



**HAL**  
open science

# CARACTÉRISATION ET MODÉLISATION THERMO-MÉCANIQUES DES ASSEMBLAGES MÉTAL-CÉRAMIQUE ÉLABORÉS PAR THERMOCOMPRESSION

Lamine Hattali

► **To cite this version:**

Lamine Hattali. CARACTÉRISATION ET MODÉLISATION THERMO-MÉCANIQUES DES ASSEMBLAGES MÉTAL-CÉRAMIQUE ÉLABORÉS PAR THERMOCOMPRESSION. Mécanique [physics.med-ph]. Ecole Centrale de Lyon, 2009. Français. NNT: . tel-00505340

**HAL Id: tel-00505340**

**<https://theses.hal.science/tel-00505340>**

Submitted on 23 Jul 2010

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

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

**THÈSE**

Présentée devant

***L'ÉCOLE CENTRALE DE LYON***

Pour obtenir le grade de DOCTEUR

Spécialité : Génie Des Matériaux

Par

**Lamine HATTALI**

---

---

***CARACTÉRISATION ET MODÉLISATION THERMO-MÉCANIQUES  
DES ASSEMBLAGES MÉTAL-CÉRAMIQUE ÉLABORÉS PAR  
THERMOCOMPRESSION***

---

---

Soutenue le 03 Février 2009 devant la commission d'examen :

MM. N. EUSTHATOPOULOS  
M. JEANDIN  
G. LASCAR  
H. HAMDI  
M. BOUABDALLAH  
F. ROPITAL  
S. VALETTE  
N. MESRATI  
D. TREHEUX

## RÉSUMÉ

*On a souvent recours à des assemblages métal-céramique pour des systèmes complexes couplant les propriétés, souvent opposées, des alliages métalliques et des céramiques. Les besoins industriels pour de hautes températures d'utilisation, en milieu corrosifs, restent toujours difficiles à satisfaire de façon fiable.*

*Deux céramiques techniques industrielles ont été retenues pour cette étude : le carbure de silicium SiC et l'alumine Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Elles ont été assemblées à un superalliage de Nickel réfractaire (HAYNES™214<sup>®</sup>), selon le procédé de thermo-compression sous vide, par l'intermédiaire d'un joint métallique de faible épaisseur.*

*La forte réactivité du SiC avec le nickel a conduit à rechercher une barrière de diffusion entre l'alliage et la céramique. Un joint d'argent ne formant aucune siliciure a permis d'éviter cette réactivité et a conduit ainsi à des tenues mécaniques en cisaillement significatives (45 MPa).*

*Pour l'alumine (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>), nous nous sommes orientés vers l'utilisation de joints de nickel, peu réactif avec cet oxyde. Cependant la différence de coefficient de dilatation thermique entre la céramique (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) et les métaux (Ni et HAYNES™214<sup>®</sup>) conduit à de fortes concentrations de contraintes résiduelles à l'interface. Une simulation par éléments finis, en utilisant le code ABAQUS, a permis de localiser le champ de contraintes résiduelles dans ce type d'assemblage. Une comparaison entre un calcul élasto-plastique et un calcul élasto-visco-plastique a été réalisée. La distribution des contraintes est sensible à l'épaisseur du joint de nickel ainsi qu'aux dimensions et formes respectives de l'alliage et de la céramique. Il a ainsi été montré que le calcul élasto-visco-plastique est indispensable pour caractériser la liaison Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ni/HAYNES™214<sup>®</sup>, contrairement à des liaisons Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ni/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> étudiées plus classiquement. De plus, les contraintes de tension dans la céramique sont beaucoup plus importantes pour l'assemblage alumine/alliage métallique que pour l'assemblage alumine/alumine. Ceci est retrouvé expérimentalement par les résultats de caractérisation mécanique (cisaillement, délamination) de ces deux types d'assemblage et par des mesures expérimentales de contraintes résiduelles par indentation et par diffraction des rayons X.*

*La fragilisation de l'alumine près de l'interface est un phénomène connu dû essentiellement à la diffusion du métal de liaison et au frottement entre le joint métallique et l'alumine. Une corrélation entre la ténacité, l'intensité des contraintes résiduelles et le piégeage de charges électriques a été montrée.*

*Enfin, l'étude de joints multicouches Cu-Ni-Cu a permis d'accommoder les contraintes et d'améliorer la résistance de l'assemblage Alumine/HAYNES™214<sup>®</sup>. De plus, la pré-oxydation des joints de cuivre côté alumine, reproduisant ainsi la méthode de l'eutectique, ouvre une voie quant à une utilisation des assemblages pour de hautes températures (> 1200 °C) et l'industrialisation du procédé pour de grandes séries.*

**Mots clés :** Liaison céramique-métal, thermocompression, contraintes résiduelles, simulation numérique, éléments finis, diffraction X, indentation, carbure de silicium, alumine.

# Remerciements

*Ce travail à été réalisé au Laboratoire de Tribologie et Dynamique des systèmes (LTDs) (UMR 5513) de l'École Centrale de Lyon. C'est avec une certaine émotion et beaucoup de sincérité que je voudrais remercier toutes les personnes ayant soutenu et apprécié mon travail.*

*En premier lieu, je tiens à exprimer ma profonde reconnaissance à mon directeur de thèse, Monsieur Daniel TRÉHEUX, de m'avoir accueilli dans son laboratoire à l'École Centrale de Lyon. J'ai apprécié la liberté que m'a laissée dans la conduite de mes recherches. Il m'a témoigné une confiance presque illimitée. D'une disponibilité exemplaire, toujours prêt pour des discussions riches et souvent tardives, il m'a ouvert l'esprit dans tous les domaines des matériaux. Il restera pour moi l'exemple d'un professeur qui va toujours de l'avant.*

*J'adresse mes sincères remerciements à mon co-directeur Monsieur Nadir MESRATI pour ces précieux conseils qui m'ont permis de bien réussir. Je l'ai largement alimenté en questions, Il m'a témoigné une disponibilité presque illimitée durant son année sabbatique. Mes remerciements vont également à mon deuxième co-directeur Monsieur Stéphane VALETTE, champion de la critique constructive, qui m'a permis d'approfondir mes connaissances de plus en plus.*

*Ce travail a été mené en collaboration avec l'Institut Français du Pétrole. Mes vifs remerciements vont à Monsieur François ROPITAL professeur IFP de m'avoir fait confiance de m'accorder cette étude et de m'avoir fournie les matériaux nécessaire.*

*Je tiens à exprimer ma gratitude à Monsieur Gue STREMSDOERFER et son fils Samuel STREMSDOERFER, PDG de la jeune entreprise JetMétal® de leur disponibilité et de leur mise en disposition du matériel technique. Leur contribution à permis d'enrichir les travaux de cette thèse.*

*Que Messieurs G.LASCAR et H.HAMDI soient vivement remerciés pour avoir accepté d'être les rapporteurs de ce travail et pour les remarques intéressantes dont ils m'ont fait part.*

*J'exprime ma plus vive reconnaissance à messieurs N.EUSTHATOPOULOS et M.JEANDIN pour avoir participer à la commission d'examen.*

*Je tiens également à témoigner toute mon amitié à tous les membres du Département STMS, qui ont rendu mes années très agréables en particulier madame Dominique VINCENTELLI et Monsieur Bernard BEAUGIRAUD.*

*Enfin j'adresse mes plus chaleureux sentiments à mes parents, et au reste de ma famille pour leur soutien constant. Plus personnellement, je remercie ma fiancée, Svetlana, pour son aide, son écoute et surtout son amour qui m'a été essentiel durant ces années. A tous ceux qui ont contribué de près ou de loin à la formation de ce travail et également à tous mes amis de la fameuse partie du Tarot.*

*MERCI BEAUCOUP*

# SOMMAIRE

<b>INTRODUCTION.....</b>	<b>1</b>
--------------------------	----------

## **PREMIÈRE PARTIE: Étude bibliographique**

<b>CHAPITRE I : Technologie et maîtrise des assemblages métal/céramique .....</b>	<b>5</b>
---	----------

I.1. Historique des liaisons métal-céramique.....	6
I.2. Technique de formation des liaisons métal-céramique .....	6
I.2.1. L'assemblage par soudage diffusion.....	7
I.2.2. L'assemblage par thermocompression.....	7
I.2.3. Mécanismes de liaison à l'état solide.....	8
I.2.4. Influence des paramètres d'élaboration .....	11
I.2.4.1. Influence de la pression appliquée .....	11
I.2.4.2. Influence mutuelle de la pression et de la géométrie .....	12
I.2.4.3. Influence de la température.....	14
I.2.4.4. Influence du temps du palier à la température de thermocompression.....	14
I.2.4.5. Influence de la rugosité .....	15
I.2.4.6. Influence du taux d'écrouissage initial du joint métallique.....	16
I.2.5. Assemblage par la méthode de l'eutectique gaz-métal .....	17
I.2.6. Thermodynamique du système Cu-Al-O .....	18
I.3. Conclusion.....	21

<b>CHAPITRE II : Adhésion et adhérence dans les assemblages métal/céramique .....</b>	<b>22</b>
---	-----------

II.1. Définition de l'adhésion et de l'adhérence.....	23
II.2. Aspect de l'adhésion liquide/solide.....	24
II.2.1. Critères énergétiques et mouillabilité (approche thermodynamique) .....	24
II.2.2. Adhésion : approche physique .....	27
II.3. Facteurs influant le travail d'adhésion .....	28
II.3.1. Orientation cristallographique.....	28
II.3.2. Présence d'impuretés .....	29
II.3.3. Réactions chimiques.....	30
II.3.4. Application au système Ni/Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> .....	30
II.4. Adhérence.....	32
II.4.1. Comportement mécanique à l'interface .....	32
II.4.2. Énergie de rupture interfaciale .....	35
II.4.3. Trajectoire de fissure.....	40
II.4.4. Types de rupture.....	42
II.5.4.1. Rupture ductile .....	42
II.5.4.2. Rupture fragile .....	42
II.5. Les contraintes résiduelles.....	42
II.5.1. Définition des contraintes résiduelles : Aspects macro et microscopique .....	42
II.5.2. Les contraintes résiduelles dans les assemblages métal/céramique.....	44

II.6. Incidence des méthodes de liaison et des couches d'oxydes sur les contraintes résiduelles au niveau de l'interface .....	44
II.6.1. Incidence des méthodes de liaison .....	44
II.6.2. Incidence des couches d'oxydes .....	47
II.7. Méthodes d'estimation des contraintes résiduelles .....	47
II.7.1. Techniques diffractométriques .....	48
II.7.1.1. Mesures parallèles et normales à l'interface .....	48
II.7.1.2. Mesures sur les faces parallèles à l'interface .....	50
II.7.1.3. Limite de l'analyse diffractométrique .....	51
II.7.2. Mesures par indentation Vickers .....	51
II.7.3. Méthodes numériques .....	52
II.7.4. Comparaison des méthodes .....	53
II.8. Solutions pour diminuer les contraintes résiduelles dans les liaisons métal/céramique .....	55
II.9. Le problème du point singulier .....	56
II.10. Applications des liaisons métal/céramique dans le domaine des hautes températures .....	58

## **SECONDE PARTIE: Matériaux et dispositifs utilisés, résultats expérimentaux**

### **CHAPITRE III : Matériaux étudiés et techniques expérimentales..... 62**

III.1. Rappel de l'application visée .....	63
III.2. Les matériaux .....	63
III.2.1. Alumine $Al_2O_3$ .....	63
III.2.2. Carbure de silicium SiC .....	65
III.2.3. Préparation .....	66
III.2.4. La méthode de métallisation par procédé Jet-Métal™ .....	67
III.2.5. Les joints de liaison.....	68
III.2.5.1. Le nickel.....	69
III.2.5.2. Le cuivre.....	69
III.2.6. Alliages (Incoloy 800H, Kanthal APM, Haynes™ 214®) .....	70
III.3. Dispositif expérimental d'assemblage.....	71
III.3.1. Four presse .....	71
III.3.2. Conditions expérimentales .....	74
III.4. Configuration des assemblages .....	75
III.5. Caractérisation physico-chimique et mécanique des liaisons .....	76
III.5.1. Essai de cisaillement .....	76
III.5.2. Essai de flexion 4 points (délamination).....	76
III.5.3. Caractérisation par émission acoustique (EA) .....	79
III.5.4. Caractérisation physico-chimique .....	80
III.6. Estimation des contraintes résiduelles.....	80
III.6.1. Mesure par indentation Vickers .....	80
III.6.2. Mesure par diffraction X.....	81
III.6.2.1. Principe de la méthode diffractométrique .....	81
III.6.2.2. La loi des $\sin^2\psi$ .....	83
III.6.2.3. Description du dispositif des contraintes résiduelles .....	86
III.6.2.4. Mise en œuvre de la méthode de détermination des contraintes résiduelles par diffraction X .....	88

