restent ignorés dans cette étude.

Il apparaît que les données calibrées pour la solution d'Aaron ne permettent pas d'obtenir des évolutions correctes lors d'un calcul des cinétiques de croissance avec l'approximation de Laplace. Le pic exothermique caractéristique de la précipitation de la phase S est décalé vers des températures plus élevées. La transition semble également plus rapide et brutale. Si l'amplitude du signal de dissolution est du même ordre de grandeur, cela peut être lié à une fraction volumique de phase S à l'équilibre qui diminue avec la température (Figure IV. 23). Ainsi, le calcul du pic exothermique doit être plus réduit selon l'Equation II.35. Utiliser la solution de Laplace semble induire des cinétiques plus lentes comme observées dans le Chapitre II.

Simulation essai DSC pour une vitesse de chauffe de 300 °C.min⁻¹

Pour valider la cinétique de précipitation, l'utilisation d'une vitesse de chauffe à 300 °C.min⁻¹, vitesse maximale atteignable avec la DSC à compensation de puissance a été choisi. En effet, cette vitesse permet de vérifier la robustesse du calcul pour des évolutions très rapides. La Figure IV. 28 présentent en noir le signal DSC obtenu et en bleu le signal simulé selon la solution d'Aaron. Ainsi, il apparaît que la simulation de la dissolution des

zones GPB est bien centrée sur la température mesurée expérimentalement pour ce processus de dissolution soit 258 °C. Néanmoins, l'aire sous la courbe obtenue numériquement semble plus abrupte que lors de l'essai avec une vitesse de chauffe à 10°C.min⁻¹. Il est possible que cela soit dû à une diminution de l'étalement du phénomène avec la température. La localisation du pic de précipitation de la phase S est également correcte mais un facteur 2 est observé entre les aires sous la courbe.

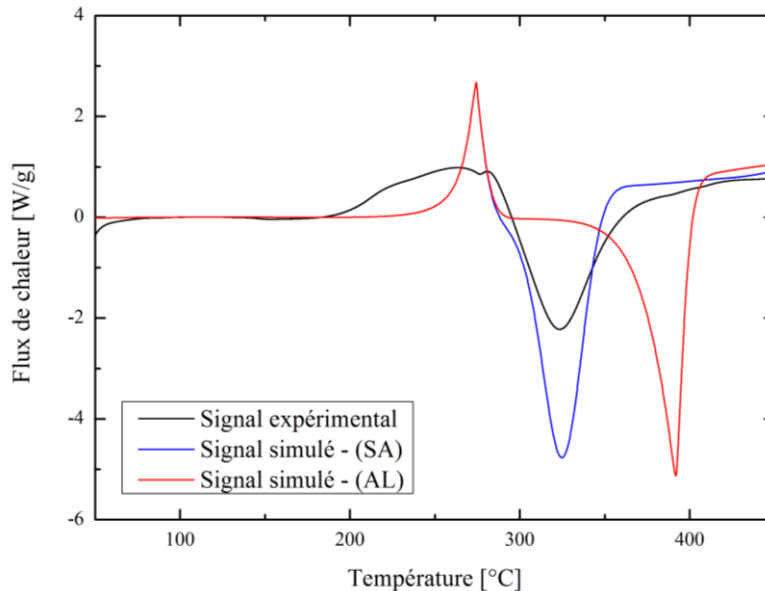


Figure IV. 28 : Comparaison du signal simulé selon l'approximation de Laplace (AL) et selon la solution d'Aaron (SA) avec le signal expérimental pour une rampe thermique à 300 °C.min⁻¹

La comparaison des simulations développées autour des essais DSC au cours de traitements thermiques de chauffe et des résultats expérimentaux montre que les températures attendues sont bien retrouvées. Les processus de dissolution (GPB phase) et précipitation (S-phase) sont bien reproduits, dans les températures attendues, tant au niveau des essais lents (10°C.min⁻¹) que rapide (300 °C.min⁻¹), validant ainsi la cinétique développée et le choix des paramètres matériaux. Cependant des écarts entre les courbes demeurent, qui nécessiteraient encore des améliorations du modèle. Nous avons cependant choisi de développer les applications du modèle sur la base des choix de paramètres précédemment présentés dans le Tableau IV. 2, le Tableau IV. 3 et le Tableau IV. 5.

L'utilisation de la calibration validée pour la solution d'Aaron à des cinétiques de croissance calculée selon l'approximation de Laplace induit un décalage du phénomène de précipitation de la phase S dans le temps et donc vers des températures élevées comme cela a déjà été observé pour un essai DSC à 10°C.min⁻¹. Toutefois, le signal simulé est identique dans le cas du pic endothermique caractéristique de la dissolution des zones GPB. Le caractère brutal de la transition menant à un pic observé dans le cas de la précipitation semble provenir de l'approximation de Laplace. Le phénomène de dissolution étant calculé selon la même approximation présente dans le cas de la dissolution des zones GPB lors d'un essai DSC à 300 °C.min⁻¹ le même aspect pointu synonyme d'une transition brutale. L'utilisation de l'approximation de Laplace pour modéliser la dissolution pourrait être à l'origine de la rapidité de la transition.

Au vu des résultats de la calibration, il a été choisi de n'utiliser que la solution d'Aaron pour le calcul de la cinétique de croissance couplé à l'approximation de Laplace pour le calcul de la cinétique de dissolution dans la suite de cette étude.

Simulation essai DSC pour différentes vitesses de chauffe

Il est possible d'utiliser le modèle développé et calibré selon la solution d'Aaron afin de simuler différentes vitesses de chauffe. Les différents signaux obtenus traduisent les phénomènes observés précédemment d'augmentation de l'intensité des phénomènes et du décalage vers les hautes températures lors de l'utilisation de vitesse de chauffe plus rapide. Les essais réalisés constituent une borne minimale (chauffe à $10^{\circ}\text{C}\cdot\text{min}^{-1}$) et maximale (chauffe à $300^{\circ}\text{C}\cdot\text{min}^{-1}$). Les évolutions obtenues pour les différentes vitesses sont situés entre les bornes (

Figure IV. 29). La calibration effectuée s'avère être robuste pour différentes évolutions thermiques sans nécessiter d'ajustement des paramètres.

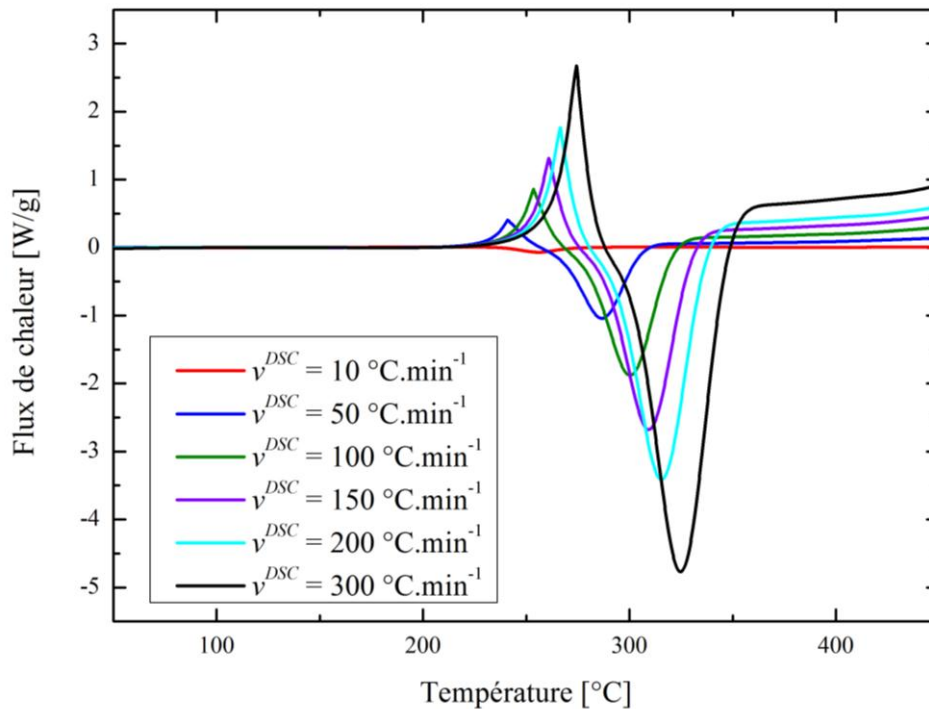


Figure IV. 29 : Evolution du signal DSC en fonction de la vitesse de chauffe de la DSC (v^{DSC})

3. Lien microstructure – Propriétés mécaniques

La calibration des paramètres matériaux ayant été réalisée dans le paragraphe précédent, la calibration mécanique doit être réalisée. Un ensemble d'essais isothermes à 190°C ont été effectués selon des durées variables puisque correspondant aux traitements T6 des alliages d'aluminium permettant la formation de précipité S durcissants [Dub12, Stu11]. Ces différents temps de maintien ont menés à l'obtention d'états microstructuraux différents ayant des propriétés mécaniques propres. Dans un premier temps, les résultats expérimentaux seront

présentés. Les paramètres du modèle mécaniques seront ensuite ajustés sur la base des essais expérimentaux.

3.1. Résultats expérimentaux

Plusieurs types d'analyse sont menés sur des échantillons ayant préalablement subis un traitement isotherme sur des durées variables. La première analyse en DSC à compensation de puissance permet de définir l'évolution des fractions relatives des zones GPB et de la phase S selon la méthode détaillée au Chapitre III. Ensuite des observations en MET permettent d'observer l'évolution de la précipitation selon le temps de maintien à 190°C. Enfin, les propriétés mécaniques associées aux différents états métallurgiques sont présentées.

Evolution de la précipitation

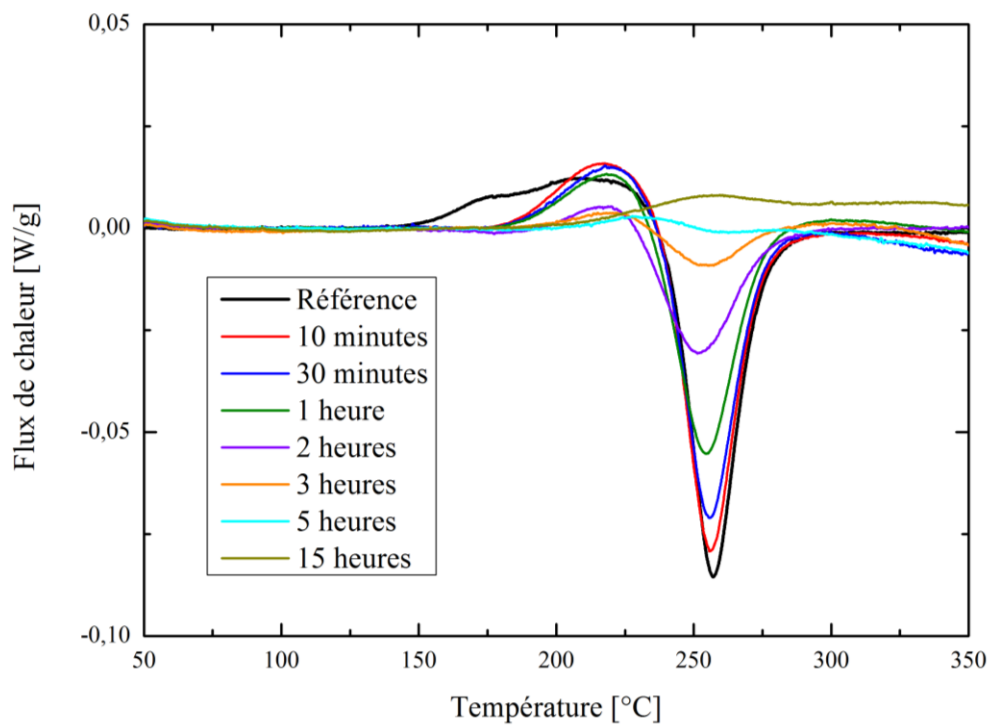


Figure IV. 30 : Evolution du flux de chaleur en essai DSC pour différents temps de traitements isothermes à 190°C développés sur les échantillons AA2024 dans l'état de base. La courbe « Référence » correspond à l'essai réalisé sans traitement thermique

Lors du traitement thermique à 190°C, les échantillons sont trempés à des temps différents ce qui permet de figer la microstructure et de caractériser l'évolution de la précipitation via des rampes de chauffe à 10 °C.min⁻¹ au sein de la DSC. Les résultats obtenus sont présentés sur la Figure IV. 30. Il apparaît une diminution du pic exothermique caractéristique de la dissolution des zones GPB au cours du temps. Il peut ainsi en être conclu que les zones GPB sont dissoutes au cours du traitement thermique et qu'elles ne sont plus présentes dans le matériau après 5 h de traitement. En effet, le pic caractéristique de la dissolution n'est plus distinguable. Dans ce cas, la fraction relative de zones GPB est considérée comme étant nulle.

Le pic exothermique caractéristique de la formation de la phase S diminue également avec le temps de traitement thermique et résulte dans le fait que moins de phase S est formée lors de l'essai DSC en chauffe, donc qu'à sa fraction initiale est également plus élevée, cet accroissement de phase S étant réalisé au détriment des zones GPB lors du traitement isotherme. Dans ce cas, lorsque le pic exothermique n'est plus observable, la fraction relative de phase S est égale à 1 initialement. La phase S est totalement formée aux alentours de 5 h de traitement isotherme à 190 °C, ce temps étant, comme attendu, similaire à celui correspondant à la disparition des zones GPB.

En utilisant la technique détaillée dans le Chapitre III et relative à la détermination des fractions relatives des zones GPB et de la phase S, la Figure IV. 31 est obtenue. Elle représente l'évolution de la fraction relative (i.e. par rapport à l'équilibre thermodynamique attendu à 190 °C), de la phase S et des zones GPB. Les marges d'erreurs sont estimées en fonction des incertitudes de mesures. Elle servira de référence dans le cas de la calibration de l'évolution de la dureté pour s'assurer de la bonne modélisation des évolutions microstructurales du matériau d'étude.

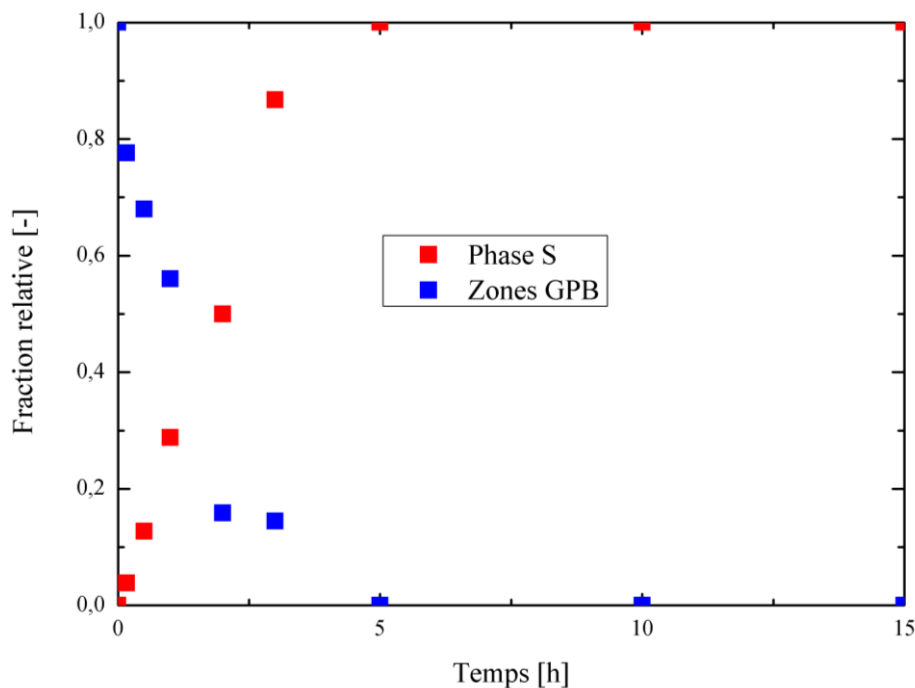


Figure IV. 31 : Evolution des fractions relatives des phases S et des zones CPB lors d'un maintien isotherme à 190°C

L'observation de la phase S est effectuée en MET, sur les équipements du Centre des Matériaux d'Evry (Mines ParisTech). Les précipités formés se présentent sous forme de plaquettes. Il est alors difficile de les mesurer afin d'en déterminer un rayon moyen. En effet, sur la Figure IV. 32, pour un même temps de traitement thermique, avec deux grossissements différents, deux tailles de phase S apparaissent. La première image obtenue en MET-HRDEF résulte d'une germination récente tandis que la seconde obtenue en MET pour un grossissement plus faible permet l'observation de précipités S ayant déjà pu croître.

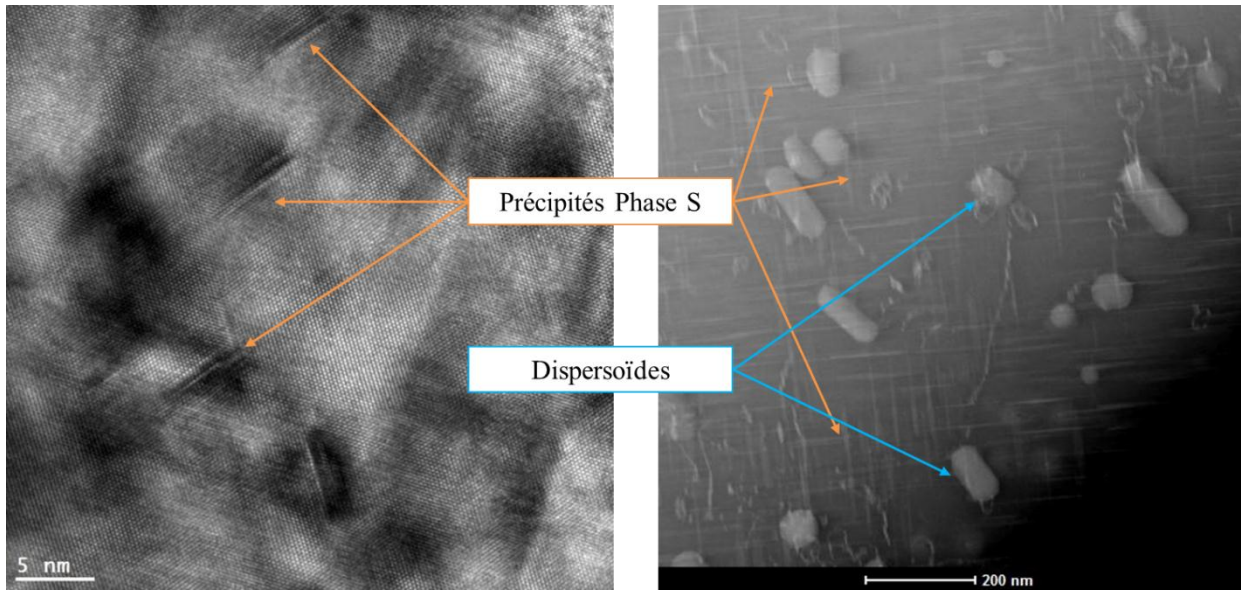


Figure IV. 32 : Observation en MET de la phase S au bout de 3h de traitement isotherme à 190°C

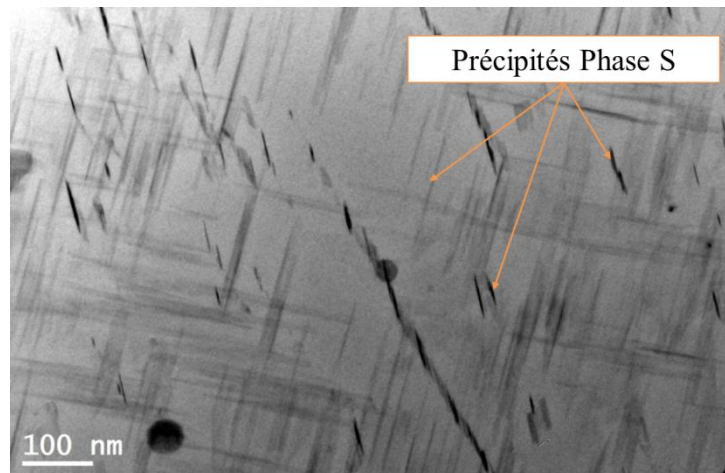


Figure IV. 33 : Observation en MET de la phase S au bout de 5h de traitement isotherme à 190°C

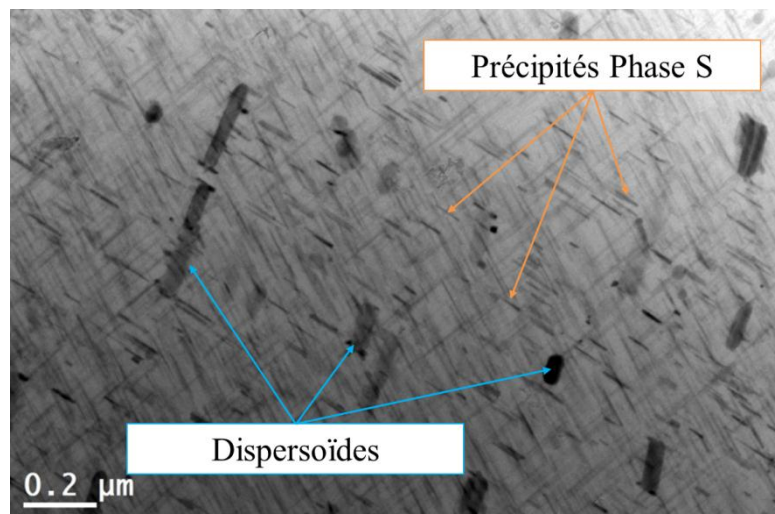


Figure IV. 34 : Observation en MET de la phase S au bout de 10h de traitement isotherme à 190°C

L'état de précipitation de la phase S semble être identique entre 5h (Figure IV. 33) et 10h (Figure IV. 34). La Figure IV. 34 permet de valider l'hypothèse selon laquelle les dispersoïdes ne sont pas affectés par les traitements thermiques puisqu'ils restent stables au cours du traitement isotherme.

Evolution des propriétés mécaniques

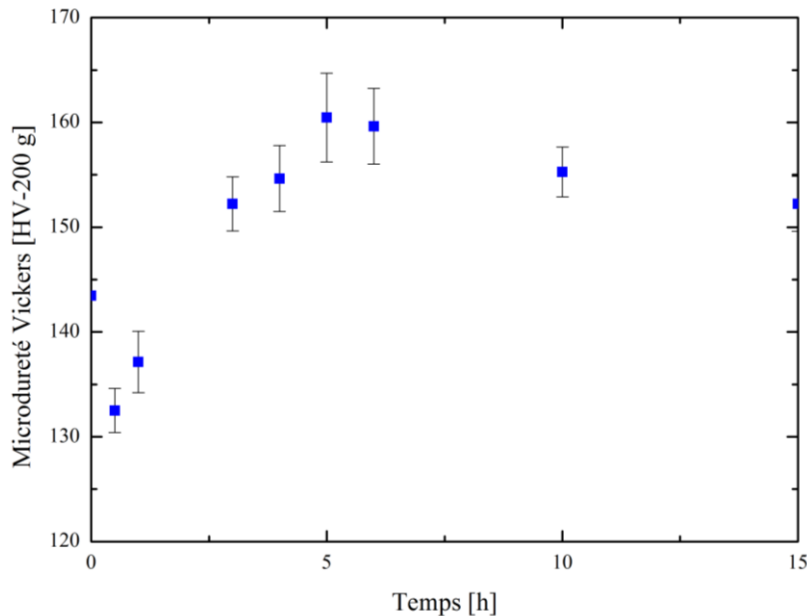


Figure IV. 35 : Evolution de la microdureté lors d'un traitement isotherme à 190°C

L'évolution de la dureté à différents temps de maintien est présentée sur la Figure IV. 38. 27 mesures par échantillons ont été effectuées et les barres d'erreur correspondent à l'écart type obtenu expérimentalement. Dans un premier temps une chute de la dureté est observable. Elle correspond à la diminution de la quantité de zones GPB qui est visible sur la Figure IV. 31, en début de traitement thermique, sans que la phase S aient pu se former afin de compenser cette disparition de précipités durcissants. Par la suite la dureté augmente de nouveau, avec l'accroissement de phase S, jusqu'à atteindre un maximum aux alentours de 5 h, durée de traitement à laquelle aucune zone GPB n'est présentes et la totalité de la phase S s'est formée. Entre 5 et 10h, la dureté diminue progressivement ce qui peut être lié à un début de coalescence. Les petits précipités S se dissolvent au profit de précipités de taille plus importante. Néanmoins, plus le précipité S sera petit et plus son pouvoir durcissant sera important. Ainsi, la diminution du nombre de petits précipités, lors de la coalescence, va induire une augmentation du rayon moyen et un adoucissement du matériau. Néanmoins, sur la Figure IV. 34, le phénomène de coalescence n'apparaît pas clairement puisque les précipités S semblent conserver leur taille et leur fraction volumique. La coalescence correspond à la disparition de petits précipités au profit de précipités de plus grande taille. Ainsi, il est plus probable qu'une zone de transition entre la germination/croissance et le régime de coalescence soit en cours. La diminution de la dureté semble plutôt correspondre aux incertitudes de mesure.

Sur la Figure IV. 36, les courbes de traction réalisées pour différents temps de traitement thermique sont présentées. Il apparaît clairement que dans les cas où la dureté est faible, la limite d'élasticité est plus faible que dans le cas où la dureté est plus élevée. Lorsque la dureté est plus faible, la ductilité est également plus importante. Des effets de Portevin-Le Châtelier sont visibles sur la courbe obtenue à 30 minutes de traitement à 190°C (courbes non monotones avec des oscillations légères). Ces effets proviennent de différences microstructurales locales pouvant être liée à des compositions non microstructuralement homogènes menant à des différences de teneur en zones GPB ou phase S. Le régime n'est pas parfaitement stabilisé et la déformation se localise dans différentes zones au cours de l'essai de traction avant de se localiser dans la zone de rupture (domaine de striction).

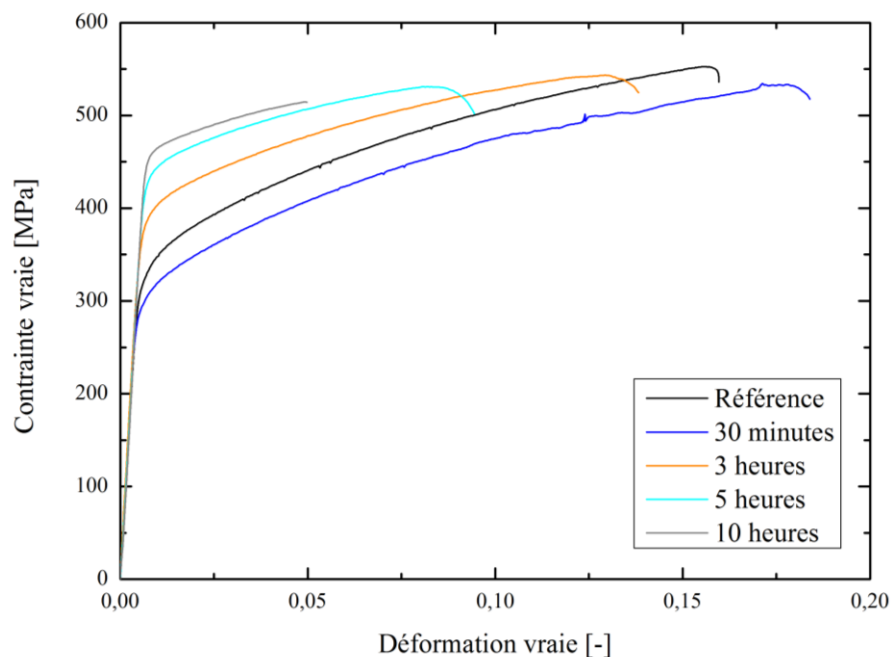


Figure IV. 36 : Courbes de traction obtenue après différents temps de maintien à 190°C

Lien limite d'élasticité-dureté

Les essais précédents permettent de définir les paramètres c et d de l'équation reliant la dureté à la limite d'élasticité. La droite obtenue est présentée sur la Figure IV. 37. Cette loi est fiable pour des valeurs de limite d'élasticité inférieure à 360 MPa mais dans le cas de limite d'élasticité élevée, les points expérimentaux obtenus ne semblent plus respecter l'approximation faite par la droite.

Le paramètre c vaut 239 MPa et le paramètre d vaut 3,84 MPa.

