

Université Mohamed Khider – Biskra
Faculté des Sciences et de la technologie
Département : Génie Mécanique
Ref :



جامعة محمد خيضر بسكرة
كلية العلوم و التكنولوجيا
قسم: الهندسة الميكانيكية
المرجع:

Thèse présentée en vue de l'obtention
Du diplôme de

Doctorat en : Métallurgie

Spécialité (Option) : Métallurgie

**Elaboration et caractérisation physico-chimique
d'alliages composites à base d'Aluminium et de
Magnésium par multi-colaminage et recuits**

Présentée par :

BENCHERIFA Ismail

Soutenue publiquement le 11/01/2023

Devant le jury composé de :

M. BOUMRZOUG Zakaria	Professeur	Président	Université de Biskra
M. BRADAI Djamel	Professeur	Directeur de thèse	USTHB
M. BENTRAH Hamza	Professeur	Examineur	Université de Biskra
Mme HAMDI Ines	MCA	Examineur	Université de Biskra
M. BAZIZ Hakim	Professeur	Examineur	Université de M'Sila

Remerciements

Ce travail a été réalisé au sein de l'équipe "Transformation de Phases, Texture et Microstructure" du Laboratoire Physique des Matériaux de l'USTHB. J'exprime ma profonde reconnaissance et ma sincère gratitude à Monsieur le Professeur Djamel BRADAI pour m'avoir dirigé dans cette thèse et aussi pour la confiance qu'il m'a accordée et la patience dont il a fait preuve à mon égard. Je le remercie de m'avoir fait découvrir l'univers passionnant des textures cristallographiques, toujours dans la bonne humeur et de façon très ludique. Je le remercie surtout pour son amitié et ses encouragements.

Je remercie tout particulièrement le Professeur Baya ALILI pour sa présence, son encouragement et pour le temps qu'elle m'a consacré, tout le long de ce chemin.

Je remercie vivement Monsieur le Professeur BOUMERZOUG Zakaria de l'Université de Biskra de m'avoir fait l'honneur de présider le jury. Mes sincères remerciements vont au Professeur BENTRAH Hamza et le de l'Université de Biskra d'avoir accepté d'examiner mon travail. Mes remerciements vont également au Docteur HAMDI Ines de l'Université de Biskra qui a accepté de juger ce travail. Mes sincères remerciements vont au Professeur BAAZIZ Hakim de l'Université de M'Sila qui est accepté d'examiner mon travail.

Je tiens à exprimer ma profonde gratitude à Monsieur le Docteur Thierry BAUDIN- et à Monsieur le Docteur François BRISSET pour leur précieuse aide dans la texture et l'EBSD.

Mes remerciements s'adressent également aussi au les Docteurs Dominique THIAUDIERE et Cristian MOCUTA du Synchrotron SOLEIL, L'Orme des Merisiers, Saint-Aubin-France pour son aide à l'analyse de la Diffraction des Rayons X sous rayonnement synchrotron

Je n'oublie pas de remercier mes collègues de l'équipe Transformation de Phases, Texture et Microstructure, les Docteurs ABIB, MEHDI, KORICHE, et les doctorants HADDOU,

DABOU, BIBIMOUNE et ABERKANE pour leur aide et leur encouragement ainsi que ceux qui ont fait partie de loin ou de près tout au long de ce travail.

Enfin, je dédie ce travail à mes parents, mes frères, mes sœurs, toute la famille, mes amis, et mon LAWZ en témoignage de ma profonde affection et mon éternelle reconnaissance pour leur soutien pendant toutes mes études depuis mon premier examen jusqu'au Doctorat.

Résumé. L'objectif principal de cette thèse était d'approfondir l'étude de diverses propriétés métallurgiques et physico-chimiques d'alliages à base d'aluminium et de magnésium, spécifiquement des composites laminés hyper-déformés par la technique ARB. Cette investigation a impliqué l'utilisation de la microscopie électronique à balayage (MEB) conjointement avec l'EDX et l'EBS, la diffraction des rayons X sous rayonnement synchrotron (SXR), les tests de nano-indentation, ainsi que des tests électrochimiques. Une attention particulière a été portée à l'analyse approfondie du rôle des composés intermétalliques formés aux interfaces. Les analyses EBS et SXR ont mis en évidence la formation de composés intermétalliques polycristallins après 2 cycles ARB, avec une croissance colonnaire et normale à l'interface. Les composés intermétalliques $Mg_{17}Al_{12}$ et Al_3Mg_2 ont été caractérisés par une texture aléatoire. Il a été démontré que la vitesse de corrosion était étroitement liée au niveau de déformation de l'ARB, et les couches d'AZ31 semblaient exercer une influence prédominante sur le processus de corrosion.

Abstract. The main objective of this thesis was to deepen the study of various metallurgical and physico-chemical properties of aluminum and magnesium-based alloys, specifically hyper-deformed laminated composites through the ARB technique. This investigation involved the use of scanning electron microscopy (SEM) in conjunction with EDX and EBSD, X-ray diffraction under synchrotron radiation (SXR), nano-indentation tests, as well as electrochemical tests. Special attention was given to the in-depth analysis of the role of intermetallic compounds formed at the interfaces. EBSD and SXR analyses highlighted the formation of polycrystalline intermetallic compounds after 2 ARB cycles, with columnar and normal growth at the interface. The $Mg_{17}Al_{12}$ and Al_3Mg_2 intermetallic compounds were characterized by a random texture. It was demonstrated that the corrosion rate was closely related to the ARB deformation level, and the AZ31 layers appeared to exert a predominant influence on the corrosion process.

المخلص . الهدف الرئيسي لهذه الرسالة كان الدراسة المعمقة لمختلف الخصائص المعدنية والفيزيوكيميائية للمركب المختلط من الألومنيوم والمغنيسيوم و المصنع بتقنية الدرفلة المتعددة ARB. شملت هذه الدراسة استخدام المجهر الإلكتروني الماسح (MEB/EDS/EBS)، وانحراف أشعة الأشعة السينية تحت إشعاع السينكروترون (SXR)، واختبارات الصلابة النانوية، وكذلك الاختبارات الكهروكيميائية. تم تكريس اهتمام خاص لتحليل دور المركبات البينية التي تتشكل عند الحدود بشكل عميق. أظهرت تحليلات EBS و SXR كوين مركبات بينية متعددة البلورات بعد الدورة الثانية من ARB، مع نمو عمود عند الحدود. تميزت المركبات البينية $Mg_{17}Al_{12}$ و Al_3Mg_2 بنسيج عشوائية. تم الإظهار بأن سرعة التآكل كانت مرتبطة ارتباطاً وثيقاً بمستوى تشوهه، مع التأثير السائد لطبقات AZ31 على السلوك العام للتآكل.

Liste des tableaux

Tableau I.A.1 : Positions de <i>Wyckoff</i> et nombre de coordination de la phase χ -(Al ₁₂ Mg ₁₇).	18
Tableau I.A.2: Distances atomiques dans la phase Al ₁₂ Mg ₁₇ par rapport à quatre positions atomiques.	19
Tableau I.B.1 : Paramètres signalés pour colaminage à chaud du LMCs Mg-Al avec une seule passe	24
Tableau I.B.2 : Paramètres signalés pour colaminage à chaud du LMCs Mg-Al avec plusieurs passes.	25
Tableau I.B.3 : Paramètres rapportés du processus ARB	31
Tableau II.1 : Composition chimique de l'Al1050 (% massique)	61
Tableau II.2 : Composition chimique de l'alliage AZ31 (%massique)	62
Tableau II. 3: Protocole de laminage d'un composite laminé Al 1050/AZ31/Al 1050 par ARB.	63
Tableau III.A.1 : Propriétés mécaniques des phases IMC Al-Mg mesurées dans ce travail (en gras) comparées aux valeurs publiées pour Al-Mg, compilées à partir de la littérature	109
Tableau III.A.2 : Analyse de variance	112
Tableau III.B.1 : Paramètres électrochimiques obtenues des courbes de polarisation potentiodynamique	119
Tableau III.B.2 : Les paramètres électrochimiques obtenus des fits des courbes du composite laminé.	125
Tableau III.B.3 : Les paramètres électrochimiques obtenus des fits des courbes de référence ARB Al	125
Tableau III.B.4 : Modèles utilisés pour la détermination de la capacité effective à partir des résultats EIS.	126

Liste des figures

Figure I.A.1 (a) Diagramme de phase partiel établi par <i>Zuo et Chang</i> .(b) Diagramme de phase partiel proposé par <i>Su et al.</i> , (c) Diagramme de phase partiel proposé par <i>Murray</i> et (d) Diagramme de phase partiel proposé par <i>Okamoto</i> .	8
Figure I.A.2: Illustration schématique de la diffusion dans le système binaire A B. (a) Selon le diagramme de phase, le composé $ApBq$ est le premier à se former à l'interface A-B (p et q sont des nombres positifs), (b) Plus tard, $ArBs$ (où r et s sont des nombres positifs) commence à se former à l'interface $ApBq - B$. L'épaisseur des phases correspondantes est donnée par x et y.	10
Figure I.A.3: (a) Structure hexagonale empilée et (b) Positions des atomes en projection du plan basal.	12
Figure I.A.4 : Les directions et les plans de la maille élémentaire du magnésium.	13
Figure I.A.5 La maille élémentaire d' Al_3Mg_2 (phase β) : les sphères rouges représentent les atomes de Mg et les sphères bleues les atomes d'Al.	15
Figure I.A.6 : Représentation schématique des structures cristallines β et β' , image modifiée d'après. Les cercles ouverts représentent les atomes d'Al et le cercle noir les atomes de Mg. Les cercles noirs et blancs indiquent les atomes avec SOF=1 et les cercles gris indiquent les atomes avec SOF=0.3.	15
Figure I.A.7: Coupe transversale de la structure cristalline d' Al_3Mg_2 montrant les différentes couches, modifiée d'après.	16
Figure I.A.8 Structure cristalline idéale d' Al_3Mg_2 .	17
Figure I.A.9 : Structure cristalline de 3-phases ($Al_{12}Mg_{17}$), constituée de quatre polyèdres.	18
Figure I.A.10: (a) Structure cristalline de la phase χ ($Al_{12}Mg_{17}$). Les 4 positions atomiques différentes et les sites atomiques sont marqués, (b) Projection le long du plan a, b avec le nombre Z entre 0 et 0,218.	19
Figure I.B.1. Schéma de colaminage à chaud.	23
Figure I.B.2 Micrographies MEB montrant la microstructure de l'interface des LMC Al/Mg/Al par colaminage multipasses. (a) LMC 1060/Mg-Al-Mn-Ce/1060, (b) 6061/AZ31/6061.	25
Figure I.B.3 Illustration des nouvelles tôles trimodales combinées avec une matrice d'aluminium à gros grains, des nanoparticules de Ti et de $TiAl_3$.	27
Figure I.B.4 (a) Image TEM en champ clair de l'interface Cu/Al après 423 K, 1 h de traitement, (b) Formation de Al_2Cu le long de l'interface Cu/Al après 423 K, 20 h de traitement ; (c) Image HRTEM d' Al_2Cu avec un faisceau d'électrons parallèle à la direction [001] ; (d) Précipités d' Al_2O_3 le long de l'interface Al/ Al_2Cu après 573 K, 10 h de traitement.	27
Figure I.B.5 Schéma du processus de cryogénie et de la morphologie du composite laminé Al/Ti/Al.	29
Figure I.B.6. Illustration schématique de l'ARB.	30

Figure I.B.7 Illustration schématique de : (a) Soudage par extrusion accumulative (accumulative extrusion bonding), (b) Soudage par rouleaux emballés (Pack roll bonding technique), (c) Technique de laminage à plat ondulé (the corrugated-flat rolling technique).	32
Figure I.B.8 Schéma du processus de colaminage des métaux dissemblables de la théorie de <i>Bay</i> .	33
Figure I.B.9 Représentation schématique du mécanisme de soudage d'un LMCs en Al/acier nitruré par la procédé de colaminage à chaud.	34
Figure I.B.10 Schémas du mécanisme de soudage d'un composite laminé Al/acier nitruré par le procédé de colaminage à froid.	35
Figure I.B.11 Schéma de l'évolution de la microstructure des LMCs d'aluminium 2219/5086 fabriqués par ARB : (a) les quatre premières cycles ; (b) 5 ^{ème} et 6 ^{ème} cycles ; (c) 7 ^{ème} et 8 ^{ème} cycles.	36
Figure I.B.12 Illustration de l'interface pendant le colaminage: (a) Avant le colaminage ; (b, c) Interface avec une réduction plus importante grâce au colaminage à froid ; (d, e) Interface avec une réduction plus importante grâce au colaminage cryogénique.	37
Figure I.B.13 Effet de la couche intermédiaire SUS304 sur la microstructure interfaciale et la propagation des fissures dans une tôle plaquée Cu/Al.	39
Figure I.B.14 Mécanisme de promotion des éléments d'alliage sur la formation de liaisons covalentes à haute résistance.	40
Figure I.B.15 Mécanisme de promotion de la déformation par cisaillement interfaciale sur l'affinement du grain et l'amélioration de la texture.	41
Figure I.C.1 : Augmentation des taux de dioxyde de carbone dans l'atmosphère et l'anomalie de température globale.	46
Figure I.C.2 : Potentiels libres de corrosion en solution neutre de chlorure mesuré contre une électrode de calomel saturé (SCE), redessiné selon	50
Figure I.C.3 : Courbes PDP du Mg de haute et ultra-haute pureté (HP et UHP, respectivement) dans une solution de NaCl.	55
Figure I.C.4. Représentation des droites de Tafel.	56
Figure I.C.5 : Représentation graphique du courant et de la tension en fonction du temps	57
Figure I.C.6: Courbe Nyquist d'un composite laminé Al1050/AZ31/Al1050 après 1 cycle ARB, après 1h d'immersion en circuit ouvert dans une solution de 3.5% NaCl, présentant un comportement de type inductif aux basses fréquences.	58
Figure II.1 : (a) principe de l'ARB, (b) Outils de préparation des tôles.	62
Figure II.2 : Principe de formation des lignes de Kikuchi.	65
Figure II.3 : Le microscope électronique à balayage équipé du système d'analyse EBSD (SP2M/ICMMO, Université Paris-Saclay, France).	67
Figure II.4 : (a) La brillance moyenne des sources de rayons X, (b) Les composants du rayonnement synchrotron, 1 : Canon à électron, 2 : LINAC, 3 : Booster Ring, 4 : Storage Ring, 5 : Stations expérimentales.	69
Figure II.5 : (a) Détecteur CirPAD installé sur le diffractomètre de la ligne de lumière DIFFABS Au Synchrotron SOLEIL montrant : 1) Détecteur global, 2) l'arche, 3) goniomètre principal, 4) diffractomètre, 5 et 6) platines motorisées, 7) translateur manuel. b) Le détecteur CirPAD dans le deux positions de travail, avec un angle de 90 ou 0° entre son plan de détection et la direction du faisceau incident.	70
Figure II.6 : Nano-indenteur Hysitron Tribo-indenter (Plateau Technique, USTHB)	71

Figure II.7 : Montage et appareil de mesures électrochimiques, (Laboratoire LPCMA, UMKB).	73
Figure II.8 : Microscopie Electronique à balayage type SEM, JEOL 6360, (Faculté de GM&GP, USTHB).	75
Figure II.9 : Le principe de base de la spectroscopie Raman avec les différents types de diffusion de la lumière.	76
Figure II.10 : Principe de la loi de Bragg sur un réseau cristallin.	77
Figure III.A.1: Micrographes obtenues par MEB des composites laminés Al1050/AZ31/Al1050 après le procédé ARB: a) 1 cycle, b) 2 cycles, c) 3 cycles, d) 4 cycles, e)5 cycles, f) cycles dans le plan DL-DN.	79
Figure III.A.2: Variation de l'épaisseur des couches d'Al1050 et d'AZ31 dans le composite laminé en fonction des cycles ARB.	80
Figure III.A.3: Analyse EDS de l'interface dans les composites laminés Al1050 /AZ31/Al1050 après 2 cycles ARB : (a) Micrographie MEB ; (b) Analyse EDS de l'interface par balayage linéaire.	81
Figure III.A.4: Épaisseur moyenne des composés intermétalliques Al_3Mg_2 et $Mg_{17}Al_{12}$ après différents cycles ARB.	82
Figure III.A.5: Micrographie MEB d'un composite laminé Al1050/AZ31/Al1050 après 4 cycles ARB. Les fissures des composés intermétalliques sont représentées, (a) fissures discontinues et (b) fissures continues.	83
Figure III.A.6 : Morphologies de la région de forme irrégulière. (a) Micrographie MEB, (b) Analyse EDS linéaire.	84
Figure III.A.7: IPF maps après : a) 2, b) 4 et c) 6 cycles ARB.	87
Figure III.A.8: Taille moyenne des grains après différents cycles ARB.	88
Figure III.A.9: Histogramme des désorientations des joints des grains de la couche d'Al1050 après 2,4 et 6 cycles ARB.	89
Figure III.A.10 : Évolution de HAGB en fonction du nombre de cycles ARB des couches d'Al 1050.	89
Figure III.A.11 : Histogrammes des désorientations du jointes des grains des intermétalliques après différents ARB cycles (a) Al_3Mg_2 , (b) $Mg_{17}Al_{12}$.	91
Figure III.A.12 : Cartes KAM du composite laminé Al 1050/AZ31/Al 1050 après : a) 2 cycles, b) 4 cycles, c) 6 cycles ARB.	94
Figure III.A.13 : Densité de dislocations du composite laminé Al1050/AZ31/Al1050 après différents cycles ARB, a) estimée par EBSD et b) par SXRD.	95
Figure III.A.14 : Partie d'un Diffractogramme obtenu par SXRD pour le composite hybride Al 1050/AZ31/Al1050 après N=2-6 cycles ARB	98
Figure III.A.15: Figures de pôles (0002) de la couche AZ31, a) après 2, b) 4 et c) 6 cycles ARB.	100
Figure III.A.16 : Sections ODF à $\phi_2 = 0, 45$ et 65° de la couche d'Al1050 après : a) 2, b) 4 et c) 6 cycles ARB du composite laminé Al1050 /AZ31/Al1050.	102
Figure III.A.17: Intensité maximale des principales composantes de la texture de la couche d'Al 1050 en fonction du nombre de cycles ARB.	103
Figure III.A.18 : Variation de l'intensité dans les fibres α , β et τ de la couche d'Al 1050 après différents cycles ARB.	104

Figure III.A.19 : Figures de pôles (111) des composés intermétalliques après différents cycles ARB (a) Al_3Mg_2 , (b) $Mg_{17}Al_{12}$.	105
Figure III.A.20 : Courbe de déplacement - charge de toutes les phases après 2, 4 et 6 cycles ARB.	107
Figure III.A.21 : Courbe de déplacement - charge de (a) Al_3Mg_2 , (b) $Mg_{17}Al_{12}$	107
Figure III.A.22 : Histogramme de la nano-dureté et du module d'élasticité de : (a) Al_3Mg_2 et $Mg_{17}Al_{12}$, (b) Al1050 et AZ31	108
Figure III.A.23 Distribution et histogrammes des angles de désorientation des intermétalliques par rapport à la direction de laminage.	110
Figure III.A.24 : Evolution de la microdureté en fonction du nombre de cycles ARB.	111
Figure III.B.1 : Courbes OCP dans une solution de NaCl à 3,5 % de (a) Al1050/AZ31/Al1050 jusqu'à six cycles ARB, (b) ARB Al après un cycle.	117
Figure III.B.2 : Courbes de polarisation potentiodynamique du composite laminé Al1050/AZ31/Al1050 jusqu'à six cycles ARB et ARB Al après un cycle dans une solution de NaCl 3.5 %.	118
Figure III.B.3. Evolution de la résistance de polarisation (R_p) en fonction de l'inverse du carré de la taille des grains des couches d'AZ31.	121
Figure III.B.4 Courbes de Nyquist dans la solution NaCl 3.5%, (a) Al1050/AZ3/Al 1050 jusqu'à six cycles ARB, (b) Al ARB après un cycle.	123
Figure III.B.5 Circuit électrique équivalent dans la solution NaCl 3.5% (a) du composite laminé Al1050/AZ31/Al1050, (b) de l'ARB Al.	124
Figure III.B.6 : Épaisseur calculée des films d'hydroxyde formés sur les échantillons Al 1050/AZ3/ Al 1050 jusqu'à six cycles ARB dans une solution de NaCl à 3,5% en utilisant les modèles de distribution simple, HSU& MANSFELD, BRUG et POWER-LAW.	127
Figure III.B.7 : Micrographie MEB et analyse EDS ponctuelle (indiquée par les flèches) montrent la morphologie et les produits de corrosion de composite laminé dans une solution de NaCl à 3,5%.	128
Figure III.B.8 : Spectres de Raman après le test électrochimique, (a) du composite laminé, (b) ARB Al.	131
Figure III.B.9 : Diffractogramme des rayons X du composite laminé dans la solution NaCl 3.5%, (a) avant les tests électrochimique, (b) après les tests électrochimique	133

Sommaire

Remerciements

Résumé

Liste des tableaux

Liste des figures

Introduction generale 1

Références 5

CHAPITRE I: GENERALITES ET CONSIDERATIONS THEORIQUES

PARTIE A : LE DIAGRAMME DE PHASE BINAIRE Al-Mg

I.A.1 État de l'art 6

I.A.1.1 Le diagramme de phase binaire Al-Mg et intermétalliques présents 6

I.A.1.2 Cinétique et thermodynamique de la formation de phases par interdiffusion des métaux élémentaires..... 8

I.A.2 Structure cristalline du Mg 12

I.A.3 Structure cristalline de l'Al 12

I.A.4 Structure cristalline de la phase Al_3Mg_2 13

I.A.5 Structure cristalline de la phase $Al_{12}Mg_{17}$ 17

Références 20

PARTIE B : LES COMPOSITES METALLIQUES LAMINES (LMCS) PRODUITS PAR LE COLAMINAGE (ÉTAT DE L'ART

I.B.1 Introduction 22

I.B.2 Les techniques de colaminage pour la fabrication des LMCs..... 22

I.B.2.1 Le colaminage à chaud 23

I.B.2.2 Le colaminage à froid 25

I.B.2.3 Le colaminage cryogénique 28

I.B.2.4 Le Multi-colaminage (ARB)..... 30

I.B.2.5 Autres techniques de colaminage..... 31

I.B.3 Mécanisme d'adhésion de l'interface du LMCs pendant le colaminage 32

I.B.3.1 Théories de colaminage 32

I.B.3.2 Mécanisme d'évolution de l'interface du LMCs..... 33

I.B.4 Principaux facteurs pour améliorer les performances des LMCs..... 37

I.B.4.1 Paramètres de traitement thermique et de laminage appropriés..... 37

I.B.4.2	Ajout de métal intermédiaire	38
I.B.4.3	Amélioration de la déformation par cisaillement interfaciale	40
	Références	42
<i>PARTIE C : GENERALITES SUR LA CORROSION DU MAGNESIUM ET SES ALLIAGES</i>		
I.C.1	Introduction	46
I.C.1.1	La recherche d'une " légèreté "	46
I.C.1.2	Les propriétés attractives d'un métal unique	47
I.C.1.3	Historique de la corrosion du Mg	48
I.C.2	La corrosion du magnésium et de ses alliages	49
I.C.2.1	Les réactions de corrosion	51
I.C.2.2	Le film de surface	51
I.C.2.3	Comportement à la corrosion des alliages de magnésium AZ31	52
I.C.2.3.1	Comparaison avec à d'autres alliages	52
I.C.3	Influence de la structure cristalline sur la corrosion	
	Error! Bookmark not defined.	
I.C.4	Influence des paramètres métallurgiques sur le comportement de la corrosion....	53
I.C.4.1	Éléments d'alliage et phases intermétalliques	53
I.C.4.2	Taille des grains et présence des macles :	54
I.C.5	Les techniques électrochimiques pour l'étude de la corrosion du Mg et ses alliage	54
I.C.5.1	La polarisation potentiodynamique (PDP)	55
I.C.5.2	La spectroscopie d'impédance électrochimique (EIS)	56
I.C.5.2.1	Avantages de cette technique	57
I.C.5.2.2	Limites de cette techniques	58
	Références	59
<i>CHAPITRE II : MATÉRIAUX, PROCÉDÉS ET TECHNIQUES EXPÉRIMENTALES</i>		
II.1	Présentation des alliages étudiés	61
II.1.1	L'alliage Al1050	61
II.1.2	L'alliage AZ31	61
II.2	Procédé : Elaboration du composite laminé Al1050/AZ31/Al1050 par ARB	62
II.3	Techniques expérimentales	63
II.3.1	Caractérisation de la texture et de la microstructure	63
II.3.1.1	Diffraction des électrons rétrodiffusés (EBSD)	63

II.3.1.1.2 Préparation des échantillons.....	63
II.3.1.1.2 Principe d'EBSD.....	64
II.3.1.2 Diffraction des rayons X sous rayonnement synchrotron (SXRD)	67
II.3.2 Tests de nano indentation.....	71
II.3.3 Caractérisation électrochimique par essais de corrosion.....	71
II.3.3.1 Préparation du milieu d'étude et des échantillons pour la caractérisation électrochimique.....	71
II.3.3.2 Techniques électrochimiques.....	72
II.3.4 Techniques d'analyses des surfaces corrodées.....	74

CHAPITRE III : RESULTATS ET DISCUSSIONS

PARTIE A : ANALYSE DE LA MICROSTRUCTURE, TEXTURE ET PROPRIETES MECANIQUES DE LMC Al1050/AZ31/Al1050 APRES ARB

III.A.1 Introduction	78
III.A.2 Evolution de la microstructure de l'AZ31, Al 1050 et IMCs	78
III.A.3 Analyse par diffraction des rayons X sous rayonnement synchrotron (SXRD) .	96
III.A.4 Évolution de la texture du composite laminé Al1050/AZ31/Al1050	99
III.A.5 Évolutions des propriétés micromécaniques du composite laminé Al1050/AZ31/Al1050 après ARB.....	106
III.A.6 Analyse de l'évolution des angles de désorientation des intermétalliques par rapport à la direction de laminage et la microdureté Vickers.....	109
III.A.6.1 Distribution des angles de désorientation	109
III.A.6.1 Analyse de la variance et possibilité de corrélations systématiques entre les angles de désorientation, le nombre de cycles et la microdureté Vickers :	111
Références.....	113

PARTIE B : ETUDE DU COMPORTEMENT A LA CORROSION D'UN LMC Al1050/AZ31/Al1050 APRES ARB

III.B.1 Introduction	115
III.B.2 Evolution des propriétés électrochimiques du composite laminé Al1050/AZ31/Al1050 après ARB.....	116
III.B.2.1 Potentiel en Circuit Ouvert (OCP).....	116
III.B.2.2 Polarisation potentiodynamique (PDP)	118
III.B.2.3 Spectroscopie d'impédance électrochimique (EIS).....	121
III.B.2.4 Détermination de la capacité effective et de l'épaisseur de la couche de corrosion	

III.B.3	Morphologie et produit de la corrosion	127
III.B.3.1	Analyse des surfaces corrodées par MEB/EDS.....	127
III.B.3.2	Analyse des surfaces corrodées par spectroscopie Raman.....	130
III.B.3.3	Analyse des surfaces corrodées par diffraction des rayons X.....	132
Références	138
Conclusion Générale	141
Perspectives	142

INTRODUCTION GENERALE

Introduction générale

La fabrication de composites métalliques hybrides (LMCs pour Laminated Metal Composites) contenant différents composants est un procédé efficace pour améliorer les propriétés mécaniques, c'est-à-dire la plasticité, la rigidité, la résistance interlaminar, la résistance à l'abrasion, etc. [1]. Une plaque composite multicouche métallique est un LMCs typique [2]. Ces dernières années, la communauté scientifique des matériaux s'est intéressée de plus en plus à l'utilisation des LMCs pour des applications structurelles en raison de leurs propriétés exceptionnelles. Cela a conduit à la fabrication réussie d'une gamme variée des LMCs, notamment Ti/Al [3], Ni/Ti [4], Al/Cu [5], Al/Acier [6], et Mg/Al [7], pour n'en citer que quelques-unes.

En particulier, les alliages à base d'Aluminium et les alliages à base Magnésium, en raison de leur faible densité, sont largement utilisés comme matériaux légers dans plusieurs domaines, notamment dans l'automobile, l'aérospatiale et les applications comme biomatériaux [8]. Par conséquent, ils présentent une compatibilité métallurgique appropriée ainsi que des températures de fusion et de recristallisation très proches [9].

Le développement du LMCs Mg/Al a été prédit comme une approche prometteuse pour combiner les caractéristiques souhaitables de métaux dissemblables au sein d'un seul matériau composite. L'Aluminium et ses alliages sont depuis longtemps reconnus pour leur exceptionnelle formabilité et leur résistance à la corrosion, ce qui en fait un candidat idéal pour ce type d'applications [10]. En revanche, le Magnésium et ses alliages, dont la densité est égale à un quart de celle de l'acier, ont une excellente capacité d'amortissement, bonne recyclabilité, une rigidité spécifique élevée et une grande résistance [11]. *Rahmatabadi et al.* [12] indiquent que la résistance à la traction maximale du LMCs Al/Cu/Mg fabriqué par le procédé ARB (Pour : Accumulative Roll Bonding) était proche de 355,5 MPa. Cette valeur était environ 3,2, 2 et 2,1 fois plus élevée que les valeurs nominales correspondantes respectivement au Magnésium, au Cuivre et à l'Aluminium.

En effet, en raison des grandes différences des propriétés physiques, chimiques et de structures cristallines, la combinaison d'un alliage d'Aluminium et d'un alliage de Magnésium reste confrontée à de grands problèmes. Malheureusement, il est très difficile d'appliquer le procédé de fusion pour combiner les tôles d'alliages d'Aluminium et de Magnésium. La formation de

INTRODUCTION GENERALE

composés intermétalliques (IMC) entraînera la fragilisation des matériaux en raison des taux élevés de diffusion dans la phase liquide [13].

Cependant, outre le procédé ARB, d'autres techniques ont été employées pour développer le composite laminé Mg/Al, comme le soudage par friction-malaxage (FSW pour Friction Stir welding) [14], le soudage par explosion [15] et la fonderie composite (compound casting)[16]. Parmi ces techniques, le procédé ARB, en tant que technique de déformation plastique sévère (SPD : Severe Plastic Deformation), est l'une des techniques les plus populaires pour les applications industrielles. Ses avantages et caractéristiques communs sont une efficacité de production élevée, une haute qualité de produit, une stabilité, un traitement simple et une production de masse facile [12].

En outre, le procédé ARB est considéré comme une technique de soudage à l'état solide. Les soudures à l'état solide sont principalement de deux types : mécaniques et par diffusion [17]. Ainsi, pendant le procédé ARB de deux ou plusieurs métaux dissemblables, la structure de la couche de diffusion dépend de l'inter-diffusion des atomes et de la formation d'IMC aux interfaces. Selon le diagramme de phases Al-Mg, différents IMCs peuvent se former à l'interface Al/Mg, tels que $Mg_{17}Al_{12}$ et Al_3Mg_2 , et la structure et la composition de la couche de diffusion ont été largement étudiées dans les LMCs Mg/Al fabriqués par divers procédés [14]. Jusqu'à présent, d'autres IMCs possibles présents dans le système Mg-Al (par exemple les phases R ou ϵ , et λ) n'ont pas été mis en évidence dans les études de soudage [13].

Les phases intermétalliques se forment lorsque des éléments métalliques différents réagissent chimiquement et forment des composés stœchiométriques caractérisés par une structure cristalline ordonnée. Dans le cas d' Al_3Mg_2 et $Mg_{17}Al_{12}$, ces phases intermétalliques résultent de la combinaison spécifique des atomes d'aluminium (Al) et de magnésium (Mg) dans des proportions définies. Ces composés intermétalliques peuvent avoir des propriétés mécaniques et thermiques distinctes par rapport aux phases pures des métaux individuels. La formation de ces phases intermétalliques peut jouer un rôle crucial dans la détermination des propriétés globales des alliages Al/Mg, influençant ainsi leur comportement mécanique, leur résistance à la corrosion, et d'autres caractéristiques importantes. Comprendre la nature et les propriétés de ces phases intermétalliques est essentiel pour concevoir des alliages avec des performances optimales dans diverses applications industrielles.

INTRODUCTION GENERALE

Lorsque les IMCs ont formé une couche continue à l'interface Mg/Al, la croissance ultérieure n'est possible que par diffusion à travers l'IMC lui-même et un changement brutal de la cinétique est souvent observé [18]. En général, les IMCs ont des propriétés différentes de celles des métaux de base. Par conséquent, les microstructures des métaux de base et des IMCs formés à l'interface Mg/Al ont un effet significatif sur la résistance à l'adhérence et les propriétés mécaniques des LMCs. Par conséquent, le contrôle de la formation de la couche IMC est essentiel pour assurer les propriétés de l'interface.

Dans un LMCs Al/Mg/Al produit par ARB, *Habila et al.*[7] ont rapporté que la diminution de la limite d'élasticité et de la résistance à la rupture après 3 cycles ARB est principalement due à la rupture et à la fissuration des IMCs qui sont apparues après le quatrième cycle. Malheureusement, les études expérimentales sur le comportement métallurgique du développement des IMCs ne peuvent pas expliquer le mécanisme physique derrière ce phénomène, car leur formation et leurs caractéristiques cinétiques sont extrêmement complexes à quantifier. C'est pourquoi plusieurs études ont développé des modèles qui permettent de prédire la cinétique de croissance des phases intermétalliques (IMCs) formées à l'interface entre deux métaux dissimilaires [9].

Le comportement des dislocations pendant la déformation plastique sévère dans les LMCs joue un rôle crucial dans la ductilité et la résistance des matériaux. Par conséquent, pour mieux comprendre la microstructure des LMCs, il est important d'utiliser différentes méthodes de caractérisation afin d'évaluer quantitativement la densité de dislocations et le comportement de durcissement de chaque couche dans les LMCs sous l'effet de l'hyperdéformation. D'un point de vue technique, il est important de noter qu'il est difficile d'estimer la densité de dislocations et son évolution près de l'interface dans les LMCs par des approches conventionnelles telles que la microscopie électronique à transmission (MET) et/ou la DRX conventionnelle en raison de la nature inhomogène des glissements de dislocations [19].

Toutefois, ces dernières années, des progrès significatifs dans le développement de nouvelles techniques de caractérisation expérimentale ont ouvert des perspectives prometteuses, telles que la diffraction d'électrons rétrodiffusés (EBSD pour Electron BackScatter Diffraction) et la diffraction des rayons X par rayonnement synchrotron (SXRD pour Synchrotron X-Ray Diffraction).

INTRODUCTION GENERALE

C'est dans ce cadre que s'inscrit notre travail qui se veut une contribution à l'étude de la microstructure, texture, propriétés mécaniques d'un LMCs Al1050/AZ31/Al1050 après l'hyperdéformation par ARB. En outre, un examen approfondi de la littérature existante suggère un manque de connaissances sur la texture et la microstructure des IMCs dans les LMCs Mg/Al produits par ARB.

En deuxième partie, la tenue en corrosion aqueuse (dans une solution de NaCl) a été étudiée.

Ce manuscrit est divisé en trois chapitres pour rendre compte de cette étude.

Dans le premier chapitre, nous présentons des considérations générales et aspects théoriques sur le diagramme de phase binaire Mg/Al, des notions fondamentales sur le colaminage, et une généralité sur la corrosion du magnésium et ses alliages

Dans le deuxième chapitre, nous présentons les matériaux étudiés, la méthode de colaminage utilisée ainsi que les procédés et techniques expérimentales de caractérisations.

Dans le troisième chapitre, seront présentées les deux parties essentielles : L'une, concerne l'étude de l'évolution de la microstructure, texture et des propriétés mécaniques du LMCs Al1050/AZ31/Al1050 puis dans l'autre, investigation du comportement de la corrosion.

Enfin, une conclusion et des perspectives seront présentées.

Références

- [1] H. Nie, W. Liang, H. Chen, F. Wang, T. Li, C. Chi, X. rong Li, J. Alloys Compd. 781 (2019) 696–701.
- [2] Y. Di Boon, S.C. Joshi, Mater. Today Commun. 22 (2020).
- [3] Z. Li, Y.C. Lin, L. Zhang, J. Zheng, J. Zhao, R. Wang, Z. Jiang, Int. J. Mech. Sci. 231 (2022).
- [4] M. Mokhles, M. Hosseini, H. Danesh-Manesh, S.M. Zebarjad, J. Compos. Mater. 54 (2020) 1119–1126.
- [5] J. Lee, H. Jeong, Mater. Lett. 331 (2023) 133474.
- [6] K. Verstraete, L. Prévond, A.L. Helbert, T. Baudin, Adv. Eng. Mater. 21 (2019) 1–8.
- [7] W. Habila, H. Azzeddine, B. Mehdi, K. Tirsatine, T. Baudin, A.L. Helbert, F. Brisset, S. Gautrot, M.H. Mathon, D. Bradai, Mater. Charact. 147 (2019) 242–252.
- [8] P. Kumar, A. Madhup, P.R. Kalvala, S. Suwas, Def. Technol. 16 (2020) 514–519.
- [9] K. Song, X. Liu, Y. Ji, Y. Wei, J. Luo, F. Liu, D. Liu, Z. Zhong, Met. Mater. Int. (2022).
- [10] T. Mo, H. Xiao, B. Lin, W. Li, P. Wang, K. Ma, Mater. Sci. Eng. A 857 (2022).
- [11] G.M. Lee, J.U. Lee, S.H. Park, Mater. Sci. Eng. A 855 (2022).
- [12] D. Rahmatabadi, M. Tayyebi, R. Hashemi, G. Faraji, Int. J. Miner. Metall. Mater. 25 (2018) 564–572.
- [13] A. Panteli, J.D. Robson, I. Brough, P.B. Prangnell, Mater. Sci. Eng. A 556 (2012) 31–42.
- [14] R. Beygi, H. Pouraliakbar, K. Torabi, G.E. B, V. Fallah, S.K. Kim, R. Shi, L.F.M. da Silva, J. Manuf. Process. 70 (2021) 152–162.
- [15] M. Acarer, B. Demir, B. Dikici, E. Salur, J. Magnes. Alloy. 10 (2022) 1086–1095.
- [16] F. Guan, W. Jiang, G. Li, J. Zhu, J. Wang, G. Jie, Z. Fan, J. Magnes. Alloy. 10 (2022) 2296–2309.
- [17] J.S. Kim, K.S. Lee, Y.N. Kwon, B.J. Lee, Y.W. Chang, S. Lee, Mater. Sci. Eng. A 628 (2015) 1–10.
- [18] L. Wang, Y. Wang, P. Prangnell, J. Robson, Metall. Mater. Trans. A Phys. Metall. Mater. Sci. 46 (2015) 4106–4114.
- [19] B. Bay, N. Hansen, D.A. Hughes, D. Kuhlmann-Wilsdorf, 40 (1992) 205–219

CHAPITRE I:
GENERALITES ET CONSIDERATIONS
THEORIQUES

PARTIE A :
LE DIAGRAMME DE PHASE BINAIRE Al-Mg

I.A.1 État de l'art

I.A.1.1 Le diagramme de phase binaire Al-Mg et intermétalliques présents

En général, la réaction à l'état solide entre l'aluminium (Al) et le magnésium (Mg) entraîne la formation de phases intermétalliques. Des efforts expérimentaux et théoriques considérables ont été entrepris pour étudier le diagramme de phase binaire Al-Mg. La première étude complète a été publiée par *Murray* [1], suivie par *Schürmann et Voss* [2], *Su et al.* [3], et *Okamoto* [4], la partie centrale du diagramme de phase ayant été étudiée par *Czeppe et al.* [5].

Murray [1], dans son travail, qui reste l'une des études les plus complètes sur le diagramme de phase binaire Al-Mg, a proposé l'existence de trois phases intermétalliques, à savoir γ -Al₁₂Mg₁₇ avec une composition comprise entre 45 et 60,5 % Mg, β -Al₃Mg₂ avec une composition comprise entre 38,5 et 40,3 % Mg, et une phase R, parfois appelée phase ε (*Su et al.* [3]), qui existe à une composition d'environ 44,0 % Mg.

Les phases γ et β se forment à la suite d'une réaction eutectique $L \rightarrow (Mg) + \gamma$ à environ 437 °C et d'une réaction $L \rightarrow (Al) + \beta$ à environ 450 °C ou par une réaction eutectoïde à environ 250 °C et sont stables jusqu'à la température ambiante. La gamme de composition de la phase γ varie légèrement dans la littérature par rapport à la suggestion de *Murray*, qui se situait entre 45 et 52 % de Mg. Les travaux ultérieurs de *Su et al.* [3] ont porté sur la gamme de composition de la phase γ qui est en équilibre avec les phases β et ε . Le champ de phase γ unique existe à 45,8 % de Mg à 445 °C et à 48,1 % de Mg à 350 °C.

Bien que la phase β soit signalée par *Su et al.* [3] comme ayant une composition comprise entre 38 et 40 % de Mg, elle ne change pratiquement pas avec la température. *Saunders* [6] a également suggéré une gamme de composition étroite proche ou à 38,5 % de Mg pour la phase β , qui est en fait la même valeur que celle rapportée par *Su et al.* [3].

Pour la troisième phase $R(\varepsilon)$, la gamme de composition proposée par *Murray* était une région étroite à 44 % de Mg, qui a pris en compte la perte de Mg pour ses calculs et qui est en bon accord avec *Zhou* [7] et *Su et al.* [3], ou 43,5- 44,8 % par *Okamoto* [4], et elle se forme par une réaction très lente. La phase ε a été signalée par *Schürmann et Voss* [2] que la phase ε se forme lors du refroidissement par une transformation de la phase liquide au cours de la réaction péritectique $L + \zeta \rightarrow \varepsilon$ à 450 °C [3].

CHAPITRE I: GENERALITES ET CONSIDERATIONS THEORIQUES

La présence de la phase appelée phase ζ a été suggérée par *Schiürmann et Voss* [2] pour exister dans la gamme de température de 450 °C à 435 °C avec une stœchiométrie $\text{Al}_{52}\text{Mg}_{48}$. La présence de cette phase n'est pas mentionnée dans d'autres travaux ou via une réaction péritectoïde $\gamma + \beta \rightarrow \varepsilon$ selon [8] à une température de 401 ± 5 °C [9] et 370 ± 5 °C [1].

Samson [9] a suggéré que la température élevée pour la formation de la phase ε se situe entre 380 et 395 °C, alors que *Murray* [1] a déclaré que la limite de température la plus élevée était de 405 ± 5 °C et a suggéré qu'elle se forme par une réaction péritectoïde entre les phases γ - et β à 370 ± 5 °C et qu'elle se décompose ensuite à 320 °C en phases β et γ . *Su et al.*[3] ont établi 410 °C comme limite supérieure pour cette phase et ont indiqué qu'en raison de la réaction très lente de la phase ε , il est difficile d'indiquer la limite inférieure de température, mais qu'elle pourrait se situer aux environs de 250 °C. *Czeppe et al.* [5] ont indiqué que la limite supérieure de température pour ε était 427 ± 1 °C, mais n'ont pas indiqué la limite inférieure de température pour cette phase. *Su et al.* [3] ont également suggéré la présence d'une quatrième phase, une phase λ se formant via une réaction péritectique $L + \gamma \rightarrow \lambda$ à une température de 450 °C, qui se dissocie en phases γ et β dans la gamme de températures de 435 à 445 °C.

Une constitution similaire a été suggérée par le diagramme de phase d'*Okamoto* [4]. Il a compilé certaines évaluations antérieures du diagramme de phase Al-Mg. L'existence de la phase λ n'a pas été observée dans l'étude de *Czeppe et al.* [5] et ils ont indiqué que les observations de *Su et al.* [3] pourraient être le résultat d'une contamination par l'oxyde.

En conclusion, il existe clairement un débat concernant le diagramme de phase binaire Al-Mg dans la gamme de composition entre 40 et -60 à % Mg, mais il n'y a aucun doute sur l'existence des phases γ , β et ε .

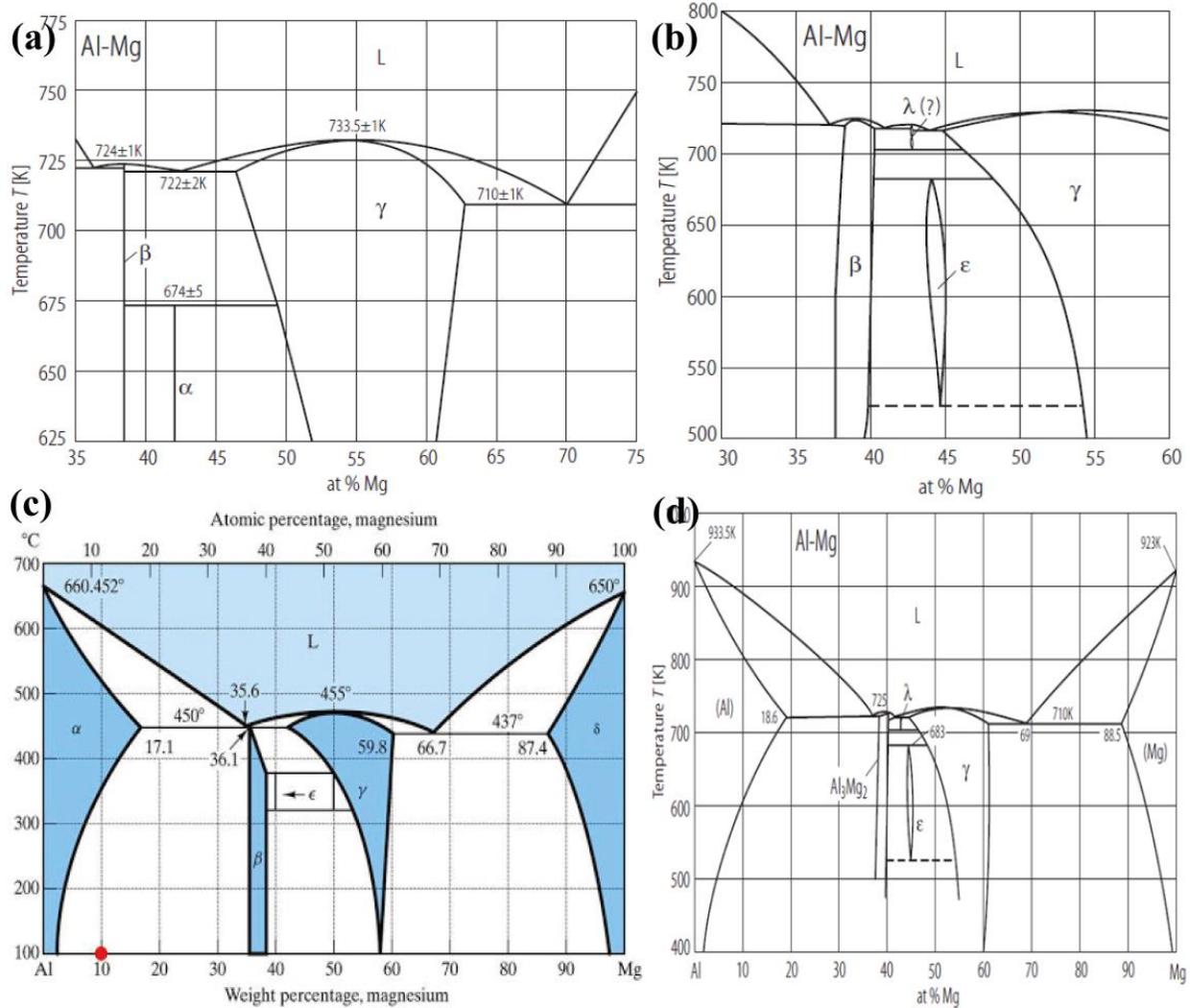


Figure I.A.1 (a) Diagramme de phase partiel établi par *Zuo et Chang* [7]. (b) Diagramme de phase partiel proposé par *Su et al.* [3], (c) Diagramme de phase partiel proposé par *Murray* [1] et (d) Diagramme de phase partiel proposé par *Okamoto* [4].

I.A.1.2 Cinétique et thermodynamique de la formation de phases par interdiffusion des métaux élémentaires

Le transport d'espèces d'atomes, d'ions ou de molécules dans un milieu tel qu'un solide, un gaz ou un liquide définit le terme de diffusion, causé par le mouvement aléatoire des atomes. Ce transport atomique se produit sous un gradient du potentiel chimique, qui peut survenir en raison de différences de concentration, de potentiel électrique, de gradients thermiques ou même de contraintes, et réduit le gradient. Plus précisément, dans les solides, l'activation thermique peut amener les atomes à se déplacer dans le réseau, ce que l'on appelle la diffusion à l'état solide. La force motrice du transport atomique est de réduire l'énergie libre du système, afin d'atteindre

CHAPITRE I: GENERALITES ET CONSIDERATIONS THEORIQUES

l'équilibre thermodynamique. Par conséquent, les atomes migrent dans un milieu solide, par exemple pour réduire le gradient du potentiel chimique [10].

La formation d'une phase à l'état solide se produit lorsqu'il existe une force motrice pour la réaction. En général, l'énergie libre de Gibbs d'une phase, par exemple la solution solide Al-Mg, est donnée par :

$$\Delta G = \Delta H - T\Delta S \quad (\text{I.A.1})$$

Où : ΔH est l'enthalpie et ΔS l'entropie de la phase respective, dans ce cas la solution solide. Dans certains cas, d'autres contributions d'énergie libre doivent être prises en compte, par exemple l'énergie interfaciale ou l'énergie de déformation.

Selon la thermodynamique et le diagramme de phase qui en résulte, un mélange initial d'éléments se transformera en une solution solide et/ou en phases intermétalliques par le biais d'une réaction à l'état solide si la température et le temps sont suffisants pour permettre l'interdiffusion des éléments [5]. Cette réaction comprend la transition des atomes d'une substance à travers l'interface d'une phase à une autre. Le processus d'une telle réaction est schématisé à la figure I.A.2. La réaction des éléments purs est actuellement un sujet de recherche actif, par exemple pour les systèmes multicouches, et un aperçu de ce sujet a été donné par *Funamizou* [11], *Brennan* [12] où les réactions chimiques et la diffusion des atomes provoquent la formation de cette couche [13].

Définition de quelques concepts :

Mécanisme de diffusion lacunaire :

À des températures élevées, les atomes vibrent autour de leur position moyenne. En raison de cette vibration, les atomes peuvent quitter leur position actuelle dans le réseau cristallin avec une certaine probabilité, qui dépend de la force de la vibration, pour se rendre dans des sites adjacents inoccupés du réseau, appelés lacunes. *Smigelskas et Kirkendall* [14] ont démontré le mécanisme de diffusion lacunaire.

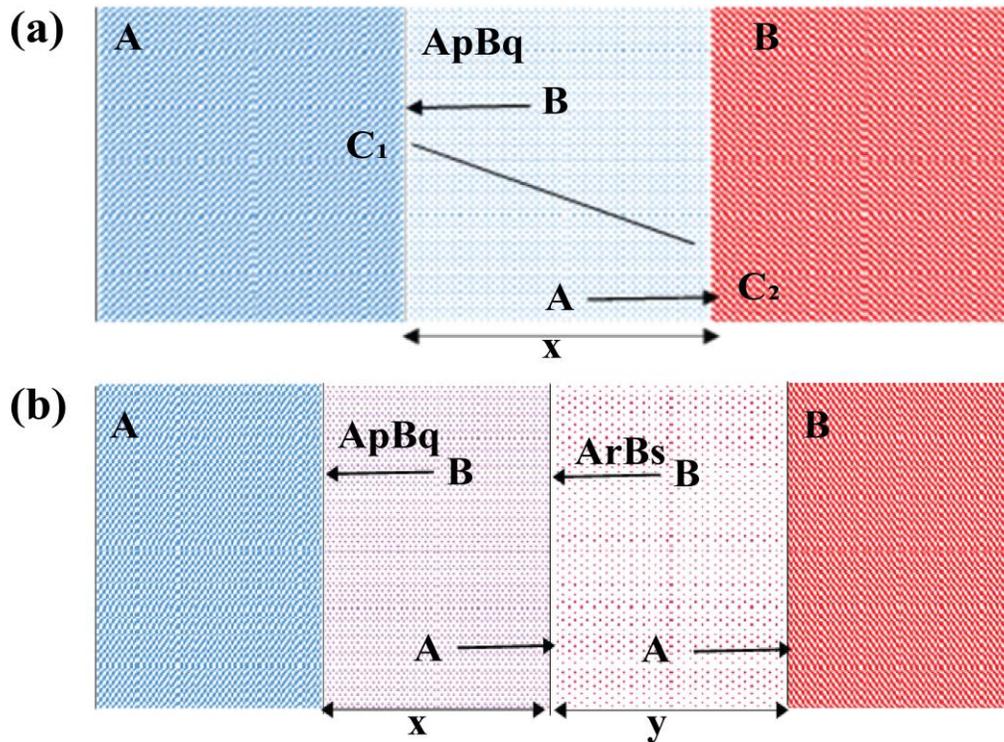


Figure I.A.2: Illustration schématique de la diffusion dans le système binaire A B. (a) Selon le diagramme de phase, le composé $ApBq$ est le premier à se former à l'interface A-B (p et q sont des nombres positifs), (b) Plus tard, $ArBs$ (où r et s sont des nombres positifs) commence à se former à l'interface $ApBq$ - B. L'épaisseur des phases correspondantes est donnée par x et y [14].

Ce mécanisme lacunaire est responsable de l'autodiffusion dans les métaux purs ainsi que de la diffusion des solutés de substitution dans les systèmes d'alliages. Pour étudier l'autodiffusion, on utilise un atome marqué, qui est normalement un isotope radioactif chimiquement identique à la matrice. Lorsque l'espèce diffusante est chimiquement différente de la matrice, le processus est appelé diffusion d'impuretés.

La diffusion à l'état de traces de l'Al dans le Mg a été étudiée par *Brennan* sur la gamme de températures 573-673 °C et a proposé l'expression ci-dessous pour le coefficient de diffusion [12] :

$$D_{Mg}^{Al} = 3.9 \times 10^{-3} \exp\left(-\frac{155 \text{ kJ}}{\text{mol}}/RT\right) \frac{\text{m}^2}{\text{s}} \quad (\text{I.A.2})$$

CHAPITRE I: GENERALITES ET CONSIDERATIONS THEORIQUES

Il est également connu que la diffusion de l'Al dans le réseau de Mg est anisotrope et que la diffusion de l'Al le long de l'axe <c> est 1,3 fois plus rapide que dans la direction de l'axe <a>. Ceci est dû à une barrière énergétique plus élevée pour le passage des atomes le long de l'axe <a> que le long de l'axe <c> [15].

Fujikawa [16] a étudié la diffusivité du Mg dans l'Al sur la gamme de température 325-650 °C en utilisant un échantillon de Mg radioactif sans porteur et a proposé l'équation :

$$D_{Mg/Al} = (0.0623 \left(\begin{matrix} +0.0126 \\ -0.0103 \end{matrix} \right)) \times \left\{ \exp(1.19 \pm 0.0012) \left(1.60 \times \frac{10^{-19} kJ}{kT} \right) \right\} \frac{cm^2}{s} \quad (\text{I.A.3})$$

L'interdiffusion :

Dans un système binaire, l'interdiffusion entre les espèces A et B est décrit par un coefficient d'interdiffusion effectif. Le taux de diffusion de chaque élément du système binaire est appelé diffusion intrinsèque. Dans de nombreuses publications et dans la littérature, une transformation de phase hétérogène est divisée en deux catégories. Premièrement, un mécanisme de germination et de croissance diffusif et deuxièmement une transformation martensitique, qui est une transformation sans diffusion et qui se produit par des mouvements coopératifs de nombreux atomes. Dans la transformation par diffusion, la transformation atome par atome à la limite de l'interface entraîne une croissance.

Ce type de frontière est considéré comme glissile. Dans le cas d'un joint non glissile, le taux de croissance du joint de grains est catégorisé par les transformations de phases à proximité de l'interface. Le transport à longue distance des atomes entraîne un mouvement de l'interface, qui est le résultat de la diffusion. En principe, deux types d'interfaces de migration peuvent être identifiés.

Tout d'abord, il existe une frontière qui se déplace très lentement et dont le mouvement est largement indépendant du taux de diffusion ; la croissance est décrite et contrôlée par l'interface. Deuxièmement, une frontière très mobile, qui se déplace aussi rapidement que le permet le taux de diffusion. La force motrice d'un mécanisme contrôlé par l'interface est la différence d'énergie libre par atome pour les atomes des côtés opposés.