III.7. Caractérisation diélectrique de l'alumine.....	90
III.7.1. Effet miroir.....	91
III.7.2. Protocole expérimental.....	92
<b>CHAPITRE IV : Systèmes SiC/joint métallique/HAYNES™214® .....</b>	<b>94</b>
IV.1. Microstructures des interfaces.....	96
IV.1.1. SiC/Ni <sub>0.93</sub> B <sub>0.07</sub> /Ni/HAYNES™214®.....	96
IV.1.2. SiC/Ni <sub>0.93</sub> B <sub>0.07</sub> /Cu/ HAYNES™214®.....	100
IV.1.3. SiC/Ag/HAYNES™214®.....	102
IV.1.3.1.Utilisation d'un dépôt mince d'Ag.....	102
IV.1.3.2.Utilisation d'une feuille d'Ag épaisse.....	103
IV.2. Caractérisation mécanique des assemblages.....	104
IV.3. A propos des contraintes résiduelles dans les assemblages SiC/joint métallique/Haynes™214®.....	105
IV.3.1. Calcul des contraintes résiduelles d'origine thermique.....	105
IV.3.2. Déformation thermique.....	105
IV.3.3. Contraintes thermiques dans le joint ou le siliciure.....	106
IV.3.4. Relaxation des contraintes thermiques.....	107
IV.3.5. Paramètres influant les mécanismes d'accommodation des contraintes.....	107
IV.3.5.1.Sources de défauts.....	107
IV.3.5.2.Vitesse de refroidissement.....	108
IV.4. Conclusion.....	108
<b>CHAPITRE V : Systèmes Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ni/ HAYNES™214® .....</b>	<b>109</b>
<b>Partie A: Optimisation physico-chimique et mécanique</b>	
V.1. Choix du couple Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /Ni/HAYNES™214®.....	112
V.1.1. Utilisation de l'alumine (S).....	112
V.1.1.1. Utilisation de l'alumine (S) avec un pré dépôt Ni <sub>0.93</sub> B <sub>0.07</sub> .....	114
V.1.1.2. Prétraitement de l'alumine (S).....	114
V.1.2. Utilisation de l'alumine AL23.....	115
V.2. Comparaison des tenues mécaniques.....	116
V.3. Effet de l'épaisseur de l'alliage sur la tenue mécanique et les contraintes résiduelles.....	118
V.4. Conclusion et perspective.....	119
<b>Partie B: Détermination numérique et expérimentale des contraintes résiduelles</b>	
V.5. Méthode numérique.....	122
V.6. Données et hypothèses du calcul.....	122
V.6.1. Le maillage.....	122
V.6.2. Calcul du chargement thermique.....	124
V.7. Approche calculatoire.....	125
V.7.1. Approche élasto-plastique.....	125
V.7.2. Approche élasto-visco-plastique.....	130



V.8. Comparaison entre les deux modèles de calculs .....	136
V.9. Paramètres influençant les contraintes résiduelles .....	137
V.9.1. Influence de l'épaisseur du joint ou du rapport $R = E_j / l$ .....	137
V.9.2. Influence du rapport $R' = E_c / E_a$ .....	140
V.9.3. Influence de la géométrie : cas d'une configuration Tube/joint/Tube .....	141
V.10. Résultats et discussion .....	145
V.11. Conclusion .....	146
V.12. Ténacités au voisinage de l'interface Alumine/nickel .....	147
V.13. Estimation des contraintes résiduelles par indentation Vickers dans le couple Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /Ni/Haynes .....	149
V.14. Estimation des contraintes dans Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> avant assemblage .....	152
V.15. Estimation des contraintes dans Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> après assemblage .....	152
V.16. Profils brut des contraintes en fonction de la distance à l'interface .....	153
V.17. Caractérisation du piégeage des charges électriques sur une alumine avant liaison ..	158
V.18. Caractérisation du piégeage des charges sur une alumine après liaison .....	159
V.19. Conclusion et perspective .....	164

## **CHAPITRE VI : Systèmes Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Cu/Ni/Cu/ HAYNES<sup>TM</sup>214<sup>®</sup> ..... 165**

### **Partie A: Optimisation physico-chimique et mécanique**

VI.1. Choix du joint de cuivre .....	167
VI.2. Application de la méthode de l'eutectique .....	168
VI.2.1. Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /Cu <sub>2</sub> O-Cu-Cu <sub>2</sub> O/Haynes <sup>TM</sup> 214 <sup>®</sup> .....	168
VI.2.2. Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /Cu <sub>2</sub> O-Cu-Cu <sub>2</sub> O/Ni/Cu/HAYNES <sup>TM</sup> 214 <sup>®</sup> .....	170
VI.3. Comparaison des tenues mécaniques .....	172
VI.4. Post traitement d'homogénéisation .....	173
VI.5. Conclusion .....	174

### **Partie B: Caractérisations mécaniques**

VI.6. Essais de flexion 4 points (délaminage) .....	176
VI.7. Ténacités à l'interface Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /Cu <sub>2</sub> O-Cu-Cu <sub>2</sub> O .....	179
VI.8. Estimation des contraintes résiduelles par indentation Vickers .....	179
VI.9. Profils brut des contraintes en fonction de la distance à l'interface .....	181
VI.10. Caractérisation du piégeage des charges sur une alumine après liaison .....	183

## **CONCLUSION GÉNÉRALE ..... 186**

## **BIBLIOGRAPHIE ..... 190**

## **ANNEXE I ..... 198**

## **ANNEXE II ..... 203**

# INTRODUCTION

L'utilisation des céramiques a vu ces dernières années un développement particulier compte tenu de leur large champ d'application dans divers domaines. Elles présentent plusieurs avantages, à savoir :

- la réfractarité qui leur permet de se hisser au premier rang dans le domaine de la thermique et de la thermomécanique,
- leur grande résistance à l'usure,
- leur bonne résistance à la corrosion,
- leur stabilité chimique,
- leur faible dilatation thermique.

En revanche, leur grande fragilité limite toujours leurs utilisations. C'est pour cette raison, mais aussi compte tenu de leurs propriétés souvent opposées à celles des métaux que l'on a souvent recours aux liaisons métal-céramique pour étendre leurs champs d'application.

Les avantages technologiques et industriels amenés par la combinaison de matériaux céramiques et métalliques ont suscité de nombreuses études sur les mécanismes de liaison métal/céramique [1,2,3]. Si on considère qu'actuellement les procédés techniques d'élaboration sont assez bien maîtrisés, les phénomènes qui en découlent lors de la formation de la liaison ne sont pas parfaitement connus et compris.

Certains procédés industriels, notamment en métallurgie et en pétrochimie, requièrent des températures de plus en plus élevées. Par ailleurs, l'élaboration de matériaux à hautes performances implique souvent des procédés de synthèse à haute température (au-delà de 1200 °C) [4]. Une élévation en température des procédés permet généralement de réduire les coûts en augmentant le rendement des équipements et de réduire la pollution [4].

Dans ce contexte, l'Institut Français du Pétrole (IFP) veut étudier la faisabilité de réalisation de liaisons métal-céramique pour la fabrication, en petite série, d'assemblages devant travailler à des températures supérieures à 800 °C. Les céramiques étudiées sont l'alumine ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) et le carbure de silicium (SiC). Ces matériaux présentent d'excellentes qualités thermomécaniques. L'alumine est réputée comme étant une céramique réfractaire, utilisée dans la fabrication de pièce de fours, d'isolateurs mais aussi utilisée pour des prothèses (grâce à sa biocompatibilité). Le carbure de silicium quant à lui, est utilisé dans la conception d'outils de coupe, de pièces pour l'électronique et l'électrotechnique, ainsi que dans le domaine de la tribologie (frottement, usure). Les alliages métalliques retenus sont des alliages réfractaires base nickel classiquement utilisés dans l'industrie des hautes températures.

Réaliser une liaison entre un métal et une céramique pose de multiples problèmes fondamentaux. En particulier les mécanismes d'adhésion et d'adhérence mis en jeu lors de l'établissement de la liaison et le problème des contraintes résiduelles générées au cours du refroidissement de l'assemblage sont des données à maîtriser pour des assemblages fiables.

Pour répondre à la demande de l'IFP et pour atteindre l'objectif fixé, nous avons utilisé la méthode de thermocompression permettant l'assemblage par l'intermédiaire d'un joint métallique. Une approche expérimentale et numérique a été utilisée en adoptant la démarche suivante :

- Pour l'étude de la liaison SiC/alliage métallique, nous avons, dans un premier temps, confirmé la réactivité du SiC avec les alliages, puis tenter de contrôler la fragilité des produits de réaction par l'addition de bore, réputé pour son effet bénéfique (l'effet anti-pest). Devant l'échec de cette solution nous nous sommes orientés vers l'utilisation d'une barrière de diffusion non réactive en argent pur qui offre des potentialités intéressantes avec une tenue mécanique en cisaillement supérieure à 45 MPa.
- Pour l'étude de la liaison  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}$ /alliage métallique, lors de l'élaboration et de la caractérisation mécanique des assemblages, nous nous sommes heurtés à des difficultés de réalisation ou de tenues mécaniques insuffisantes. Tout semble indiquer que les contraintes résiduelles générées lors de l'élaboration étaient la cause de ces difficultés. Pour cela, nous avons été amenés à caractériser ces contraintes en utilisant une modélisation par éléments finis en adoptant les lois de comportement élasto-plastique et élasto-visco-plastique, car le modèle élasto-plastique utilisé généralement s'est révélé insuffisant. Les résultats de la modélisation ont été confirmés par des mesures expérimentales par diffraction des rayons X, par indentation Vickers et même par une approche innovante basée sur les effets de charges électriques. Cependant, même en optimisant le système grâce à la modélisation des paramètres d'élaboration et géométriques, on constate que ce système est toujours pénalisé par l'apparition de contraintes élevées.

En se basant sur certains résultats positifs signalés dans la littérature, nous avons testé l'utilisation d'un joint de cuivre pur, puis d'un joint multicouche Cu/Ni/Cu intercalé entre l'alumine et l'alliage. Cette solution s'est montrée particulièrement efficace d'autant plus que nous l'avons associée à la méthode de la liaison par eutectique Cu-Cu<sub>2</sub>O utilisée habituellement dans les jonctions cuivre-alumine. Les résistances mécaniques obtenues sont particulièrement élevées grâce à la diminution des contraintes confirmée par diffraction des rayons X et par indentation. De plus, du point de vue industriel, l'assemblage est réalisé dans des conditions de brasage permettant d'envisager des grandes séries.

Pour décrire cette démarche, ce mémoire comporte deux parties principales :

La première concerne l'étude bibliographique relevant du domaine des liaisons métal/céramique adapté à nos besoins et objectifs.

Le premier chapitre est consacré aux aspects technologiques des liaisons métal/céramique. Les difficultés concernant la réalisation des assemblages métal/céramique sont abordées en relation avec les méthodes de réalisation choisies : thermocompression et méthode de l'eutectique. Nous nous intéressons plus particulièrement au cas des interfaces métal/ $\text{Al}_2\text{O}_3$  et métal/SiC et nous montrons l'intérêt de la non réactivité des interfaces. Enfin, nous terminons sur quelques exemples d'applications industrielles. Le deuxième chapitre est consacré à l'étude de l'adhésion et de l'adhérence afin de voir quels paramètres entrent en jeu dans la tenue des différentes interfaces métal/céramique qui sont réalisées ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ /alliage métallique et SiC/alliage métallique). Cette étude bibliographique permet de faire un bilan sur ces systèmes mais aussi d'une façon plus générale de mettre en évidence les paramètres à prendre en compte dans une liaison métal/céramique et les problèmes des contraintes résiduelles dans ce genre d'assemblage.

La seconde partie est consacrée aux moyens mis en œuvre pour la réalisation des liaisons SiC/alliage métallique et  $\text{Al}_2\text{O}_3$ /alliage métallique, ainsi qu'aux résultats expérimentaux obtenus.

Le chapitre III est réservé à la caractérisation des matériaux, description des différents assemblages et démarches expérimentales retenues, compte tenu des exigences de l'étude. Le chapitre IV présente les résultats expérimentaux concernant le multimatériau ou l'assemblage SiC/HAYNES<sup>TM</sup>214<sup>®</sup>. Trois joints métalliques purs sont étudiés, le nickel, le cuivre et l'argent. Afin de minimiser la réaction de ces métaux avec le carbure de silicium, l'ajout d'éléments limitant l'effet pest dans un premier temps, et des barrières de diffusion dans un second temps sont testés. Des caractérisations par microscopie électronique à balayage et par micro-analyse X, ainsi que par diffraction des rayons X rasants et classiques sont effectuées. L'adhérence de ces couples est mesurée par des essais de cisaillement. Le chapitre suivant est consacré à l'étude du multimatériau  $\text{Al}_2\text{O}_3$ /Ni/HAYNES<sup>TM</sup>214<sup>®</sup> plus particulièrement approfondi. Il est scindé en trois parties. La première concerne la caractérisation physico-chimique et mécanique du système  $\text{Al}_2\text{O}_3$ /Ni/HAYNES<sup>TM</sup>214<sup>®</sup> et la deuxième concerne la détermination numérique et expérimentale des contraintes résiduelles de ce même système. Puis, la troisième partie expose les résultats de la caractérisation par la charge d'espace de la céramique. Une corrélation entre l'intensité des contraintes résiduelles, la diffusion du nickel et le piégeage de charges électriques est montrée. Mais de toutes façons, ce système se révèle particulièrement sensible aux effets des contraintes résiduelles avec des tenues mécaniques faibles.