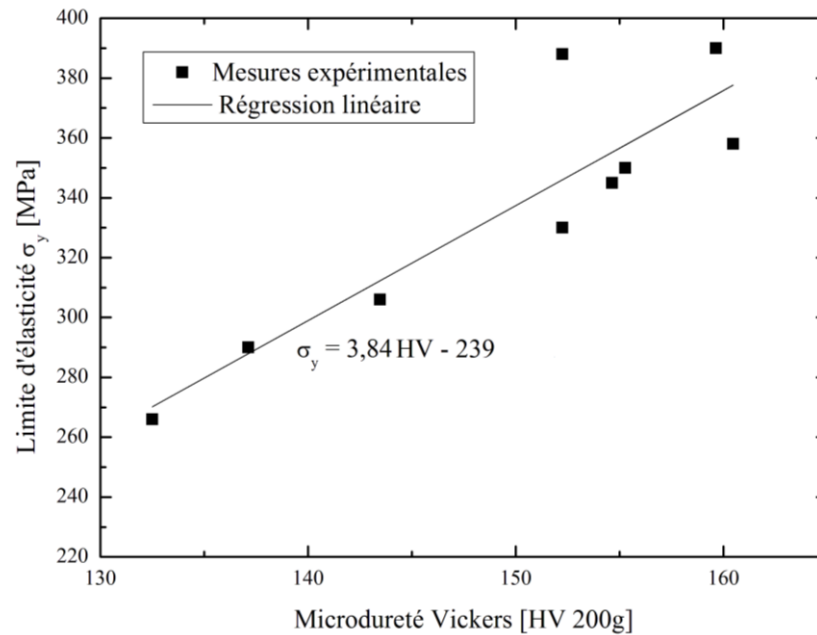


Figure IV. 37 : Relation entre limite d'élasticité et dureté mesurées expérimentalement, pour l'ensemble des 10 échantillons étudiés (9 traitements thermique + échantillon de référence sans traitement)

3.2. Simulation numérique

Simulation des phénomènes de précipitation

Il est proposé de simuler le développement de la précipitation dans les échantillons précédemment étudiés correspondant à différentes durées de traitements thermiques à 190 °C. En effet, il est nécessaire de vérifier que les résultats des simulations correspondent aux observations expérimentales en termes de fraction volumique.

Pour comprendre les évolutions mécaniques, il est important de comprendre comment les rayons moyens évoluent (Figure IV. 38). Dans le cas des zones GPB, le rayon moyen diminue en début de maintien isotherme pour augmenter de nouveau et même croître entre 45 minutes et 1 h 15 minutes de maintien isotherme à 190 °C. Par la suite, la dissolution va être importante, en raison de l'augmentation rapide du rayon critique associé aux zones GPB et le rayon moyen diminue également avant de se stabiliser à une valeur de 1 nm. La fraction volumique est négligeable à partir de 4 h de traitement, ainsi l'impact des zones GPB sur la dureté devrait être minime.

Concernant la phase S, sa formation est plus lente dans le cas de la simulation. Toutefois en fin de précipitation le phénomène est bien retrouvé. L'allure de l'évolution volumique est peut modifiable via l'utilisation de différents paramètres matériaux. Ainsi, il est impossible de

calibrer une courbe permettant de retranscrire une germination/croissance rapide en début d'essai et dont les données correspondent par la suite à l'évolution souhaitée. La mesure des aires sous la courbe permettant d'obtenir les points expérimentaux est soumise à une forte incertitude et il est probable que la courbe simulée se situe dans le domaine d'incertitude de mesure. Des essais simulant le traitement thermique suivi d'une trempe et d'un essai en chauffe à $10\text{ °C}\cdot\text{min}^{-1}$ ont été menés afin de pouvoir notamment comparer les signaux de la phase S.

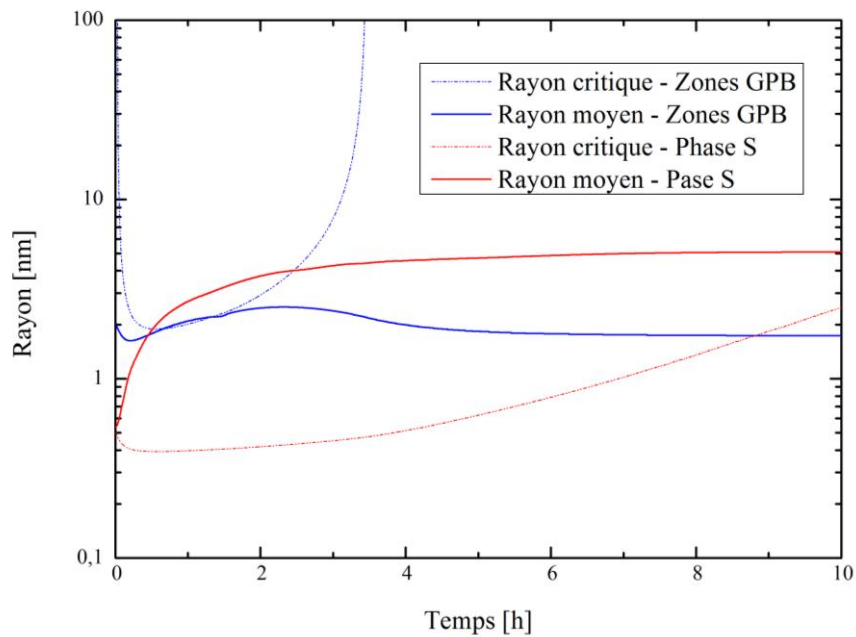


Figure IV. 38 : Evolution numérique des rayons moyens et critiques de la phase S (rouge) et des zones GPB (bleu) lors d'un maintien isotherme à 190 °C .

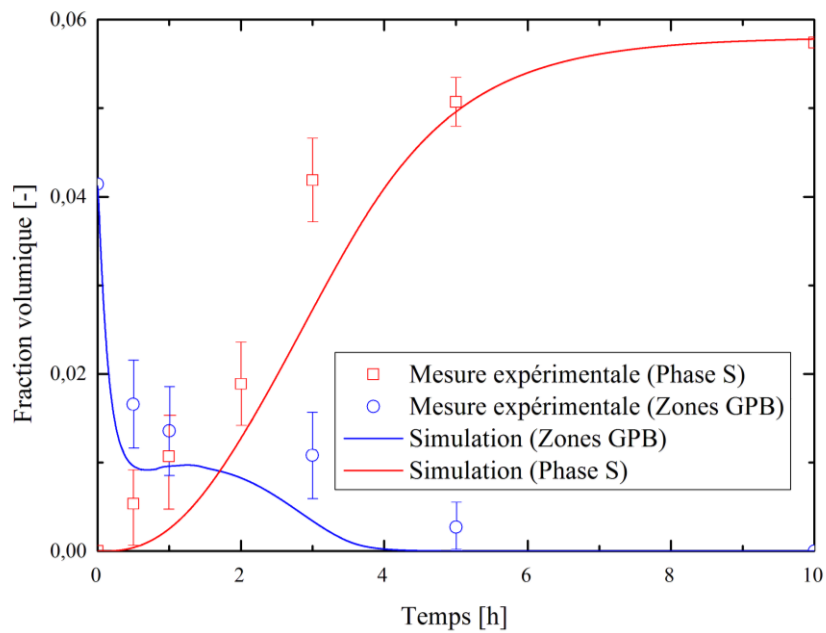


Figure IV. 39 : Evolution de la fraction volumique de phase S (rouge) et de la fraction volumique de zones GPB (bleu)

La Figure IV. 39 représente l'évolution des fractions volumiques mesurées expérimentalement en DSC (points) et obtenue via la simulation numérique (courbe) pour la phase S (en rouge) et les zones GPB (en bleu). A 190 °C, une dissolution brutale des zones GPB intervient dans les premières minutes puis un palier de stabilisation est observé expérimentalement entre 1 h et 3 h. Ce phénomène de stabilisation est bien reproduit par la simulation numérique. Néanmoins, la cinétique de dissolution est plus lente dans le cas de la simulation. Le modèle développé présente certaines limites, présentées au début de ce chapitre, pouvant faire l'objet de discussions, tant au niveau du choix des paramètres matériaux (densités de germes, paramètres de germination, coefficients de diffusion ...), des géométries de précipités (modèle limité à la seule géométrie de croissance sphérique) ou de l'approche de résolution (problème évoqué précédemment sur la diffusion numérique, et couplage limité avec Thermocalc). La Figure IV. 27 montre ainsi que le modèle présente des écarts dans l'estimation du signal DSC de la précipitation S à 10 °C.min⁻¹ qui peuvent expliquer les différences observées sur la Figure IV. 39.

Simulation des courbes DSC

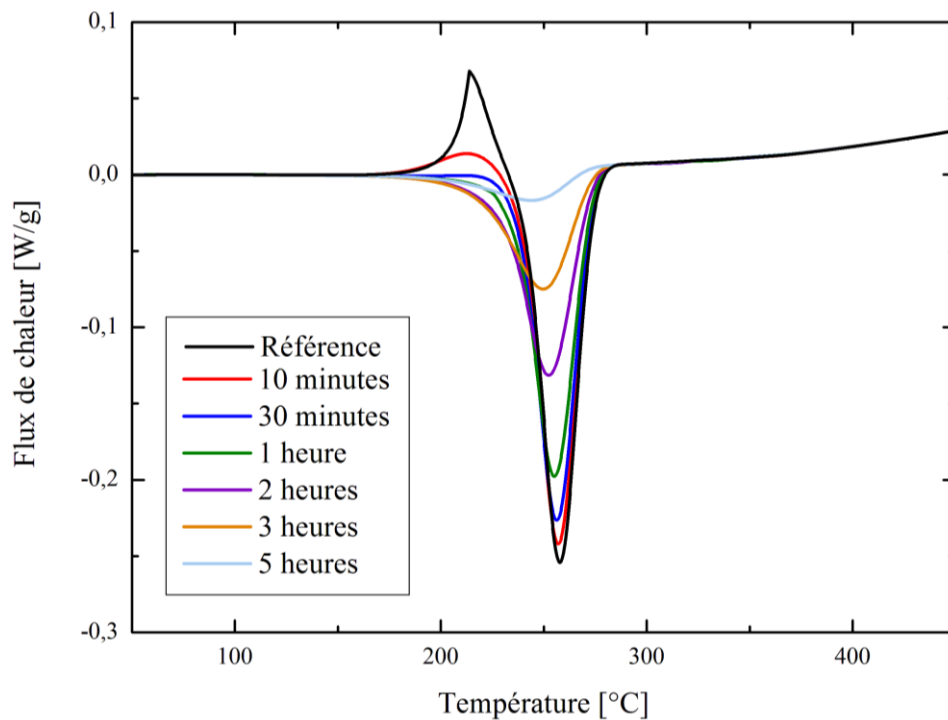


Figure IV. 40 : Simulation d'un essai isotherme à 190 °C pour différents temps de maintien suivi d'une trempe du matériau avant la réalisation d'un essai DSC à 10 °C.min⁻¹

Le modèle développé permet la simulation d'un essai isotherme à 190 °C. Il peut être utilisé pour simuler les trois étapes (traitement isotherme à 190 °C, trempe à - 300 °C.min⁻¹, chauffe à 10 °C.min⁻¹). Plusieurs temps de maintien ont été choisis entre 10 minutes et 5 heures. Ces essais ont été effectués expérimentalement dans la DSC à compensation de puissance. Seule l'étape de chauffe a été étudiée et permet de caractériser le matériau étudié

via la connaissance des phases en présence. Les flux de chaleur expérimentalement sont présentés sur la Figure IV. 30. Ils se comparent avec ceux obtenus numériquement sur la Figure IV. 40.

Il apparaît ici que le pic endothermique caractéristique de la dissolution des zones GPB disparaît dès 30 minutes de traitement isotherme dans le cas de la simulation alors qu'expérimentalement, il est visible jusqu'à 2 heures de traitement. Cette évolution se traduit par la diminution rapide de la fraction volumique des zones GPB comme présenté sur la Figure IV. 39. Il est probable que le choix d'une cinétique de dissolution selon l'approximation de Laplace ne permette pas une bonne description du comportement en dissolution des zones GPB.

Le pic exothermique caractéristique de la précipitation de la phase S reste comme précédemment surestimé mais son évolution en termes d'allure de courbe au cours du temps semble identique à celle obtenue expérimentalement. En effet, dans le cas de la simulation DSC relative à un temps de maintien de 2 heures, l'aire sous la courbe obtenue numériquement et expérimentalement a diminuée de moitié. Il semblerait donc que la mesure des aires sous la courbe du pic exothermique menant à l'estimation de l'évolution de la fraction volumique présente une très forte incertitude puisque les signaux DSC simulés semblent présentés une évolution proche de celle obtenue expérimentalement. Il est probable que l'évolution de la fraction volumique de phase S soit correcte. L'utilisation de la solution d'Aaron dans le cas de la cinétique de précipitation semble être pertinente pour la modélisation de transformation au cours de traitement thermique non-isotherme et donc applicable à la modélisation d'une soudure FSW.

Simulation des évolutions mécaniques

Trois paramètres permettent de définir les propriétés mécaniques du matériau (Equation II.37 et Equation II.38). Les phases ayant la même composition chimique, leur influence sur les propriétés mécaniques est supposée dépendre uniquement de leur taille. La notion d'interface cohérente ou incohérente des précipités n'est pas prise en compte dans cette analyse. Ainsi les trois paramètres seront pris identiques pour les deux phases.

Le premier paramètre α (Equation II.37) représente la constante de cisaillement. Initialement, aucune phase S n'est présente. Seules les zones GPB sont formées. Elles confèrent au matériau ses propriétés mécaniques par cisaillement [Dub12,Gen04]. Ainsi, ce paramètre a été ajusté de sorte que la valeur initiale de dureté soit retrouvée. Sa valeur est fixée à 0,038.

Les deux autres paramètres, le rayon critique r_c et la constante de contournement K dépendent l'un de l'autre. En effet, le rayon critique est le rayon à partir duquel, le précipité n'est plus cisailé mais contourné, c'est-dire, lorsque la contribution en cisaillement calculée via l'Equation II.37 devient égale à celle obtenue via l'Equation II.38. En égalisant ces deux

contributions, il est alors possible d'obtenir l'équation suivante permettant d'établir le lien entre ces deux paramètres :

$$K = \frac{0,7M\alpha^{3/2}r_c^{3/2}}{b^{3/2}} \quad \text{Equation IV. 3}$$

Avec M le facteur de Taylor et b le vecteur de burgers, pris comme des constantes et dont les valeurs sont supposées identiques à celles choisies par Genevois [Gen04] soit respectivement 3 et 0,3 nm. La constante de cisaillement est prise égale à 25 000 Pa.

Tableau IV. 6 : Simulation de l'évolution de la dureté au cours d'un essai isotherme à 190°C, selon deux choix de paramètres r_c , et observations expérimentales

α	K	r_c
0,038	0,904	4,5
0,038	1,06	5

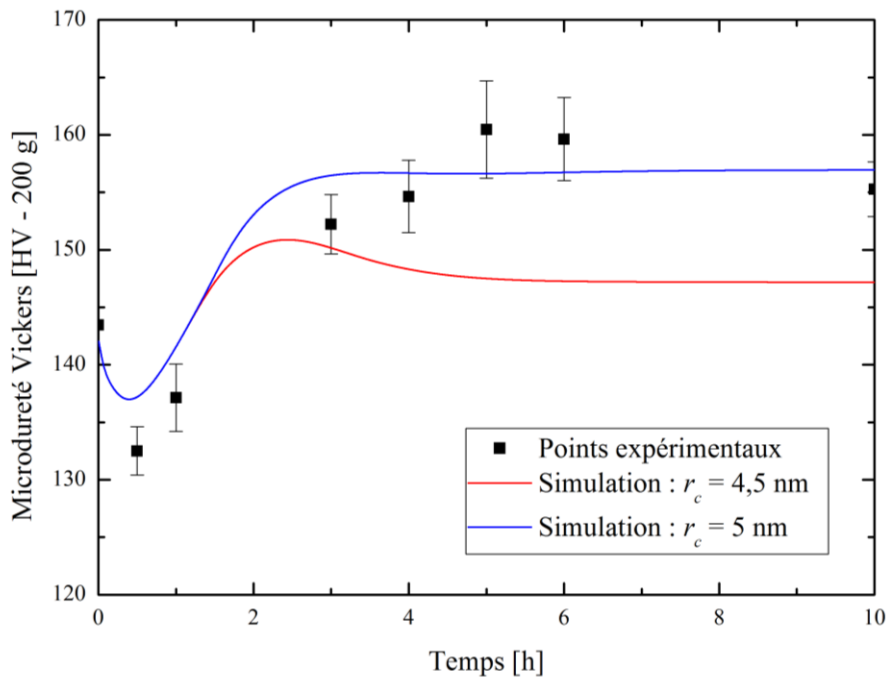


Figure IV. 41 : Evolution de la dureté au cours d'un essai isotherme à 190°C

Deux rayons critiques ont été choisis pour calibrer ce modèle à 4,5 nm et 5 nm. Les valeurs associées pour la constante de cisaillement sont indiqués dans le Tableau IV. 7. Elles permettent d'obtenir les deux courbes présentées sur la Figure IV. 41. La courbe rouge présente le rayon critique le plus faible. La constante de contournement a donc une valeur plus faible. Il apparait donc une augmentation de la dureté jusqu'à 2 h de traitement puis une diminution de cette propriété. Sur la Figure IV. 39, il apparait que le rayon moyen pour la phase S dépasse le rayon critique fixé. La chute des propriétés mécaniques est dû au fait que la constante de contournement est trop faible et donc que les caractéristiques mécaniques sont gouvernées par le mécanisme de cisaillement et donc par les zones GPB. Dubost [Dub12]

préconise le traitement à 190 °C pour augmenter les propriétés mécaniques liées à la formation de la phase S durcissante. La valeur de constante de contournement doit donc être plus élevée ce qui induit l'augmentation de la valeur du rayon critique.

Dans le cas où le rayon moyen est de 5 nm, la valeur de la constante de contournement est plus élevée et le maximum de dureté est obtenu vers 3 h et sa valeur est maintenue constante pour le reste du traitement. Cette évolution correspond mieux aux résultats mécaniques obtenus expérimentalement. Il est à noter que le rayon critique n'a pas d'influence sur l'obtention du minimum de dureté mais sur la modélisation de son évolution à partir de 2 h de traitement et donc à partir du moment où la phase S est fortement présente dans le matériau. L'amplitude des phénomènes modélisée est moins importante que celle observée expérimentalement mais permet bien de retranscrire la position du minimum de dureté dans le temps. Ainsi, le dernier jeu de paramètre sera choisi pour modéliser les propriétés mécaniques lors d'un soudage FSW.

4. Choix des paramètres numériques pour la modélisation en FSW

Les paramètres utilisés pour la simulation de la DSC ont été calibrés dans ce chapitre. La méthode de calibration suivie a été dans un premier temps de calibrer les données d'un point de vu matériau à l'aide des essais DSC et dans un second temps de calibrer les données mécaniques connaissant les données matériaux. La démarche suivie semble correcte et menées à des calibrations relativement fiables des mécanismes étudiés.

Les données matériaux sont conservées et présentées dans le Tableau IV. 1 et le Tableau IV. 5. Les paramètres mécaniques sont donnés dans le Tableau IV. 6.

La calibration des paramètres numériques ayant été réalisées dans le Chapitre IV, il va être possible d'utiliser ces données pour la simulation du procédé FSW. Toutefois, l'objectif de ce chapitre est de mettre en évidence les évolutions microstructurales et mécaniques dans un joint soudé et de comparer par la suite les données obtenues numériquement à celles obtenues expérimentalement dans le cas d'une soudure en tôle pleine d'épaisseur 2,5 mm.

Dans un premier temps, une étude du procédé FSW d'un point de vue expérimental est réalisée. Cette première partie va permettre de faire le lien entre les propriétés microstructurales du matériau étudié et les propriétés mécaniques. Afin de comprendre l'influence de l'évolution thermique dans la soudure, trois vitesses d'avance ont été choisies.

Dans une seconde partie, une brève description du modèle macroscopique appliqué à la configuration de soudage étudié est présentée. Le travail complet est détaillé dans le manuscrit de doctorat de Gastebois [Gas15]. Ce modèle permet l'obtention des données thermiques en différents points du cordon de soudure (Chapitre II - Figure II.1) nécessaire afin d'utiliser le modèle microscopique permettant la prédiction des évolutions de la précipitation et des propriétés mécaniques finales.

1. Résultats expérimentaux

Les soudures ont été effectuées dans la tôle de 2,5 mm d'épaisseur. L'objectif était de pouvoir, par la suite, réaliser des essais de traction et prélever des pastilles de DSC. Les soudages FSW étudiés dans ce chapitre feront référence aux essais pleine tôle réalisés à l'institut Maupertuis et décrit dans le Chapitre III. En effet, d'autres essais, non détaillés par la suite ont été réalisés en configuration tôle sur tôle (1,2 mm sur 2,5 mm) avec une tôle plus fine que l'autre engendrant une rupture dans la tôle la plus fine. Il s'avère ainsi impossible de caractériser la soudure par traction. Le prélèvement de pastille DSC selon la méthode présentée sur la Figure III.3 est physiquement non souhaitable pour une utilisation en DSC. Ainsi, seules les configurations de soudage pleine tôle décrites précédemment ont fait l'objet d'une analyse approfondie présentée dans ce chapitre bien qu'éloigné de la configuration industrielle. Trois vitesses d'avance ont été étudiées. Elles sont de $1 \text{ mm}\cdot\text{s}^{-1}$, $2 \text{ mm}\cdot\text{s}^{-1}$ et $4 \text{ mm}\cdot\text{s}^{-1}$. Les paramètres des soudures sont répertoriés dans le Tableau III. 1.

Tableau III. 1 : Essais réalisés et paramètres procédés retenus

Essais	Vitesse d'avance (V) [$\text{mm}\cdot\text{s}^{-1}$]	Vitesse de rotation (W) [rpm]	Force (F) [N]
A	1	1200	-4000
B	2	1200	-4800
C	4	1200	-4800

Dans un premier temps une analyse macroscopique des soudures, pour les trois vitesses de soudage en essais pleine tôle, a été effectuée pour s'assurer de l'absence de défauts macroscopiques type trous. Par la suite, la caractérisation de l'évolution microstructurale de l'un de ces essais a été réalisée. Pour finir, l'influence de la vitesse d'avance et donc de l'échauffement de la soudure sera étudié.

1.1. Analyse macroscopique des soudures

Avant de commencer la présentation des résultats, il est nécessaire de s'assurer de la qualité des soudures. Pour chaque paramètre de soudage (Tableau III.1), trois soudures ont été réalisées afin de vérifier la répétabilité des essais. Pour cela, une analyse macroscopique a été effectuée pour ces trois essais. Les surfaces polies (sections transversales des pièces ont subi une attaque chimique au réactif de Keller permettant de révéler la zone soudée (domaine grisé aux grains de taille plus petite). Aucun défaut n'apparaît dans le cas des vitesses d'avance faibles (Figure V. 1 et Figure V. 2). Par contre sur la Figure V. 4, des défauts de porosité caractérisé par du ressuage (révélation de défauts liée à la présence de produit chimique) apparaissent pour une vitesse d'avance de 4 mm.s^{-1} . Pour éviter la formation de ce type de défaut, une force plus importante aurait dû être appliquée. Augmenter la force n'était cependant pas souhaitable dans le cas de cette analyse puisque l'objectif est, dans cette analyse, de comparer l'influence de la vitesse d'avance sur les propriétés mécaniques de la soudure à force appliquée constante. De plus, le robot utilisé ne permettait pas d'obtenir des forces plus élevées. L'apparition de ces défauts en bas de pion n'est pas systématique et sur les trois soudures effectuées, une des soudures (Figure V. 3) ne présente pas de défauts. Ainsi, elle sera prise comme référence dans le cas de l'étude des propriétés finales des soudures.

Afin de mieux visualiser la configuration de soudage par rapport à l'observation macroscopique, un schéma du procédé FSW est indiqué sur la Figure V. 1. Il permet de rappeler le côté d'avance de l'outil (advancing side - AS) et le côté de retrait de l'outil (retreating side - RS). L'orientation de ces deux côtés est également indiquée sur les macrographies. Le repère de l'axe est pris au centre de la soudure. La direction de l'axe x est donnée, orientée systématiquement vers le côté RS, et sera utilisée par la suite pour indiquer la position de prélèvement de la pastille de DSC.

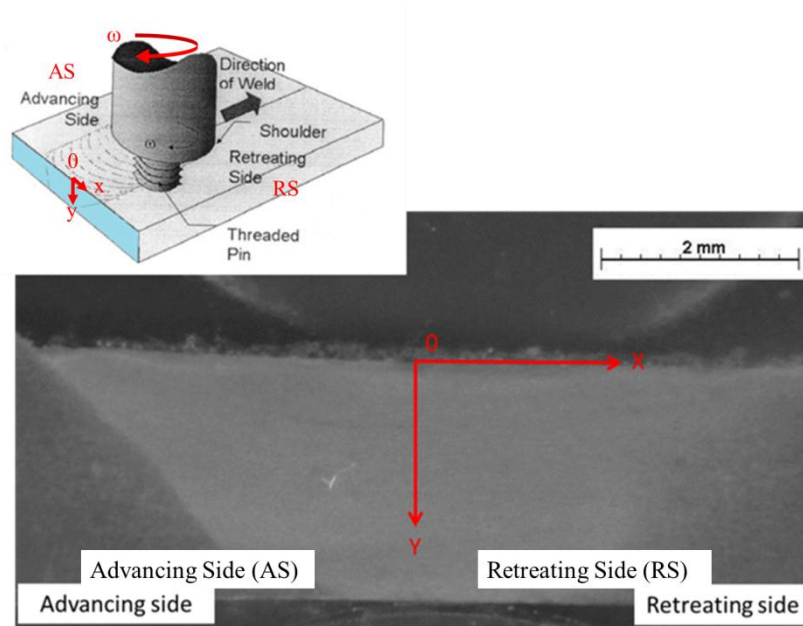


Figure V. 1 : Observation macroscopique de la soudure avec une vitesse d'avance de 1 mm.s^{-1}

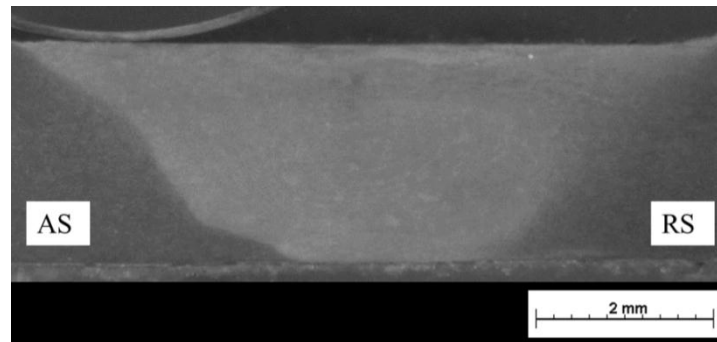


Figure V. 2 : Observation macroscopique de la soudure avec une vitesse d'avance de 2 mm.s^{-1}

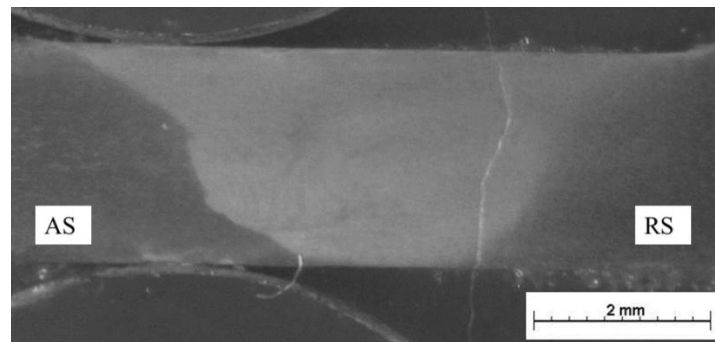


Figure V. 3 : Observation macroscopique de la soudure avec une vitesse d'avance de 4 mm.s^{-1}

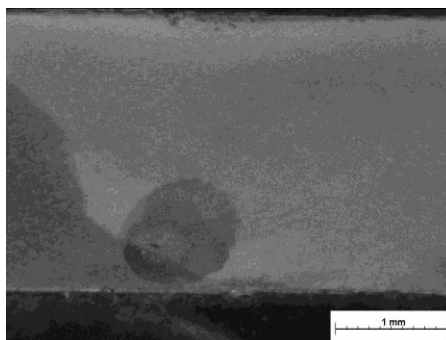


Figure V. 4 : Observation d'un défaut menant à un phénomène de ressuage dans le cas d'une vitesse d'avance de 4 mm.s^{-1}

1.2. Etude de l'évolution microstructurale

La caractérisation de l'évolution microstructurale a été menée sur tous les échantillons étudiés, néanmoins par soucis de synthèse, seuls les résultats de la soudure à 1 mm.s⁻¹ seront présentés dans ce chapitre. Les résultats relatifs aux deux autres soudures sont présentés dans l'Annexe 3. La vitesse d'avance la plus lente a été choisie puisqu'elle permet d'atteindre un échauffement plus important dans le matériau et donc des hétérogénéités microstructurales plus marquées. Cette analyse permettra d'établir le lien entre propriétés mécaniques et état microstructural.