D'un point de vue mathématique, si l'on définit à la fois le taux de croissance comme G et r comme une dimension linéaire avec t comme temps, la croissance peut être définie comme suit définie comme :

$$G = \frac{dr}{dt} \quad \text{(I.A.4)}$$

Lorsque G est constant, la croissance est linéaire dans le temps et la transformation est contrôlée par l'interface. Dans le second cas, G est proportionnel à \sqrt{t} et peut être considéré comme contrôlé par la diffusion [17].

I.A.2 Structure cristalline du Mg

Mg a un numéro atomique de 12. Ses paramètres de maille sont $a_1 = a_2 = 3,21 \text{ \AA}$, $c = 5,21 \text{ \AA}$ avec les angles $\alpha = \beta = 90^\circ$, $\gamma = 120^\circ$. Il en résulte un rapport d'axe $c/a=1,623$, ce qui confère au Mg, sous pression atmosphérique, une structure cristalline hexagonale parfaitement empilée (HCP) avec le groupe d'espace P63/mmc. La structure cristalline du Mg lui confère des propriétés anisotropes [18] et les atomes sont situés à $(0, 0, 0)$ et $(1/3, 2/3, 1/2)$ (voir figure I.A.3). Les structures cristallines HCP ont un facteur de remplissage atomique de 0,74 et un nombre de coordination de 12. Le rayon atomique empirique de Mg est de $1,5 \text{ \AA}$ et le rayon calculé est de $1,45 \text{ \AA}$. Les plans et les directions du cristal de Mg sont indiqués sur la Figure I.A.4.

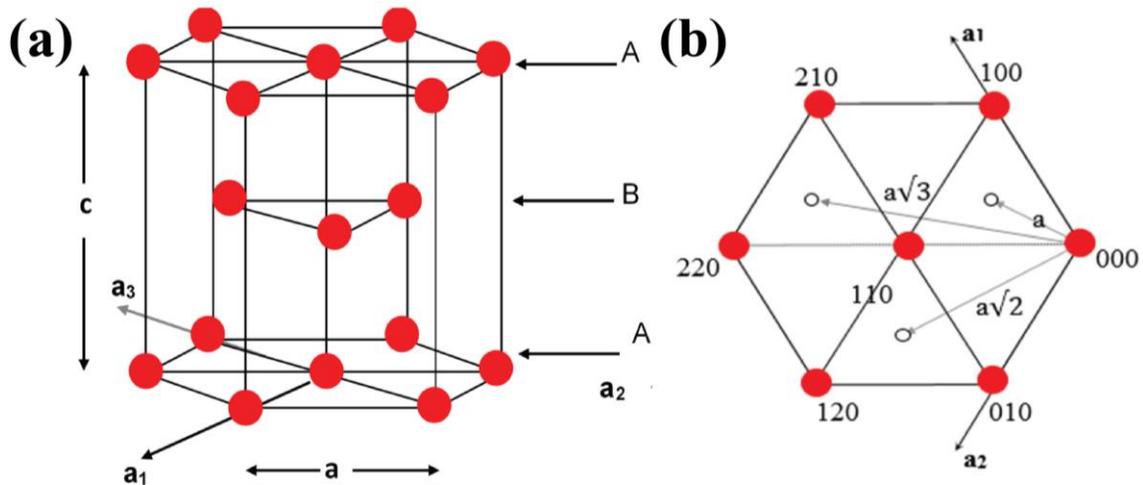


Figure I.A.3: (a) Structure hexagonale empilée et (b) Positions des atomes en projection du plan basal [18].

I.A.3 Structure cristalline de l'Al

L'aluminium a une structure cristalline cubique à faces centrées avec un réseau cubique compact et un facteur de remplissage atomique de 0,74. Les plans rapprochés sont empilés ABCABC au lieu d'ABAB comme pour la structure HCP. Le rayon atomique de l'Al est de $1,43 \text{ \AA}$

avec une liaison métallique de la structure cristalline, qui est stable sur toute la gamme de températures jusqu'au point de fusion. La maille élémentaire a un nombre de coordination de 12, et la distance la plus proche entre deux atomes est de 2,863 Å à la température ambiante, tandis qu'elle est de 3,19 Å pour Mg, soit 12 % de plus que pour Al. *Figgins et al.* [19] ont déterminé que le paramètre de réseau de l'Al d'une pureté de 99,99% était $a=4,04963$ Å à 25 °C, ce qui est en bon accord avec *Straumanis* [20]. Le rayon atomique empirique de l'aluminium est de 1,25 Å et le rayon calculé est de 1,18 Å.

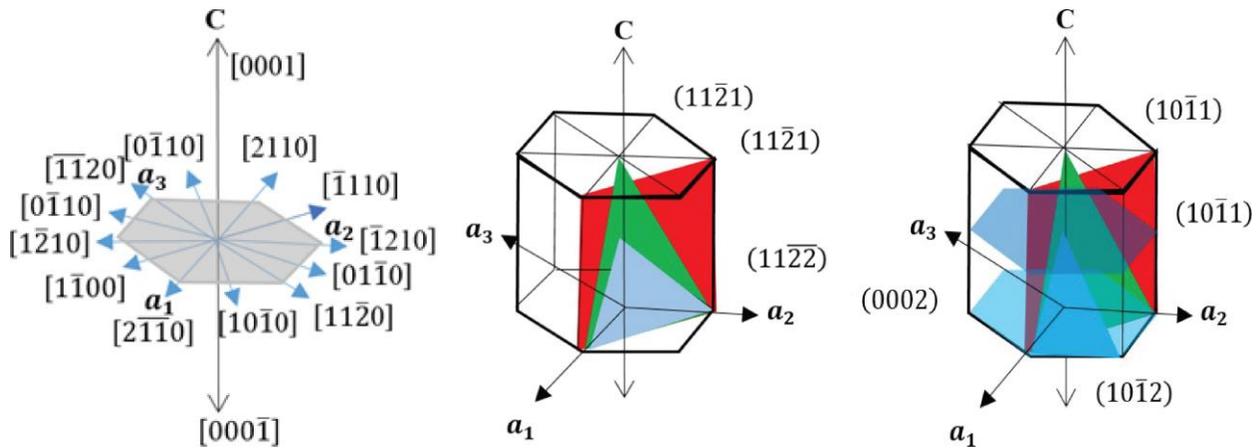


Figure I.A.4 : Les directions et les plans de la maille élémentaire du magnésium [21].

I.A.4 Structure cristalline de la phase Al_3Mg_2

La première phase intermétallique, dont l'existence ne fait aucun doute dans le système binaire Al- Mg, est la phase Al_3Mg_2 , connue sous le nom de phase β . Il peut être formé entre 60 et 62,5 % d'Al. Il appartient au groupe des phases d'alliages métalliques structurellement complexes (Structurally Complex Metallic Alloy Phases, CMA) qui se caractérisent par une longue période de réseau composée de plusieurs centaines ou milliers d'atomes par maille. L'étude de la phase Al_3Mg_2 n'est pas seulement importante en raison de sa structure cristalline, mais aussi parce qu'il possède certaines propriétés physiques comme la supraconductivité [22] et un faible poids spécifique [23]. De plus, grâce à sa structure cristalline, il peut être utilisé comme matériau de stockage de l'hydrogène et comme matériau thermoélectrique. D'autres phases intermétalliques comme Cu_4Cd_3 et $NaCd_2$ ont la même structure cristalline que la phase β . Par conséquent, l'étude de la formation cinétique de la phase β peut aider à mieux comprendre la cinétique de leur formation. L'existence de la phase β dans le système Al-Mg a été discutée pour la première fois

CHAPITRE I: GENERALITES ET CONSIDERATIONS THEORIQUES

par *Riederer* [24]. Il a utilisé une méthode de diffraction sur poudre et a suggéré une structure hexagonale avec $a = 11,38 \text{ \AA}$ et $c = 17,99 \text{ \AA}$ qui consiste en 8 motifs avec la composition chimique Al_8Mg_5 par maille élémentaire [24].

Plus tard, *Laves et Möller* [25] ont suggéré que la phase β - avait une structure cristalline isomorphe avec la structure Cu_4Cd_3 . *Perlitz* [26] a présenté une structure cubique pour la phase β avec le groupe spatial $\text{Fd}3\text{m}$ ($\text{O}7\text{h}$) avec 1166 atomes par maille élémentaire avec $a = 28,22 \text{ \AA}$ et la composition chimique Al_3Mg_2 . *Samson* [27], à l'aide de techniques de moindres carrés tridimensionnels, a étudié de nombreux détails de la structure de l' Al_3Mg_2 et a proposé une structure cristalline cubique avec le groupe spatial $\text{Fd}3\text{m}$ et $a = (28,239 \pm 0,001) \text{ \AA}$. Il a suggéré [27] qu'il y a environ 1168 atomes dans la maille élémentaire, qui sont répartis sur 23 positions cristallographiques différentes et que les 23 atomes cristallographiques différents produisent 41 structures polyédriques différentes. Il est également connu [23] qu'à 214°C , la phase *Samson* [28] subit une transition de phase structurale vers une phase rhomboédrique identifiée comme β' .

Cette phase β' a le groupe spatial $\text{R}3\text{m}$, qui est un sous-groupe de $\text{Fd}3\text{m}$ et n'a pas de symétrie d'inversion. Ses paramètres de réseau sont $a = 11,9968 \text{ \AA}$ et $c = 48,9114 \text{ \AA}$. La structure cristalline des phases β et β' *Samson* a été étudiée à nouveau par *Feuerbach et al.* [29]. Ils ont vérifié de nombreux détails de la structure cristalline publiée par *Samson* [27]. Sur les 1168 atomes de la structure de *Samson*, il y a 528 atomes d'aluminium et 351 atomes de magnésium, qui sont répartis sur 1832 positions avec un $\text{SOF} = 1$ (pour Site Occupancy Factor). Les 289 atomes restants occupent incomplètement les 953 positions inoccupées avec un $\text{SOF} = 0,3$. Les atomes d'Al forment 22 couches avec la séquence ABC et ces atomes avec un SOF égal à 0,3 forment une agglomération entre les deux, comme on peut le voir sur la figure I.A.6. La maille élémentaire d' Al_3Mg_2 est présentée dans la figure I.A.5.

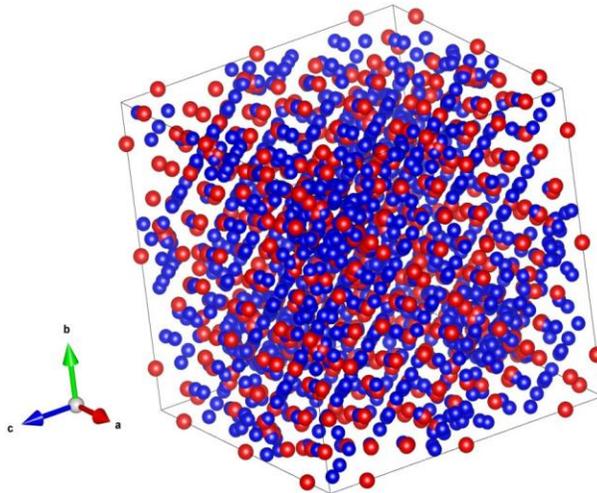


Figure I.A.5 La maille élémentaire d'Al₃Mg₂ (phase β) : les sphères rouges représentent les atomes de Mg et les sphères bleues les atomes d'Al [27]

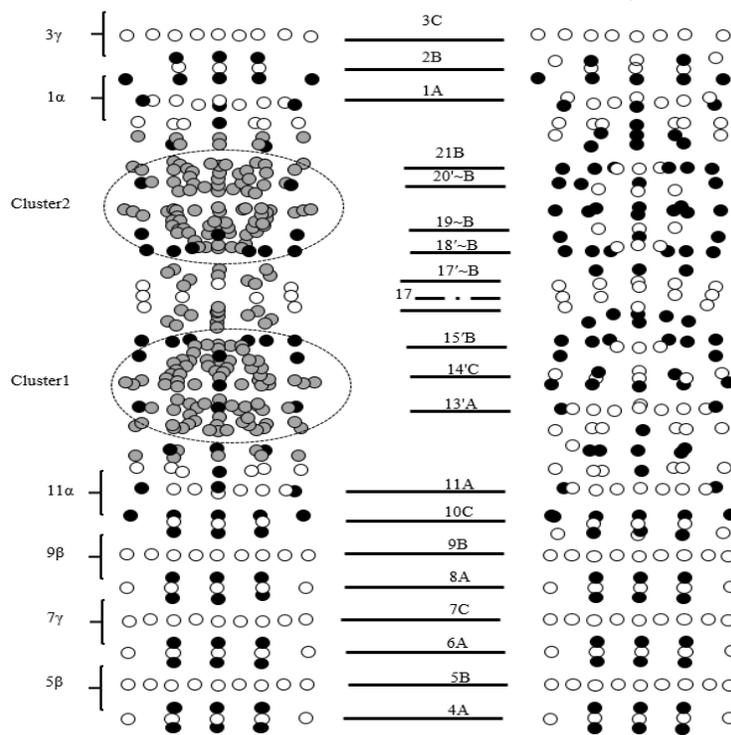


Figure I.A.6 : Représentation schématique des structures cristallines β et β', image modifiée d'après [30]. Les cercles ouverts représentent les atomes d'Al et le cercle noir les atomes de Mg. Les cercles noirs et blancs indiquent les atomes avec SOF=1 et les cercles gris indiquent les atomes avec SOF=0.3[27].

Une représentation simplifiée de la structure cristalline d'Al₃Mg₂ a été proposée par Wolny [30], comme le montre la figure I.A.6 . Ils ont nommé les couches atomiques en utilisant ABC et d'autres structures multicouches plus complexes en utilisant les symboles α, β et γ. Les couches B

sont incomplètement occupées par des atomes d'Al (voir la figure I.A.7). Dans les deux cas β et β' , la succession des couches est $1\alpha 2B 3\gamma 4A 5\beta 6A 7\gamma 8A 9\beta 10C 11\alpha$. Dans ces séquences, il y a des lacunes. Lorsque les lacunes sont occupées par des atomes de Mg en raison de leur plus grande taille, les couches sont décalées.

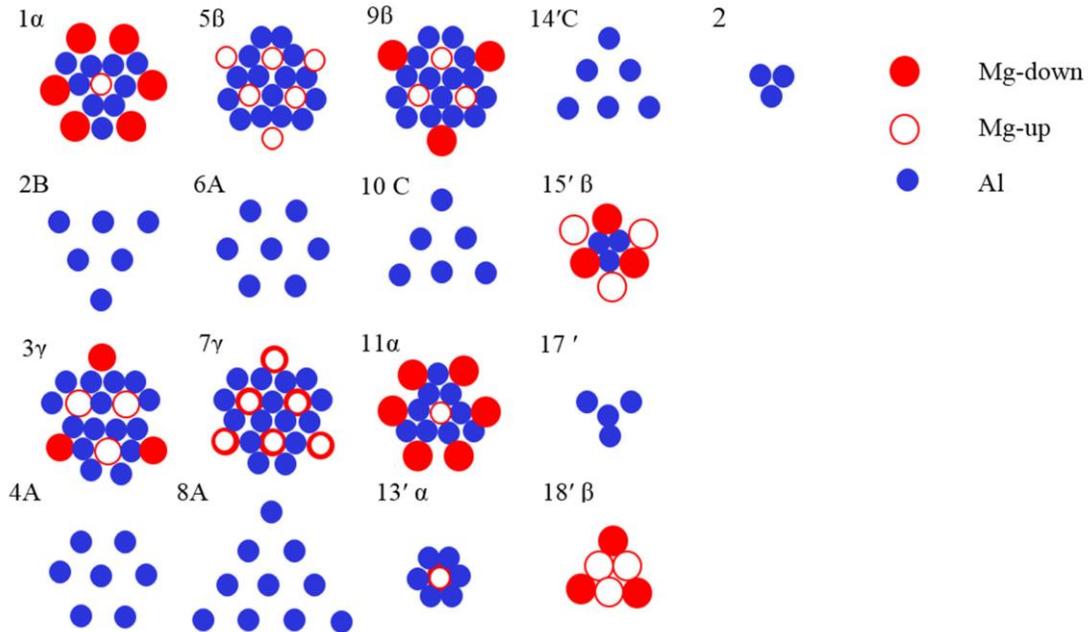


Figure I.A.7: Coupe transversale de la structure cristalline d' Al_3Mg_2 montrant les différentes couches, modifiée d'après [30].

Dans sa forme idéale, la phase Al_3Mg_2 peut être considérée comme une combinaison de cinq polyèdres de *Friauf* (voir la figure I.A.8) [25].

Dans ce cas, si tout l'espace était rempli par ces cinq polyèdres de *Friauf*, le rapport atomique entre Mg et Al devrait être de 2:1, alors que le rapport mesuré est de 3:2. Cela indique que l'occupation des atomes de Mg dans la structure cristalline est plus faible que prévu. Il faut noter que la stœchiométrie réelle de la structure cristalline étudiée expérimentalement est $Al_{61.5}Mg_{38.5}$. Dans le modèle idéal illustré ci-dessus, 1192 atomes sont présents pour la structure cristalline, bien que, dans le calcul des positions de *Wyckoff*, 1832 atomes aient été obtenus. Cette différence montre que seuls deux tiers des positions sont occupés par des atomes. *Feuerbach et al.* [29] ont suggéré que la structure cristalline d' Al_3Mg_2 résulte d'un désordre structurel plutôt que d'atomes manquants et ont donc proposé une structure de diamant avec un numéro de groupe d'espace CF1168. Pour la phase β , ils ont également suggéré le volume $V_{at}^{Al_3Mg_2} = 19.26 \text{ \AA}^3$, où Al a $V_{at}^{Al} = 16,61 \text{ \AA}^3$ et Mg a $V_{at}^{Mg} = 23,24 \text{ \AA}^3$.

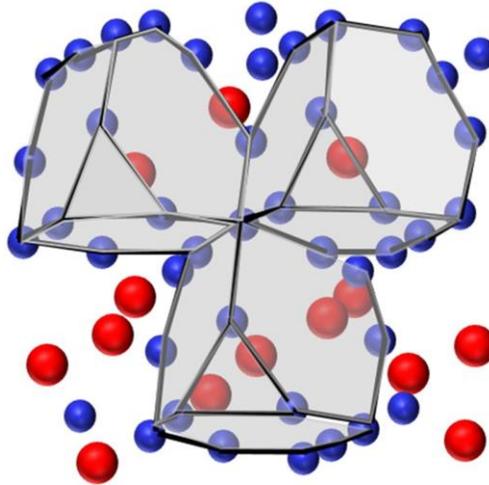


Figure I.A.8 Structure cristalline idéale d' Al_3Mg_2 [30]

I.A.5 Structure cristalline de la phase $\text{Al}_{12}\text{Mg}_{17}$

La phase $\text{Al}_{12}\text{Mg}_{17}$ a une certaine importance technologique, c'est-à-dire que dans certains alliages Al-Mg importants comme l'AZ91, elle est utilisée comme phase de précipité pour augmenter la résistance des alliages ou elle peut être utilisée comme matériau de stockage de l'hydrogène. L'existence de la phase $\gamma\text{-Al}_{12}\text{Mg}_{17}$ a été discutée pour la première fois par *Laue et al.* par *Laue et al.* en 1934 [31]. À cette époque, cette phase était appelée Al_2Mg_3 et quatre positions atomiques étaient proposées (voir la figure I.A.9), figure I.A.10, Tableau I.A.1 et Tableau I.A.2 à savoir i) 2a ii) 8c : $x=0.317$ $y=x$, $z=x$ iii) 24 g1 : $x=0.356$, $z=0.042$ iv) 24g : $x=0.089$, $y=x$ $z=0.278$ [32]. *Laves et al.* [31] ont comparé les résultats théoriques et expérimentaux et suggéré que cette phase devrait avoir la formule $\text{Al}_{12}\text{Mg}_{17}$ et la même structure cristalline que l' $\alpha\text{-Mn}$ avec 58 atomes et une constante de réseau $a = 10,54 \text{ \AA}$. La structure de l' $\alpha\text{-Mn}$ a été suggérée pour la première fois par *Bradley et Thwelis* en 1972 [32]. La structure cristalline qu'ils ont proposée pour l' $\alpha\text{-Mn}$ était une structure cristalline cubique centrée sur le corps, avec un groupe spatial $I43m$ et 58 atomes occupant les quatre positions existantes. Le symbole Strukturbericht pour l' $\alpha\text{-Mn}$ est A12. Plus tard, *Frank et Kasper* en 1959 [33] ont catégorisé $\text{Al}_{12}\text{Mg}_{17}$ comme une phase Frank-Kasper.

Joubert [34] a utilisé la méthode *Rietveld* et les calculs par la méthode *Calphad* pour étudier la phase $\text{Al}_{12}\text{Mg}_{17}$ et d'autres phases intermétalliques présentant la même structure cristalline, qui étaient précédemment classées dans la catégorie des phases de *Frank Kasper*, à savoir la phase χ .

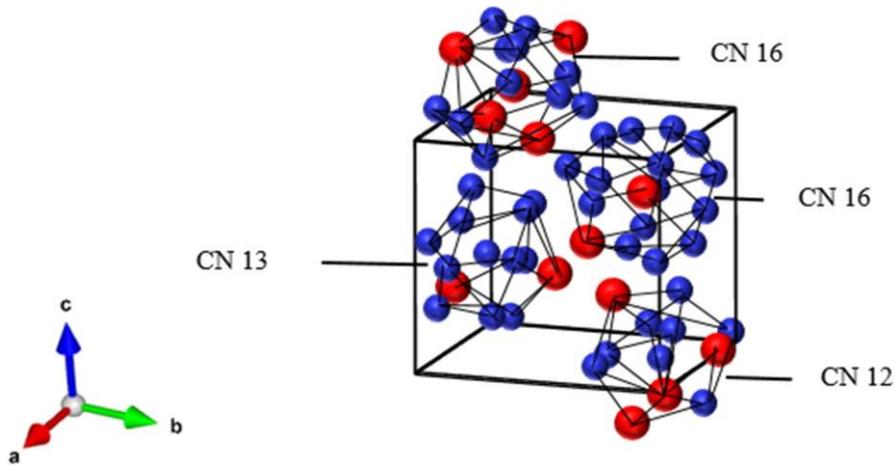


Figure I.A.9 : Structure cristalline de 3-phases ($Al_{12}Mg_{17}$), constituée de quatre polyèdres [34].

Tableau I.A.1 : Positions de *Wyckoff* et nombre de coordination de la phase χ -($Al_{12}Mg_{17}$) [34].

Atomes		X(position)	Y(position)	Z (position)	CN(Numéro de coordination)
Mg1	2a	0	0	0	16
Mg2	8c	0.32440	0.32440	0.32440	16
Mg3	24g1	0.35622	0.35622	C	13
Al1	24g2	0.08996	0.08996	0.27681	12

Joubert et al. [34] ont également suggéré que la distance la plus courte entre deux atomes se trouve en position 24g2, qui est plus courte que CN16 et CN12 (voir la figure I.A.10). Les distances atomiques dépendent de la CN plutôt que de la taille des atomes, ce qui signifie que les distances atomiques plus petites sont associées à une CN plus faible et que les distances atomiques plus grandes préfèrent une CN plus importante. Ils ont également suggéré que les paramètres du réseau dans la phase χ ($Al_{12}Mg_{17}$) sont fonction de nombreux facteurs, notamment :

- i) Les rayons atomiques des deux éléments,
- ii) La répartition des éléments sur différents sites,
- iii) La nature de la liaison atomique,
- iv) Une intercorrélacion entre le nombre de coordination et les paramètres du réseau.

Leur étude montre que la phase χ doit être classée en trois groupes de structures. Premièrement, le type α -Mn, où un seul atome occupe toutes les positions atomiques. Deuxièmement, le type A_5B_{24} pour lequel i_5RE_{24} est le prototype, où A indiqués les sites avec

occupation CN16 et B les sites restants. Troisièmement, le type $A_{17}B_{12}$ avec la structure cristalline $A_2A_8A_{24}B_{24}$ comme la phase $Al_{12}Mg_{17}$.

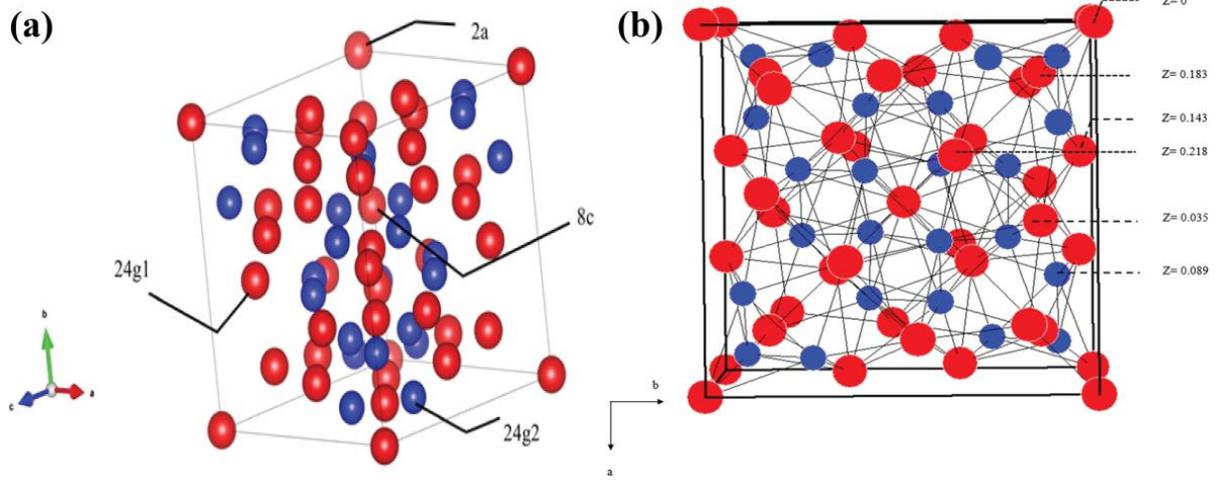


Figure I.A.10: (a) Structure cristalline de la phase χ ($Al_{12}Mg_{17}$). Les 4 positions atomiques différentes et les sites atomiques sont marqués, (b) Projection le long du plan a, b avec le nombre Z entre 0 et 0,218 [34].

Tableau I.A.2: Distances atomiques dans la phase $Al_{12}Mg_{17}$ par rapport à quatre positions atomiques [31].

-Mg dans le point I (2a) a les voisins suivants :	4 Mg II à une distance de 3,34 Å. 12 Al à une distance of 3.21 Å
-Mg dans le point II (8a) a les voisins suivants :	1 Mg _I à une distance de 3.24 Å 3 Mg _{III} à une distance de 2.96 Å 3 Mg _{III} à une distance de 3.50 Å 6 Al à une distance de 3.18 Å 3 Al à une distance de 3.42 Å
-Mg dans le point III (24g) a les voisins suivants :	1 Mg _I à une distance 2.95 Å 1Mg _{II} à une distance 3.50 Å 6Mg _{III} à une distance 3.16 Å 1Al à une distance 2.90 Å ² 2Al à une distance 2.94 Å ² 2Al à une distance 3.15 Å
-Mg dans le point IV (24g) a les voisins suivants :	1 Mg _I à une distance 3.21 Å 2Mg _{II} à une distance 3.18 Å 1Mg _{II} à une distance 3.42 Å 1Mg _{III} à une distance 2.90 Å 2Mg _{III} in distance 2.97 Å 2Mg _{III} à une distance 3.15 Å 1Al à une distance 2.65 Å 2Al à une distance 2.82 Å

Références

- [1] F. Guan, W. Jiang, G. Li, J. Zhu, J. Wang, G. Jie, Z. Fan, J. Magnes. Alloy. 10 (2022) 2296–2309.
- [2] Y. Di Boon, S.C. Joshi, Mater. Today Commun. 22 (2020).
- [3] J.L. Murray, Bull. Alloy Phase Diagrams 3 (1982) 60–75.
- [4] E. Schürmann, H.J. Voss, Gießereiforschung 33 (1981) 43–46.
- [5] H.L. Su, P. Donnadieu, C. Baetzner, H.J. Seifert, H. L.Lukas, G. Effenberg, F. Aldinger, J. Alloys Compd. 247 (1997) 57–65.
- [6] Okamoto. H, J. Phase Equilibria Diffus. 19 (1998) 1.
- [7] T. Czeppe, W. Zakulski, E. Bielańska, J. Phase Equilibria 24 (2003) 249–254.
- [8] N. Saunders, Calphad 14 (1990) 61–70.
- [9] Y. Zuo, Y.A. Chang, CAL.t'H~ Vol. 17 (1993) 161–174.
- [10] P. Chartrand, A.D. Pelton, J. Phase Equilibria 15 (1994) 591–605.
- [11] B.Y.S. Samson, E.K. Gordon, Acta Crystallogr. B24 (1968) 1004–1013.
- [12] H. Mehrer, S. Divinski, Defect Diffus. Forum 289–292 (2009) 15–38.
- [13] Y. Funamizu, K. Watanabe, Trans. Japan Inst. Met. 13 (1972) 278–283.
- [14] S. Brennan, A.P. Warren, K.R. Coffey, N. Kulkarni, P. Todd, M. Kilmov, Y. Sohn, J. Phase Equilibria Diffus. 33 (2012) 121–125.
- [15] V.I. Dybkov, Reaction Diffusion and Solid State Chemical Kinetics, 2010.
- [16] A.D. Smigelskas, E.O. Kirkendall, Trans. Metall. Soc. AIME 171 (1947) 130–142.
- [17] S.K. Das, Y.M. Kim, T.K. Ha, R. Gauvin, I.H. Jung, Metall. Mater. Trans. A 44 (2013) 2539–2547.
- [18] S. Fujikawa, K. Hirano, Mater. Sci. Eng. 27 (1977) 25–33.
- [19] H. Nie, W. Liang, H. Chen, F. Wang, T. Li, C. Chi, X. rong Li, J. Alloys Compd. 781 (2019) 696–701.
- [20] J.W. Christian, The Theory of Transformations in Metals and Alloys, Pergamon P, Oxford New York Toronto Sydney Paris Braunschweig, 1975.
- [21] T. Liu, B. Song, G. Huang, X. Jiang, S. Guo, K. Zheng, F. Pan, J. Magnes. Alloy. 10 (2022) 2062–2093.
- [22] D. Eliezer, E. Aghion, F.H. Froes, Adv. Perform. Mater. 5 (1998) 201–212.
- [23] B.F. Figgins, G.O. Jones, D.P. Riley, Philos. Mag. 1 (1956) 747–758.
- [24] M.E. Straumanis, J. Appl. Phys. 20 (1949) 726–734.

- [25] I.J. Polmear, *Mater. Sci. Technol. (United Kingdom)* 10 (1994) 1–16.
- [26] E. Bauer, H. Kaldarar, R. Lackner, H. Michor, W. Steiner, E.W. Scheidt, A. Galatanu, F. Marabelli, T. Wazumi, K. Kumagai, M. Feuerbacher, *Phys. Rev. B* 76 (2007) 1–7.
- [27] K. Urban, M. Feuerbacher, *J. Non. Cryst. Solids* 334–335 (2004) 143–150.
- [28] K. Riederer, *Zeitschrift Für Met.* 28 (1936) 312–317.
- [29] F. Laves, K. Möller, *Z. Met.* 30 (1938) 232–235.
- [30] H. Perlitz, *Nature* 154 (1944) 606.
- [31] S. Samson, *Acta Crystallogr.* 19 (1965) 401–413.
- [32] D. Akhtar, R.G.T.P. Rajasekharan, *Int. J. Mater. Res.* 78 (1987) 201–203.
- [33] M. Feuerbacher, C. Thomas, J.P.A. Makongo, S. Hoffmann, W. Carrillo-Cabrera, R. Cardoso, Y. Grin, G. Kreiner, J.M. Joubert, T. Schenk, J. Gastaldi, H. Nguyen-Thi, N. Mangelinck-Nöel, B. Billia, P. Donnadieu, A. Czyska-Filemonowicz, A. Zielinska-Lipiec, B. Dubiel, T. Weber, P. Schaub, G. Krauss, V. Gramlich, J. Christensen, S. Lidin, D. Fredrickson, M. Mihalkovic, W. Sikora, J. Malinowski, S. Brühne, T. Proffen, W. Assmus, M. De Boissieu, F. Bley, J.L. Chemin, J. Schreuer, W. Steurer, *Zeitschrift Fur Krist.* 222 (2007) 259–288.
- [34] J. Wolny, M. Duda, *Philos. Mag.* 91 (2011) 1568–1580.
- [35] F. Laves, K. Löhberg, P. Rahlfs, Über Die Isomorphie von Mg_3Al_2 Und α -Mangan, *Nachrichten von der Gesellschaft der Wissenschaften zu Göttingen Mathematischphysikalische Klasse, neue Folge, Fachgruppe iv, Vandenhoeck & Ruprecht, Göttingen*, 1934.
- [36] A.J. Bradley, J. Thewlis, *Proc. R. Soc. London. Ser. A, Contain. Pap. a Math. Phys. Character* 115 (1927) 456–471.
- [37] F.C. Frank, J.S. Kasper, *Acta Crystallogr.* 11 (1958) 184–190.
- [38] J.M. Joubert, M. Phejar, *Prog. Mater. Sci.* 54 (2009) 945–980.

PARTIE B :

***LES COMPOSITES METALLIQUES LAMINES (LMCS)
PRODUITS PAR LE COLAMINAGE (ÉTAT DE L'ART)***

I.B.1 Introduction

Les composites métalliques laminés (LMCs : Laminated Metal Composites) ont fait l'objet d'une grande attention en raison des nombreux avantages qu'offrent les différents métaux. Actuellement, les technologies de préparation des composites métalliques laminés ont fait de grands progrès, et peuvent être divisées en trois catégories : collage liquide-liquide, solide-liquide et solide-solide, en fonction de l'état physique du métal de la matrice.

La méthode typique de collage liquide-liquide est la technique de moulage continu avec remplissage du noyau. Cette technique exige une très grande précision de contrôle des variables du processus et présente un faible rendement des produits finaux [1].

La technique de moulage par laminage (Roll-casting technique) est considérée comme la méthode la plus représentative du collage solide-liquide des LMCs [2]. Par rapport à la technique de moulage continu avec remplissage du noyau, les avantages évidents de la technique de moulage par laminage (Roll-casting technique) sont une efficacité de production élevée et des coûts de production faibles.

De nos jours, la méthode solide-solide est utilisée pour la plus large gamme d'applications industrielles en raison de la possibilité de contrôler le processus, qui inclut principalement la technique de soudage par colaminage [3], la technique de soudage par extrusion [4] et la technique de soudage par explosion [5]. Comparée à d'autres techniques, le technique colaminage présente des avantages évidents : moins de pollution, processus de production stable et efficacité de production élevée.

Dans cette partie, les progrès de la recherche dans le domaine du colaminage du LMCs sont présentés, notamment le colaminage à chaud, le colaminage à froid, le colaminage cryogénique et le multi-colaminage. Le mécanisme de formation de l'interface et les principaux facteurs d'influence sur la qualité de l'adhésion interfaciale sont discutés de manière systématique.

I.B.2 Les techniques de colaminage pour la fabrication des LMCs

Le colaminage est une technique de soudage à l'état solide. C'est-à-dire sans métal d'apport et sans fusion des pièces métalliques assemblées. Son intérêt par rapport au soudage, qui passe par la fusion, porte sur plusieurs points comme l'absence de porosité et l'absence de discontinuité entre zone fondue ou affectée thermiquement.

I.B.2.1 Le colaminage à chaud

La technique de colaminage à chaud est apparue dans les années 1940 et a été largement appliquée à la fabrication de tôles épaisses. Cette technique permet de réduire la force de laminage, mais la stabilité de la production est faible. Avant le procédé, les métaux sont préchauffés à une certaine température, ce qui affecte considérablement les propriétés globales des LMCs. Une faible température de préchauffage peut entraîner une résistance élevée à la déformation et une diffusion atomique insuffisante autour de l'interface [6].

Néanmoins, la formation des composés intermétalliques (IMCs), voire de fissures interfaciales, est facilement induite par la température élevée de préchauffage [7]. En outre, une atmosphère protectrice est généralement adoptée dans le processus de colaminage à chaud pour éviter l'oxydation du métal interfaciale [8,9], comme le montre la figure I.B.1.

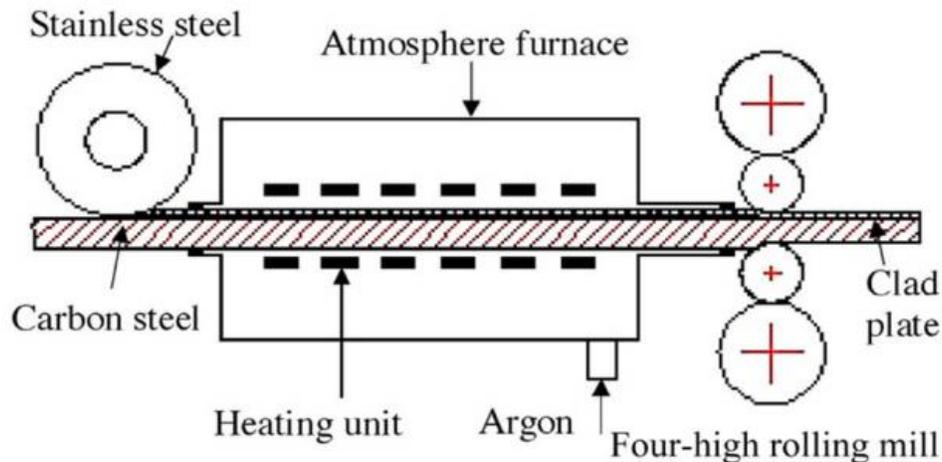


Figure I.B.1. Schéma de colaminage à chaud [8].

De nombreux travaux ont été réalisés sur colaminage à chaud de LMCs. *Menon et Chen* [10] ont utilisé le colaminage à chaud et le recuit pour fabriquer des LMCs sans fissuration en Al_2O_3 et ZrO_2 avec une épaisseur de couche de 4 à 60 μm .

Des LMCs Ag/Cu ont été fabriqués par colaminage à différentes températures et par recuit pendant différentes périodes à 673 et 1073 K par *Zhang et al.* [11]. Ils ont constaté que la vitesse de déplacement des atomes de Cu vers la face Ag était plus rapide que celle des atomes d'Ag vers la face Cu. Ainsi, le colaminage à chaud reste un excellent choix pour fabriquer les LMCs Mg/Al, soit par une seule passe ou par plusieurs passes (multipasses). D'après la littérature, le colaminage à chaud à plus de 400 °C était généralement utilisé pour fabriquer des LMCs Mg/Al.

CHAPITRE I: GENERALITES ET CONSIDERATIONS THEORIQUES

Le Tableau I.B.1 récapitule les paramètres signalés pour colaminage à chaud du LMCs Mg-Al avec une seule passe.

Tableau I.B.1 Paramètres signalés pour colaminage à chaud du LMCs Mg-Al avec une seule passe.

LMCs	Température (°C)	Taux de réduction (%)	Référence
7075Al/Mg-Gd-Y-Zr/7075Al	450 - 475	50	[12]
7075Al/AZ31B/7075 Al	400 -475	60 - 80	[13]
5052Al/AZ31/5052Al	400	48	[14]
AZ31/1060Al/AZ31	400	20 - 50	[15]
Ti/Al/Mg/Al/Ti	450	50	[16]

Luo et al. [17] ont constaté que le taux de croissance des composés intermétalliques (IMCs) à l'interface du LMC Al/Mg fabriqué par colaminage à chaud augmentait avec l'augmentation de la température de recuit, et la relation mathématique entre l'épaisseur des IMCs (y , μm), la température de recuit (T , K) et le temps de recuit (t , min) a été établie comme suit :

$$y^2 = 1.98 \times 10^6 \exp\left(-\frac{83418}{RT}\right) \left(t - 0.78 \exp\frac{29770}{RT}\right) \quad (\text{I.B.1})$$

Où R est la constante universelle des gaz parfaits ($\approx 8,314 \text{ J K}^{-1} \text{ mol}^{-1}$)

Liu et al. [15] ont rapporté qu'une réduction de 20 % de l'épaisseur pouvait générer une adhésion adéquate entre le 1060-Al et l'AZ31-Mg pendant le colaminage à 400 °C.

Zhang et al. [13] ont étudié l'effet de la température de colaminage sur l'interface des LMCs 7075/AZ31/7075. Ils ont constaté que la taille des grains et la largeur de la couche de diffusion augmentaient avec la température de colaminage de 400 °C à 475 °C. *Wei et al.* [18] ont également constaté un phénomène similaire. Ainsi, une température de colaminage élevée pourrait réduire la résistance de l'adhérence.

Il est important de souligner que les seuils de température de colaminage pour un soudage adéquat sont liés à la composition des alliages de Mg et d'Al, car cela affecte leur comportement d'écoulement et l'évolution de la microstructure pendant le colaminage [19].

Le colaminage multipasses avec de petites réductions dans une seule passe permet d'obtenir une réduction totale importante. Le recuit intermédiaire est généralement nécessaire pour restaurer la formabilité et supprimer les fissures ou les fractures sur les bords. Le tableau I.B.2 présente les paramètres de colaminage rapportés pour le colaminage à chaud multipasse.

Tableau I.B.2 Paramètres signalés pour colaminage à chaud du LMCs Mg-Al avec plusieurs passes.

LMCs	Température (°C)	Nombre de passes	Taux de réduction (%)	Référence
5052/AZ31/5052	400	4	71	[20]
6061/AZ31/6061	400	4	82	[21]
1060/Mg-Al-Mn-Ce/1060	Pas de données	6	77	[22]

Dans le processus de colaminage à chaud multipasses, le recuit intermédiaire affecte la microstructure et la structure de la couche de diffusion. Cependant, dans certaines études [20–22], aucune couche de réaction n'a été observée dans les LMC Mg/Al à plusieurs passes, comme le montre la figure I.B.2. Cela pourrait être attribué à la courte durée de maintien pendant le recuit intermédiaire.

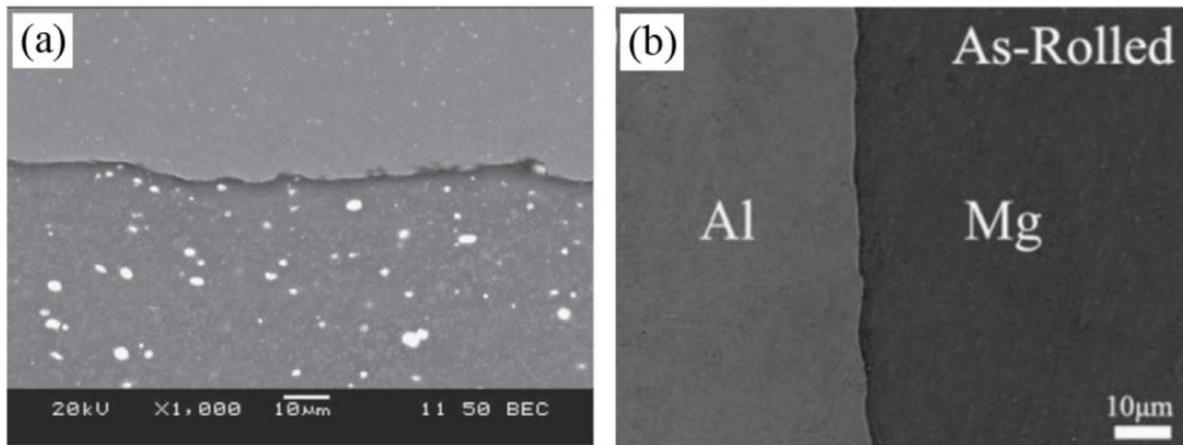


Figure I.B.2 Micrographies MEB montrant la microstructure de l'interface des LMC Al/Mg/Al par colaminage multipasses. (a) LMC 1060/Mg-Al-Mn-Ce/1060 [22], (b) 6061/AZ31/6061 [21].

Par rapport au colaminage multipasses, le colaminage à une seule passe est plus efficace et moins coûteux, car il n'y a pas de recuit intermédiaire. En outre, le colaminage à chaud avec un seul passage évite la formation et l'épaississement de la couche de réaction pendant le recuit intermédiaire.

I.B.2.2 Le colaminage à froid

Contrairement à la technique de colaminage à chaud, le processus de colaminage à froid est réalisé à la température ambiante. En outre, une réduction de l'épaisseur de plus de 60 % lors de la première passe de laminage est nécessaire pour obtenir une qualité de soudage élevée [23]. Les avantages significatifs des techniques de colaminage à froid sont que la réglementation flexible

de l'épaisseur des IMCs peut être facilement réalisée en ajustant le processus de recuit et que l'oxydation de la matrice autour de l'interface de soudage est évitée. Par ailleurs, de nombreuses fissures peuvent apparaître sur les bords des LMCs dont la matrice est dure et fragile [24,25].

Chen et al. [26] ont constaté que le traitement par colaminage à froid pouvait encore améliorer la résistance d'adhérence des LMCs Al/acier fabriquées par coulée horizontale à deux cylindres (Horizontal Twin-roll Casting). En outre, l'effet du recuit sur la microstructure et les propriétés des LMCs Al/Ti/Al fabriquées par colaminage à froid a été étudié [27]. Il est intéressant de noter qu'un nouveau type de matériau trimodal, constitué d'une combinaison de particules d'Al à gros grains, de Ti à grains ultrafins et des particules de $TiAl_3$ a été produit, qui présente une limite d'élasticité élevée et une bonne ductilité, comme le montre la figure I.B.3.

Yang et al. [28] ont utilisé le soudage par diffusion et le colaminage à froid pour améliorer la qualité du soudage du LMCs Mo/Cu qui présentent une conductivité thermique élevée et un faible coefficient de dilatation thermique. Les LMCs Mo/Cu ont des applications potentielles dans les contacts électriques et les segments d'électroérosion pour les métaux durs.

Sheng et al. [29] ont constaté que le traitement thermique à basse température peut améliorer la qualité de soudage du LMCs Cu/Al/Cu par colaminage à froid. Cependant, le traitement thermique à haute température entraîne la formation du composé intermétallique Al_2Cu , qui diminue l'adhérence du LMCs, comme le montre la figure I.B.4.

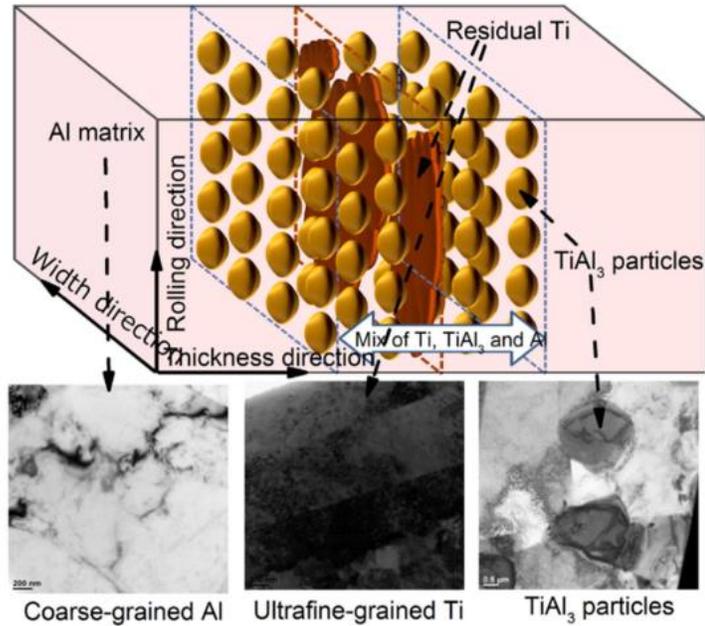


Figure I.B.3 Illustration des nouvelles tôles trimodales combinées avec une matrice d'aluminium à gros grains, des nanoparticules de Ti et de $TiAl_3$ [27].

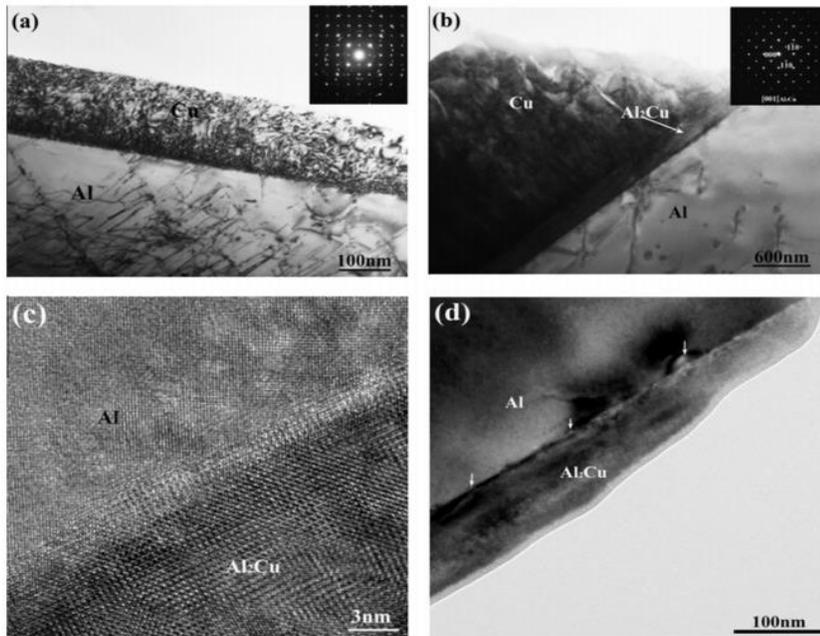


Figure I.B.4 (a) Image MET en champ clair de l'interface Cu/Al après 423 K, 1 h de traitement, (b) Formation de Al_2Cu le long de l'interface Cu/Al après 423 K, 20 h de traitement ; (c) Image HRTEM d' Al_2Cu avec un faisceau d'électrons parallèle à la direction [001] ; (d) Précipités d' Al_2O_3 le long de l'interface Al/ Al_2Cu après 573 K, 10 h de traitement [29].

Matsumoto et al. [30] ont préparé avec succès un LMC Al/Mg- 9,5mass%Li/Al pur par colaminage à froid en multipasses avec une réduction totale de l'épaisseur de 93%. Dans les LMCs Mg/Al fabriqués par colaminage à froid, aucun défaut détectable n'est observé à l'interface, et les teneurs en Al et en Mg sont modifiées de manière continue à travers l'interface. Cela indique que le colaminage à froid avec une forte réduction de l'épaisseur pourrait également générer une inter-diffusion dans une certaine mesure à l'interface des LMCs Mg/Al. Cela peut être lié à la température de déformation générée par le taux de réduction élevé, qui favorise l'inter-diffusion de l'interface.

En outre, le colaminage à froid peut également être utilisé comme traitement supplémentaire après le colaminage à chaud. *Marcwan et al.* [22] ont fabriqué les LMC 1060/Mg-Al-Mn-Ce/1060 par l'utilisation combinée du colaminage à chaud (77 % en 6 passes) et du colaminage à froid (50 % en 2 passes). Le colaminage à froid après le colaminage à chaud peut adapter davantage la structure de l'interface et la microstructure, affectant ainsi le comportement de diffusion et l'évolution de la microstructure au cours du recuit ultérieur.

Bien que le colaminage à froid soit une méthode peu coûteuse pour les LMC Mg/Al, mais elle n'est pas adaptée à la plupart des alliages de Mg avec des structures hexagonales (HCP) en raison de leur faible déformabilité plastique à des températures plus basses. Par exemple, l'alliage AZ31 peut se fracturer lorsque le taux de réduction n'est que de 15 % [31]. Par conséquent, le colaminage à froid ne convient qu'aux séries d'alliages de Mg ayant une bonne aptitude de mise en forme à température ambiante.

I.B.2.3 Le colaminage cryogénique

La technique de colaminage cryogénique est une technologie émergente pour fabriquer des LMCs, qui peut améliorer de manière significative leurs performances globales [32]. *Yu et al.* [33] ont constaté que les fissures de bord apparaissant lors du colaminage à froid des LMCs Al/Ti/Al pouvaient être évitées par le processus de colaminage cryogénique, comme la montre la figure I.B.5. En outre, la limite de résistance à la traction a augmenté de 36,7 % par rapport à celle obtenue par colaminage à froid.

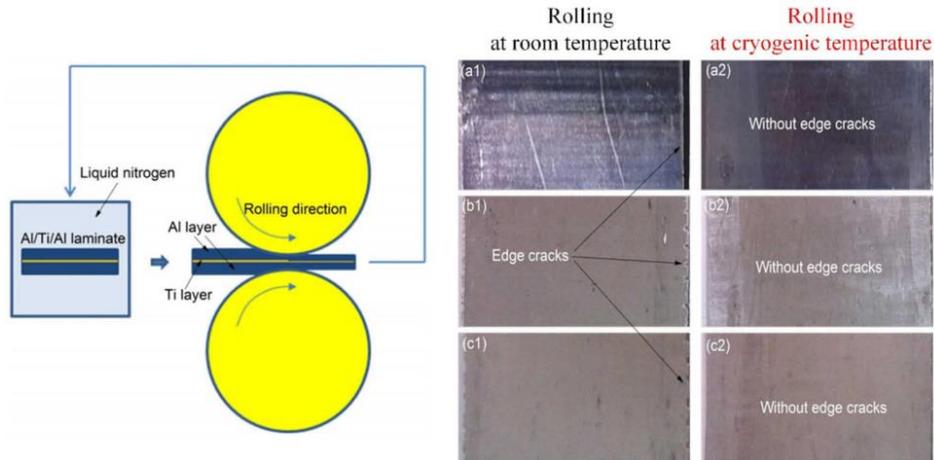


Figure I.B.5 Schéma du processus de cryogénie et de la morphologie du composite laminé Al/Ti/Al [33].

Sur cette base, la résistance à l'adhérence du LMCs Al/Ti/Al fabriqués par colaminage cryogénique, colaminage à froid et colaminage à chaud a été comparée par *Liu et al.*[34]. Ils pensaient que l'amélioration de la résistance d'adhérence des composites laminés Al/Ti/Al par cryogénie dépendait de la force de verrouillage mécanique (Mechanical Locking Strength), de la résistance d'adhérence métallurgique et de la résistance à la traction de la couche d'Al.

Wang et al.[35] ont comparé l'évolution de la microstructure et les performances mécaniques du LMCs Cu/Al/Cu fabriquées par colaminage à chaud, colaminage à froid et colaminage cryogénique. Les résultats ont révélé que la résistance à la traction la plus élevée et la meilleure ductilité des composites ont été obtenues par cryogénisation à -100 °C. Par rapport au processus de colaminage à la température ambiante, l'augmentation de la limite d'élasticité ($\Delta\sigma_Y$) pour les tôles AA3003 dans le processus de laminage cryogénique a été caractérisée comme suit [36] :

$$\Delta\sigma_Y = \Delta\sigma_P + \Delta\sigma_{dis} + \Delta\sigma_{gb} \quad \text{(I.B.1)}$$

Où $\Delta\sigma_P$, $\Delta\sigma_{dis}$, et $\Delta\sigma_{gb}$ sont les augmentations de la limite d'élasticité entre les conditions de cryogénisation et de colaminage à la température ambiante, résultant respectivement du durcissement par précipitation, du durcissement par dislocation et du durcissement par affinement du grain.

Il faut noter que d'après nos recherches, aucun LMCs Mg/Al n'a été fabriqué par le colaminage cryogénique

I.B.2.4 Le Multi-colaminage (ARB)

L'obtention de grains ultrafins, voire de nanograins, joue un rôle important dans l'amélioration des propriétés des matériaux. Cependant, l'effet de l'affinement du grain produit par le laminage conventionnel est limité en raison de la faible déformation. Afin d'augmenter encore le taux de déformation par le laminage. La technique de soudage par multi-colaminage (ARB) a été proposée par *Saito et al.* en 1998 [37]. Elle consiste en une série répétée de nettoyage, de découpage, d'empilement et de colaminage [38], comme le montre la figure I.B.6.