L'amélioration de la tenue mécanique par modification du système de contraintes résiduelles est envisagée par l'utilisation d'un joint multicouche. Nous avons repris la même démarche expérimentale utilisée dans le chapitre précédent pour une optimisation finale au chapitre VI avec l'utilisation d'un joint de cuivre, à la place du nickel, mais surtout d'un joint multicouche Cu/Ni/Cu qui se révèle la solution optimale pour les assemblages  $\text{Al}_2\text{O}_3$ /alliage métallique.

**Première Partie**

**ÉTUDE  
BIBLIOGRAPHIQUE**

# CHAPITRE I

## TECHNOLOGIE ET MAÎTRISE DES ASSEMBLAGES MÉTAL/CÉRAMIQUE

*Différents aspects bibliographiques sont traités au cours de ce chapitre. Nous présentons tout d'abord un aperçu historique sur les liaisons métal-céramique.*

*Nous abordons dans la deuxième partie l'aspect technologique des liaisons métal/céramique. Les difficultés concernant la réalisation des assemblages métal/céramique sont abordées. En effet, la liaison entre les matériaux est généralement effectuée à haute température et est influencée par différents facteurs. Nous nous intéressons plus particulièrement au cas des interfaces métal/ $Al_2O_3$  et nous mettons en évidence l'intérêt de réaliser les assemblages par la méthode de l'eutectique.*

*Lors du refroidissement de l'assemblage, des contraintes résiduelles apparaissent. Nous cherchons à mieux cerner leur distribution et leur amplitude par des solutions technologiques. Nous voyons comment des améliorations technologiques apportées au système de liaison permettent de diminuer le niveau des contraintes résiduelles et d'autoriser un bon fonctionnement des composants.*

*Enfin, nous terminons sur quelques exemples d'application industrielle de pointe.*

## I.1. HISTORIQUE DES LIAISONS MÉTAL-CÉRAMIQUE

Bien que l'émaillage soit appliqué depuis plus de trois millénaires, c'est seulement depuis l'apparition des céramiques techniques ( $Al_2O_3$ ,  $ZrO_2$ ,  $AlN$ ...) et leur utilisation dans l'électronique que les recherches sur la liaison entre un métal et une céramique se sont développées. Parmi les applications visées, on peut citer les tubes électroniques, les isolateurs électriques, les valves à vide, les condensateurs, etc.... Les deux caractéristiques principales demandées à la liaison sont l'étanchéité et une tenue mécanique correcte.

Depuis une trentaine d'années, les céramiques thermomécaniques ( $Al_2O_3$ ,  $ZrO_2$ ,  $SiC$ ,  $Si_3N_4$ ...) sont étudiées en vue d'applications dans les turbines à gaz et les moteurs thermiques afin d'en améliorer le rendement grâce à une augmentation de la température de fonctionnement. C'est ainsi que plusieurs programmes d'étude et de développement ont vu le jour dans divers pays [5] :

- 1972, U.S.A. « DARPA » moteur turbine pour véhicule terrestre.
- 1976, U.S.A. « NAVSEA » et « GARRET » céramisation de turbine 200 CV.
- 1980, R.F.A. moteur céramisé pour automobile avec la collaboration des Sociétés Volkswagen, Feldmühle, Rosenthal...
- 1984, Japon. Projet « moonlight », turbine à gaz à haut rendement.

Devant l'échec des programmes concernant les moteurs « tout céramique », les grands programmes nationaux ont été en nombre plus limités. Plus récemment d'autres applications sont apparues, par exemple :

2006, France. Projet ANR « CERAMAT » : composite céramique-métal pour EHT (Electrolyseur haute température) et SOFC (Solid Oxide Fuel cell).

Cette introduction ne serait pas complète si nous ne mentionnions pas les liaisons métal- céramique utilisées dans le génie biologique et médical. Dans le domaine dentaire, avec l'utilisation des barbotines comme revêtement sur les prothèses métalliques, mais aussi récemment avec les prothèses articulaires, l'emploi des céramiques appelées biocompatibles ( $Al_2O_3$  et  $ZrO_2$  essentiellement) offre de réels espoirs pour la chirurgie osseuse.

## I.2. TECHNIQUE DE FORMATION DES LIAISONS MÉTAL-CÉRAMIQUE

L'assemblage des métaux massifs avec des céramiques massives reste toujours un problème d'actualité. Il est en effet relativement délicat de créer des liaisons entre des matériaux aux propriétés si différentes. Cependant, tout un éventail de techniques est proposé dans la littérature [6,7,8,9,10]. Ceci confère souvent à cette technologie un caractère empirique.

Les principales techniques de liaison métal/céramique sont les suivantes :

- métallisation brasage Mo-Mn (cf. Annexe I),
- brasage à basse température (cf. Annexe I),
- brasage à haute température (cf. Annexe I),
- liaisons par soudage diffusion et en particulier thermocompression,
- méthode de l'eutectique gaz-métal.

Nous ne présenterons ici que les techniques utilisées dans ce travail.

### ***1.2.1. L'assemblage par soudage diffusion***

C'est une technique largement utilisée industriellement pour de nombreuses applications [5,6] .

Le principe de ce procédé consiste à mettre en contact les surfaces de deux pièces à assembler, correctement préparées (sur le plan de leur physico-chimie, de la micro géométrie et de l'ajustement des surfaces). Puis à chauffer l'ensemble, éventuellement sous vide ou sous une atmosphère protectrice, à une température déterminée en fonction des caractéristiques physico-chimiques des matériaux, ainsi que des contraintes techniques, pendant une durée suffisante, en fonction des autres paramètres opératoires et du résultat souhaité.

### ***1.2.2. L'assemblage par thermocompression***

Bien que des nuances existent dans les termes anglo-saxons, c'est sous les noms de « *diffusion bonding* », « *pressure bonding* », « *pressure welding* », « *roll bonding* » et plus souvent « *solid state bonding* » que cette technique peut être rencontrée dans la littérature [5,6,11]. Tout comme le soudage diffusion, la thermocompression est une technologie qui permet d'assembler des matériaux hétérogènes sous l'action simultanée de la température et de la pression sans qu'aucune phase liquide ne se forme au cours du processus d'assemblage, le tout dans une atmosphère variable selon les cas (Figure I.1).

Le contact des deux surfaces à lier est assuré par l'application d'une pression uniaxiale. Entre les deux surfaces à lier, est intercalé un joint métallique malléable pour favoriser l'adhérence métal/céramique. De nombreuses précautions doivent alors nécessairement être apportées dans le choix du joint. Ainsi, sa température de fusion doit être supérieure à la température d'utilisation du couple et inférieure aux températures de transformation de phase de la céramique et du métal. Il faut éviter d'utiliser des métaux ou des alliages susceptibles de former des composés définis ou intermétalliques avec les substrats à relier, pour ne pas risquer de fragiliser les jonctions aux interfaces de liaison. De nombreuses études ont été effectuées pour déterminer l'influence des différents paramètres de réalisation, en particulier sur la tenue mécanique de la liaison selon le cycle de la figure I.1 :

- la température,
- la pression,
- l'atmosphère,
- le temps du palier,
- la vitesse de chauffage et de refroidissement.



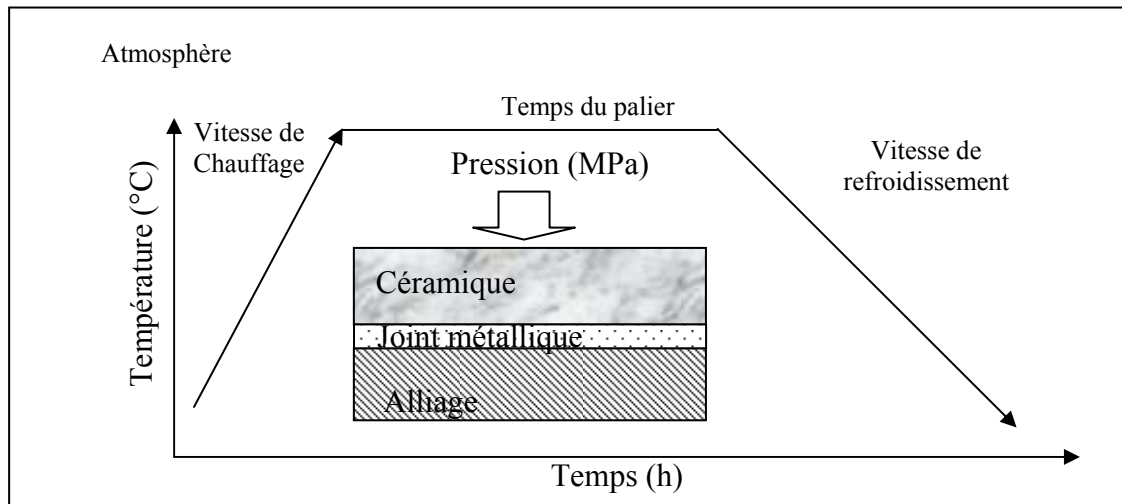


Figure I.1: Représentation schématique d'un assemblage métal/céramique réalisé dans un four-presse de thermocompression.

La variété des joints utilisés s'étend des métaux nobles (Au, Pt) [12,13] aux métaux avides d'oxygène (Nb, Zr, Ta, Al) [11,14]. Les sections des joints utilisés pour former une liaison de bonne qualité sont de formes assez variables. Si la section radiale circulaire est couramment utilisée, on trouve cependant plusieurs formes allant de la feuille à l'ellipse en passant par des sections complexes. Le joint peut être plein ou évidé [3]. Les recherches portent surtout sur les liaisons avec les oxydes réfractaires ( $\text{Al}_2\text{O}_3$  principalement) [15]. Les liaisons sur des carbures et sur des nitrures sont à l'étude au Japon, Etats Unis [16] et en France [17,18].

La thermocompression est une technique très universelle puisqu'elle permet les assemblages les plus variés, du plomb sur du verre, à du platine sur de la zircone par exemple. Dans certaines applications c'est la seule méthode qui soit viable notamment lorsque les matériaux à assembler ont une température de fusion inférieure à celle des brasures des méthodes décrites en Annexe I [3]. Cette technique est non seulement intéressante pour la réalisation des assemblages métal/céramique mais elle contribue à l'étude fine des réactions à l'état solide.

La thermocompression est une technique qui permet de réaliser des liaisons métal/céramique présentant des énergies de rupture interfaciales jusqu'à  $2100 \text{ J/m}^2$  [19] et une tenue à chaud bien supérieure à celle des liaisons obtenues par métallisation ou autre. Les applications industrielles sont également nombreuses (fabrication de thermocouples, de composants électrotechniques, etc...) grâce au caractère plus général de cette méthode, qui possède en outre une bonne reproductibilité et une technologie de mise en œuvre relativement simple. Son principal inconvénient est la difficulté de réaliser des grandes séries.

### I.2.3. Mécanismes de liaison à l'état solide

Lorsqu'on met en contact deux surfaces solides, elles subissent des forces d'attraction de différentes natures (Figure I.2) [20] :

- des forces à longue portée, d'origine électrostatique, qui sont reliées aux mécanismes de polarisation (micrométrique),

- des forces à moyenne portée, qui correspondent à des interactions de type van der Waals (quelques nanomètres),
- des forces de courte portée, qui correspondent aux liaisons chimiques de type intramoléculaire (ionique, covalente, métallique) de l'ordre de 0,1-0,2 nm.

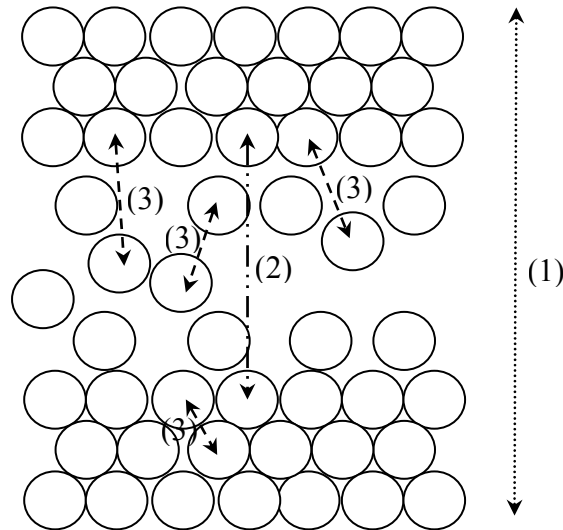


Figure I.2 : Différents types d'interaction ; Forces à longue (1), moyenne (2) et courte portée (3).

La force d'adhésion ainsi définie est mesurable directement par des « machines de force » [21]. Ce point sera vu au chapitre II.