Etude de l'évolution de la taille de grains

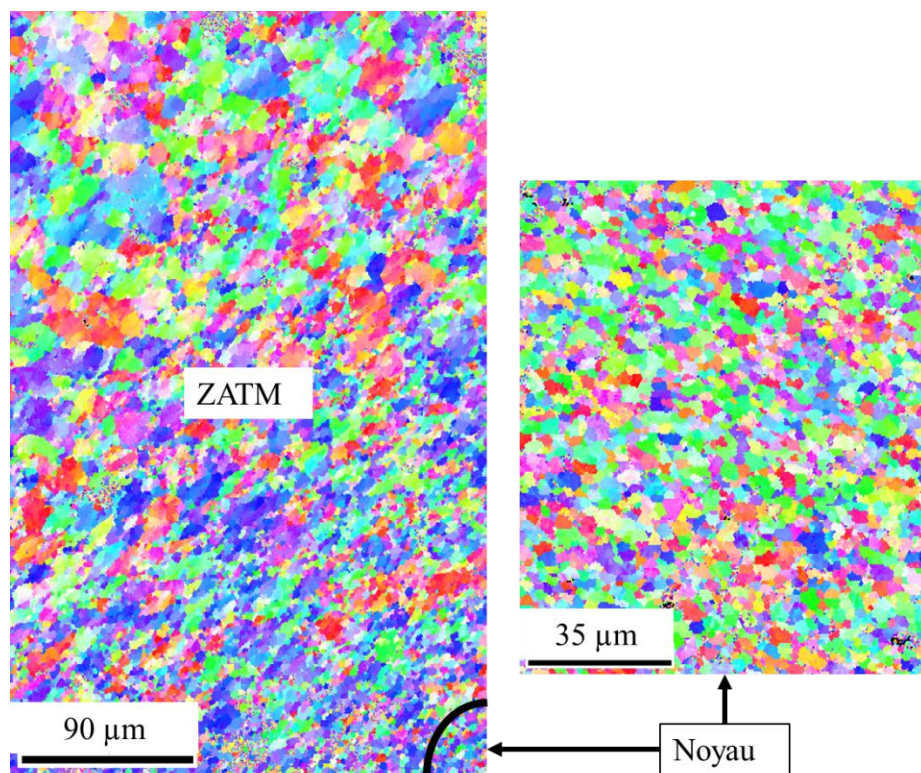


Figure V. 5 : Evolution de la taille de grains à l'approche du noyau (a) et dans le noyau (b) pour une vitesse de soudage de 1 mm.s⁻¹

Lors du procédé FSW, une déformation importante à haute température va induire un phénomène de recristallisation dans la zone proche de l'outil (noyau) [Gen04, Caz13, Gal08, Her10, KhS08, Sim07]. La taille de grains, initialement de 26 μm dans le métal de base chute à une valeur moyenne de 2 μm dans le noyau. Sur la Figure V. 5, l'évolution de la taille de grains et l'apparition du phénomène de recristallisation dans une partie de la ZATM est visible. En haut à gauche, les grains ont une taille correspondante à leur taille initiale mais ils sont écrouïs du fait de la présence de fortes désorientations. Néanmoins, la recristallisation n'a pu se produire puisque la zone est trop éloignée de l'outil et donc la déformation n'est pas suffisamment importante. Dans la ZATM correspondant à la partie inférieure de l'image, du fait

de la présence de fortes déformations et de grains présentant des traces d'écroutissage, la densité de dislocations est plus importante que dans les autres zones de la soudure. Toutefois, dans la zone malaxée (noyau - Figure V. 5), la déformation à chaud est suffisamment importante pour induire une recristallisation totale des grains. L'apparition de grains recristallisés se caractérise par la présence de grains de taille plus petite que celle d'origine. Ils ne présentent pas d'écroutissage résiduel. La transition entre la zone où les grains sont écroutés (haut de l'image) et celle où ils sont totalement recristallisés est visible sur la Figure V. 5. La présence de grains de taille plus petite que celle d'origine est observée.

Etude de l'évolution de la répartition des intermétalliques

Les intermétalliques apparaissent en blanc sur l'observation en MEB-EDS sur la Figure V. 6. Ils sont présents initialement dans le matériau et bien qu'étant très stables à haute température vont toutefois être affectés par la déformation mécanique lors du soudage. En effet, leur fraction surfacique sur la Figure V. 6 apparaît moindre dans la zone soudée (noyau) où ils semblent moins présents comparativement au métal de base. La ZAT n'est pas affectée par l'évolution de leur fraction surfacique.

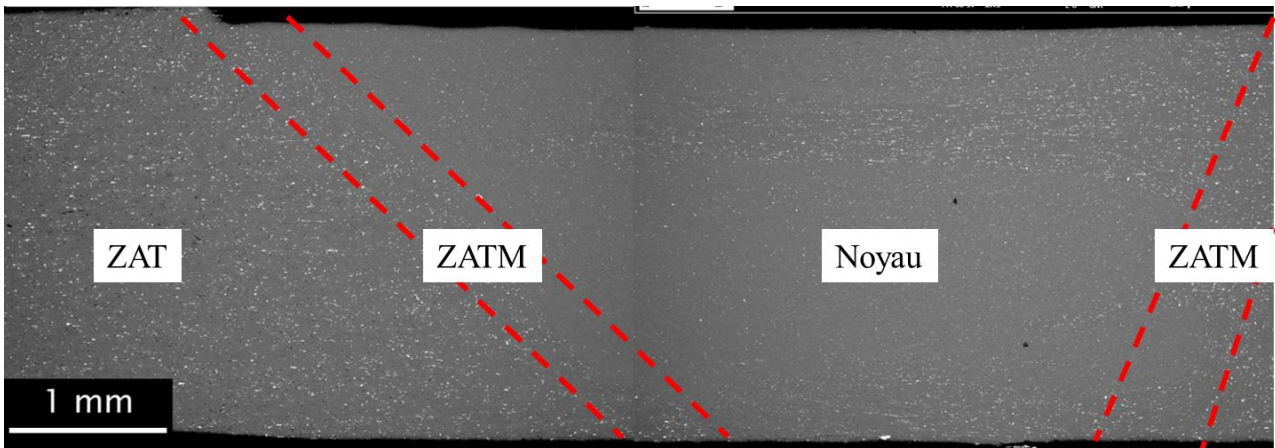


Figure V. 6 : Observation en MEB-EDS des hétérogénéités chimiques dans la zone soudée et de leur évolution (coupe transversale)

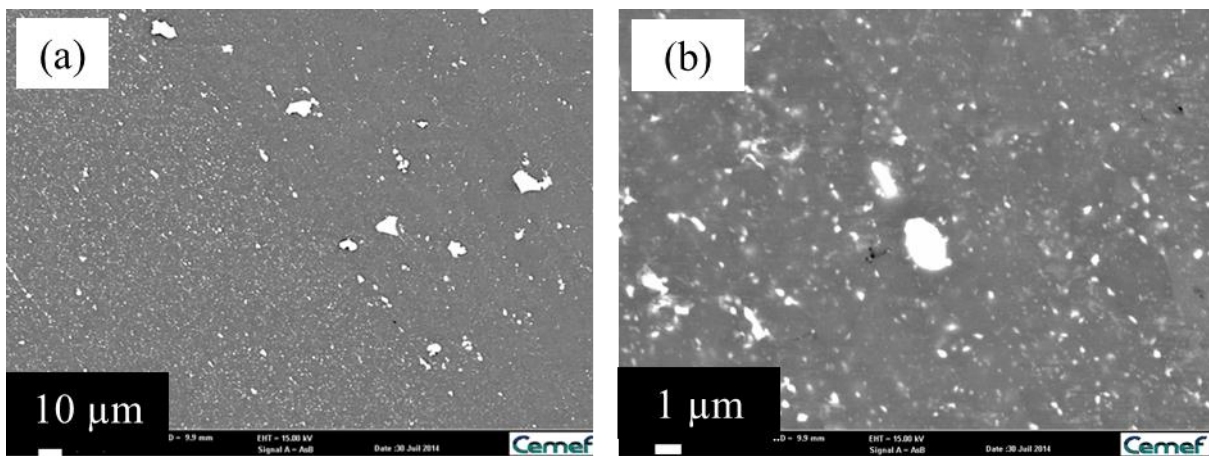


Figure V. 7 : Observation en MEB-EDS de la transition entre la zone contenant des intermétalliques de taille initiale typique du métal de base (gauche) et de la zone où les intermétalliques semblent avoir disparus (droite) (a) zoom 1 et (b) zoom 2

La Figure V. 7 montre la transition entre zone (à gauche) contenant des intermétalliques ayant une taille comparable à celle initialement observée dans le métal de base et la zone (à droite) dans laquelle les intermétalliques sont moins présents d'après la Figure V. 6. Sur la Figure V. 7-a, les intermétalliques de quelques dizaines de microns semblent disparaître au profit de particules de taille plus fine et largement inférieure au micromètre sur la Figure V. 7-b. Néanmoins, certaines particules conservent une taille de plus de 1 μm . Une théorie avancée consiste à considérer les intermétalliques broyés lors du procédé [Gen04]. En utilisant la technique EDS/EBSD couplée pour déterminer la nature chimique des intermétalliques toujours présents dans la zone soudée, il apparaît que quels que soit la nature chimique de l'intermétallique (Al_2CuMg , Al_2Cu ou $\text{Al}_7\text{Cu}_2\text{Fe}$), ils sont fortement broyés et redistribués. Néanmoins, localement, certaines particules de taille micrométriques sont conservées. Malgré l'évolution morphologique des intermétalliques, la composition moyenne de la matrice sera considérée comme inchangée dans le noyau dans le cas de la simulation et prise identique à la valeur donnée dans le Tableau II.3.

Etude de l'évolution de la précipitation

Afin de caractériser l'évolution de la précipitation dans le cordon de soudure, la DSC a été utilisée à différentes positions dans une section transversale de la soudure. La vitesse de soudage est, de manière similaire à l'étude précédente, de 1 mm.s^{-1} . Cette analyse DSC permet non seulement de définir les fractions relatives de phase S et de zones GPB en différentes distances à l'axe de soudage mais également d'observer des décalages des signaux dus à l'introduction de dislocations dans la structure. Dans le Chapitre IV, il a en effet été montré que la densité de sites de germination, fortement lié à la présence de dislocations induit un décalage dans le temps des phénomènes. Plus cette densité est élevée et plus la germination va se produire de manière précoce. Ceci se traduit par l'observation du phénomène de germination pour des températures plus basses.

L'analyse DSC permet de mettre en évidence la zone affectée thermiquement (ZAT) entre 10 et 20 mm, la zone affectée thermo-mécaniquement (ZATM) entre 10 et 5 mm et le noyau entre 0 et 5 mm. Sur la Figure V. 8, les courbes d'analyse en DSC sont présentées. Pour une distance de 19,9 mm à la zone soudée, le signal de base est retrouvé. Le premier pic, endothermique, est caractéristique de la dissolution des zones GPB. A 19,9 mm de l'axe de soudage, l'aire sous la courbe correspondant à la dissolution des GPB est plus importante. Cette aire diminue au cours du temps et devient inexistante pour une distance de 4,8 mm. Cette distance correspond à la limite de la zone affectée thermo-mécaniquement. La présence des zones GPB est de nouveau observable pour une distance de 2,6 mm au centre de la soudure. Ainsi, dans le noyau, les zones GPB sont formés, et leur redissolution est observée en analyse DSC. Leur présence est bien retrouvée. Les évolutions présentées ici correspondent bien aux observations rapportées dans la littérature [Gen04]. Plus la distance au centre de la soudure diminue et plus le matériau subit des échauffements importants dus au frottement entre la tige ou l'épaulement et la matière. La disparition des zones GPB dans la ZATM peut se traduire par une température atteinte élevée induisant leur dissolution totale.

Ce phénomène devrait également être observé dans le noyau. Cependant, les signaux DSC attestent de leur présence. Il semblerait que les zones GPB soient dissoutes lors du soudage mais que leur formation par maturation à température ambiante est possible expliquant ainsi leur présence [Gen04, Gal08, Si07].

Le second pic, de nature exothermique, est caractéristique de la précipitation de la phase S. Deux paramètres sont étudiés pour cette phase : l'aire sous la courbe de flux de chaleur négatif permettant de définir la fraction relative des phases et la position du pic. L'aire sous la courbe maximale est observée à 19,9 mm du centre de la soudure. Elle correspond à la quantité maximale de phase S pouvant se former lors de l'analyse en DSC. Cette aire sous la courbe diminue à mesure que l'échantillon prélevé est proche de l'axe de soudage. A 4,8 mm de l'axe de soudage, la courbe présente une aire minimale. Il peut donc être conclu que le maximum de phase S est formé dans la ZATM.

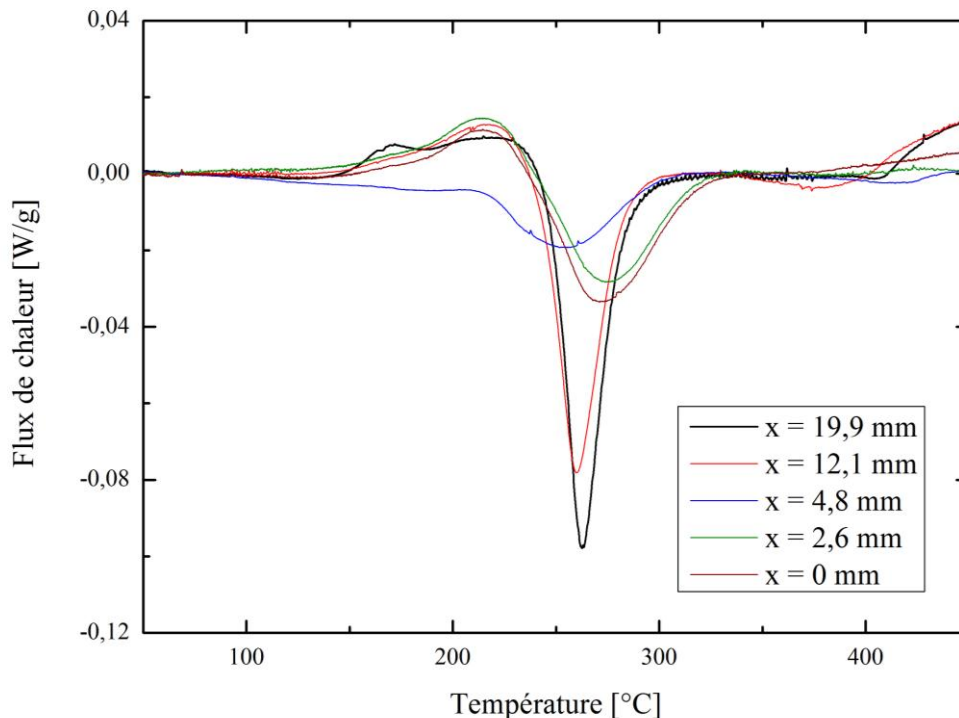


Figure V. 8 : Evolution des courbes de flux de chaleur en fonction de la position de prélèvement de la pastille à l'axe de soudage ($v = 1\text{mm}\cdot\text{s}^{-1}$) (endo up)

La position du pic caractéristique de la phase S est décalée en fonction de la distance à l'axe de soudage. Par rapport à l'échantillon à 19,9 mm, le phénomène de précipitation de la phase S intervient plus tôt lorsque l'échantillon analysé est prélevé à 4,8 mm, c'est-à-dire dans la ZATM, ce qui peut correspondre à une densité de dislocations plus importante induite par une déformation à chaud lors du procédé de soudage ne menant pas à une recristallisation. Toutefois à 0 mm, soit dans le noyau, ce phénomène apparaît plus tardivement, signe que moins de sites de germination sont disponibles pour la précipitation. La recristallisation induit une diminution de la densité de dislocation et se traduit par une diminution du nombre de sites de germination dans le matériau [Gen04].

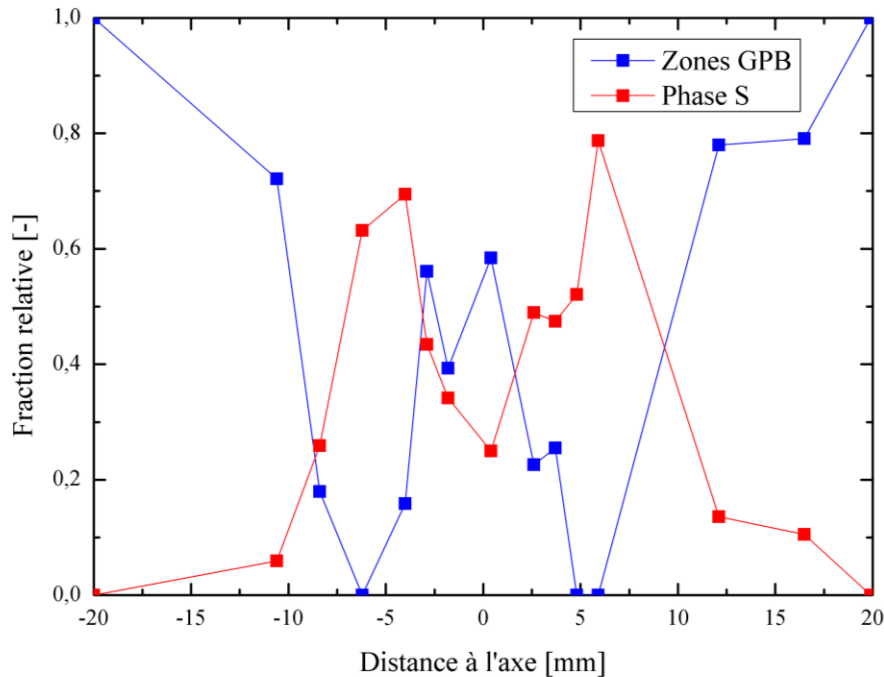


Figure V. 9 : Evolution de la fraction relative de phase S et de zones GPB en fonction de la distance à l'axe de soudage

Sur la Figure V. 9, l'évolution de la fraction relative de phase S (rouge) et de zones GPB (bleue) est présentée. Pour une distance de 19,9 mm, les fractions relatives sont celles caractéristiques du métal de base. A mesure que l'on se rapproche de la zone soudée la quantité de zones GPB diminue pour laisser place à une précipitation légère de la phase S. A 10 mm de l'axe de soudage, la fraction relative de zones GPB chute fortement et la phase S se forme en quantité non négligeable. Cette zone constitue la ZATM. Dans le noyau, entre -5 mm et 5 mm, la fraction relative de phase S diminue mais elle est toutefois présente en plus grande quantité dans le noyau que dans le métal de base. Les observations et analyses ont été effectuées 1 à 2 semaines après soudage et l'état métallurgique observé ne correspond donc pas exactement à celui obtenu immédiatement après soudage. La formation de la phase S n'empêche pas la formation par maturation à l'ambiante des zones GPB qui ne retrouvent toutefois pas leur valeur d'origine. La fraction relative de zones GPB est réduite compte tenu de la présence de la phase S dans le noyau qui consomme une certaine quantité d'éléments d'alliage nécessaire à la formation des zones GPB. L'analyse de la DSC permet de mettre en évidence la ZAT (entre 8 et 20 mm), la ZATM (5 et 8 mm) et le noyau (0 et 5 mm).

1.3. Etude de l'évolution des propriétés mécaniques

Dans le cas d'un alliage à durcissement structural, les propriétés mécaniques sont fortement reliées à l'état de précipitation du matériau. La Figure V. 10 présente le profil de la dureté pour une soudure réalisée à 1 mm.s^{-1} . Les barres d'erreur proviennent de la moyenne des mesures de dureté pour une même distance x à l'axe de soudage (cf. Chapitre III).

La Figure V. 10 permet de mettre en évidence la ZAT caractérisée par un adoucissement du matériau entre 8 et 20 mm. Cet effet est lié à la diminution des zones GPB. Elle montre un minimum local de dureté à 15 mm. Entre 8 et 10 mm, un maximum de dureté est atteint. Il traduit le début de la formation de la phase S, considérée comme fine et très durcissante dans cette zone [Gen04]. Les minimums de dureté apparaissent aux alentours de 5 mm. Ils correspondent à une disparition totale des zones GPB et par une fraction relative de phase S maximale (Figure V. 9). Dans ce cas, la phase S formée pourrait avoir une taille importante induisant un adoucissement du matériau. En effet, plus les particules sont de taille importante et moins leur effet sur le durcissement sera marqué. Cette zone est considérée comme étant la ZATM.

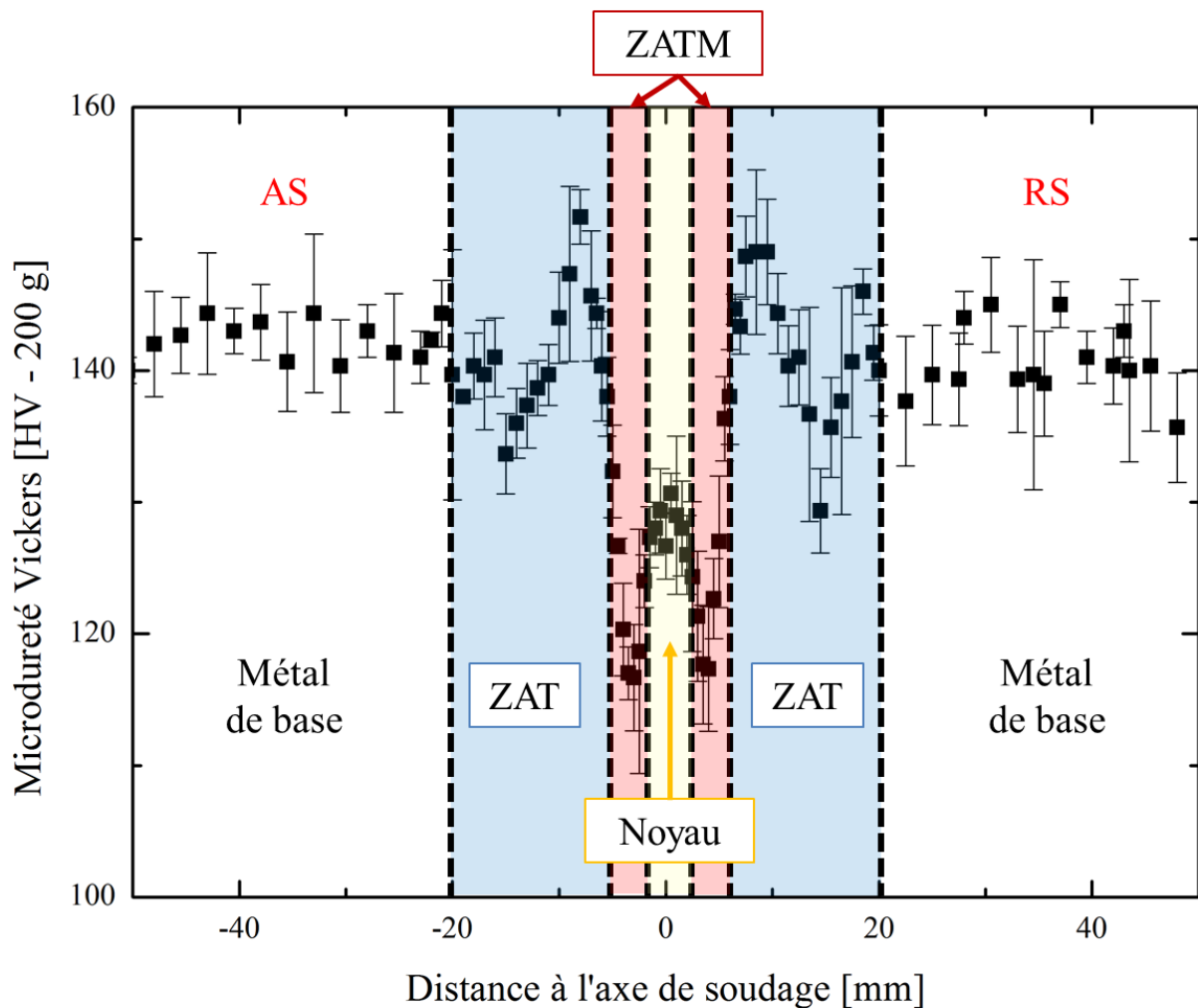


Figure V. 10 : Evolution de la dureté en fonction de la distance à l'axe de soudage

Un essai de traction a été réalisé afin de visualiser la localisation de la déformation lors de la mise sous tension d'une éprouvette prélevée perpendiculairement à la soudure (cf. Chapitre III). Le résultat obtenu, soit la dernière image avant la rupture de l'éprouvette, est présenté sur la Figure V. 11. Plusieurs zones apparaissent. La plus éloignée de la soudure est caractéristique du matériau de base, la déformation y est très faible (bleu clair). Une zone avec une valeur de déformation plus élevée apparaît en vert en s'approchant de la soudure, elle

correspond à la zone où un adoucissement est visible dans la ZAT. Une zone exempte de déformation est visible ensuite en bleu foncé/violet et se traduit par une dureté plus forte. Elle correspond à la fin de la ZAT. Le maximum de déformation semble être atteint dans le noyau. Cependant la rupture intervient dans la ZATM du côté retreating soit au minimum de dureté avec des déformations apparaissant en rouge. L'hétérogénéité microstructurale de la soudure induit donc bien des hétérogénéités mécaniques observables via des essais de dureté ou de traction.

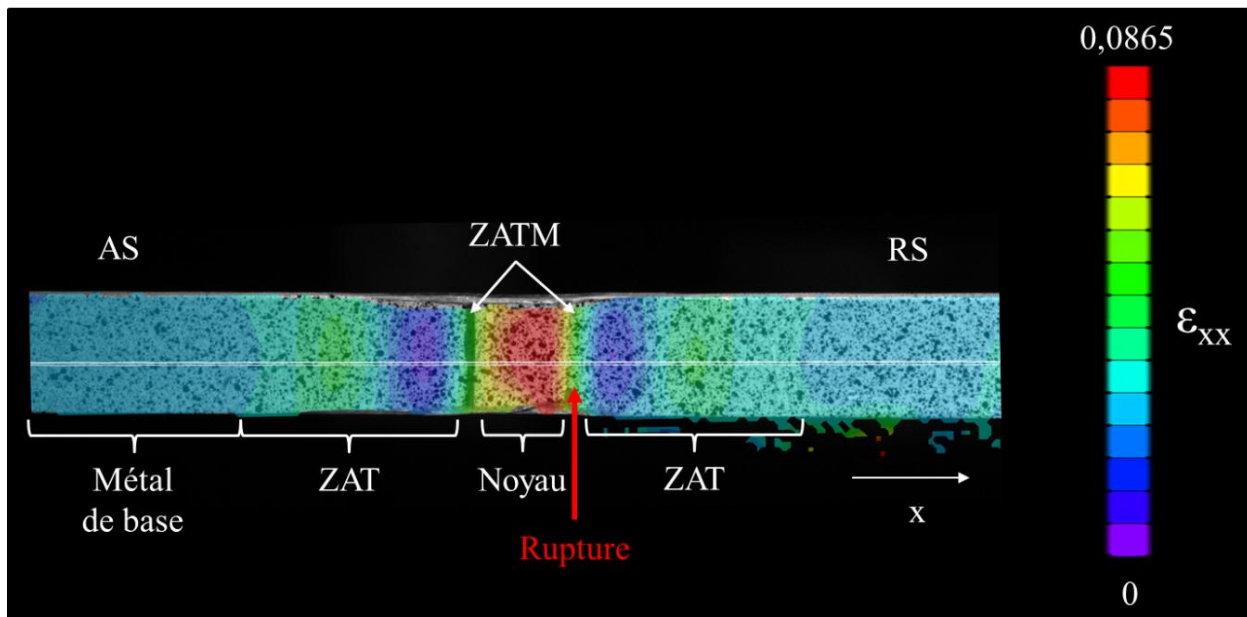


Figure V. 11 : Localisation des déformations avant rupture

1.4. Influence de la vitesse d'avance sur les propriétés de la soudure

Afin de comprendre l'influence de la température sur la précipitation et donc sur le comportement mécanique de la soudure, plusieurs essais avec des vitesses d'avance supérieure (2 mm.s^{-1} et 4 mm.s^{-1}) ont été réalisés. Le lien propriétés mécaniques-état de précipitation ayant été établi précédemment, seule la caractérisation mécanique sera étudiée lors de cette comparaison, les résultats des analyses DSC sont présentés dans l'Annexe 3.