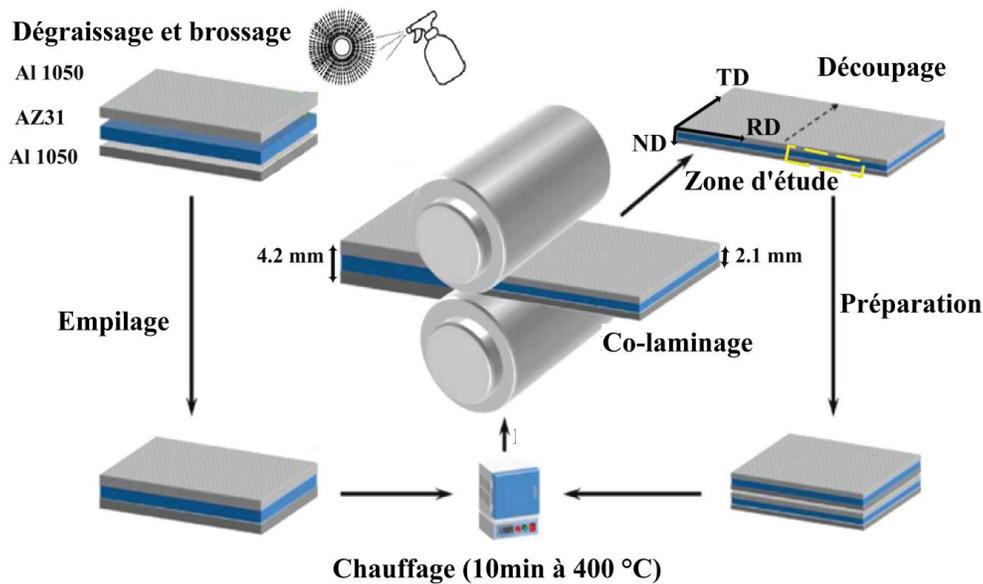


Figure I.B.6. Illustration schématique de l'ARB.

Au cours du processus ARB, une déformation importante peut être accumulée dans la LMCs sans modification de la géométrie, de sorte que les matériaux métalliques à grain ultrafin peuvent être fabriqués par le processus ARB. Récemment, le procédé ARB a également été utilisé pour préparer des LMC Mg/Al. Le Tableau I.B.3 résume les paramètres de laminage ARB typiques rapportés pour les LMC Mg/Al.

Au début, *Chen et al.* [39] ont utilisé l'ARB pour fabriquer un LMC 1100/AZ31/1100 avec une excellente caractéristique d'adhésion jusqu'à 3 cycles à 300 °C. Dans la plupart des études ultérieures [39–47], la température de laminage a généralement été fixée à 400 °C, le taux de réduction est de 50 % et le nombre de cycles totaux est de 3. Dans ces travaux, l'évolution de la microstructure, la texture, les caractéristiques de l'interface et les propriétés mécaniques ont été étudiées.

Tableau I.B.3 : Paramètres rapportés du processus ARB

LMCs	Température (°C)	Taux de réduction (%)	Nombre du cycles	Références
1100/AZ31/1100	300	50	3	[39,40]
5052/Pure Mg/5052	400	50	3	[41]
5052/Pure Mg/5052	400	50	3	[42]
1060/AZ31/1060	280	54	3	[43]
1050/Pure Mg/1050	25	50	3	[44,45]
1100/AZ31/1100	400	9-50	8	[46]
060/AZ31/1060	400	50	4	[47]
1050/AZ31/1050	400	50	5	[49]

I.B.2.5 Autres techniques de colaminage

Outre les techniques susmentionnées, il existe encore de nombreuses autres méthodes de colaminage permettant de fabriquer des LMCs, qui ont leur propre champ d'application et certains avantages. Par exemples, La technique de soudage par extrusion accumulative (accumulative extrusion bonding) s'est avérée plus efficace que la technique ARB conventionnelle pour affiner le grain et améliorer les propriétés mécaniques des spécimens [48].

La technique de soudage par rouleaux emballés (Pack Roll Bonding technique) peut non seulement éviter l'oxydation interfaciale dans le processus de colaminage à chaud, mais aussi résoudre le problème de la fissuration interfaciale [50].

La technique de colaminage assistée par courant d'impulsion présente les avantages évidents de promouvoir la diffusion atomique à l'interface, d'améliorer la résistance d'adhésion interfaciale et d'inhiber les fissures de bord [51].

La technique de laminage à plat ondulé (Corrugated-Flat Rolling technique) a été mise au point pour résoudre le problème de la faible résistance aux adhérences interfaciales, de la faible planéité et des contraintes résiduelles importantes dans la fabrication des laminés métalliques [52]

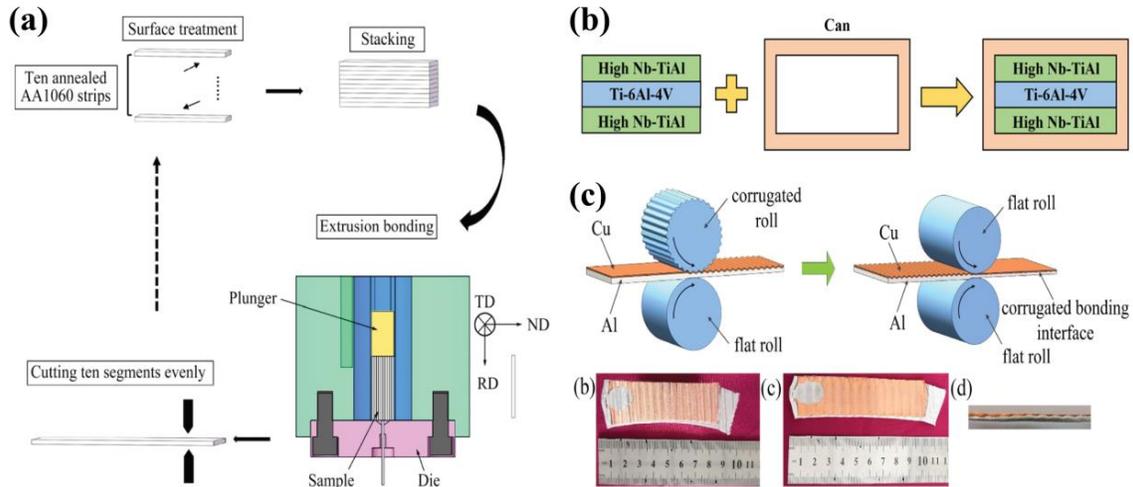


Figure I.B.7 Illustration schématique de : (a) Soudage par extrusion accumulative (accumulative extrusion bonding)[48], (b) Soudage par rouleaux emballés (Pack roll bonding technique) [50], (c) Technique de laminage à plat ondulé (the corrugated-flat rolling technique) [52].

I.B.3 Mécanisme d'adhésion de l'interface du LMCs pendant le colaminage

I.B.3.1 Théories de colaminage

L'étude du mécanisme de formation de l'interface pendant le colaminage est crucial afin d'améliorer la qualité du soudage du LMCs. Entre-temps, quelques théories célèbres de colaminage ont été proposées. La théorie du « Jogging » mécanique (Mechanic Joggle Theory) a été établie par *Bowden* et *Tabor* [53]. Dans le processus de colaminage, les interfaces ondulées ont été progressivement orientées sous l'action de la pression de laminage, ce qui a permis de réaliser la jonction mécanique de métaux dissemblables.

Néanmoins, *Ding* et *Zhang* [54] ont supposé que la formation de l'interface était induite par la réaction de liaison chimique des atomes métalliques dissemblables, ce qui a conduit au développement de la théorie de la liaison métallique. Sur la base de la théorie des liaisons métalliques, la théorie de l'énergie a été proposée par *Mohamed & Washburn* [55]. L'idée clé de cette théorie était que seul l'espacement entre les atomes activés était suffisamment petit pour permettre la formation de liaisons entre des métaux dissemblables.

De même, la théorie de la diffusion a été présentée par *Mitani et al.*[56]. Ils ont supposé que les atomes des interfaces étaient activés par l'énergie apportée par le processus de laminage et interdiffusés pour former la couche de diffusion [56].

Il existe encore quelques théories similaires sur le mécanisme de formation de l'interface des LMCs pendant le colaminage, telles que la théorie du film mince [57], la théorie de la réparation des fissures [58] et la théorie de la recristallisation [59].

Les théories de colaminage ci-dessus considèrent la formation de l'interface comme un processus unique, alors qu'il s'agit en réalité d'un processus progressif. Sous l'effort collectif de nombreux chercheurs, la célèbre théorie en trois étapes a été proposée, comprenant l'étape du contact physique, l'étape de la réaction physico-chimique et l'étape de l'inter-diffusion [60]. Par la suite, la théorie des trois étapes a été modifiée pour devenir la théorie de *Bay* [61]. Elle a été largement reconnue et a divisé le processus de colaminage en quatre étapes.

Tout d'abord, le film d'oxyde et la couche d'écaillage sont brisés sous la pression énorme du laminage. Deuxièmement, l'expansion de la surface brisée met à nu le métal de la matrice. Troisièmement, les métaux de la matrice sont comprimés dans les fissures du film d'oxydation et de la couche d'écaillage. Enfin, les atomes de métaux dissemblables à l'interface sont activés pour former une liaison métallurgique. Le processus de colaminage des métaux dissemblables de la théorie de *Bay* [62] est illustré à la figure I.B.8.

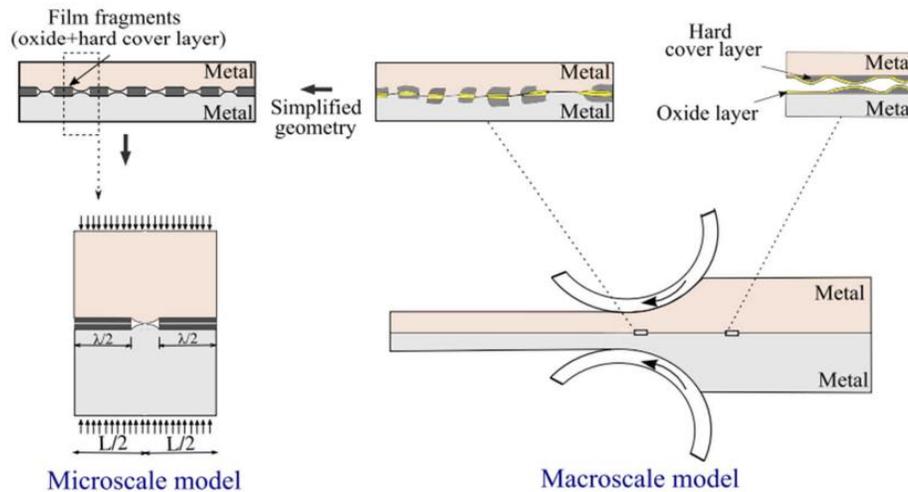


Figure I.B.8 Schéma du processus de colaminage des métaux dissemblables de la théorie de *Bay* [62].

I.B.3.2 Mécanisme d'évolution de l'interface du LMCs

Pour mieux comprendre le mécanisme de formation de l'interface des métaux dissemblables, de nombreuses études ont été menées sur la loi d'évolution de l'interface du composite laminé par colaminage. Pour le colaminage à chaud, des LMCs en acier inoxydable

austénitique fortement boré présentant une ductilité et une ténacité élevées ont été fabriquées, et le mécanisme d'adhésion a été clarifié par *Li et al.* [63], comme le montre la figure I.B.9.

Dans l'état initial, l'interface de liaison était divisée en régions austénite/austénite et borides/borides. Au fur et à mesure que le taux de pression total du laminage augmentait, l'interface se formait au niveau des régions austénite/austénite et de nouveaux grains équiaxes dus à la recristallisation de l'austénite pendant le colaminage à chaud pouvaient être observés à l'interface. Quant aux régions fragiles des borures/borides, elles ont d'abord été brisées [64] puis entourées par l'austénite qui s'est écoulée plastiquement, ce qui a conduit à la formation de fines couches de diffusion entre les particules de $(Cr,Fe)_2B$ et la matrice d'austénite. Enfin, l'interface contenant les particules céramiques fragiles a été formée pour les composites.

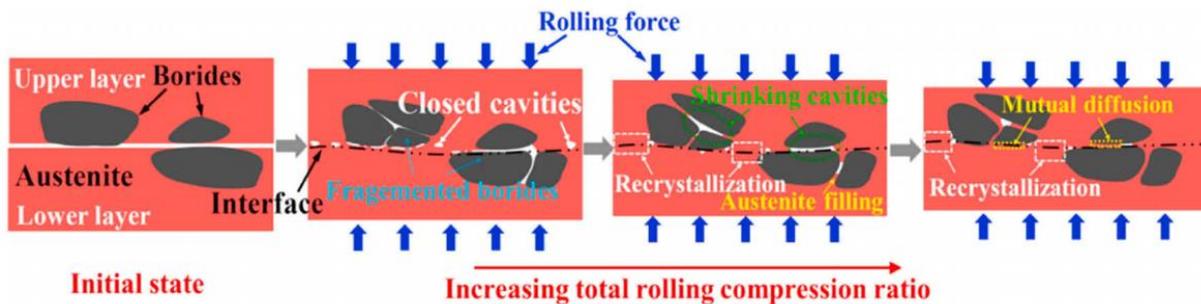


Figure I.B.9 Représentation schématique du mécanisme de soudage d'un LMCs en Al/ acier nitruré par la procédé de colaminage à chaud [63].

Le mécanisme de formation interfaciale des LMCs par colaminage à froid est différent de celui par colaminage à chaud. *Wu et al.* [65] ont étudié la résistance d'adhésion du composite laminé Al/acier après colaminage à froid et le mécanisme de soudage entre les couches est illustré à la figure 10.

Pour modifier la couche fragile formée par le processus de brossage métallique [66], une couche homogène durcie en surface a été formée par le traitement de nitruration sur l'acier (Figure I.B.10(a)). Dans la phase initiale du processus de colaminage à froid, la profondeur et le nombre de fissures augmentent dû à la pression de laminage (Figure I.B.10(b)). Au fur et à mesure de la réduction de l'épaisseur, l'aluminium a été comprimé dans les petites ouvertures [66] et collé à la matrice d'acier frais (Figure I.B.10(c)). Enfin, des lacunes importantes et profondes ont été créées, ce qui permet d'augmenter la zone de soudage et la résistance d'adhésion (Figure I.B.10(d)).

Par rapport à la technique de colaminage à chaud et à la technique de colaminage à froid, la déformation plastique pour le processus ARB dans chaque cycle de laminage est beaucoup plus importante et s'accompagne d'une loi d'évolution interfaciale unique [67]. *Roy et al.* [68] ont étudié l'évolution microstructurale et les propriétés de traction des LMCs d'alliages d'aluminium 2219/5086 fabriqués par ARB. L'évolution de la microstructure interfaciale est illustrée à la figure I.B.11.

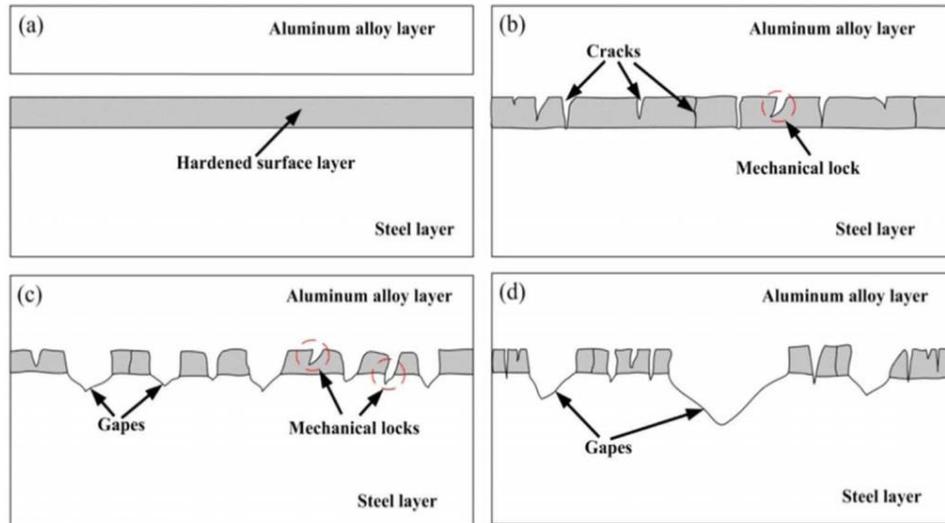


Figure I.B.10 Schémas du mécanisme de soudage d'un composite laminé Al/ acier nitruré par le procédé de colaminage à froid [65].

Au cours des quatre premiers cycles d'ARB, la résistance a augmenté car l'écroutissage des couches d'AA5086 a pu être réduit par un recuit intermédiaire [69] et les deux couches d'alliage ont conservé une différence de résistance minimale à l'état initial, ce qui a permis de maintenir l'état de déformation et l'interface linéaire (Figure I.B.11(a)). Après les 4^{èmes} cycles d'ARB (5^{ème} et 6^{ème} cycles), la couche d'AA5086 durcit dans des régions localisées et n'a pas pu être éliminée par le recuit intermédiaire, ce qui a provoqué l'apparition d'un rétrécissement (Necking) (Figure I.B.11(b)).

Lorsque les cycles ARB ont été augmentés jusqu'aux 7 et 8^{èmes} cycles, la déformation s'est concentrée dans les régions de rétrécissement, conduisant à la fragmentation des couches d'AA5086 (Figure I.B.11(c)).

En tant que nouvelle méthode, la technique de colaminage cryogénique a suscité une grande inquiétude, de même que la loi d'évolution interfaciale des LMCs. *Yu et al.* [33] ont indiqué

que les performances mécaniques du composite laminé Al/Ti/Al pouvaient être améliorées par la technique de colaminage cryogénique. En outre, la différence de mécanisme d'évolution interfaciale des composites laminés Al/Ti/Al fabriqués par le colaminage à froid et le colaminage cryogénique a été comparée, comme la montre la figure I.B.12.

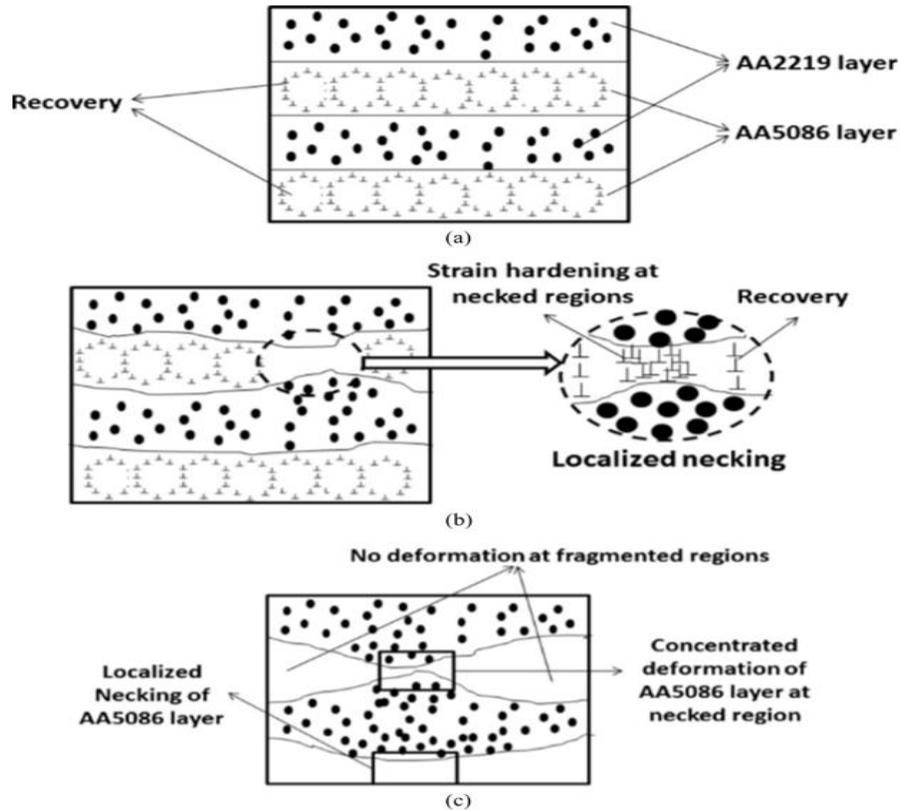


Figure I.B.11 Schéma de l'évolution de la microstructure des LMCs d'aluminium 2219/5086 fabriqués par ARB : (a) les quatre premiers cycles ; (b) 5^{ème} et 6^{ème} cycles ; (c) 7^{ème} et 8^{ème} cycles [68].

Avant le colaminage, les tôles d'Al et de Ti à gros grains ont été séparées (Figure I.B.12(a)). Au cours du processus de colaminage, les grains autour de l'interface ont été considérablement affinés par la déformation de cisaillement, qui a été induite par la différence plastique entre l'Al et le Ti. Comparé au colaminage à froid, le colaminage cryogénique est plus favorable à l'affinement du grain (Figure I.B.12(b) et (d)) en raison de la suppression du comportement de restauration dynamique à la température cryogénique [70].

Avec l'augmentation de la réduction de l'épaisseur, le métal frais a été exposé et des grains ultrafins/nano ont commencé à s'accumuler à l'interface, ce qui a considérablement facilité

l'adhésion interfaciale. En outre, les points de jonction (soudage) interfaciale étaient plus nombreux, en raison de la taille plus petite des grains, ce qui se traduit par une plus grande résistance de l'adhérence.

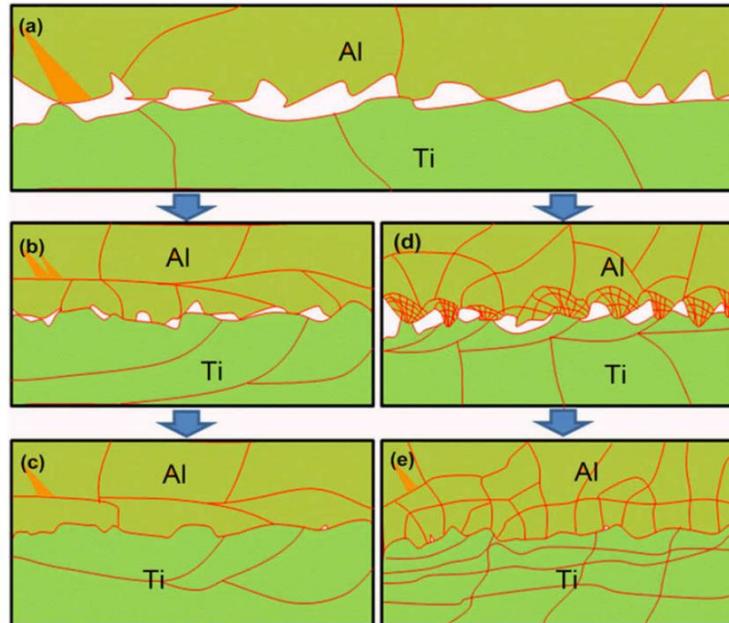


Figure I.B.12 Illustration de l'interface pendant le colaminage: (a) Avant le colaminage ; (b, c) Interface avec une réduction plus importante grâce au colaminage à froid ; (d, e) Interface avec une réduction plus importante grâce au colaminage cryogénique [33].

I.B.4 Principaux facteurs pour améliorer les performances des LMCs

I.B.4.1 Paramètres de traitement thermique et de laminage appropriés

De nombreuses études ont indiqué que le traitement thermique et les paramètres de laminage avaient un impact significatif sur la microstructure interfaciale et les performances mécaniques des composites laminés. *Peng et al.* [71] ont étudié la résistance de l'adhérence et la qualité de l'interface des LMCs Cu/Al pendant le colaminage à chaud à différentes températures de 623, 703 et 773 K. Lorsque la température de colaminage était de 703 K, ils ont atteint la résistance maximale de l'adhérence.

La méthode des éléments finis ont été utilisés pour simuler le processus de colaminage des composites laminés par *Maleki et al.*[72]. Ils ont validé le fait que l'augmentation du taux de réduction entraîne une plus grande résistance de l'adhérence.

Liu et al. [34] ont indiqué que la résistance d'adhésion interfaciale des LMCs Al/Ti/Al fabriqués par colaminage cryogénique était supérieure à celle obtenue par colaminage à froid et

colaminage à chaud. L'influence de la température de recuit sur la microstructure interfaciale et la résistance au pelage des composites laminés Cu/Al a été étudiée par *Mao et al.* [73]. Les résultats expérimentaux ont montré que l'épaisseur du LMCs pouvait être contrôlée à 550 nm après le recuit à 250 °C et que la résistance au pelage pouvait atteindre 39 N/mm.

Néanmoins, le traitement de recuit à haute température a conduit à l'apparition de fractures de rupture et à une diminution importante de la résistance de l'adhérence. *Gao et al.* [74] ont étudié l'effet de la microstructure interfaciale par le processus de recuit intermédiaire sur les performances mécaniques des composites laminés Cu/Al/Cu. Les résultats expérimentaux ont permis de vérifier que l'affinement du grain interfaciale pouvait effectivement améliorer les performances globales des LMCs [75], comme le montre la figure I.B.13.

I.B.4.2 Ajout de métal intermédiaire

Lee et al. [76] ont signalé qu'en raison de la grande affinité chimique entre les métaux, les composés intermétalliques qui se forment facilement à l'interface au cours du processus de traitement thermique sont difficiles à réguler, ce qui entraîne une diminution de la résistance d'adhésion qui réduit l'efficacité du matériau. C'est pourquoi un nombre considérable de recherches récentes ont été consacrées à l'introduction d'une couche intermédiaire efficace capable d'améliorer l'adhérence des LMCs pendant le colaminage [77].

L'effet de la couche intermédiaire de Ni sur la microstructure interfaciale et la performance mécanique des LMCs Cu/Al a été étudié par *Kim et Hong* [78]. Les résultats expérimentaux ont montré que l'ajout d'une couche intermédiaire de Ni pouvait optimiser le chemin de propagation de la fissure afin d'améliorer la résistance d'adhésion interfaciale du LMCs Cu/Al, ce qui a également été prouvé par *Gao et al.* [79], comme le montre la Figure I.B.13.

Yan et al. [80] ont indiqué que l'ajout d'une couche intermédiaire de nickel pouvait améliorer de manière significative la résistance à la traction du composite laminé titane/acier inoxydable fabriquées par colaminage à chaud sous vide. De même, *Luo et al.* [81] ont démontré que les interfaces ne présentaient ni des fissures, ni des discontinuités, et que l'interdiffusion entre l'acier inoxydable et le titane était efficacement empêchée par l'insertion d'une couche de Nb pur.

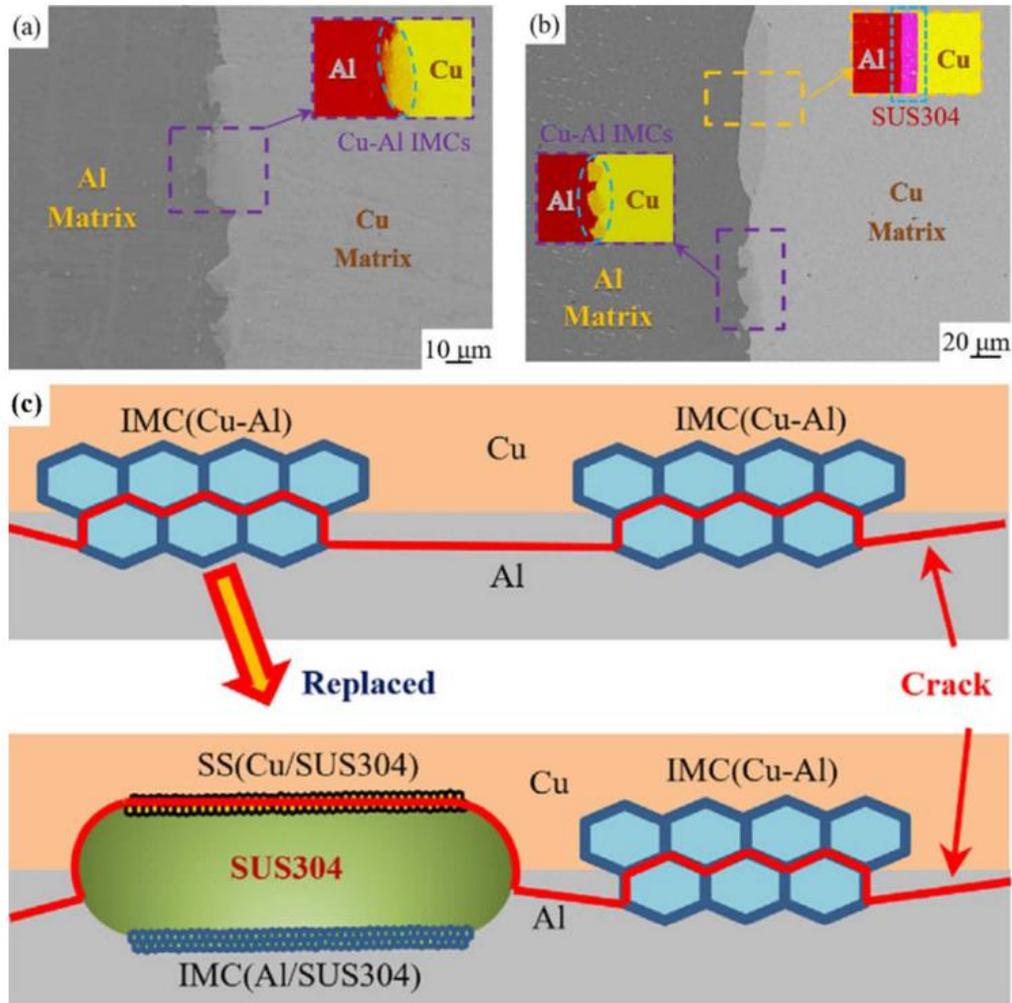


Figure I.B.13 Effet de la couche intermédiaire SUS304 sur la microstructure interfaciale et la propagation des fissures dans une tôle plaquée Cu/Al [79].

En outre, de nombreuses recherches ont été menées par calcul « Premier Principe » pour expliquer le mécanisme d'amélioration des couches métalliques intermédiaires dans les composites laminés. Le mécanisme de promotion des éléments d'alliage sur la formation de liaisons covalentes à haute résistance a été élaboré par calcul « Premier Principe » par *Peng et al.*[82] et *Wang et al.* [83], comme le montre la figure I.B.14.

En outre, *Yuan et al.* [84] ont indiqué que la précipitation de particules α -Al (Fe, Mn) Si à l'interface pouvait améliorer de manière significative la résistance à la corrosion d'Al. Sur la base de calcul « Premier Principe », *Czelej et Kurzydowski* [85] ont constaté que l'ajout d'éléments C et Mg améliorerait la résistance d'adhésion interfaciale du composite laminé acier/Al.

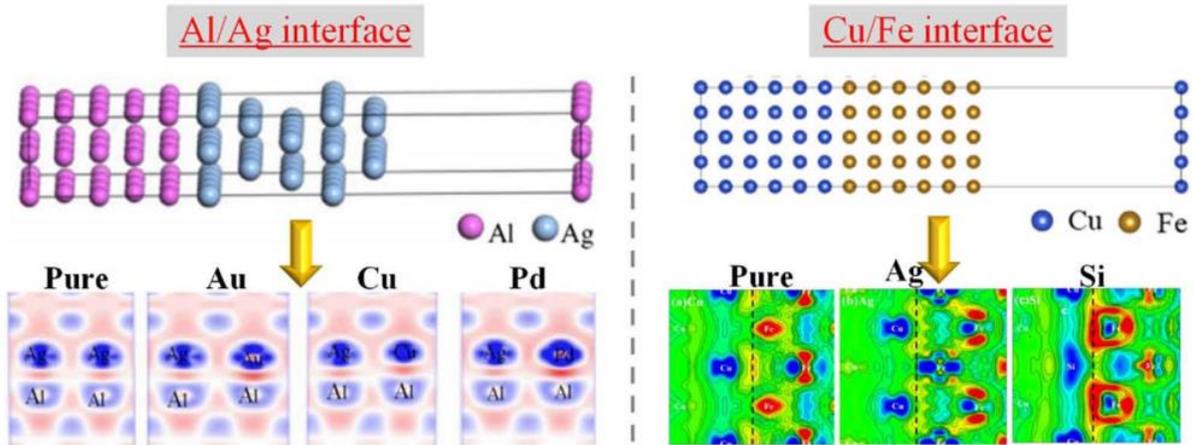


Figure I.B.14 Mécanisme de promotion des éléments d'alliage sur la formation de liaisons covalentes à haute résistance [82,83].

I.B.4.3 Amélioration de la déformation par cisaillement interfaciale

Ces dernières années, le mécanisme d'influence de la déformation de cisaillement interfaciale induite par la différence plastique entre des métaux dissemblables dans le processus de colaminage sur la performance mécanique des LMCs a suscité un grand intérêt [86]. Dans le processus de fabrication de LMCs Al/acier, *Baruj et al.* [87] ont constaté que la déformation par cisaillement pouvait activer les atomes interraciaux et favoriser la formation d'une liaison métallique à haute résistance, ainsi qu'une qualité d'adhésion est élevée. *Chang et al.* [88] ont supposé que la déformation de cisaillement sévère formée dans le colaminage asymétrique de LMCs cuivre/aluminium pouvait améliorer de manière synchronisée le choc mécanique et inhiber la chute globale de l'interface. Outre, la promotion de la formation de liaisons métalliques à haute résistance, la déformation par cisaillement interfaciale peut également affiner les grains interraciaux.

Pour améliorer la déformation interfaciale par cisaillement des LMCs, *Wang et al.*[52] ont développé la technique du laminage ondulé. Cette technique permet d'affiner considérablement les grains interraciaux et d'améliorer les performances mécaniques des composites. Lors de la fabrication de tôles plaquées Mg/Al par la technique de colaminage ondulé, ils [89] ont constaté que la déformation par cisaillement interfaciale pouvait encore modifier la texture basale de l'alliage de Mg, réalisant la déformation combinée des tôles d'Al et de Mg et la formation d'une interface de haute qualité, comme le montre la figure I.B.1.5

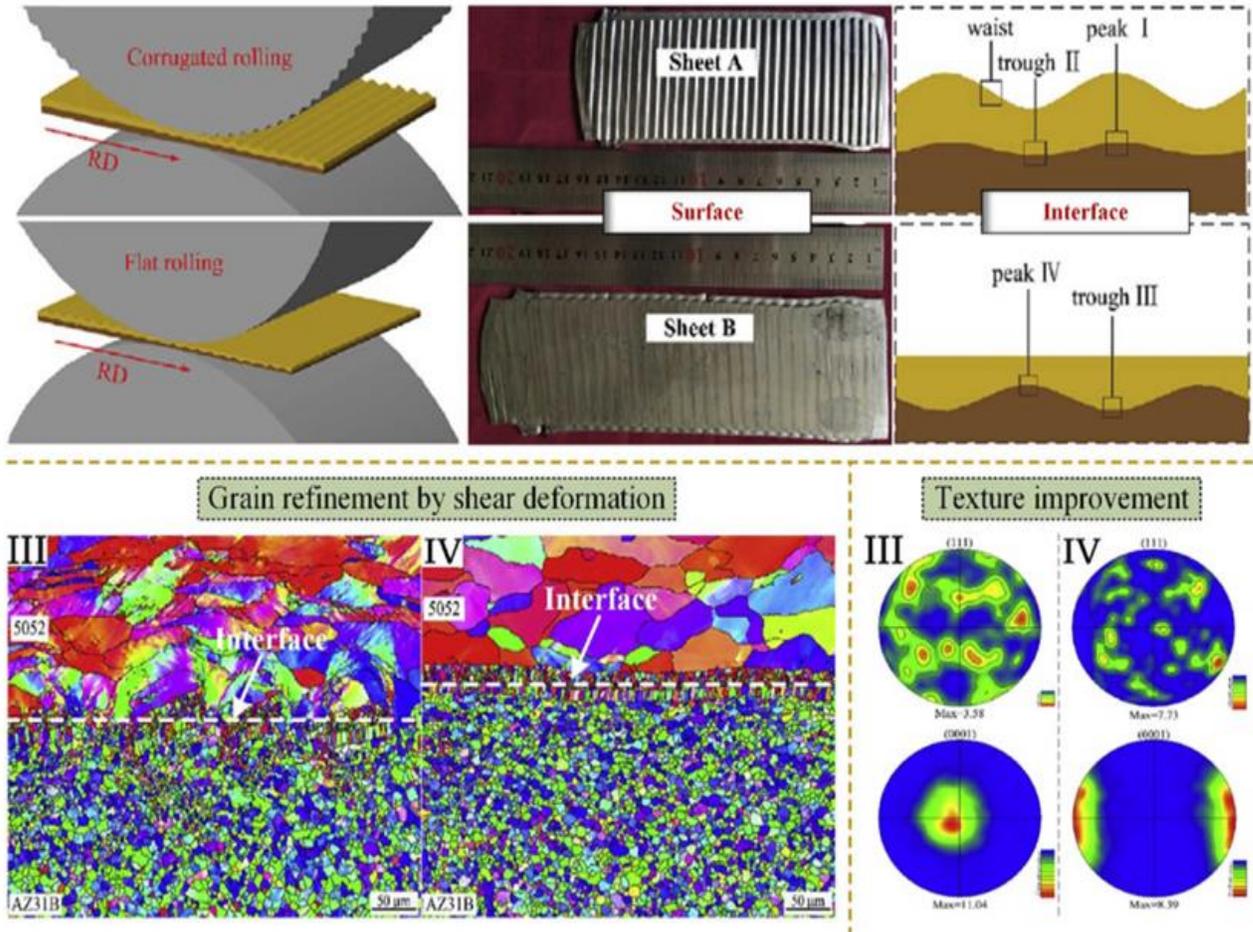


Figure I.B.15 Mécanisme de promotion de la déformation par cisaillement interfaciale sur l'affinement du grain et l'amélioration de la texture [89].

Références

- [1] Y. Su, X. Liu, H. Huang, X. Liu, J. Xie, *Metall. Mater. Trans. A* 42 (2011) 4088–4099.
- [2] L.S. Y, W.A. Q, L.S. J, X.J. P, *Materwiss. Werksttech.* 49 (2018) 1213–1223.
- [3] I.K. Kim, S.I. Hong, *Adv. Mater. Res.* 813 (2013) 34–38.
- [4] K.Y. Rhee, W.Y. Han, H.J. Park, S.S. Kim, *Mater. Sci. Eng. A* 384 (2004) 70–76.
- [5] A. Loureiro, R. Mendes, J.B. Ribeiro, R.M. Leal, I. Galvão, *Mater. Des.* 95 (2016) 256–267.
- [6] S. Jian, X. Shui-sheng, T. Jing-hui, *Acta Metall. Sin. (English Lett.)* 13 (2000) 379–386.
- [7] C. Hoppe, C. Ebbert, R. Grothe, H.C. Schmidt, I. Hordych, W. Homberg, H.J. Maier, G. Grundmeier, *Adv. Eng. Mater.* 18 (2016) 1371–1380.
- [8] Y. Jing, Y. Qin, X. Zang, Y. Li, *J. Mater. Process. Technol.* 214 (2014) 1686–1695.
- [9] Y.A. Jing, Y. Qin, X. Zang, Q. Shang, S. Hua, *J. Alloys Compd.* 617 (2014) 688–698.
- [10] M. Menon, I.W. Chen, *J. Am. Ceram. Soc.* 82 (1999) 3413–3421.
- [11] L. Zhang, L. Meng, S.P. Zhou, F.T. Yang, *Mater. Sci. Eng. A* 371 (2004) 65–71.
- [12] X.P. Zhang, S. Castagne, T.H. Yang, C.F. Gu, J.T. Wang, *Mater. Des.* 32 (2011) 1152–1158.
- [13] X.P. Zhang, T.H. Yang, S. Castagne, J.T. Wang, *Mater. Sci. Eng. A* 528 (2011) 1954–1960.
- [14] H. Nie, W. Liang, H. Chen, L. Zheng, C. Chi, X. Li, *Mater. Sci. Eng. A* 732 (2018) 6–13.
- [15] C.Y. Liu, Q. Wang, Y.Z. Jia, R. Jing, B. Zhang, M.Z. Ma, R.P. Liu, *Mater. Sci. Eng. A* 556 (2012) 1–8.
- [16] H. NIE, L. ZHENG, X. KANG, X. HAO, X. LI, W. LIANG, *Trans. Nonferrous Met. Soc. China* 31 (2021) 1656–1664.
- [17] C. Luo, W. Liang, Z. Chen, J. Zhang, C. Chi, F. Yang, *Mater. Charact.* 84 (2013) 34–40.
- [18] A.L. Wei, X.H. Liu, L. Dong, W. Liang, *Rare Met.* 37 (2018) 136–142.
- [19] X.P. Zhang, T.H. Yang, S. Castagne, C.F. Gu, J.T. Wang, *Mater. Des.* 32 (2011) 2239–2245.
- [20] H. Nie, W. Liang, H. Chen, C.C. Fei Wang, Taotao Li, X. rong Li, *J. Alloys Compd.* 781 (2019) 696–701.
- [21] P. Wang, Z. Chen, C. Hu, B. Li, T. Mo, Q. Liu, Z. Chen, C. Hu, B. Li, T. Mo, Q. Liu, *Mater. Sci. Eng. A* 792 (2020) 139673–139682.
- [22] A. Macwan, X.Q. Jiang, C. Li, D.L. Chen, *Mater. Sci. Eng. A* 587 (2013) 344–351.
- [23] C. Lian-sheng, Z. Xin-lei, Z. Xiao-ping, S. Jin-ying, T. Ya-qiang, *Rare Met. Mater. Eng. (in Chinese)* 47 (2018) 3243–3250.
- [24] R. Jamaati, M.R. Toroghinejad, *Mater. Sci. Eng. A* 527 (2010) 2320–2326.
- [25] R. Jamaati, M.R. Toroghinejad, *Mater. Sci. Technol.* 27 (2011) 1101–1108.
- [26] G. Chen, J.T. Li, H.L. Yu, L.H. Su, G.M. Xu, J.S. Pan, T. You, G. Zhang, K.M. Sun, L.Z. He, *Mater. Des.* 112 (2016) 263–274.
- [27] S. Yan, X. Liu, W.J. Liu, L. Liu, Y. Zhao, B. Zhang, *Mater. Sci. Eng. A* 660 (2016) 195–204.
- [28] Y. Yang, G. Lin, X. Wang, D. Chen, A. Sun, D. Wang, *Int. J. Refract. Met. Hard Mater.* 43 (2014) 121–124.
- [29] L.Y. Sheng, F. Yang, T.F. Xi, C. Lai, H.Q. Ye, *Compos. Part B* 42 (2011) 1468–1473.
- [30] H. Matsumoto, S. Watanabe, S. Hanada, *J. Mater. Process. Technol.* 169 (2005) 9–15.
- [31] X. Wang, D. Guan, *J. Magnes. Alloy.* 10 (2022) 1235–1241.

- [32] Y. Hai-liang, *China Mech. Eng.* 31 (2020) 89–99.
- [33] Y. Hai-liang, L. Cheng, T. K. L. Hai-jun, G. A. L. X., *J. Mater. Res.* 32 (2017) 3761–3768.
- [34] J. Liu, Y. Wu, L. Wang, H. Wang, C. Kong, A. Pesin, A.P. Zhilyaev, H. Yu, *Acta Metall. Sin. (English Lett.* 33 (2020) 871–880.
- [35] L. WANG, J. LIU, C. KONG, A. PESIN, A.P. ZHILYAEV, H. YU, *Adv. Eng. Mater.* 26 (2020) 5–18.
- [36] Q.Y. Yang, Y.L. Zhou, Y.B. Tan, S. Xiang, F. Zhao, *J. Alloys Compd.* 884 (2021) 161135.
- [37] Y. Saito, N. Tsuji, H. Utsunomiya, T. Sakai, R.G. Hong, *Scr. Mater.* 39 (1998) 1221–1227.
- [38] L. WANG, Q. lin DU, C. LI, X. hui CUI, X. ZHAO, H. liang YU, *Trans. Nonferrous Met. Soc. China (English Ed.* 29 (2019) 1621–1630.
- [39] M.C. Chen, H.C. Hsieh, W. Wu, *J. Alloys Compd.* 416 (2006) 169–172.
- [40] M.C. Chen, C.W. Kuo, C.M. Chang, C.C. Hsieh, Y.Y. Chang, W. Wu, *Mater. Trans.* 48 (2007) 2595–2598.
- [41] H. Chang, M.Y. Zheng, W.M. Gan, K. Wu, E. Maawad, H.G. Brokmeier, *Scr. Mater.* 61 (2009) 717–720.
- [42] K. Wu, H. Chang, E. Maawad, W.M. Gan, H.G. Brokmeier, M.Y. Zheng, *Mater. Sci. Eng. A* 527 (2010) 3073–3078.
- [43] H.S. Liu, B. Zhang, G.P. Zhang, *J. Mater. Sci. Technol.* 27 (2011) 15–21.
- [44] H. Chang, M.Y. Zheng, C. Xu, G.D. Fan, H.G. Brokmeier, K. Wu, *Mater. Sci. Eng. A* 543 (2012) 249–256.
- [45] H. Chang, M. Zheng, W. Gan, C. Xu, H.G. Brokmeier, *Rare Met. Mater. Eng.* 42 (2013) 441–446.
- [46] Z.J. Chen, Q. Liu, G.J. Wang, D.M. Wang, *Mater. Res. Innov.* 19 (2015) S147–S151.
- [47] J. Nie, M. Liu, F. Wang, Y. Zhao, Y. Li, Y. Cao, Y. Zhu, *Materials (Basel).* 9 (2016).
- [48] X. CHEN, G. sheng HUANG, S. shuai LIU, T. zhuang HAN, B. JIANG, A. tao TANG, Y. tian ZHU, F. sheng PAN, *Trans. Nonferrous Met. Soc. China (English Ed.* 29 (2019) 437–447.
- [49] W. Habila, H. Azzeddine, B. Mehdi, K. Tirsatine, T. Baudin, *Mater. Charact.* 147 (2019) 242–252.
- [50] W. Sun, F. Yang, F. Kong, X. Wang, Y. Chen, *Mater. Charact.* 144 (2018) 173–181.
- [51] W. Long, R. Jin-hua, *Mach. Des. Manuf.* 8 (2021) 207–210.
- [52] T. Wang, S. Li, Z. Ren, J. Han, Q. Huang, *Mater. Lett.* 234 (2019) 79–82.
- [53] F.P. Bowden, D. Tabor, P.R.S.L. A, *Proc. R. Soc. London. Ser. A. Math. Phys. Sci.* 169 (1939) 391–413.
- [54] D. Xu-guang, Z. Zhi-liang, *Forg. Stamp. Technol.* 4 (1997) 32–36.
- [55] H.A. Mohamed, J. Washburn, *Weld. J. (Miami, Fla)* 54 (1975) 302–310.
- [56] Y. Mitani, R. Vargas, M. Zavala, *Thin Solid Films* 111 (1984) 37–42.
- [57] V.L. R, N.M. G, M.D. R, *Br. Weld. J.* 6 (1959) 13–28.
- [58] Y. Jiu-ming, Y. Chang-sheng, Z. Quan, *J. Northeast. Univ. (Natural Sci.* 16 (1995) 491–494.
- [59] P.J. M, *Weld. J.* 32 (1953) 209–221.
- [60] Z. Guo-yin, *Theories and Technologies of Preparation Layered Metal Composite*, Shenyang:

Northeastern University Press, 2013.

[61] B. N, *Met. Constr.* 7 (1986) 369–372.

[62] K. Khaledi, T. Brepols, S. Reese, *Mech. Mater.* 137 (2019).

[63] Y.W. Li, Z.J. Wang, D.G. Fu, G. Li, H.T. Liu, X.M. Zhang, *Mater. Sci. Eng. A* 799 (2021).

[64] J.M. Fernandez, R. Asthana, M. Singh, F.M. Valera, *Ceram. Int.* 42 (2016) 5447–5454.

[65] H. Watson, A.J. Cockbain, J. Spencer, A. Race, M. Volpato, P. Loadman, G. Toogood, M.A. Hull, *Mater. Sci. Eng. A* 682 (2017) 270–278.

[66] W. Zhang, N. Bay, *Weld. J. (Miami, Fla)* 76 (1997) 417-s.

[67] H. Yu, A.K. Tieu, C. Lu, X. Liu, A. Godbole, H. Li, C. Kong, Q. Qin, *Sci. Rep.* 4 (2014) 1–8.

[68] S. Roy, B.R. Nataraj, S. Suwas, S. Kumar, K. Chattopadhyay, *Mater. Des.* 36 (2012) 529–539.

[69] F.J. Humphreys, *Acta Mater.* 45 (1997) 5031–5039.

[70] Z. Xu, M. Liu, Z. Jia, H.J. Roven, *J. Alloys Compd.* 695 (2017) 827–840.

[71] X.K. Peng, G. Heness, W.Y. Yeung, *J. Mater. Sci.* 34 (1999) 277–281.

[72] H. Maleki, S. Bagherzadeh, B. Mollaei-Dariani, K. Abrinia, *J. Mater. Eng. Perform.* 22 (2013) 917–925.

[73] Z. Mao, J. Xie, A. Wang, W. Wang, P. Liu, R. Date, R. Date, A. Date, *J. Mater. Process. Technol.* 285 (2020) 116804.

[74] H. Gao, X. Liu, Z. Ai, S. Zhang, L. Liu, *Appl. Phys. A Mater. Sci. Process.* 122 (2016).

[75] H.T. Gao, X.H. Liu, J.L. Qi, Z.R. Ai, L.Z. Liu, *J. Mater. Process. Technol.* 251 (2018) 1–11.

[76] S. Lee, I. Son, J. Lee, J. Lee, Y. Kim, G. Lee, S. Lee, Y. Cho, D. Bae, *Int. J. Precis. Eng. Manuf.* 16 (2015) 525–530.

[77] E. Akca, A. Gursel, *Int. J. Precis. Eng. Manuf.* 3 (2015) 12–16.

[78] H. Jin, K. Sun, I. Hong, *Met. Mater. Int.* 15 (2021) 12–16.

[79] H. Gao, L. Wang, S. Liu, J. Li, C. Kong, *J. Mater. Res. Technol.* 15 (2021) 3514–3524.

[80] J.C. Yan, D.S. Zhao, C.W. Wang, L.Y. Wang, Y. Wang, S.Q. Yang, *Vacuum* 25 (2009) 914–918.

[81] Z. Luo, G. Wang, G. Xie, L. Wang, K. Zhao, *Acta Metall. Sin. (English Lett.)* 26 (2013) 754–760.

[82] B. Wang, J. Sui, B. Yu, C. Yuan, L. Guo, A.M.A. El-aty, *Mater. Today Commun.* 22 (2020) 100670.

[83] Y. Wang, M. Li, H. Gao, J. Wang, B. Sun, *Materials (Basel)*. 13 (2020) 3112.

[84] Z. Yuan, Y. Tu, T. Yuan, Y. Zhang, Y. Huang, *Vacuum* 183 (2021).

- [85] K. Czelej, K.J. Kurzydłowski, *Scr. Mater.* 177 (2020) 162–165.
- [86] Q. Jun-long, L. Xiang-hua, G. Hai-tao, C. Jing-qi, H. Xian-lei, Y. Shu, *Sci. Int. J. Mech.* 165 (2020) 105152.
- [87] H. Dehghanpour Baruj, A. Shadkam, M. Kazeminezhad, *J. Mater. Res. Technol.* 9 (2020) 11497–11508.
- [88] C. Dong-xu, W. Ping, Z. Ying-ying, *J. Northeast. Univ. (Natural Sci.)* 40 (2019) 574–1578.
- [89] T. Wang, Y. Wang, L. Bian, Q. Huang, *Mater. Sci. Eng. A* 765 (2019).

PARTIE C :
GENERALITES SUR LA CORROSION DU MAGNESIUM ET SES
ALLIAGES

I.C.1 Introduction

I.C.1.1 La recherche d'une " légèreté ".

Le changement climatique est actuellement un souci important. Les calottes polaires fondent et le niveau des mers augmente à cause de l'augmentation de la température moyenne de l'atmosphère et des océans de la Terre [1]. Le phénomène de réchauffement de la planète est dû à l'augmentation des niveaux de gaz troposphériques qui contribuent à ce que l'on a nommé l'effet de serre. Le CO₂ est le gaz à effet de serre le plus important et l'augmentation continue des concentrations de ce gaz sont considérées comme la cause principale du réchauffement de la planète [2]. En effet, la réduction des émissions de CO₂ est essentielle, car ce dernier est le gaz à effet de serre le plus important et l'augmentation continue des concentrations de ce gaz sont considérées comme la cause principale du réchauffement de la planète (Figure. I.C.1) [2].

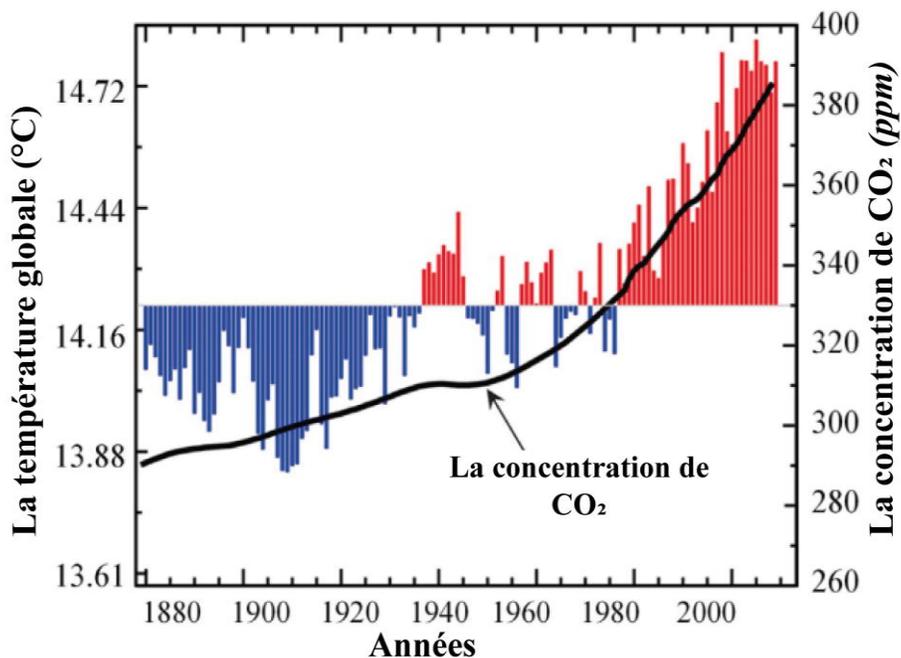


Figure I.C.1. Augmentation des taux de dioxyde de carbone dans l'atmosphère et l'anomalie de température globale [3].

Dans des régions telles que l'Europe et l'Amérique du Nord, la combustion de combustibles fossiles pour le transport terrestre, aérien et maritime représente 15 à 25 % des émissions totales de gaz à effet de serre [4]. En tant que principale source de CO₂, le secteur du transport routier est appelé à se tourner sans tarder vers les véhicules à faibles émissions. Cette nécessité est clairement

énoncée dans les normes d'émission telles que les normes CE n° 443/2009 et 510/2011 en Europe, qui précise que la moyenne du rendement du parc automobile à atteindre par toutes les nouvelles voitures est de 95 (g) de CO₂ par kilomètre (km), soit 40 % de la moyenne du parc automobile de 2007, qui était de 158,7 g/km [5], ce qui exige des efforts considérables de la part de l'industrie automobile.

L'utilisation de composants plus légers est un moyen efficace de réduire la demande de ressources en carburant, d'accroître l'efficacité énergétique et de diminuer les émissions de CO₂. Par exemple, dans une voiture de tourisme typique, un gain de poids global de 10 % permet de diminuer la consommation de carburant de 20 à 30 %, sans modification radicale de la conception [6]. En outre, les avantages économiques des matériaux légers sont alléchants. Il a été estimé qu'une réduction de poids d'un kg dans un avion entraîne des économies de carburant de 1150 USD pendant sa durée de vie [7]. Si l'on prend également en compte les effets de la pollution atmosphérique, il apparaît que les réductions de poids permettant d'économiser du carburant peuvent être très efficaces par rapport au coût.

I.C.1.2 Les propriétés attractives d'un métal unique

Le magnésium est le métal le plus léger de tous les métaux industriels, avec une densité de 1,7 g/cm³, nettement inférieure à celle de l'aluminium ($\rho_{Al} = 2,7 \text{ g/cm}^3$), du titane ($\rho_{Ti} = 4,5 \text{ g/cm}^3$) et du fer ($\rho_{Fe} = 7,9 \text{ g/cm}^3$), respectivement [6]. Le magnésium est le huitième élément le plus abondant de la croûte terrestre et il existe donc de vastes ressources pour utiliser ses alliages dans plusieurs secteurs d'engineering.

Les alliages de magnésium se sont révélés présenter le rapport résistance/poids le plus élevé des alliages de structure, mais l'équilibre de leurs propriétés (autres que la résistance) fait encore l'objet d'intenses recherches, particulièrement en domaine de corrosion, de ductilité et de fluage. Aussi, les alliages de Mg sont considérés comme des options idéales pour les implants biodégradables à cause de sa non-toxicité vis-à-vis de l'environnement et du corps humain. Parmi les autres avantages du Mg, on peut citer une capacité d'amortissement exceptionnelle, la facilité d'usinage par fraisage et tournage à grande vitesse (par exemple, une durée de vie de l'outil 5 à 10 fois supérieure à celle de l'aluminium) [7].