Dans les assemblages métal-céramique, les trois niveaux de force sont à rechercher pour obtenir un contact intime entre les deux surfaces solides. De plus, il faut tenir compte de la formation possible de produits de réactions entre les deux matériaux à associer. En l'absence de réaction chimique avec formation de phases nouvelles, nous utilisons le terme « système non réactif ». A l'inverse, si des nouvelles phases sont formées, nous parlerons de système réactif.

La formation d'une interface entre un métal et une céramique par thermocompression à l'état solide passe par les étapes schématisées sur la figure I.3 [22,23] :

### Etape 1 :

- mise en contact des deux matériaux sans pression (a),
- sous l'effet de la pression et de la température, les contraintes locales déforment les aspérités initialement en contact faisant apparaître un réseau de pores interconnectés qui se comblent à la fin de l'étape (b,c).

Les mécanismes de liaisons de ces deux premières étapes sont à rapprocher de ceux du frittage :

- déformation plastique entraînant le contact initial des aspérités,
- diffusion superficielle,
- diffusion en volume,
- évaporation-condensation,
- diffusion aux joints de grains,
- fluage.

**Etape 2 :**

- création de liaisons chimiques avec formation d'une nouvelle phase (e) ou simplement d'une liaison non réactive (d).

**Etape 3 :**

- cette 3<sup>ème</sup> étape, correspond à l'évolution des propriétés des matériaux, liée à la formation de la liaison et aux contraintes résiduelles générées, entre autres, par la différence de coefficient de dilatation des deux matériaux.

Sachant que la céramique est le plus souvent un solide rigide indéformable, les deux forces principales qui peuvent promouvoir la liaison sont :

- la pression utilisée pour maintenir les deux matériaux en contact pendant le soudage,
- la force induite par la réduction de surface pendant la formation de l'interface.

Pour avoir une très bonne liaison, nous partons de l'hypothèse selon laquelle l'amélioration de l'assemblage peut s'opérer par l'optimisation de chacune de ces trois étapes.

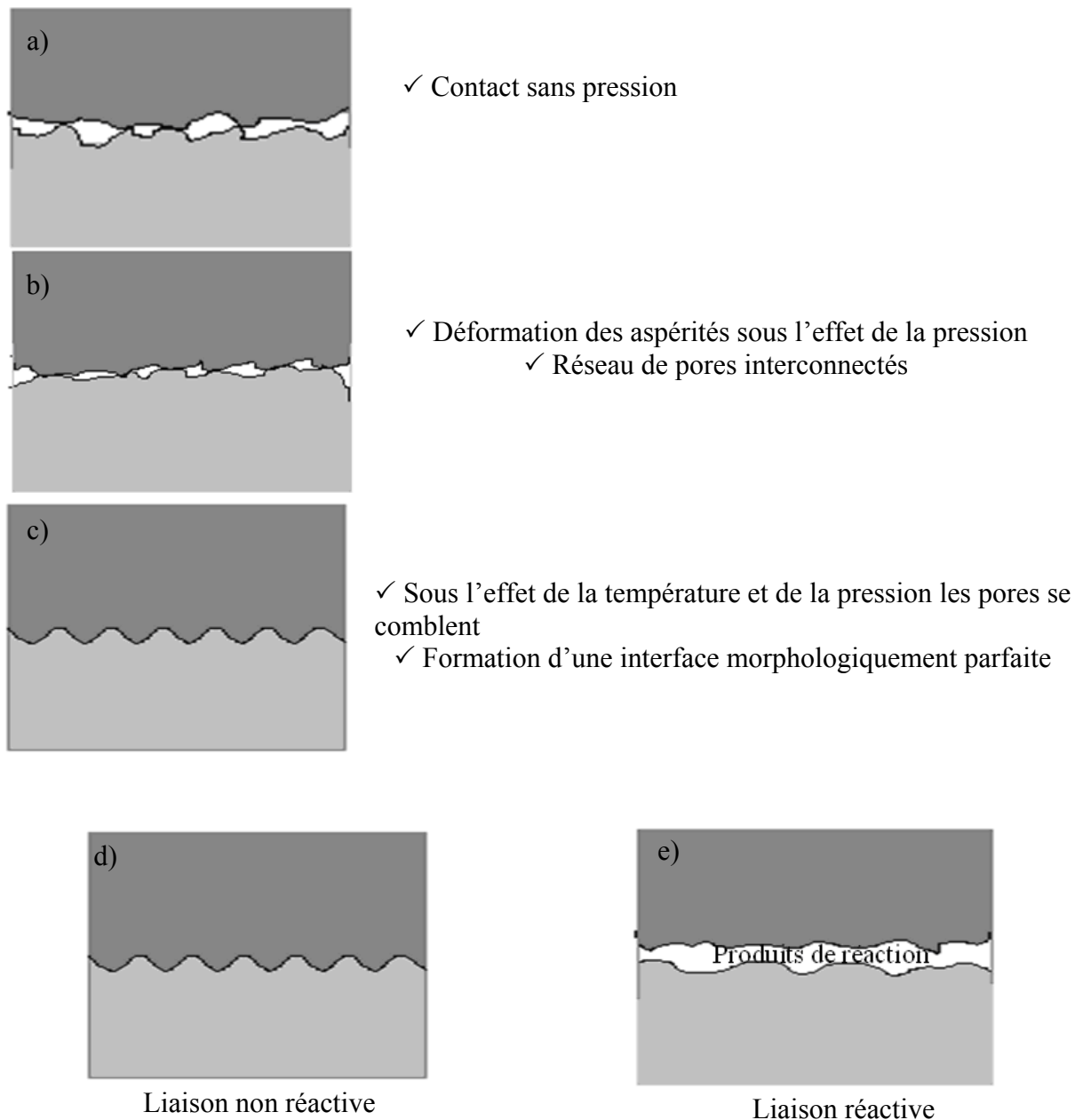


Figure 1.3 : Formation de l'interface métal-céramique.

#### ***1.2.4. Influence des paramètres d'élaboration***

Nous étudions ici l'effet des paramètres de réalisation du joint sur la tenue des liaisons. Nous retiendrons principalement à titre d'exemple les couples proches de ceux que nous utiliserons.

##### ***1.2.4.1. Influence de la pression appliquée***

Les résultats des essais de cisaillement en fonction de la pression appliquée pour des liaisons réalisées par thermocompression diffèrent d'un auteur à un autre. Cela peut être

expliqué par des techniques d'élaboration qui diffèrent ainsi que par les puretés différentes des matériaux utilisés.

La résistance au cisaillement de liaisons Ni/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> [24] établies par thermocompression entre un nickel fritté et de l'alumine monocristalline a été étudiée en fonction de la pression appliquée pour une température de 1100 °C (Figure I.4a).

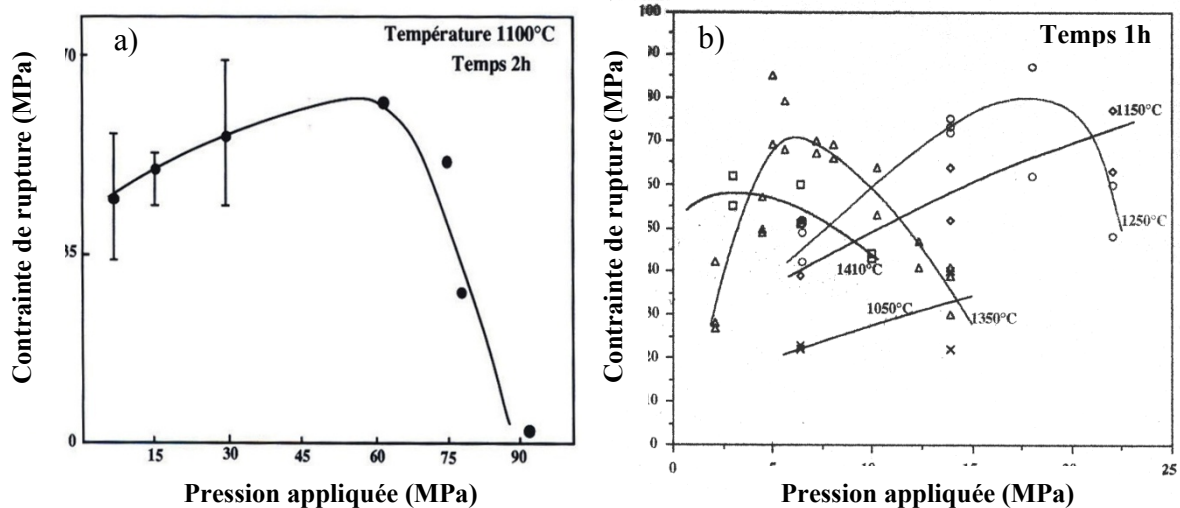


Figure I.4 : Résistance à la rupture en cisaillement en fonction de la pression appliquée.

a) Ni fritté, Alumine monocristalline [24].

b) Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ni/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> polycristalline [25].

Hourdin [25] a montré dans son étude, l'influence de la pression appliquée sur la résistance à la rupture du couple Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ni/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> pour une gamme de pression variant de 2 MPa à 25 MPa pour 5 températures différentes comprises entre 1050 °C et 1410 °C (Figure I.4b). Les résultats obtenus montrent que la résistance à la rupture augmente avec la pression appliquée dans la première partie de la courbe, grâce à l'augmentation de l'aire de contact qui est proportionnelle à la pression appliquée. La deuxième partie des courbes montre que la résistance décroît avec la pression appliquée pour des températures supérieures à 1250 °C suite à la fissuration de l'alumine. Pour des températures inférieures, le maximum n'est pas atteint pour la gamme de pressions appliquées. Courbière [3] a montré dans son étude du couple Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Cu/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> que l'aire de contact croît avec les paramètres de pression et de température à partir du centre du contact vers sa périphérie.

#### 1.2.4.2. Influence mutuelle de la pression et de la géométrie

La pression appliquée et l'épaisseur du joint agissent de la même manière sur la résistance à la rupture [25]. L'influence de ces paramètres suit les mêmes évolutions que la température. Dans un premier temps, la contrainte à la rupture augmente avec la pression et le rapport du rayon  $r$  de la céramique sur l'épaisseur  $h$  du joint métallique ( $r/h$ ), puis diminue.

Colin [26] dans son étude du système Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/inconel 600 a réalisé des calculs éléments finis avec un modèle élasto-plastique pour la détermination des contraintes résiduelles. La

figure I.5 présente l'évolution du maximum de la contrainte principale en fonction de l'épaisseur du métal. Elle atteint sa valeur maximale d'autant plus rapidement que l'épaisseur de la céramique est faible.

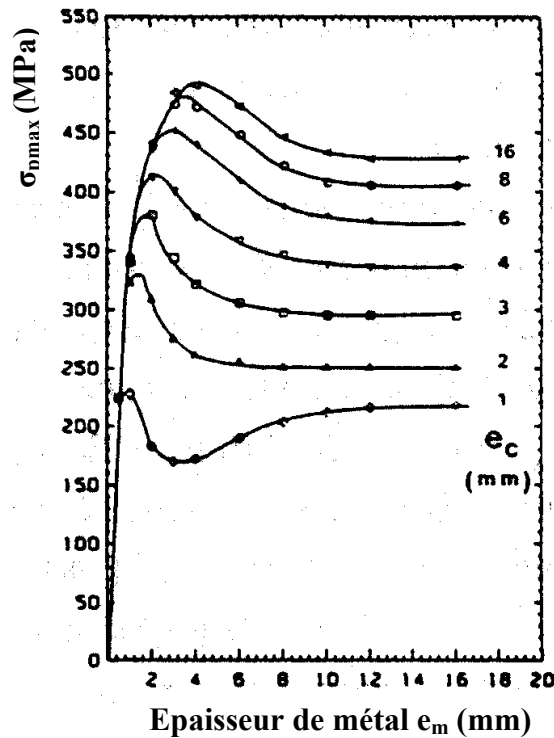


Figure I.5 : Evolution de la contrainte principale en fonction de l'épaisseur du métal et de la céramique pour différents épaisseurs de la céramique.  $e_m$  épaisseur du métal,  $e_c$  épaisseur de la céramique [26].

Guipont [27] dans son étude des assemblages brasés (brasure AgCuTi) de  $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{XC18}$  a montré que le niveau mais aussi le signe des contraintes résiduelles au centre de la surface externe de la céramique sont très différents selon l'épaisseur de celle-ci. Les fortes épaisseurs de la céramique ( $e_c = e_m = 10$  mm) conduisent en surface à des valeurs de contraintes résiduelles faibles proches de l'erreur calculée. Pour des épaisseurs intermédiaire de la céramique ( $e_c = 1/2 e_m = 10$  mm), les contraintes sont en traction assez élevées (+200 et +300 MPa). Pour ce qui concerne les faibles épaisseurs ( $e_c = 1/10 e_m = 10$  mm), les contraintes résiduelles sont fortement en compression (- 695 MPa).