Sur la Figure V. 12, les évolutions du profil de dureté en fonction de la distance à l'axe de soudage pour différentes vitesses d'avance sont présentées. Les différentes zones caractéristiques des soudures apparaissent. Néanmoins, leur taille diminue lorsque la vitesse augmente. Par exemple, la ZAT se situe à une distance de l'axe de soudage comprise entre 8 mm et 20 mm soit une largeur de 12 mm pour une vitesse de soudage de 1 mm.s^{-1} . Cette distance n'est plus que de 4 à 14 mm dans le cas d'une vitesse de 4 mm.s^{-1} soit une largeur de 10 mm. Le minimum de dureté est également plus faible pour la vitesse la plus faible soit 117 HV à 1 mm.s^{-1} au lieu de 128 HV pour une soudure effectuée à 4 mm.s^{-1} . Il en est de même avec le maximum de dureté passant de 147 HV à 1 mm.s^{-1} à 151 HV à 4 mm.s^{-1} . Il peut être

conclu que les hétérogénéités sont moins marquées lorsque la vitesse est rapide. Plus la vitesse d'avance est élevée et moins la température atteinte dans le noyau est importante. Les phénomènes de précipitation bénéficient aussi d'un temps plus réduit pour se produire d'où des hétérogénéités moins marquées. Ces phénomènes se traduisent, lors d'un essai de traction, par une meilleure tenue mécanique (Figure V. 13). En effet, dans le cas d'hétérogénéité de propriétés mécaniques marquées, les déformations induites lors de l'essai de traction se concentrent dans la zone présentant le minimum de dureté. De ce fait, ces déformations ne sont pas homogènes dans l'éprouvette de traction. Ce phénomène mène à une rupture plus rapide. Il est à noter que toutes les éprouvettes sont rompues après une déformation plastique marquée. La soudure réalisée avec une vitesse d'avance de 1 mm.s^{-1} possède un minimum de dureté plus important que les autres soudures. Elle a également une limite d'élasticité apparente minimale (Figure V. 13).

Un compromis doit cependant être trouvé afin de définir les paramètres permettant d'obtenir une hétérogénéité tant mécanique que microstructurale limitée et empêcher la formation de défauts type trous (Figure V. 4). D'un point de vue expérimental, la soudure permettant d'obtenir le meilleur compromis s'avère être la soudure intermédiaire puisqu'elle ne présente pas de défauts macroscopiques de type trou tels qu'observé dans le cas de la soudure à 4 mm.s^{-1} . De plus, elle possède des propriétés mécaniques plus élevées que la soudure à 1 mm.s^{-1} .

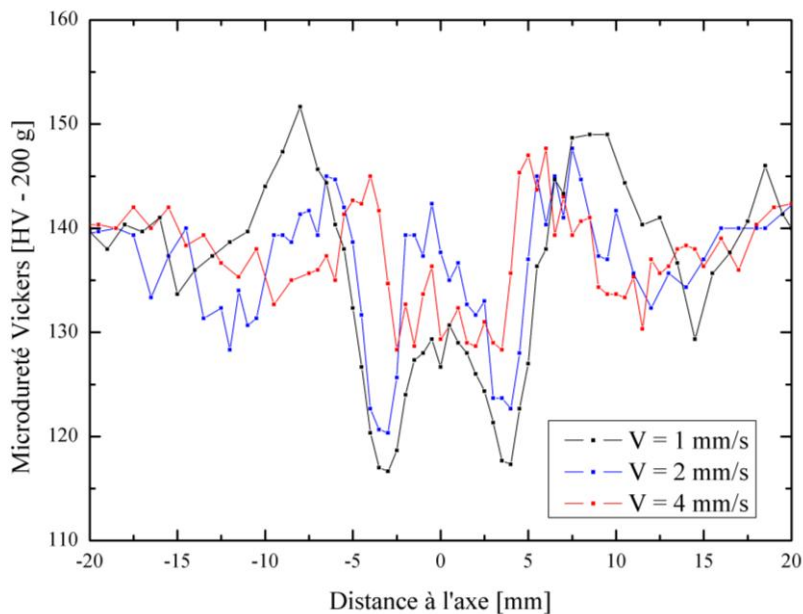


Figure V. 12 : Profil de dureté au travers de la soudure pour différentes vitesses d'avance.

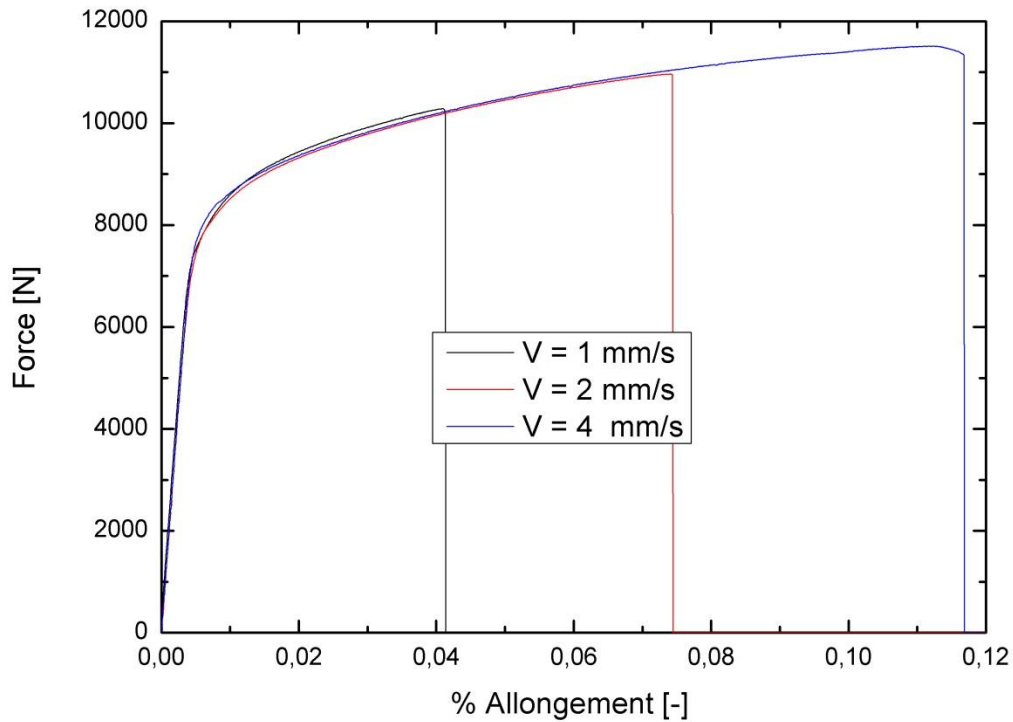


Figure V. 13 : Comparaison de courbes de charge lors de la caractérisation de soudures effectuées à différentes vitesses d'avance de l'outil

2. Simulation macroscopique d'une soudure

Dans le cas des essais pleine tôle d'épaisseur 2,5 mm pour lesquels les analyses en DSC, microdureté et traction ont été menées, aucun thermocouple n'a pu être placé dans l'outil et le formalisme eulérien sera utilisé (Annexe 2). En effet, la hauteur de l'outil étant moindre vu que l'épaisseur soudée était plus faible, aucun outil instrumenté était disponible. La géométrie de l'outil et de la plaque est présentée sur la Figure V. 14.

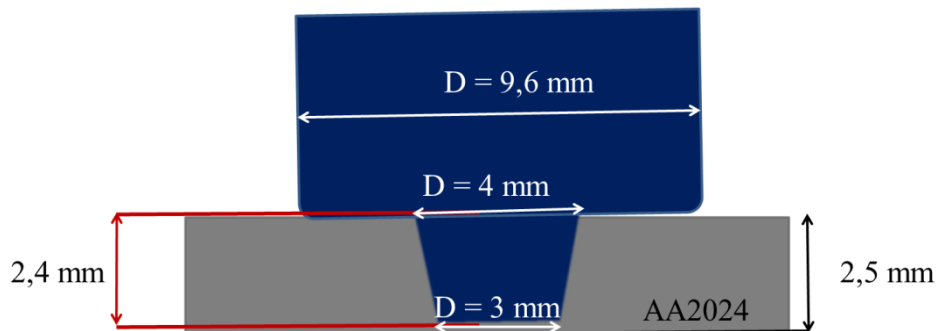


Figure V. 14 : Configuration du soudage pour la simulation de l'évolution des propriétés microscopiques

Trois vitesses d'avance sont étudiées : 1 mm.s^{-1} , 2 mm.s^{-1} et 4 mm.s^{-1} . Avant de s'intéresser à la simulation d'évolutions microscopiques dans le cordon de soudure, il est important de comprendre comment la vitesse d'avance influence les évolutions en

température. Pour cela, pour une même hauteur dans la plaque, 3 distances à l'axe sont étudiées du côté AS : -10 mm, -5 mm, -2,5 mm. La température atteinte en cœur de soudure pour une distance nulle est également analysée. Les évolutions obtenues sont présentées sur la Figure V. 15. Contrairement à ce qui est attendu, diminuer la vitesse d'avance ne permet pas d'observer une augmentation de la température maximale. Par exemple, pour une distance de 5 mm à l'axe de soudage (Figure V. 15-a), la température maximale est obtenue pour la vitesse intermédiaire. Pour une distance de 2,5 mm (Figure V. 15-c), la température maximale atteinte dans le cas de la vitesse d'avance la plus faible possède la valeur la plus petite. Aucune mesure en température n'a pu être réalisée dans ces zones et il apparaît donc impossible de les corrélérer avec des données expérimentales. Les différences observées sur les microstructures ne semblent donc pas dépendre de la température maximale atteinte. La Figure V. 16 permet d'observer une coupe avec les données thermiques lors du soudage pour les différentes vitesses d'avance. Les évolutions thermiques en fonction de la distance à l'axe de soudage semblent étrangement similaires.

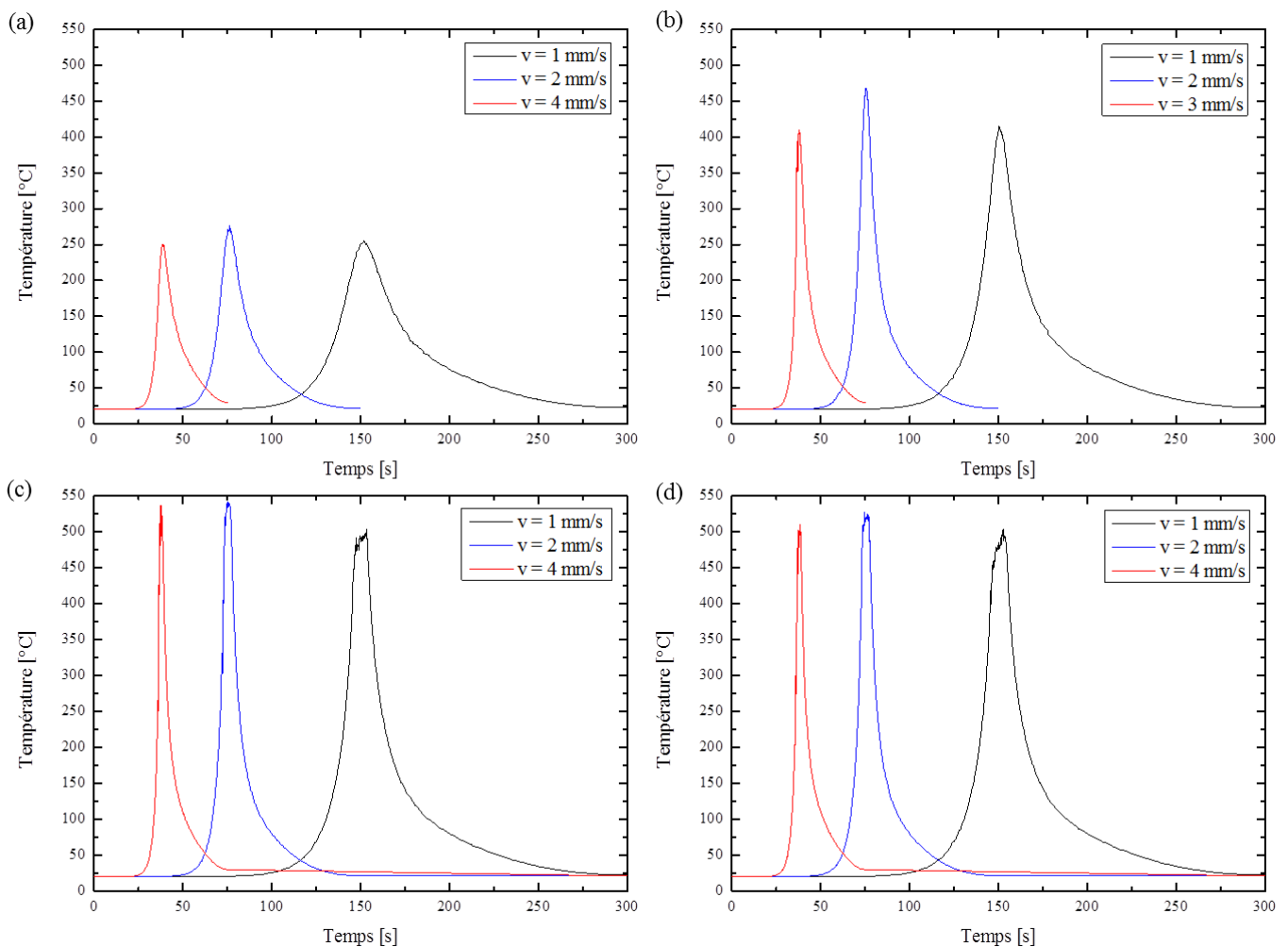


Figure V. 15 : Evolution des courbes en température obtenue via les simulations macroscopiques pour 3 vitesses d'avance différentes ($1 \text{ mm}\cdot\text{s}^{-1}$ – noir, $2 \text{ mm}\cdot\text{s}^{-1}$ – bleu, $4 \text{ mm}\cdot\text{s}^{-1}$ – rouge) pour différentes distances à l'axe de soudage du côté advancing side (a) 10 mm (b) 5 mm (c) 2,5 mm (d) 0 mm

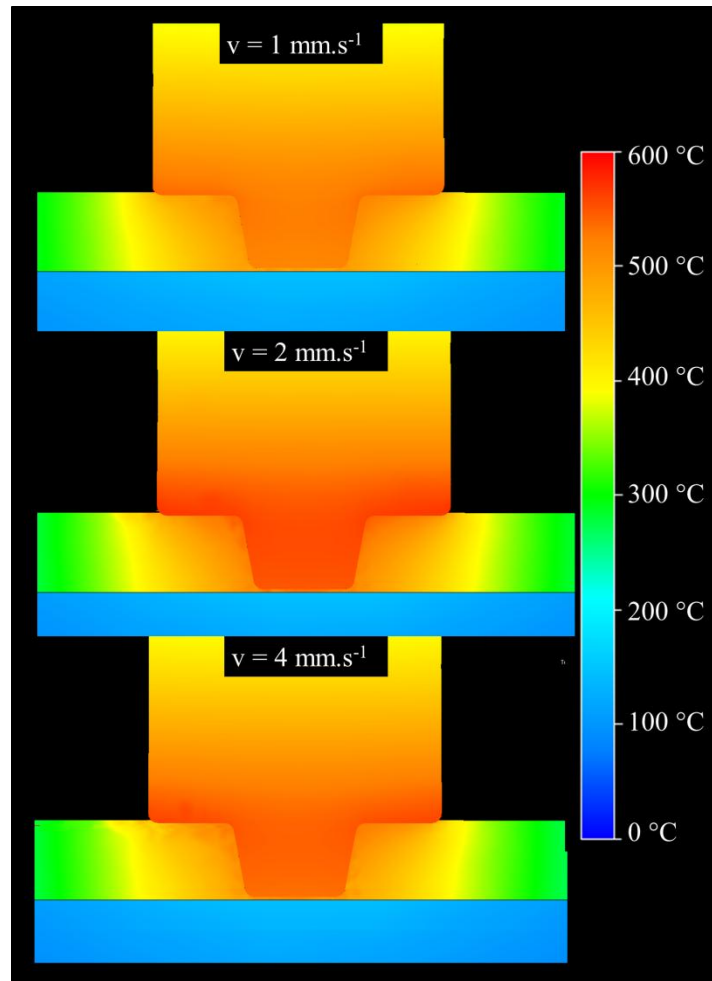


Figure V. 16 : Cartographie de température dans la zone soudée (outil et plaque)

Il apparaît clairement que les temps de chauffe et refroidissement sont diminués quand la vitesse d'avance augmente. Ce phénomène est visible sur la Figure V. 15-a. L'étalement du pic augmente quand la vitesse d'avance diminue. Il peut être conclu que la cinétique des différents phénomènes se produisant au cours du procédé FSW (germination, croissance, dissolution) va influencer sur l'état de précipitation et expliquer les différences entre les soudures pour les différentes vitesses d'avance.

Dans le cas du procédé FSW, il est courant de constater des différences entre le côté AS et RS en terme de propriétés mécaniques. Ces écarts sont souvent visibles dans la ZATM et donc, dans le cas de cette étude, pour une distance de 4 mm du centre de la soudure. Pour comprendre d'où proviennent ces différences, il peut être judicieux d'observer les différences de température atteinte (Figure V.17). Si la distance est supérieure à 5 mm du centre de la soudure, l'écart sur les courbes en températures est très faible. Néanmoins, les courbes du côté RS ont une valeur légèrement inférieure à celle du côté AS. La différence entre les deux côté apparaît clairement marquée pour une distance de 2,5 mm. Ainsi, plus on se rapproche du centre et plus l'asymétrie du procédé est marquée, les courbes du côté AS montrant des températures plus élevées que les courbes du côté RS.

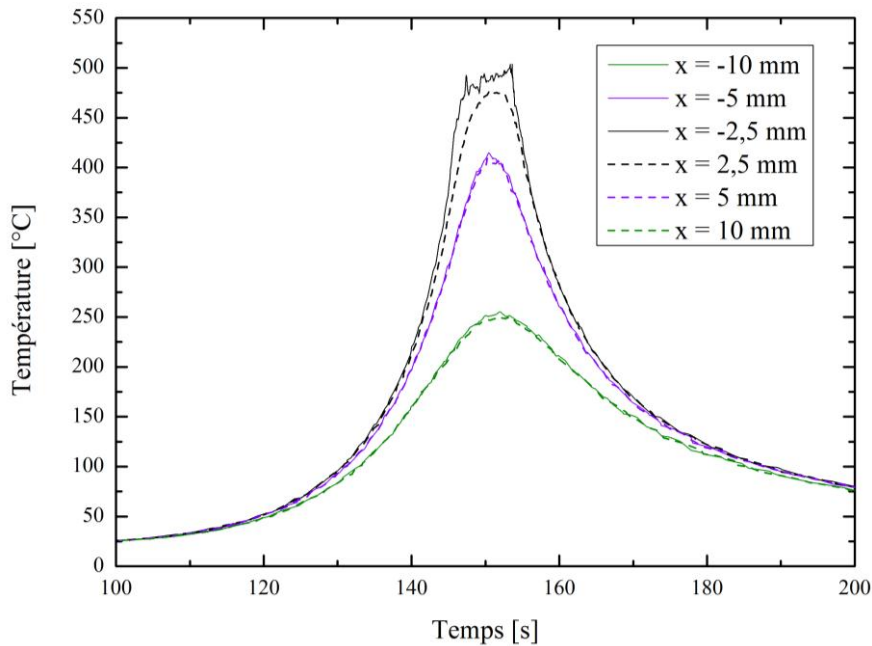


Figure V. 17 : Evolution dans le cas d'une soudure à 1 mm.s^{-1} des courbes temps-température obtenues du côté Advancing et Retreating pour différentes distances à l'axe de soudage.

3. Simulation microscopique d'une soudure

Le modèle de prédiction de l'état de précipitation et des propriétés mécaniques calibré dans le Chapitre IV est utilisé dans cette partie pour comprendre les évolutions microstructurales. Dans un premier temps, le cas de la soudure chaude à 1 mm.s^{-1} permettant d'obtenir des évolutions microstructurales plus marquées va servir de support d'une part à la validation dans le cas d'une soudure FSW de l'utilisation du modèle numérique développé dans cette étude ainsi qu'à la compréhension fine des évolutions se produisant lors du processus de soudage. Dans un second temps, l'influence de la vitesse d'avance sur les propriétés microstructurales sera étudiée, en discutant des analyses développées sur l'ensemble des 3 vitesses d'avance étudiées.

3.1. Modélisation de la soudure la plus chaude (1 mm.s^{-1})

Les paramètres utilisés dans la simulation ont été calibrés et présentés au Chapitre IV et sont présentés dans les Tableaux IV.1, IV.2, IV.5 et IV.6.

Propriétés générales

Le profil de dureté simulé est présenté en vert sur la Figure V. 18. Il correspond à celui devant être observé immédiatement après soudage, avant les effets de maturation et de

précipitation à l'ambiante des zones GPB. Il est comparé à un profil de dureté mesuré expérimentalement 1 mois après le soudage FSW de la tôle. Pour analyser les résultats, les différentes zones microstructurales seront étudiées.

La zone affectée thermiquement se découpe en deux zones distinctes : la première présente un adoucissement et la seconde présente un durcissement.

L'adoucissement se situe expérimentalement aux alentours de 15 mm du centre de la soudure tandis que numériquement ce phénomène apparaît vers 10 mm que ce soit du côté advancing ou du côté retreating. Ce phénomène est lié à la dissolution progressive des zones GPB sans que la température soit suffisamment élevée pour permettre la précipitation significative de la phase S. Pour une distance de 10 mm, il apparaît clairement sur la Figure V. 19(-a) que la population de zones GPB a chuté brutalement et que la phase S n'est pas encore formée (Figure V. 19(-b)). Deux phénomènes peuvent expliquer le décalage du pic d'adoucissement entre les résultats de la simulation et les données numériques. Le premier pourrait provenir de la simulation microscopique et de l'estimation initiale de la teneur en zones GPB. Si cette teneur est trop faible alors l'impact sur le signal est plus faible. Néanmoins, au vu du décalage spatial important entre ces deux zones, la question de la répartition de la chaleur d'un point de vue macroscopique dans la tôle.

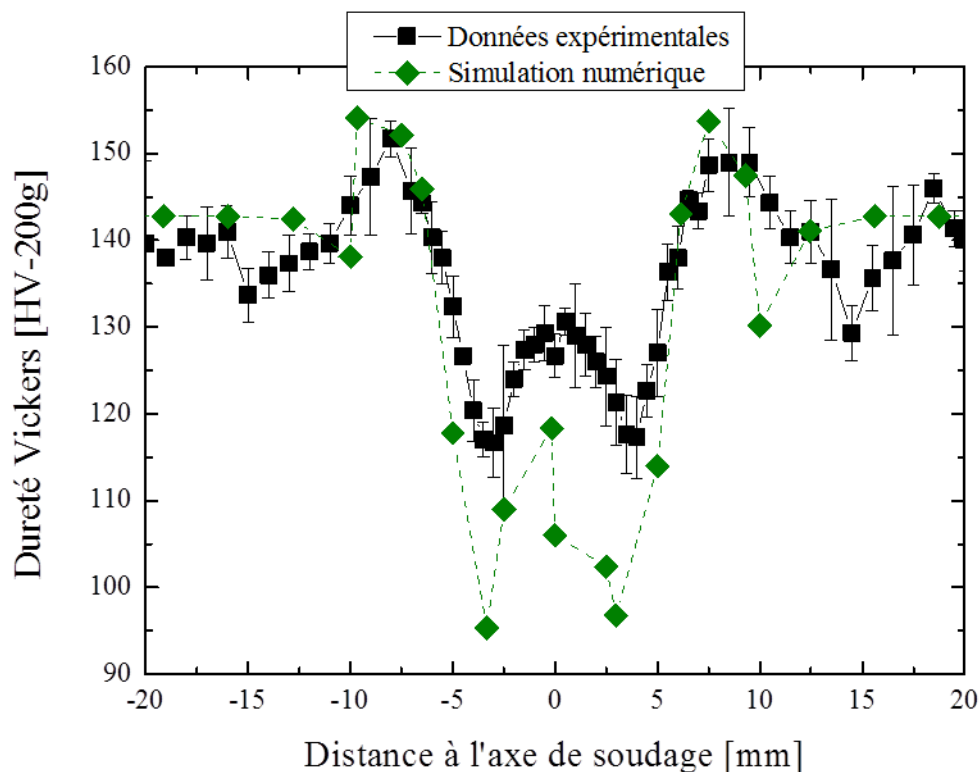


Figure V. 18 : Evolution de la microdureté dans le cordon de soudure simulée après soudage (simulation numérique) et mesurée 1 mois après soudage (données expérimentales)

Le durcissement structural en fin de zone affectée thermiquement est très clairement observé et correspond parfaitement aux données expérimentales tant en terme de position du

pic (8 mm du centre de la soudure) qu'en terme de valeur de dureté obtenue (153 HV). La quantité des zones GPB est faible (Figure V. 19-a). La dureté provient essentiellement du développement de précipités de la phase S, en une teneur importante. Concernant la phase S, sa fraction relative est très élevée et proche de 1. Elle apparaît être surestimée par rapport à la fraction relative mesurée expérimentalement (Figure V. 19-b). Les rayons moyens obtenus pour la phase S et GPB sont présentés sur la Figure V. 20. Il apparaît que pour une distance de 8 mm au centre de la soudure, le rayon moyen de la phase S est de 6 nm suffisamment fine pour atteindre les valeurs de dureté souhaitée.

Dans le cas du minimum de dureté de la zone affectée thermo-mécaniquement, il apparaît être bien localisé à 3 mm de l'axe de soudage. Toutefois, la chute de dureté est trop importante. La fraction volumique obtenue pour la phase S (Figure V. 19-b) semble être en accord avec les données expérimentales du côté advancing mais légèrement supérieure du côté retreating. Par ailleurs, les zones GPB sont totalement dissoutes (Figure V. 19 – a). Les valeurs pour les rayons moyens des précipités pondérés par la fraction volumique sont de l'ordre de 45 nm et la phase S peut alors être considérée comme une précipitation grossière réduisant fortement les propriétés mécaniques du matériau. Néanmoins, il a été observé par Genevois [Gen04] que les zones GPB pouvaient se former par maturation à l'ambiante et contribuer ainsi à une augmentation de la dureté de l'ordre de 10HV. Au vu des valeurs de fraction relative de phase S, il peut être conclu que suffisamment d'éléments d'alliages restent disponible, c'est-à-dire en solution pour permettre la formation via une maturation à l'ambiante des zones GPB. La présentation plus fine des phénomènes intervenant au cours du soudage dans la ZATM sera réalisée par la suite afin de mieux comprendre comment cette valeur peut être augmentée.

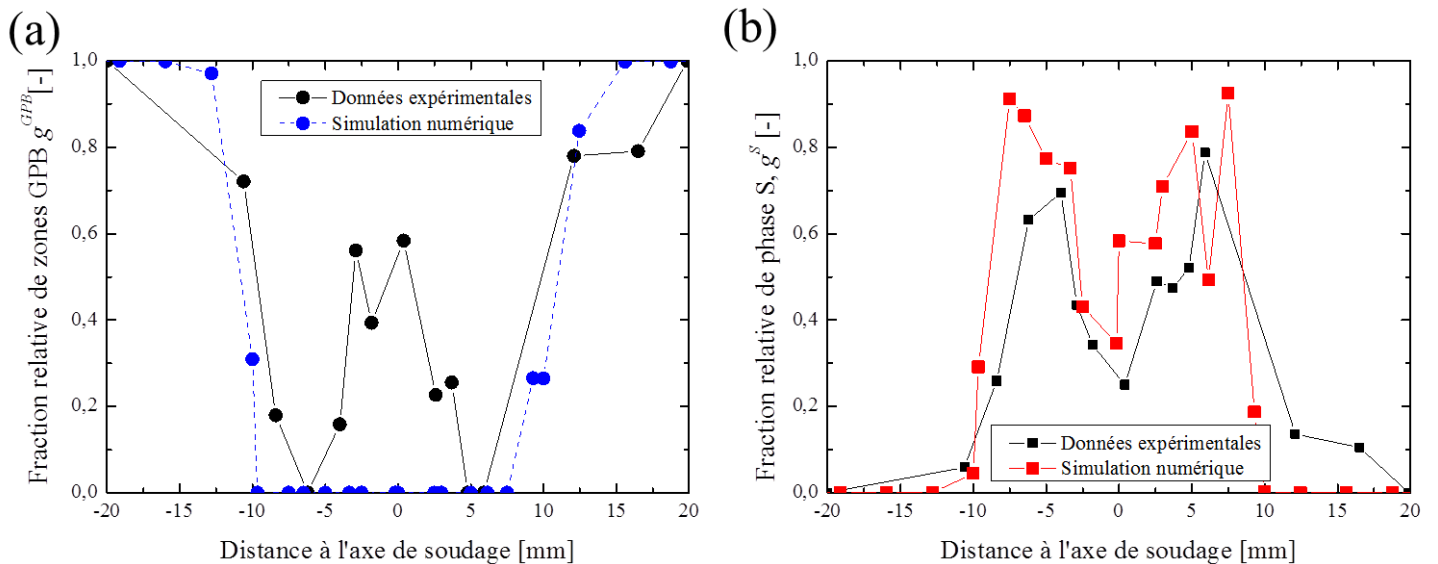


Figure V. 19 : Evolution des fractions relatives simulées et obtenues expérimentalement (a) des zones GPB et (b) de la phase S

Dans le noyau, la dureté obtenue est également plus faible que celle observée expérimentalement avec un écart de 10 à 20 HV (Figure V. 18). Pour Hersent [Her10], il est

normal de simuler une dureté plus faible immédiatement après soudage : les zones GPB doivent se former après maturation à l'ambiante pour permettre de retrouver des propriétés mécaniques correctes. Dans le modèle d'Hersent [Her10], la fraction volumique de zones GPB est définie en fonction de l'équilibre thermodynamique et permet d'expliquer correctement ce phénomène. Toutefois, le traitement de maturation à l'ambiante est ici négligé. La fraction de phase S obtenue via la simulation est plus importante que celle observée expérimentalement mais l'allure de la courbe expérimentale est retrouvée (Figure V. 19-b). Les rayons moyens sont également très élevés et vont donc fortement contribuer à l'adoucissement du matériau (Figure V. 20). Comprendre comment limiter la croissance des précipités et leur formation dans le noyau permettra d'agir sur ce phénomène.