Les alliages de magnésium ont une excellente aptitude au moulage, ce qui permet la fabrication de formes complexes par des méthodes à haute productivité telles que le moulage sous

pression. Selon la géométrie, les pièces en magnésium peuvent être coulées sous pression jusqu'à 50% plus rapidement que les mêmes pièces en aluminium [7].

Compte tenu des avantages et du coût modeste du Mg (en particulier le coût par unité de volume) [8], l'utilisation des alliages de Mg reste très limitée. La résistance à la corrosion du Mg, est l'un des principaux "talons d'Achille" du métal qui limite l'utilité des alliages de Mg. Même dans les cas où une propriété des alliages Mg peut être améliorée, comme la résistance au fluage avec de fortes charges en éléments de terre rare, cela aggrave encore la corrosion [9]. De même, lorsque des augmentations de résistance sont recherchées dans les alliages de Mg, c'est nominalement au détriment de la performance de corrosion, de sorte que la corrosion est le plus petit dénominateur commun qui nécessite une attention critique.

I.C.1.3 Historique de la corrosion du Mg

Le premier à proposer que le Mg est un élément est le physicien Ecossais *Joseph Black* en 1755 [10]. Le magnésium métallique a été isolé par *Davy* en 1808 et préparé sous forme cohérente par *Bussey* en 1831. Aujourd'hui, les deux principales méthodes de production de Mg sont la réduction à haute température de MgO par Si, et l'électrolyse de MgCl₂ fondu, respectivement [11].

La sensibilité du Mg à la corrosion a été documentée dès le début en 1831. *Bussey* a réalisé la première expérience de corrosion sur le Mg dans un environnement extérieur et a rapporté que " le Mg se couvre d'hydroxyde après une exposition à l'air humide, mais reste inattaqué dans l'air sec " [12]. En 1866, le comportement corrosif du Mg en solution aqueuse a été étudié par *Beetz* [13] qui a noté que le Mg présentait une évolution de l'hydrogène (HE) pendant la polarisation anodique, la première mention de ce que l'on appelle l'effet de différence négative (NDE), qui est également connu sous le nom d'HE anodique.

L'exploitation de la corrosion du Mg en ce qui concerne les propriétés biodégradables du Mg a été notée pour la première fois en 1878 par *Huse*, qui a utilisé des fils de Mg comme ligature pour arrêter les vaisseaux qui saignent chez les patients humains [14] . Cependant, la corrosion rapide et le dégagement d'hydrogène associé ont été constatés par de nombreux chirurgiens et la biocompatibilité du Mg a été remise en question [15].

Le premier alliage de Mg qui a été introduit en 1908 par *Pistor et Moschel* [11] avait une composition de Mg 90%, Al 9%, et autres 1% (en poids). Très vite, on a constaté que les alliages Mg se corrodent " mal "[16]. À ce propos, dans les années 1920, certains des travaux les plus importants (toujours d'actualité) sur la corrosion de l'alliage Mg ont été menés par *Boyer* [16]. Les

travaux de *Boyer* ont mis en évidence l'importance des impuretés dans la corrosion du Mg et la nécessité de séparer les impuretés. Ces travaux ont été étendus dans les années 1940 par *Hanawalt et McNulty* [17]. En 1954, *Petty* a suggéré de manière controversée que l'ion Mg^+ joue un rôle important dans la corrosion aqueuse du Mg [18]. Il est intéressant de noter qu'à ce jour, aucun isolement spectroscopique de cet ion n'a jamais eu lieu.

Plusieurs décennies plus tard, l'émergence d'outils analytiques à plus haute résolution et capacité spectroscopique a permis de mieux comprendre la corrosion du Mg. En 1993, *Splinter et al.* [19] ont étudié pour la première fois la composition des films formés sur Mg. Le travail a été poursuivi par *Nordlien et al.* [20] qui ont utilisé la microscopie à haute résolution pour analyser la composition des films de surface formés sur le Mg et les alliages de Mg.

Il est à noter qu'une récente augmentation de l'activité au cours de la dernière décennie a indiqué qu'il y a des problèmes significatifs que les problèmes typiquement associés aux alliages de Mg sont capables d'être résolus. Par exemple, certains alliages de Mg ont récemment passé des tests d'inflammabilité approfondis et peuvent maintenant être utilisés comme structures de sièges dans les avions commerciaux [21], ce qui promet un rôle important pour l'avenir des alliages de Mg. En addition, l'année 2015 a vu la démonstration d'un alliage de Mg (Mg-Li) ultraléger et résistant à la corrosion, offrant à la fois une résistance à la corrosion (grâce à un film superficiel "protecteur") et une aptitude au travail à froid (grâce à une matrice cubique CC centrée sur le corps cubique à face centrée CFC).

I.C.2 La corrosion du magnésium et de ses alliages

La corrosion d'un métal se produit généralement par voie électrochimique lorsqu'une anode, une cathode, électrolyte et un circuit électrique sont disponibles, et peut être décrite comme la réaction d'un matériau avec son environnement qui entraîne une dégradation du matériau. Le processus électrochimique comprend une réaction d'oxydation où des électrons sont générés et une réaction de réduction où des électrons sont consommés.

Le magnésium est connu comme un métal très actif. De plus, le magnésium a le potentiel électrochimique le plus faible de tous les métaux industriels, ce qui entraîne une corrosion galvanique avec une dissolution du magnésium lorsqu'il est couplé électriquement avec la plupart des autres matériaux métalliques (Figure I.C.2).

Lors d'un couplage galvanique, le métal ayant le potentiel le plus négatif (actif) sera l'anode et se corrodera donc préférentiellement. De même, le couplage micro-galvanique se produit au

sein d'un matériau lorsque des phases intermétalliques plus nobles ou des impuretés sont présentes. Les types courants de corrosion du magnésium comprennent la corrosion galvanique, la corrosion assistée par l'environnement, comme la fatigue par corrosion et la fissuration par corrosion sous contrainte, la corrosion par piqûres, la corrosion filiforme et la corrosion par crevasses. La fatigue due à la corrosion et les fissures dues à la corrosion sous contrainte posent un problème en service car elles entraînent la défaillance des composants.

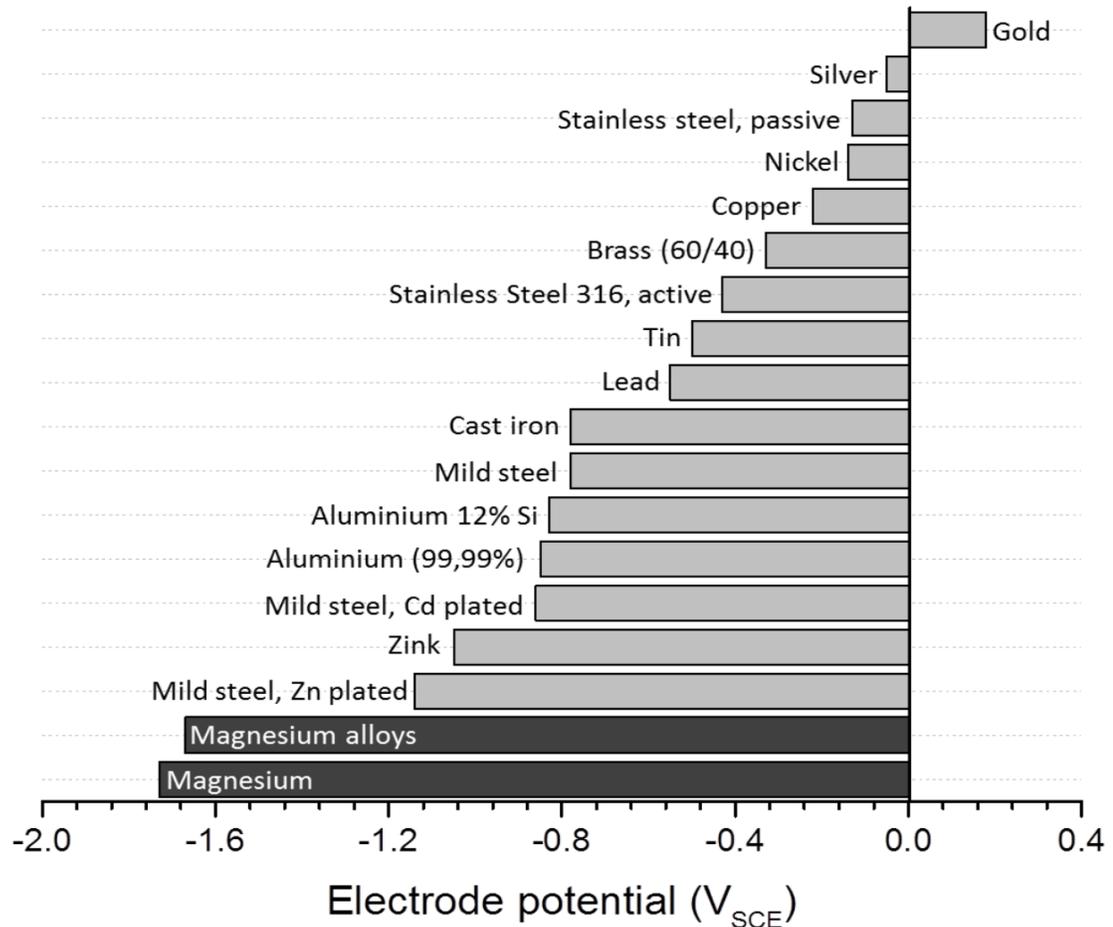
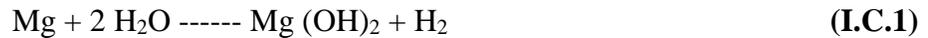


Figure I.C.2. Potentiels libres de corrosion en solution neutre de chlorure mesuré contre une électrode de calomel saturé (SCE), redessiné selon [22].

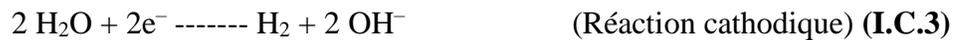
Même si le comportement de la corrosion du magnésium et de ses alliages fait l'objet de nombreuses recherches depuis des décennies, on constate encore dans la littérature des contradictions dans les résultats rapportés et des explications incomplètes de certains phénomènes de corrosion, ainsi que de nouvelles découvertes et idées qui contribuent à améliorer la compréhension actuelle du mécanisme de corrosion du magnésium et de ses alliages.

I.C.2.1 Les réactions de corrosion

Dans la plupart des solutions aqueuses, le magnésium et ses alliages réagissent électrochimiquement avec l'eau pour former de l'hydroxyde de magnésium cristallin et de l'hydrogène gazeux [6]. La dissolution du métal (oxydation) se produit sur les sites anodiques et la production de gaz d'hydrogène (réduction) sur les sites cathodiques de la surface.



Cette réaction globale peut être définie comme le total des réactions partielles indiquées ci-dessous :



En raison du très faible potentiel standard d'électrode du magnésium, l'influence de l'oxygène sur la corrosion du magnésium est négligeable.

I.C.2.2 Le film de surface

La grande affinité pour l'oxygène entraîne la formation d'un film d'oxyde de magnésium sur le magnésium lorsqu'il est exposé à l'air, ce qui protège le matériau contre la corrosion atmosphérique. Lorsqu'elle est immergée dans des solutions aqueuses, la couche d'oxyde est remplacée par la brucite (film d'hydroxyde plus stable sur le plan thermodynamique).

Le film d'oxyde se transforme en $\text{Mg}(\text{OH})_2$ par deux mécanismes possibles :

- (i) l'hydratation directe.
- (ii) la dissolution de MgO et le dépôt de $\text{Mg}(\text{OH})_2$.

Ainsi, dans les environnements quasi neutres et acides, la surface n'est pas protégée et la corrosion est inévitable. En outre, les anions agressifs tels que les ions chlorure peuvent conduire à une rupture locale du film et à l'initiation de la corrosion.

Nordlien et al. [20] ont signalé une épaisseur de film de surface de 20-50 nm après une exposition à l'air ambiant (30 % à 55 % d'humidité relative) pendant 15-60 min, et une épaisseur de 100-150 nm après une exposition à l'air humide (~65 % d'humidité relative, 30 °C) pendant 4 jours . En outre, le groupe de recherche a étudié la structure du film après immersion de Mg pur,

d'alliages de magnésium binaires et ternaires dans de l'eau distillée. Dans tous les cas, la structure du film s'est avérée être une structure à trois couches, constituée d'une couche externe semblable à une plaquette, d'une couche intermédiaire mince et d'une couche interne hydratée.

Unocic et al. [23] ont analysé les films qui se forment sur le magnésium et les alliages de magnésium lors de l'immersion dans l'eau désionisée à la température ambiante pendant 4 h, 24 h et 48 h et 200 heures. Pour l'alliage de magnésium AZ31, l'épaisseur du film augmente avec le temps d'immersion et sa structure est constituée principalement d'oxyde de magnésium partiellement hydraté, certaines parties contenant également de l'hydroxyde de magnésium et du carbonate de magnésium. Les deux groupes de recherche ont rapporté la présence des espèces d'aluminium oxydées dans les couches formées.

I.C.2.3 Comportement à la corrosion des alliages de magnésium AZ31

L'AZ31 est un alliage à usage général présentant une bonne soudabilité, une résistance élevée et la meilleure formabilité à froid des alliages corroyés. La désignation de l'alliage est généralement désignée par des codes courts définis par l'ASTM (American Society for Testing and Materials). Les lettres A et Z désignent les principaux éléments d'alliage de l'aluminium et du zinc. Les chiffres suivants 3 et 1 correspondent à leurs quantités ajoutées approximatives, exprimées en % en poids [24].

La performance d'un alliage en termes de corrosion est souvent liée à des facteurs tels que l'environnement, la composition de l'alliage, la microstructure et l'historique de l'alliage, ainsi que les caractéristiques de surface. Nous présentons ci-après la littérature pertinente sur la corrosion des alliages de magnésium AZ31, principalement dans des environnements contenant du chlorure de sodium.

I.C.2.3.1 Comparaison avec à d'autres alliages

Au cours de la dernière décennie, de nombreuses études ont comparé le comportement à la corrosion de différents alliages magnésium-aluminium entre eux dans diverses conditions [25]. Bien que les résultats rapportés soient quelque peu contradictoires, la majorité des groupes de recherche ont suggéré une résistance à la corrosion plus élevée avec une teneur en aluminium croissante [26] en particulier avec des teneurs en aluminium supérieures à 4 % [20]. Par rapport aux alliages à plus forte teneur en aluminium, par exemple l'AZ91, la résistance à la corrosion plus faible de l'alliage de magnésium AZ31 est expliquée par :

- (i) l'absence d'un réseau continu cathodique de phase γ ($Mg_{17}Al_{12}$) agissant comme barrière à la corrosion,
- (ii) une trop faible quantité d'aluminium pour former un oxyde d'aluminium protecteur à la surface de l'alliage [27].

I.C.3 Influence de la structure cristalline sur la corrosion

De nombreux chercheurs ont été démontrés que les orientations cristallographiques avaient une influence sur le comportement à la corrosion des alliages de magnésium AZ31 dans les électrolytes contenant du chlorure de sodium [28,29] En bref, la résistance à la corrosion s'est avérée être la plus élevée pour la surface de laminage comprenant principalement des plans (0002) donnant une forte texture basale. Les groupes de recherche ont suggéré qu'une explication possible est la différence d'énergie de surface des différents plans exposés à l'environnement corrosif : dans les matériaux hexagonaux compact (hcp), le plan ayant la densité atomique la plus élevée est le plan (0001), suivi respectivement par les plans prismatiques (11-20) et (01-10).

Puisque la densité de remplissage atomique est inversement corrélée à l'énergie de surface (un plan très dense a une énergie de liaison plus élevée en raison de sa coordination atomique plus élevée et donc une énergie de surface plus faible), on s'attend à ce que les plans très compacts se dissolvent plus lentement. *Song et al.* [28], sur la base du modèle de *Fu et al.* [30], ont calculé les taux de dissolution théoriques pour les plans cristallographiques (0001), (10-10) et (11-20), et ont conclu que la vitesse de corrosion théorique est environ 18 à 20 fois plus lente pour le plan basal par rapport aux plans prismatiques.

I.C.4 Influence des paramètres métallurgiques sur le comportement de la corrosion

I.C.4.1 Éléments d'alliage et phases intermétalliques

Dans l'alliage de magnésium AZ31, les éléments d'alliage les plus importants sont l'aluminium, le zinc et le manganèse. Avec le même principe dans le composite laminé Al1050/AZ31/Al1050, ces éléments forment différentes phases intermétalliques dans l'alliage de magnésium AZ31 avec des potentiels plus nobles, c'est-à-dire cathodiques par rapport à la matrice de magnésium. Le potentiel de corrosion du γ - $Mg_{17}Al_{12}$ a été rapporté comme étant plusieurs centaines de millivolts plus positifs que celui du α -magnésium [31]. Ainsi, la phase γ jouerait un double rôle en agissant comme une cathode mais aussi comme une barrière. Ce dernier point devient opérationnel dans l'alliage de magnésium AZ91, où un réseau continu se forme le long des

jointes de grains, de sorte que le front de corrosion atteindra un point de non-attaque ou d'attaque très lente. Dans le cas de l'alliage de magnésium AZ31, l'effet de barrière est absent en raison de la faible quantité de phase γ .

I.C.4.2 Taille des grains et présence des macles :

D'autres facteurs microstructuraux tels que la taille des grains, le maclage et les joints de grains ont été suggérés comme jouant un rôle crucial. Une taille de grain plus petite est supposée avoir un effet bénéfique sur le comportement de la corrosion. Les idées derrière cela peuvent être dues à une microstructure plus uniforme avec des fractions de joints de grain plus élevées et un film passif plus protecteur [32].

Des grains plus fins peuvent être obtenus par divers procédés de fabrication. Par exemple, le moulage sous haute pression conduit à une microstructure affinée, contrairement au moulage en sable ou par gravité. En général, les procédés de fabrication avec un taux de refroidissement élevé produisent une microstructure plus résistante à la corrosion. *Ben Hamu et al.* [33] ont étudié la relation entre la déformation plastique sévère et le comportement à la corrosion de l'AZ31 extrudé. Ils ont suggéré que les grains plus fins ayant plus de joints de grains ont une meilleure résistance à la corrosion, tandis que les macles et une densité élevée de dislocations augmentent le taux de corrosion. Cette idée a été confirmée par les résultats d'*Aung et al.* [34]. Ils ont exposé et analysé des matériaux laminés durs AZ31B-H24 ayant subi différents traitements thermiques à des milieux corrosifs.

Avec l'augmentation de la température du traitement thermique, la taille moyenne des grains a augmenté (35 μm à l'état brut à 250 μm après 3 heures à 500 °C) et moins de macles ont été observées. Les expériences de corrosion ont permis de conclure que : (i) le type de corrosion est intra-granulaire, (ii) la microstructure maclée se corrode plus rapidement que la microstructure non maculée et (iii) dans le cas d'une microstructure relaxée, la résistance à la corrosion est encore améliorée par l'affinement de la taille des grains.

I.C.5 Les techniques électrochimiques pour l'étude de la corrosion du Mg et ses alliages

Il existe de nombreuses techniques pour clarifier le mécanisme et mesurer la vitesse de corrosion des alliages de Mg dans les solutions aqueuses, qui peuvent être utilisées indépendamment ou simultanément. Ces techniques peuvent être divisées en deux types: Les techniques non-électrochimiques comme la méthode de perte de masse et la méthode de Collecte de l'hydrogène, et les autres types dites techniques électrochimiques.

On peut noter que même si les mesures de perte de masse sont bien établies et se caractérisent par leur simplicité, elles ne fournissent qu'un taux de corrosion moyen, nécessitent des temps relativement longs (par rapport aux essais électrochimiques) et dépendent de l'utilisation de procédures de décapage/nettoyage appropriées. Cette section couvre un certain nombre de techniques électrochimiques utilisées durant ce travail de recherche pour déterminer la résistance à la corrosion ou la vitesse de corrosion du composite laminé Al1050/AZ31/Al1050.

I.C.5.1 La polarisation potentiodynamique (PDP)

C'est une technique de contrôle du potentiel dans laquelle l'électrode de travail est polarisée à une vitesse fixe sur une gamme de potentiels. La PDP permet de déterminer la cinétique des processus anodiques et cathodiques complets lorsque le potentiel de l'électrode est balayé à des potentiels supérieurs et inférieurs à E_{corr} , respectivement. Ceci est clairement montré dans la figure I.C.3 où les tracés PDP d'un spécimen de Mg avec deux puretés différentes.

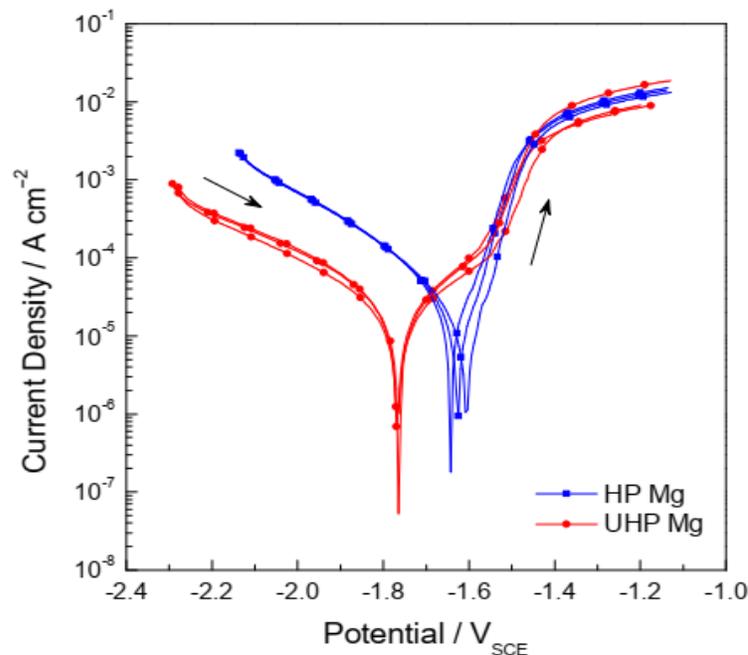


Figure I.C.3. Courbes PDP du Mg de haute et ultra-haute pureté (HP et UHP, respectivement) dans une solution de NaCl [35].

En outre, les mesures PDP permettent de détecter tout comportement passif. Elle est définie par la région de potentiel dans un tracé V vs. $\text{Log } i$ (V étant le potentiel et I la densité de courant)

où le courant reste constant avec l'augmentation du potentiel anodique appliqué. Si le système électrochimique est contrôlé par activation (c'est-à-dire que la réaction de transfert de charge est l'étape limitant la vitesse), il est possible de déterminer la concentration de courant de corrosion (analogue à la vitesse de corrosion) en extrapolant les lignes droites indiquées dans les branches cathodiques et anodiques d'un tracé PDP au potentiel de corrosion. Ces lignes sont appelées lignes de Tafel et passent normalement par une région située dans une gamme d'environ ± 50 à ± 250 mV de l' E_{corr} . Un exemple de ce protocole est présenté dans la figure I.C.4.

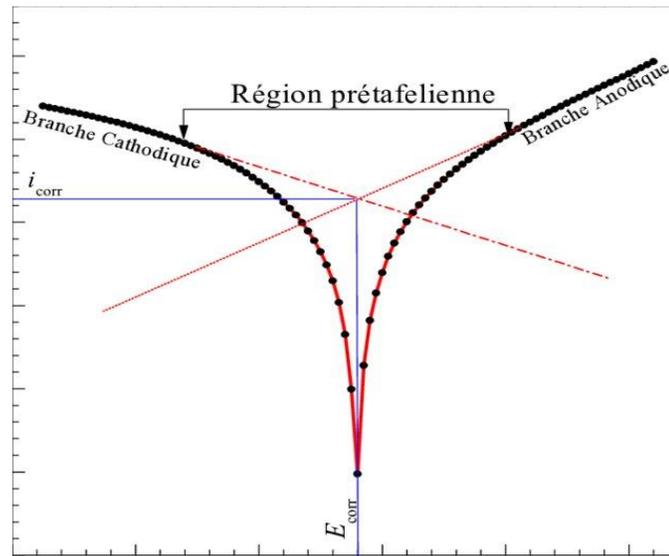


Figure I.C.4. Représentation des droites de Tafel.

I.C.5.2 La spectroscopie d'impédance électrochimique (EIS)

L'EIS (pour Electrochemical Impedance Spectroscopie) est l'une des techniques les plus utilisées pour étudier *in situ* les mécanismes de corrosion et les films de surface développés sur des échantillons de Mg et d'alliages dans des environnements corrosifs. Les études EIS sont également utiles pour déterminer la vitesse de corrosion du Mg [35] et pour classer la résistance à la corrosion des alliages de Mg.

Cette technique repose sur l'application d'une perturbation de potentiel sinusoïdale de faible amplitude (typiquement de l'ordre de 5 à 10 mV) à l'électrode de travail sur une gamme de fréquences étendue (typiquement de 100 kHz à 10 mHz) en utilisant une cellule électrochimique conventionnelle à trois électrodes. La réponse du courant est un signal sinusoïdal de la même fréquence mais avec une phase et une amplitude différentes par rapport à la perturbation (Figure

I.C.5). Les composantes réelles (Z_{re}) et imaginaires (Z_{im}) (ou module $|Z|$ et déphasage θ) de l'impédance (Z) sont calculées comme le rapport complexe entre le potentiel appliqué sinusoïdal (V) et le courant de réponse (I) [36].

$$Z(jw) = V(jw)/I(jw) \quad (\text{I.C 4})$$

Où j est l'unité imaginaire ($j^2 = -1$) et w est la fréquence angulaire.

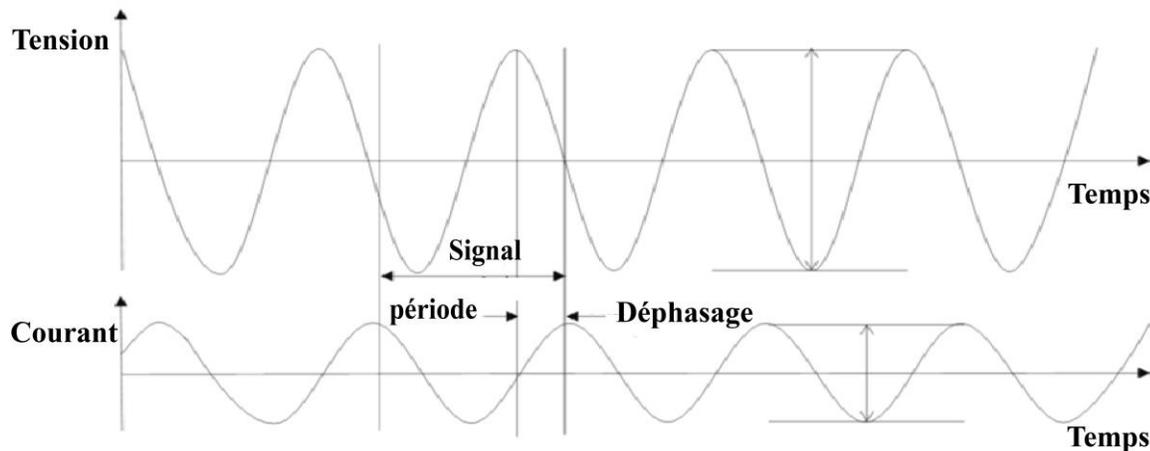


Figure I.C.5 : Représentation graphique du courant et de la tension en fonction du temps

I.C.5.2.1 Avantages de cette technique

Ses avantages les plus importants et les plus connus sont sa relative simplicité d'utilisation, le temps relativement court nécessaire aux mesures, l'utilisation d'un équipement relativement bon marché et simple, la nature quantitative, la grande précision et la reproductibilité des résultats.

Outre les informations quantitatives fournies par cette technique, la présence de corrosion dans les alliages de Mg peut également être indiquée par l'apparition de caractéristiques inductives bien avant que des changements visuels puissent être observés à l'aide des tests d'exposition traditionnels [36].

Bien que la technique de la courbe de polarisation soit destructive pour l'échantillon et ne puisse servir à prédire les taux de corrosion à long terme du matériau, les propriétés de surface du métal ou de l'alliage métallique restent similaires après chaque mesure EIS puisque les signaux appliqués ont une faible amplitude (l'écart par rapport à l'équilibre de la corrosion était de ± 5 à ± 10 mV) et ne modifient pas le potentiel de corrosion. Le caractère non destructif de la technique d'impédance permet un suivi continu de l'évolution du processus de corrosion *in situ*, avec des

mesures instantanées de la vitesse de corrosion et peut fournir des informations sur les changements des mécanismes de dégradation des alliages de Mg pendant la période d'immersion [35]. L'EIS a été considérée comme une méthode idéale pour évaluer la durabilité de ces alliages.

I.C.5.2.2 Limites de cette techniques

L'une des principales limites des mesures EIS conventionnelles est liée au manque de résolution spatiale, car les résultats d'impédance mesurés sont attribués à la réponse électrochimique des propriétés globales du système de corrosion, qui reflète un comportement électrochimique moyen de l'électrode entière. Il y a donc une limite significative dans l'étude des processus de corrosion localisés tels que la rupture de la passivation, la corrosion par piquûre et la dégradation des systèmes revêtus [37].

Des circuits équivalents utilisant des éléments de circuits électriques et physiques passifs ont été couramment utilisés pour convertir les données de réponse en fréquence caractéristiques de corrosion (par exemple, résistance et impédance). Cependant, l'une des principales difficultés de cette approche analytique concerne la sélection des circuits équivalents qui non seulement correspondent aux valeurs, car il arrive souvent que plusieurs circuits équivalents correspondent aux mêmes données, mais fournissent également une interprétation significative de l'interface étudiée avec des paramètres quantitatifs [37].

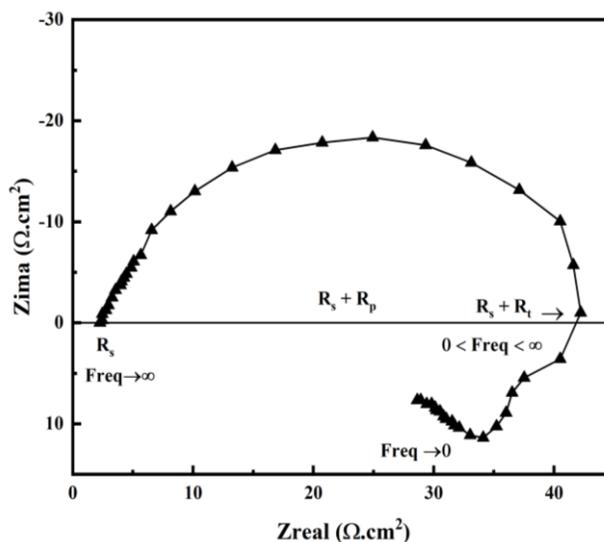


Figure I.C.6: Courbe Nyquist d'un composite laminé Al1050/AZ31/Al1050 après 1 cycle ARB, après 1h d'immersion en circuit ouvert dans une solution de 3.5% NaCl, présentant un comportement de type inductif aux basses fréquences.

Références

- [1] K.B. Tokarska, N.P. Gillett, A.J. Weaver, V.K. Arora, M. Eby, *Nat. Clim. Chang.* 6 (2016) 851–855.
- [2] J.C. Fyfe, G.A. Meehl, M.H. England, M.E. Mann, B.D. Santer, G.M. Flato, E. Hawkins, N.P. Gillett, S.P. Xie, Y. Kosaka, N.C. Swart, *Nat. Clim. Chang.* 6 (2016) 224–228.
- [3] Meinshausen M, Meinshausen N, Hare W, Raper SCB, Frieler K, Knutti R, et al. Greenhouse-gas emission targets for limiting global warming to 2 C. *Nature* 2009;458:1158–62.
- [4] EP. Regulation (EC) no 443/2009 setting emission performance standards for new passenger cars as part of the Community's integrated approach to reduce CO₂ emissions from light-duty vehicles. *Off J Eur Communities*; 2009. p. 15.
- [5] Global climate change impacts in the United States, annual report; 2009
- [6] M. Esmaily, J.E. Svensson, S. Fajardo, N. Birbilis, G.S. Frankel, S. Virtanen, R. Arrabal, S. Thomas, L.G. Johansson, *Prog. Mater. Sci.* 89 (2017) 92–193.
- [7] Avedesian MM, Baker H. *ASM specialty handbook: magnesium and magnesium alloys.* ASM Int Mater Park OH; 1999.
- [8] T.B. Abbott, *corrosion* 72 (2015) 120–127.
- [9] N. Birbilis, M.A. Easton, A.D. Sudholz, S.M. Zhu, M.A. Gibson, *Corros. Sci.* 51 (2009) 683–689.
- [10] Kammer C. *Mg-Taschenbuch.* Düsseldorf: Aluminium-Verlag; 2000.
- [11] P. IJ, *Light Alloys - from Traditional Alloys to Nanocrystals,* Elsevier, 2006.
- [12] Bussy A. Mémoire Sur le radical métallique de la magnésie. *J de Chimie Médic, de Pharma, et de Toxicologie* 1830;6:141.
- [13] W. Beetz, *Philos. Mag.* 5982 (2009) 269–278.
- [14] Huse EC. A new ligature? *Chicago Med J Exam* 1878;172:2.
- [15] L. A., *Technique et Indications de La Prothèse Perdue Dans La Traitement Des Fractures.* *Presse Med Belge* 1909;17:321–3., n.d.
- [16] Lambotte A. *Technique et indications de la prothèse perdue dans la traitement des fractures.* *Presse Med Belge* 1909;17:321–3.
- [17] R.E. McNulty, J.D. Hanawalt, *Trans. Electrochem. Soc.* 81 (1942) 423.
- [18] R.L. Petty, A.W. Davidson, J. Kleinberg, *J. Am. Chem. Soc.* 76 (1954) 363–366.
- [19] S.J. Splinter, N.S. McIntyre, W.N. Lennard, K. Griffiths, G. Palumbo, *Surf. Sci.* 292 (1993) 130–144.
- [20] J.H. Nordlien, S. Ono, N. Masuko, K. Nisancioğlu, *J. Electrochem. Soc.* 142 (1995) 3320–3322.
- [21] <http://www.Mg-elektron.com/Mg-elektron-welcomes-new-standard-use-Mg-commercial-aircraft-seats>
- [22] T. Richardson, B. Cottis, D. Scantlebury, R. Lindsay, S. Lyon, M. Graham, *Shreir's Corrosion,* Elsevier, 2010.
- [23] K.A. Unocic, H.H. Elsentriecy, M.P. Brady, H.M. Meyer, G.L. Song, M. Fayek, R.A. Meisner, B. Davis, *J. Electrochem. Soc.* 161 (2014) C302–C311.

- [24] ASTM B90 / B90M - 15, Standard Specification for Magnesium-Alloy Sheet and Plate, in, ASTM International, West Conshohocken, PA, 2015.
- [25] A. Samaniego, I. Llorente, S. Feliu, *Corros. Sci.* 68 (2013) 66–71.
- [26] R. Lindström, L.G. Johansson, J.E. Svensson, *Mater. Corros.* 54 (2003) 587–594.
- [27] S. Feliu, A. Pardo, M.C. Merino, A.E. Coy, F. Viejo, R. Arrabal, *Appl. Surf. Sci.* 255 (2009) 4102–4108.
- [28] G.L. Song, R. Mishra, Z. Xu, *Electrochem. Commun.* 12 (2010) 1009–1012.
- [29] G.L. Song, *Jom* 64 (2012) 671–679.
- [30] B.Q. Fu, W. Liu, Z.L. Li, *Appl. Surf. Sci.* 255 (2009) 9348–9357.
- [31] M. Jönsson, D. Thierry, N. LeBozec, *Corros. Sci.* 48 (2006) 1193–1208.
- [32] K.D. Ralston, D. Fabijanic, N. Birbilis, *Electrochim. Acta* 56 (2011) 1729–1736.
- [33] G. Ben Hamu, D. Eliezer, L. Wagner, *J. Alloys Compd.* 468 (2009) 222–229.
- [34] N.N. Aung, W. Zhou, *Corros. Sci.* 52 (2010) 589–594.
- [35] S. Fajardo, G.S. Frankel, *Electrochim. Acta* 165 (2015) 255–267.
- [36] Y. Gonzalez-Garcia, S.J. Garcia, J.M.C. Mol, in: *Springer Ser. Mater. Sci.*, 2016, pp. 203–240.
- [37] N.T. Kirkland, N. Birbilis, M.P. Staiger, *Acta Biomater.* 8 (2012) 925–936.

CHAPITRE II
MATÉRIAUX, PROCÉDÉS ET TECHNIQUES
EXPÉRIMENTALES

II.1 Présentation des alliages étudiés

Dans le cadre de cette étude, pour élaborer un composite laminé, deux alliages ont été utilisés, l'un à base d'aluminium et l'autre à base de magnésium.

II.1.1 L'alliage Al1050

L'alliage d'aluminium 1050 (correspond également à : AA1050A, S1B et A91050) est une nuance populaire de l'aluminium. Il est connu pour son excellente résistance à la corrosion et sa ductilité élevée. Cet alliage est généralement utilisé pour l'équipement des usines de traitement chimique, les conteneurs de l'industrie alimentaire, la poudre pyrotechnique, les solins architecturaux, les réflecteurs de lampe, et le revêtement des câbles.

Dans cette étude, l'alliage d'aluminium 1050 a été utilisé à l'état H18, c'est-à-dire avec une déformation rémanente de la mise en forme de la tôle. L'épaisseur des tôles est de 1 mm et la taille de grain moyenne d'environ 22 μm . Les tôles d'aluminium ont été gentiment fournies par la société PIMA Algérie (Produits Industriels et Métallurgiques SARL, Algérie). Sa composition chimique est donnée dans le Tableau II.1.

Tableau II.1 : Composition chimique de l'Al1050 (% massique)

Al 1050 (% massique)								
Al	Cu	Fe	Mg	Mn	Si	Ti	V	Zn
99.5	0.05	0.4	0.05	0.05	0.25	0.03	0.05	0.05

II.1.2 L'alliage AZ31

Au cours des deux dernières décennies, les alliages de magnésium de la série AZ ont été largement étudiés et utilisés pour les composants structuraux en raison de leurs grandes résistances spécifiques, et leurs bonnes coulabilités. En particulier, l'alliage AZ31 qui contient 3% d'aluminium et 1% de zinc est le plus utilisé dans l'industrie. On a utilisé un alliage AZ31 sous forme de tôle épaisse de 2,0 mm et une taille de grain moyenne d'environ 18 μm . Les tôles magnésium AZ31 ont été gracieusement fournies par Innovations Magic Magnésium Center, Allemagne dont la composition chimique (% en poids.) est indiquée dans le Tableau II. 2.

Tableau II.2 : Composition chimique de l'alliage AZ31 (%massique)

AZ31 (% massique)						
Mg	Al	Zn	Mn	Ca	Si	Cu
Bal	2.5 - 3.5	0.6 - 1.4	0.2 – 1.0	0.04	0.1	0.01

II.2 Procédé : Elaboration du composite laminé Al1050/AZ31/Al1050 par ARB.

Les premiers échantillons de dimension 65 mm x 30 mm ont été découpés à partir des tôles d'Al1050 et d'AZ31. Les échantillons ont été bien collés dans un serre-joint et percés avec deux trous à l'avant et deux trous à l'arrière de l'échantillon pour faciliter la fixation des trois tôles. Ensuite, les échantillons ont été dégraissés avec l'acétone et brossés par une brosse métallique afin d'enlever le film d'oxyde de surface et assurer ainsi un bon soudage (Figure .II.1).

Une tôle d'AZ31 et deux tôles d'Al1050 ont été empilés dans l'ordre suivant Al1050/AZ31/Al1050. L'empilement était étroitement attaché à l'aide d'un fil d'acier souple pour éviter tout glissement latéral pendant le colaminage, puis maintenue à 400 °C pendant 10 minutes dans un four préchauffé. Il a ensuite été colaminé à chaud en appliquant une réduction d'épaisseur de 50 % en un seul cycle sans lubrifiant. Le composite laminé A1050/AZ31/Al1050 a été refroidi à l'air et ensuite coupées en deux et brossé pour commencer le deuxième cycle. Cette opération a réussi jusqu'à six cycles ARB.

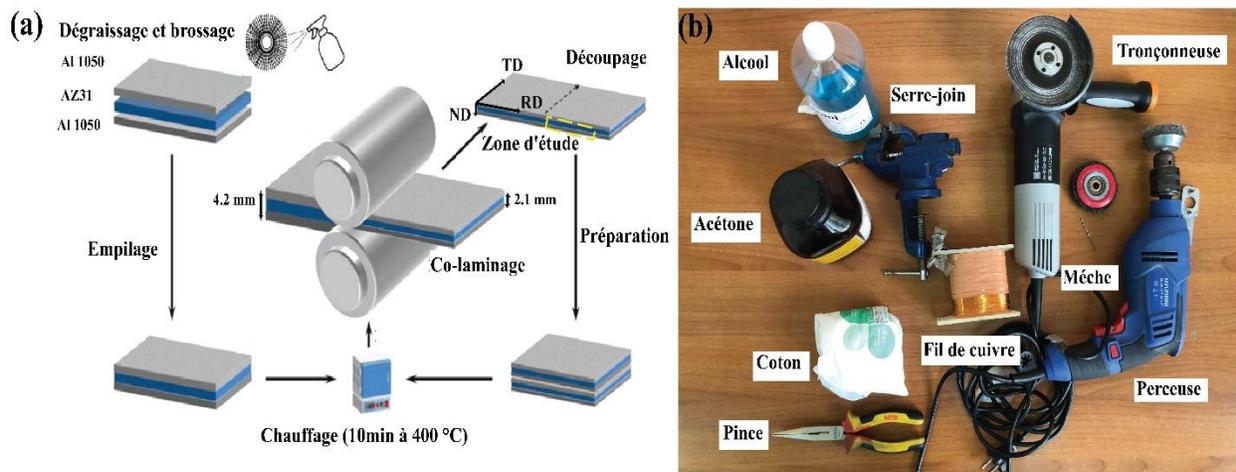


Figure II.1 :(a) principe de l'ARB, (b) Outils de préparation des tôles.

Le tableau II.3 récapitule le protocole de multi-colaminage du composite laminé Al1050/AZ31/Al1050, après chaque cycle ARB l'épaisseur de l'échantillon est réduite de 50%, le nombre de couches N après n cycles est donné par l'équation (II.1), la réduction d'épaisseur totale

est donnée par l'équation (II.2), et la contrainte équivalente de Von mises est donnée par l'équation (II.3).

$$N=3^n \quad (\text{II.1})$$

$$r_t = 1-1/3^n \quad (\text{II.2})$$

$$\varepsilon = (2/\sqrt{3}) \ln(2) \times n \quad (\text{II.3})$$

Tableau II. 3: Protocole de laminage d'un composite laminé Al 1050/AZ31/Al 1050 par ARB.

Nombre de cycles	1	2	3	4	5	6
Nombre de couche	3	6	12	24	48	96
Réduction totale en (%)	50	75	87.5	93.8	96.9	98.4
Contrainte équivalente	0.8	1.6	2.4	3.2	4.0	4.8

II.3 Techniques expérimentales

II.3.1 Caractérisation de la texture et de la microstructure.

II.3.1.1 Diffraction des électrons rétrodiffusés (EBSD).

II.3.1.1.2 Préparation des échantillons.

Les MEB/EBSD sont largement utilisés dans la recherche en science des matériaux en raison de l'information quantitative unique qu'il génère lors de la détermination des orientations cristallographiques des cristaux près de la surface. Ceci génère simultanément une image qualitative et perspicace de la microstructure.

Les diagrammes de diffraction d'électrons rétrodiffusés (EBSD patterns) sont générés dans un petit volume d'interaction situé à la surface de l'échantillon avec une profondeur de pénétration généralement allant de 50 à 100 nm. En effet, la qualité du diagramme est extrêmement sensible à l'intégrité de l'ordre cristallographique du réseau à la surface de l'échantillon.

La préparation métallographique des alliages de Mg est difficile car les alliages de Mg sont très sensibles à la déformation et à l'oxydation. Pour cette raison, la surface doit être relativement plate et exempte de défauts, de contaminants et d'inclusions, afin que les caractéristiques des lignes de rétrodiffusion (Kikuchi pattern) détectées soient véritablement indicatives du cristal étudié.

Le protocole de préparation du composite laminé Al1050/AZ31/Al1050 peut être détaillé comme suit :

1. Un polissage mécanique des échantillons avec du papier abrasif SiC de P400 jusqu'au papier SiC P4000.
2. Un polissage mécanique avec une pâte diamantée de 1/4 μm .
3. Un électro-polissage à température ambiante à base d'une solution comprenant 3 mesures d'acide phosphorique (concentration 85%) et 5 mesures d'éthanol, sous une tension $V= 3$ volts pendant 30 min.
4. Un polissage chimique dans une solution d'acide nitrique à 5% et 95% d'éthanol pendant 3s pour éliminer toute oxydation éventuelle.
5. Attaque chimiques avec une solution (5 g d'acide picrique, 100 ml d'éthanol, 10 ml d'eau distillée et 10 ml d'acide acétique).
6. Un polissage ionique en utilisant un système Gatan PECS II à haute tension (5 kV) pendant 15 minutes.

Entre chaque étape de polissage, l'échantillon est passé dans un bain à ultrasons puis rincé à l'éthanol et séché avec un sèche-cheveux.

II.3.1.1.2 Principe d'EBSD

Pour étudier l'évolution de la microstructure et de la texture dans un matériau, il est intéressant d'utiliser la technique EBSD pour déterminer les figures de pôles, les fonctions de distribution d'orientation calculées (FDOC), la distribution des angles de désorientation, la taille de grain moyenne et la distribution de la taille des grains. Cette technique a l'avantage de permettre des corrélations entre la microstructure et la texture du matériau. Ainsi, la technique EBSD nous a permis de caractériser des microstructures de déformation, des premiers germes de recristallisation, ainsi que des états complètement recristallisés dans le matériau.

L'EBSD est une technique implantée dans un microscope électronique à balayage (MEB). La reconstruction de la microstructure est fondée sur l'indexation de diagrammes de Kikuchi issus de l'interaction électrons-matière. Dans les paragraphes suivants, nous décrirons brièvement le

principe de formation des lignes de Kikuchi qui permettent d'accéder aux orientations cristallographiques.

L'échantillon est monté à une inclinaison de 70° par rapport à l'axe orthogonal du faisceau d'électrons entrant. À cet angle d'inclinaison élevé, les électrons incidents parcourent une voie plus longue dans la région proche de la surface, ce qui augmente le volume de diffusion.

Lorsque les électrons primaires incidents arrivent sur un échantillon polycristallin, ils seront inélastiquement dispersés dans toutes les directions suite aux interactions électrons-matières. Cela garantit que les électrons arriveront ensuite sur les plans du réseau proche, s'approchant à l'angle de Bragg θ . Ces électrons seront alors diffractés de manière élastique. Ces électrons sont donc diffractés par différentes familles de plans cristallins, chaque famille de plans forme ainsi deux cônes de diffraction fortement ouverts. La **Figure II.2** montre un diagramme de la façon dont ces cônes sont formés et comment coïncident-ils pour former des bandes de haute densité d'électrons.

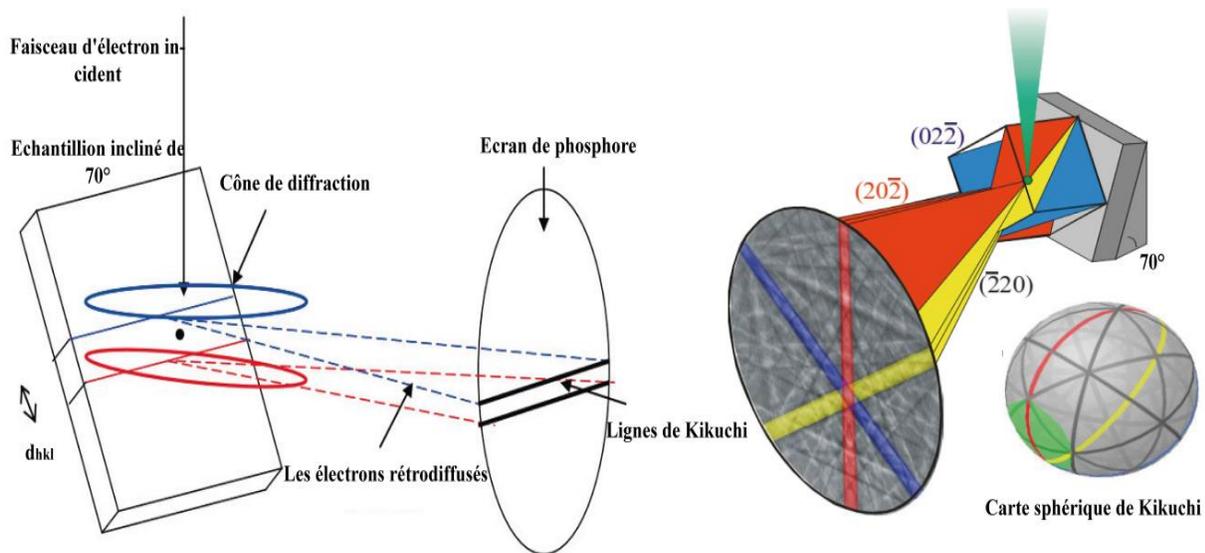


Figure II.2 Principe de formation des lignes de Kikuchi.

Les systèmes EBSD commerciaux actuels qui consistent en un détecteur (caméra CCD) couplés avec un système de contrôle et une suite de logiciels, nécessitent généralement des tensions d'accélération relativement élevées (15 à 30 kV), ce qui entraîne des volumes d'excitation plus importants, réduisant la résolution spatiale et augmentant la profondeur de sondage. Le détecteur direct ou l'écran phosphorescent est placé très près de l'échantillon et peut visualiser les électrons

rétrodiffusés s'échappant de l'échantillon à des angles de Bragg spécifiques, ce qui permet d'identifier l'orientation locale du cristal.

Les bandes de diffraction qui se forment, sont appelés lignes de Kikuchi. Les bandes d'un cliché étant identifiées, le principe de l'indexation est de sélectionner un certain nombre de bandes et de calculer les angles qu'elles font les unes avec les autres. Ces angles sont alors comparés avec ceux donnés dans une base de données. S'il y a correspondance, les bandes sont alors indexées donnant ainsi des pôles aux croisements de ces familles de plans. S'il y a plusieurs solutions, le logiciel pourra choisir à l'aide de plusieurs paramètres la solution la plus probable. Il faut noter que cette phase d'indexation n'est possible que si le diagramme de diffraction est de bonne qualité.

Dans ce travail, les analyses ont été effectuées sur le plan DL-DN (pour direction de laminage - direction normale) des échantillons déformés par ARB, à l'aide d'un système TSL-EDAX-Hikari monté sur un microscope électronique à balayage FEG-SEM ZEISS Supra 55 VP opérant à 20 kV. Les surfaces scannées et les pas étaient de 60×30 et 0.1 , $65 \times 65 \mu\text{m}^2$ et 0.1 , $50 \times 25 \mu\text{m}^2$ et 40 nm pour $N=2$, 4 et 6 cycles ARB, respectivement. Les textures ont été calculées en utilisant la méthode harmonique ($L = 22$).

Durant cette analyse, un angle de tolérance de grain de 5° et une taille de grain minimale a été choisie pour être de 5 pixels ont été utilisés pour améliorer la qualité des données brutes de l'EBSD. Tous les points de données ayant un indice de confiance (IC) inférieur à $0,05$ ont été exclus de l'analyse car considérés douteux (l'IC quantifie la fiabilité du motif indexé).

Les données stockées durant l'acquisition (position, orientation, indice de qualité du diagramme de Kikuchi, indice de confiance de l'indexation et diverses autres informations éventuelles telles que les phases, les données EDS, etc.) sont traitées à l'aide du logiciel OIMTM Analysis (Orientation Imaging Microscopy) pour créer des cartographies d'orientations et permettre une représentation de la microstructure et de la texture cristallographique.



Figure II.3 Le microscope électronique à balayage équipé du système d'analyse EBSD (SP2M/ICMMO, Université Paris-Saclay, France).

II.3.1.2 Diffraction des rayons X sous rayonnement synchrotron (SXR)

Les rayons X se sont établis depuis longtemps comme un outil inestimable et irremplaçable pour étudier la structure de la matière. Même depuis leur découverte en 1895 par *Wilhelm Conrad Röntgen*, des progrès considérables ont été réalisés, non seulement pour améliorer les sources de rayons X, mais aussi pour développer de nouvelles techniques plus puissantes qui les exploitent, et à ce jour, un total de 15 prix Nobel ont été honorés à des découvertes dans le domaine des rayons X.

Pendant ce temps, peu d'amélioration avait été faite à la source. Le tube Coolidge, développé par *William David Coolidge* en 1912 en tant que successeur du tube cathodique de *Röntgen*, est resté à la source de rayons X standard pendant de nombreuses décennies avant d'être remplacé par les générateurs d'anode rotatifs dans les années 1960, permettant ainsi une meilleure dissipation de la chaleur, et donc une puissance plus élevée.

Le synchrotron est basé sur une loi physique simple (Equation II.4), lorsque des électrons (ou d'autres particules chargées) sont soumis à un champ magnétique, ils sont forcés à suivre des trajectoires curvilignes, émettant ainsi un rayonnement électromagnétique tangentiellement à leur trajectoire, appelé rayonnement synchrotron.

$$\vec{F}_L = q\vec{v} \times \vec{B} \quad (\text{II.4})$$

CHAPITRE II : MATÉRIAUX, PROCÉDÉS ET TECHNIQUES EXPÉRIMENTALES

Les considérations théoriques du rayonnement synchrotron peuvent remonter à la fin du XIXe siècle, quand *Alfred-Marie Liénard* (1898) et *Emil Wiechert* (1900) ont travaillé indépendamment sur l'expression de la puissance rayonnée d'une particule relativiste subissant une accélération centripète dans une trajectoire circulaire. La confirmation (visuelle) expérimentale, cependant, a dû attendre jusqu'en 1947 quand un arc lumineux a été observé, surtout de façon inattendue, dans une zone non blindée à General Installation électrique de 70 MeV. Initialement considéré comme un phénomène important mais indésirable, car il est responsable de la perte d'énergie majeure dans les accélérateurs de particules à haute énergie.

Les installations de rayonnement synchrotron de première génération fonctionnaient en parasite sur des accélérateurs existants conçus pour des études de physique des particules. Par conséquent, la sortie du rayonnement était limitée par la faible énergie et le faible courant de faisceau (électron) des expériences de l'hôte. Les sources dédiées (2^{ème} génération) ont été construites plus tard à la suite de la demande accrue de rayonnement synchrotron pour la recherche en physique et en biologie.

Un facteur clé qui détermine la qualité globale d'une source de rayons X est sa brillance qui est donnée par le nombre de photons émis par seconde (flux) divisé par l'angle solide du cône de rayonnement (divergence angulaire), la taille du faisceau source (zone source) et la bande passante d'énergie relative (distribution spectrale, Equation II.5).

$$\text{Brilliance} = \frac{\frac{\text{Photons}}{\text{second}}}{(\text{mrad}^2)(\text{mm}^2)(0.1\% \text{BW})} \quad (\text{II.4})$$

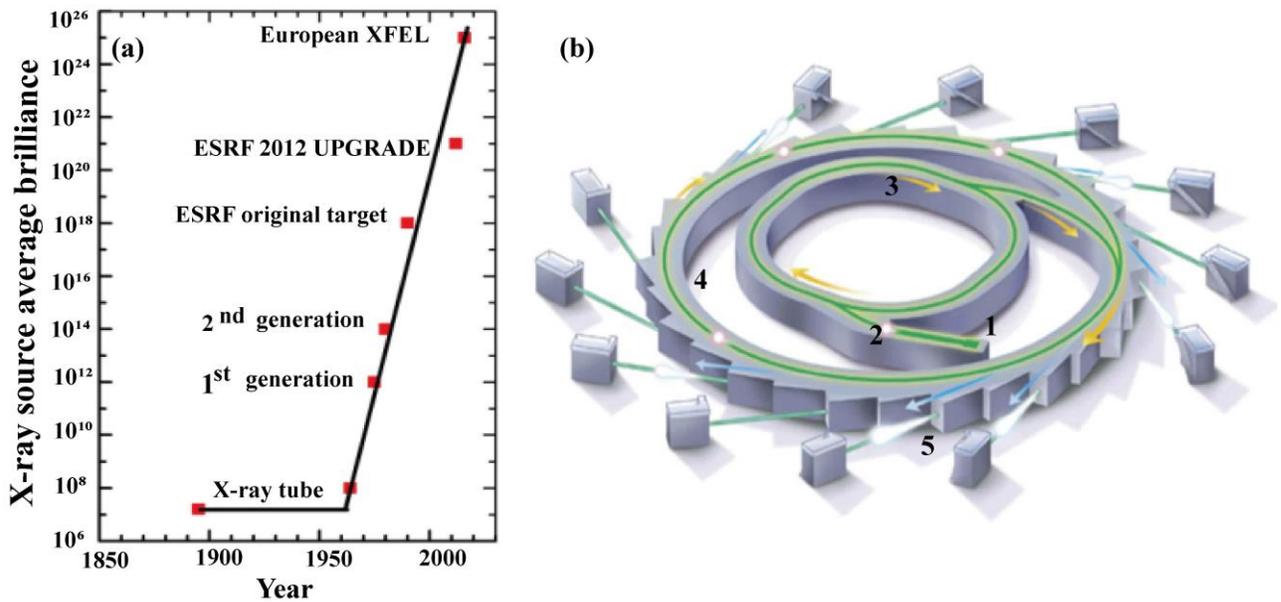


Figure II.4 (a) La brillance moyenne des sources de rayons X, (b) Les composants du rayonnement synchrotron, 1 : Canon à électron, 2 : LINAC, 3 : Booster Ring, 4 : Storage Ring, 5 : Stations expérimentales.