### 1.2.4.3. Influence de la température

La température agit sur de nombreux mécanismes à savoir :

- modification des propriétés mécaniques du métal notamment sa limite d'élasticité. Par conséquent on a modification des conditions de déformation plastique,
- activation des phénomènes de diffusion (en surface et en volume) et d'évaporation-condensation,
- établissement d'une liaison chimique entre le métal et la céramique.

Pour les mêmes conditions que celle présentée dans la figure II.4a, l'influence de la température est reportée sur la figure II.6. Calow [24] a montré que la pression à appliquer pour atteindre le maximum de contrainte à la rupture diminue quand la température augmente (Figure I.6). Il en est de même avec l'épaisseur. Il a montré aussi que cette résistance diminue lorsque la température croît au-delà de 1000 °C. Le maximum obtenu à 1000 °C, correspondrait à l'adaptation totale du nickel sur l'alumine.

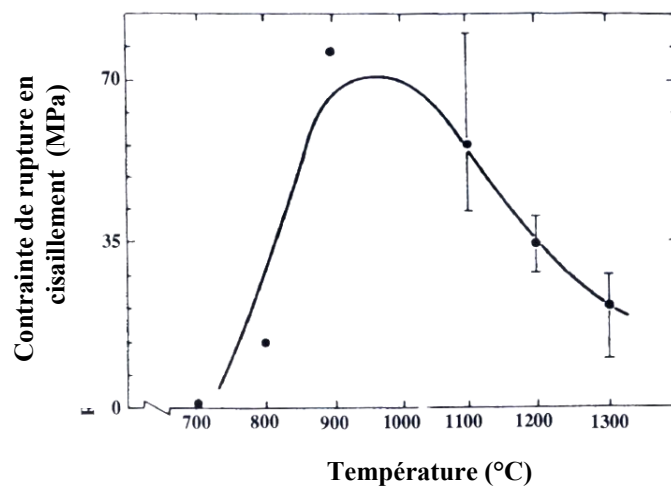


Figure I.6 : Résistance à la rupture en fonction de la température pour une pression appliquée de 77 MPa [24].

Nous notons que l'ensemble des études [3,23,28,25] révèle une augmentation de la résistance à la rupture en fonction de la température tout au moins en dessous de 1100 °C. Cela est dû essentiellement à une augmentation de l'aire réelle de contact.

Au-delà, la chute des caractéristiques est due à d'autres effets : fragilisation de la céramique, fluage du joint en dehors de la zone de contact etc... [22].

### 1.2.4.4. Influence du temps du palier à la température de thermocompression

Le temps du palier joue un rôle important sur le fluage du joint métallique à la température de thermocompression, et sur la cinétique de réaction.

L'évolution de la contrainte à rupture en fonction du temps est comparable à celle de la pression : une allure asymptotique comme dans le cas de la liaison Ni/ZrO<sub>2</sub> est

généralement observée (Figure I.7) [29]. Le maximum de contrainte à rupture est atteint plus ou moins rapidement selon la durée du palier de thermocompression, à savoir de 0 à plusieurs heures selon les couples, les températures, les pressions,...

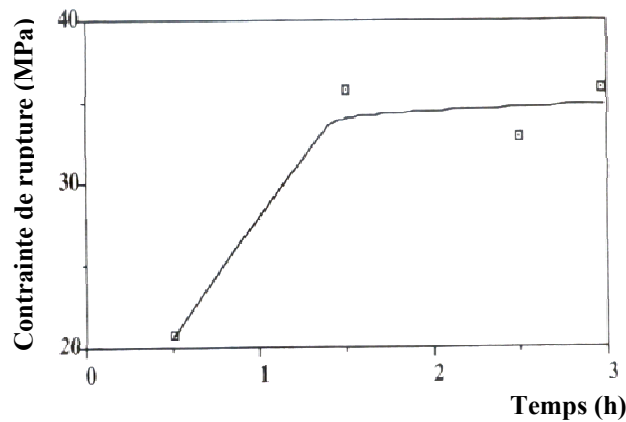


Figure I.7 : Contrainte de rupture de la liaison Ni/ZrO<sub>2</sub> en fonction du temps de palier [29].

#### I.2.4.5. Influence de la rugosité

Le comportement à la rupture de l'assemblage va dépendre également de la rugosité de la céramique. La rugosité agit sur :

- le phénomène d'accrochage mécanique (adhérence),
- l'augmentation du coefficient de frottement sur les conditions de la déformation plastique du métal et sur la formation de défauts interfaciaux au cours du frottement,
- la vitesse de formation de l'interface métal-céramique.

Derby [30] a créé un modèle permettant d'étudier l'influence de la rugosité sur la formation de l'interface. Ces résultats permettent de faire des prédictions sur les temps de liaison nécessaires à l'obtention d'un recouvrement maximal en fonction des rugosités initiales de la céramique, de la pression appliquée, de la température et des énergies d'activation de la diffusion interfaciale (Figure I.8).

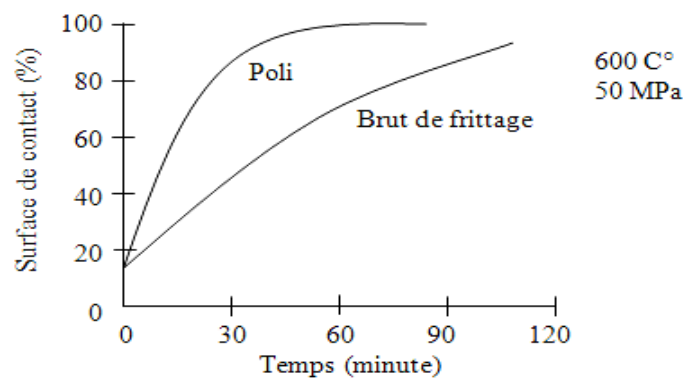


Figure I.8 : Evolution de la surface de contact en fonction de l'état de surface de l'alumine [30].



Le métal s'écoule sous une faible pression du fait d'une température élevée, d'un frottement interfacial faible, d'une épaisseur importante. Il faut modifier l'un des paramètres à savoir la température, l'épaisseur ou le frottement afin de pouvoir appliquer une pression suffisante qui permettra l'établissement d'une liaison résistante.

L'étude de la variation de la résistance mécanique à la rupture en fonction de la rugosité de l'alumine, faite par *Courbière* [3], a montré qu'au delà d'une rugosité  $R_a > 0.5 \mu\text{m}$  la contrainte à rupture en cisaillement chute brutalement de 55 MPa à 20 MPa. L'optimum a été obtenu pour une rugosité moyenne de  $0.5 \mu\text{m}$ .

#### ***1.2.4.6. Influence du taux d'écrouissage initial du joint métallique***

*Serier* [31] a montré dans son étude que le laminage initial du joint métallique en créant des dislocations permet d'abaisser les temps et les températures de liaison pour le couple Ag/Alumine, alors que *Lourdin* [22] sur son étude du couple Ni/Alumine a montré que ce paramètre a peu d'influence. Les hypothèses proposées pour expliquer les résultats obtenus avec l'argent [31] sont :

- les dislocations produites par l'écrouissage permettent de stocker de l'oxygène, élément favorable à la liaison,
- le nombre des sources de dislocations, permet d'accroître la vitesse de déformation de l'argent,
- la recristallisation de l'argent favorise l'accommodation des surfaces en cours d'élaboration.
- système non réactif pour l'argent.

Alors que les hypothèses retenues pour expliquer les résultats du nickel sont les suivantes:

- la température de recristallisation du nickel est de  $350 \text{ }^\circ\text{C}$  et comme la vitesse de montée en température du four est de  $150 \text{ }^\circ\text{C/h}$ , alors il suffit environ de 2 heures 15 minutes pour monter à  $350 \text{ }^\circ\text{C}$ . Quel que soit l'état initial (recuit ou écroui), tous les échantillons seront équivalents lorsque le four atteint cette température. Ce paramètre ne peut agir que sur la déformation initiale des aspérités (cf. Figure I.3, étape 1),
- l'adhésion du nickel sur l'alumine est plus forte dans le vide de même que la tenue mécanique. Le stockage de l'oxygène par les dislocations n'est pas un mécanisme qui favorise la liaison  $\text{Ni/Al}_2\text{O}_3$  du fait de la formation du spinelle  $\text{NiAl}_2\text{O}_4$  [32].

### I.2.5. Assemblage par la méthode de l'eutectique gaz-métal

Cette méthode de liaison métal/céramique est utilisée pour des couples dont le métal présente un eutectique de la forme métal/oxyde, métal/sulfure ou métal/phosphore.

Le principe consiste à utiliser la formation de cet eutectique sous la forme d'un film liquide qui vient mouiller entièrement les surfaces des deux matériaux à lier [33].

Les brevets déposés à ce sujet [34,35] indiquent qu'il est possible d'obtenir une telle phase liquide dans le cas de systèmes métal/céramique pour lesquels un eutectique métal-gaz existe. Nous allons prendre l'exemple le plus étudié dans la littérature et le plus largement utilisé dans l'industrie, qui est celui du couple cuivre/alumine [8,3,36,37]. Le système Cu-O présente un eutectique pour une composition en poids de 0.39 % d'oxygène avec un point de fusion de 1065 °C. Ce point de fusion est très proche de celui du cuivre pur qui est de 1083 °C (Figure I.9).

Néanmoins d'autres systèmes ont été évoqués dans ces deux brevets, comme l'eutectique Fe-O (1523 °C à 0.16 % en poids d'oxygène) ou encore les eutectiques (Mo, Al-Si), le gaz utilisé dans ce dernier cas pouvant être du silane.

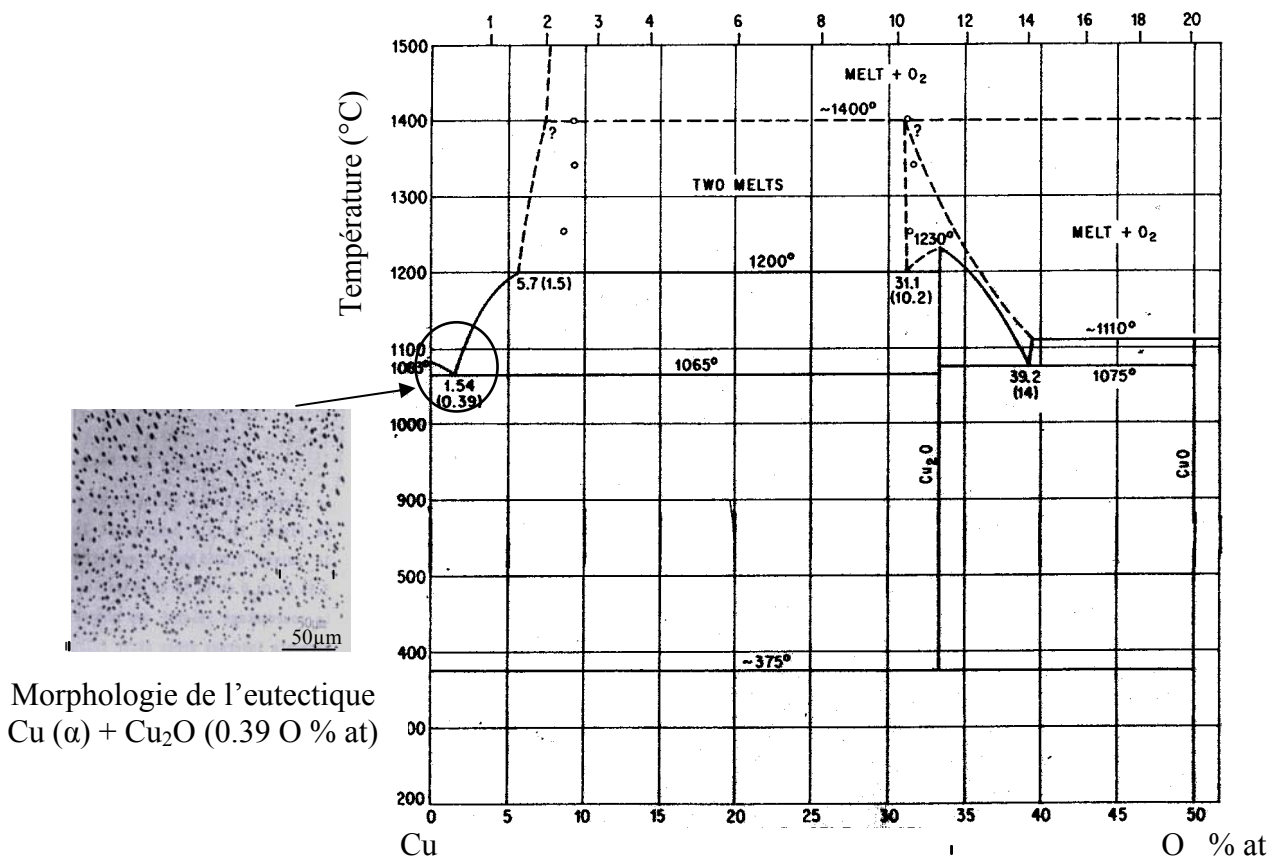


Figure I.9 : Diagramme d'équilibre Cu-O [3,38].