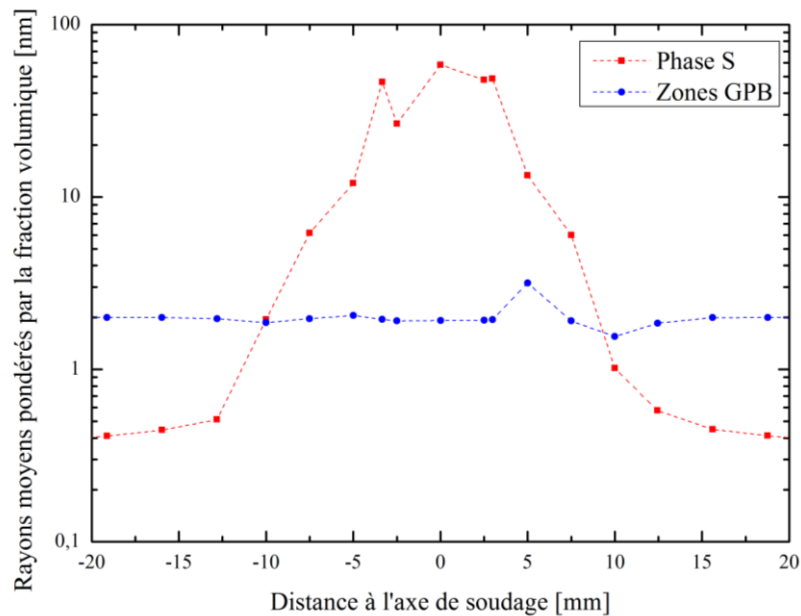


Figure V. 20 : Rayon moyen pondéré par la fraction volumique de précipités pour la phase S (rouge) et les zones GPB (bleu)

Evolution de l'état de précipitation dans la zone affectée thermiquement

Dans le cas de la zone affectée thermiquement présentant un adoucissement, le point étudié est placé du côté retreating à une distance de 12 mm du centre de la soudure. Sa valeur de dureté est de 140 HV soit une baisse de dureté de 7 HV par rapport au matériau de base. La Figure V. 21 présente l'évolution thermique dans le cas d'un adoucissement du matériau. La valeur maximale de température atteinte dans cette zone est de 270 °C. Les zones GPB se dissolvent quand la température est supérieure à 200 °C. Néanmoins, il apparaît également que le temps passé à une température supérieure à 200 °C n'est pas suffisant pour induire une dissolution totale des zones GPB. Par ailleurs, sur la Figure V. 21-b, la vitesse de germination est présentée. Les zones GPB ont une vitesse de germination négligeable mais la phase S commence à germer pour une température supérieure à 140 °C et atteint une vitesse importante au-delà de 200°C. Cependant, le temps de maintien à des températures élevées est

trop faible pour que la phase S se forme de façon significative, d'où son absence dans la présentation des évolutions des fractions de précipités dans la Figure V. 21.

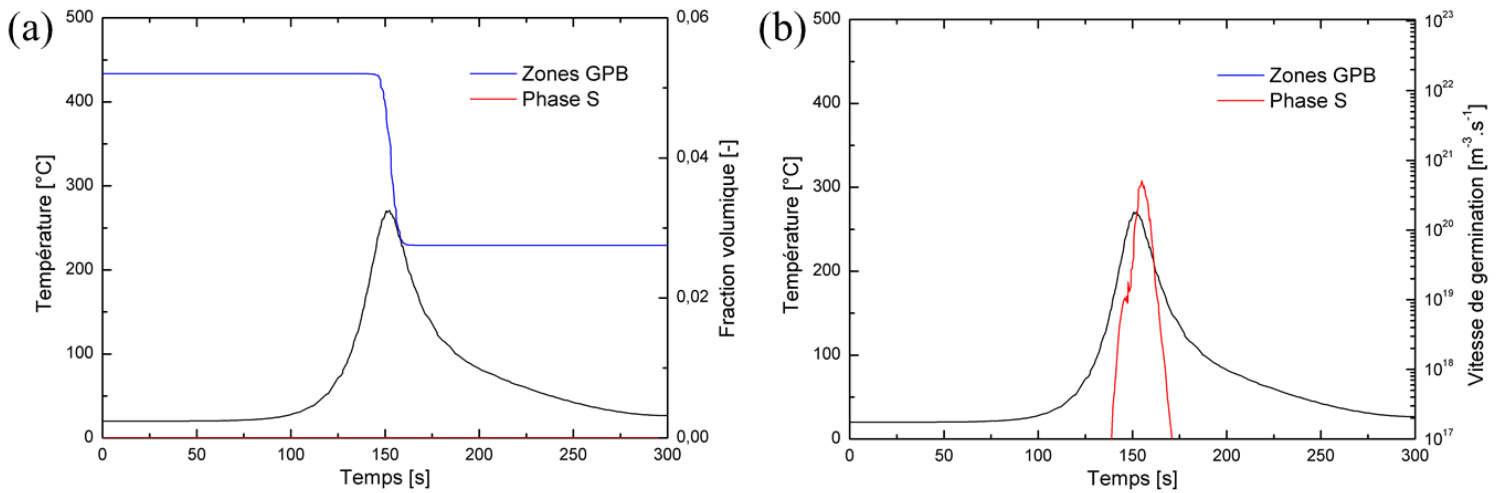


Figure V. 21 : Evolution de la fraction volumique (a) et de la vitesse de germination (b) dans la zone affectée thermiquement présentant un adoucissement pour une distance de 12 mm (RS) ($v= 1 \text{ mm.s}^{-1}$)

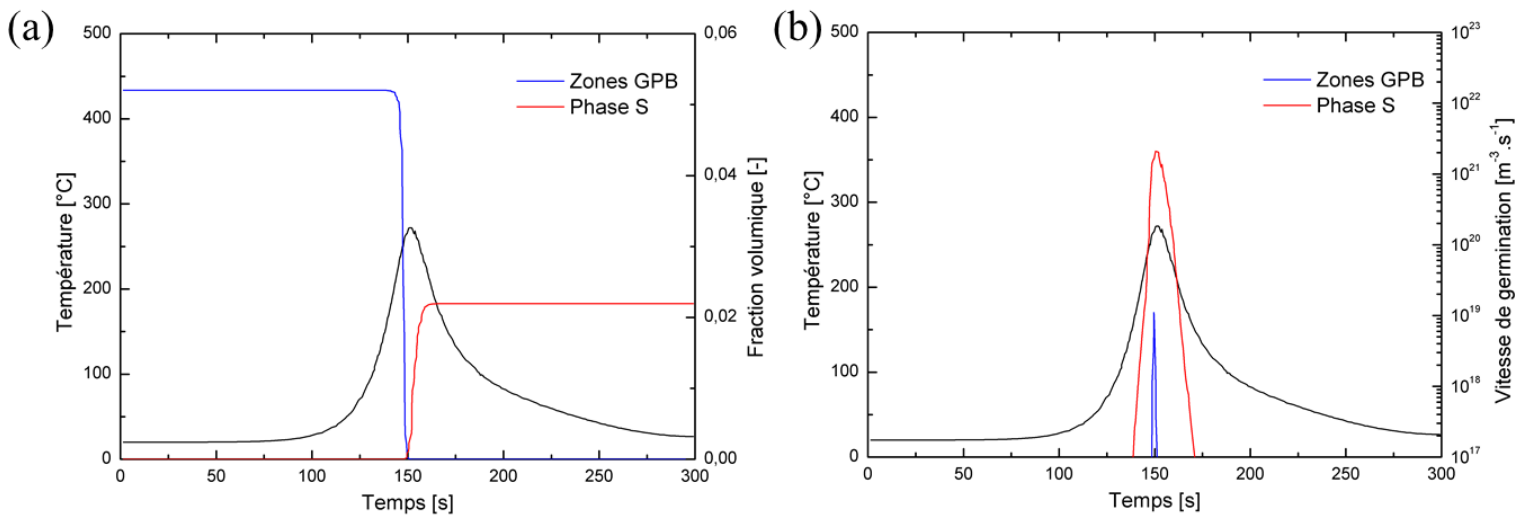


Figure V. 22 : Evolution de la fraction volumique (a) et de la vitesse de germination (b) dans la zone affectée thermiquement présentant un durcissement pour une distance de 9 mm (RS) ($v= 1 \text{ mm.s}^{-1}$)

Plus la distance à la zone soudée diminue, plus la température maximale atteinte augmente. Elle est de 273 °C pour un point placé à une distance de 9 mm du centre de la soudure (Figure V. 22). La dureté obtenue numériquement est de 156 HV soit une augmentation de 14 HV par rapport au métal de base. Les mêmes phénomènes que ceux décrits précédemment sont visibles. La dissolution des zones GPB intervient aux alentours de 200 °C et la vitesse de germination de la phase S augmente à partir de 140 °C (Figure V. 22-b). Néanmoins, l'obtention d'une température légèrement plus élevée va induire une dissolution totale des zones GPB qui deviennent alors inexistantes au-delà de 270 °C (Figure V. 22-a). La vitesse de germination de la phase S atteint également une valeur plus élevée que précédemment et induit une précipitation de la phase S en quantité suffisante pour avoir un impact sur la fraction volumique obtenue (Figure V. 22-a). De plus la croissance des

précipités de la phase S est fortement favorisée et augmente rapidement à partir de 240 °C jusqu'à se stabiliser à une valeur de 5 nm (Figure V. 23). Cette valeur n'était que de 0,9 nm pour le point étudié précédemment. Il apparaît donc qu'au-delà de 270 °C, la croissance des précipités de la phase S est extrêmement rapide et fortement favorisée. Il en est de même pour la germination de la phase S. Ces deux phénomènes combinés expliquent la formation de la phase S en quantité significative, induisant l'augmentation de dureté observée.

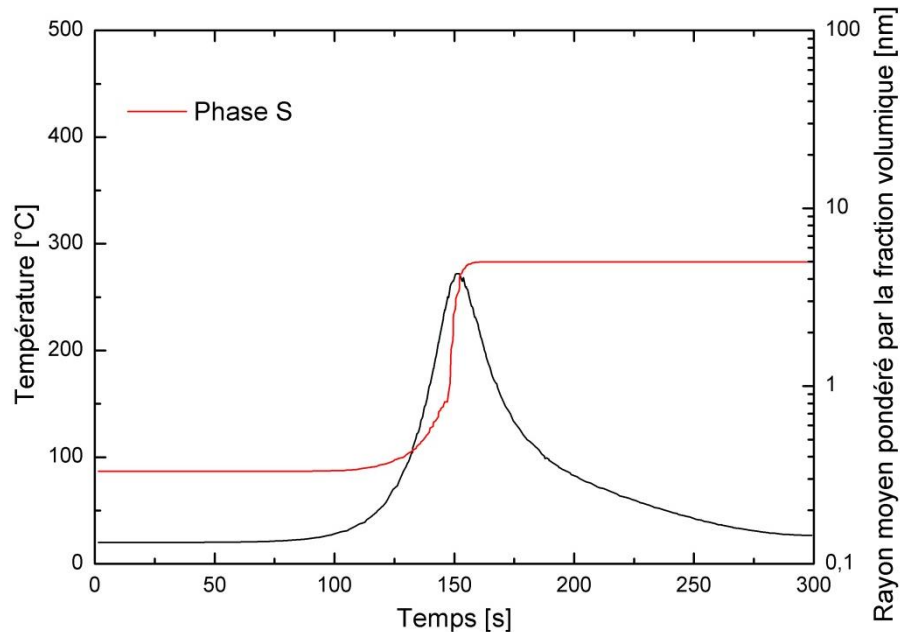


Figure V. 23 : Evolution du rayon moyen de la phase S dans la zone affectée thermiquement présentant un durcissement pour une distance de 9 mm (RS) ($v= 1 \text{ mm.s}^{-1}$)

Evolution de l'état de précipitation dans la zone affectée thermo-mécaniquement

Dans cette zone la dureté obtenue numériquement est très faible par rapport à la dureté mesurée. Ainsi, la dureté mesurée expérimentalement présente un minimum local de sa valeur, de même que la dureté simulée (Figure V. 18), à une distance de +/- 4 mm. Cette zone montre les plus faibles valeurs de dureté, mais également les plus grands écarts entre les valeurs de dureté, mais également les plus grands écarts entre les valeurs de dureté issues de l'expérience et celle provenant de la simulation

Expérimentalement, la phase S formée est associée à une précipitation grossière faisant chuter les propriétés mécaniques localement. De plus, une absence totale de zones GPB est observée même après un mois à maturation ambiante via des analyses DSC, ce qui explique aussi la faible dureté observée expérimentalement. Toutefois, Genevois [Gen04] observe une augmentation entre la dureté mesurée directement après soudure et la dureté mesurée après un mois. Cette augmentation de dureté est liée à la maturation ambiante. Elle est également observable dans nos observations (Figure V. 10) correspondant à des temps de mesure différents. Il faut noter également que la zone affectée thermo-mécaniquement a subi des déformations importantes qui se traduisent par la présence de grains écrouis et donc de densité

de dislocations plus importante que dans le métal de base, ce qui doit augmenter la dureté mesurée. Ainsi l'augmentation de dureté observée expérimentalement, par rapport aux simulations, peut être liée à cet écrouissage mais également à la présence d'une maturation à l'ambiante de précipité GPB, formés entre la fin du processus de soudage FSW, et le moment de la mesure expérimentale (~1 mois).

Numériquement, les zones GPB sont totalement dissoutes lors de la chauffe pendant le soudage et ne se forment pas par la suite (Figure V. 24-a). Leur vitesse de germination est négligeable (Figure V. 24-b). Deux étapes de germination bien distinctes de la phase S sont observées (Figure V. 24-b). La première se produit lors de la chauffe pour des températures comprises entre 260 °C et 320 °C. La seconde se produit au refroidissement. La fraction volumique de phase S augmente fortement au cours de la première phase de germination et diminue pour des températures supérieures à 320 °C. Elle augmente de nouveau du fait de la seconde germination. La dureté est fonction de la fraction volumique des précipités et de leur taille moyenne. Plus la tailles des précipités est élevées et plus la dureté va être affectée et le matériau adouci. Pour cette raison, il est nécessaire de s'intéresser à l'évolution du rayon moyen. Deux méthodes de calcul de cette valeur existe : une moyenne arithmétique et une moyenne pondérée par la fraction volumique.

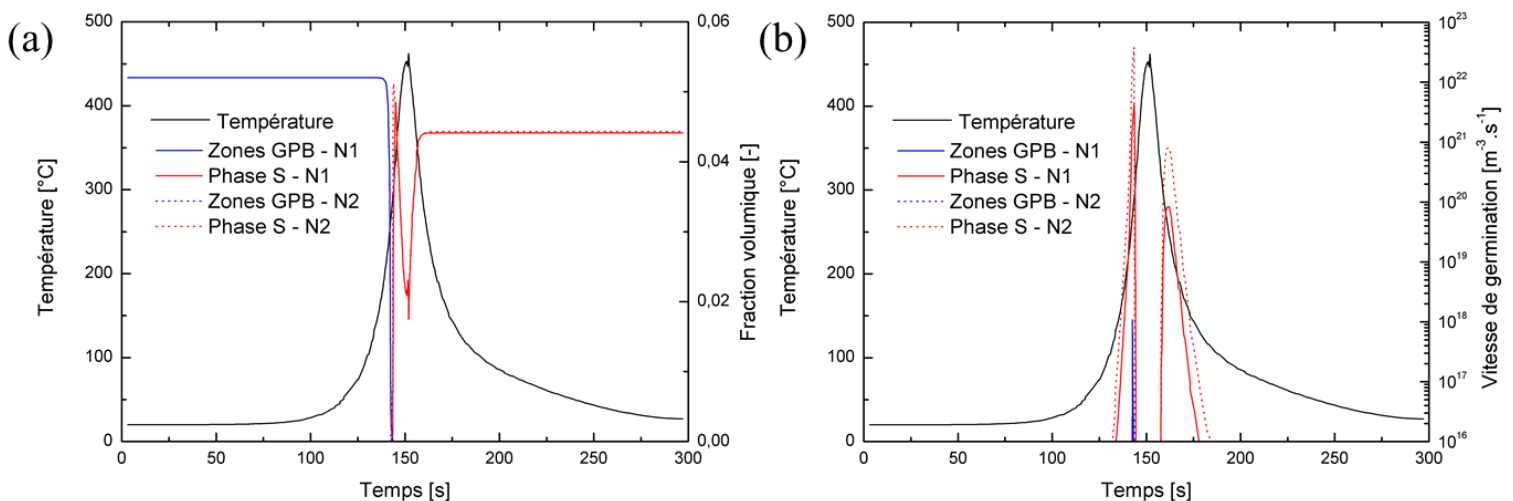


Figure V. 24 : Evolution de (a) la fraction volumique et (b) de la vitesse de germination dans la zone affectée thermo-mécaniquement lors d'une soudure FSW à 1 mm.s⁻¹ pour une distance de 3,8 mm (RS) (v= 1 mm.s⁻¹)

La première germination lors de la chauffe semble être fortement couplée à un phénomène de croissance et un rayon moyen de 6 nm est obtenu quel que soit la méthode de calcul du rayon moyen (Figure V. 25). Cependant lors de la phase de dissolution entrainant une diminution de la fraction volumique, il apparait que les petits précipités se dissolvent tandis que les plus gros continuent de croitre pour atteindre un rayon moyen de 48 nm. Lors du refroidissement un nouveau phénomène de germination se produit augmentant le nombre de germes de petites tailles d'où une diminution du rayon moyen arithmétique (Figure V. 25-b) mais la valeur du rayon moyen pondéré par la fraction volumique reste constant. Il peut être déduit de ces observations que la phase S formée est trop grossière et diminue de façon très importante la dureté du matériau. Pour limiter la croissance des précipités et retrouver des

duretés comparables aux observations expérimentales, il peut être judicieux d'augmenter le nombre de sites de germination qui permettrait de rendre compte de la densité plus importante de dislocation dans cette zone de la soudure. Augmenter cette valeur devrait permettre de favoriser la germination au dépend de la croissance

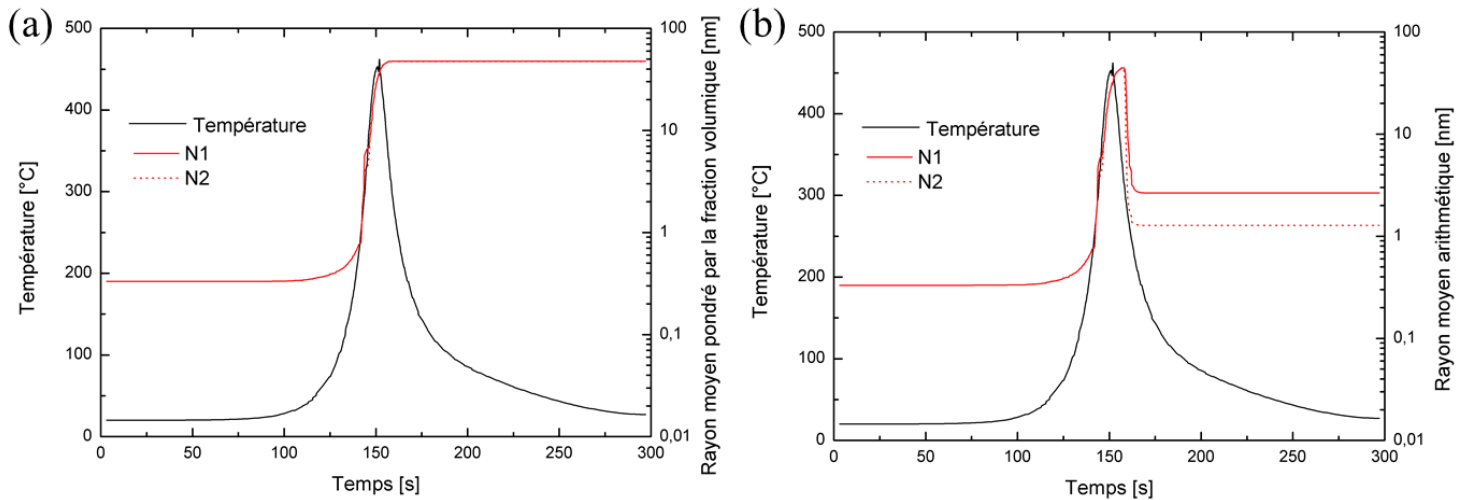


Figure V. 25 : Evolution du rayon moyen (a) pondéré par la fraction volumique (b) arithmétique pour la phase S dans la zone affectée thermo-mécaniquement lors d'une soudure FSW à 1 mm.s^{-1} pour une distance de 3,8 mm (RS) ($v= 1 \text{ mm.s}^{-1}$)

Une étude a ainsi été menée pour deux valeurs de densité initiale de site de germination pour la phase S différente. La première densité (N1) à une valeur de 5.10^{23} m^{-3} et donne une dureté de 95HV et la seconde (N2) a une valeur de 5.10^{24} m^{-3} et donne une dureté de 95,15 HV. L'écart de dureté est peu significatif mais l'évolution de la dureté va dans le sens souhaité. Sur la Figure V. 24-b, la vitesse de germination de la phase S pour une densité N2 est plus importante autant lors de la chauffe que du refroidissement. Toutefois la fraction volumique ne semble pas affectée par le changement de ce paramètre (Figure V. 24-a). Sur la Figure V. 25, les évolutions des rayons moyens pour les deux valeurs de densité sont comparées. L'évolution des rayons moyens est similaire lors de la première germination. Toutefois, lors de la phase de dissolution des précipités, le rayon moyen augmente plus fortement dans le cas d'une densité faible N1. Cependant, ce phénomène est très limité dans le temps, aux alentours de 140 secondes et très peu marqué. Le rayon moyen à la fin du régime de chauffe est identique quel que soit la densité initiale. Lors du refroidissement, une seconde phase de germination se produit et le rayon moyen arithmétique chute fortement (Figure V. 25-b) tandis que le rayon pondéré par la fraction volumique reste constant. La très faible évolution de la dureté entre ces deux simulations montre l'importance très forte de la précipitation grossière de la phase S sur les propriétés mécaniques résultantes. L'étalement de la distribution du fait de la discrétisation en taille de classe peut induire des erreurs sur le rayon volumique en le surestimant et ainsi faussé les résultats, de même que les problématiques liées à la diffusion des densités de précipités entre classes. L'utilisation d'une approche Lagrangienne pourrait être envisagée pour enlever les doutes liés à la discrétisation eulérienne.

Evolution de la précipitation dans le noyau

La dureté obtenue numériquement dans le noyau est sous-estimée par rapport à celle mesurée expérimentalement.

Dans le noyau, la phase S a pu précipiter et les zones GPB se sont formées via la maturation à température ambiante. Néanmoins ce phénomène n'est pas retranscrit ici. Hersent [Her10] estime à 20 HV l'écart entre la dureté obtenue immédiatement après soudage et celle obtenue 1 mois après soudage. Il faut noter que cet écart est plus large que celui mesuré dans la ZATM. Il a été observé que la fraction relative de phase S formée dans la simulation est supérieure à celle mesurée expérimentalement et il est nécessaire de comprendre comment agir pour limiter sa formation afin de permettre aux zones GPB de se former via maturation à l'ambiante, en raison de l'augmentation de la composition moyenne de la matrice. Il est ainsi important de noter que le phénomène de recristallisation a lieu dans le noyau induisant une diminution de taille moyenne des grains. Leur diamètre moyen est de 26 μm dans le métal de base alors qu'il n'est que de 2 μm dans le noyau, comme indiqué précédemment dans la partie V.I suite aux observations expérimentales en EBSD. Comme précédemment, la température atteinte dans le noyau est très importante et ainsi les zones GPB sont dissoutes lors de la chauffe. Aucune germination de ces zones n'apparaît lors du refroidissement (Figure V. 26), comme attendu. Les valeurs utilisées pour N1, N2 et N3 sont présentées dans le Tableau V. 1.

La phase S présente deux étapes de germination : une lors de la chauffe et l'autre lors du refroidissement, comme cela avait été observé dans la ZATM. Suite à la première germination se traduisant par une augmentation forte de la fraction volumique de phase S, une dissolution intervient. Toutefois le rayon moyen augmente et se comporte de la même manière que les évolutions observées dans la ZATM. La seconde étape de germination se traduit par une augmentation de la densité de précipités dans le matériau et donc par une diminution du rayon moyen arithmétique. Le rayon moyen pondéré par la fraction volumique reste constant comme dans la ZATM.

Dans cette zone du noyau, la quantité de phase S est surestimée. Un moyen pour limiter le phénomène de précipitation de la phase S est de limiter sa germination, ce qui apparaît justifié. En effet, dans le noyau, le phénomène de recristallisation se produit, c'est-à-dire que les dislocations s'organisent pour former de nouveaux grains de taille plus petite. Du fait de la disparition des dislocations, la densité de site de germination s'avère avoir potentiellement décru. Ainsi une étude a été menée avec trois valeurs de densités de sites de germination différentes : N1, N2 et N3. Les valeurs choisies pour cette densité ainsi que la dureté finale sont répertoriées dans le Tableau V. 1 et les résultats obtenus lors de la simulation du procédé FSW sont présentés sur la Figure V. 26 et la Figure V. 27.

Plus la valeur de cette densité est faible et plus la fraction volumique finale formée est faible. Cette fraction volumique peut même être considérée comme inexistante pour une

valeur très faible de densité. Elle est légèrement inférieure dans le cas d'un nombre proche (N2) de celui de référence (N1). En effet, il apparait que le rayon moyen pondéré par la fraction volumique expliquant l'adoucissement du matériau est identique dans les deux cas (Figure V. 27). La fraction volumique atteinte étant plus faible, la valeur de dureté chute. Cette valeur doit être compensée par la formation des zones GPB via maturation à l'ambiante. Dans le cas d'une valeur faible, la dureté obtenue est plus élevée voire proche des valeurs souhaitées. La précipitation y est très fine et quelques zones GPB ont même pu se former lors du refroidissement.