Les faisceaux de rayons X générés par un synchrotron de 2^{ème} génération sont environ un million de fois plus brillants que ceux générés par une anode rotative. En d’autres termes, une heure d’expérience à un synchrotron prendra autrement un siècle à compléter dans un laboratoire! Les synchrotrons de 3^{ème} génération ont encore augmenté l’écart par un autre facteur d’un million grâce à l’introduction des onduleurs ou dispositifs d’insertion.

Un dispositif d’insertion peut être considéré comme une structure magnétique périodique qui force l’électron à émettre du rayonnement plusieurs fois en subissant des oscillations. Dans le cas d’un onduleur, la période des aimants est choisie de manière que le rayonnement émis par un électron donné d’une oscillation est en phase avec ceux des autres. Cette condition de cohérence résulte en une brillance intrinsèque élevée et monochromatique (avec harmoniques) du rayonnement onduleur. Il a été plus tard théorisé que non seulement le rayonnement d’un seul électron est cohérent, mais que le rayonnement de différents électrons peut être rendu cohérent aussi bien, soit par auto-injection ou par Self Amplified Stimulated Emission (SASE).

L’instrument qui émane de ces concepts est appelé un laser à électrons libres (4^{ème} génération de source lumineuse), qui bénéficie d’un pic de brillance si élevée que peu d’échantillons peuvent résister à une seule injection avant d’être vaporisés par l’impulsion laser.

Son dernier ajout, le laser à électrons libres européens à rayons X, introduit en 2016, pouvait atteindre un pic de brillance d'environ 5×10^{33} , certains 10 ordres de grandeur supérieurs à la brillance maximale délivrée par un onduleur normal, alors que notre quête d'une source de rayons X plus brillante et plus cohérente se poursuit.

Dans ce travail, les analyses ont été effectuées sur le plan DL-DN des échantillons déformés par ARB, au sein du synchrotron SOLEIL (L'Orme des Merisiers, Saint-Aubin, 91192 Gif-sur-Yvette, France). Le faisceau des rayons X utilisé à une énergie de 18 keV ($\lambda = 0.06888$ nm). Un détecteur 2D (CirPAD-S140) a été utilisé. Les enregistrements 2D ont été intégrés en diffractogramme 1D en utilisant un software fait maison.

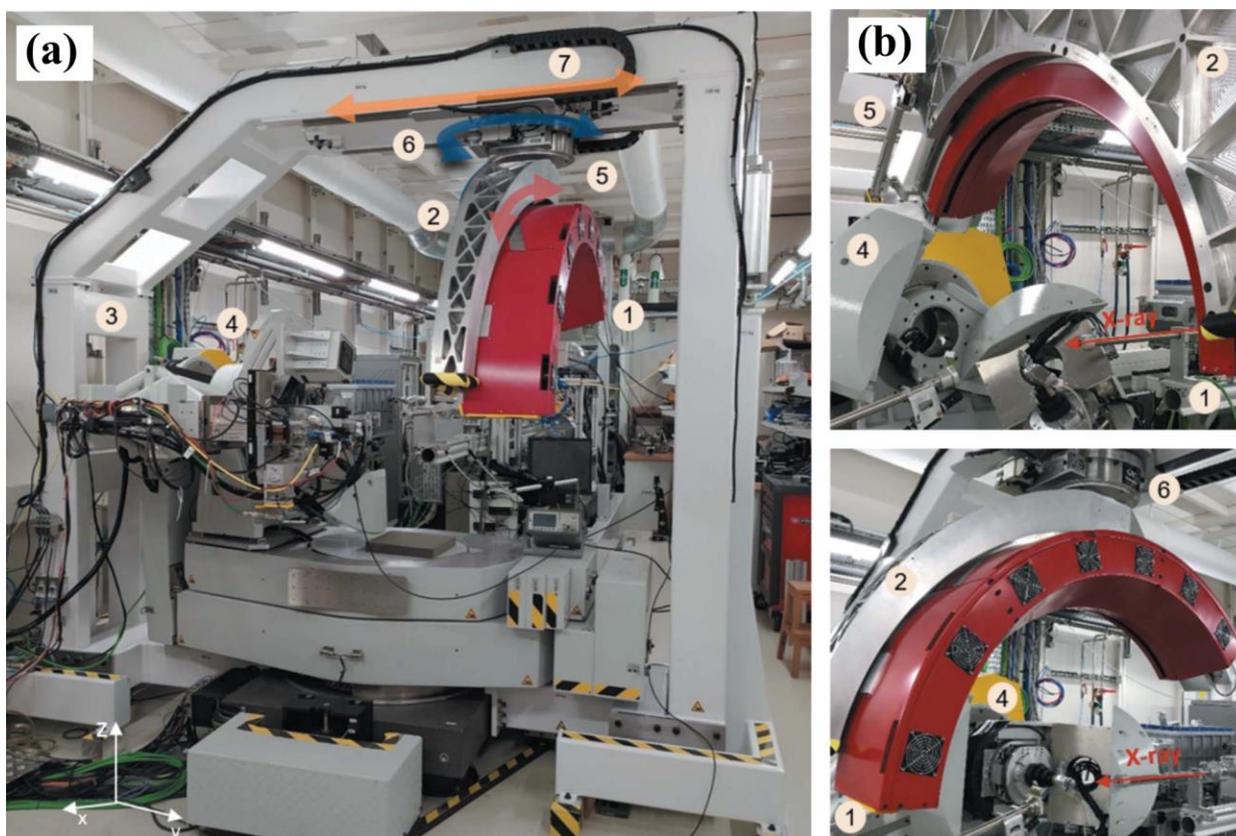


Figure II.5 (a) Détecteur CirPAD installé sur le diffractomètre de la ligne de lumière DIFFABS Au Synchrotron SOLEIL montrant : 1) Détecteur global, 2) l'arche, 3) goniomètre principal, 4) diffractomètre, 5 et 6) platines motorisées, 7) translateur manuel. b) Le détecteur CirPAD dans les deux positions de travail, avec un angle de 90° ou 0° entre son plan de détection et la direction du faisceau incident.

II.3.2 Tests de nano indentation

La nano indentation est une technique permettant des essais mécaniques instrumentés à l'échelle micro et submicrométrique. Il est utilisé pour la caractérisation des propriétés mécaniques, comme la dureté et le module de Young, à petite échelle. Cette méthode est particulièrement intéressante pour les couches minces, mais aussi pour les matériaux polycristallines, car elle permet de caractériser les structures à de faibles profondeurs et dimensions latérales.

Dans ce travail, les mesures de nano-indentation ont été effectuées à l'aide d'un nano-indenteur Hysitron Tribo-indenter (Figure II.6). Une série d'indentations a été réalisée en utilisant un indenteur de type Berkovich pour déterminer les propriétés micromécaniques des différentes phases existantes. Une charge de 15 mN a été appliquée avec une vitesse de charge/décharge 30 mN/min et un temps de maintien de 5s.

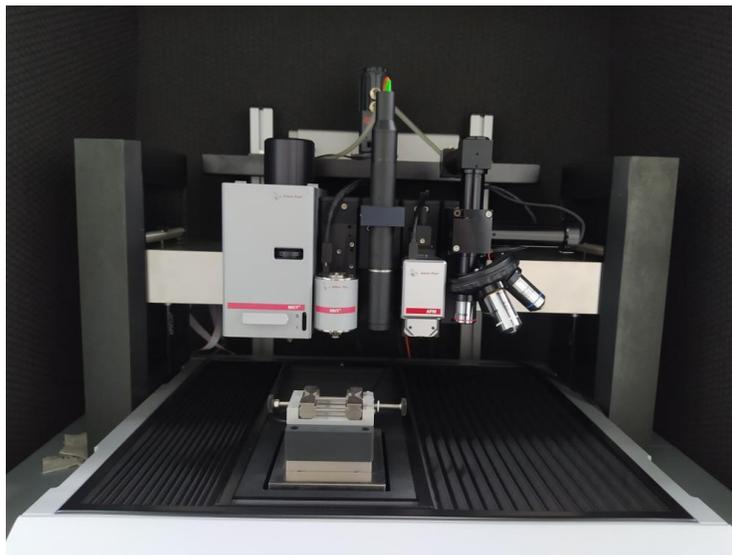


Figure II.6 Nano-indenteur Hysitron Tribo-indenter (Plateau Technique, USTHB)

II.3.3 Caractérisation électrochimique par essais de corrosion

II.3.3.1 Préparation du milieu d'étude et des échantillons pour la caractérisation électrochimique.

Dans ce travail, tous les échantillons ont été préparés de la même manière. Nos tests ont été effectués en milieu aqueux, naturellement aéré sans agitation, il s'agit d'une solution de chlorure de sodium NaCl 3.5%. Les solutions ont été préparées en laboratoire par pesée de 35 g de chlorure de sodium en poudre et par dissolution dans un litre d'eau distillée. En effet, la présence

de chlorures dans un environnement agressif (aussi bien en exposition atmosphérique qu'en immersion en solution) constitue un des milieux les plus agressifs vis-à-vis des métaux car il est capable d'endommager la couche de passivation et de créer d'importantes attaques de corrosion, notamment du type localisé (le plus dangereux). En ce qui concerne les épreuves scientifiques, la concentration de 3,5% de NaCl (en poids) en solution aqueuse est souvent utilisée comme électrolyte car elle est similaire à la concentration de ce sel dans l'eau de mer. Le pH est approximativement 5.6 et la température des essais correspondent à celle du milieu ambiant (24°C).

Pour préparer une électrode de travail, un échantillon rectangulaire de 0,24× 1,70 cm² a été découpé dans la section transversale DL-DN, puis a été intégré dans une résine époxy pour isoler une zone de 0,4 cm² des surfaces non analysées d'une part, et pour éviter les fuites d'électrolyte de la cellule d'autre part, (les dimensions du moule d'enrobage étaient de 3,2× 3,2 cm²). Tous les échantillons ont été polis mécaniquement avec du papier abrasif SiC de P400 jusqu'au papier SiC P4000, puis nettoyés avec de l'eau distillée et de l'éthanol.

II.3.3.2 Techniques électrochimiques.

Le montage utilisé dans ce travail est constitué d'une cellule d'essai et d'un dispositif permettant les caractéristiques électrochimiques (suivi du potentiel libre, les courbes de polarisation potentiodynamique et la spectroscopie d'impédance électrochimique). Les mesures électrochimiques ont été effectuées sur le plan de section DL-DN (Figure II.2(b)) en utilisant Potentiostat-Galvanostat-ZRA Gamry référence 3000 avec un logiciel opérationnel Gamry Instruments Framework (version 7.05).

Une cellule électrochimique (Gamry Paracell) à trois électrodes a été utilisée (avec un volume d'environ 300 ml), une électrode de travail (échantillon élaboré), une électrode de référence Ag/AgCl qui permet de mesurer la tension de l'électrode étudiée ($E_{Ag/AgCl} = E_{ECS} = 240$ mV vs ENH) et une contre-électrode inerte chimiquement en graphite d'épaisseur égale à 5 mm qui permet de déterminer le courant traversant l'électrode de travail lors des tracés potentiodynamique.

Le corps de la cellule est en polycarbonate, et tout le métal est en acier inoxydable. Des douilles en plastique isolent les deux supports d'extrémité métalliques, empêchant le court-circuit entre les électrodes de travail et les contre-électrodes (Figure II.7). L'électrode de travail est reliée par un fil de cuivre à l'arrière et installée dans la cellule où la surface totale (échantillon+ résine)

qui est en contact avec l'électrolyte est égale à $2,85 \text{ cm}^2$. Le montage de Potentiostat-Galvanostat-ZRA Gamry référence 3000 ne nécessite pas un soudage de fil de cuivre dans la phase de préparation des électrodes de travail comme pour d'autres Potentiostat.

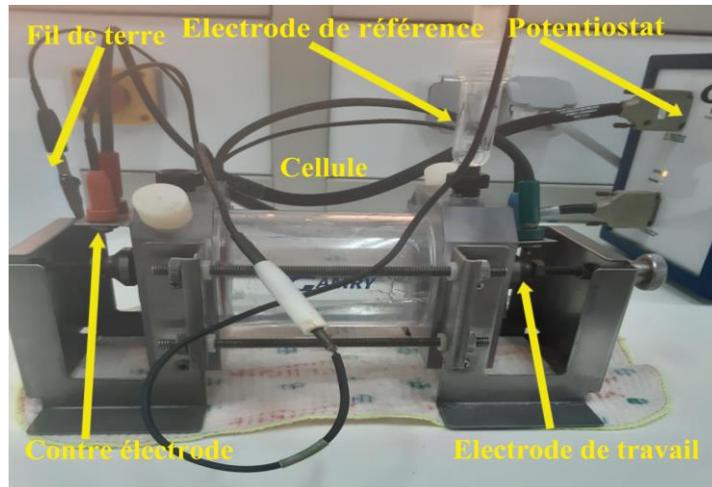


Figure II.7 Montage et appareil de mesures électrochimiques, (Laboratoire LPCMA, UMKB).

La détermination du potentiel de circuit ouvert (OCP) pour mesurer le potentiel libre de l'électrode de travail durant le temps d'immersion dans le milieu corrosif sans courant imposé est primordiale avant chaque mesure électrochimique. Dans ce travail, il a été mesuré pendant au moins 60 minutes pour tous les échantillons. En effet, les mesures de potentiel de circuit ouvert (OCP) à deux fins :

1. Donner un premier aperçu du comportement de la surface dans un environnement corrosif (corrosion, formation d'une couche de produit de corrosion).
2. Permettre la détermination du temps requis pour obtenir un état stable, ce qui est essentiel pour les tracés potentiodynamique.

Pour les études de polarisation potentiodynamique, les mesures ont été effectuées à partir du potentiel cathodique (2.7 V) vers le potentiel anodique (1.2 V) par rapport à l'électrode de référence (Ag/AgCl), avec une vitesse de balayage de $2 \text{ mV}\cdot\text{s}^{-1}$. Les coefficients de Tafel (β_a et β_c) ont été calculés à partir de la pente des points après $80 \text{ mV } E_{\text{corr}}$, en raison de la présence d'un degré de non-linéarité dans les pentes de Tafel.

Les mesures de la spectroscopie d'impédance électrochimique (SIE) ont été effectuées après le potentiel du circuit ouvert dans la gamme de fréquences de 10^{-2} Hz à 10^5 Hz, avec une amplitude de 10 mV. Pour assurer la reproductibilité des résultats expérimentaux, chaque essai a été répété 3 fois. Les courbes expérimentales ont été traitées à l'aide d'un logiciel commercial développé par Gamry (Echem Analyst).

II.3.4 Techniques d'analyses des surfaces corrodées.

II.3.4.1 Microscopie électronique à balayage - La spectroscopie à dispersion d'énergie (MEB-EDS)

La microscopie électronique à balayage (MEB) couplée à un détecteur EDS a été faite pour étudier la morphologie et l'évolution des produits de corrosion formés sur la surface du composite laminé et corrodé. En effet, le MEB permet de caractériser la morphologie de surface jusqu'à l'échelle nanométrique.

Dans un MEB, à l'aide de lentilles électromagnétiques, un faisceau d'électrons primaires dont le diamètre peut varier de quelques nanomètres à un micromètre est focalisé sur l'échantillon. L'intensité des électrons réémis par la surface étudiée dépende de l'orientation et de la composition de celle-ci. Les diverses émissions électroniques et électromagnétiques réémis sont collectées et analysées à l'aide des détecteurs appropriés et grâce aux bobines de balayage, le faisceau incident couvre la zone à étudier ligne par ligne. En conséquence, une grande variété d'informations peut être fournie sur l'échantillon selon les émissions analysées.

En général, il est possible de distinguer les détails de la topographie de surface de l'échantillon grâce aux électrons secondaires, les électrons rétrodiffusés permettent d'observer le contraste chimique. L'EDS a été utilisée pour obtenir une analyse chimique localisée en attaquant la surface avec un faisceau de rayons X focalisé. Il permet une analyse qualitative en identifiant les lignes du spectre et une analyse quantitative en mesurant l'intensité des lignes pour chaque élément de l'échantillon.

Dans ce travail, nous avons utilisé un microscope électronique à balayage (SEM, JEOL 6360) fonctionnant à 15 kV, équipé d'un système de microanalyse des rayons X à dispersion d'énergie (EDXMA, Inca Energy 200), qui se trouve dans la Faculté de Génie Mécanique et Génie de Procédés, USTHB.



Figure II.8 Microscopie Electronique à balayage type SEM, JEOL 6360, (Faculté de GM&GP, USTHB).

II.3.4.2 Spectroscopie Raman

La spectroscopie Raman est une technique spectroscopique sans contact, non destructive et relativement rapide, qui permet d'identifier les molécules grâce à la détection des modes vibratoires des liaisons moléculaires malgré ses limites dont la plus importante est le fait que certains composés sont inactifs pendant l'analyse. À ce titre, la spectroscopie Raman est une technique appropriée pour étudier les surfaces métalliques, et en particulier les couches de revêtement et les produits de corrosion.

Lorsque le rayonnement monochromatique incident du faisceau laser frappe la surface de l'échantillon, il interagit avec les molécules de l'échantillon et est dispersé dans toutes les directions. La plupart de la lumière diffusée à la même fréquence que le rayonnement incident : c'est la diffusion Rayleigh. Cependant, une partie de la lumière diffusée aura un décalage de fréquence de celle de la lumière incidente en raison de la diffusion inélastique. C'est ce rayonnement inélastiquement dispersé qui est utilisé pour construire les spectres de Raman. Ce rayonnement est appelé Stokes ou lignes anti-Stokes correspondant à une perte de fréquence ou un gain de fréquence.

Contrairement à la spectroscopie d'émission atomique, les spectres Raman d'espèces solides se produisent habituellement sous forme de pics d'intensité sur une large gamme de fréquences, appelée bande. La polarisation causée par les vibrations moléculaires est nécessaire pour obtenir un spectre Raman. La Figure II.9 montre une description schématique d'un spectre Raman ou avec les différents types de diffusion de la lumière :

1. Diffusion Rayleigh : aucun échange d'énergie, les photons incidents et diffusés ont la même énergie.
2. Diffusion Raman avec décalage Stokes : la molécule absorbe de l'énergie et le photon diffusé à moins d'énergie que le photon incident.
3. Diffusion Raman avec décalage anti-Stokes : la molécule perd de l'énergie et le photon diffusé a plus d'énergie que le photon incident

Dans notre travail, les spectres Raman d'échantillons corrodés ont été acquis en utilisant le spectromètre Horiba LabRAM HR Evolution (CDTA, Alger). Un laser He-Ne de 633 nm avec une puissance de 17 mW a été utilisé comme source d'excitation. Les spectres ont été enregistrés sur une plage de 150 à 4000 cm^{-1} et 150 à 2000 cm^{-1} pour Al1050/AZ31/Al1050 et un cycle ARB Al, respectivement. Les spectres ont été recueillis à différents points de la surface pour vérifier la reproductibilité des résultats et identifier divers produits de corrosion.

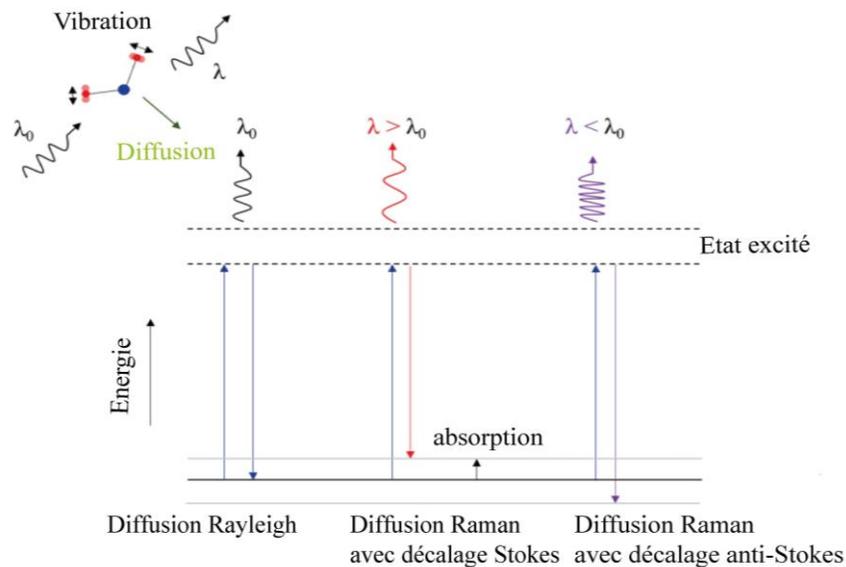


Figure II.9 Le principe de base de la spectroscopie Raman avec les différents types de diffusion de la lumière.

II.3.4.3 Diffraction des rayons X

La diffraction des rayons X a été utilisée dans les études sur la corrosion du magnésium depuis 1933 et plus précisément lorsque *WHITBY* a tenté d'étudier la nature des produits de corrosion produits sur le Mg après une exposition extérieure. Depuis, la diffraction des rayons X est largement utilisée dans les études de corrosion.

Les rayons X sont des rayonnements électromagnétiques ayant des propriétés similaires à celles de la lumière (polarisation, réfraction, et réflectivité). La diffraction des rayons X est basée sur la diffusion inélastique des rayons X monochromatiques par les atomes. La dispersion par un solide conduit à des phénomènes d'interférence, parce que sa longueur d'onde (λ) est comprise entre celle de l'ultraviolet ($\lambda = 1\text{nm}$) et celle du rayonnement γ ($\lambda = 10^{-3}\text{ nm}$) et du même ordre de grandeur de la distance inter atomique rencontrée dans la plupart des métaux (environ 1 \AA). Cette interférence constructive ne se produit que lorsqu'elle satisfait à la loi de Bragg ($n\lambda = 2d_{hkl} \sin \theta$) pour les plans parallèles d'atomes avec un espace d_{hkl} entre les plans, comme le montre la figure II.10.

Dans le diffractomètre, la longueur d'onde des rayons X est fixée, en conséquence, une série de plans atomiques produit un pic de diffraction seulement à un angle spécifique θ .

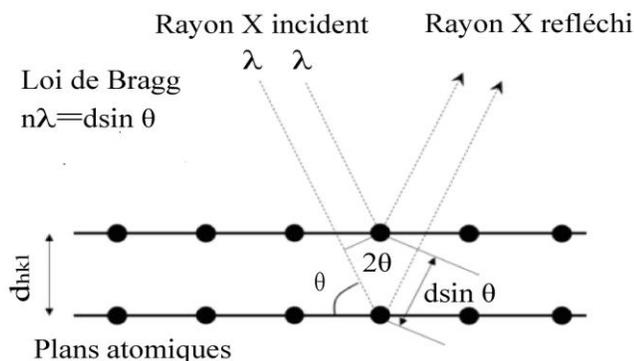


Figure II.10 Principe de la loi de Bragg sur un réseau cristallin.

Le rayon X incident avec un angle de θ se collime directement à la surface de l'échantillon. Par conséquent, les faisceaux sont réfléchis séparément par les plans atomiques avec une distance d_{hkl} entre les plans diffractant des atomes.

Dans ce travail, l'identification des phases et la caractérisation des produits de corrosion ont été effectuées à l'aide d'un diffractomètre à rayons X PANalytical X'Pert3 (Plateau Technique d'Analyses Physico-Chimiques, USTHB), avec une source de rayonnement en cuivre $\text{Cu K}\alpha$ ($1,542\text{ \AA}$), fonctionnant à 40 kV et 40 mA . Les diffractogrammes ont été enregistrés avec un pas de $0,026^\circ$ et un temps de comptage de 1 s par pas, l'angle de Bragg 2θ a été varié de 20° à 80° . L'identification des données a été effectuée par le logiciel HighScore PlusTM, avec les fichiers de base de données JCPDS (ICDD) (version 2018).

CHAPITRE III
RESULTATS ET DISCUSSIONS

PARTIE A :

**ANALYSE DE LA MICROSTRUCTURE, TEXTURE ET
PROPRIETES MECANIQUES DE LMC Al1050/AZ31/Al1050
APRES ARB**

III.A.1 Introduction

Les microstructures de la matrice et des intermétalliques formés à l'interface Mg/Al ont un effet significatif sur la résistance d'adhérence et les propriétés mécaniques des LMCs [1]. Lorsque les LMCs Al/Mg/Al sont fabriquées à une température élevée, il est nécessaire d'étudier la couche d'interdiffusion produite dans les interfaces en raison de son influence remarquable sur leurs performances. *Luo et al.* [2] ont étudié l'évolution microstructurale du composé intermétallique Al-Mg (IMC) à l'interface des LMCs Al/Mg/Al dans différentes conditions de recuit, ce qui a montré que le taux de croissance de l'IMC augmentait avec la température de recuit, et qu'aucun IMC n'était observable à une température de recuit de 200 °C ou inférieure. *Lee et al.* [3] ont révélé que le colaminage à chaud secondaire réduisait considérablement l'épaisseur de la couche IMC et améliorerait grandement les propriétés mécaniques du LMC Mg/Al.

Le présent chapitre vise à étudier l'évolution de la microstructure, de la densité des dislocations, ainsi que les propriétés texturales et les propriétés mécaniques des différentes phases formées à l'interface d'un composite laminé Al1050/AZ31/Al1050 élaboré par ARB jusqu'à 6 cycles en utilisant la diffraction des électrons rétrodiffusés (EBSD), la diffraction des rayons X sous rayonnement synchrotron (SXRD), la microdureté Vickers et la technique de nano indentation.

III.A.2 Evolution de la microstructure de l'AZ31, Al 1050 et IMCs

Les figures III.A.1(a-f) présentent les micrographies obtenues par microscope électronique à balayage (MEB) des composites laminés Al1050/AZ31/Al1050 dans la section transversale des échantillons (plan DL-DN) après le procédé ARB jusqu'à 6 cycles dans lequel les couleurs gris foncé et gris clair indiquent les couches AZ31 et Al1050, respectivement.

La qualité du soudage entre les tôles Al1050 et AZ31 est optimale après une réduction de 50 % de l'épaisseur. En effet, aucune imperfection observable, telle que des fissures, des pores ou un délaminage ne s'est formée le long des interfaces du composite laminé Al1050/AZ31/Al1050 après n'importe quel cycle ARB.

De plus, il est difficile de distinguer les interfaces Al1050/Al1050 introduites par chaque cycle, ce qui est une autre indication principale de la bonne qualité de soudage.

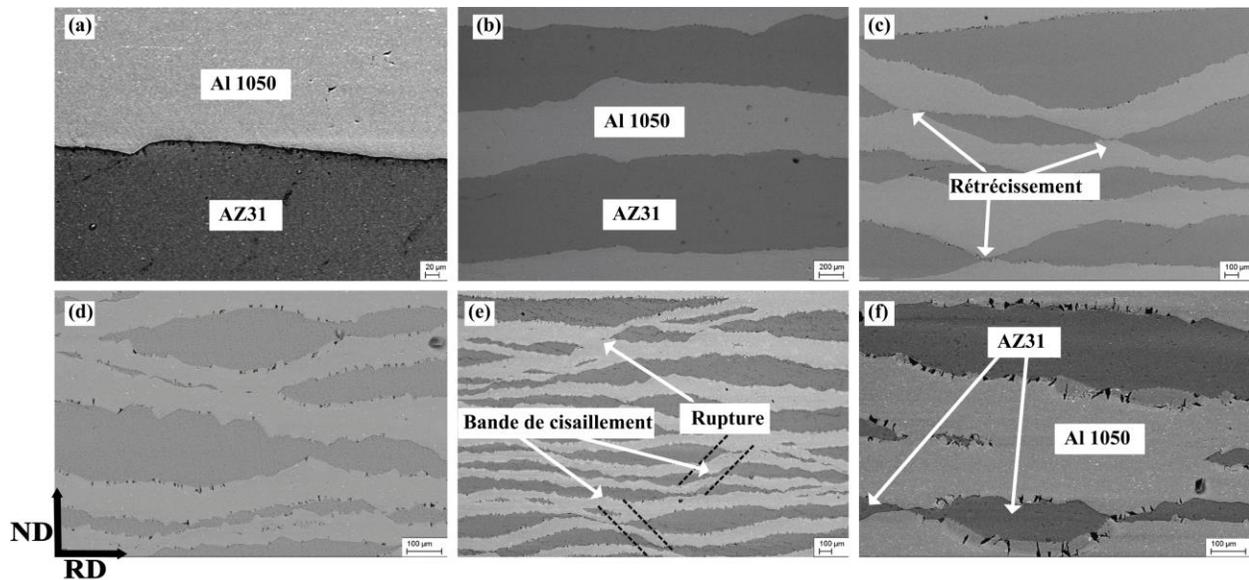


Figure III.A.1: Micrographes obtenues par MEB des composites laminés Al1050/AZ31/Al1050 après le procédé ARB: a) 1 cycle, b) 2 cycles, c) 3 cycles, d) 4 cycles, e) 5 cycles, f) cycles dans le plan DL-DN.

Au fur et à mesure que le nombre de cycles ARB augmente, les épaisseurs des couches d'Al1050 et d'AZ31 diminuent progressivement et se situent entre 0,1 et 0,15 mm après 6 cycles ARB (Figure. III.A.2). Cependant, à partir du troisième cycle, un front de migration rugueux de la structure en couches a été observé où les couches de Mg ont commencé à se fissurer localement et à se fracturer (Figure III.A.1(c)). En fait, le rétrécissement se trouve dans les couches extérieures AZ31 du composite et semble être incliné à un angle de 45° par rapport à la direction du laminage (DL).

Le comportement plastique de l'AZ31 est bien connu pour être très différent de celui de l'Al1050. Les instabilités plastiques se développent en raison de la variation des caractéristiques d'écoulement de la phase constitutive. Par conséquent, la déformation ultérieure par ARB conduit les couches d'alliage AZ31 à s'étrangler (to neck) et finalement à se fragmenter.

De plus, lorsque l'on augmente le nombre de cycles ARB, la courbure de la couche AZ31 devient significative et davantage de fractures apparaissent. En effet, l'allongement longitudinal conduit la couche d'AZ31 à se plier et la couche d'Al1050 remplit la zone vide. Des phénomènes et des résultats similaires ont également été rapportés dans [4,5] pour les composites laminés Ti/Al et Cu/Ag exposés à un procédé ARB.

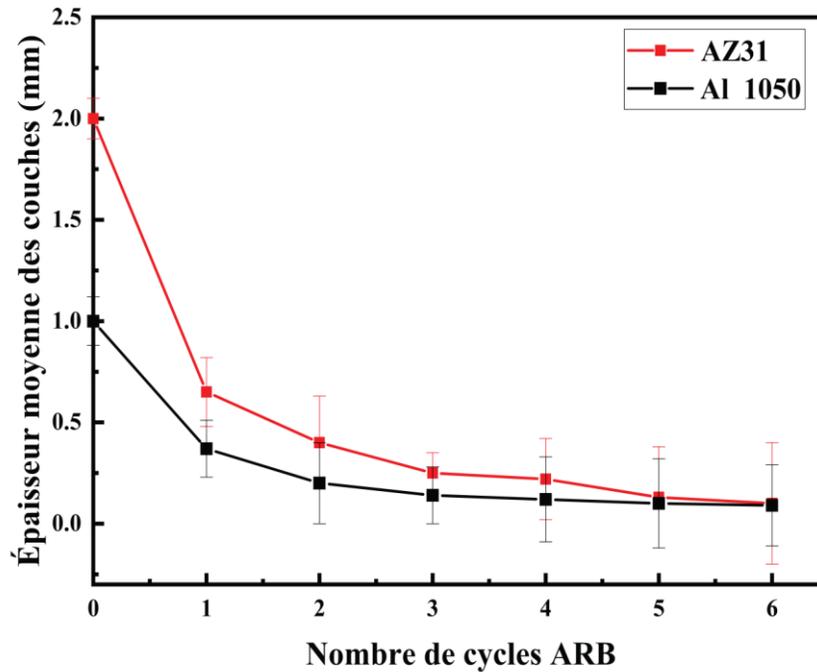


Figure III.A.2: Variation de l'épaisseur des couches d'Al1050 et d'AZ31 dans le composite laminé en fonction des cycles ARB.

La figure III.A.3 montre les micrographies MEB de l'interface de composite laminé Al1050 /AZ31/Al1050 après 2 cycles ARB. On peut constater qu'après 1 cycle ARB (Figure III.A.1(a)), la zone interfaciale se compose uniquement de la couche d'Al1050 à côté de la couche d'AZ31 et aucune nouvelle phase intermétallique n'a été observée. Par ailleurs, après 2 cycles ARB (Figure III.A.3), des couches grises et claires ont respectivement apparu sur les faces AZ31 et Al1050.

D'après l'analyse de la composition à partir des spectres EDS et du diagramme de phase de l'alliage binaire Al-Mg [6], les nouvelles phases devraient être la phase $Mg_{17}Al_{12}$ à côté de la couche AZ31 et Al_3Mg_2 à côté de la couche Al1050. En plus, l'épaisseur de la phase $Mg_{17}Al_{12}$ est plus faible que celle de la phase Al_3Mg_2 (Figure III.A.4), ce qui indique que la diffusion des atomes AZ31 est plus faible que celle des atomes Al1050 [7]. *Song et al.* [8] ont constaté que la différence dans la cinétique d'épaississement des composés intermétalliques était attribuée à la différence de composition, de la taille des grains et de sous-structure du substrat de l'alliage. Il est évident que la diffusion peut être affectée par les différents types de couches utilisés.

D'après les données de la littérature [8], la phase $Mg_{17}Al_{12}$ est la première phase de composé intermétallique à se former, mais la phase Al_3Mg_2 a un taux de croissance plus rapide.

CHAPITRE III : RESULTATS ET DISCUSSIONS

Par conséquent, la phase $Mg_{17}Al_{12}$ se forme en premier parce que la matrice d'Al est saturée de soluté de Mg plus rapidement et la germination se produit une fois qu'une force motrice suffisante (sursaturation) a été atteinte. Cependant, la phase $Mg_{17}Al_{12}$ présente une énergie d'activation plus élevée pour la diffusion inter cristalline et aux joints de grains par rapport à la phase Al_3Mg_2 .

L'énergie d'activation plus élevée pour la diffusion dans la phase $Mg_{17}Al_{12}$ rend l'interdiffusion difficile et par conséquent, la phase Al_3Mg_2 croît plus rapidement. Dans la présente étude, le niveau élevé de déformation induit par le procédé ARB peut favoriser la formation des composés intermétalliques et accélérer l'interdiffusion entre les différentes couches d'un composite laminé. Des résultats similaires ont été rapportés par *Hebert et al.* [9] et *Zhang et al.* [10]. La zone de diffusion peut être affectée par les espèces d'atomes d'Al1050 dans les couches d'AZ31, ainsi que par la diffusion d'AZ31 dans les couches d'Al1050 et vice versa.

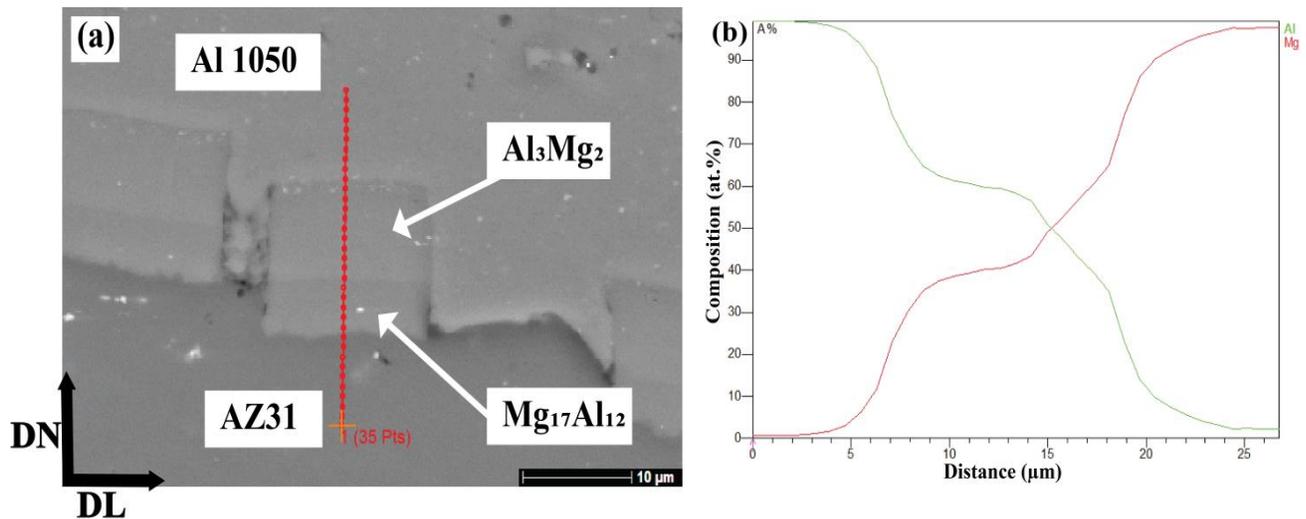


Figure III.A.3: Analyse EDS de l'interface dans les composites laminés Al1050 /AZ31/Al1050 après 2 cycles ARB : (a) Micrographie MEB ; (b) Analyse EDS de l'interface par balayage linéaire.

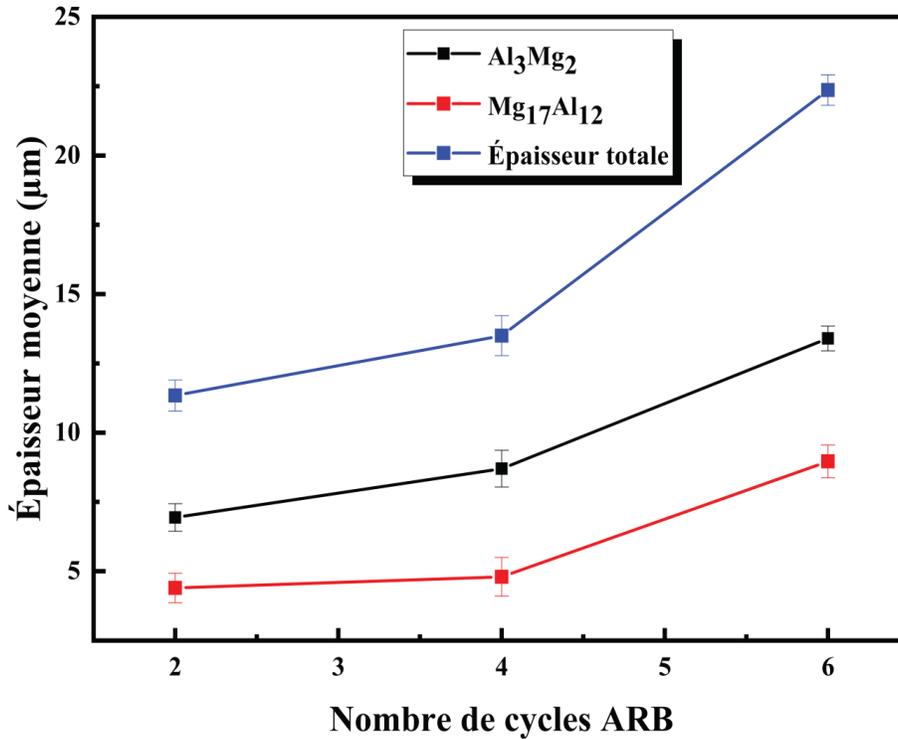


Figure III.A.4: Épaisseur moyenne des composés intermétalliques Al_3Mg_2 et $Mg_{17}Al_{12}$ après différents cycles ARB.

La diffusion à l'interface entre l'Al et le Mg permet d'obtenir des liaisons plus homogènes au cours des cycles successifs de la procédure ARB. Ce phénomène est connu sous le nom d'interdiffusion résultant de la déformation (inter-diffusion resulting from deformation) [11]. L'inter-diffusion peut résulter de trois mécanismes : le déplacement des atomes par le travail mécanique, la diffusion à travers les canaux de dislocations et la diffusion à travers les lacunes créées lors d'une déformation plastique sévère.

Les composés intermétalliques précédemment apparus après 2 cycles ARB sont restés continus dans le plan (DL-DN), puis ils se sont fissurés et fragmentés après 3 cycles ARB, comme le montre la figure III.A.5. La majorité des fissures sont dans la direction normale (DN). En effet, les fissures sont apparues à partir de la phase Al_3Mg_2 et se propagent rapidement pour englober la phase $Mg_{17}Al_{12}$ en raison de la fragilité des IMCs [12]. Cependant, dans la présente étude, aucune fissure ou fracture n'a été observée dans la couche d'Al1050 ou d'AZ31 au cours de tous les cycles

ARB. Cela peut être attribué à la différence de fragilité et de niveau de contrainte des IMCs. En effet, le module d'Young de la phase Al_3Mg_2 est plus élevé que celui de l'intermétallique $\text{Mg}_{17}\text{Al}_{12}$ et est donc plus fragile (section III.A.5).

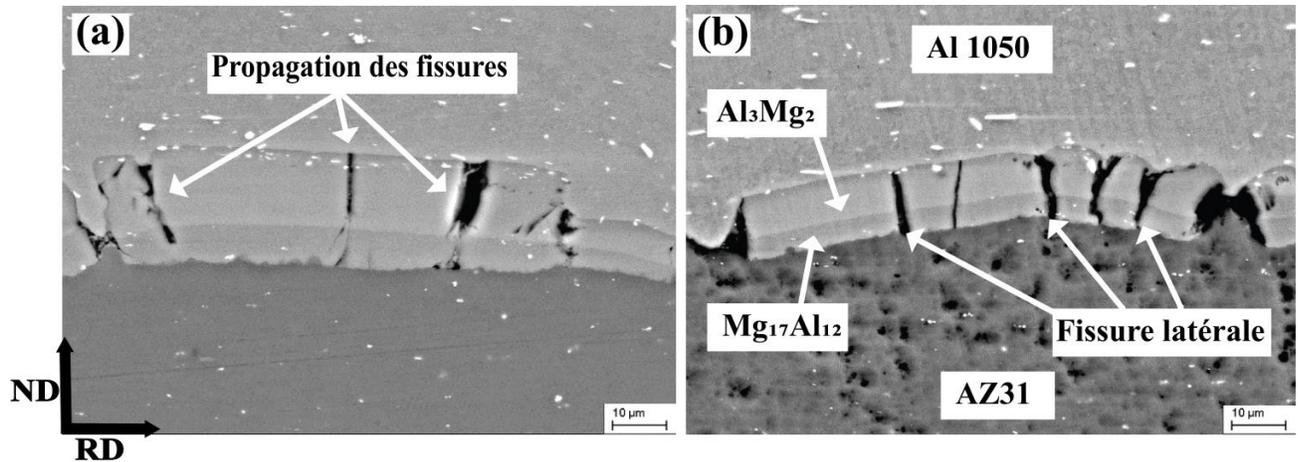


Figure III.A.5: Micrographie MEB d'un composite laminé Al1050/AZ31/Al1050 après 4 cycles ARB. Les fissures des composés intermétalliques sont représentées, (a) fissures discontinues et (b) fissures continues.

Une particularité microstructurale inhabituelle est apparue après 6 cycles ARB sur le côté de $\text{Mg}_{17}\text{Al}_{12}$ avec des formes irrégulières et n'est pas apparue près de l'interface Al_3Mg_2 , comme le montre la figure III.A.6(a). Cette forme irrégulière avec un front de migration instable et accidenté suggère que le phénomène de liquéfaction des composants s'est produit pendant le procédé ARB lorsque la température de l'interface a atteint ou était supérieure à la température eutectique, et qu'un film liquide s'est donc développé à l'interface [13]. En fait, une structure eutectique composée de $\text{Mg}_{17}\text{Al}_{12}$ (mise en évidence par les glitches (voir flèches dans la figure III.A.6(b)) et la solution solide de Mg a été formée en raison de la fusion partielle de la phase de Mg près de l'interface.

Au cours du soudage des tôles à base d'Al et de Mg, des composés intermétalliques Al_3Mg_2 et $\text{Al}_{12}\text{Mg}_{17}$ peuvent se former, comme le montre le diagramme de phase. Le chauffage au-dessus de la ligne eutectique provoque les réactions eutectiques $\text{Mg} + \text{Al}_{12}\text{Mg}_{17} \rightarrow \text{L}$ (à 437 °C) et $\text{Al} + \text{Al}_3\text{Mg}_2 \rightarrow \text{L}$ (à 450 °C), respectivement. Cette forme de liquide est appelée liquation constitutionnelle [14]. Les deux températures eutectiques sont environ 200 °C en dessous des points de fusion des éléments Al et Mg et elles peuvent être facilement atteintes pendant le SPD

CHAPITRE III : RESULTATS ET DISCUSSIONS

pour former des films liquides le long de l'interface et donc conduire à la fissuration [15]. Ceci est conforme à l'affirmation de *Straumal et al.* [16] selon laquelle le procédé SPD à la température ambiante $T_{SPD} = 300$ K est souvent équivalent au traitement thermique à une certaine température élevée $T_{eff} > 300$ K appelée température effective [16]. Rappelons que dans la présente étude, le procédé ARB a été réalisé avec un préchauffage à 400°C pendant 10 minutes. Dans ces conditions, la formation intermétallique est largement favorisée.

En fait, le procédé ARB est un procédé de soudage à l'état solide, dans lequel il n'y a jamais de fusion globale des matériaux empilés. Dans notre étude sur le composite laminé Al1050/AZ31/Al1050, il est néanmoins possible que la liquéfaction se développe au cours du procédé ARB après 6 cycles. En outre, la vitesse de déformation [7,17], la température de réaction [18] et la composition locale [19] sont les paramètres métallurgiques qui contrôlent la formation et le développement des composés intermétalliques.

Comme il est connu, l'interaction entre les tôles et les deux cylindres de laminoir pendant le procédé ARB entraîne un échauffement significatif. Des phénomènes analogues ont été observés durant le soudage par friction malaxage (FSW), car l'interaction entre la pièce, l'outil et la rotation de la broche entraîne une déformation plastique du matériau de la pièce. *Beygi et al.* [20] ont rapporté que pendant le soudage par FSW d'Al/Mg, l'activité des espèces chimiques était réduite en raison du phénomène de liquéfaction et de la formation subséquente de structures eutectiques et que par conséquent, la vitesse de diffusion à l'état solide était ralentie.

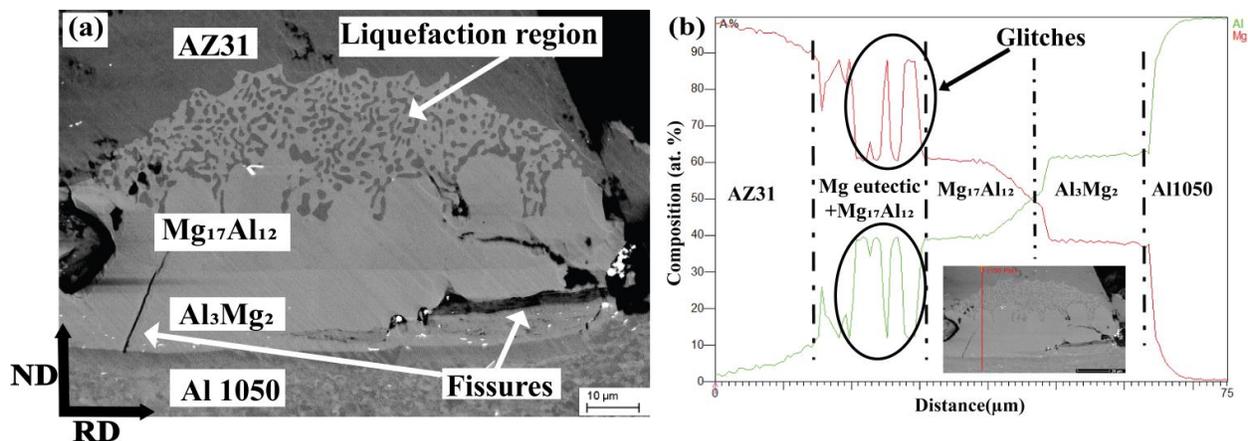


Figure III.A.6 : Morphologies de la région de forme irrégulière. (a) Micrographie MEB, (b) Analyse EDS linéaire

CHAPITRE III : RESULTATS ET DISCUSSIONS

Nous présentons dans la figure III.A.7, les cartographies en mode de figures de pôles inverses (DN-IPF) (sachant que la texture a été tournée pour être décrite dans le système de coordonnées de laminage classique, c'est-à-dire $\{hkl\} // (DL-DT)$ et $\langle uvw \rangle // DL$) du composite laminé Al1050/AZ31/Al1050 après 2, 4 et 6 cycles ARB. Il est important de noter que, dans la présente étude, contrairement à certains travaux antérieurs, les composés intermétalliques Al_3Mg_2 et $Mg_{17}Al_{12}$ sont clairement indexés et résolus par la technique OIM™.

Après 2 cycles ARB, la microstructure de la couche d'AZ31 se compose de deux types de grains différents, de gros grains allongés le long de DL et de petits grains équiaxes. Aucune macule n'a été observée et la taille moyenne des grains de la couche d'AZ31 a considérablement diminué, allant de 18,1 μm ($N = 0$) à 1,9 μm ($N = 2$) (Figure III.A.8). Après 4 cycles ARB, une microstructure homogène de la couche AZ31 avec des grains affinés et équiaxes a été obtenue comme le montre la figure III.A.7(b) et la taille moyenne des grains étaient d'environ 0,21 μm (environ 98,8 % de réduction de la taille des grains par rapport à $N=0$) due à la fragmentation des grains allongés pendant le procédé ARB.

En outre, la taille des grains de la couche AZ31 a légèrement augmenté après 6 cycles ARB et se situe entre 0,5 et 10 μm . Il est établi que les nouveaux grains fins se développent pendant le procédé ARB aux joints des grains d'origine en raison de la recristallisation dynamique (DRX), comme l'ont indiqué *Stráská et al.* [21]. En fait, la température de laminage et les contraintes élevées pendant le procédé ARB ont favorisé la croissance du grain. *Guo et al.* [22] ont signalé que les grains recristallisés peuvent être classés en deux types différents selon leur position. Dans le premier cas, les nouveaux grains sont situés autour de gros grains et développent une microstructure en collier (Necklace Microstructure). Ce type de microstructure résulte principalement d'un mécanisme de recristallisation dynamique discontinue (dDRX) [23].

Le deuxième type est constitué par les grains affinés formés à l'intérieur des bandes de cisaillement, que l'on peut considérer comme une recristallisation par germination des bandes de cisaillement (sbDRX) [24]. Ce type de recristallisation crée une microstructure hétérogène par la formation de bandes de cisaillement. Même si le mécanisme est complexe, il est généralement accepté que l'affinement du grain des alliages de Mg pendant le procédé ARB est le résultat d'une recristallisation dynamique [25].

CHAPITRE III : RESULTATS ET DISCUSSIONS

On peut supposer que dans la présente étude, un mécanisme probable de recristallisation par germination de bandes de cisaillement (sbDRX) devrait opérer car certaines bandes de cisaillement ont été bien mises en évidence dans la figure III.A.1(e) alors qu'aucune trace de grains recristallisés de type collier n'a été dépeinte (Figure III.A.7).

Lorsque les niveaux de contraintes sont élevés, les germes à recristallisation dynamique se développent rapidement. Lors de la préparation de la surface avant le procédé ARB, une certaine contrainte est générée en raison du brossage métallique. *Kumar et al.* [25] ont signalé que la recristallisation dynamique pendant le procédé ARB de l'AZ31 se développe plus facilement à l'interface en raison de la concentration locale de contraintes. En effet, les joints de grains migrent facilement lorsque le procédé est effectué à haute température, ce qui permet aux grains recristallisés d'entrer en contact et de coalescer.

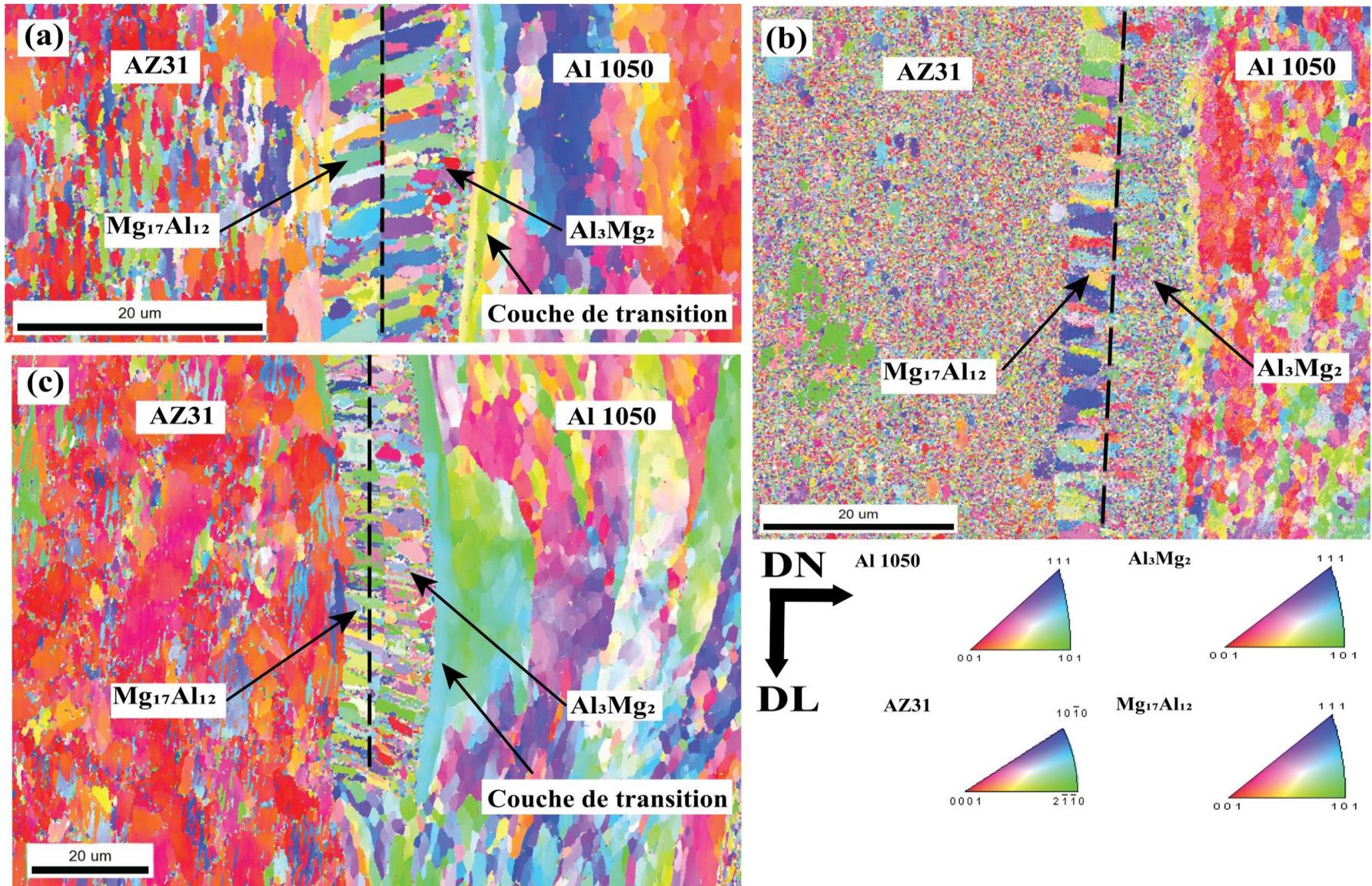


Figure III.A.7: IPF maps après : a) 2, b) 4 et c) 6 cycles ARB.