Dans le cas du couple Cu/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, la formation de la phase intermédiaire liquide peut se faire soit in situ dans le four sous une atmosphère réactive de quelques pour cent d'oxygène, ou par une préoxydation du cuivre thermique ou chimique. On introduit au préalable l'oxygène nécessaire à la formation d'un mélange eutectique ou proche de

l'eutectique qui couvre la surface du cuivre au dessus de 1065 °C et qui vient mouiller de façon très intime la surface de la céramique (le cuivre liquide saturé en oxygène mouille parfaitement l'alumine) [39,40]. Au cours du refroidissement, il y a solidification du mélange eutectique sous forme de précipités d'oxyde de cuivre dans une matrice de cuivre. Il a également été mis en évidence la formation à l'interface Cu/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> d'oxydes mixtes tels que AlCuO<sub>2</sub> et éventuellement AlCu<sub>2</sub>O<sub>4</sub>. Pour un tel système, la contrainte à la rupture est de 150 MPa en traction et 50 MPa en cisaillement [32].

Comme dans le cas des liaisons élaborées par thermocompression, l'état de surface de la céramique avant liaison influence très largement le résultat obtenu. En effet, la présence entre les deux matériaux d'impuretés qui pourraient être pyrolysées en température, peut donner lieu à la formation de bulles à l'interface, phénomène nuisible aussi bien dans la recherche d'une bonne tenue mécanique de la liaison que d'une bonne conductivité électrique ou thermique.

Ce procédé est applicable à de nombreux matériaux céramiques et alliages. De bons résultats sont obtenus avec l'alumine mais aussi avec l'AlN, la silice, le saphir, l'oxyde de béryllium, les spinelles, différents métaux notamment le cuivre lui-même. Par contre, la technique est inopérante sur le graphite, le nitrure de bore et les métaux très avides d'oxygène tels que le titane, le zirconium, etc... [41].

*Courbière* [3] a étudié, à partir de caractérisations mécaniques (essais de traction et de cisaillement, ténacité), des interfaces Cu/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> polycristallines élaborées par thermocompression ou par l'eutectique Cu-Cu<sub>2</sub>O. Les liaisons Cu/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> élaborées par les procédés de thermocompression ou par la fusion d'eutectique mettent en jeu à l'interface des composés prévus par la thermodynamique. Ainsi, *Béraud* [8] a mené par Microscopie électronique en transmission (MET) une analyse microstructurale des composés formés à l'interface, tel que l'oxyde mixte CuAlO<sub>2</sub>. Des travaux similaires ont été effectués par *Mellul* [36] sur des couples Cu/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> élaborés par la fusion de l'eutectique. Il est donc indispensable de rappeler quelques propriétés thermodynamique du système Cu-Al-O.

### ***1.2.6. Thermodynamique du système Cu-Al-O***

Les diagrammes d'équilibre du système Cu-Al-O (Figure I.10), indiquent que pour des températures supérieures à 600 °C et pour deux pressions partielles d'oxygène ( $P_{O_2} = 0.21$  et  $P_{O_2} = 0.4$  atm) deux composés sont susceptibles de se former : l'oxyde mixte CuAlO<sub>2</sub> et le spinelle CuAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>. L'apparition de l'oxyde mixte CuAlO<sub>2</sub> diminue quand la pression partielle d'oxygène diminue [42].

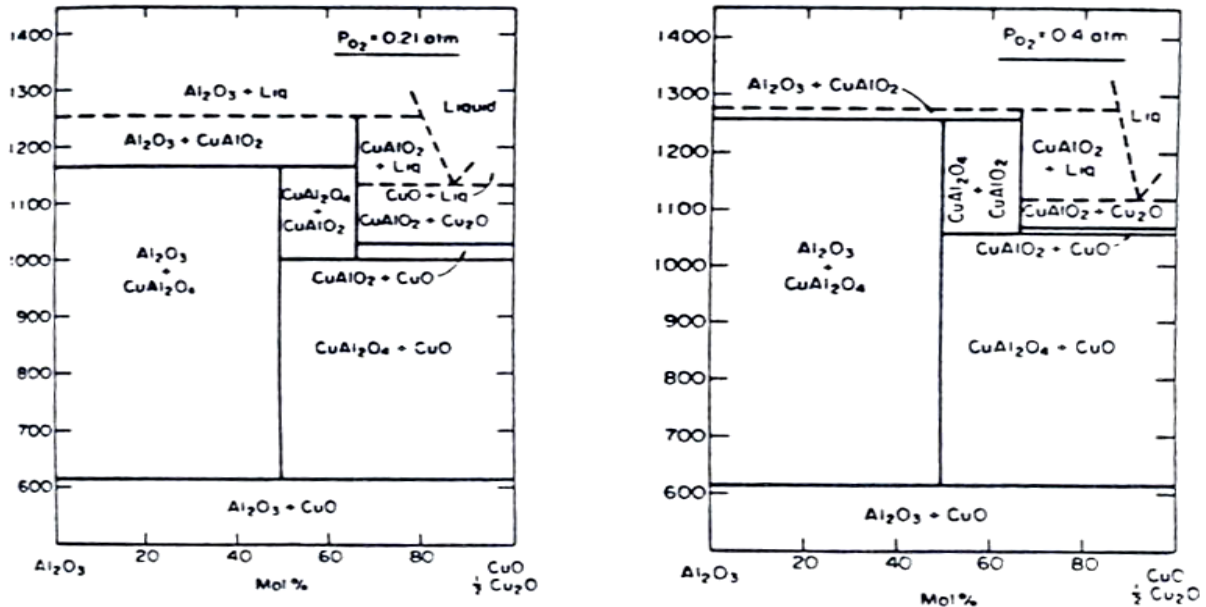


Figure I.10 : Diagramme d'équilibre dans le système Cu-Al-O pour deux pressions partielles d'oxygène [42].

Elsner et al. [43] ont montré que les liaisons Cu/ $Al_2O_3$  réalisées par thermocompression sous ultravide n'avaient une tenue mécanique mesurable que si les assemblages étaient réalisés après avoir nettoyé les deux matériaux par bombardement d'ions argon à 3-5 KeV, avec une dose maximale de  $5 \cdot 10^{19} \text{ Ar}^+/\text{cm}^2$ .

Ces résultats montrent que le couple Cu/ $Al_2O_3$  peut être réactif ou non réactif et qu'il est très sensible à l'oxygène et aux impuretés en général. Cette réactivité dépend visiblement de la teneur en oxygène dans le cuivre ou dans l'atmosphère. Mais à partir de quelle pression partielle d'oxygène passe-t-on d'un système non réactif à un système réactif ?

Kara-Slimane et al. [44] ont répondu à cette question, en étudiant le système Cu/ $Al_2O_3$  réalisé par thermocompression sous différentes atmosphères contrôlées à 1000 °C sous 6 MPa et deux temps, 30 minutes et 2 heures.

La figure I.11 répond à notre question à savoir :

La teneur en oxygène et par suite l'atmosphère de liaison joue un grand rôle sur les propriétés mécaniques des assemblages métal/oxyde, soit par une action directe au niveau de la création de liaisons intermoléculaires fortes soit par la formation de nouvelles phases interfaciales.

Ainsi, dans le cadre d'un système « non réactif »  $P_{O_2} < 4.9 \cdot 10^{-3} \text{ Torr}$ , une faible teneur en oxygène dans l'atmosphère peut entraîner la formation de clusters M-O de caractère ionique coté métal et une faible teneur en lacune oxygène, coté céramique. Pour avoir une tenue mécanique optimale, il faut obtenir l'adaptation des surfaces grâce à un palier de thermocompression suffisamment long (2h). Si  $P_{O_2} > 4.9 \cdot 10^{-3} \text{ Torr}$ , il y a formation de  $CuAlO_2$ . Là encore, l'adaptation des surfaces est nécessaire mais obtenue plus rapidement qu'en système non réactif. Une forte teneur d'oxygène ( $P_{O_2}$  élevée) conduit à l'oxydation du cuivre et par conséquent à des tenues mécaniques médiocres.

Selon la physique de la charge d'espace que nous appliquerons plus loin, une faible teneur en oxygène, entraîne une augmentation des lacunes d'oxygène au niveau de l'interface : cela conduit à un stockage d'énergie de polarisation accrue au niveau de l'interface donc à une fragilisation de cette dernière. On notera de plus que si l'on retient cette hypothèse diélectrique, une augmentation de l'énergie de polarisation conduit à une augmentation du coefficient de frottement donc entraîne une déformation plus lente du métal et par suite une adaptation interfaciale plus lente. Cela est très cohérent avec l'augmentation plus rapide de la tenue mécanique des assemblages. Ces résultats tendent à prouver que l'énergie de rupture interfaciale en présence de  $\text{CuAlO}_2$  serait supérieure à celle du système non réactif, et que cette transition se produit avec ou sans formation de  $\text{Cu}_2\text{O}$ . Ceci est en accord avec les très bonnes tenues mécaniques observées lors de liaisons directes par eutectique optimisée qui sont toujours réactives.

En effet, *Béraud* et *Courbière* [8,3] avaient étudié l'évolution comparative des propriétés mécaniques des assemblages  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cu}/\text{Al}_2\text{O}_3$  réalisés sous argon soit à l'aide de cuivre non oxydé, soit à l'aide de cuivre préoxydé superficiellement en  $\text{Cu}_2\text{O}$ . On notera que la teneur exacte en oxygène dans le four de thermocompression n'était pas connue dans ces expériences. Ces auteurs ont montré après avoir réalisé l'assemblage  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cu}/\text{Al}_2\text{O}_3$  sous 4 MPa à 1000 °C que :

Après 6 h de liaison, avec du cuivre non oxydé, la zone interfaciale correspond à une liaison directe  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cu}$  mais avec présence d'une couche d'alumine recristallisée. Pour le cuivre oxydé, avec 0.7  $\mu\text{m}$  de  $\text{Cu}_2\text{O}$ , il y a formation à l'interface d'une couche de  $\text{CuAlO}_2$  d'environ 0.3  $\mu\text{m}$  au bout de 2 heures. Cette couche disparaît dans le temps pour laisser place à une couche d'alumine recristallisée, provoquée par la décomposition du  $\text{CuAlO}_2$ , et de nombreux précipités de Cu et  $\text{Cu}_2\text{O}$ . Cette microstructure complexe fait chuter la tenue mécanique de l'assemblage. Pour des épaisseurs fortes de  $\text{Cu}_2\text{O}$  (2.2  $\mu\text{m}$ ) la persistance de  $\text{Cu}_2\text{O}$  à l'interface, quel que soit le temps, rend la liaison toujours médiocre.

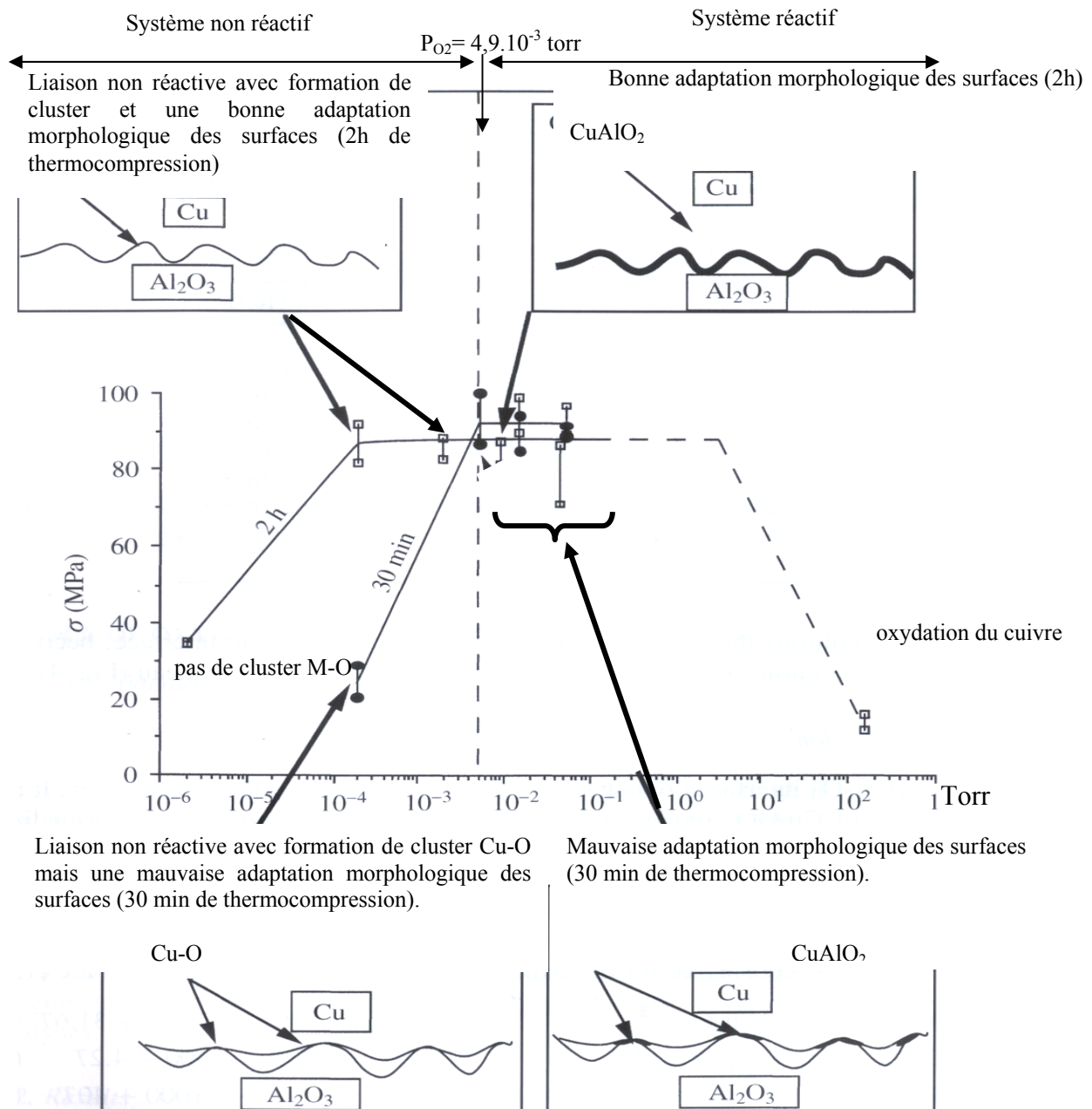


Figure I.11: Résultats et interprétation des contraintes à rupture du système Cu/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> en fonction de la pression partielle d'oxygène ( $T = 1000$  °C,  $P = 6$  MPa) [44].