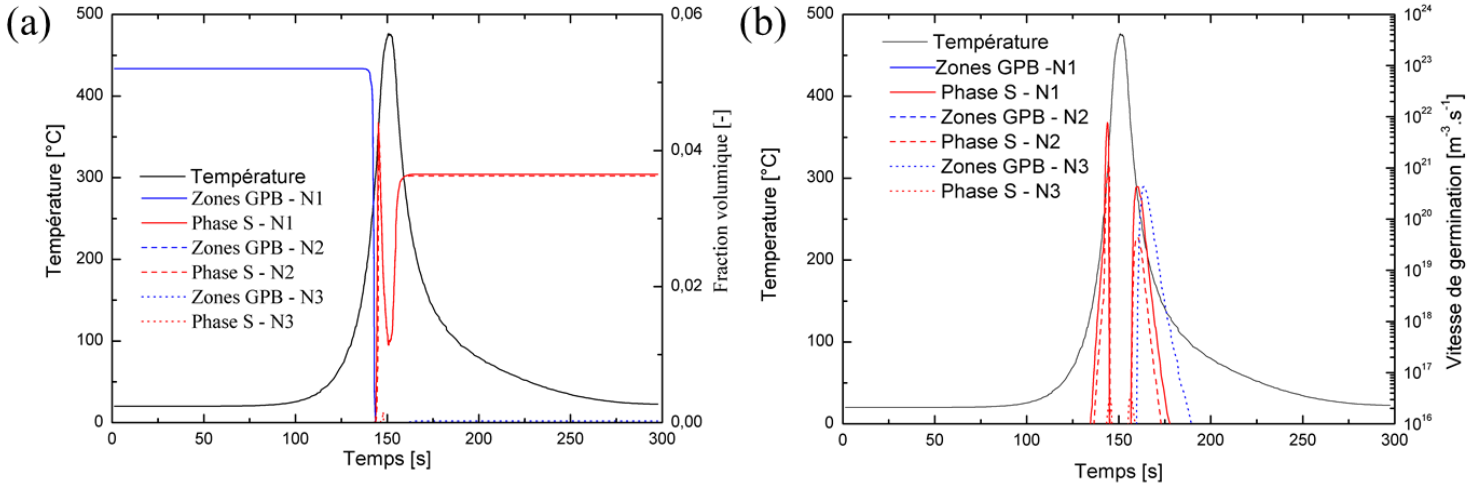


Figure V. 26 : Evolution de (a) la fraction volumique et (b) de la vitesse de germination dans le noyau lors d'une soudure FSW à 1 mm.s⁻¹ pour une distance de 1 mm (RS) (v = 1 mm.s⁻¹)

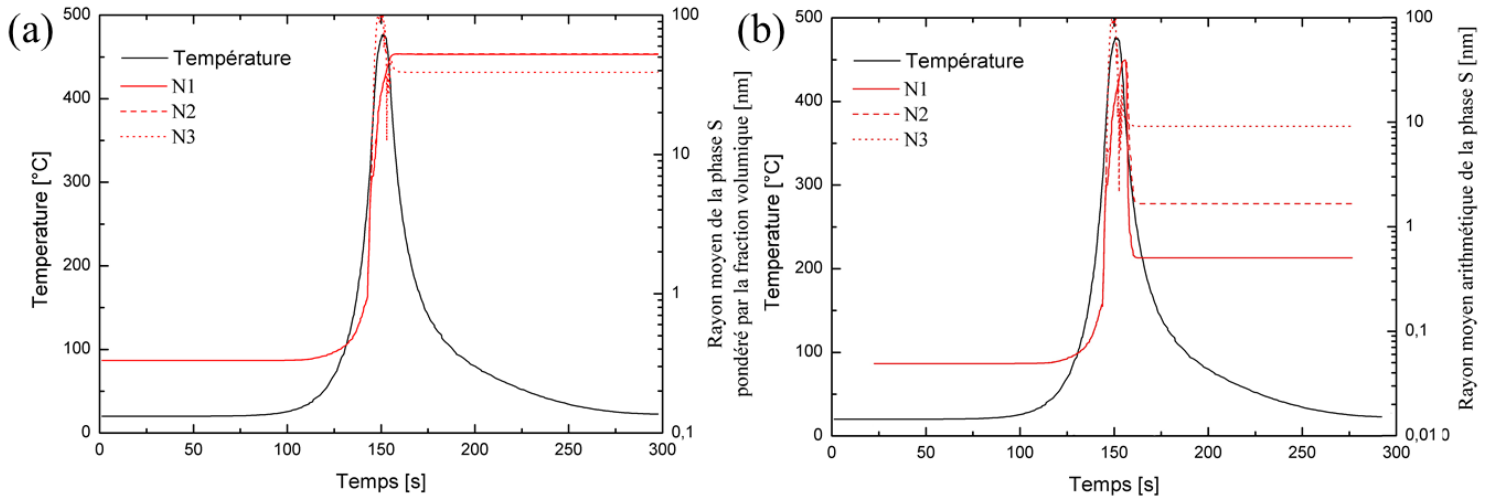


Figure V. 27 Evolution du rayon moyen (a) pondéré par la fraction volumique (b) arithmétique dans le noyau lors d'une soudure FSW à 1 mm.s⁻¹ pour une distance de 1 mm (RS) (v = 1 mm.s⁻¹)

	N1	N2	N3
Densité de sites de germination [m ⁻³]	5.10 ²³	5.10 ²²	1.10 ¹⁸
Dureté Vickers [HV -200g]	100,069	98,72	123,863

Tableau V. 1 : Données d'entrée de l'étude de l'influence de la densité de sites de germination sur la précipitation lors du procédé FSW.

Une autre explication de l'écart entre la dureté observée et la dureté simulée peut provenir de l'impact de la taille des diamètres moyens des grains sur la dureté. Plus cette valeur est petite et plus elle est susceptible de durcir le matériau. Il apparaît ainsi, suivant la loi d'Hall-Petch dont la formule utilisée par Sato[Sat01] est présentée sur la Figure V. 28 que cette valeur peut être augmentée de 10 HV (Figure V. 28).

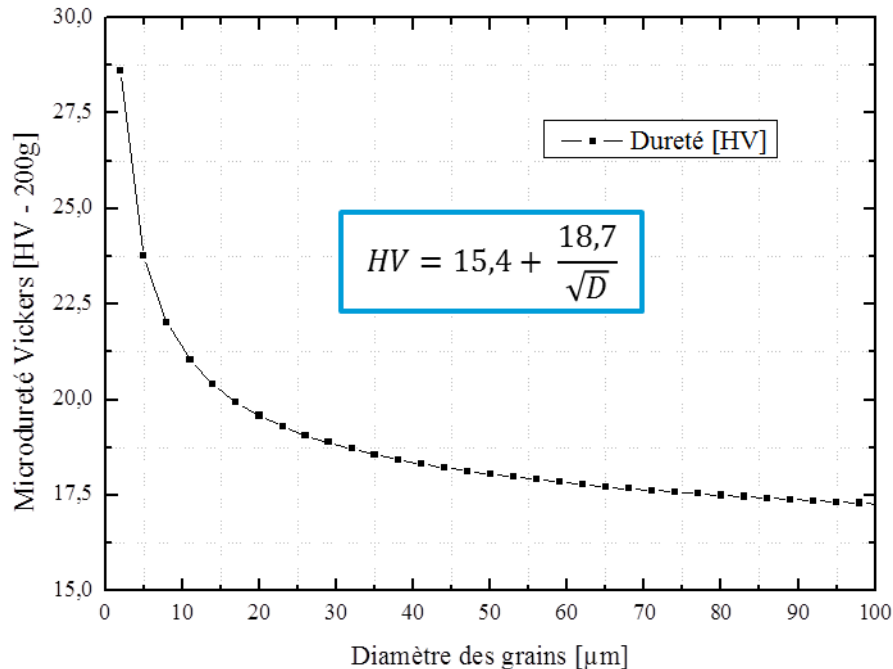


Figure V. 28 : Evolution de la dureté selon la loi d'Hall-Petch en fonction du diamètre des grains.

3.2. Influence de la vitesse de soudage

Les analyses développées précédemment correspondaient, comme indiqué, à un dépouillement d'un essai de soudage FSW réalisé pour une vitesse de soudage de 1 mm.s^{-1} et aux comparaisons avec les simulations menées dans la même situation. Cependant, expérimentalement, l'influence de la vitesse d'avance sur l'évolution de dureté, et son inhomogénéité, dans le cordon de soudure apparaît marquée. Il est donc intéressant de regarder si la simulation numérique permet de retrouver ces phénomènes et de retranscrire les tendances observées expérimentalement. La comparaison entre données expérimentales et données numériques est présentée sur la Figure V. 29.

L'adoucissement présent dans la ZAT se produit à une même distance de l'axe de soudage quel que soit les valeurs des vitesses d'avance dans la simulation numérique ce qui est contraire aux observations expérimentales. Il en est de même pour le maximum de dureté. La chute de dureté intervient également à la même distance de l'axe de soudage pour la simulation numérique ce qui n'était pas le cas dans les mesures expérimentales notamment pour entre les vitesses d'avance de 1 mm.s^{-1} et 4 mm.s^{-1} . L'observation de la localisation des zones à une même distance de l'axe de soudage numériquement pourrait être dû à une

homogénéité des températures obtenues dans le cordon de soudure et présentés sur la Figure V. 16

Cependant, la valeur de dureté dans le noyau semble augmenter avec l'augmentation de la vitesse d'avance et de ce fait suivre les évolutions attendues. Cette évolution correspond à retrouver progressivement, pour des vitesses d'avance plus importante, une dureté plus homogène dans le cordon, qui remonte à des valeurs proches du métal de base. Introduire dans les simulations la formation par maturation ambiante des zones GPB devrait permettre d'améliorer la prédiction de la dureté dans le noyau.

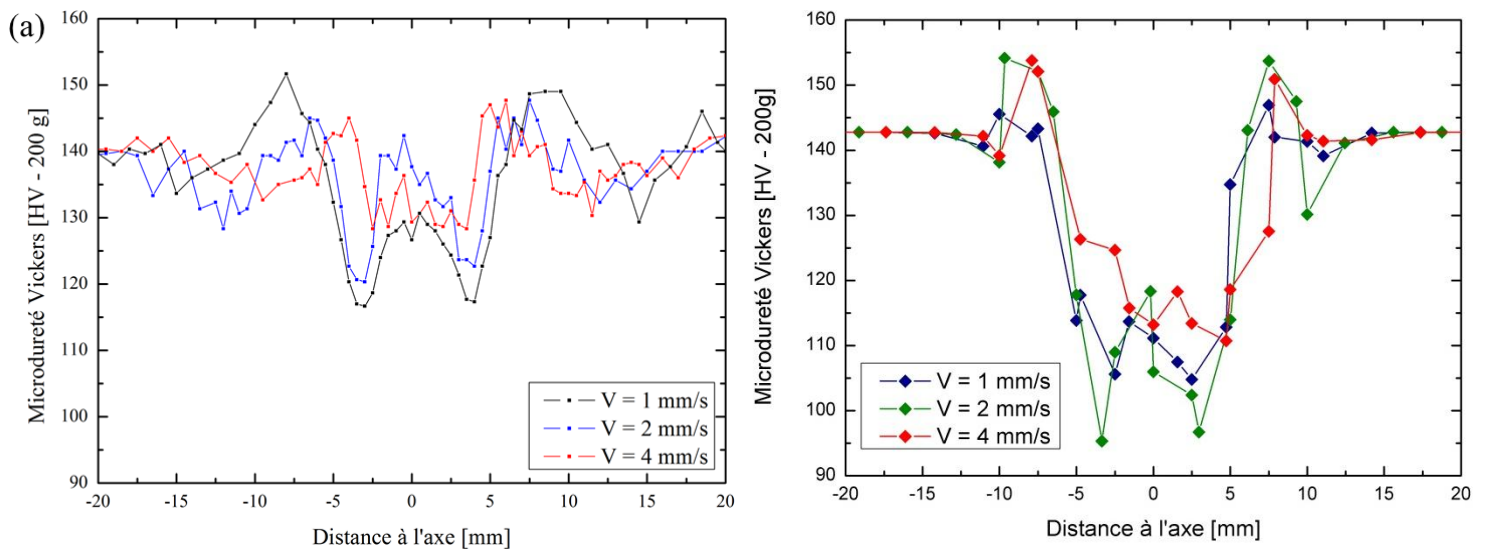


Figure V. 29 : Evolution de la dureté (a) mesurée (b) simulée pour l'ensemble des trois vitesses d'avance de 1 mm.s^{-1} , 2 mm.s^{-1} et 4 mm.s^{-1}

3.3. Discussions et perspectives

Plusieurs phénomènes apparaissent au cours du procédé FSW et les phénomènes sont très sensibles aux choix des paramètres d'entrées guidant les processus de germination/croissance des précipités ou aux évolutions thermiques subies localement par le matériau. Dans le cas de la ZAT, une différence d'histoire thermique légère induit le passage d'un phénomène d'adoucissement à un durcissement. Le phénomène de déformation à chaud induisant la présence de dislocation dans la ZATM (augmentation de la densité de site de germination) et la recristallisation dans le noyau (diminution de la densité de site de germination) peut être reproduit via l'ajustement de la valeur de ce paramètre. Néanmoins, il pourrait apparaître judicieux de définir une loi liant ces deux valeurs afin de corréliser au mieux les deux paramètres.

Le code microscopique développé permet de modéliser correctement les évolutions des différentes phases précipitantes présentes dans le cordon de soudure et de retrouver une tendance correcte sur les évolutions de duretés en fonction de la vitesse d'avance. De même, les évolutions de dureté dans le cordon et le profil général attendu des expériences sont bien retrouvés dans les simulations. Néanmoins, la localisation des différentes zones s'avèrent relativement imprécises, notamment lorsque les paramètres procédés (vitesse d'avance) sont modifiés par rapport au cas de référence.

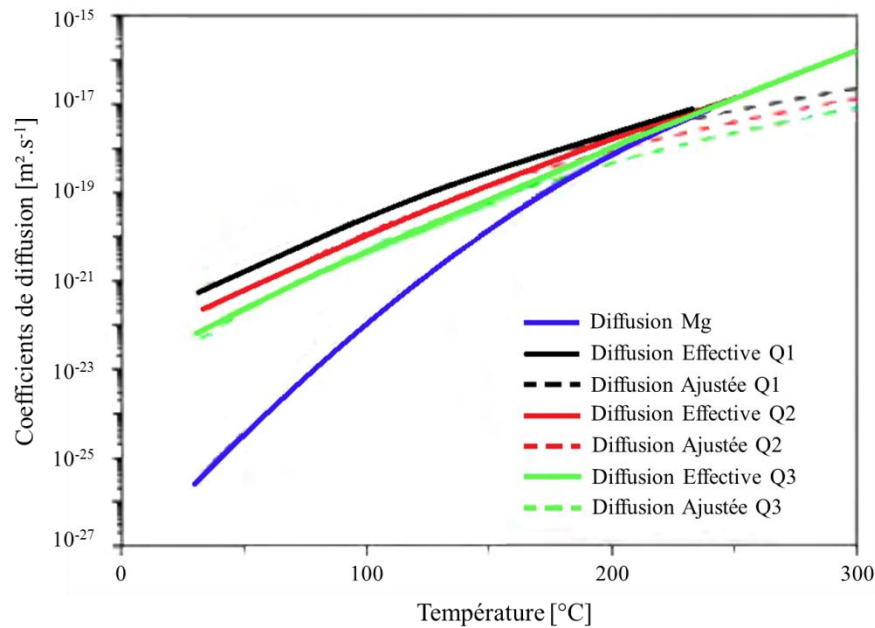


Figure V. 30 : Evolution de la diffusion en fonction de la température pour différente vitesse de refroidissement (Q1 = $-25\text{ }^{\circ}\text{C}\cdot\text{s}^{-1}$, Q2 = $-15\text{ }^{\circ}\text{C}\cdot\text{s}^{-1}$ et Q3 = $-8\text{ }^{\circ}\text{C}\cdot\text{s}^{-1}$) [Sch15]

La formation des zones GPB lors de la maturation à l'ambiante s'avère une donnée importante pour s'assurer qu'aucune différence ne persiste entre les données expérimentales et numériques. Néanmoins, il apparaît impossible de modéliser ce phénomène avec les paramètres définis dans cette étude. Les zones GPB ne se forment pas même pour des simulations sur des temps très longs (1 an). Les évolutions thermiques subies par le matériau sont très rapides et il est probable que le refroidissement influence la valeur des coefficients de diffusion. Schloth [Sch15] prouve que la vitesse de refroidissement ou trempe a une influence non négligeable sur les coefficients de diffusion dans le matériau. Sur la Figure V. 30, l'évolution du coefficient de diffusion du magnésium en fonction de la température est présentée. La diffusion classique du magnésium correspond à la courbe bleue. Pour une température inférieure à $250\text{ }^{\circ}\text{C}$, la diffusion effective devient supérieure à la diffusion classique (courbe verte, rouge et noire). Pour la vitesse de refroidissement la plus rapide, de l'ordre de $25\text{ }^{\circ}\text{C}\cdot\text{s}^{-1}$, l'impact sur la valeur de ce coefficient pour une température proche de l'ambiante est d'un ordre de grandeur de 4. Ainsi, plus la vitesse de trempe est rapide, plus le coefficient de diffusion va être augmenté. Ce phénomène s'expliquerait par la formation plus importante de lacunes lors du refroidissement induisant une augmentation du nombre de lacunes stockées. Les lacunes se forment pour des valeurs proches du solidus [Sch15] et serait donc susceptible de se former dans le noyau et la ZATM. L'augmentation

des coefficients de diffusion favoriserait la germination et la croissance des zones GPB. Ainsi la simulation des évolutions de dureté des différentes zones dans le cordon de soudure serait améliorée.

Un calcul supplémentaire a été mené dans le noyau et la ZATM pour une soudure effectuée avec une vitesse d'avance de 1 mm.s^{-1} . Dans un premier temps, le soudage a été modélisé en utilisant les paramètres calibrés dans le Chapitre IV. Ensuite, un traitement de maturation a été effectué en augmentant d'un ordre de grandeur 2 les coefficients de diffusion de tous les éléments d'alliage considérés. Les nouveaux coefficients sont présentés dans le Tableau V. 2. De plus, l'angle de mouillage a été diminué par rapport aux données calibrées dans le Chapitre IV afin de favoriser la germination. Sa valeur est prise égale à 5° au lieu de 30° . Ce paramètre a une influence négligeable dans le cas de la simulation en DSC (Figure IV.14) puisque les zones GPB se dissolvent et la valeur précédemment choisie correspondait à une valeur par défaut.

	$D_{0,i}[\text{m}^2.\text{s}^{-1}]$	$Q_{0,i} [\text{J.mol}^{-1}]$
Cu	$4,69.10^{-3}$	134146
Fe	9,65	165147
Mg	$1,99.10^{-3}$	120069
Mn	$1,41.10^{-5}$	126015

Tableau V. 2 : Coefficients de diffusion utilisés pour un traitement de maturation à l'ambiante

Les résultats obtenus pour la simulation d'un traitement de maturation à l'ambiante de 10 jours sont présentés sur la Figure V. 31 et la Figure V. 32. La première montre l'évolution du profil de dureté mesuré deux mois après soudure et simulé immédiatement après soudage et 10 jours après soudage. La dureté simulé augmente avec le traitement de maturation à l'ambiante dans le noyau et dans la ZATM. Les données obtenues sont ainsi plus proches de la courbe expérimentale. L'évolution de la dureté apparaît fortement liée à l'augmentation de la fraction relative de zones GPB dans le noyau et dans la ZATM (Figure V. 32), les zones GPB étant inexistantes dans ces deux zones. Il apparaît nécessaire de prendre en compte l'évolution des lacunes dans le matériau dans le cas d'un soudage FSW. En effet, leur présence peut impacter les coefficients de diffusion. Un modèle est proposé par Schloth [Sch15] afin de lier vitesse de refroidissement, formation des lacunes et impact sur les coefficients de diffusion. Néanmoins, l'utilisation de ce type de simulation requiert une calibration fine et risque d'impacter les phénomènes observés au cours du refroidissement en FSW.

Par ailleurs, l'algorithme microscopique se base sur une approche eulérienne et de fait est caractérisé par un étalement de la distribution. Ce phénomène peut fausser les rayons moyens obtenus pondérés par la fraction volumique, qui guident directement les valeurs de dureté finale. Pour limiter ce phénomène, les pas de temps utilisés ont été choisis très faibles, mais ne permettent pas d'ignorer le phénomène, en le supprimant, comme cela a été montré dans les chapitres précédant. Ainsi, il semble nécessaire de développer un code via une approche lagrangienne tel que celui développé par Rougier [Rou13] afin de supprimer ce phénomène.

Les valeurs de rayons obtenus ne seraient alors plus influencées par un étalement de la distribution mais uniquement dépendant de la seule croissance des précipités.

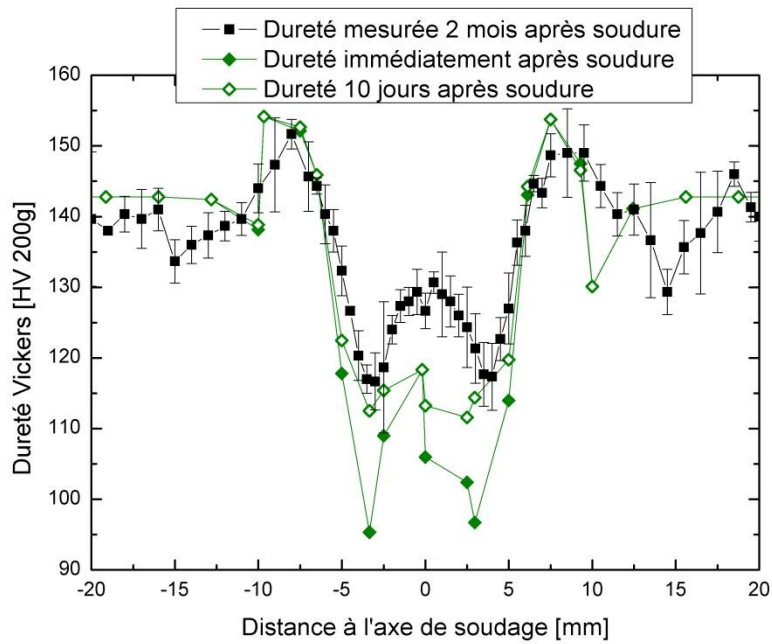


Figure V. 31 : Profil de dureté mesurée 2 mois après soudure (noir), simulée immédiatement après soudure (point vert) et après soudure et maturation de 10 jours (point entouré de vert) ($v = 1 \text{ mm.s}^{-1}$)

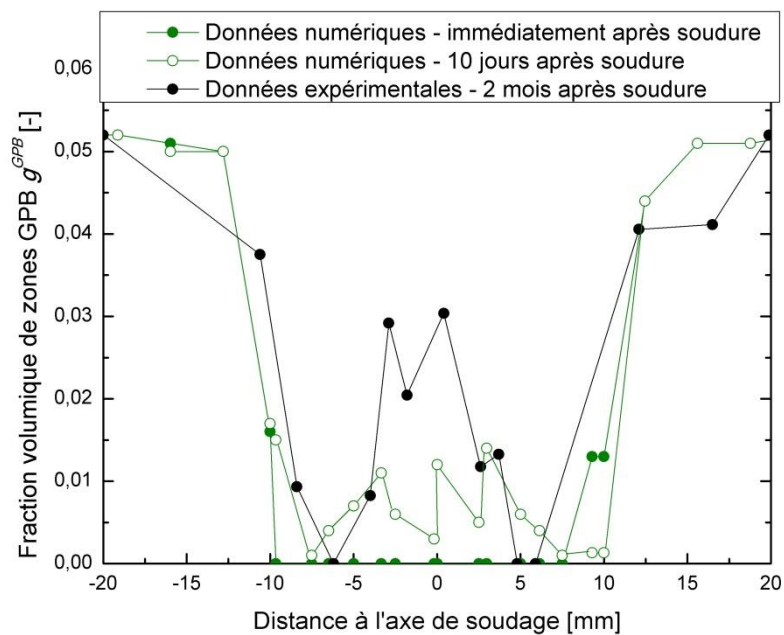


Figure V. 32 : Fraction relative de zones GPB mesurée en noir et simulée en vert dans le cordon de soudure en fonction de la distance à l'axe de soudage ayant subi une maturation de 10 jours ($v = 1 \text{ mm.s}^{-1}$)

Le soudage par friction-malaxage est un procédé complexe induisant des déformations et des échauffements importants au sein du matériau soudé. La complexité de ces déformations a été étudiée et présentée dans le travail de Gastebois [Gas15]. Toutefois, ces effets macroscopiques sont à l'origine d'une forte évolution des propriétés microstructurales. Dans cette étude, le matériau est un alliage d'aluminium riche en cuivre et magnésium (AA2024) tirant ses propriétés du phénomène de durcissement structural. L'objectif est ici de mettre en place un modèle numérique permettant la prédiction des évolutions microstructurales afin de connaître les propriétés mécaniques finales du cordon de soudure.

Dans le cas des alliages d'aluminium à durcissement structural, les propriétés mécaniques dépendent fortement de l'état de précipitation. Lors du processus FSW, les phénomènes de germination, croissance et murissement d'Ostwald sont observés. Le modèle de classe choisi permet de simuler de manière fiable et suffisamment rapidement, afin d'être applicable au procédé FSW, toutes ses évolutions. Il est couplé au logiciel de données thermodynamiques Thermocalc. La simulation développée a été utilisée et étudiée pour un alliage AA2024 en tenant compte de la présence de 4 éléments d'addition (cuivre, magnésium, manganèse et fer) et de 2 phases précipitantes de nature différente : les phases S et zones GPB.

Validation du modèle numérique de précipitation

La vitesse de germination suit la loi classique de germination et est calculée suivant une approximation de solution idéale. Si la cinétique de dissolution des précipités est calculée systématiquement selon l'approximation de Laplace, une étude sur l'apport de la solution d'Aaron étendue aux alliages multi-composés, comparativement à l'approximation de Laplace, a été menée dans le cas des cinétiques de croissance. Il apparaît ainsi que la solution d'Aaron est plus précise et permet une meilleure simulation des phénomènes. L'approximation de Laplace a tendance à sous-estimer les vitesses pour des sursaturations élevées. Ces écarts sont observables du fait du choix de l'alliage multi-composés et notamment de la prise en compte du fer et du manganèse. Ces éléments ont des coefficients de diffusion plus faibles que le cuivre ou le magnésium et vont contrôler les cinétiques de germination et de croissance. Dans le cas de ces deux derniers éléments, la sursaturation a tendance à être supérieure à la limite d'utilisation de l'approximation de Laplace (0,7) induisant une sous-estimation des vitesses de croissance.

Le modèle de classe utilisé se base sur une description eulérienne de la distribution en taille de particule et permet de simuler finement le phénomène de murissement d'Ostwald (la disparition des précipités de petites tailles au profit des précipités plus gros). De plus, ce type de discrétisation permet également de décrire plus finement l'évolution des propriétés mécaniques qui sont fonction de la taille des précipités. En effet, plus ils sont petits et plus

leur caractère durcissant est fort du fait de leur cisaillement. Plus leur taille est grossière, plus ils vont adoucir le matériau : ce phénomène est lié au changement du mode de franchissement du précipité par les dislocations. Ils sont alors contournés. Afin de définir les propriétés mécaniques, un modèle empirique a été utilisé. La simulation développée permet également de déterminer les flux de chaleur liés aux transformations de phases afin de reproduire un essai DSC. Ce type d'essai permet de mettre en évidence autant les transformations endothermiques (dissolution) qu'exothermiques (précipitation).

Des traitements thermiques simples de chauffe en DSC (10 °C.min^{-1} et 300 °C.min^{-1}) ont été choisis afin de développer une calibration, en comparant l'intensité des signaux expérimentaux et simulés. Ce type d'essai a permis d'aboutir à une première calibration des données matériaux propre à la germination, à la croissance et au murissement d'Ostwald des précipités. De plus, l'utilisation de la DSC à compensation de puissance a permis la réalisation d'essais thermiques plus complexes avec un maintien isotherme à 190 °C , une trempe (-300 °C.min^{-1}) et une chauffe à 10 °C.min^{-1} . Les résultats obtenus en simulation se comparent bien avec ceux obtenus expérimentalement. La simulation de la précipitation selon la solution d'Aaron apparaît être robuste et bien adaptée pour des traitements anisothermes. Les paramètres mécaniques ont été définis connaissant l'évolution de l'état de précipitation précédemment calibré en comparant les simulations avec avec l'évolution de la dureté mesurée expérimentalement lors d'un traitement isotherme à 190 °C .

Application à une soudure FSW

Les évolutions microscopiques et mécaniques des soudures effectuées à l'Institut Maupertuis ont été déterminées à l'aide d'essais DSC, de traction et de dureté. Ils ont permis d'établir le lien entre les propriétés microstructurales et mécaniques. Dans un cordon de soudure FSW, trois zones sont distinguables : la zone affectée thermiquement (ZAT), la zone affectée thermo-mécaniquement (ZATM) et le noyau. Dans la ZAT, la dissolution des zones GPB est responsable de l'adoucissement du matériau. En se rapprochant du centre de la soudure, la dureté augmente. Ce phénomène est lié à la formation d'une phase S durcissante supposée de taille fine dans cette étude. A l'inverse, la ZATM constitue le minimum de dureté du cordon de soudure. Ceci est lié à la présence d'une phase S supposée grossière. De plus, les grains sont fortement écrouis. Enfin dans le noyau, les zones GPB et la phase S sont présentes. Les grains ont été totalement recristallisés.

Ayant établi expérimentalement le lien entre propriétés microstructurales et mécaniques, la simulation numérique a été effectuée pour une soudure réalisée avec une vitesse de 1 mm.s^{-1} et les données ont été comparées aux résultats expérimentaux afin de valider l'utilisation des modèles macroscopique et microscopique. En différents points du cordon de soudure, les histoires thermiques ont été déduites du modèle macroscopique développé par Gastebois [Gas15]. Ces évolutions thermiques ont servi de données d'entrée dans le modèle microscopique. Les évolutions durant le procédé FSW ont été analysées dans les trois zones distinctes du cordon de soudure (ZAT, ZATM, noyau). L'impact de l'augmentation de la

densité de dislocations dans la ZATM a été étudié en estimant que ce phénomène induisait une augmentation de la densité de sites de germination. Cependant, il apparaît être négligeable dans le cas du FSW. Il en est de même dans le noyau : la recristallisation n'influence pas l'état de précipitation si ce phénomène est estimé via une diminution de la densité de sites de germination. Les évolutions tant microstructurales que mécaniques sont bien retrouvées : le profil de dureté en W caractéristique du cordon de soudure est bien observé. Toutefois, dans le noyau, la dureté simulée est sous-estimée par rapport à celle mesurée expérimentalement. Ceci est lié à l'absence totale de zones GPB dans la simulation. Dans la littérature, ces zones sont supposées se formées par vieillissement à température ambiante et il n'est donc pas surprenant qu'immédiatement après soudure ces zones soient absentes dans le matériau. Pour estimer au mieux la dureté finale du matériau 10 jours après le traitement, un essai de vieillissement à température ambiante a été simulé en supposant une formation de lacunes pour des températures proches du solidus qui induirait une augmentation des coefficients de diffusion du fait de leur présence. La formation des zones GPB n'était initialement pas observable par vieillissement à température ambiante avec les données prises pour la calibration précédemment utilisée. Seule une augmentation des coefficients de diffusion a permis leur formation. Le profil de dureté finalement obtenu via la simulation après traitement de vieillissement à température ambiante tend à se rapprocher de celui mesuré deux mois après la soudure.