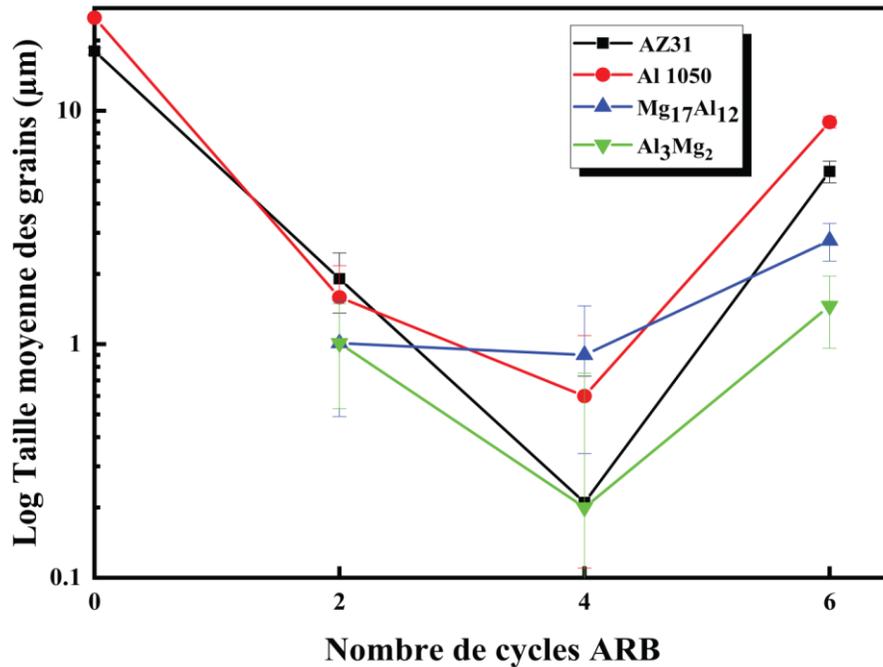


Figure III.A.8: Taille moyenne des grains après différents cycles ARB.

Concernant les couches d'Al1050 après différents cycles ARB, une microstructure allongée le long de la direction de laminage est nettement visible dans les IPF maps. La taille moyenne des grains a été diminuée à 1,6 et 0,6 μm après respectivement 2 et 4 cycles ARB. Cependant, la taille moyenne des grains est augmentée à 8,9 μm après 6 cycles, ce qui peut être dû à l'accumulation de déformations importantes dans le matériau et au recuit intermédiaire pendant le procédé ARB, qui favorise ainsi la recristallisation et la croissance des grains. De plus, l'angle moyen de désorientation des joints de grains est de 31,6° puis diminue pour atteindre 13,1° et 12,3° après respectivement 4 et 6 cycles ARB. (Figure III.A.9)

Simultanément, la fraction de HAGBs augmente légèrement entre 1 et 2 cycles ARB, passant de 13 à 15 %, puis augmente rapidement après 3 cycles pour saturer après 4 cycles à 23 % comme le montre dans la figure III.A.10. Cependant, la fraction considérable de LAGBs dans les grains allongés après 4 et 6 cycles ARB est un résultat habituel pour tous les procédés SPD, ce qui indique une microstructure de sous-grains. Il est à noter que le mécanisme d'affinement des grains dans les alliages CFC n'est pas similaire à celui des alliages HCP. Le mécanisme principal de l'affinement du grain dans les alliages CFC est caractérisé par la transformation des LAGBs en

HAGBs sous l'effet d'une augmentation de la contrainte [26]. Cependant, l'affinement des grains dans les métaux CFC peut également être corrélé à une recristallisation dynamique qui se produit dans ce cas lorsque des contraintes élevées entraînent une diminution des LAGBs.

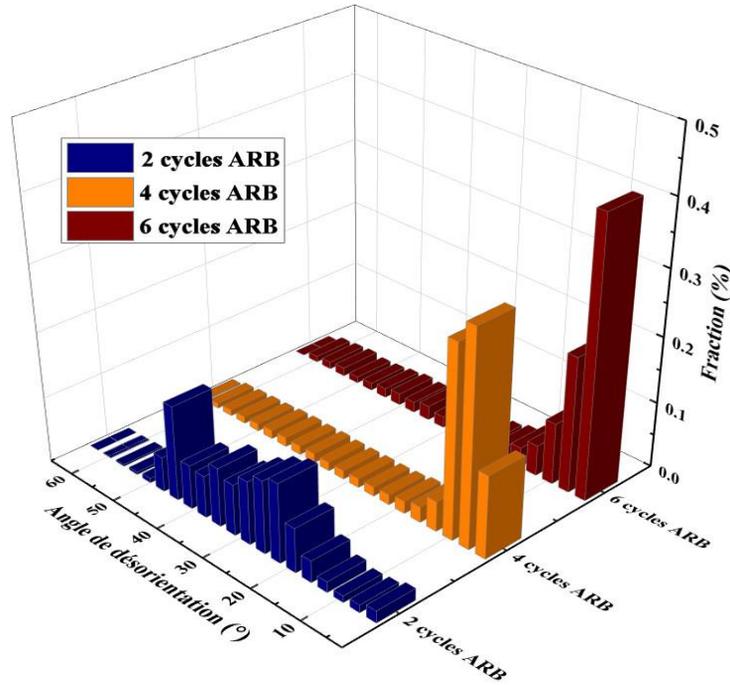


Figure III.A.9: Histogramme des désorientations des joints des grains de la couche d’Al1050 après 2,4 et 6 cycles ARB.

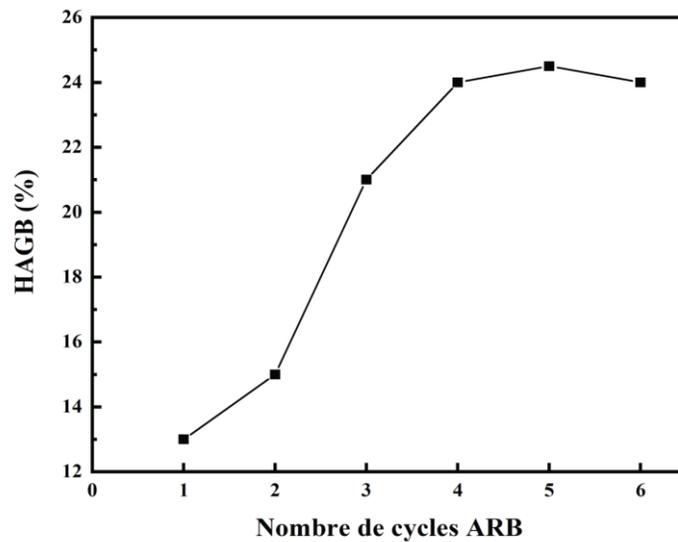


Figure III.A.10 : Évolution de HAGB en fonction du nombre de cycles ARB des couches d'Al 1050.

CHAPITRE III : RESULTATS ET DISCUSSIONS

Les composés intermétalliques Al_3Mg_2 et $\text{Mg}_{17}\text{Al}_{12}$ qui se sont formés après 2 cycles ARB ont approximativement la même taille moyenne des grains ($1.0 \mu\text{m}$) (Figure III.A.8(a)). Après 4 cycles ARB, l'affinement du grain d' Al_3Mg_2 est plus de 4 fois supérieure à celui de $\text{Mg}_{17}\text{Al}_{12}$. La taille moyenne des grains d' Al_3Mg_2 et de $\text{Mg}_{17}\text{Al}_{12}$ atteint respectivement $0,2$ et $0,9 \mu\text{m}$. Après 6 cycles d'ARB, la taille moyenne des grains d' Al_3Mg_2 et de $\text{Mg}_{17}\text{Al}_{12}$ est augmentée à $1,5$ et $2,8 \mu\text{m}$ respectivement.

Cependant, les IMCs ne présentaient pas une forme allongée telle qu'observée dans les couches d'Al 1050 ou d'AZ31 dans les directions de laminage (DL). Au contraire, ils présentent manifestement une croissance colonnaire perpendiculaire au plan de l'interface. Selon *Lee et al.* [27], une croissance colonnaire des grains de $\text{Mg}_{17}\text{Al}_{12}$ à l'interface a été principalement induite par le recuit intermédiaire. En même temps et c'est une nouvelle découverte dans la phase Al_3Mg_2 , une telle croissance en colonne est rarement observée. *Lee et al.* [27] ont suggéré que la croissance colonnaire peut être due à un dégagement de chaleur le long de la direction de croissance perpendiculaire au plan de l'interface. Un phénomène similaire a également été observé par *Kim et al* [28]. Ils ont signalé que la croissance colonnaire pouvait être influencée par la taille des grains des alliages du substrat. La couche d'alliage de Mg à gros grains pourrait favoriser le grossissement des grains colonnaires de $\text{Mg}_{17}\text{Al}_{12}$. En outre, *Wang et al.* [29] et *Nie et al.* [1] ont signalé qu'au cours du recuit, les grains de $\text{Mg}_{17}\text{Al}_{12}$ et d' Al_3Mg_2 sont colonnaires le long de la direction d'interdiffusion. *Wang et al.* [29] ont constaté que la couche de réaction contenait une couche γ - $\text{Mg}_{17}\text{Al}_{12}$ avec des grains colonnaires, une couche β - Al_3Mg_2 avec des grains fins équiaxes en forme de bâtonnets. Les grains d' Al_3Mg_2 affinés près du côté Al peuvent être liés aux impuretés qui ont entravé la croissance des grains d' Al_3Mg_2 .

Toutefois, ces études précédentes montrent qu'il existe plusieurs formes de grains possibles. Le mécanisme de formation et les méthodes de contrôle de la morphologie et de la taille des grains dans la couche de réaction doivent encore faire l'objet de recherches approfondies. *Nie et al.* [1] ont étudié les relations d'orientation (OR) entre les IMCs et la matrice à l'aide de l'EBSD et de MET. Ils ont constaté que toutes les interfaces Al/ Al_3Mg_2 , $\text{Al}_3\text{Mg}_2/\text{Mg}_{17}\text{Al}_{12}$ et $\text{Mg}_{17}\text{Al}_{12}/\text{Mg}$ présentent une relation cohérente avec de petits degrés de désaccord de maille (Misfit) allant de $0,64$ à $2,70 \%$. Les relations d'orientation entre eux sont les suivantes : $(8-80) \beta // (141) \gamma$, $(80-8) \beta // (411) \gamma$, $(01-1-1) \text{Mg} // (411) \gamma$ et $(220) \text{Al} // (19, 1, 1) \beta$.

CHAPITRE III : RESULTATS ET DISCUSSIONS

Cependant, dans les interfaces Al 1050/Al₃Mg₂, une couche de transition constitutionnelle s'est développée. Cette nouvelle couche est visible sur les figures III.A.8(a) et (c) avec une couleur différente de celle de la couche de la phase Al₃Mg₂, indiquant la zone sursaturée de la solution solide d'Al qui ne s'est pas encore transformée en un composé intermétallique. La raison de la formation de cette couche de transition peut être liée à l'énergie de germination élevée de la phase Al₃Mg₂ et peut disparaître lorsque le développement du composé intermétallique est considérablement amélioré par la cinétique qui le gouverne [8,30]. De plus, la figure III.A.7(a) montre que les grains de l'IMC Al₃Mg₂ sont plus fins à côté de la couche de transition. À contrario, près de l'interface Mg₁₇Al₁₂, les grains d'Al₃Mg₂ peuvent être aussi grossiers que ceux de Mg₁₇Al₁₂.

Nous présentons dans la figure III.A.11 l'histogramme (obtenu par EBSD) des désorientations des joints de grains des intermétalliques Al₃Mg₂ et Mg₁₇Al₁₂ après différents cycles ARB. Les histogrammes de la phase Al₃Mg₂ montrent qu'en plus de la présence de joints de faible angle (LAGB), il y a présence de d'angles dans la gamme 30-40° et aussi proche de l'orientation de macle Sigma 3 (60°). L'histogramme pour N=4 est bizarre et ne reproduit pas ces observations. Les histogrammes de la phase Mg₁₇Al₁₂ montrent les mêmes tendances que celles de l'intermétallique Al₃Mg₂ mais avec des fractions plus élevées pour les joints LAGB. Notons une remarque importante qu'une analyse des désorientations des joints dans les intermétalliques n'est pas du tout aisée vue le manque criard de littérature sur ce sujet très particulier. En effet, ces intermétalliques et à cause de leur structure cristalline très compliquée et de leur faible symétrie, n'ont suscité aucune étude approfondie ni théorique ni expérimentale.

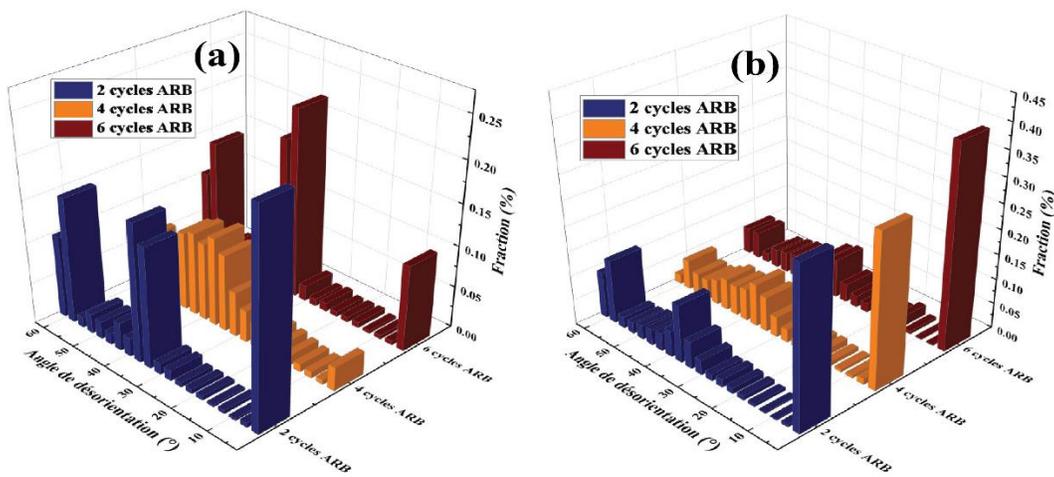


Figure III.A.11. Histogrammes des désorientations du jointes des grains des intermétalliques après différents ARB cycles (a) Al_3Mg_2 , (b) $\text{Mg}_{17}\text{Al}_{12}$.

Afin d'évaluer la densité de dislocations des couches AZ31, $\text{Mg}_{17}\text{Al}_{12}$, Al_3Mg_2 et Al1050 dans les composites laminés Al1050/AZ31/Al1050 en fonction du nombre de cycles ARB, la méthode KAM (Kernel Average Misorientation) a été utilisée. La valeur KAM est directement proportionnelle à la densité de dislocations [31]. Dans la présente étude, les cartes KAM et la densité de dislocations mesurée par la technique EBSD sont présentées dans les figures III.A.12 et 13(a), respectivement.

Après 2 cycles ARB (Voir la figure III.A.13(a)), la densité de dislocations de la couche AZ31 ($1.4 \times 10^{15} \text{ m}^{-2}$) est proche de celle d' Al_3Mg_2 ($1.2 \times 10^{15} \text{ m}^{-2}$) et plus élevée comparée à celles d'Al1050 ($9.7 \times 10^{14} \text{ m}^{-2}$) et $\text{Mg}_{17}\text{Al}_{12}$ ($6.2 \times 10^{14} \text{ m}^{-2}$). En fait, la densité de dislocations après 2 cycles ARB, est dans l'ordre suivant : $\rho_{\text{AZ31}} > \rho_{\text{Al}_3\text{Mg}_2} > \rho_{\text{Al 1050}} > \rho_{\text{Mg}_{17}\text{Al}_{12}}$. La densité de dislocations dans les zones proches de l'interface Al1050/ Al_3Mg_2 est plus élevée que la densité de dislocations des couches d'Al1050 ou d' Al_3Mg_2 , comme le montre la couleur verte plus intense dans les cartes KAM (Figure III.A.12(a)). Par conséquent, les couches fragiles et dures d'IMC entre des métaux dissemblables sont à l'origine de la déformation plastique importante près de l'interface. *Mo et al.* [32] ont rapporté que l'augmentation du degré de déformation a conduit à une accumulation considérable de dislocations près de l'interface de la couche souple d'Al1060, induisant un mécanisme de renforcement supplémentaire dû à la structure des composites tri-métalliques Al/Al/Acier qui a favorisé l'amélioration de la résistance et de la ductilité. Ensuite, les valeurs de densité de dislocations de toutes les couches continuent d'augmenter après 4 cycles ARB (Figure III.A.12(b)) où la présence de régions colorées en rouge augmente à ce cycle, ce qui implique une augmentation globale de la densité de dislocations.

Cependant, on observe un écart significatif entre l'angle KAM moyen (c'est-à-dire la densité de dislocations) des couches Al_3Mg_2 et AZ31, qui sont respectivement de $4,1 \times 10^{15} \text{ m}^{-2}$ et $2,4 \times 10^{15} \text{ m}^{-2}$, et une variation moindre pour les couches $\text{Mg}_{17}\text{Al}_{12}$ et Al1050, qui sont respectivement de $1,1 \times 10^{15} \text{ m}^{-2}$ et $1,16 \times 10^{15} \text{ m}^{-2}$. Le changement dans les valeurs de densité de dislocations indique qu'une déformation plus importante se produit dans toutes les couches et la nouvelle hiérarchie est maintenant $\rho_{\text{Al}_3\text{Mg}_2} > \rho_{\text{AZ31}} > \rho_{\text{Al 1050}} \sim \rho_{\text{Mg}_{17}\text{Al}_{12}}$. En outre, la distribution

CHAPITRE III : RESULTATS ET DISCUSSIONS

des couleurs n'est pas uniforme, ce qui indique que les dislocations sont réparties de manière hétérogène dans la microstructure du composite laminé Al1050/AZ31/Al1050.

Manifestement, la majorité des dislocations étaient distribuées à l'intérieur des grains déformés et autour des sous-structures de déformation après 4 cycles ARB. Lors du procédé suivant, cette forte densité de dislocations deviendra le point de début de la recristallisation. Il est intéressant de noter que la densité de dislocations de toutes les couches a diminué après 6 cycles ARB. Ces résultats indiquent que les dislocations générées pendant le procédé ARB sont partiellement annihilées par le mécanisme DRX (Dynamic recrystallization). Les valeurs de densité de dislocations les plus significatives ont été observées au niveau de la couche Al_3Mg_2 et de la couche AZ31 après tous les cycles ARB. En outre, la plupart des dislocations sont accumulées près des joints de grains. Des résultats similaires ont été rapportés par *Zhu et al.* [33] pour le nickel polycristallin déformé par compression et *Zhi et al.* [34] pour l'acier Fe-22Mn-0.6C TWIP déformé par tension uniaxiale.

En fait, pendant le procédé ARB, les taux de déformation et la température ont un impact significatif sur l'activation des systèmes de glissement et la variation de la densité des dislocations. En outre, la densité de dislocations de la couche Al_3Mg_2 est plus élevée que celle de la couche $Mg_{17}Al_{12}$ après tous les cycles ARB. Cependant, lorsque les dislocations sont accumulées pendant une déformation plastique sévère jusqu'à un certain niveau, la germination des grains DRX est favorisée par la poursuite de la déformation et les dislocations seront annihilées par les grains DRX fins ainsi générés. Les dislocations se développent en conséquence d'une déformation non uniforme à l'échelle du cristal, accommodée par certaines dislocations au cours d'une déformation plastique sévère et la densité de dislocations diminue en réduisant le degré de courbure du réseau [35].

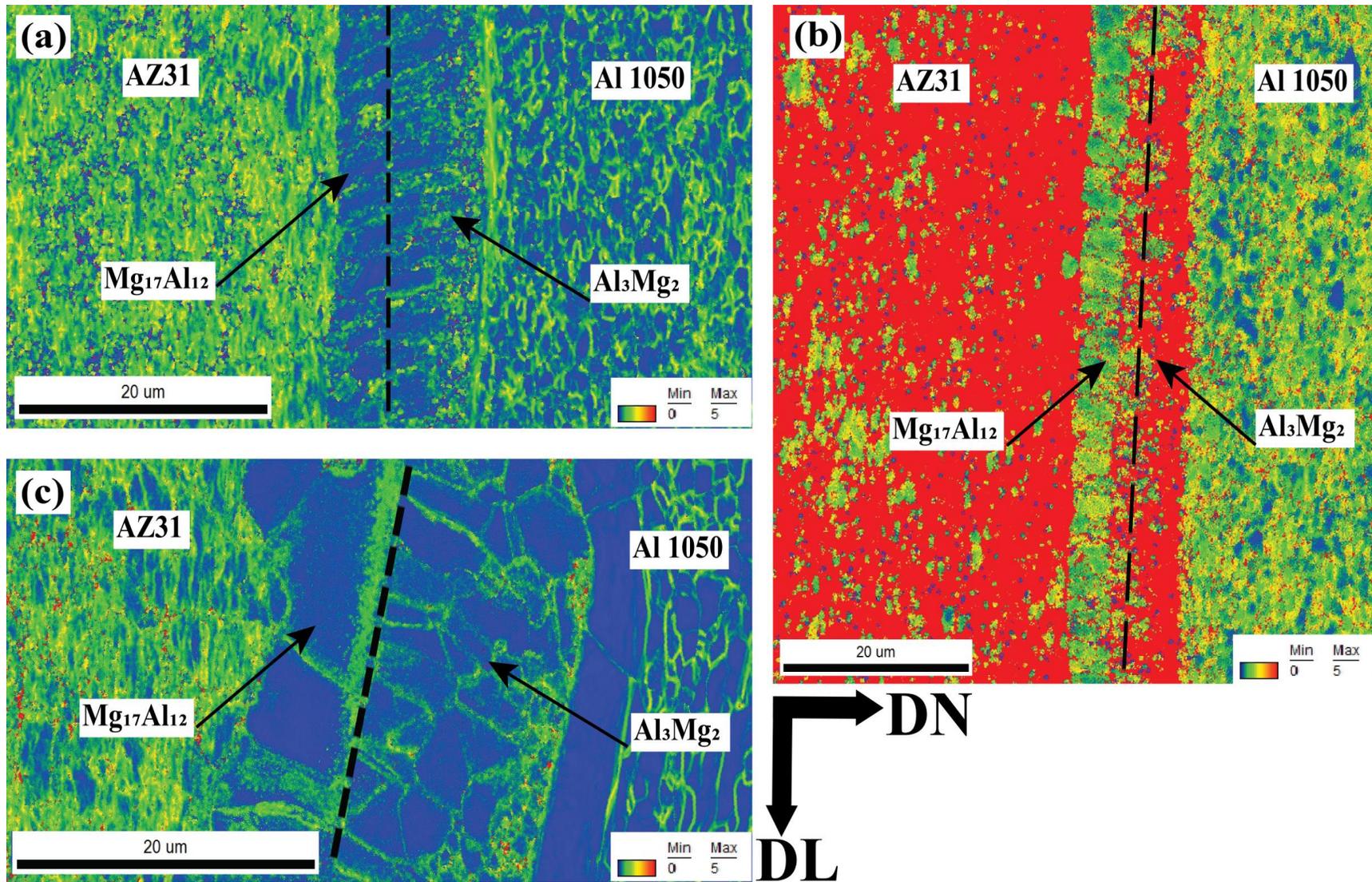


Figure III.A.12: Cartes KAM du composite laminé Al 1050/AZ31/Al 1050 après : a) 2 cycles, b) 4 cycles, c) 6 cycles ARB.

En fait, pendant le procédé ARB, les taux de déformation et la température ont un impact significatif sur l'activation des systèmes de glissement et la variation de la densité des dislocations. En outre, la densité de dislocations de la couche Al_3Mg_2 est plus élevée que celle de la couche $Mg_{17}Al_{12}$ après tous les cycles ARB. Cependant, lorsque les dislocations sont accumulées pendant une déformation plastique sévère jusqu'à un certain niveau, la germination des grains DRX est favorisée par la poursuite de la déformation et les dislocations seront annihilées par les grains DRX fins ainsi générés. Les dislocations se développent en conséquence d'une déformation non uniforme à l'échelle du cristal, accommodée par certaines dislocations au cours d'une déformation plastique sévère et la densité de dislocations diminue en réduisant le degré de courbure du réseau [35].

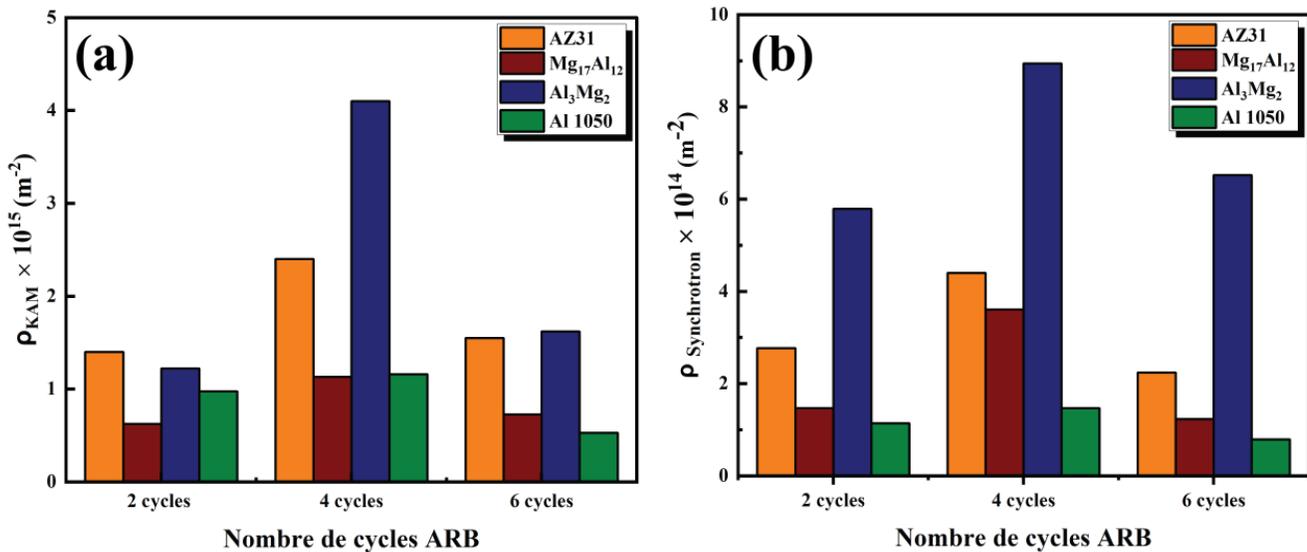


Figure III.A.13 : Densité de dislocations du composite laminé Al1050/AZ31/Al1050 après différents cycles ARB, a) estimée par EBSD et b) par SXR.

En général, un grand nombre de bandes de glissement doivent être générées lorsqu'une macro-déformation doit être prise en compte. Par conséquent, les orientations cristallographiques des grains sont généralement tournées dans une certaine mesure afin de faciliter l'activation du glissement et de coordonner la déformation globale [36]. L'existence de dislocations près des interfaces des composites laminés ainsi que des grains peut s'expliquer par le fait que les nombreux joints de grains ainsi que les atomes de soluté et les précipités entravent le mouvement des dislocations et que les différentes orientations des cristaux affectent également la distribution de la densité des dislocations [32]. L'hétérogénéité des microstructures, de la texture et des propriétés

mécaniques des couches les rend mécaniquement incompatibles lors d'une déformation plastique sévère et par conséquent, produit une incompatibilité de déformation significative aux interfaces pendant le procédé ARB [32].

III.A.3 Analyse par diffraction des rayons X sous rayonnement synchrotron (SXR)

La figure III.A.14 présente une partie d'un diffractogramme obtenu par SXR pour le composite hybride Al1050/AZ31/Al1050 après N=2, 4 et 6 cycles ARB. Le rayonnement à 18 keV et l'utilisation d'un détecteur CirPAD sophistiqué et puissant ont permis de collecter le faisceau diffracté avec des intensités atteignant 10^6 coups/s et de révéler les pics caractéristiques des intermétalliques qui sont clairement distincts du bruit de fond et impossibles à résoudre à l'aide d'installations de DRX conventionnelles. La partie des diffractogrammes montre des pics abondants associés à Mg, Al, $Mg_{17}Al_{12}$ et Al_3Mg_2 ainsi que de nombreux autres pics très plausiblement attribués à différentes phases complexes présentes dans les alliages AZ31 et Al1050 telles que Al_3Fe stable et $Al_xFe_ySi_z$ métastable [37]. Ces derniers n'ont pas été pris en compte dans la présente étude. Les résultats SXR confirment la présence des IMCs $Mg_{17}Al_{12}$ et Al_3Mg_2 qui se sont formés après N=2 cycles ARB comme indiqué ci-dessus dans la figure III.A.3.

La figure III.A.13(b) montre la densité de dislocations mesurée par SXR en utilisant la méthode Scherrer-Wilson décrite dans la section Techniques expérimentales. La densité de dislocations estimée de toutes les phases présente une évolution similaire à celle estimée par EBSD (Figure III.A.13(a)) et consiste presque en une augmentation entre N=2 et N=4 suivie d'une diminution claire après N=6. La hiérarchie $\rho_{AZ31} > \rho_{Al_3Mg_2} > \rho_{Al\ 1050} > \rho_{Mg_{17}Al_{12}}$ est également respectée. La densité de dislocations estimée par EBSD est légèrement supérieure à celle estimée par SXR.

La différence de densité de dislocations estimée par SXR et EBSD pourrait s'expliquer par le fait que certaines dislocations peuvent ne pas se trouver dans des conditions de diffraction. Des évolutions globales similaires de la densité de dislocations du Cu-0,3Cr-0,5Zr soumis à un procédé ECAP à l'aide de MET, de l'EBSD et de la diffraction des rayons X (XRDLPA) ont été rapportées par *Zhilyaev et al.* [38]. En outre, *Muñoz et al.* [39] ont indiqué que de nombreuses données publiées montrent des différences dans les valeurs de densité de dislocations des métaux et des alliages traités par des techniques SPD similaires. Cependant, la densité de dislocations du fer ARMCO traité par ECAP jusqu'à une déformation équivalente maximale de 16 passes ECAP

CHAPITRE III : RESULTATS ET DISCUSSIONS

suivant la voie Bc, déterminée par EBSD et XRDLPA, a également montré une bonne évolution avec les présents résultats. La densité de dislocations de la couche d'Al1050 a accumulé moins de dislocations lors de la déformation.

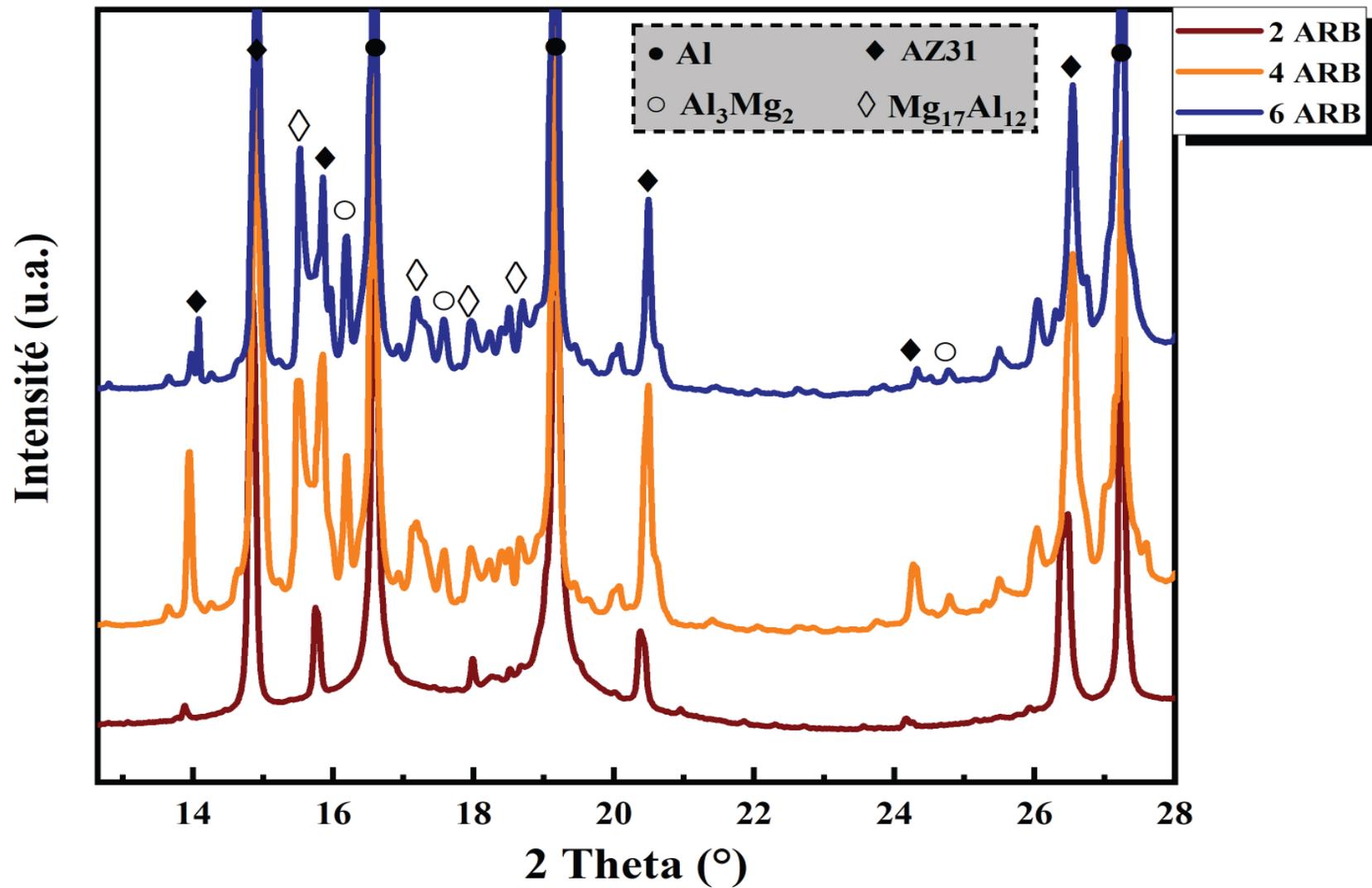


Figure III.A.14. Partie d'un diffractogramme obtenu par SXRD pour le composite hybride Al 1050/AZ31/Al1050 après N=2-6 cycles ARB

III.A.4 Évolution de la texture du composite laminé Al1050/AZ31/Al1050

La figure III.A.15 montre la figure des pôles de la couche AZ31 après différents cycles ARB. Dans les systèmes hexagonaux, l'orientation du plan basal par rapport à la contrainte est très importante pour vérifier si le glissement basal est géométriquement favorable. Par conséquent, la figure de pôle (0002) est souvent utilisée pour décrire la texture. Parfois, les figures de pôles (10-10) et (11-20) sont également utilisées pour prendre en considération les caractéristiques cachées dues à la faible symétrie [40,41].

Dans la présente étude, une inspection approfondie des figures des pôles (10-10) et (11-20) n'a pas révélé d'autres orientations que celles décrites par le pôle (0002). La texture de l'alliage AZ31 non déformé était de type basal avec des pôles basaux légèrement inclinés de la direction normale (DN) vers la direction transversale (DT) avec une intensité de 7,4 mrd (pas illustré ici) [26]. L'évolution de la texture après 2 cycles d'ARB est illustrée dans la figure III.A.15(a). La figure des pôles (0002) des couches AZ31 après 2 cycles présente une texture de laminage typique des matériaux HCP, le pôle basal s'inclinant légèrement de la direction normale vers la direction de laminage (DL) et la densité des pôles augmentant jusqu'à 18,9 mrd. Cette inclinaison vers la direction DL est la confirmation de l'activation des glissements pyramidaux ou prismatiques dans les systèmes HCP [26].

Cependant, le glissement basal est le principal mécanisme de déformation, et le matériau peut accommoder de grandes déformations. Le taux de recristallisation augmente avec la déformation, ce qui favorise l'activité de glissement basal. *Jeong et al.* [42] ont étudié la texture basale parfaite au cours du laminage à chaud de l'alliage AZ31 et *Roostaei et al.* [43] ont démontré une augmentation de l'intensité de la texture basale au cours du recuit de l'éprouvette AZ31 à 350°C. Ces études ont donc démontré que la température joue un rôle majeur dans l'évolution de la texture de l'alliage AZ31 au cours du traitement ARB. Par conséquent, dans ce travail, la recristallisation dynamique assistée par la déformation pourrait être la principale raison de l'augmentation de l'intensité de la texture basale dans la couche AZ31 après 2 cycles ARB.

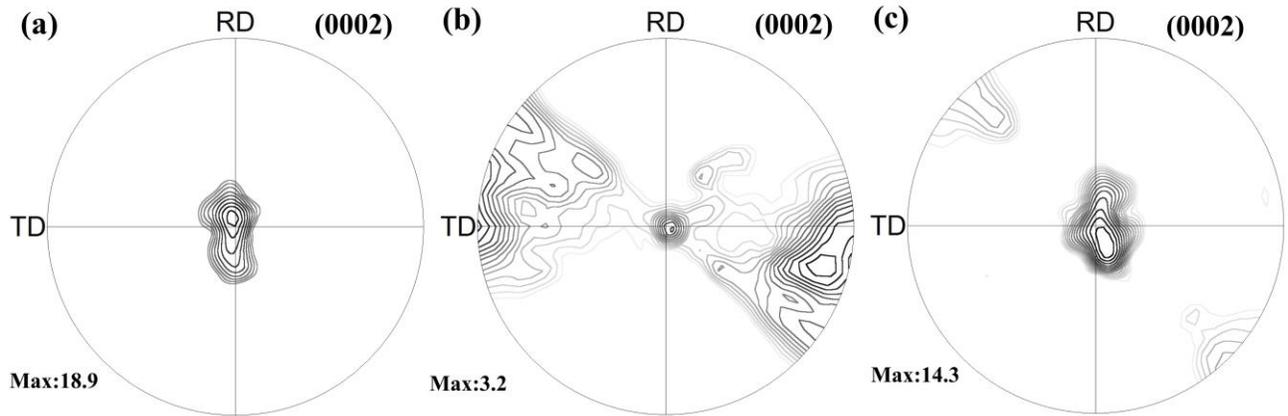


Figure III.A.15: Figures de pôles (0002) de la couche AZ31, a) après 2, b) 4 et c) 6 cycles ARB.

Cependant, une nouvelle composante de texture $(11-20) \langle 0001 \rangle$ est apparue à côté de la texture basale avec l'augmentation des cycles ARB, comme le montre la figure III.A.15(b) après N=4 cycles ARB. L'augmentation du nombre de cycles ARB à N=4 entraîne également un affaiblissement de la texture. La diminution de l'intensité de la texture pourrait être attribuée à la recristallisation dynamique où les grains recristallisés dynamiquement peuvent présenter des orientations plus favorables pour le glissement basal et par conséquent entraîner une randomisation de la texture. En effet, cette diminution d'intensité pourrait également être attribuée à la formation de bandes de cisaillement. Cela indique que, quelle que soit la texture initiale, l'évolution de la texture est largement contrôlée par le mécanisme de déformation en cours.

Kumar et al. [25] ont étudié l'évolution de la texture de l'alliage AZ31 dans les composites multicouches AZ31/AZ31 et le composite laminé AA5086/AZ31 élaborés par le procédé ARB. Les résultats de cette étude comparative ont montré que le développement de la texture est fortement influencé par l'interface dans le système multicouche AZ31/AZ31. Ils ont constaté que l'intensité de la texture basale typique augmentait avec la réduction du laminage. Par ailleurs, en présence d'interfaces AA5086/AZ31, l'intensité de la texture de l'AZ31 a d'abord augmenté avec la réduction du laminage et s'est affaiblie à la déformation de laminage la plus élevée. Sur la base de cette étude, ils ont conclu que l'affaiblissement de la texture de l'AZ31 au cours du processus à plus forte déformation a été attribué au développement d'interfaces ondulées significatives dans le composite laminé AA5086/AZ31.

CHAPITRE III : RESULTATS ET DISCUSSIONS

Cependant, l'évolution de la texture après 6 cycles ARB (Figure III.A.15 (c)) est similaire à ce qui a déjà été observé après 2 cycles avec une intensité plus élevée. En outre, l'inclinaison du pôle basal peut être liée à l'activation du glissement pyramidal $\langle c+a \rangle$ et des doubles macles [44].

La figure III.A.16 montre les sections ODF à $\varphi_2 = 0, 45$ et 65° de la couche d'Al1050 après : a) 2, b) 4 et c) 6 cycles ARB du composite laminé Al 1050 /AZ31/Al 1050. Les positions des principales composantes de la texture idéales des alliages CFC sont également représentées. Avant le procédé ARB, la texture de l'Al1050 dans son état initial présente une composante Cube (001) $\langle 100 \rangle$ avec une intensité d'environ 12 distributions aléatoires multiples (mrd) [26].

Après 2 cycles ARB, la composante Cube tournée (001) $\langle 110 \rangle$ qui est une composante typique de la texture de cisaillement a été observée avec une intensité de 6.9 mrd avec une orientation S (231) $\langle 346 \rangle$ proche 7.2 mrd (Figure III.A.16(a), Figure III.A.17). Après 4 cycles ARB (Figure III.A.16 (b)), l'intensité de la composante Cube tournée (001) $\langle 110 \rangle$ a diminué à 4,9 mrd. Après 6 cycles ARB (Figure III.A.16(c)), la composante Cube tournée (001) $\langle 110 \rangle$ a complètement disparu. En outre, une composante Cube et une composante proche de Goss ont été observées avec une faible intensité d'environ 2,5 et 2,0 mrd, respectivement (Figure III.A.17).

La composante Cube est connue comme étant la composante de texture de recristallisation typique des matériaux CFC [45]. Le changement de texture devrait également être lié aux différents systèmes de glissement qui ont pu être activés pendant le processus de déformation. En plus, la contrainte de cisaillement qui a été principalement introduite par le frottement des rouleaux et de la surface de l'échantillon peut également avoir été responsable du changement dans le modèle de glissement. Cependant, *Pirgazi et Akbarzadeh* [45] ont étudié l'évolution de la texture de l'alliage AA1100 élaboré par ARB jusqu'à 8 cycles. Les résultats ont montré que la composante Cube Tournée est l'une des composantes principales à tous les cycles alors que dans l'étude actuelle, le Cube Tourné est apparu après 2 cycles et a disparu après 6 cycles.

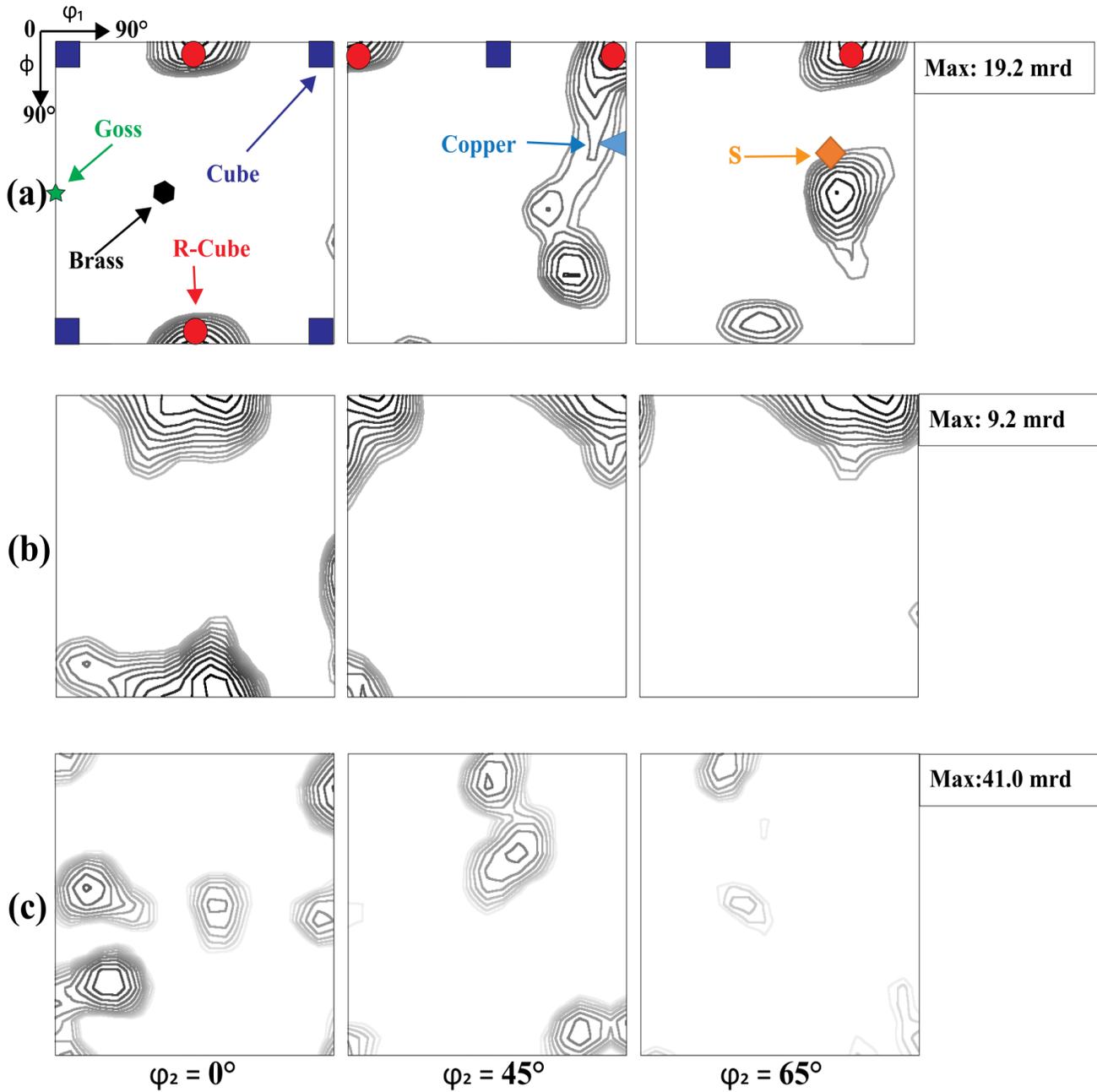


Figure III.A.16 : Sections ODF à $\varphi_2 = 0, 45$ et 65° de la couche d'Al1050 après : a) 2, b) 4 et c) 6 cycles ARB du composite laminé Al1050 /AZ31/Al1050.

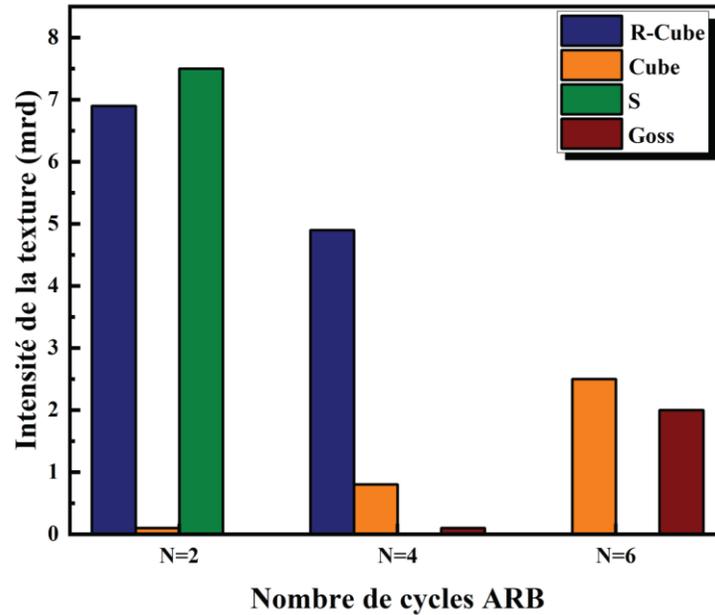


Figure III.A.17: Intensité maximale des principales composantes de la texture de la couche d'Al 1050 en fonction du nombre de cycles ARB

L'une des différences entre cette étude et [45] est la température qui peut affecter la texture de la déformation. Dans la présente étude, le procédé ARB a été effectué à 400°C alors qu'il a été effectué à 200°C dans [45]. La deuxième différence est l'intensité de la texture, qui a diminué après 4 cycles alors qu'elle est restée constante après tous les cycles dans [45]. *Raei et al.* [46] ont rapporté pour l'alliage AA1100 élaboré via ARB jusqu'à 6 cycles que tous les échantillons présentent de fortes textures de fibres β avec une orientation Cuivre (112) $\langle 111 \rangle$. À mesure que le nombre de cycles ARB augmente, l'intensité de la composante Goss (110) $\langle 001 \rangle$ diminue.

En général, on peut conclure que les principaux facteurs qui expliquent la différence entre cette étude et les travaux antérieurs [45–47] sont les suivants : a) la température de déformation, b) les conditions de recuit, c) les paramètres de colaminage (diamètre du cylindre, vitesse de laminage, etc.), d) la présence de particules de seconde phase et e) la position des mesures de texture (près de la surface supérieure, au milieu de l'épaisseur et au quart de l'épaisseur).

Afin d'interpréter en détail l'évolution de la texture de la couche d'Al1050, la variation de l'intensité des principales composantes de la texture est récapitulée dans la figure III.A.18 qui révèle la distribution de l'intensité le long des fibres α , β -, et τ de la couche d'Al 1050 après différents cycles ARB. Les principales composantes de texture dans la déformation des métaux et alliages FCC sont la fibre α : Goss (110) $\langle 001 \rangle$ à Goss tourné (110) $\langle 110 \rangle$ (apparaît dans les

CHAPITRE III : RESULTATS ET DISCUSSIONS

sections $\varphi_1 = 0^\circ$ et 90° de l'ODF), la fibre β : Cuivre (112) $\langle 111 \rangle$ à Brass (110) $\langle 112 \rangle$ (visible dans les sections $\varphi_2 = 45^\circ$ et 90° de l'ODF) et la fibre τ : Cube tourné (001) $\langle 112 \rangle$ (visible dans les sections $\varphi_2 = 45^\circ$ et 90° de l'ODF). $\langle 111 \rangle$ vers Brass (110) $\langle 112 \rangle$ et τ -fibre : Cube tourné (001) $\langle 110 \rangle$ à Goss (110) $\langle 001 \rangle$ (visible dans les sections $\phi = 0^\circ$ et 90° de l'ODF).

Comme mentionné ci-dessus, les intensités du Cube tourné ont chuté (fibre τ) de $N=2$ à $N=6$ alors qu'au contraire, les composantes Cube (fibre β) et Goss (fibre α) ont augmenté avec l'augmentation des cycles ARB.

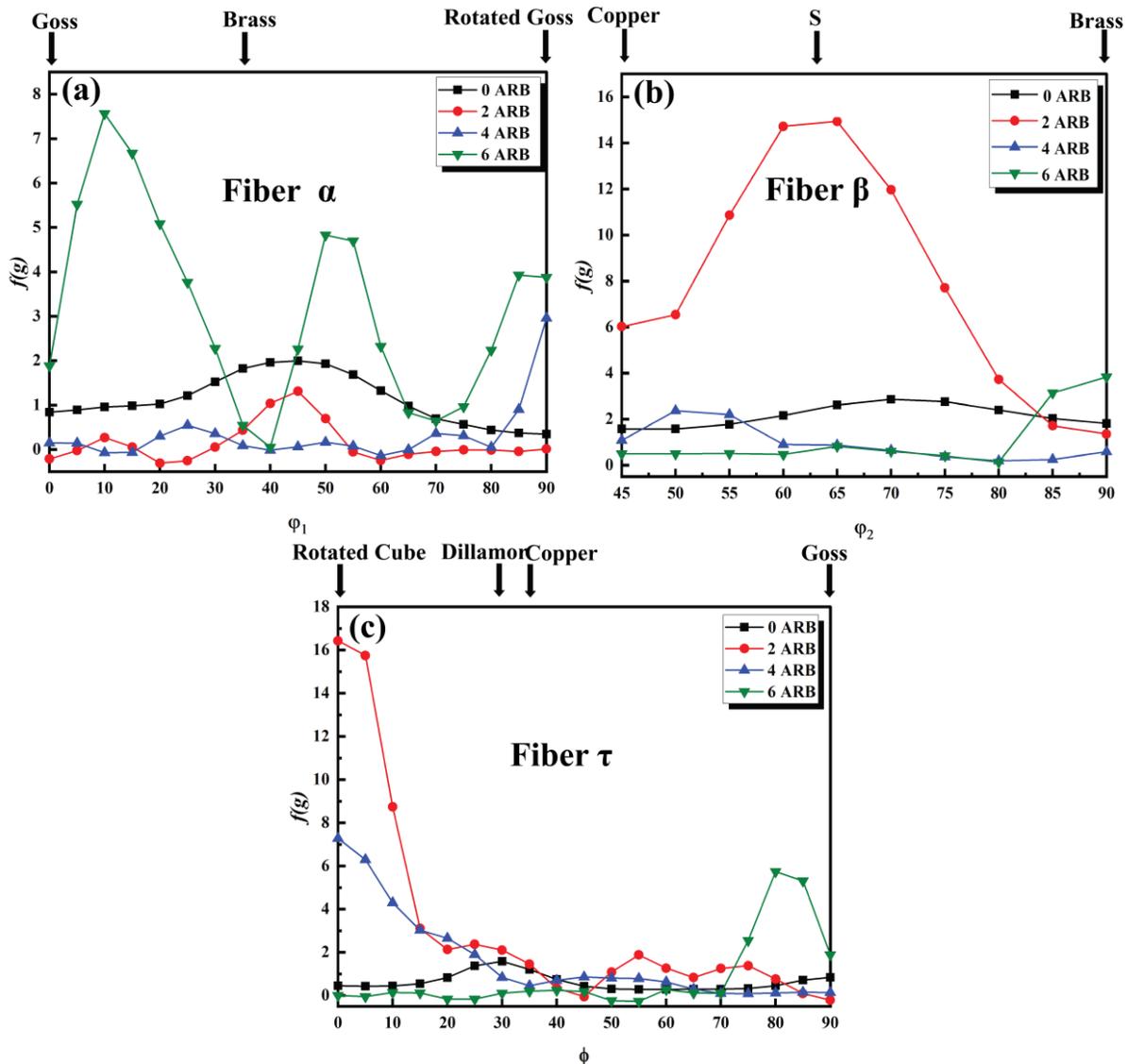


Figure III.A.18 : Variation de l'intensité dans les fibres α , β et τ de la couche d'Al 1050 après différents cycles ARB.

La figure III.A.19 présente l'évolution de la texture des composés intermétalliques Al_3Mg_2 et $Mg_{17}Al_{12}$ après différents cycles ARB en termes de figures de pôles recalculées (111) obtenues à partir de mesures EBSD. A cause de petit nombre de grains, une texture manifestement aléatoire est observée pour tous les cycles, ce qui indique que les phases intermétalliques n'ont pas réussi à développer des orientations cristallographiques préférentielles. C'est ce qu'ont déjà constaté par Wang *et al.*[48]. Cependant, en raison de la qualité médiocre des statistiques (très faible nombre de grains analysés), il est difficile de conclure à l'existence d'orientations de type Cuivre, Laiton, S, ou tout autre type. Lychagina *et al.* [49] ont étudié le nombre minimum de grains appropriés pour l'analyse quantitative de la texture. Dans ce travail [49], les auteurs ont rapporté que le nombre minimum de grains pour une moyenne conventionnelle est d'environ 8 000 pour la symétrie cubique et d'environ 10 000 pour la symétrie hexagonale. La présente étude concerne les intermétalliques dont les microstructures sont éloignées de ces nombres de grains.