### I.3. CONCLUSION

L'ensemble de ces résultats montre clairement que la réalisation d'un assemblage métal/céramique pose des problèmes fondamentaux que nous allons analyser dans le chapitre suivant :

- Notions physico-chimiques liées à la création de liaisons chimiques à l'interface avec ou sans réaction chimique (système réactif et non réactif).
- Analyse mécanique de la tenue des assemblages : mécanique de la rupture interfaciale et contraintes résiduelles.

## CHAPITRE II

# ADHÉSION ET ADHÉRENCE DANS LES ASSEMBLAGES MÉTAL/CÉRAMIQUE

*Le but de ce chapitre est de faire une synthèse concernant l'adhésion et l'adhérence et de voir quels paramètres entrent en jeu dans la tenue des différentes interfaces métal/céramique réalisées (métal/ $\text{Al}_2\text{O}_3$  et métal/SiC) dans notre étude.*

*Nous commençons le chapitre par des considérations très générales et nous verrons quelles difficultés se posent pour définir « adhésion » et « adhérence ». Nous choisissons de différencier le phénomène microscopique du phénomène macroscopique. Dans les deux cas nous, essayons d'énumérer les différents facteurs influençant la tenue des interfaces métal/céramique.*

*Enfin, nous nous intéressons plus particulièrement au comportement mécanique à l'interface et à l'influence des sollicitations extérieures sur la rupture des assemblages métal/céramique.*

## II.1. DEFINITION DE L'ADHÉSION ET DE L'ADHÉRENCE

Tout d'abord posons les questions : qu'est ce que l'adhésion ? qu'est ce que l'adhérence ?

En raison du grand champ couvert par le mot « adhésion », il n'existe pas de critère physique permettant de définir de façon universelle l'adhésion. De nombreuses propriétés peuvent intervenir dans le phénomène d'adhésion et le rendent difficile à interpréter : relation d'orientation, ségrégation, chimie des surfaces mises en présence, déformation élastique ou plastique, mais aussi présence d'impuretés venant de l'environnement. Pour être précis en parlant de l'adhésion, il est bon de différencier le phénomène macroscopique du phénomène microscopique. Deux définitions précises sont données dans [45].

### ✓ *Point de vue physicochimique microscopique : « Adhésion »*

L'adhésion correspond à la formation d'une interface entre deux corps suffisamment proches pour qu'il existe des forces interatomiques ou intermoléculaires entre eux (cf. chapitre I, § I.2.3).

L'adhésion microscopique prend donc en compte les liaisons atomiques ou moléculaires présentes dans le système où le phénomène macroscopique est constaté. C'est une propriété intrinsèque commune aux deux matériaux mis en présence. On utilise parfois le terme « adhésion thermodynamique » [43,45,46].

Toute surface ou interface est associée à l'apparition d'un excès d'énergie libre appelée énergie de surface ou d'interface selon les cas. Une liaison entre le métal et la céramique, est alors donnée par le travail d'adhésion ( $W_{ad}$ ), qui s'exprime par l'équation de Dupré :

$$W_{ad} = \gamma_c + \gamma_m - \gamma_{m/c} \quad \text{II.1}$$

$\gamma_c$  : Énergie de surface libre de la céramique,  
 $\gamma_m$  : Énergie de surface libre du métal,  
 $\gamma_{m/c}$  : Énergie de l'interface métal-céramique.

D'après la relation II.1, le travail d'adhésion sera d'autant plus grand et l'interface d'autant plus forte que l'énergie d'interface  $\gamma_{m/c}$  sera faible et que les énergies de surface du métal et de la céramique seront grandes.

### ✓ *Point de vue macroscopique : « Adhérence »*

On dit que deux corps solides adhèrent macroscopiquement quand [47]:

- il existe entre eux une interface qui persiste si le système est sollicité dans n'importe quelle direction,



- le tenseur des contraintes appliqué aux deux corps est continu à la traversée de l'interface et reste continu lors d'une sollicitation.

L'adhérence correspond donc à un phénomène comportant aussi des aspects mécaniques. Elle dépend de la géométrie des corps en présence, de leur histoire et des contraintes appliquées (direction, intensité, durée de la charge) [45], et d'une façon générale de tous les phénomènes dissipatifs d'énergie [1].

## II.2. ASPECT DE L'ADHÉSION LIQUIDE/SOLIDE

### II.2.1. Critère énergétiques et mouillabilité (approche thermodynamique)

La plupart des mesures de travail d'adhésion sont effectuées à partir d'un système métal liquide/céramique à partir de la notion de mouillabilité. La mouillabilité correspond en fait à la variation d'énergie libre produite lors de la rupture du contact d'un solide et d'un liquide sur une unité de surface. Lorsqu'un solide est en contact avec un liquide, l'énergie libre du système diminue de cette quantité par unité de surface.

Dans le cas des liaisons métal/céramique, l'énergie interfaciale métal(liquide)/céramique (solide) est habituellement caractérisée par l'angle de contact  $\theta$  liquide/solide formé à la ligne triple du système composé du métal liquide ( $\gamma_m$ ), de la céramique solide ( $\gamma_c$ ) et de l'interface solide/liquide ( $\gamma_{m/c}$ ) (Figure II.1). Deux configurations peuvent apparaître :

- un mouillage partiel caractérisé par un angle de contact compris entre 0 et 180°. Le liquide tend à prendre la forme d'une calotte sphérique. Si l'angle de contact est supérieur à 90° le liquide est dit non-mouillant, dans le cas contraire il est dit mouillant,
- un mouillage parfait, caractérisé par un angle de contact nul, conduit à la formation d'un film liquide recouvrant le solide. Dans le cas des systèmes de type métal liquide/céramique, le mouillage parfait reste un cas exceptionnel [48,49,50].

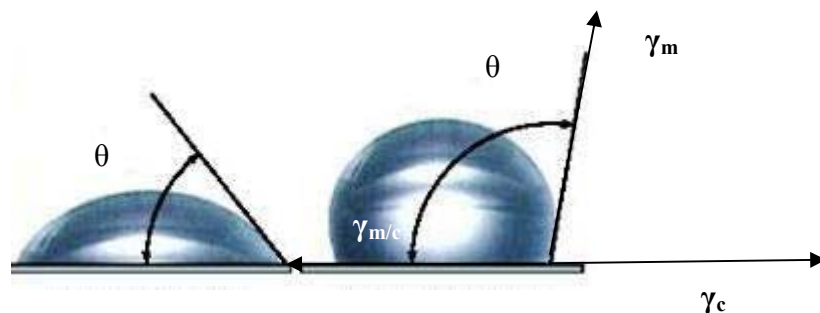


Figure II.1: Définition de l'angle de contact  $\theta$ .

Il y a formation de l'interface si  $\gamma_{m/c} < \gamma_m + \gamma_c$ . La plupart des mesures de travail d'adhésion correspondent à une configuration métal liquide/céramique solide et sont effectuées par la méthode de la goutte posée en utilisant la relation de Young-Dupré :

$$W_{ad} = \gamma_m (1 + \cos\theta) = \gamma_c + \gamma_m - \gamma_{m/c} \quad \text{II.2}$$

$\theta$  étant l'angle de contact liquide/solide.

Généralement, les angles de mouillage entre une céramique solide et un métal liquide sont supérieurs à  $90^\circ$  (Tableau II.1), ce qui conduit à des travaux d'adhésion ( $W_{ad}$ ) de l'ordre de  $500 \text{ mJ/m}^2$ . Bien que ces énergies soient faibles, elles ne sont pas interprétables uniquement en termes de force de van der Waals ( $W_{vdw}$ ).

Métal	Céramique	Température (°C)	Atmosphère	Angle de contact (degré)	Travail d'adhésion ( $\text{mJ/m}^2$ )
Ni	$\text{Al}_2\text{O}_3$	1500	He	140.7	340
Fe	$\text{Al}_2\text{O}_3$	1550	He	128.7	540
Cu	$\text{Y}_2\text{O}_3$	1550	Ar	128	450

Tableau II.1 : Angles de contact et travail d'adhésion pour certains métaux et oxydes céramiques [51].

Mc Donald et Eberhart [52], Naidich [48] et Châtain et al. [49,50] ont fait intervenir des interactions de types chimiques ( $W_{ch}$ ) à l'interface entre le métal et la céramique pour le calcul du travail d'adhésion. Celui-ci s'écrit alors :

$$W_{ad} = W_{vdw} + W_{ch} \quad \text{II.3}$$

En se basant sur la polarisabilité des anions (ions oxygènes dans l'oxyde) et sur l'arrangement électronique des surfaces des oxydes De Weyl, Mc Donald et Eberhart [52] ont supposé qu'il existe à l'interface entre les plans (0001) du saphir et les métaux, pour les couples métal/saphir, des interactions chimiques entre les cations métalliques  $M^+$  qui occupent des sites normalement occupés par les cations aluminium ( $\text{Al}^{+3}$ ) de l'alumine, et les anions oxygène  $\text{O}^{2-}$  ( $M \text{ O}^{2-}$ ). Cette interaction chimique est proportionnelle à l'enthalpie libre de formation  $\Delta G_f^0$  de l'oxyde du métal (M) selon la relation [48] :

$$W_{ad} = W_{vdw} - a \Delta G_f^0 \quad \text{II.4}$$

Où  $a$  est une constante.

L'énergie d'adhésion est donc d'autant plus élevée que l'enthalpie libre de l'oxyde du métal est fortement négative (oxyde thermodynamiquement très stable).

Citons aussi le modèle plus sophistiqué et plus rigoureux de *Chatain et al.* [49] qui proposent une expression plus complexe basée sur des hypothèses très bien vérifiées :

- expérimentalement, l'énergie d'adhésion dépend peu de la température ce qui veut dire qu'elle est liée à des énergies de liaison et non à des enthalpies libres [49],
- prise en compte d'interactions métal-ion oxygène ( $\text{Me}^-\text{O}_2^{2-}$ ) et métal-cation de l'oxyde ( $\text{Me}^+\text{Al}$ ) dans le cas de l'oxyde alumine ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) [49].

Dans le cas des liaisons métal/céramique, et au cours du processus de la formation de la liaison à l'interface, le nuage électronique du composé métallique repousse les charges négatives des ions oxygène prédominant à la surface de la céramique. Ceci engendre généralement des angles de mouillage élevés entre les métaux liquides et les oxydes, ce qui est caractéristique d'une mauvaise mouillabilité et donc d'un travail d'adhésion très faible. Le mouillage des surfaces est alors insuffisant pour permettre l'établissement d'une bonne liaison mécanique entre le métal et la céramique oxyde. Ceci impose de réaliser des traitements de surface de la céramique (métallisation) ou d'utiliser des alliages contenant des éléments réactifs avec la céramique. C'est aussi la raison pour laquelle les techniques de liaison à l'état solide, comme la thermocompression que nous utiliserons, sont basées sur la création de grandes surfaces de contact en évitant la fusion du métal permettant ainsi un contact en contournant le problème du mouillage.