L'application du code macroscopique et microscopique à différentes vitesses de soudage a mis en évidence l'importance d'une bonne description de la thermique dans le procédé FSW. En effet, l'étendue des différentes zones caractéristiques du cordon de soudure s'avèrent être indépendante de la vitesse dans le cas de la simulation. Toutefois, l'augmentation de la dureté dans le noyau lorsque la vitesse d'avance est augmentée est bien retrouvée.

Perspectives

Modèle numérique

D'un point de vue purement numérique, il pourrait être intéressant d'utiliser un **schéma Lagrangien** afin de limiter le phénomène de diffusion numérique présent dans le cas d'un schéma Eulérien. Même si nous avons montré que des valeurs appropriées de vitesse d'avance en fonction du pas de rayon permettent de limiter ce phénomène dans un schéma Eulérien, la distribution serait plus précise d'où une influence des précipités de grandes tailles plus faibles sur les propriétés mécaniques. L'utilisation de ce type de discrétisation a été présentée dans la thèse de Rougier [Rou13]. Le couplage avec le logiciel de données thermodynamiques Thermocalc est coûteux en temps de calcul et il pourrait être intéressant de mettre en place des méthodes numériques afin de gagner en temps de calcul.

D'un point de vue physique, la simulation de la précipitation regroupe les étapes de germination, croissance et dissolution. Suite à cette étude, des améliorations peuvent être

envisagées. Dans un premier temps, un couplage plus complet avec le logiciel de données thermodynamiques Thermocalc pourrait être effectué afin d'avoir une meilleure estimation de la force motrice de germination en évitant l'hypothèse de solution idéale. Dans un second temps, le **phénomène de diffusion croisée** ne peut être négligé. Il apparaît souhaitable d'introduire une description numérique de ce phénomène physique. Des modèles numériques présentant ce type d'avancée existent dans la littérature [Che08, Rou13, Gui15]. Ce phénomène pourrait en effet avoir un impact non négligeable sur la cinétique de croissance du précipité. Ce type de description n'a pu être mis en place dans le cadre de cette étude. L'un des problèmes constatés provient des valeurs des données thermodynamiques Thermocalc pour le calcul des coefficients de diffusion. En effet, pour des températures basses, c'est-à-dire inférieure à 200 °C, des valeurs par défauts sont retournées dans le cas du manganèse et du fer, fournissant une matrice de diffusion erronée. ADans cette étude, le phénomène de **dissolution** calculé d'après l'approximation de Laplace pourrait également être trop brutal et il serait sûrement souhaitable d'utiliser un modèle plus précis tel que celui développé par Rougier prenant également en compte le phénomène de diffusion croisée [Rou13].

Dans le cas du procédé FSW, le refroidissement rapide qui suit les températures élevées atteintes dans le noyau et dans la ZATM semblent pouvoir être à l'origine d'un excès **de lacunes** non prises en compte dans ce modèle. Scholtz [Sch15] établi un lien entre cette densité et la valeur des coefficients de diffusion. Ainsi, prendre en compte l'évolution de la densité de lacunes et donc de la valeur des coefficients de diffusion au cours du procédé FSW pourrait permettre une modélisation plus fiable du refroidissement lors du soudage et du traitement de vieillissement à température ambiante. La cinétique globale du phénomène de précipitation se trouverait améliorée.

Il pourrait également être intéressant d'étudier l'influence de la **morphologie du précipité** sur les cinétiques de précipitation et sur les propriétés mécaniques. Les précipités sont considérés sphériques dans cette étude tandis que les observations prouvent qu'il s'agit de plaquettes. Ce type d'amélioration pourrait être développé suivant le modèle proposé par Bardel [Bar14]. En effet, des modèles pertinents ont été proposés dans la littérature qui pourraient être aisément appliqués à ce modèle notamment s'il devait être étendu à l'étude de la précipitation dans d'autres alliages.

Application au FSW

Le cas d'étude présent est encore très éloigné d'une application à un cas industriel, c'est-à-dire à la **soudure hétérogène** de deux tôles d'aluminium de nuances différentes. La méthode de calibration développée pour l'alliage AA2024 s'avère suffisamment robuste pour pouvoir être étendue à la calibration pour des tôles en AA7075 :

1. Essais DSC à différentes vitesses de chauffe pour définir les données matériaux
2. Essai isotherme permettant d'établir le lien entre microstructure et propriétés mécaniques (dureté Vickers)
3. Application à la simulation du FSW sur une soudure homogène en AA7075.

Enfin, le **couplage entre le modèle macroscopique et microscopique** pourrait être amélioré. En effet, le modèle macroscopique résout le problème thermomécanique mais ne tient pas compte de l'influence de l'évolution microstructurale sur ces propriétés rhéologiques.

Les vitesses d'avance étudiées permettent la mise en évidence des hétérogénéités microstructurales et mécaniques dans les soudures. L'observation des différents phénomènes physiques a pu être effectuée et il a été prouvé que la simulation choisie était suffisamment robuste pour les modéliser. Toutefois, ces hétérogénéités mécaniques diminuent la résistance mécanique de la soudure et ne sont pas souhaitables pour les applications envisagées. Il apparaît donc nécessaire d'augmenter la force appliquée à l'outil ainsi que la vitesse d'avance. Les cinétiques de transformation seraient ainsi plus rapides mais les propriétés mécaniques seraient améliorées. Il serait intéressant de valider l'approche pour des vitesses d'avance très élevées (10 mm.s^{-1}).

BIBLIOGRAPHIE

- [**Aar70**] B. Aaron, et al. *Journal of applied physics* 1970;11:4404
- [**ASN11**] Normes d'études ASNA 3010 - Alliages d'aluminium 2024-T3 - Tôles minces - Documentation EADS
- [**Bar14**] D. Bardel, M. Perez, D. Nelias, A. Deschamps, C.R. Hutchinson, D. Maisonnette, T. Chaise, J. Garnier, F. Bourlier, *Acta Materialia* 2014;62:129.
- [**Bas06**] A. Bastier, *Modélisation du soudage d'alliages d'aluminium par friction et malaxage*, Doctorat de l'Ecole polytechnique, 2006
- [**Boa09**] A. Boag, A.E. Hughes, N.C. Wilson, A.Torpy, C.M. MacRae, A.M. Glenn, T.H. Muster, *Corrosion Science* 2009;51:1565.
- [**Car10**] D. Carron, P. Bastid, Y. Yin, R.G. Faulkner, *Technische mechanik*, 2010;30:29
- [**Caz13**] R. Cazes, *Techniques de l'ingénieur. Assemblage des matériaux par soudage* 2013
- [**Cha00**] A. Charai, T. Walther, C. Alfonso et al, *Acta Materialia*, 2000;48:2751
- [**Che08**] Q. Chen, J. Jeppsson, J. Ågren, *Acta Materialia* 2008;56:1890.
- [**Che14**] Z. Chen, S. Li, *Journal of Materials Science* 2014;49:7659.
- [**Clo04**] E. Clouet, A. Barbu, L. Laé, G. Martin, *Acta Materialia*, 2005;53:2313
- [**Clo10**] E. Clouet, F. Soisson, *Comptes Rendus Physique* 2010;11:226.
- [**Deg12**] F. De Geuser, A. Deschamps, *Comptes Rendus Physique* 2012;13:246
- [**Den13**] D. den Ouden, L. Zhao, C. Vuik, J. Sietsma, F.J. Vermolen, *Computational Materials Science*, 2013;79:933
- [**Des03**] A. Deschamps, Précipitation durcissante dans les matériaux de structure, Mémoire d'habilitation à diriger des recherches, INP Grenoble, 2003
- [**DocInt**] Document interne Soccata - Standard de traitements thermiques des alliages légers
- [**Dub12**] B. Dubost, P. Sainfort, *Techniques de l'ingénieur. Durcissement par précipitation des alliages d'aluminium* 2012
- [**Dum06**] M. Dumont, A. Steuwer, A. Deschamps, M. Peel, Withers, *Acta Materialia*, 2006, vol 54 p4793
- [**Eno79**] M. Enomoto, H.I. Aaronson, *Journal of applied physics*, 1980;51:1:818
- [**Esm03**] S. Esmaerili, D.J. Lloyd, W.J. Poole, *Acta Materialia* 2003;51:3467
- [**Fen11**] Z.Q. Feng, Y.Q. Yang, B. Huang, X. Luo, M.H. Li, M. Han, M.S. Fu, *Acta Materialia* 2011;59:2412.
- [**Feu12**] E. Feulvard, *Techniques de l'ingénieur. Modélisation numérique du procédé de soudage par friction-malaxage* 2012

- [**Gal08**] C. Gallais, A. Denquin, Y. Bréchet, G. Lapasset, *Materials Science and Engineering A*, 2008; 496:77
- [**Gas15**] S. Gastebois, Simulation numérique 3D du FSW à l'aide d'une formulation ALE, Doctorat Mines ParisTech 2015.
- [**Gen04**] C. Genevois, *Genèse des microstructures lors du soudage par friction malaxage d'alliages d'aluminium de la série 2000 & 5000 et comportement mécanique résultant*. Doctorat INP Grenoble, 2004.
- [**Gen05**] C. Genevois, A. Deschamps, A. Denquin, *Acta Materialia* 2005; 53:2447
- [**Gen06**] C. Genevois, D. Fabrègue, A. Deschamps, W.J. Poole, *Materials Science and Engineering: A* 2006;441:39.
- [**Gre13**] J. Grenet, B. Legendre, *Techniques de l'ingénieur*. Analyse calorimétrique différentielle à balayage, 2010
- [**Gup01**] A.K. Gupta, D.J. Lloyd, S.A. Court, *Materials Science and Engineering: A* 2001; 316:11
- [**Guy06**] P. Guyot, L. Lae, *Advanced Engineering Materials* 2006;8:1243.
- [**Her10**] E. Hersent, J.H. Driver, D. Piot, *Materials Science and Technology* 2010; 26:1345
- [**Her10**] Hersent E. *Modélisation intégrée de la précipitation pour le soudage FSW d'alliages d'aluminium à durcissement structural*. Doctorat de l'École Nationale Supérieure des Mines de Saint-Étienne, 2010.
- [**Jep11**] J. Jeppson, *Simulation of phase transformations and coarsening : Computation tools for alloy development*, Doctorat KTH Industrial Engineering and Management, 2011
- [**Joh39**] W.A. Johnson, R.F. Mehl, *Trans AIME*, 1939;135:416
- [**Kam06**] N. Kamp, A. Sullivan, R. Tomasi, J.D. Robson, *Acta Materialia* 2006;54:2003.
- [**Kam07**] N. Kamp, A. Sullivan, J.D. Robson, *Materials Science and Engineering A* 2007;466:246.
- [**Kam84**] R. Kampman, R. Wagner, *Decomposition of alloys : The early stages*, page 91. Pergamon Press, 1984
- [**Kar08**] M. Karlik, B. Jouffrey, *Techniques de l'ingénieur*, Etude des métaux par microscopie électronique en transmission (MET) - Microscope, échantillons et diffraction, 2008
- [**Kha08**] I.N. Khan, M.J. Starink, *Materials Science and Technology* 2008; 24:1403
- [**Kh08**] I.N. Khan, M.J. Starink, J.L. Yan, *Materials Science and Engineering: A* 2008;472:66.
- [**KhS08**] I.N. Khan, M.J. Starink, I. Sinclair, S.C. Wang, *Materials Science and Technology* 2008;24:1411.
- [**Kov08**] L. Kovarik, S.A. Court, H.L. Fraser, M.J. Mills, *Acta Materialia* 2008;56:4804.
- [**Kov12**] L. Kovarik, M.J. Mills, *Acta Materialia* 2012;60:3861.
- [**Lif61**] I.M. Lifshitz, V.V. Slyozov, *Journal of Chemical Solids*, 1961;19:61

- [**Lep09**] J. Lepinoux, *Acta Materialia* 2009;57:1086.
- [**Mao12**] Z. Mao, C. Booth-Morrison, C.K. Sudbrack, G. Martin, D.N. Seidman, *Acta Materialia* 2012;60:1871
- [**Mis05**] R.S. Mishra, Z.Y. Ma, *Materials Science and Engineering* 2005: 50:1
- [**Myh91**] O.R. Myhr, Ø. Grong, *Acta Metallurgica et Materialia*, 1991;39:2693.
- [**Myh00**] O.R. Myhr, Ø. Grong, *Acta Materialia* 2000;48:1605.
- [**Myh01**] O.R. Myhr, Ø. Grong, S.J. Andersen, *Acta materiala* 2001;49:65.
- [**Myh04**] O.R. Myhr, Ø. Grong, H.G. Fjaer, C.D. Marioara, *Acta materiala* 2004;52:4997.
- [**Pee03**] M. Peel, A. Steuwer, M. Preuss, P.J. Withers, *Acta Materialia* 2003;51:4791.
- [**Per08**] M. Perez, M. Dumont, D. Acevedo-Reyes, *Acta Materialia* 2008;56:2119.
- [**Per09**] M. Perez, M. Dumont, D. Acevedo-Reyes, *Acta Materialia* 2009;57:1318.
- [**Pre07**] W. Press, S. Teukolsky, W.V. Vetterling, B.P. Flannery, *Numerical Recipes, The Art of Scientific Computing*, Third Edition, 2007
- [**Rob03**] J.D. Robson, M.J. Jones, P.B. Prangnell, *Acta Materialia* 2003;51:1453.
- [**Rou13**] L.Rougier, *Simulation de la formation des microstructures dans les superalliages à base de nickel de type AM1 durant la solidification et les traitements thermiques*. Doctorat de l'EPFL, 2013
- [**Rus70**] K.C. Russel, *Phase Transformations*. A.S.M., Metal Park Ohio, 1970
- [**Sat01**] Y.S. Sato, H. Kokawa, *Metallurgical and materials transactions A*, 2001;32A:3033
- [**Sch15**] P. Schloth, *Precipitation in the high strength AA7449 aluminium alloy : implications on internal stresses on different lenght scales*. Doctorat de l'EPFL, 2015
- [**Ser04**] M. Serrière, *Modélisation des processus de transformation des dispersoïdes dans un alliage d 'aluminium 3003 . Influence de la description des équilibres thermodynamiques locaux* . Doctorat de l'Institut National Polytechnique de Lorraine, 2004.
- [**Ser02**] M. Serriere, C. Gandin, E. Gautier, P. Archambault, M. Dehmas, *Materials Science Forum* 2002;402:747.
- [**Sil60**] J. Silcock, *Journal of the Institue of metals*, 1960;89,203
- [**Sim00**] J. Simmons, C. Shen, Y. Wang, *Scripta Materialia* 2000;43:935.
- [**Sim07**] A. Simar, Y. Bréchet, B. De Meester, A. Denquin, T. Pardoën, *Acta Materialia* 2007;55:6133.
- [**Sim12**] A. Simar, Y. Bréchet, B. De Meester B, A. Denquin, C. Gallais, T. Pardoën, *Progress in Materials Science* 2012;57:95.

- [**Son13**] M.R. Sonne, C.C. Tutum, J.H. Hattel, A. Simar, B. de Meester, *Journal of Materials Processing Technology*, 2013;213:477
- [**Sta04**] M.J. Starink, A. Dion, *Thermochimica Acta* 2004; 417:5
- [**Sta04**] M.J. Starink, *International Materials Reviews* 2004;49:191.
- [**Sta09**] M.J. Starink, S.C. Wang, *Acta Materialia* 2009;57:2376.
- [**Stu11**] M. Stuchy, *Techniques de l'ingénieur*, Traitements thermiques des alliages d'aluminium - Matériels et recommandation, 2011
- [**TCP01**] TC-PRISMA, Thermo-Calc software, Foundation for computational thermodynamics, Stockholm, Sweden
- [**Ther01**] Thermo-Calc, Foundation for computational thermodynamics, Stockholm, Sweden
- [**Wag61**] C. Wagner, *Z. Elect.*, 1961;65:581
- [**Zel43**] J.B. Zeldovich, *Acta Phys. U.R.S.S.*, 1943;XVIII:1
- [**Zen49**] C. Zener, *Journal of applied physics*, 1949;950

Cette annexe a pour objectif de présenter les données thermodynamiques nécessaires à la réalisation des différents calculs dans le modèle développé. Dans un premier temps, le choix des coefficients de diffusion sera discuté. Ensuite, les états d'équilibre seront présentés entre la matrice et les différentes phases précipitantes. Les données utilisées proviennent de calcul d'équilibre réalisé avec le logiciel Thermocalc dans la base de données TCAL3.

1.1. Coefficients de diffusion

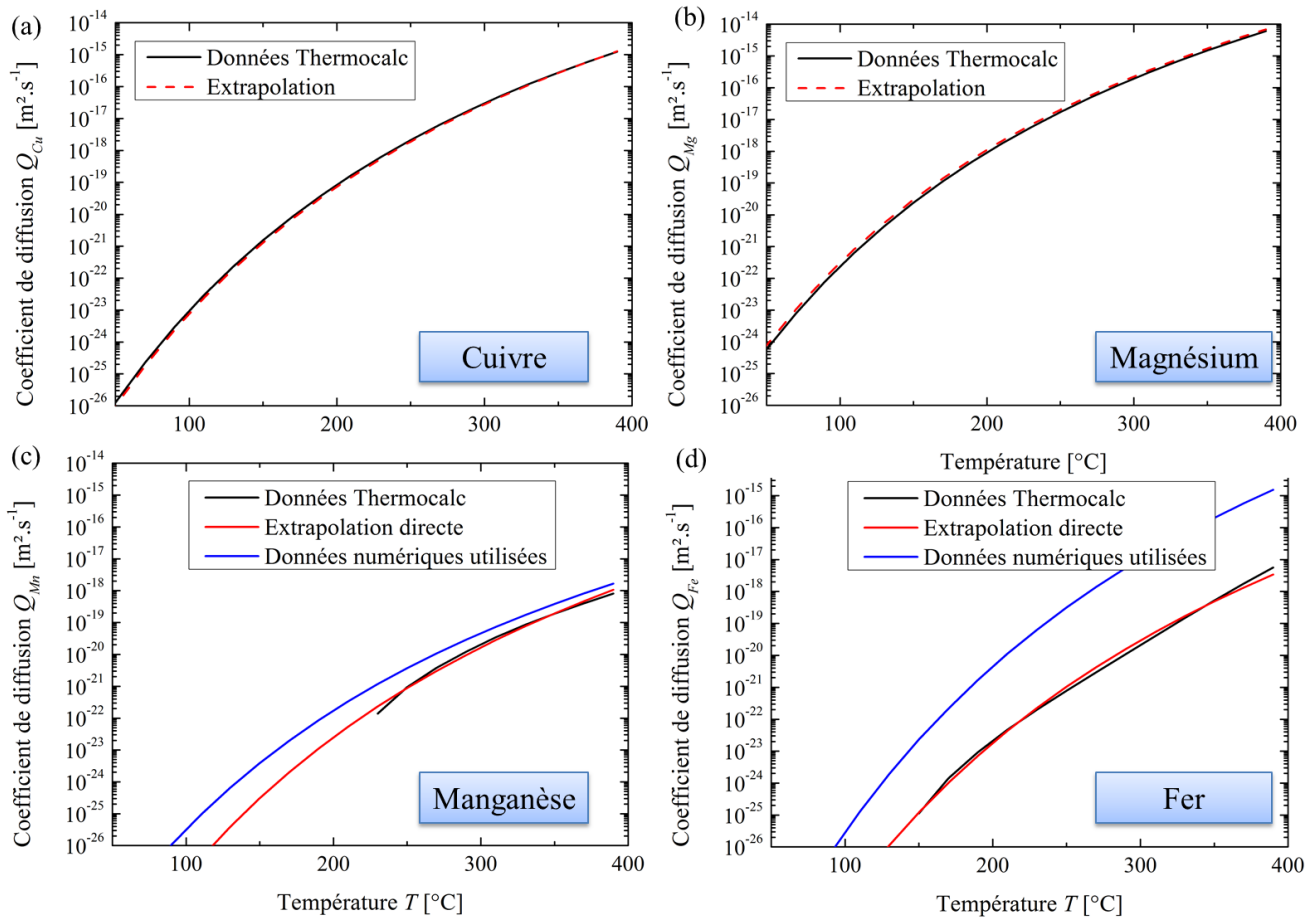


Figure A1. 1 : Evolution des coefficients de diffusion en fonction de la température au cours du temps

Le choix des coefficients de diffusion a été l'objet d'une étude effectuée via l'utilisation de la base de données MOBAL3. Leur calcul a été effectué dans la phase Matrice (FCC_A1) pour les quatre éléments d'alliage étudiés : le cuivre, le magnésium, le manganèse et le fer. La composition initiale de la matrice a été prise identique à la composition nominale de l'alliage dans un premier temps (cf. Tableau II.3). Les coefficients de diffusion obtenus sont présentés en trait noir sur la Figure A1. 1. Il peut être constaté que dans le cas du fer et du manganèse, les coefficients ne sont plus définis pour des températures respectivement inférieures à 150 °C et à 220 °C. Pour définir la valeur des coefficients de diffusion de ces deux espèces chimiques, la loi d'Arrhenius (Equation II.42) a été utilisée afin de les extrapoler à basse

température comme présenté sur en gris clair sur la Figure A1. 1- a et b et en gris foncé sur la Figure A1. 1 - b et c. Toutefois, dans le cas du manganèse et du fer, suite à une calibration numérique, les coefficients numériques de la loi d'Arrhenius présentés dans le Tableau II.3 ont été retenus. En effet, le manganèse est l'élément limitant la réaction chimique de par son coefficient trop faible. Sa valeur a donc été numériquement augmentée pour mieux correspondre aux résultats attendus.

Un des objectifs initiaux du projet de thèse était de coupler le modèle développé avec le logiciel Thermocalc pour obtenir directement les coefficients de diffusion. Suite à l'obtention de valeurs par défauts ($10^{-36} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$) via le logiciel Thermocalc de certains de ces coefficients, il est apparu impossible de mettre en place un couplage direct qui aurait permis de prendre en compte les évolutions des coefficients de diffusion avec les évolutions de composition dans la matrice et de température du système.

1.2. Equilibre Matrice / Phase S

T [°C]	FCC_A1 (Matrice)						S_PHASE		
	g^{FCC_A1} [-]	$h_m^{FCC_A1}$ [J.kg ⁻¹]	$x_{Al}^{FCC_A1}$ [-]	$x_{Cu}^{FCC_A1}$ [-]	$x_{Fe}^{FCC_A1}$ [-]	$x_{Mg}^{FCC_A1}$ [-]	$x_{Mn}^{FCC_A1}$ [-]	g^{S_PHASE} [-]	$h_m^{S_PHASE}$ [J.kg ⁻¹]
20	0,94126	-7556	0,99208	0,00000	0,00032	0,00547	0,00213	0,05874	-479646
30	0,94128	1432	0,99208	0,00000	0,00032	0,00547	0,00213	0,05872	-472744
40	0,94130	10486	0,99208	0,00000	0,00032	0,00547	0,00213	0,05870	-465796
50	0,94132	19601	0,99208	0,00000	0,00032	0,00547	0,00213	0,05868	-458807
60	0,94135	28775	0,99208	0,00000	0,00032	0,00547	0,00213	0,05866	-451778
70	0,94137	38005	0,99208	0,00000	0,00032	0,00547	0,00213	0,05863	-444710
80	0,94139	47290	0,99208	0,00000	0,00032	0,00547	0,00213	0,05861	-437606
90	0,94142	56628	0,99208	0,00000	0,00032	0,00548	0,00213	0,05858	-430466
100	0,94144	66016	0,99208	0,00000	0,00032	0,00548	0,00213	0,05856	-423292
110	0,94147	75454	0,99208	0,00000	0,00032	0,00548	0,00213	0,05853	-416085
120	0,94150	84941	0,99208	0,00000	0,00032	0,00548	0,00213	0,05851	-408846
130	0,94153	94474	0,99207	0,00000	0,00032	0,00548	0,00213	0,05847	-401576
140	0,94156	104053	0,99207	0,00001	0,00032	0,00548	0,00213	0,05844	-394275
150	0,94160	113678	0,99206	0,00001	0,00032	0,00549	0,00213	0,05840	-386943
160	0,94165	123347	0,99205	0,00002	0,00032	0,00549	0,00213	0,05836	-379582
170	0,94170	133059	0,99203	0,00002	0,00032	0,00550	0,00213	0,05830	-372192
180	0,94177	142814	0,99201	0,00004	0,00032	0,00551	0,00213	0,05823	-364774
190	0,94185	152611	0,99198	0,00005	0,00032	0,00553	0,00213	0,05815	-357326
200	0,94196	162448	0,99194	0,00007	0,00032	0,00555	0,00213	0,05804	-349851
210	0,94209	172325	0,99188	0,00010	0,00032	0,00557	0,00213	0,05791	-342347
220	0,94226	182240	0,99181	0,00014	0,00032	0,00561	0,00212	0,05774	-334816
230	0,94247	192193	0,99171	0,00019	0,00032	0,00566	0,00212	0,05753	-327258
240	0,94273	202181	0,99158	0,00025	0,00032	0,00572	0,00212	0,05727	-319672

ANNEXE 1 : Données thermodynamiques

250	0,94305	212203	0,99143	0,00033	0,00032	0,00580	0,00212	0,05695	-312058
260	0,94344	222256	0,99123	0,00043	0,00032	0,00590	0,00212	0,05656	-304418
270	0,94392	232340	0,99100	0,00055	0,00032	0,00601	0,00212	0,05608	-296750
280	0,94448	242451	0,99071	0,00070	0,00032	0,00616	0,00212	0,05552	-289055
290	0,94515	252587	0,99037	0,00087	0,00032	0,00632	0,00212	0,05485	-281333
300	0,94594	262747	0,98997	0,00107	0,00032	0,00652	0,00212	0,05406	-273583
310	0,94685	272927	0,98950	0,00131	0,00032	0,00676	0,00211	0,05315	-265807
320	0,94789	283125	0,98897	0,00158	0,00032	0,00702	0,00211	0,05211	-258003
330	0,94907	293339	0,98836	0,00189	0,00032	0,00732	0,00211	0,05093	-250172
340	0,95039	303566	0,98768	0,00224	0,00032	0,00766	0,00211	0,04961	-242313
350	0,95188	313803	0,98691	0,00263	0,00032	0,00804	0,00210	0,04813	-234427
360	0,95352	324049	0,98607	0,00306	0,00032	0,00846	0,00210	0,04648	-226513
370	0,95533	334300	0,98513	0,00353	0,00031	0,00893	0,00210	0,04467	-218572
380	0,95731	344555	0,98412	0,00405	0,00031	0,00943	0,00209	0,04269	-210603
390	0,95948	354809	0,98300	0,00461	0,00031	0,00998	0,00209	0,04052	-202606
400	0,96184	365061	0,98180	0,00522	0,00031	0,01058	0,00208	0,03816	-194581
410	0,96439	375307	0,98050	0,00588	0,00031	0,01123	0,00208	0,03561	-186528
420	0,96715	385544	0,97910	0,00659	0,00031	0,01192	0,00207	0,03285	-178447
430	0,97012	395768	0,97760	0,00736	0,00031	0,01267	0,00206	0,02988	-170337
440	0,97332	405979	0,97599	0,00817	0,00031	0,01347	0,00206	0,02668	-162198
450	0,97675	416173	0,97428	0,00905	0,00031	0,01432	0,00205	0,02325	-154028
460	0,98043	426350	0,97245	0,00997	0,00031	0,01523	0,00204	0,01957	-145828
470	0,98436	436507	0,97051	0,01096	0,00030	0,01620	0,00203	0,01564	-137595
480	0,98857	446642	0,96844	0,01201	0,00030	0,01722	0,00202	0,01143	-129330
490	0,99306	456753	0,96625	0,01312	0,00030	0,01831	0,00201	0,00694	-121030
500	0,99786	466836	0,96394	0,01430	0,00030	0,01946	0,00200	0,00214	-112695
510	1	477467	0,96291	0,01482	0,00030	0,01997	0,00200	0	-104323
520	1	488571	0,96291	0,01482	0,00030	0,01997	0,00200	0	-95915
530	1	499741	0,96291	0,01482	0,00030	0,01997	0,00200	0	-87468
540	1	510978	0,96291	0,01482	0,00030	0,01997	0,00200	0	-78982
550	1	522286	0,96291	0,01482	0,00030	0,01997	0,00200	0	-70456