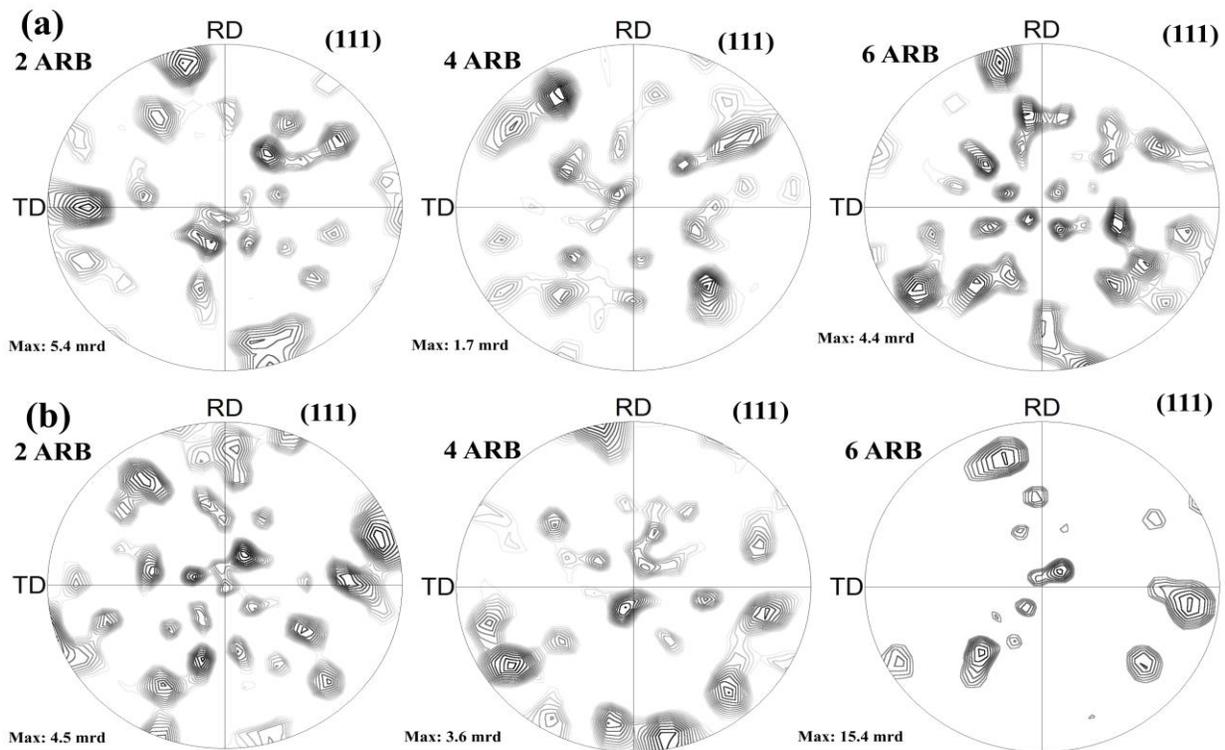


Figure III.A.19 : Figures de pôles (111) des composés intermétalliques après différents cycles ARB (a) Al_3Mg_2 , (b) $Mg_{17}Al_{12}$.

III.A.5 Évolutions des propriétés micromécaniques du composite laminé

Al1050/AZ31/Al1050 après ARB.

La technique nano-indentation a été utilisée pour étudier les interfaces du LMCs Al1050/AZ31/Al1050 après 2, 4 et 6 cycles ARB, comme le montrent les figures III.A.20. Un nombre important de dents de scie (sawtooths) a été observé dans les courbes de déplacement – charge d'Al₃Mg₂ et Mg₁₇Al₁₂, qui sont associées à la formation discontinue de microfissures [50,51]. Il est intéressant de noter que l'amplitude des dents de scie (Sawtooths) varie en fonction des cycles ARB des échantillons. L'amplitude des dents de scie des courbes des couches Al₃Mg₂ et Mg₁₇Al₁₂ est relativement la plus importante pour les échantillons de 4 cycles ARB. En effet, le déplacement de la couche Al₃Mg₂ est supérieur de 10 nm dans l'échantillon à 2 cycles ARB par rapport à l'échantillon à 4 cycles ARB et de 92 nm par rapport à l'échantillon à 6 cycles ARB sous la même charge (Figure III.A.21(a)). Le déplacement de la couche Mg₁₇Al₁₂ est supérieur de 28 nm dans l'échantillon à 2 cycles ARB par rapport à l'échantillon à 4 cycles ARB et de 33 nm par rapport à l'échantillon à 6 cycles ARB (Figure III.A.21 (b)). Dans les deux cas, cela est lié à sa propre dureté et à son module d'élasticité.

Par conséquent, la nano-dureté moyenne et le module d'élasticité des phases Al1050, Al₃Mg₂, Mg₁₇Al₁₂ et AZ31 des échantillons de 2, 4 et 6 cycles ARB ont été calculés séparément pour obtenir les données correspondantes comme indiqué dans la figure III.A.22. On constate que lorsque le nombre de cycles augmente, les valeurs moyennes de nano-dureté et le module d'élasticité des couches Al₃Mg₂ et Mg₁₇Al₁₂ augmentent également (Figure III.A.22(a)). Les valeurs moyennes de nano-dureté et le module d'élasticité de la couche Al₃Mg₂ sont toujours plus élevés que ceux de la couche Mg₁₇Al₁₂ après les différents cycles d'ARB. Ceci est fortement lié à la variation de l'épaisseur des couches Al₃Mg₂ et Mg₁₇Al₁₂ avec le nombre de cycles ARB (Figure III.A.4).

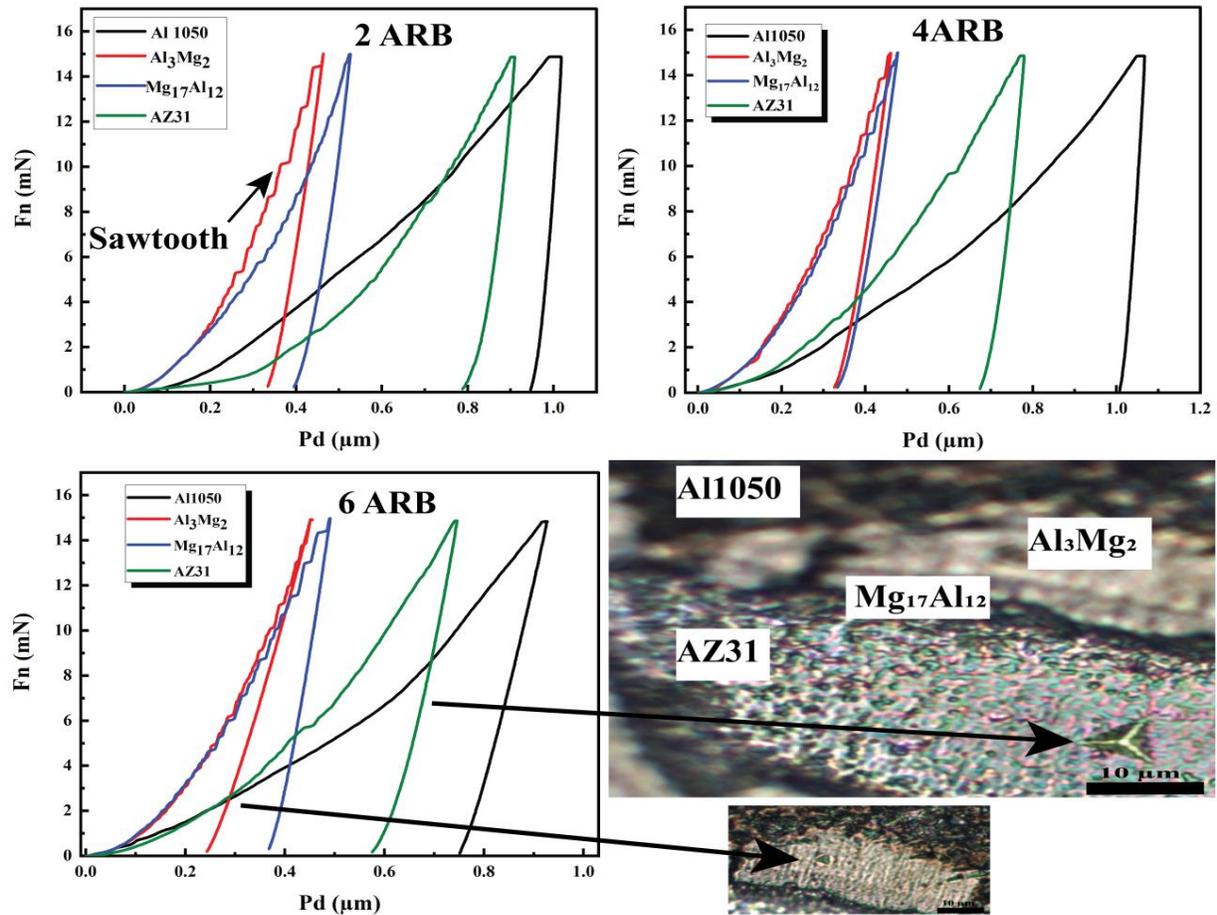


Figure III.A.20 : Courbe de déplacement - charge de toutes les phases après 2, 4 et 6 cycles ARB.

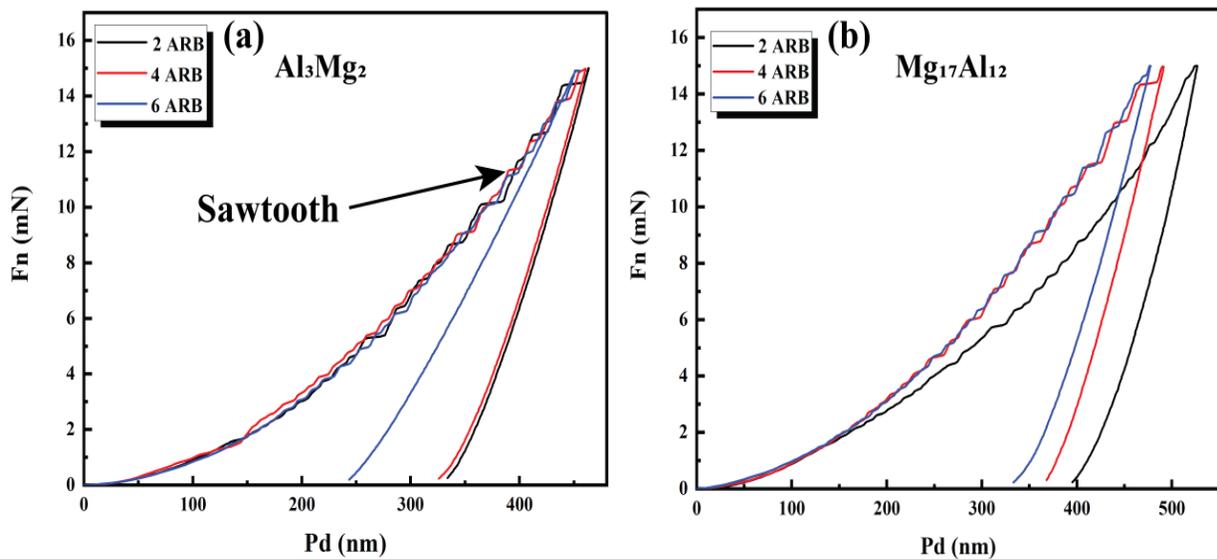


Figure III.A.21 : Courbe de déplacement - charge de (a) Al₃Mg₂, (b) Mg₁₇Al₁₂

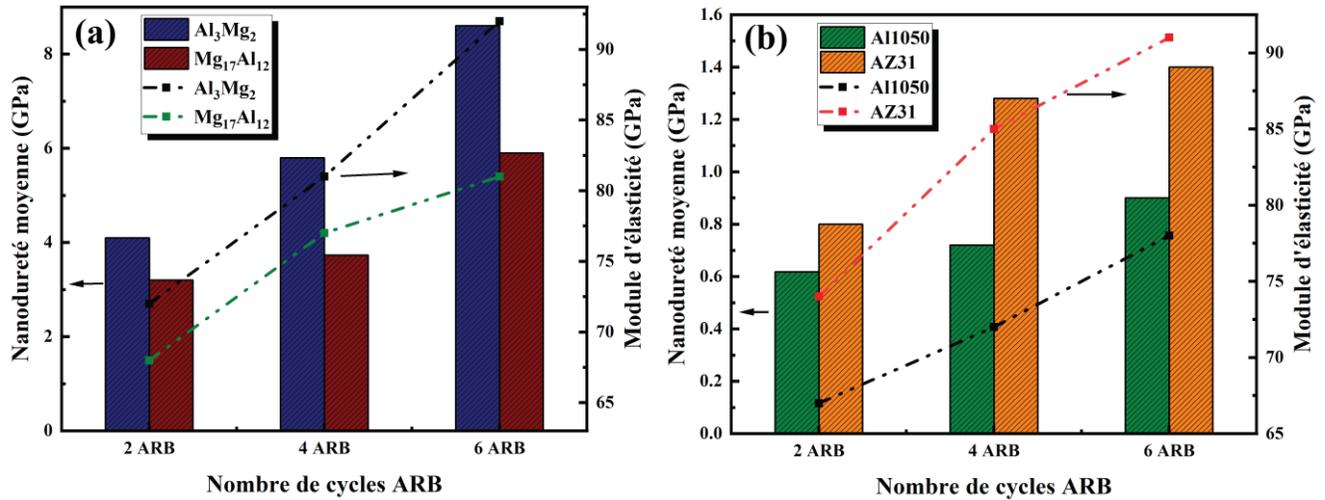


Figure III.A.22 : Histogramme de la nano-dureté et du module d'élasticité de : (a) Al₃Mg₂ et Mg₁₇Al₁₂, (b) Al1050 et AZ31

Par comparaison, les valeurs moyennes de nano-dureté et les modules élastiques des couches Al₃Mg₂ et Mg₁₇Al₁₂ de l'échantillon des 2 cycles ARB étaient relativement plus faibles, à 4,1 GPa, 3,2 GPa, 72 GPa et 68 GPa, respectivement. Après 6 cycles ARB, ces valeurs atteignent 8,6 GPa, 5,9 GPa, 92 GPa et 81 GPa. Cependant, la nano-dureté et les modules élastiques des IMCs sont toujours plus élevés que ceux de la matrice des deux côtés. Des études récentes ont montré qu'une nano-dureté et un module d'élasticité trop élevés peuvent entraîner des fissures, ce qui rend les IMC interraciaux susceptibles de se rompre de manière fragile. [50,52]. Pour les deux côtés de la matrice, les valeurs moyennes de nano-dureté et le module d'élasticité des couches d'Al1050 et d'AZ31 augmentent progressivement avec le nombre de cycles. Cependant, tous les résultats montrent un accord raisonnable avec les valeurs publiées (Tableau III.A.1).

Récemment, *Lei et al.* [53] ont fabriqué des plaques composites Mg/Al avec différents ratios d'épaisseur par le colaminage asymétrique à différentes températures. Les résultats montrent que les valeurs moyennes de nano-dureté et les modules élastiques des couches Al₃Mg₂ et Mg₁₇Al₁₂ atteignent respectivement 5 GPa, 4,5 GPa, 120GPa et 95 GPa, après 5 ratios d'épaisseur (TR5). *Kim et al.* [28] ont rapporté que pour les LMCs Mg/Al fabriqués par colaminage et recuit que quelques microfissures sont observées dans les régions du bord des marques d'indentation dans la couche Al₃Mg₂. Elles sont également présentes dans la couche Mg₁₇Al₁₂ de l'échantillon A6, mais leur nombre et leur longueur sont inférieurs à ceux de la couche Al₃Mg₂.

Tableau III.A.1 Propriétés mécaniques des phases IMC Al-Mg mesurées dans ce travail (**en gras**) comparées aux valeurs publiées pour Al-Mg, compilées à partir de la littérature

Propriétés	Al₃Mg₂	Mg₁₇Al₁₂
Nano- Dureté (GPa)	4.1 (2 ARB)	3.2 (2 ARB)
	5.8 (4 ARB)	3.73 (4 ARB)
	8.6 (6 ARB)	5.9 (6 ARB)
		5.18 [54]
	4.35 [55]	4.4 [55]
Le module d'élasticité (E /GPa)	72 (2 ARB)	68 (2 ARB)
	81 (4 ARB)	77 (4 ARB)
	92 (6 ARB)	81 (6 ARB)
	60 [56]	70 [56]
	53.8 [57]	71 [54]
	66.8 [55]	78 [58]
	49.8 [59]	79.6 [60]

III.A.6 Analyse de l'évolution des angles de désorientation des intermétalliques par rapport à la direction de laminage et la microdureté Vickers

III.A.6.1 Distribution des angles de désorientation

La figure III.A.23 (a-e) présente les distributions des angles de désorientation des intermétalliques par rapport à la direction de laminage mesurés sur les micrographies électroniques à balayage. Une compilation de ces distributions pour tous les cycles ARB est montrée en figure III.A.23(f). Cette figure montre que les angles varient effectivement entre 10° et 35° et que les distributions peuvent être représentées par une gaussienne centrée autour de 25-30°.

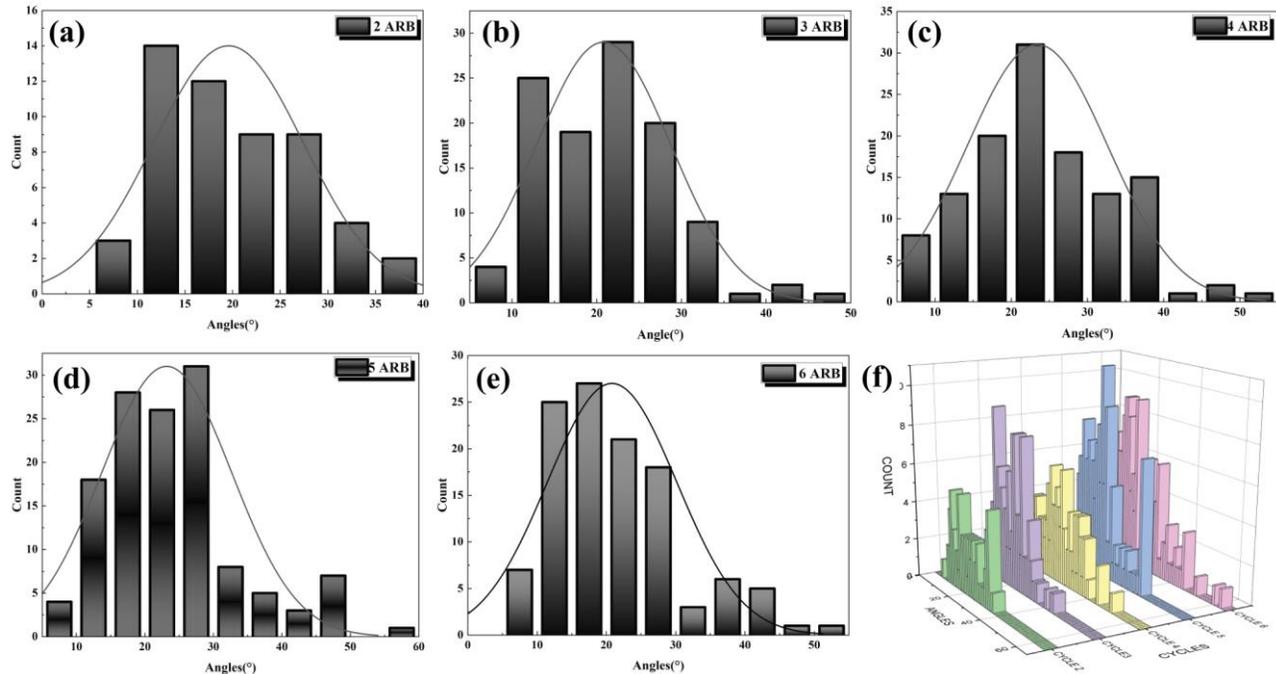


Figure III.A.23 Distribution et histogrammes des angles de désorientation des intermétalliques par rapport à la direction de laminage.

La figure III.A.24 illustre la variation de la microdureté du composite laminé Al1050/AZ31/Al1050 en fonction du nombre de cycles ARB. La valeur de la microdureté des alliages AZ31 à l'état reçu et l'Al1050 sont 54 et 42 Hv, respectivement. Il est bien connu que la dureté de la couche de Mg est beaucoup plus élevée que celle de la couche d'Al1050 après le processus ARB.

Une augmentation rapide de la microdureté peut être observée lors de l'augmentation du nombre de cycles ARB avec une valeur d'environ 118 Hv après 3 cycles d'ARB. Une telle augmentation accompagne souvent l'augmentation rapide de la densité de dislocations concomitante à l'affinage du grain. La microdureté semble atteindre un pic après 4 cycles ARB, puis semble diminuer après 5 cycles d'ARB. Ce comportement peut résulter du comportement d'adoucissement par la recristallisation dynamique.

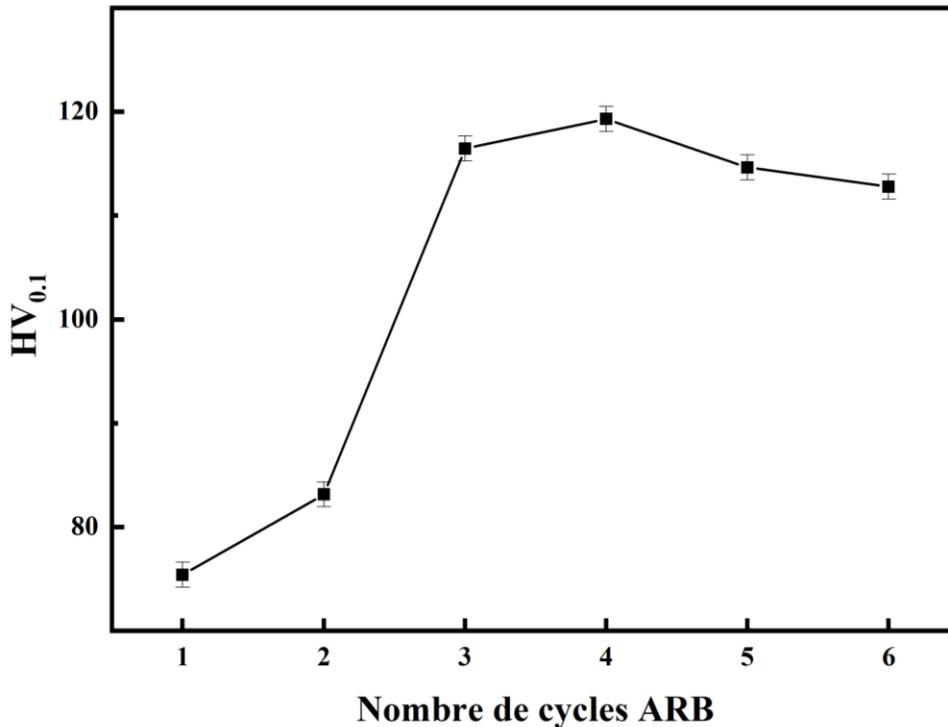


Figure III.A.24 : Evolution de la microdureté en fonction du nombre de cycles ARB.

III.A.6.1 Analyse de la variance et possibilité de corrélations systématiques entre les angles de désorientation, le nombre de cycles et la microdureté Vickers :

Les tableaux III.A.2 et 3 consignent les résultats des analyses ANOVA des angles de désorientations, microdureté Vickers, et nombres de cycles ARB. Le deuxième tableau (Tableau III.A.2) récapitule les valeurs des équations statistiques qui ont permis l'obtention du facteur F qui va nous permettre de déterminer si on a une dépendance ou non.

On note que le facteur F trouvé (0.165) est nettement inférieur à la valeur critique (9.276) tabulée dans le Tableau III.A.3 et la probabilité exacte calculée est de 0,913 *Conclusion du test statistique* : La valeur de P (probabilité) étant supérieure au seuil de signification 0,05 et le facteur F étant inférieure à la valeur critique on admet donc l'hypothèse nulle (pas de différence significative entre les nombres de cycles ARB). En effet, selon Wikipédia [https://fr.wikipedia.org/wiki/Hypoth%C3%A8se_nulle, vu le 23/06/2021], en statistiques, l'hypothèse nulle est une hypothèse postulant l'égalité entre des paramètres statistiques (généralement, la moyenne ou la variance) de deux échantillons dont elle fait l'hypothèse qu'ils sont pris sur des populations équivalentes. Elle est toujours testée contre une hypothèse alternative

CHAPITRE III : RESULTATS ET DISCUSSIONS

qui postule soit la différence des données (test bilatéral), soit une inégalité (plus petit que ou plus grand que) entre les données (test unilatéral).

Dans le cas de l'existence d'une différence significative entre les nombres de cycles une question surgit : Comment peut-on les classer ? Pour répondre à cette question le test de la différence vraiment significative de Tukey HSD (Honestly Significantly Different) peut être appliqué ? Ce n'est pas le cas de la présente car il n'existe pas de différence significative.

Tableau III.A.2

<i>RAPPORT DÉTAILLÉ</i>	<i>Nombre d'échantillons</i>	<i>Somme</i>	<i>Moyenne</i>	<i>Variance</i>
Cycle2	2	104.39	52.195	1915.18605
cycle3	2	139,869355	69,9346774	4327,35047
cycle4	2	143,642941	71,8214706	4506,52257
cycle5	2	139,287059	69,6435294	4049,36473
cycle6	2	141,724783	70,8623913	3515,84874

Tableau III.A.3: Analyse de variance

<i>Source des variations</i>	<i>Somme des carrés</i>	<i>Degré de liberté</i>	<i>Moyenne des carrés</i>	<i>F</i>	<i>Probabilité</i>	<i>Valeur critique pour F</i>
Lignes	5,82714692	3	1,94238231	0,16532455	0,91324847	9,27662815
Erreur	35,2467119	3	11,748904			
Total	16404,9137	7				

Références

- [1] H. Nie, W. Liang, H. Chen, F. Wang, T. Li, C. Chi, X. rong Li, *J. Alloys Compd.* 781 (2019) 696–701.
- [2] C. Luo, W. Liang, Z. Chen, J. Zhang, C. Chi, F. Yang, *Mater. Charact.* 84 (2013) 34–40.
- [3] K.S. Lee, Y.S. Lee, Y.N. Kwon, *Mater. Sci. Eng. A* 606 (2014) 205–213.
- [4] D. Yang, P. Cizek, P. Hodgson, C. Wen, *Scr. Mater.* 62 (2010) 321–324.
- [5] S. Ohsaki, S. Kato, N. Tsuji, T. Ohkubo, K. Hono, *Acta Mater.* 55 (2007) 2885–2895.
- [6] M. Chen, C. Hsieh, W. Wu, 13 (2007) 201–205.
- [7] A. Panteli, J.D. Robson, I. Brough, P.B. Prangnell, *Mater. Sci. Eng. A* 556 (2012) 31–42.
- [8] K. Song, X. Liu, Y. Ji, Y. Wei, J. Luo, F. Liu, D. Liu, Z. Zhong, *Met. Mater. Int.* (2022).
- [9] R.J. Hebert, J.H. Perepezko, *Scr. Mater.* 50 (2004) 807–812.
- [10] R. Zhang, V.L. Acoff, *Mater. Sci. Eng. A* 463 (2007) 67–73.
- [11] H. Mansouri, B. Eghbali, M. Afrand, *J. Manuf. Process.* 46 (2019) 298–303.
- [12] H. Nie, W. Liang, H. Chen, L. Zheng, C. Chi, X. Li, *Mater. Sci. Eng. A* 732 (2018) 6–13.
- [13] Y. Zhao, Y. Luo, Y. Lu, Y. He, X. Guo, S. Wang, H. Cui, Y. Zhang, Z. Wang, *Mater. Today Commun.* 26 (2021).
- [14] Y.S. Sato, S.H.C. Park, M. Michiuchi, H. Kokawa, *Scr. Mater.* 50 (2004) 1233–1236.
- [15] A. Gerlich, P. Su, T.H. North, *Sci. Technol. Weld. Join.* 10 (2005) 647–652.
- [16] B.B. Straumal, A.R. Kilmametov, Y. Ivanisenko, A.A. Mazilkin, O.A. Kogtenkova, L. Kurmanaeva, A. Korneva, P. Zie, B. Baretzky, *Int. J. Mater. Res.* 106 (2015) 657–664.
- [17] F. Haddadi, *Mater. Des.* 66 (2015) 459–472.
- [18] J. Yu, W. Zhou, G. Zhao, *J. Manuf. Process.* 65 (2021) 299–311.
- [19] B. Chen, Y. Wang, C. Xiao, M. Zhang, G. Ni, D. Li, *Mater. Sci. Technol. (United Kingdom)* 34 (2018) 703–711.
- [20] R. Beygi, H. Pouraliakbar, K. Torabi, G.E. B, V. Fallah, S.K. Kim, R. Shi, L.F.M. da Silva, *J. Manuf. Process.* 70 (2021) 152–162.
- [21] J. Stráská, M. Janeček, J. Gubicza, T. Krajňák, E.Y. Yoon, H.S. Kim, *Mater. Sci. Eng. A* 625 (2015) 98–106.
- [22] F. Guo, D. Zhang, X. Fan, L. Jiang, D. Yu, F. Pan, *J. Alloys Compd.* 663 (2016) 140–147.
- [23] T. Sakai, A. Belyakov, R. Kaibyshev, H. Miura, J.J. Jonas, *Prog. Mater. Sci.* 60 (2014) 130–207.
- [24] I. Basu, T. Al-Samman, *Acta Mater.* 67 (2014) 116–133.
- [25] P. Kumar, A. Madhup, P.R. Kalvala, S. Suwas, *Def. Technol.* 16 (2020) 514–519.
- [26] W. Habila, H. Azzeddine, B. Mehdi, K. Tirsatine, T. Baudin, A.L. Helbert, F. Brisset, S. Gautrot, M.H. Mathon, D. Bradai, *Mater. Charact.* 147 (2019) 242–252.
- [27] K.S. Lee, D.H. Yoon, H.K. Kim, Y.N. Kwon, Y.S. Lee, *Mater. Sci. Eng. A* 556 (2012) 319–330.
- [28] J.S. Kim, K.S. Lee, Y.N. Kwon, B.J. Lee, Y.W. Chang, S. Lee, *Mater. Sci. Eng. A* 628 (2015) 1–10.
- [29] P. Wang, Z. Chen, C. Hu, B. Li, J. Lin, Q. Liu, *Mater. Sci. Eng. A* 792 (2020) 139673.
- [30] Z. Zhu, R. Shi, A.D. Klarner, A.A. Luo, Y. Chen, *J. Magnes. Alloy.* 8 (2020) 578–586.
- [31] H. Wang, J. Ma, M. Yuan, G. Liang, X. Pei, Y. Miao, M. Li, *Mater. Today Commun.* 33 (2022) 1–9.
- [32] T. Mo, H. Xiao, B. Lin, W. Li, P. Wang, K. Ma, *Mater. Sci. Eng. A* 857 (2022).
- [33] C. Zhu, T. Harrington, G.T. Gray, K.S. Vecchio, *Acta Mater.* 155 (2018) 104–116.

- [34] H. Zhi, C. Zhang, S. Antonov, H. Yu, T. Guo, Y. Su, *Acta Mater.* 195 (2020) 371–382.
- [35] J. Lee, H. Jeong, *Mater. Lett.* 331 (2023) 133474.
- [36] Z. Li, Y.C. Lin, L. Zhang, J. Zheng, J. Zhao, R. Wang, Z. Jiang, *Int. J. Mech. Sci.* 231 (2022).
- [37] Z. Song, O. V. Magdysyukb, L. Tanga, T. Sparksa, B. Caia, *J. Alloys Compd.* 861 (2021) 158604.
- [38] A.P. Zhilyaev, I. Shakhova, A. Morozova, A. Belyakov, R. Kaibyshev, *Mater. Sci. Eng. A* 654 (2016) 131–142.
- [39] J.A. Muñoz, O.F. Higuera, J.A. Benito, D. Bradai, T. Khelfa, R.E. Bolmaro, A.M. Jorge, J.M. Cabrera, *Mater. Sci. Eng. A* 740–741 (2019) 108–120.
- [40] Y.N. Wang, J.C. Huang, *Mater. Chem. Phys.* 81 (2003) 11–26.
- [41] J. Hirsch, T. Al-Samman, *Acta Mater.* 61 (2013) 818–843.
- [42] H.T. Jeong, T.K. Ha, *J. Mater. Process. Technol.* 187–188 (2007) 559–561.
- [43] A.A. Roostaei, A. Zarei-Hanzaki, H.R. Abedi, M.R. Rokni, *Mater. Des.* 32 (2011) 2963–2968.
- [44] X. Huang, K. Suzuki, Y. Chino, M. Mabuchi, *J. Alloys Compd.* 537 (2012) 80–86.
- [45] H. Pirgazi, A. Akbarzadeh, *Mater. Sci. Technol.* 25 (2009) 625–631.
- [46] M. Raei, M.R. Toroghinejad, R. Jamaati, J.A. Szpunar, *Mater. Sci. Eng. A* 527 (2010) 7068–7073.
- [47] C.P. Heason, P.B. Prangnell, *Mater. Sci. Forum* 396–402 (2002) 429–434.
- [48] Y. Wang, P.B. Prangnell, *Mater. Charact.* 134 (2017) 84–95.
- [49] T.A. Lychagina, D.I. Nikolayev, *Phys. Status Solidi Appl. Res.* 195 (2003) 322–334.
- [50] Y. Liu, Y. Ma, W. Liu, Y. Huang, L. Wu, T. Wang, C. Liu, L. Yang, *Vacuum* 176 (2020).
- [51] J. Tang, L. Chen, G. Zhao, C. Zhang, L. Sun, *J. Magnes. Alloy.* 8 (2020) 654–666.
- [52] K.S. Lee, J.S. Kim, Y.M. Jo, S.E. Lee, J. Heo, Y.W. Chang, Y.S. Lee, *Mater. Charact.* 75 (2013) 138–149.
- [53] J. Lei, Z. Cai, W. Jia, C. Zhi, Y. Yuan, H. Xie, Z. Cai, W. Jia, C. Zhi, Y. Yuan, H. Pan, H. Xie, *Mater. Sci. Eng. A* 869 (2023) 144764.
- [54] P. Venkateswaran, Z.H. Xu, X. Li, A.P. Reynolds, *J. Mater. Sci.* 44 (2009) 4140–4147.
- [55] M.X. Zhang, H. Huang, K. Spencer, Y.N. Shi, *Surf. Coatings Technol.* 204 (2010) 2118–2122.
- [56] D. Dietrich, D. Nickel, M. Krause, T. Lampke, M.P. Coleman, V. Randle, *J. Mater. Sci.* 46 (2011) 357–364.
- [57] A. Radziszewska, S. Kaç, M. Feuerbacher, *Acta Phys. Pol. A* 117 (2010) 799–802.
- [58] H. Zhang, S.L. Shang, Y. Wang, A. Saengdeejing, L.Q. Chen, Z.K. Liu, *Acta Mater.* 58 (2010) 4012–4018.
- [59] M. Feuerbacher, C. Thomas, J. Makongo, S. Hoffmann, *Z. Krist.* 222 (2007) 259–288.
- [60] D.W. Zhou, J.S. Liu, S.H. Xu, P. Peng, *Phys. B Condens. Matter* 405 (2010) 2863–2868.

PARTIE B :

ETUDE DU COMPORTEMENT A LA CORROSION

D'UN LMC AL1050/AZ31/AL1050 APRES ARB

III.B.1 Introduction

Les alliages de magnésium présentent un grand intérêt pour les secteurs de la technologie aérospatiale, de l'automobile, de l'armée et de la biomédecine en raison de leur rapport résistance/poids élevé, leur forte teneur en magnésium et leur biocompatibilité [1]. Cependant, l'un des principaux problèmes des alliages de magnésium est leur comportement à la corrosion, ce qui limite leurs applications à grande échelle. À contrario, les alliages d'aluminium présentent une meilleure formabilité et une meilleure résistance à la corrosion par rapport aux alliages de magnésium [2].

En effet, la mauvaise résistance à la corrosion de plusieurs alliages de magnésium a été attribuée à deux raisons essentielles : i/ la présence d'impuretés ou de secondes phases qui entraînent une corrosion galvanique interne, ii/ le film d'hydroxyde à la surface du magnésium est nettement moins stable que les films passifs qui se forment à la surface de métaux tels que l'acier inoxydable ou l'aluminium [3].

Afin d'améliorer la résistance à la corrosion, plusieurs stratégies ont été proposées telles que l'ajout d'éléments d'addition [4] et les traitements de surface par revêtement anodique [5]. En outre, il a été constaté que les traitements thermomécaniques tels que l'extrusion [6], le laminage [7] ou les techniques récentes de déformation plastique sévère (SPD) [8] pouvaient être utilisés pour améliorer les propriétés mécaniques et contrôler le comportement à la corrosion de l'alliage à base de Mg. Simultanément. Les résultats publiés suggèrent que la réduction de la taille des grains à l'échelle micro ou nanométrique peut affecter les paramètres de rugosité de surface, qui, à leur tour, affectent la dégradation des alliages à base de Mg [8,9]. *Ren et al.* [10] ont signalé que le taux de corrosion du magnésium de haute pureté tel que forgé augmentait après un traitement thermique à 500 °C pendant 10 h, en raison de la croissance et du grossissement des grains. En effet, la résistance à la corrosion améliorée s'explique par la distribution uniforme, la diminution de la fraction volumique de la seconde phase et la réduction de la contrainte interne [11].

Dans ce chapitre, le comportement à la corrosion d'un système hybride multicouche Al1050/AZ31/Al1050 élaboré par la technique ARB jusqu'à six cycles a été étudié par la polarisation potentiodynamique, spectroscopie d'impédance électrochimique, microscopie électronique à balayage, spectroscopie Raman et diffraction des rayons X. La motivation majeure était d'étudier l'effet de la progression de la contrainte de déformation sur la corrosion des

composites multicouches Al1050/AZ31/Al1050 qui représente être un système galvanique assez compliqué.

III.B.2 Evolution des propriétés électrochimiques du composite laminé

Al1050/AZ31/Al1050 après ARB.

III.B.2.1 Potentiel en Circuit Ouvert (OCP)

Les courbes de potentiel en circuit ouvert (OCP) du composite laminé Al1050/AZ31/Al1050 jusqu'à six cycles ARB et de l'ARB Al pour un cycle dans une solution de NaCl à 3,5 % sont présentées dans la figure III.B.1. Comme il est défini, l'OCP est le potentiel de l'électrode auquel les taux de réaction cathodique et anodique sont en équilibre en l'absence d'un potentiel appliqué dans un environnement corrosif donné. Les matériaux métalliques à OCP plus nobles sont thermodynamiquement plus stables que les matériaux à OCP moins nobles.

Comme le montre bien la figure III.B.1(a), le potentiel de corrosion du composite laminé Al1050/AZ31/Al1050 était compris entre -1,390 V (pour N = 6) et -1,440 V (pour N= 2). Alors qu'il était de -0.648 V pour l'échantillon d'aluminium ARB comme le montre la figure III.B.1(b). Les résultats obtenus pour le composite laminé Al1050/AZ31/Al1050 sont assez proches de ceux de l'alliage AZ31 dans une solution de NaCl à 0,9% [12], mais un peu plus élevés (-1,59 par rapport à la SCE) que ceux de l'alliage AZ91 dans une solution de NaCl à 3,5% après le traitement par ECAP [13]. Le potentiel de corrosion de l'échantillon ARB Al pour un cycle est également proche des données tabulées dans la littérature. *Fattah-Alhosseini et al.* [14] ont trouvé -0.5 V vs. Ag/AgCl pour un alliage d'Al1050 à grain ultrafin (UFG) fabriqué par le procédé ARB dans une solution tampon de borate. *Abdulstaar et al.* [15] ont mis en évidence -0.708 V vs. SCE pour un alliage Al 1050 sévèrement déformé par rétreint rotatif immergé dans une solution de NaCl à 3.5%.

Pour les échantillons (N=1 à 3) traités par ARB, l'OCP a légèrement augmenté pendant les 100 premières secondes d'immersion et a ensuite chuté à des valeurs plus négatives. La faible augmentation du potentiel est associée à la formation d'une couche de corrosion (oxyde ou hydroxyde) sur les surfaces métalliques, tandis que la baisse du potentiel est liée à sa dissolution [13]. La pseudo-stabilité de l'OCP après un temps d'immersion plus long, obtenue par une immersion prolongée, suggère un état d'équilibre entre la dissolution anodique et la repassivation des couches d'oxyde, comme indiqué par [16]. En revanche, l'OCP pour N= 4-6 cycles ARB augmentent continuellement pendant environ 3000 secondes, après quoi ils semblent se stabiliser.

Cela suggère la formation et la croissance d'une couche de corrosion plus stable et plus protectrice que les échantillons du N=1-3 cycles ARB.

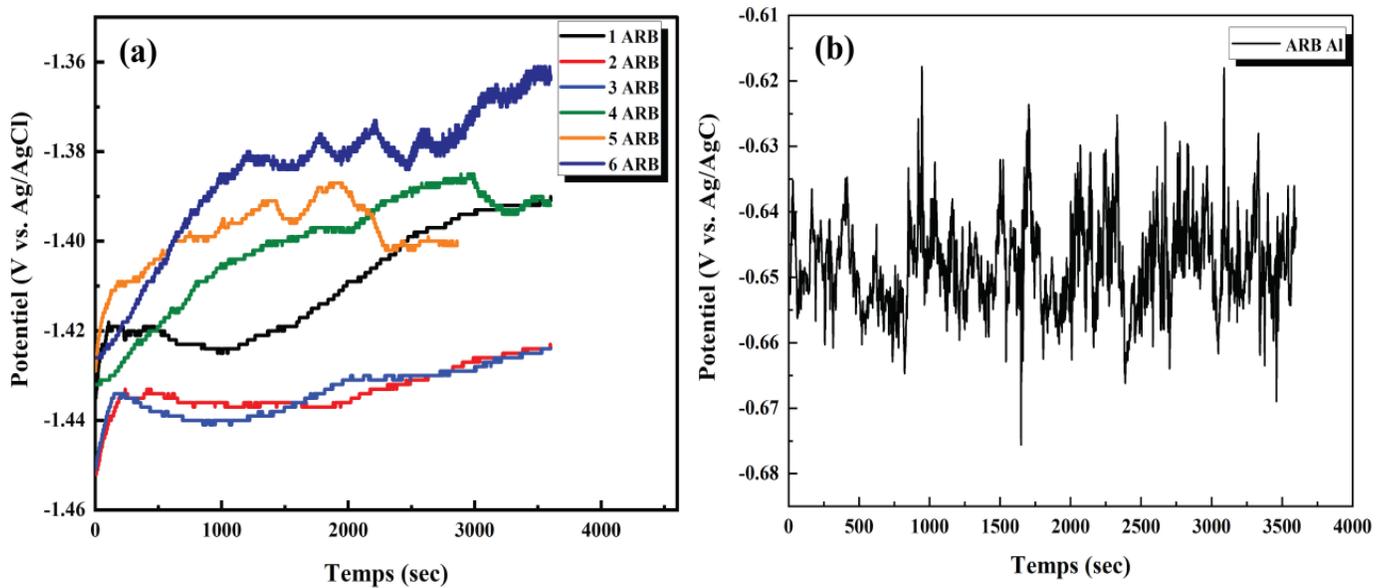


Figure III.B.1 : Courbes OCP dans une solution de NaCl à 3,5 % de (a) Al1050/AZ31/Al1050 jusqu'à six cycles ARB, (b) ARB Al après un cycle.

De plus, il est évident que les OCP du composite laminé traité par ARB sont plus positifs lorsque le nombre de cycles ARB augmente. Ce comportement suggère que les échantillons à grains fins présentent un comportement plus noble par rapport aux échantillons à grains grossiers. Cet ennoblissement semble plutôt inattendu puisque la solution de NaCl avait un pH initial de 6,5. Il convient de noter qu'en général, les alliages de magnésium sont stables dans les solutions de base, tandis que dans les milieux neutres et acides, ils se dissolvent à des taux élevés. Ceci est quelque peu différent des alliages d'aluminium qui sont normalement stables dans les milieux neutres mais instables dans les solutions basiques et acides.

Les courbes OCP montrent quelques fluctuations avec une amplitude accrue à un niveau de contrainte élevé (N=5-6) lors de l'immersion de l'alliage de magnésium dans une solution de NaCl, ce qui s'explique par le fait que l'équilibre à l'interface électrode/solution n'a pas été atteint ou par la faiblesse de la couche de corrosion.

III.B.2.2 Polarisation potentiodynamique (PDP)

Les courbes de polarisation potentiodynamique (PDP) ont été acquises en utilisant une solution de NaCl à 3,5 % en poids comme un électrolyte (Figure III.B.2). Le potentiel de corrosion (E_{corr}) et la densité du courant de corrosion (I_{corr}) des échantillons ont été déterminés par l'extrapolation des segments linéaires anodes et cathodes des courbes de Tafel (Tableau III.B. 1).

D'après la figure III.B.2, pour les six échantillons de composites laminés Al1050/AZ31/Al1050, il n'y a pas de changement important dans les formes générales des courbes de polarisation avec le nombre de cycles. Les branches anodiques et cathodiques (β_a et β_c) ne sont pas symétriques et leurs tendances sont très similaires. Cette similarité traduit une évolution identique de l'hydrogène dans la courbe de polarisation cathodique et la formation de Mg^{2+} en raison de la dissolution du Mg dans la courbe de polarisation anodique [17]. En effet, d'une part, le changement ne concerne que la vitesse de corrosion mais le mécanisme de corrosion a été préservé. D'autre part, la différence entre les formes des courbes de l'Al1050/AZ31/Al1050 et de l'ARB Al indique une différence notable dans la vitesse de corrosion et les mécanismes des réactions de corrosion.

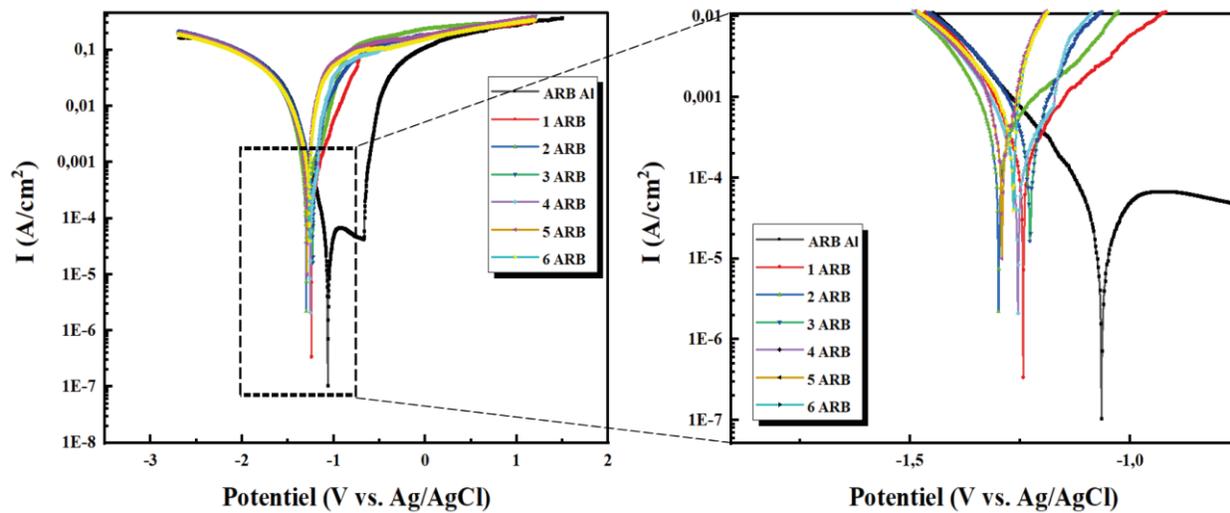


Figure III.B.2 : Courbes de polarisation potentiodynamique du composite laminé Al1050/AZ31/Al1050 jusqu'à six cycles ARB et ARB Al après un cycle dans une solution de NaCl 3.5 %

Comme le montre le tableau III.B.1, les potentiels de corrosion obtenus selon les courbes OCP (Figure III.B.1) ne sont pas similaires à ceux des courbes de PDP (Figure III.B.2). Ces

CHAPITRE III : RESULTATS ET DISCUSSIONS

différences peuvent résulter de la structure des films de corrosion et de leur composition chimique. Le phénomène de passivation se manifeste dans la courbe de polarisation de l'échantillon ARB Al mais ne se manifeste pas dans les échantillons du composite laminé. Le potentiel de piqûre, qui est très proche du potentiel de corrosion des alliages d'aluminium dans les solutions de NaCl (-0.62 V vs. SCE), était plus élevé que la valeur tabulée (-0.72 V vs. SCE) pour l'alliage Al1050 dans une solution aérée de NaCl 0.5M [18] et même plus élevée (-1.43 V vs. SCE) que celui des composites Al/20%Wn élaborés par le multi-colaminage croisé (CARB) jusqu'à un cycle et immergés dans une solution NaCl 3.5% [19].

Tableau III.B.1: Paramètres électrochimiques obtenues des courbes de polarisation potentiodynamique

Échantillons	E_{corr} (V)	I_{corr} ($\mu\text{A}/\text{cm}^2$)	Taux de corrosion (mm/y)
1ARB	-1,260	84,50	2,601
2ARB	-1,240	133,0	3,553
3ARB	-1,300	179,0	4,888
4ARB	-1,230	178,0	5,204
5ARB	-1,290	241,0	8,031
6ARB	-1,260	319,0	9,829
ARB Al	-1,070	13,9	0.371

Dans cette étude, d'après les résultats de la polarisation dynamique potentielle (PDP), E_{corr} et I_{corr} des composites laminés Al1050/AZ31/Al1050 étaient significativement plus faibles que ceux de l'Al ARB, ce qui indique qu'ils ont une résistance à la corrosion plus faible. Le taux de corrosion des échantillons du composite laminé augmente proportionnellement avec le nombre de cycles ARB. Les résultats obtenus montrent que l'alliage AZ31 à l'état reçu a une meilleure résistance à la corrosion qu'à l'état hyper déformé par ARB dans un composite laminé Al1050/AZ31/Al1050. Une telle augmentation systématique n'a pas été observée par *Peron et al.* [20] lors de leur étude de l'effet de l'ECAP sur la résistance à la corrosion de l'alliage AZ31. Les auteurs n'ont pas réussi à établir une corrélation claire entre le taux de corrosion et le nombre de passes de l'ECAP. D'après leur étude [20], une passe de l'ECAP a amélioré la résistance à la corrosion, et la résistance à la corrosion du deuxième et quatrième passe de l'ECAP était plus faible

CHAPITRE III : RESULTATS ET DISCUSSIONS

que celle du matériau initial. *Birbilis et al.* [21] ont également prouvé que le taux de corrosion diminue lorsque la taille du grain diminue dans le Mg pur traité par ECAP. Ces auteurs ont constaté que, généralement, l'amélioration des propriétés mécaniques après traitement par SPD devrait s'accompagner d'une augmentation de la vitesse de corrosion (la résistance mécanique et la résistance à la corrosion peuvent obéir à une proportionnalité inverse).

Dans les composites laminé Al1050/AZ31/Al1050, l'affinement des grains des couches AZ31 et Al1050 a été un peu différent. Dans ce travail, la microstructure des couches d'AZ31 était caractérisée par des grains fins et équiaxes. La taille moyenne des grains était d'environ 0,21 et 5.5 μm après 4 et 6 cycles ARB, respectivement. Par contre, la microstructure des couches d'Al1050 contenait des grains allongés parallèles à la direction du laminage. La valeur de l'espacement moyen des HAGB le long de la direction DN était $l = 4 \mu\text{m}$ après 5 cycles ARB.

Par ailleurs, l'effet dû à l'affinement des grains par une déformation plastique sévère sur la corrosion des alliages à base d'Al ou de Mg n'est pas clair. *Pu et al.* [22] ont prouvé que l'affinement du grain causé par le brunissage cryogénique, qui est une nouvelle technique de SPD, améliore la résistance à la corrosion de l'alliage à base de Mg. En revanche, *Song et al.* [23] ont constaté que la résistance à la corrosion a diminué en raison de l'affinement du grain du Mg pur et de l'alliage AZ91D après traitement par ECAP et immersion dans une solution aqueuse de NaCl à 3,5 % en masse. *Saikrishna et al.* [24] ont reporté que la décroissance dans la résistance à la corrosion après la déformation plastique d'un alliage à base de Mg pourrait être attribuée à un effet de la texture cristallographique et de grandes variations dans la taille des grains qui ont conduit à la non-uniformité des intensités galvaniques. Cette suggestion cadre bien avec les microstructures observées dans le présent travail.

Dans la figure III.B.3, l'évolution de la résistance à la corrosion (R_p) est représentée en fonction de l'inverse du carré de la taille des grains des couches d'AZ31. R_p a été estimé à partir de l'équation de *Stern-Geary* donnée par :

$$R_p = \frac{\beta_a \beta_c}{2.30(\beta_a + \beta_c) I_{\text{corr}}} \quad \text{(III.B.1)}$$

Où β_a et β_c sont respectivement, les pentes anodiques et cathodiques.

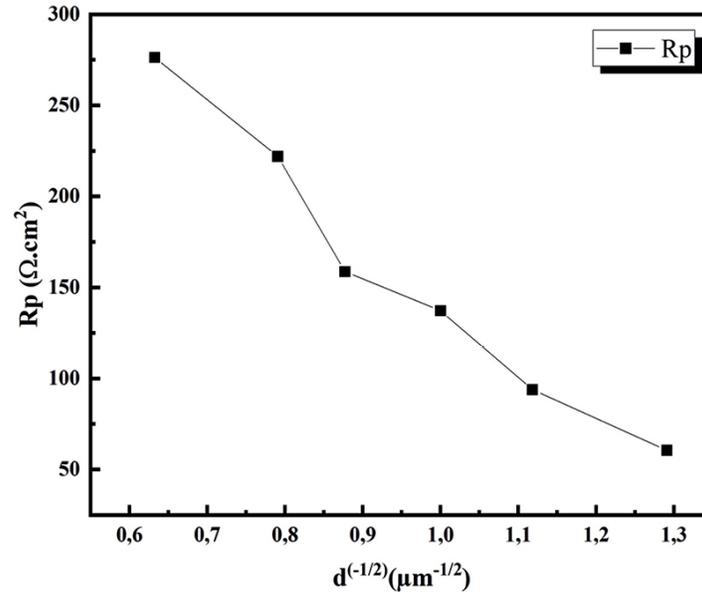


Figure III.B.3. Evolution de la résistance de polarisation (R_p) en fonction de l'inverse du carré de la taille des grains des couches d'AZ31.

L'évolution observée dans la figure III.B.3 peut très raisonnablement être décrite par l'équation suivante qui rappelle l'équation de Hall-Petch :

$$R_p = A + B d^{-1/2} \quad \text{(III.B.2)}$$

Où la constante A est dépendante du milieu corrosif et B est un facteur dépendant du matériau (composition chimique, conditions de déformation, etc...).

Des observations similaires ont été rapportées pour le Mg pur et les alliages de Mg et les résultats ont été compilés dans [25]. Il est important de noter que la compilation [25] a révélé des tendances contradictoires dans la relation entre la taille des grains et la résistance à la corrosion. Ces controverses peuvent être associées aux effets d'autres caractéristiques microstructurales qui peuvent être concomitantes au raffinement du grain et qui sont souvent sous-estimées.

III.B.2.3 Spectroscopie d'impédance électrochimique (EIS)

La figure III.B.4 illustre les courbes de Nyquist du composite laminé Al1050/AZ31/Al1050 jusqu'à 6 cycles ARB et ARB Al pour un cycle après 1h d'immersion en OCP dans une solution NaCl 3.5%. La figure III.B.4(a) indique que la forme des courbes des six échantillons est la même qui consiste en une grande boucle capacitive à haute fréquence et une boucle inductive à basse

CHAPITRE III : RESULTATS ET DISCUSSIONS

fréquence. Cette similarité confirme le fait que les six échantillons Al1050/AZ31/Al1050 présentent les mêmes mécanismes de corrosion.

Comme mentionné dans de nombreux travaux publiés, la boucle capacitive dans la région des hautes fréquences est souvent attribuée à une réaction de transfert de charge entre l'interface du métal et la solution et également à la formation d'un film de corrosion [12]. Il est important de noter qu'il n'y a pas de boucle inductive à basse fréquence sur les courbes de Nyquist de l'échantillon de référence ARB Al qui ne contient qu'une seule boucle capacitive associée à la formation d'un film passif comme le montre la figure III.B.4(b). Les courbes de Nyquist des alliages d'aluminium fabriqués par le procédé ARB présentent souvent des demi-cercles imparfaits. Comme indiqué précédemment, ces demi-cercles représentent une boucle capacitive ayant une constante de temps unique. Habituellement, le domaine des hautes fréquences est utilisé pour détecter les défauts de surface, tandis que ceux des moyennes et faibles fréquences permettent de détecter les processus dans les produits de corrosion à l'interface métal/produits de corrosion.

De plus, la différence dans les formes des courbes de Nyquist entre les composites laminés Al1050/AZ31/Al1050 jusqu'à 6 cycles et l'échantillon de référence ARB Al indique que le mécanisme et la vitesse de corrosion sont différents. A hautes fréquences des courbes de Nyquist des composites laminés Al1050/AZ31/Al1050, les boucles capacitives décrivent les caractéristiques de la double couche électrique, et le comportement inductif pourrait être associé à la formation de $Mg(OH)_2$ et/ou MgO et à la protection due à une adsorption de $Mg(OH)_{+ad}$ [26].