1.3. Equilibre Matrice / Zones GPB

T [°C]	FCC_A1 (Matrice)							S_PRIME	
	g^{FCC_A1} [-]	$h_m^{FCC_A1}$ [J.kg ⁻¹]	$x_{Al}^{FCC_A1}$ [-]	$x_{Cu}^{FCC_A1}$ [-]	$x_{Fe}^{FCC_A1}$ [-]	$x_{Mg}^{FCC_A1}$ [-]	$x_{Mn}^{FCC_A1}$ [-]	g^{S_PRIME} [-]	$h_m^{S_PRIME}$ [J.kg ⁻¹]
20	0,9414	-7628	0,9910	0,0006	0,0003	0,0060	0,0021	0,0586	-165628
30	0,9420	1333	0,9907	0,0007	0,0003	0,0062	0,0021	0,0580	-158726
40	0,9427	10351	0,9903	0,0009	0,0003	0,0063	0,0021	0,0573	-151778
50	0,9435	19424	0,9899	0,0011	0,0003	0,0065	0,0021	0,0565	-144789
60	0,9444	28546	0,9895	0,0013	0,0003	0,0068	0,0021	0,0556	-137760

ANNEXE 1 : Données thermodynamiques

70	0,9454	37714	0,9890	0,0016	0,0003	0,0070	0,0021	0,0546	-130692
80	0,9465	46927	0,9885	0,0018	0,0003	0,0073	0,0021	0,0535	-123588
90	0,9477	56180	0,9879	0,0021	0,0003	0,0076	0,0021	0,0523	-116448
100	0,9489	65473	0,9873	0,0024	0,0003	0,0079	0,0021	0,0511	-109274
110	0,9503	74801	0,9866	0,0028	0,0003	0,0082	0,0021	0,0497	-102067
120	0,9517	84165	0,9859	0,0031	0,0003	0,0085	0,0021	0,0483	-94828
130	0,9532	93562	0,9852	0,0035	0,0003	0,0089	0,0021	0,0468	-87558
140	0,9547	102991	0,9844	0,0039	0,0003	0,0093	0,0021	0,0453	-80257
150	0,9564	112451	0,9836	0,0043	0,0003	0,0097	0,0021	0,0436	-72925
160	0,9581	121941	0,9828	0,0047	0,0003	0,0101	0,0021	0,0419	-65565
170	0,9598	131459	0,9819	0,0052	0,0003	0,0105	0,0021	0,0402	-58174
180	0,9616	141004	0,9810	0,0056	0,0003	0,0110	0,0021	0,0384	-50756
190	0,9635	150577	0,9801	0,0061	0,0003	0,0114	0,0021	0,0365	-43308
200	0,9654	160177	0,9792	0,0066	0,0003	0,0119	0,0021	0,0346	-35833
210	0,9674	169803	0,9782	0,0070	0,0003	0,0124	0,0021	0,0326	-28330
220	0,9694	179454	0,9773	0,0075	0,0003	0,0128	0,0021	0,0306	-20798
230	0,9715	189131	0,9763	0,0080	0,0003	0,0133	0,0021	0,0285	-13240
240	0,9735	198833	0,9753	0,0085	0,0003	0,0138	0,0021	0,0265	-5654
250	0,9757	208559	0,9743	0,0090	0,0003	0,0143	0,0020	0,0243	1960
260	0,9778	218311	0,9733	0,0096	0,0003	0,0148	0,0020	0,0222	9600
270	0,9800	228087	0,9722	0,0101	0,0003	0,0153	0,0020	0,0200	17268
280	0,9822	237888	0,9712	0,0106	0,0003	0,0159	0,0020	0,0178	24963
290	0,9844	247714	0,9701	0,0112	0,0003	0,0164	0,0020	0,0156	32685
300	0,9867	257565	0,9691	0,0117	0,0003	0,0169	0,0020	0,0133	40435
310	0,9890	267441	0,9680	0,0122	0,0003	0,0174	0,0020	0,0110	48211
320	0,9913	277341	0,9669	0,0128	0,0003	0,0180	0,0020	0,0087	56015
330	0,9936	287268	0,9659	0,0133	0,0003	0,0185	0,0020	0,0064	63846
340	0,9959	297219	0,9648	0,0139	0,0003	0,0190	0,0020	0,0041	71705
350	0,9982	307197	0,9637	0,0144	0,0003	0,0196	0,0020	0,0018	79591
360	1	317281	0,9629	0,0148	0,0003	0,0200	0,0020	0	87505
370	1	327645	0,9629	0,0148	0,0003	0,0200	0,0020	0	95446
380	1	338051	0,9629	0,0148	0,0003	0,0200	0,0020	0	103415
390	1	348498	0,9629	0,0148	0,0003	0,0200	0,0020	0	111412
400	1	358989	0,9629	0,0148	0,0003	0,0200	0,0020	0	119437
410	1	369521	0,9629	0,0148	0,0003	0,0200	0,0020	0	127490
420	1	380097	0,9629	0,0148	0,0003	0,0200	0,0020	0	135571
430	1	390715	0,9629	0,0148	0,0003	0,0200	0,0020	0	143681
440	1	401379	0,9629	0,0148	0,0003	0,0200	0,0020	0	151820
450	1	412089	0,9629	0,0148	0,0003	0,0200	0,0020	0	159990
460	1	422849	0,9629	0,0148	0,0003	0,0200	0,0020	0	168190
470	1	433660	0,9629	0,0148	0,0003	0,0200	0,0020	0	176423
480	1	444525	0,9629	0,0148	0,0003	0,0200	0,0020	0	184688
490	1	455446	0,9629	0,0148	0,0003	0,0200	0,0020	0	192988

ANNEXE 1 : Données thermodynamiques

500	1	466426	0,9629	0,0148	0,0003	0,0200	0,0020	0	201323
510	1	477467	0,9629	0,0148	0,0003	0,0200	0,0020	0	209695
520	1	488571	0,9629	0,0148	0,0003	0,0200	0,0020	0	218103
530	1	499741	0,9629	0,0148	0,0003	0,0200	0,0020	0	226550
540	1	510978	0,9629	0,0148	0,0003	0,0200	0,0020	0	235036
550	1	522286	0,9629	0,0148	0,0003	0,0200	0,0020	0	243562

Cette annexe permet de présenter brièvement la démarche suivie et les résultats obtenus dans le cadre de la thèse de Gastebois [Gas15] dans le cas d'un soudage tôle sur tôle d'aluminium AA2024. Les données calibrées ont été extrapolées au cas présenté dans cette étude : soudage pleine tôle AA2024 d'épaisseur 2,5 mm.

1.1. Positionnement du problème et conditions aux limites

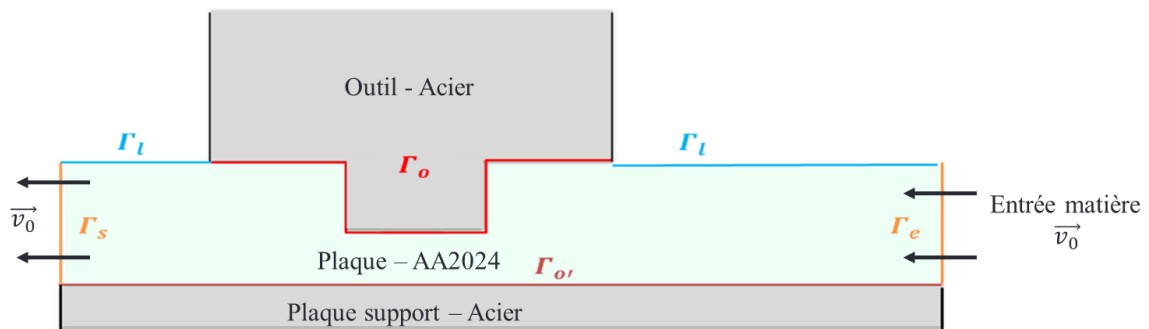


Figure A2. 1 : Description du domaine de calcul et des frontières [Gas15]

Trois éléments sont nécessaires pour définir le système et permettre la résolution précise du problème thermomécanique propre au procédé FSW : l'outil, la plaque devant être soudée et la plaque support. L'outil et la plaque support sont en aciers et la plaque soudée est un alliage d'aluminium AA2024. Le domaine étudié est représenté en vert sur la Figure A2. 1 ainsi que les frontières de nature différentes. L'outil est en rotation et sa vitesse est définie par l'utilisateur. La matière se déplace à travers la plaque et possède une vitesse égale à la vitesse de soudage définie par l'utilisateur (\vec{v}_0) au niveau des plans d'entrée Γ_e et sortie Γ_s de la matière.

Γ_l représente la surface libre au niveau de laquelle ont lieu les échanges thermiques entre la plaque et l'air par convection forcée. Des échanges par convection ont également lieu entre l'outil et l'air et entre la plaque support et l'air. Ils ne sont pas présentés sur la Figure A2. 1, néanmoins les coefficients associés sont présentés dans le Tableau A2. 2.

Γ_o constitue la surface en contact avec l'outil au niveau de laquelle s'applique des équations de contact à l'interface et la loi de frottements dû à la rotation de l'outil. Les frottements induisent un échauffement de la matière qui est caractérisée par les effusivités des éléments (Tableau A2. 2).

Des échanges par conduction ont lieu sur la surface Γ_o mais également entre la plaque et la plaque support. Ces coefficients ont été ajustés au cours de la calibration et leurs valeurs sont répertoriées dans le Tableau A2. 1. Γ_o' représente la surface en contact avec la plaque support (Figure A2. 1 : Description du domaine de calcul et des frontières [Gas15]Figure A2. 1).

Dans le cadre de la thèse de Gastebois [Gas15], deux formalismes ont été étudiés. Le premier est le formalisme eulérien pour lequel le maillage est considéré fixe au cours du temps. Ce type de formalisme ne peut être utilisé pour la prédiction de défauts, néanmoins, il est pratique pour calibrer les données thermiques. Le second formalisme utilisé est de type ALE (méthode arbitraire Lagrangienne Eulérienne) permet de suivre l'évolution de la surface libre grâce à une gestion du maillage indépendamment de la matière. Il devient alors possible de prédire les défauts macroscopiques.

	Outil	Plaque support
Plaque – AA2024 [W.m⁻². K⁻¹]	1.10 ⁵	2.10 ³

Tableau A2. 1 : Coefficients de conduction entre les outils et la tôle

	Plaque – AA2024	Outil	Plaque support
Convection (air) [W.m⁻². K⁻¹]	30	20	30
Conductivité [W.m⁻¹.K⁻¹]	190 000	26 000	35 500
Capacité thermique [10⁹.J.kg⁻¹.K⁻¹]	1,108	0,460	0,778
Effusivité [J.K⁻¹.m⁻².s^{0,5}]	24192	9659	14724

Tableau A2. 2 : Propriétés thermiques des outils et de la tôle

Dans l'étude De Gastebois [Gas15], une modélisation numérique du filetage a été développée. Elle n'a toutefois pas été utilisée dans les modélisations développées pour cette thèse.

1.2. Equations du modèle macroscopique

La résolution du problème thermomécanique dans le cas du procédé FSW implique la résolution de trois équations : l'équation de continuité, de la quantité de mouvement et de la conservation de chaleur. Plusieurs éléments doivent être pris en compte comme la description rhéologique du matériau, la définition d'une loi de frottement et la calibration des différents paramètres thermiques.

Le matériau est modélisé à l'aide d'une loi rigide viscoplastique de type Norton-Hoff dans laquelle l'érouissage est négligé. La contrainte équivalente de Von Mises s'écrit ainsi :

$$\bar{\sigma} = \sqrt{3}K(T)(\sqrt{3}\dot{\epsilon})^{m(T)} \quad \text{Équation 1}$$

Où T est la température, $K(T)$ la consistance du matériau et $m(T)$ le coefficient de sensibilité à la vitesse de déformation. Ces deux dernières valeurs dépendent de la température et

proviennent de la loi de comportement NH-Forge2 présente dans la base de données Forge. Les données sont regroupées dans le Tableau A2. 3.

$T [^{\circ}\text{C}]$	20	350	431,72	500	641,76	700
$K(T)$	300,13	43	23	17	0,1	0,05
$m(T)$	0,01	0,08079	0,08079	0,08079	1	1

Tableau A2. 3 : Loi de comportement NH-Forge2 de Norton-Hoff basé sur la base de données Forge ®

Le frottement $\vec{\tau}$ entre la tige ou l'épaulement et l'alliage d'aluminium soudé est modélisé par une loi viscoplastique de type Norton et dépend de la vitesse de glissement v_g qui relie la vitesse de l'outil et la vitesse de la matière :

$$\vec{\tau} = -\alpha K(T) \|\vec{v}_g\|^{p-1} \vec{v}_g \quad \text{Équation 2}$$

avec α le coefficient de frottement compris entre 0 (glissement parfait) et 1 (frottement collant) et p le coefficient de sensibilité à la vitesse de glissement. Ces deux valeurs sont estimées après calibration respectivement à 0,6 et 0,125.

1.3. Calibration du modèle macroscopique

L'un des principaux objectifs du modèle développé par Gastebois [Gas15], est de pouvoir modéliser l'apparition de défauts macroscopiques afin de prédire les paramètres procédés générant leur formation. Deux types de défauts sont étudiés. Ils sont représentés sur la Figure A2. 2. Les bavures apparaissent lorsque la soudure est trop chaude et les trous se forment dans le cas d'une soudure trop froide.

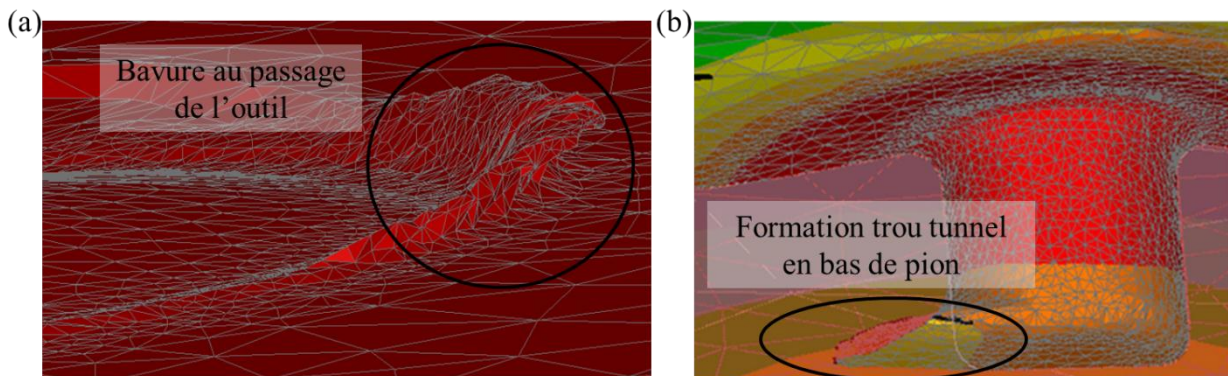


Figure A2. 2: Simulation de la formation de défauts de type (a) bavure et (b) trous

Définition du cas d'étude

La configuration étudiée dans le cadre du travail de Gastebois [Gas15] est représenté sur la Figure A2. 3. L'outil est schématisé en bleu. Le diamètre de son épaulement est de 9,6 mm, celui du haut de la tige est de 4 mm et celui du bas de la tige est de 3 mm. Le soudage est

effectué sur deux tôles d'aluminium en AA2024-T3 d'épaisseur 1,2 mm et 2,5 mm. L'outil utilisé permet de positionner deux thermocouples, le premier dans l'épaulement et le second dans le pion, afin de connaître la température dans l'outil nécessaire à la calibration numérique.

Pour calibrer les paramètres numériques, une soudure sans défauts a été sélectionnée comme cas de référence. La vitesse d'avance considérée est de 2 mm.s^{-1} pour une vitesse de rotation de 1200 rpm et une force selon l'axe z de 4800N.

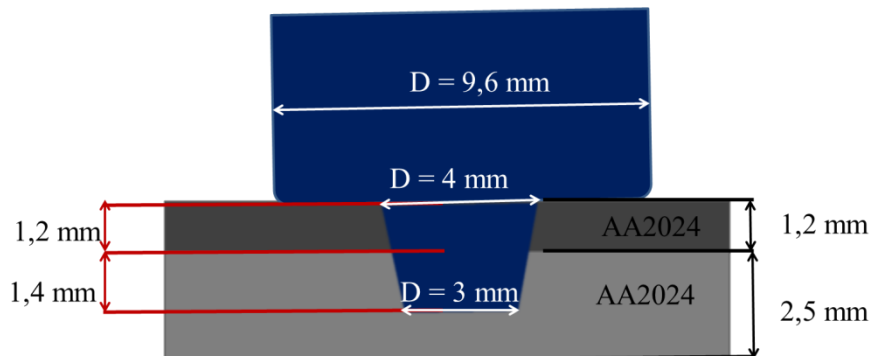


Figure A2. 3 : Configuration du soudage pour la validation macroscopique

Calibration numérique

Afin de modéliser correctement cette soudure, plusieurs étapes de calibration ont été nécessaires.

La première étape a été de considérer un formalisme eulérien avec un pilotage en position, c'est-à-dire que le pion est fixe par rapport à la plaque à souder et la force appliquée en z sur l'outil va dépendre de la position. L'objectif est de déterminer le coefficient d'échange thermique entre l'outil et la tôle, l'effusivité du matériau et les paramètres de la loi de comportement en comparant la température mesurée lors des essais dans l'outil à la température obtenue numériquement. Afin d'améliorer la rotation de l'écoulement et limiter des possibles défauts de décollement, les paramètres de la loi de frottement ont été ajustés. Néanmoins, diminuer l'erreur sur la mesure du couple (écoulement) induit une augmentation de l'erreur sur la température. Ainsi, un bon compromis entre simulation de l'écoulement et la de la température dans l'outil n'a pu être trouvé ce qui constitue la limite de cette approche via un pilotage en position. L'erreur sur la température est de 17% si on considère une erreur de 38% sur le couple et augmente à 31% si on considère une erreur sur le couple de 30%.

La formulation ALE permet un pilotage en force, c'est-à-dire que la force dans l'outil est imposée. Cette configuration correspond à l'expérience où l'outil est piloté en force. Toutefois, dans cette approche, la température dans l'outil doit être fixée initialement et est constante tout au long du calcul. Les paramètres de la loi de frottement ont été de nouveaux ajustés et un filetage numérique du pion a été introduit afin d'éviter la formation de défauts. L'erreur sur la température est estimée à 15%.

Application à la prédiction de défauts

Les paramètres numériques pour la configuration FSW étudiée ayant été calibrée pour une soudure de référence, ils ont été appliqués à une configuration générant des trous en bas de pion (Figure A2. 4). La vitesse d'avance est de 2 mm.s^{-1} , la vitesse de rotation est de 800 rpm pour une force appliquée sur l'outil de 3600 N. Il apparaît ainsi que la simulation permet de prédire l'apparition d'un trou située en bas de pion tel qu'il est visible sur la macrographie résultant d'une soudure.

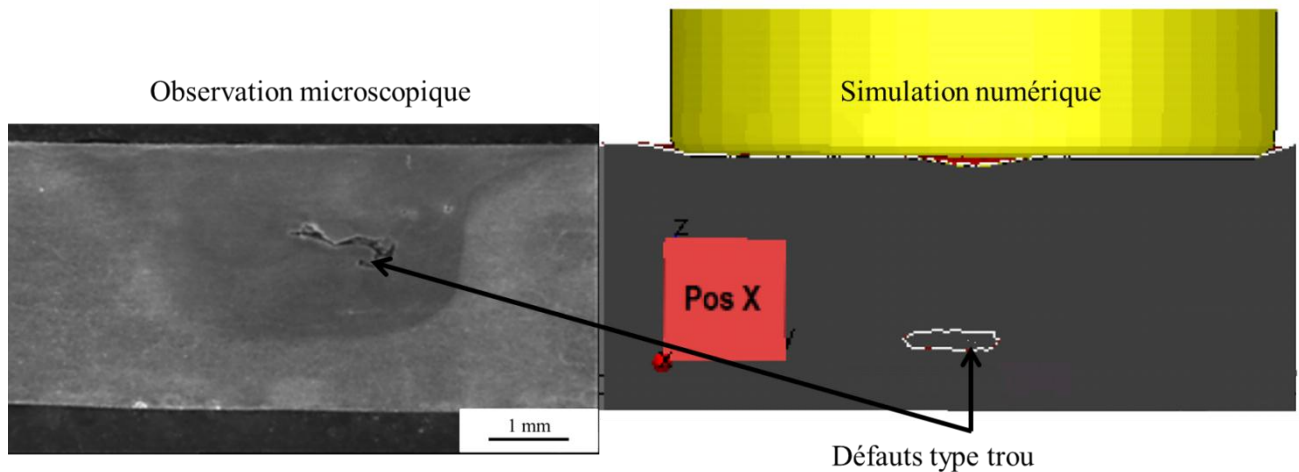


Figure A2. 4 : Simulation d'une soudure générant expérimentalement un défaut

Influence du formalisme sur la température dans le noyau

Il est important de comprendre les écarts liés à l'utilisation de l'un ou l'autre des formalismes. Dans le cas choisi et avec les paramètres définis, il apparaît que les températures atteintes dans la soudure sont du même ordre de grandeurs (Figure A2. 5). Le formalisme eulérien est présenté en haut de la figure et montre des températures élevées de l'ordre de $480 \text{ }^\circ\text{C}$ au niveau du contact avec l'épaulement. Néanmoins, les températures sont plus faibles au contact avec la tige ($467 \text{ }^\circ\text{C}$). Dans le cas du formalisme ALE, la température dans l'outil étant fixée, une homogénéité en température est observée au niveau de la tige. Les valeurs sont toutes d'environ 480°C soit $15 \text{ }^\circ\text{C}$ plus chaude que dans le formalisme eulérien. Au niveau de l'épaulement la température diminue et une valeur de 473°C est atteinte. Un écart de 5°C est donc visible sous l'épaulement entre les deux formalismes.

Dans le cadre de l'étude menée au niveau microscopique, il est obligatoire d'utiliser le formalisme eulérien pour obtenir les évolutions en temps, en température et en position d'une cellule de calcul donnée (Chapitre II).

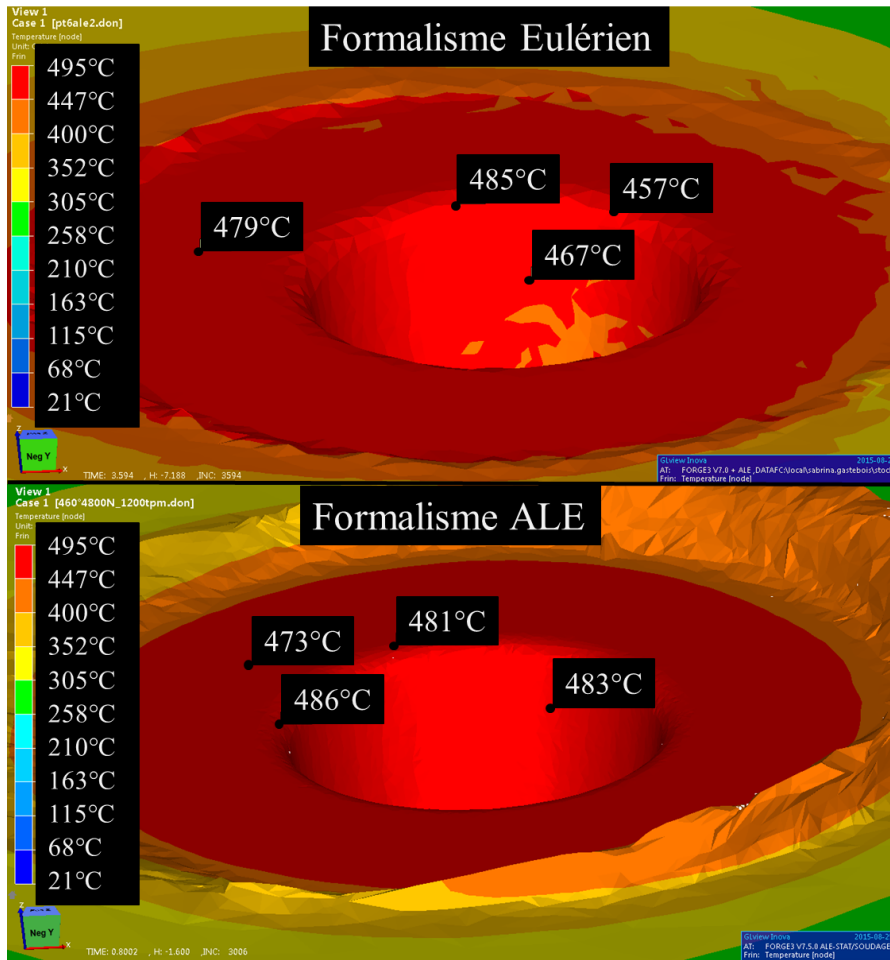


Figure A2. 5 : Influence du formalisme choisi sur la température dans le noyau

**Modélisation des processus de précipitation et prédiction des propriétés mécaniques
résultantes dans les alliages d'aluminium à durcissement structural
Application au soudage par Friction Malaxage (FSW) de tôles AA2024**

RESUME : Dans le domaine aéronautique, le soudage par friction-malaxage (FSW – Friction Stir Welding) apparaît comme un procédé innovant d'assemblage des fuselages, allégeant la structure avion en remplaçant la technique actuelle de rivetage. La simulation numérique est un support permettant de mieux comprendre et maîtriser ce procédé. L'alliage d'aluminium étudié dans ce projet est de type AA2024-T3 et tire principalement ses propriétés du durcissement structural. Modéliser l'évolution de la précipitation s'avère essentiel pour définir les propriétés finales de la soudure. Le modèle choisi doit prendre en considération les familles de précipités formés et les processus de germination, croissance et coalescence. Il doit être précis, robuste et rapide pour être applicable au procédé FSW. Un modèle de classe couplé à des calculs d'équilibre thermodynamiques a été choisi dans cette étude. Pour définir la cinétique de croissance d'un précipité, une cinétique de croissance initialement établie pour un alliage binaire a été étendue à un alliage multicomposé. Connaissant la distribution en taille des familles de précipités, les propriétés mécaniques sont définies selon un modèle empirique. La calibration anisotherme a été réalisée via un essai de DSC où signaux expérimentaux et simulés ont été comparés pour déterminer la teneur initiale des phases en présence et définir les paramètres matériaux de l'alliage. L'essai isotherme a établi le lien entre état de précipitation et propriétés mécaniques résultantes. Le modèle est appliqué à la simulation des évolutions microstructurales au cours d'une soudure FSW afin de prédire les propriétés finales du joint soudé. Les évolutions thermiques sont déterminées via l'utilisation d'un modèle macroscopique développé parallèlement dans une thèse, également portée par la Chaire Daher. Les données numériques obtenues sont comparées à des expériences instrumentées, montrant une bonne estimation des duretés. Les profils expérimentaux sont retrouvés, de même que les caractéristiques des différents domaines, validant l'approche et sa capacité à simuler efficacement les évolutions des processus de précipitation.

Mots clés : Soudage par Friction-Malaxage (FSW), Calorimétrie différentielle à balayage (DSC), Durcissement structural, Modélisation, Précipitation, AA2024.

**Precipitation modeling and mechanical properties prediction
in structural hardening aluminum alloys
Application to the friction stir welding process (FSW) of AA2024 metal sheets**

ABSTRACT: In the aeronautic industry, the friction stir welding (FSW) process is seen as an interesting option to lighten aircraft structure by replacing the standard riveting technology used to join parts. Numerical simulation is chosen to improve understanding of the different mechanisms occurring during FSW. The aluminum alloy studied is an AA2024-T3 grade. Its mechanical properties mainly derive from structural hardening mechanisms. An accurate model of precipitate evolution is essential to define hardness profile of the weld. The chosen simulation has to be robust and time-efficient in order to be suitable for the FSW process modeling. It must consider the two families of precipitates (GPB zones and S phase) and model nucleation, growth and coarsening phenomena. A PSD model is chosen and coupled with thermodynamic equilibrium calculations. To define the growth kinetics of precipitates, an exact analytical solution is extended to a multi-component alloy. Knowing the distribution of precipitates size, the mechanical properties are defined based on an empirical model. The amount and properties of phases are initialized through non-isothermal DSC calibration and comparison between experimental heat flux and simulated one. Isothermal test is selected to establish the link between precipitation state and mechanical properties. The model is applied to the simulation of microstructural evolution in FSW in order to predict the final properties of the weld. Thermal changes are determined through the use of a macroscopic model developed during a twin project within the Chair Daher. Numerical results are compared with instrumented experiments and show a good estimate of hardness. The experimental profiles are found, as well as the characteristics of the different areas. This validates the approach and its efficiency to simulate the evolution of the precipitation process.

Keywords : FSW, DSC, Structural hardening, Modeling, Precipitation, AA2024.