Même si toutes les publications sur les alliages à base de Mg présentent des données EIS avec une réponse inductive, la réponse inductive est souvent ignorée [15]. La boucle inductive peut disparaître lorsque la couche protectrice contre la corrosion se forme et recouvre la surface, comme le cas de l'échantillon de référence ARB Al. De plus, le diamètre des courbes de Nyquist représente la résistance à la corrosion de l'échantillon et son développement est dans l'ordre suivant : $1ARB > 2ARB > 3ARB > 4ARB > 5ARB > 6ARB$. Ces évolutions sont en accord avec les résultats des courbes de polarisation.

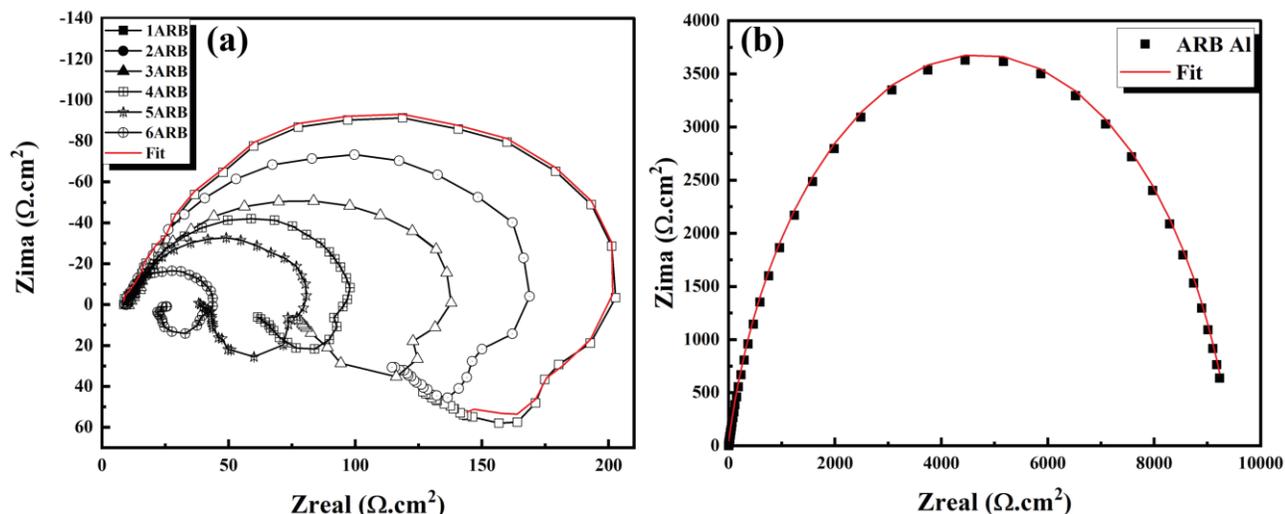


Figure III.B.4 Courbes de Nyquist dans la solution NaCl 3.5%, (a) Al1050/AZ3/Al 1050 jusqu'à six cycles ARB, (b) Al ARB après un cycle

Il est bien connu que la haute fréquence dans les courbes de Nyquist représente les propriétés des couches, qui sont en fait des films épais d'oxyde ou d'hydroxyde, tandis que la partie basse est associée aux processus faradiques qui se produisent dans le métal [27]. Rappelons que la présence d'un comportement capacitif médiocre à haute fréquence suggère un comportement plus corrosif. Il est important de noter l'absence de boucles capacitives dans la région des basses fréquences, qui est souvent une marque de la poursuite du processus faradique et principalement du processus de diffusion à l'interface métal/solution.

Srinivasan et al.[28] ont rapporté que la boucle inductive dépend de la taille et de l'intensité de la corrosion localisée à la surface de l'échantillon. De plus, *Song et al.*[29] ont reporté que les petites piqûres de corrosion ont abouti à une forte boucle d'induction, plus la corrosion est fortement localisée, plus la boucle d'induction sont moins prononcées.

Les valeurs d'impédance des composites laminés diminuent avec l'augmentation du nombre de cycles ARB. Afin d'analyser les mécanismes de corrosion de différents échantillons le circuit équivalent correspondant et le fit des données de la spectroscopie d'impédance électrochimique sont respectivement présentées en figure III.B.5 et tableau III.B.2. Dans le circuit équivalent, R_s est une résistance de solution de l'électrolyte entre les électrodes de référence et de travail.

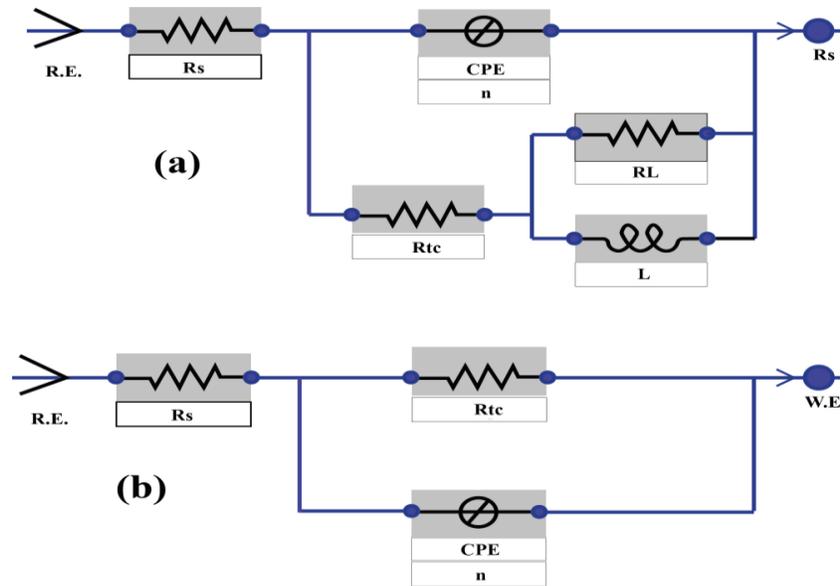


Figure III.B.5 Circuit électrique équivalent dans la solution NaCl 3.5% (a) du composite laminé Al1050/AZ31/Al1050, (b) de l'ARB Al.

En fait, les valeurs R_s dépendent de la conductivité du milieu d'essai et de la géométrie des cellules employées et ne contribue pas aux processus d'électrode [12]. R_{tc} est la résistance de transfert de charge du processus de corrosion [30]. Le paramètre CPE (pour Constant Phase Element) représente la capacité, dans le domaine des hautes fréquences, des produits de corrosion formés sur la surface de l'alliage. Le CPE est défini par deux valeurs, Y et n . Si $n = 1$, Le CPE sera identique à un condensateur et si $n = 0$, il représente une résistance. Il est à noter que le CPE est généralement utilisé au lieu de la capacité en cas de la non-homogénéité de la surface de l'échantillon. La boucle inductive à basse fréquence est décrite par l'élément d'inductance L tandis que les résistances d'inductance sont désignées par R_L . Dans la figure III.B.5(b), la R_{CPE} est la résistance de polarisation du film passif de la couche d'Al1050.

Le tableau III.B.2 montre que la valeur de R_s de six composites laminés évolue très légèrement ($R_s = 10,51 \pm 0,92 \Omega \text{ cm}^2$) confirmant qu'ils se comportent de manière similaire au contact de la solution de NaCl à 3,5%. La résistance de transfert de charge, R_{ct} , diminue de 106,5 à 12,8 $\Omega \cdot \text{cm}^2$ confirmant la chute de la résistance à la corrosion lors de l'augmentation de la déformation comme indiqué ci-dessus. Globalement, les valeurs de R_{ct} et CPE sont bien en accord avec la vitesse de corrosion estimée à partir des courbes de Tafel. La valeur de n montre une

CHAPITRE III : RESULTATS ET DISCUSSIONS

certaine dispersion autour d'une valeur moyenne de 0,940 et indique le caractère du condensateur non idéal.

Tableau III.B.2 : Les paramètres électrochimiques obtenus des fits des courbes du composite laminé.

Échantillons	R_s ($\Omega.cm^2$)	CPE ($F.cm^{-2}$)		R_{ct} ($\Omega.cm^2$)	C ($\times E-09 F.cm^{-2}$)	R_L ($\Omega.cm^2$)
		Y ($\times E-06$)	n			
1ARB	10.54	0.932	0.960	106.5	1.5	93.8
2ARB	10.05	3.023	0.871	98.6	1.61	83.7
3ARB	12.34	0.709	0.999	61.8	2.58	58.0
4ARB	10.06	1.62	0.792	53.1	3	47.9
5ARB	9.859	4.109	0.859	28.8	5.53	47.4
6ARB	10.26	1.011	0.976	11.8	0.13	22.9

Tableau III.B.3 : Les paramètres électrochimiques obtenus des fits des courbes de référence ARB Al

Echantillon	R_s ($\Omega.cm^2$)	R_{ct} ($\Omega.cm^2$)	CPE ($\Omega^{-1}.cm^{-2}.S^{-n}$)	n
ARB Al	2.95	9443.4	77.64e-6	0.835

III.B.2.4 Détermination de la capacité effective et de l'épaisseur de la couche de corrosion

Les quatre approches utilisées dans la littérature pour extraire la capacité effective (C_{eff}) à partir des paramètres de CPE sont résumées dans le tableau III.B.4, et sont : la distribution simple (assimilant C_{eff} à $Y0$), *Brug et al.*, *Hsu and Mansfeld* et *Hirschorn et al.* (Power-Law). Tous ces modèles sont bien décrits dans la littérature [31]. Les modèles ont été utilisés pour les paramètres CPE des composites Al1050/AZ31Al/1050 immergés dans une solution de NaCl à 3,5% en ne considérant que l'effet des couches AZ31 puisque la contribution majeure à la corrosion provenait de celles-ci. Les valeurs calculées de C_{eff} dans le présent travail sont presque inférieures à 10 μF

CHAPITRE III : RESULTATS ET DISCUSSIONS

cm² et donc CPE est la capacité du film d'hydroxyde et R_{ct} sa résistance [30] . C_{eff}, étonnamment, ne montre pas de corrélation systématique avec le niveau de déformation.

Dans le modèle de *Hirschorn et al.* [31] , ρ₀ représente la valeur limite de la résistivité à l'interface et a été prise approximativement égale à 10¹¹ Ω et g est une fonction de l'exposant n de CPE donné par :

$$g = 1 + 2.88 (1-n)^{2.375} \quad \text{(III.B.3)}$$

De plus, l'épaisseur de la couche de corrosion a été évaluée à l'aide de l'équation suivante [32] :

$$l_{\text{eff}} = \frac{\varepsilon \varepsilon_0}{C_{\text{eff}}} \quad \text{(III.B.4)}$$

Où ε est la constante diélectrique et ε₀ = 8,85 10⁻¹⁴ F/cm est la permittivité du vide.

Tableau III.B.4 : Modèles utilisés pour la détermination de la capacité effective à partir des résultats EIS.

Modèle [<i>MOHAMMADI et al.</i> [31]]	Équation
Distribution simple	C _{eff} = Y ₀
HSU- MANSFELD	C _{eff} = (Y ₀ ^{1/n} R _{ct} ¹⁻ⁿ) ^{1/n}
BRUG	C _{eff} = Y ₀ ^{1/n} (R _s ⁻¹ + R _{ct} ⁻¹) ^{n-1/n}
HIRSCHORN et al (Power-Law)	C _{eff} = g Y ₀ (ρ ₀ εε ₀) ^{n-1/n}

Les résultats calculés des propriétés optiques de Mg(OH)₂ par calcul « Primer Principe » ont montré que ce composé présente une faible propriété diélectrique avec ε = 2,86. La figure III.B.6 montre que l'épaisseur d'hydroxyde estimée via le modèle de Brug est la plus élevée et ne dépend pas systématiquement du nombre de cycles ARB. Nos résultats ne sont pas en accord avec les résultats de *Mohammadi et al.* [31] pour lesquels le modèle de Brug et la formule de *Hsu-Mansfeld* sous-estiment l'épaisseur du film passif d'oxyde sur les alliages d'acier inoxydable 304L, 316L et duplex 2205 alors que le modèle PL donne des valeurs plus précises.

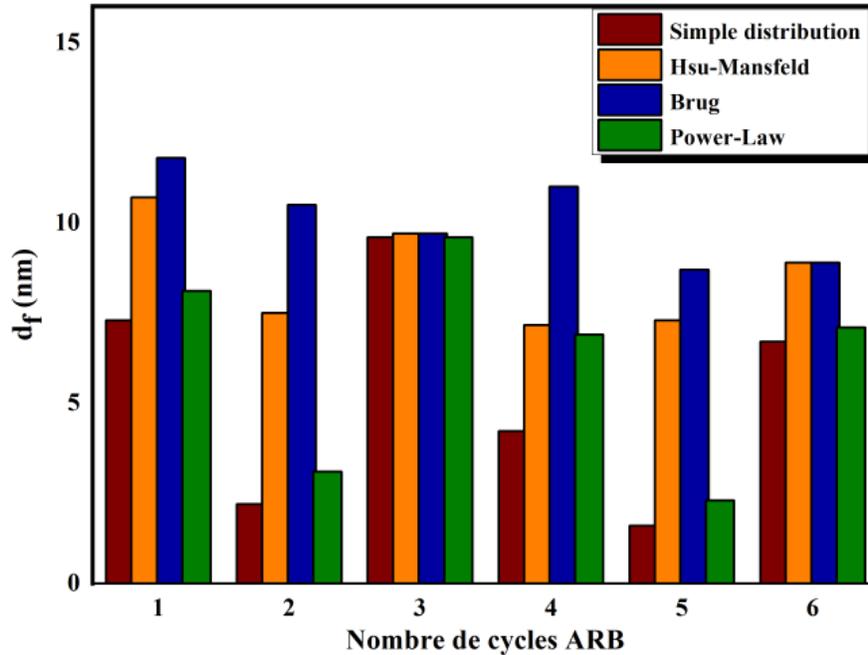


Figure III.B.6 : Épaisseur calculée des films d'hydroxyde formés sur les échantillons Al 1050/AZ3/ Al 1050 jusqu'à six cycles ARB dans une solution de NaCl à 3,5% en utilisant les modèles de distribution simple, HSU& MANSFELD, BRUG et POWER-LAW.

III.B.3 Morphologie et produit de la corrosion

III.B.3.1 Analyse des surfaces corrodées par MEB/EDS.

La figure III.B.7 montre la morphologie de la surface avec les cartes EDS correspondantes du composite laminé Al1050/AZ31/Al1050. Une microstructure de corrosion complexe est généralement observée dans les alliages de Mg et d'Al [1]. Comme prévu, les attaques de corrosion se sont produites dans les couches d'alliage AZ31 et il n'y a pas de corrosion importante (mise en évidence par la couleur blanche) de l'Al1050, ce qui confirme sa passivation en présence de l'alliage AZ31 dans une solution de NaCl.

La figure III.B.8(a) montre que les couches de l'AZ31 sont totalement recouvertes par le produit de la corrosion alors que celles de l'Al1050 semblent relativement exemptes et que les petites quantités de phase noire sont vraisemblablement le résidu d'une contamination. Une corrosion massive non localisée (souvent appelée uniforme ou générale) a été observée sur toute la surface des couches d'AZ31. Les surfaces présentent un aspect fissuré dû à la déshydratation de

CHAPITRE III : RESULTATS ET DISCUSSIONS

la couche après séchage à l'air chaud et sous le vide de la chambre MEB comme déjà observé dans [33].

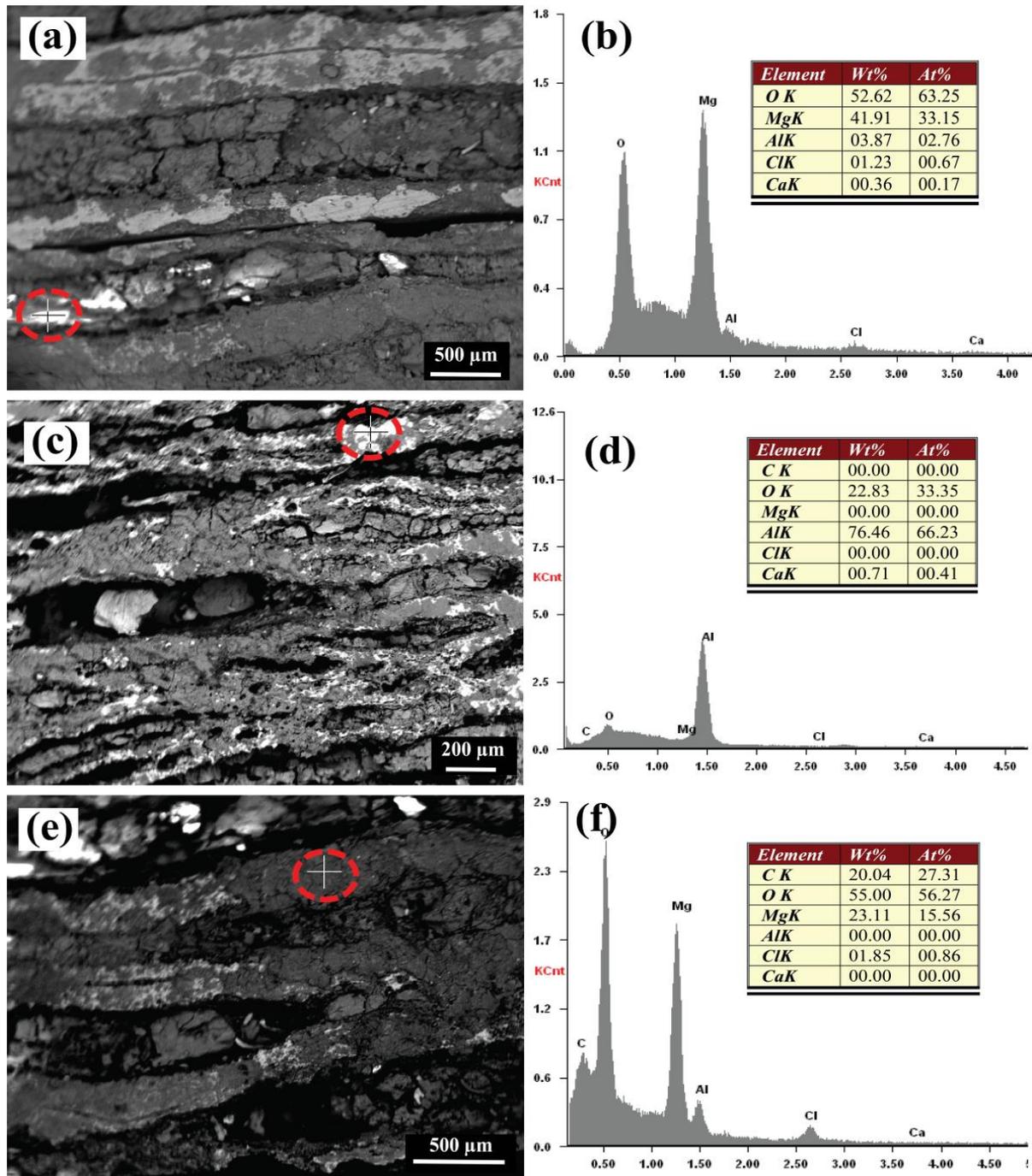


Figure III.B.7 : Micrographie MEB et analyse EDS ponctuelle (indiquée par les flèches) montrent la morphologie et les produits de corrosion de composite laminé dans une solution de NaCl à 3,5%.

CHAPITRE III : RESULTATS ET DISCUSSIONS

Malheureusement, la corrosion localisée était plutôt difficile à mettre en évidence dans la présente étude, même en examinant de près de nombreuses zones. Comme il est connu, la corrosion se manifeste selon différents types telles que la corrosion galvanique, la corrosion cavernueuse, la corrosion par piqûres, la corrosion inter granulaire et la corrosion sous-contrainte. Parmi ces types de corrosions, la corrosion cavernueuse et la corrosion inter granulaire ont toutefois été rarement signalées sur les alliages de Mg. La corrosion par piqûres est très probablement présente, car c'est l'un des types de corrosion les plus courants de l'alliage Mg. Au niveau microscopique, la corrosion micro-galvanique peut aussi certainement se produire dans les alliages de Mg entre la matrice α -Mg avec un potentiel de circuit ouvert (OCP) plus faible et les secondes phases où les composés intermétalliques (IMCs) ayant un OCP plus élevé.

La matrice de Mg est anodique et est corrodée de manière préférentielle. Toutefois, il est intéressant de noter que la piqûre n'a pas pu se produire car elle est affectée par la taille des grains. Les grains affinés comme ceux obtenus dans les couches AZ31 devraient faire passer la morphologie de la corrosion par piqûre à la corrosion uniforme. La corrosion d'AZ31 révèle une morphologie typiquement filiforme ("Filiform-like") qui se propage dans tout l'échantillon après un laminage à froid dans une solution de NaCl à 0,9 % [12] et après Twin Roll Cast dans une solution de NaCl à 3,5 % [34]. La taille des grains obtenue après le laminage à froid était proche de 8 μm et la distribution de gros grains, ainsi que de grains α -Mg dendritiques fins (60-600 μm) possédant des formes irrégulières a caractérisé l'alliage TRC AZ31. Très vraisemblablement, la différence de taille des grains pourrait jouer en faveur de son occurrence contrairement à la présente étude.

En plus de l'hydroxyde $\text{Mg}(\text{OH})_2$ et de l'oxyde Al_2O_3 souvent mis en évidence par l'analyse EDS dans les figures III.B.7(a),(b) et les figures III.B.7(c) et (d), respectivement, un autre produit de corrosion inhabituel est identifié par l'analyse EDS ponctuelle (indiquée par le symbole (+)) dans les figures III.B.7(e) et (f) qui doit être considéré comme l'oxalate de magnésium (Mg_2CO_4). Mais un examen approfondi de la littérature a montré que ce composé n'a jamais été mis en évidence dans des alliages corrodés à base de Mg. Il devrait plutôt être indexé comme MgCO_3 . Il est très commun que le MgCO_3 soit détecté dans le film de surface des alliages à base de Mg [35].

Une telle divergence peut être due à une mauvaise acquisition des données en raison de la convolution du signal des points analysés. *Godard et al.* [36] ont montré la présence de Nesquehonite ($\text{MgCO}_3 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$) et de Lansfordite ($\text{MgCO}_3 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$) qui ne semblent pas être présents

dans l'étude actuelle. Les produits de corrosion des alliages à base de Mg contiennent principalement du carbonate de magnésium et la dominante est l'hydromagnésite [37]. De plus, des oxydes mixtes tels que $Mg_xAl_y(OH)_z \cdot nH_2O$ peuvent également exister dans l'alliage AZ91 en solution NaCl comme indiqué par *Ambat et al.* [38].

III.B.3.2 Analyse des surfaces corrodées par spectroscopie Raman

Pour obtenir des informations plus approfondies des produits de corrosion, un spectre Raman a été acquis après le passage du test potentiodynamique comme indiqué à la figure III.B.8. Dans ce travail, les spectres Raman ont été collectés pour les composites laminés Al1050/AZ31/Al1050 fabriqués par ARB jusqu'à 6 cycles et l'échantillon de référence Al ARB pour 1 cycle ARB. Rappelons que seuls les spectres Raman des composites multicouches N=3 et 5 ARBed sont présentés puisque les spectres des échantillons restants sont très similaires.

Selon la base de données du projet RRUFF et d'autres rapports [39], les pics Raman autour de 448 et 282 (vibrations du réseau, A_{1g} , et E_g respectivement) et 3652 cm^{-1} pourraient correspondre au composé $Mg(OH)_2$. En effet, la présence de Brucite microcristalline a été mise en évidence par un fort pic à 3652 cm^{-1} correspondant au mode de stretching A_{1g} O-H dans les cristaux de $Mg(OH)_2$. Le pic près de 3400 cm^{-1} devrait correspondre au pic caractéristique de H_2O [40]. Compte tenu du fait que les échantillons ont été exposés à l'environnement ambiant pendant l'analyse des spectres Raman, le pic à 3400 cm^{-1} pourrait apparaître en raison de la forte hygroscopicité des chlorures de magnésium [41].

Dans le magnésium et ses alliages immergés dans une solution de NaCl, différents composés contenant des chlorures tels que $(Mg(OH)_2) \cdot MgCl_2$, $MgCl_2 \cdot 6H_2O$, et $Mg_3(OH)_5Cl \cdot 4H_2O$ ont été identifiés par spectroscopie d'électrons Auger et/ou spectroscopie infrarouge, et diffraction des rayons X [42]. La présence de Cl s'étendant à la région interne du film de base MgO a été fréquemment rapportée [39]. Certains auteurs ont constaté que la présence de carbonates sur la couche superficielle, soit après une exposition à l'air humide, soit après une corrosion aqueuse [43].

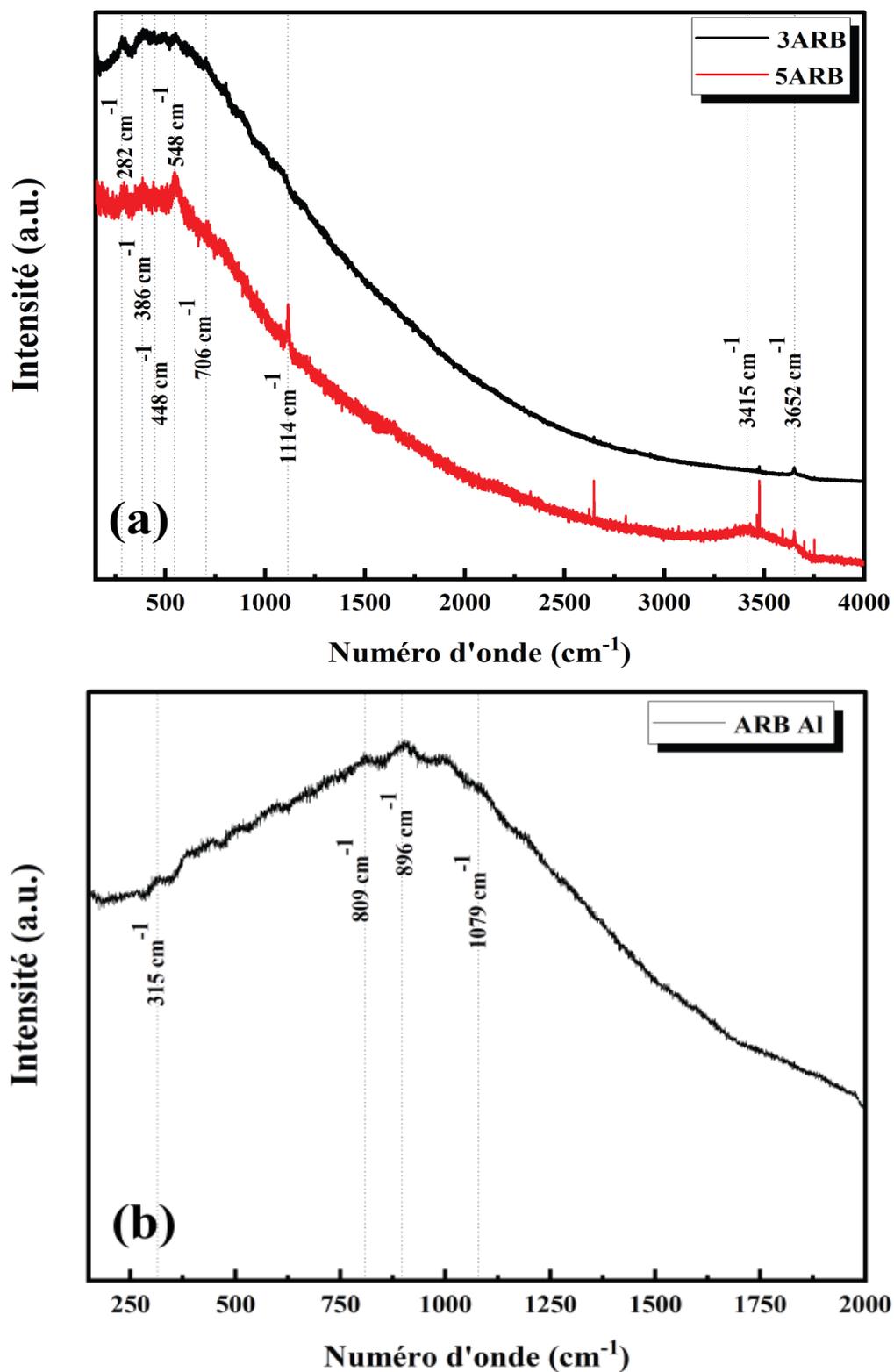


Figure III.B.8 : Spectres de Raman après le test électrochimique, (a) du composite laminé, (b) ARB Al.

Il est intéressant de noter qu'aucun des produits de corrosion cités ci-dessus n'est mis en évidence dans la spectroscopie Raman, à part $\text{Mg}(\text{OH})_2$ et H_2O . De plus, dans la présente étude, il est évident que n'importe quel pic peut être attribué à n'importe quel composé contenant du chlorure. En outre, dans les échantillons du composite laminé jusqu'à N=3 et 5 échantillons, certains pics caractéristiques et pertinents près de 382 et 1114 cm^{-1} n'ont pas été clairement indexés.

L'existence d'une couche passive à la surface de l'alliage d'aluminium sous forme d'oxydes est une caractéristique de ce type d'alliage (Figure III.B.8(b)). Le faible pic près de 1079 cm^{-1} représente le mode de flexion Raman de Al-O [44]. Le pic à 896 cm^{-1} correspond au groupe $\text{Al}(\text{OH})_3$ [45] tandis que celui près de 809 cm^{-1} correspond au groupe vibrant γ - $\text{Al}(\text{OH})_3$ ou à l' AlO_4 condensé [45]. Il a été suggéré que le film de surface sur l'aluminium était constitué d'une couche duplex, la couche interne étant une couche amorphe compacte et la couche externe étant une couche perméable d'oxyde hydraté [1]. La vibration des groupes α - AlOOH a un signal caractéristique près de 315 cm^{-1} [46]. Dans cette étude, aucun pic n'a pu être attribué à Al_2O_3 .

III.B.3.3 Analyse des surfaces corrodées par diffraction des rayons X

La figure III.B.9 montre les diagrammes DRX des composites laminés Al1050/AZ31/Al1050 et ARB Al sur le plan DL-DN avant et après les tests électrochimiques, respectivement. Avant les tests électrochimiques, à partir du deuxième cycle ARB (Figure III.B.9(a)), de nouveaux pics sont apparus à côté des phases de matrice Mg et Al, où ces pics ont été indexés comme appartenant aux composés intermétalliques Al_3Mg_2 et $\text{Mg}_{17}\text{Al}_{12}$ en raison de l'interdiffusion des espèces Al et Mg entre les couches Al1050 et AZ31 [47]. Le mécanisme de formation de ces composés intermétalliques a été bien discuté [47].

La figure III.B.9. (b) montre les diagrammes DRX de Al1050/AZ31/Al1050 après le test électrochimique où un nouveau pic de faible intensité est représenté autour de $2\theta = 18.77^\circ$, ce pic correspond au produit de corrosion principal qui est le composé d'hydroxyde de magnésium $\text{Mg}(\text{OH})_2$ pour tous les cycles ARB. *Frühwirth et al.* [48] ont supposé que l'hydroxyde fût plus stable que l'oxyde de magnésium MgO. L'oxyde de magnésium peut former de l'hydroxyde lorsqu'il réagit lentement avec l'eau, c'est pour cette raison que les films d'oxyde deviennent éventuellement hydratés [1].

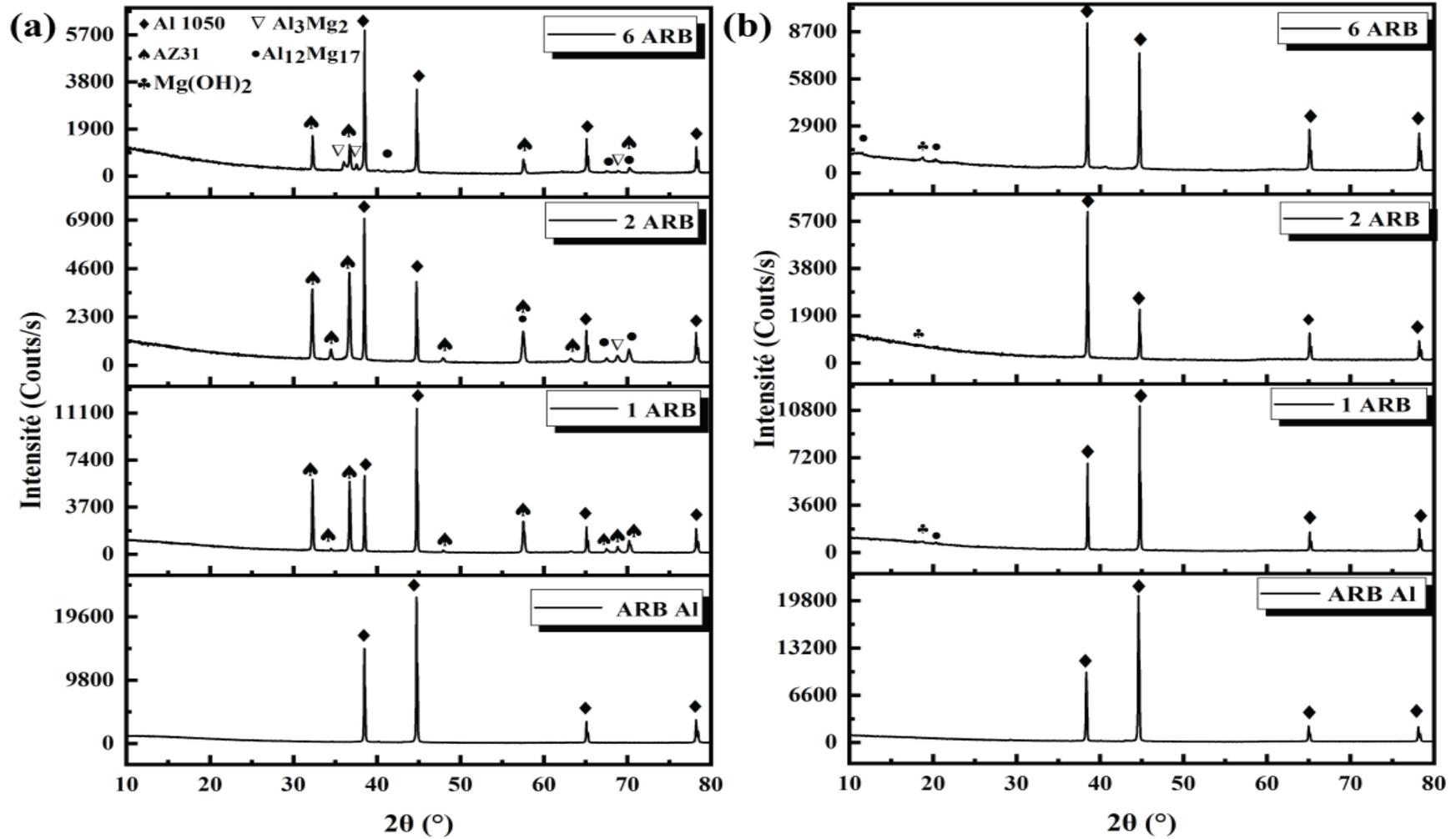


Figure III.B.9 : Diffractogrammes des rayons X du composite laminé dans la solution NaCl 3.5%, (a) avant les tests électrochimique, (b) après les tests électrochimique

CHAPITRE III : RESULTATS ET DISCUSSIONS

Il bien connu, la réaction globale de corrosion qui conduit à la formation d'hydroxyde, est donnée comme suit [42] :



Cette réaction globale peut être définie comme le total des réactions partielles indiquées ci-dessous :



Selon *Song et al.* [29], seule une petite quantité d'aluminium s'est dissoute, sans aucune preuve de dissolution du zinc, alors que le Mg était le principal élément qui s'est dissous dans la solution pendant la dissolution anodique sur les alliages Mg-Al-Zn. Les résultats obtenus indiquent que les quatre réactions mentionnées précédemment sont toujours responsables des processus de corrosion impliqués pour le composite laminé Al1050/AZ31/Al1050 lors des tests électrochimiques.

De plus, l'effet du $\text{Mg}_{17}\text{Al}_{12}$ sur la résistance à la corrosion a été discutée dans la littérature [29]. En fait, la résistance à la corrosion des alliages de magnésium n'est affectée qu'après la formation de particules de seconde phase. *Nisancioglu et al.* [49] ont constaté que dans une solution de chlorure, le composé $\text{Mg}_{17}\text{Al}_{12}$ était inerte par rapport à la matrice de magnésium environnante, tandis que *Peberé et al.* [50] ont prouvé que la résistance à la corrosion des alliages Mg-Al était déterminée par la distribution de la phase $\text{Mg}_{17}\text{Al}_{12}$. Dans ce travail, les composés intermétalliques $\text{Mg}_{17}\text{Al}_{12}$ et Al_3Mg_2 ont été clairement mis en évidence par DRX dans les composites laminés Al1050/AZ31/Al1050.

Les présents résultats consignés dans les différentes figures, nous laissent supposer que le comportement à la corrosion du composite laminé Al1050/AZ31/Al1050 devrait être gouverné de manière plausible par les couches AZ31, ce qui sera le centre de la discussion à suivre. En effet, les courbes de Tafel et les diagrammes de Nyquist sont très similaires à ceux obtenus pour d'autres

CHAPITRE III : RESULTATS ET DISCUSSIONS

alliages à base de Mg dans une solution de NaCl [12,13,33]. Tout autre effet de phase Al₁₀Mg₅ ou les composés intermétalliques Mg₁₇Al₁₂ et Al₃Mg₂ est manifestement absent. *Bahmani et al.* [51] ont pertinemment proposé une analyse quantitative de la corrélation entre les taux de corrosion et les paramètres microstructuraux combinés. Ils ont clairement identifié les principaux paramètres qui peuvent influencer le comportement de la corrosion des alliages de Mg, telles que la composition de l'alliage, la taille des grains et les particules de seconde phase.

Dans la présente étude, les deux derniers paramètres peuvent être actifs car la taille des grains diminue en fonction du nombre de cycle ARB, tandis que la fraction volumique des composés intermétalliques augmente. En effet, Dans ce travail, la taille des grains de la couche AZ31 atteint 0.21µm après 4 cycles ARB. Aussi un travail publié [47] a montré que la taille moyenne des grains de la couche d'AZ31 a été affinée jusqu'à 0,8 µm après 5 cycles ARB alors qu'elle était de 18 µm dans le matériau à l'état reçu. Cet affinement peut être considéré comme drastique dans la mesure où il induit un changement considérable dans le comportement de la corrosion.

Évidemment, la fraction volumique des intermétalliques augmente avec le nombre de cycles ARB. En effet, le nombre de couches est de 96 après six cycles ARB alors qu'il n'était que de six après le deuxième cycle. Le paramètre essentiel pour toute étude de la corrosion est la surface disponible (la couverture de surface relative ou spécifique des différentes phases).

En effet, la proportion de surface des intermétalliques a été grossièrement estimée par le rapport de leur surface totale sur la surface totale de l'échantillon représentée par les images SEM. La proportion de surface était presque inférieure à 5 % même pour N = 6 cycles ARB. *Liu et al.* [52] ont rapporté que selon la composition des intermétalliques et la configuration dans la microstructure, les intermétalliques peuvent jouer un rôle important dans l'accélération de la corrosion de la matrice riche en Mg par un couplage galvanique ou en constituant une barrière et diminuer la corrosion globale. L'effet de barrière de l'intermétallique Mg₁₇Al₁₂ au cours de la corrosion des alliages Mg-Al peut être dû à la grande différence de la cinétique de corrosion entre Mg et Mg₁₇Al₁₂ (550 µA/cm² contre 5,3 µA/cm², respectivement) [53].

Peberé et al. [50] ont proposé que la résistance à la corrosion des alliages Mg-Al soit déterminée par la distribution de la phase Mg₁₇Al₁₂. Il faut noter que dans les alliages Mg-Al, la précipitation intermétallique comme l'AZ91, la précipitation de la phase Mg₁₇Al₁₂ est fondamentalement aléatoire à l'intérieur des grains ou aux joints de grains, tandis que dans les

CHAPITRE III : RESULTATS ET DISCUSSIONS

composites laminés, elle doit être considérée comme non aléatoire, c'est-à-dire organisée comme une sous-structure en couches contenant des phases $Mg_{17}Al_{12}$ et Al_3Mg_2 alternées duplexes avec une connectivité élevée. Une telle forme de germination et de croissance des phases intermétalliques contrôlée par la diffusion est assimilée à la précipitation discontinue souvent observée dans les alliages AZ91 ainsi qu'au type continu qui apparaît à l'intérieur des grains. Ces différences morphologiques peuvent jouer un rôle dans le comportement de corrosion des intermétalliques.

De manière intéressante, *Kim et al* [54] ont prouvé que la précipitation discontinue de la phase $Mg_{17}Al_{12}$ avec une connectivité élevée le long des joints de grains fonctionnait comme une barrière à la corrosion. Ces auteurs ont également analysé la corrélation entre la précipitation discontinue de la phase $Mg_{17}Al_{12}$ et la vitesse de corrosion d'un alliage AZ91 dans une solution de NaCl à 3,5%. Manifestement, ils en ont conclu qu'une fraction surfacique inférieure à 5 % devait donner lieu à un mécanisme de barrière plutôt qu'à un mécanisme galvanique.

Le potentiel de corrosion (E_{corr}) et le potentiel de piqûration (E_{pit}) de la phase Al_3Mg_2 dans une solution de NaCl 0.01, 0.1, et 0.6 M de pH 6 ont été analysés par [55,56]. Le résultat a montré clairement que l' Al_3Mg_2 a une certaine passivité dans la solution de NaCl et que le potentiel de piqûration (E_{pit}) diminue avec l'augmentation de l'activité du chlorure [56]. Dans ce travail, on peut affirmer de manière plausible que $Mg_{17}Al_{12}$ et Al_3Mg_2 sont inactifs dans une solution de NaCl à 3,5 % et que, par conséquent, le seul élément corrosif est la couche AZ31.

Il faut aussi noter que la relation entre la texture et la vitesse de corrosion pour les alliages à base de magnésium n'est pas bien claire. De nombreux chercheurs [57,58] ont prouvé que la résistance à la corrosion de la texture basale est la plus importante. Cela peut s'expliquer par le fait que les plans basaux sont les plans les moins réactifs thermodynamiquement dans le Mg, ayant l'énergie de liaison la plus élevée et l'énergie de surface la plus faible [59]. L'effet de la texture sur la vitesse de corrosion a été classé par *Bahmani et al.* [51] comme un sous-effet de la composition de l'alliage.

Dans les matériaux à structure HCP, les plans basaux, suivis des plans prismatiques II puis des plans prismatiques I, présentent la plus grande résistance à la corrosion par rapport aux autres plans intermédiaires. En outre, il a été signalé que toute désorientation par rapport aux plans de remplissage, y compris les plans basaux et prismatiques, augmente la vitesse de corrosion. Dans ce travail, pendant le traitement ARB, une forte texture basale typique (0002) a été observée dans

CHAPITRE III : RESULTATS ET DISCUSSIONS

les couches AZ31. Une influence énorme de la texture sur la corrosion doit être exclue de manière crédible.

Références

- [1] M. Esmaily, J.E. Svensson, S. Fajardo, N. Birbilis, G.S. Frankel, S. Virtanen, R. Arrabal, S. Thomas, L.G. Johansson, *Prog. Mater. Sci.* 89 (2017) 92–193.
- [2] S.H. Ghaderi, A. Mori, K. Hokamoto, *Mater. Trans.* 49 (2008) 1142–1147.
- [3] G.L. Makar, J. Kruger, *J. Electrochem. Soc.* 137 (1990) 414–421.
- [4] M.B. Kannan, R.K.S. Raman, *Biomaterials* 29 (2008) 2306–2314.
- [5] S. Jafari, R.K. Singh Raman, *Mater. Sci. Eng. C* 78 (2017) 278–287.
- [6] H. Xu, X. Zhang, K. Zhang, Y. Shi, J. Ren, *J. Rare Earths* 34 (2016) 315–327.
- [7] X.N. Gu, X.H. Xie, N. Li, Y.F. Zheng, L. Qin, *Acta Biomater.* 8 (2012) 2360–2374.
- [8] B. Ratna Sunil, T.S. Sampath Kumar, U. Chakkingal, V. Nandakumar, M. Doble, V. Devi Prasad, M. Raghunath, *Mater. Sci. Eng. C* 59 (2016) 356–367.
- [9] B.R. Sunil, A.A. Kumar, T.S. Sampath Kumar, U. Chakkingal, *Mater. Sci. Eng. C* 33 (2013) 1607–1615.
- [10] R. Yibin, H. Jingjing, Y. Ke, Z. Bingchun, Y.Z.W. Hao, *Acta Metall. Sin. -Chinese Ed.* 41 (2005) 1228–1232.
- [11] X.N. Gu, S.S. Li, X.M. Li, Y.B. Fan, *Front. Mater. Sci.* 8 (2014) 200–218.
- [12] A. Hanna, A. Dakhouché, K. Tirsatine, A. Sari, Y. Khereddine, D. Bradai, H. Azzeddine, *Metall. Res. Technol.* 116 (2019).
- [13] Y. Cubides, A. Ivan Karayan, M.W. Vaughan, I. Karaman, H. Castaneda, *Materialia* 13 (2020).
- [14] A. Fattah-Alhosseini, S.O. Gashti, *Acta Metall. Sin. (English Lett.)* 28 (2015) 1222–1229.
- [15] M. Abdulstaar, M. Mhaede, L. Wagner, M. Wollmann, *Mater. Des.* 57 (2014) 325–329.
- [16] J. Li, Q. Jiang, H. Sun, Y. Li, *Eval. Program Plann.* (2016).
- [17] Y. Zhang, J. Li, J. Li, *J. Alloys Compd.* 728 (2017) 37–46.
- [18] E. Van Gheem, J. Vereecken, C. Le Pen, *J. Appl. Electrochem.* 32 (2002) 1193–1200.
- [19] N. Kalantarrashidi, M. Alizadeh, *J. Manuf. Process.* 56 (2020) 1050–1058.
- [20] M. Peron, P.C. Skaret, A. Fabrizi, A. Varone, R. Montanari, H.J. Roven, P. Ferro, F. Berto, J. Torgersen, *J. Mech. Behav. Biomed. Mater.* 106 (2020).
- [21] N. Birbilis, K.D. Ralston, S. Virtanen, H.L. Fraser, C.H.J. Davies, *Corros. Eng. Sci. Technol.* 45 (2010) 224–231.
- [22] Z. Pu, S. Yang, G.L. Song, O.W. Dillon, D.A. Puleo, I.S. Jawahir, *Scr. Mater.* 65 (2011) 520–523.
- [23] D. Song, A. Bin Ma, J. Jiang, P. Lin, D. Yang, J. Fan, *Corros. Sci.* 52 (2010) 481–490.

- [24] N. Saikrishna, G. Pradeep Kumar Reddy, B. Munirathinam, B. Ratna Sunil, J. Magnes. Alloy. 4 (2016) 68–76.
- [25] D. Ahmadkhaniha, M. Fedel, M.H. Sohi, F. Deflorian, Surf. Eng. Appl. Electrochem. 53 (2017) 439–448.
- [26] G. Song, A. Atrens, D. St. John, X. Wu, J. Nairn, Corros. Sci. 39 (1997) 1981–2004.
- [27] D.C. Montgomery, Design and Analysis of Experiments, John Wiley & Sons Ltd, New Delhi, 2007.
- [28] A. Srinivasan, C. Blawert, Y. Huang, C.L. Mendis, K.U. Kainer, N. Hort, J. Magnes. Alloy. 2 (2014) 245–256.
- [29] G.L. Song, A. Atrens, Adv. Eng. Mater. 1 (1999) 11–33.
- [30] S. Al Bacha, I. Aubert, O. Devos, M. Zakhour, M. Nakhl, J. Bobet, Int. J. Hydrogen Energy 45 (2020) 15805–15813.
- [31] M. Mohammadi, L. Choudhary, I.M. Gadala, A. Alfantazi, J. OfThe Electrochem. Soc. 163 (2016) 883–894.
- [32] B. Hirschorn, M.E. Orazem, B. Tribollet, V. Vivier, I. Frateur, M. Musiani, Electrochim. Acta 55 (2010) 6218–6227.
- [33] S. Tighiouaret, A. Hanna, H. Azzeddine, L. Rabahi, A. Dakhouche, F. Brisset, A.L. Helbert, T. Baudin, D. Bradai, Mater. Chem. Phys. 267 (2021) 124598.
- [34] S. Pawar, T.J.A. Slater, T.L. Burnett, X. Zhou, G.M. Scamans, Z. Fan, G.E. Thompson, P.J. Withers, Acta Mater. 133 (2017) 90–99.
- [35] V. Fournier, P. Marcus, I. Olefjord, Surf. Interface Anal. 1 (2002) 494–497.
- [36] H.P. Godard, W.B. Jepson, M.R. Bothwell, R.L. Lane, The Corrosion of Light Metals, Wiley and Sons, New York, New York, 1967.
- [37] M. Jönsson, D. Persson, D. Thierry, Corros. Sci. 49 (2007) 1540–1558.
- [38] R. Ambat, N.N. Aung, W. Zhou, J. Appl. Electrochem. 30 (2000) 865–874.
- [39] B. Lafuente, R.T. Downs, H. Yang, N. Stone, Highlights Mineral. Crystallogr. (2016) 1–29.
- [40] M. Baumgartner, R.J. Bakker, Chem. Geol. 275 (2010) 58–66.
- [41] H. Sun, J.Q. Wang, Z. Tang, Y. Liu, C. Wang, Corros. Sci. 164 (2020) 108350.
- [42] G. L. Makar, J. Kruger, Int. Mater. Rev. 38 (1993) 138–153.
- [43] L. Wang, B.P. Zhang, T. Shinohara, Mater. Des. 31 (2010) 857–863.
- [44] N.J. Cherepy, T.H. Shen, A.P. Esposito, T.M. Tillotson, J. Colloid Interface Sci. 282 (2005) 80–86.
- [45] A. Lekatou, A.K. Sfikas, A.E. Karantzalis, D. Sioulas, Corros. Sci. 63 (2012) 193–209.
- [46] J. Lv, H. Luo, J. Xie, Appl. Surf. Sci. 273 (2013) 192–198.

- [47] W. Habila, H. Azzeddine, B. Mehdi, K. Tirsatine, T. Baudin, A.L. Helbert, F. Brisset, S. Gautrot, M.H. Mathon, D. Bradai, *Mater. Charact.* 147 (2019) 242–252.
- [48] O. Fruhwirth, G.W. Herzog, I. Hollerer, A. Rachetti, *Surf. Technol.* 24 (1985) 301–317.
- [49] J.E. Lein, T.K. Aune, K. Ni, 45 (1989) 741–748.
- [50] N. Pebere, C. Riera, F. Dabosi, *Electrochim. Acta* 35 (1990) 555–561.
- [51] A. Bahmani, S. Arthanari, K.S. Shin, *J. Magnes. Alloy.* 8 (2020) 134–149.
- [52] M. Liu, S. Zanna, H. Ardelean, I. Frateur, P. Schmutz, G. Song, A. Atrens, P. Marcus, *Corros. Sci.* 51 (2009) 1115–1127.
- [53] E. Alasmar, I. Aubert, A. Durand, M. Nakhl, M. Zakhour, *Int. J. Hydrogen Energy* 15 (2018).
- [54] J. Kim, J. Byeon, *Mater. Charact.* 174 (2021) 111015.
- [55] R.G. Buchheit, A. Cu, *J. Electrochem. Soc.* 142 (1995) 3994–3996.
- [56] Y. Li, J.M. Cai, L. Guan, G. Wang, *Appl. Surf. Sci.* 467–468 (2019) 619–633.
- [57] G.L. Song, *Jom* 64 (2012) 671–679.
- [58] G.L. Song, Z. Xu, *Corros. Sci.* 63 (2012) 100–112.
- [59] A. Atrens, G.L. Song, M. Liu, Z. Shi, F. Cao, M.S. Dargusch, *Adv. Eng. Mater.* 17 (2015) 400–453.

CONCLUSION GENERALE

CONCLUSION GENERALE

Conclusion Générale

Le composite multicouche Al 1050/AZ31/Al 1050 fabriqué par le procédé ARB à 400 °C, jusqu'à 6 cycles, a conduit à la formation de composés intermétalliques Al_3Mg_2 et $\text{Mg}_{17}\text{Al}_{12}$.

Les résultats expérimentaux sur l'évolution de la microstructure, la texture, les propriétés mécaniques et l'analyse du comportement à la corrosion dans une solution de NaCl à 3,5 % (% en poids), permettent de tirer les conclusions suivantes :

- Les analyses EBSD et DRX ont confirmé la formation des phases $\text{Mg}_{17}\text{Al}_{12}$ et Al_3Mg_2 près de l'interface de liaison peu après $N=2$ cycles.
- La croissance des intermétalliques polycristallines était colonnaire et normale à l'interface
- Les composés intermétalliques Al_3Mg_2 et $\text{Mg}_{17}\text{Al}_{12}$ ont la même taille moyenne de grain (1,0 μm) après 2 cycles ARB. Après 4 cycles ARB, l'affinement des grains de la phase Al_3Mg_2 est plus de 4 fois supérieure à celui de $\text{Mg}_{17}\text{Al}_{12}$. La taille moyenne des grains d' Al_3Mg_2 et de $\text{Mg}_{17}\text{Al}_{12}$ atteint respectivement 0,2 et 0,9 μm .
- La densité de dislocations obéit à cette hiérarchie après $N=4$ et 6 cycles ARB $\rho_{\text{Al}_3\text{Mg}_2} > \rho_{\text{AZ31}} > \rho_{\text{Al 1050}} \sim \rho_{\text{Mg}_{17}\text{Al}_{12}}$ et il a été démontré que les IMC Al_3Mg_2 emmagasinent plus de dislocations.
- Une forte texture basale typique (0002) a été observée dans la couche AZ31 et une faible texture de laminage a été observée dans la couche Al1050 avec la domination de la composante Cube tourné $\{001\} \langle 110 \rangle$.
- Les composés intermétalliques $\text{Mg}_{17}\text{Al}_{12}$ et Al_3Mg_2 sont caractérisés par une texture
- Les courbes de polarisation potentiodynamique et la spectroscopie d'impédance électrochimique ont montré que la vitesse de corrosion était fortement affectée par le niveau de déformation de l'ARB.
- Une vitesse de corrosion plus élevée et une résistance à la polarisation réduite ont été mises en évidence par rapport à l'échantillon multicouche Al1050/Al1050/Al1050.
- Les couches d'AZ31 semblaient dominer le processus de corrosion.
- Les analyses Raman et XRD confirment la présence du principal produit de corrosion, le $\text{Mg}(\text{OH})_2$, et l'absence de tout chlorure tel que $(\text{Mg}(\text{OH})_2) \cdot \text{MgCl}_2$.

Perspectives

Il serait intéressant de poursuivre cette étude par des analyses des interfaces de composites multicouches par microscopie électronique en transmission et par spectroscopie d'annihilation des positrons afin de caractériser le rôle des défauts (dislocations, lacunes et leurs amas dans la cohésion par soudage).

La sensibilité élevée des positrons aux régions de puits de potentiel attractif peut être employée pour déterminer la nature et la densité des défauts structurels intrinsèques (lacunes ou leurs amas, dislocations, joints de grains, cavités) et extrinsèques (précipités). L'annihilation de positrons est également utilisée pour déterminer le volume libre des défauts, leur concentration et distribution spatiale.

Aussi, il serait très intéressant d'étudier l'effet de recuit sur tous les propriétés (microstructure, texture, propriétés mécanique, corrosion,..).

Effectuer un recuit anisotherme par DSC pour suivre l'évolution des transformations de phase (restauration, recristallisation statique,..) et leur cinétique par les différents modèles et pouvoir comparer entre eux.

Effectuer d'autres essais mécaniques tels que l'essai de traction, la flexion trois points, les essais de fatigue, etc., afin d'obtenir les informations nécessaires sur les propriétés mécaniques requises.

Il est intéressant de noter que les tests potentiodynamique classiques ou les tests EIS ne peuvent pas fournir d'informations précises sur le comportement spécifique de la corrosion des composés intermétalliques Al_3Mg_2 et $Mg_{17}Al_{12}$. Afin de mieux comprendre le rôle des particules intermétalliques Al_3Mg_2 et $Mg_{17}Al_{12}$ dans la corrosion des composites laminés A1050/AZ31/A1050, il convient d'utiliser un ensemble de techniques fines et appropriées telles que la technique de l'électrode vibrante à balayage (SVET), le XPS, le ToF-SIMS, la microscopie électrochimique à balayage (SECM), la microscopie confocale à balayage laser (CLSM), la tomographie 3D, la spectroscopie Auger, la spectroscopie d'impédance électrochimique locale (SIEL), et la microscopie à force atomique (AFM).

CONCLUSION GENERALE