Notons que les mesures directes d'énergie d'adhésion à l'état solide sont peu nombreuses ; elles sont délicates à mettre en œuvre. Les mesures sont effectuées à partir de la mesure de l'énergie interfaciale  $\gamma_{m/c}$ , qui peut être déterminée à l'équilibre, par les angles de contact ( $\Omega$  et  $\Phi$ ) (Equation II.5) obtenus aux joints de grains de la céramique respectivement en l'absence et en présence de métal liquide sur des gouttes de métaux solidifiées (Figure II.2). Le travail d'adhésion relevé ne correspond pas forcément au travail théorique calculé avec la relation II.2. L'une des méthodes employées est la mesure de la contrainte nécessaire au décollement de la goutte solidifiée sur le substrat céramique [53,28,54]. *Nicholas et al.* [55] ont proposé une relation entre la contrainte normale à la rupture  $\sigma$ , l'angle de mouillage, et la force tangentielle  $F$  appliquée pour décoller la goutte. Ceci rejoint en fait, comme nous le verrons plus loin, la notion d'adhérence.

$$\gamma_{mc} = \gamma_{cv} \frac{\cos\left(\frac{\Omega}{2}\right)}{\cos\left(\frac{\Phi}{2}\right)} \quad \text{II.5}$$

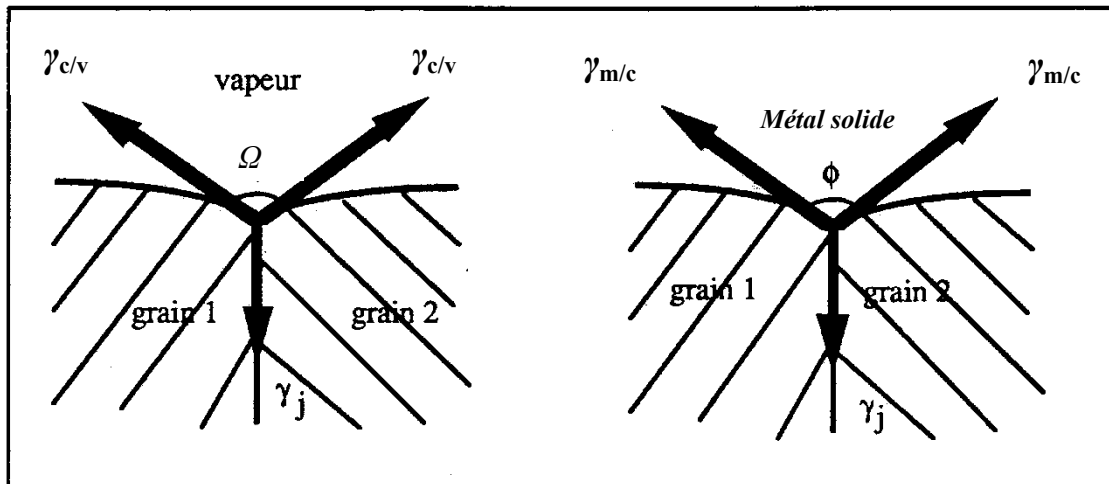


Figure II.2: Schéma de principe des mesures d'énergies d'interface à l'état solide.  $\gamma_{m/c}$  énergie interfaciale métal-céramique,  $\gamma_{c/v}$  énergie interfaciale céramique-vapeur.

### II.2.2. Adhésion : approche physique

Les propriétés physiques de l'interface, basées sur la théorie électronique des solides sont beaucoup moins utilisées que la mouillabilité pour décrire l'adhésion. Néanmoins, de plus en plus d'auteurs voient dans cette théorie une bonne explication aux phénomènes d'accrochage à l'interface. Pour *Stoneham et al.* [56], la plus importante des caractéristiques d'une interface entre un oxyde et un métal réside dans le brusque changement de la constante diélectrique entre ces deux matériaux. *Derjaguin et al.* [57] ont comparé le système métal/céramique à un condensateur plan dont les plaques sont constituées par la double couche électrique formée lorsque deux matériaux de nature différente sont en contact. Il a défini un potentiel de décharge qui est attribué à la rupture à l'interface.

Si l'on considère le modèle le plus simple, qui est celui des clusters, l'interface alumine/métal est assimilée à un cluster formé par  $(AlO_6)^{9-}$  et un atome métallique. Les calculs effectués sur cette base ont établi que les premières interactions métal/oxyde prennent en compte les orbitales (d) du métal et les orbitales (p) de l'oxygène, pour créer les orbitales liantes et anti-liantes. Pour le cas du Ni et du Fe, les états anti-liants sont moins occupés ce qui favoriserait la liaison ; alors que dans le cas du Cu et de l'Ag, les états liants et anti-liants sont occupés de façon identique ; il n'y a donc pas de liaison au sens des orbitales. Le modèle révèle également l'existence d'un transfert de charges de valence qui se traduit par une contribution à la liaison ionique. Cette contribution augmente avec la noblesse du métal [58]. Le problème a été aussi traité à partir de calculs de dynamique moléculaire qui montrent l'apparition d'états MIGS (Metal Induced Gap States) dans la bande interdite [59].

Le tableau II.2 donne une comparaison entre  $W_{ad}$  (L/S) et  $W_{ad}$  (S/S) pour différents métaux avec  $Al_2O_3$ . On notera qu'en tout état de cause, le travail d'adhésion est généralement inférieur à  $1 \text{ J/m}^2$  [20].

<i>L/S</i>						
<i>Métal</i>	<i>Température (K)</i>	<i>Atmosphère</i>	<i>Angle de contact <math>\theta^\circ</math></i>		<i>Travail d'adhésion <math>J/m^2 (S/L)</math></i>	<i>Références</i>
Ag	1373	Ar-H <sub>2</sub>	130		0.323	[60]
Au	1373	He	140		0.265	[60]
Cu	1423	Vide secondaire	128		0.490	[60]
Ni	1773	He	141		0.340	[61]
Al	1150	Vide secondaire	82		0.950	[61]
Pb	1173	Ar-H <sub>2</sub>	120		0.735	[61]

<i>S/S</i>						
<i>Métal</i>	<i>Température (K)</i>	<i>Atmosphère</i>	<i><math>\gamma_m (J/m^2)</math></i>	<i><math>\gamma_i (J/m^2)</math></i>	<i>Travail d'adhésion <math>J/m^2 (S/S)</math></i>	<i>Références</i>
Ag	708	H <sub>2</sub>	1.040	1.630	0.435	[62]
Au	1273	Air	1.260	1.725	0.530	[62]
Cu	1123	H <sub>2</sub>	1.390	1.925	0.475	[62]
Ni	1273	He	1.790	2.140	0.645	[63]
Pt	1173	Air	2.100	1.050	0.800	[64]

Tableau II.2: Comparaison entre les énergies d'adhésion liquide/solide et solide/solide pour différents couples métal/alumine.

## II.3. FACTEURS INFLUANT LE TRAVAIL D'ADHÉSION

### II.3.1. Orientation cristallographique

Lors de la liaison métal/céramique, le gain d'énergie nécessaire pour obtenir une bonne liaison dépend de l'énergie superficielle des matériaux et d'éventuelles réactions chimiques interfaciales. Or, expérimentalement l'énergie superficielle  $\gamma$  des matériaux cristallins varie suivant l'orientation cristallographique. Ainsi, pour un métal CFC nous avons  $\gamma(111) > \gamma(100) > \gamma(110)$  [65].

D'un point de vue purement énergétique, la liaison doit donc mieux s'effectuer entre la céramique et la face (110) du métal. Expérimentalement, d'un point de vue, cette fois-ci, purement cristallographique, la face (111) hexagonale du métal CFC convient mieux pour une liaison avec la face (0001) de l'alumine [65].

Des calculs théoriques [66,67] réalisés pour les interfaces SiC/Al pour différentes orientations ont mis en évidence dans chacun des cas un travail d'adhésion moins important pour la face C (c'est-à-dire celle qui se termine par un atome de carbone) que pour la face Si comme le montrent les valeurs présentées dans le tableau II.3.

	$(111)_{Al} (0001)_{SiC}$ $[110]_{Al} [2110]_{SiC}$	$(100)_{Al} (0001)_{SiC}$ $[110]_{Al} [2110]_{SiC}$
Face C	$W_{ad} = 0.73 \text{ J/m}^2$	$W_{ad} = 1.11 \text{ J/m}^2$
Face Si	$W_{ad} = 1.18 \text{ J/m}^2$	$W_{ad} = 1.26 \text{ J/m}^2$

Tableau II.3 : Travaux d'adhésion calculés pour des interfaces SiC/Al [67].

Suivant l'orientation cristallographique du métal sur SiC, la différence varie de 0.15 à 0.4 J/m<sup>2</sup>. Rado [68] a étudié l'influence de la polarité de SiC sur son mouillage par plusieurs métaux (Ni, Cu...). Il a montré que la face C est moins bien mouillée par le métal que la face Si (l'angle de contact est de 5° à 10° supérieur dans le cas d'une face carbone). Le travail d'adhésion est donc plus important pour la face Si. La différence entre les deux faces est faible mais significative de l'ordre de  $\Delta W_{ad} = 0.1 \text{ J/m}^2$ . Sur le système Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ni différents auteurs ont mis en évidence des relations d'orientation entre le nickel et l'alumine [51,69,70]:

(111) Ni // (0001) Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

{111} Ni // {113} Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> avec [110] Ni // [1211] Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

{111} Ni // {113} Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> avec [110] Ni // [1211] Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>

Ces relations d'orientation ne sont pas cependant les seules que l'interface peut prendre.

### II.3.2. Présence d'impuretés

La présence d'impuretés dans les joints de grains peut soit fragiliser, soit au contraire consolider une interface [71]. Ce phénomène de ségrégation qui met en jeu des monocouches ou des fractions de monocouches d'impuretés aux interfaces est très complexe. Si la ségrégation diminue l'énergie d'interface, il y a consolidation. La fragilisation peut intervenir par des transferts de charges qui affaiblissent les liaisons électroniques.

Hong *et al.* [66] ont étudié l'influence de la présence d'impureté sur l'adhésion des interfaces MgO/Al et MgO/Ag, en dopant les substrats de MgO par C ou Si. Dans la plupart des cas, une diminution du travail d'adhésion est observée. Cette diminution varie entre 9 % et 61 %. A l'inverse, on peut citer le cas d'une interface métal/céramique Au/MgO, où une consolidation est obtenue par l'interposition d'atomes de Fe à l'interface. Ceux-ci assurent la liaison O-Fe et la liaison métallique.

Plusieurs auteurs ont étudié l'adhésion du cuivre sur l'alumine [49,50]. Li Jiang Guo [72] a étudié la mouillabilité de l'alumine mono et polycristalline par le cuivre pur ou du cuivre contenant des éléments d'additions (Sn, Al, Si). Le choix de ces éléments d'additions est basé d'une part sur leur non réactivité avec l'alumine et d'autre part sur leur adsorption à l'interface. Il a montré que l'addition au cuivre, pour le couple Cu/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, d'une fraction molaire d'aluminium ( $X_{Al} > 30 \%$  at) ou de silicium ( $X_{Si} > 20 \%$  at) améliore considérablement le mouillage et minimise l'énergie interfaciale  $\gamma_i$ . L'addition de 10 % d'étain (Sn) à ces alliages pour des fractions molaires ( $X_{Al}$ ,  $X_{Si}$ ) faibles, diminue l'angle de contact  $\theta$  sous l'effet d'adsorption de l'aluminium et de

silicium en surface du cuivre liquide et à l'interface, activé par les énergies d'attraction (Cu-Sn) et de répulsion entre (Sn- Al) et (Sn-Si).

### ***II.3.3. Réactions chimiques***

Dans le cas d'une réaction chimique, l'interaction entre métal et céramique à l'interface se fait par l'intermédiaire d'un transfert de masse. Une réaction chimique se produit ou non selon les propriétés thermodynamiques de l'interface et les conditions de réaction comme la température, la pression, l'atmosphère. Cette réaction se caractérise le plus souvent par l'apparition de produits de réaction à l'interface qui peuvent modifier du tout au tout les propriétés de la zone interfaciale métal/céramique. De nombreux facteurs peuvent influencer la tenue mécanique de l'interface. Cette dernière dépend des propriétés mécaniques du produit formé ainsi que de son épaisseur [50,73].

Des résultats expérimentaux montrent que l'épaisseur de la phase formée joue un rôle important. Elle est bénéfique pour l'interface si son épaisseur ne dépasse pas  $0.1 \mu\text{m}$  ; au-delà de  $1 \mu\text{m}$  elle peut avoir des effets désastreux. D'une façon générale, étant donnée la diversité des matériaux pouvant se former à l'interface (solution solide, amorphe, phase cristalline en relation d'orientation ou non...), les effets d'une zone de réaction sur l'adhésion ne sont pas encore bien connus [73].

### ***II.3.4. Application au système Ni/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>***

L'oxygène dissout dans les métaux liquides est tensioactif ce qui engendre que l'angle de contact entre une céramique et un métal liquide est abaissé substantiellement quand la concentration en oxygène dans le liquide croît. Il en est de même pour le métal à l'état solide [3].

*Ritter et al.* [28] montrent que la résistance maximale au cisaillement de la liaison Ni/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> est obtenue sous vide. L'auteur attribue l'augmentation de la résistance dans l'argon impur à la présence plus importante d'oxygène que dans l'argon pur. Par contre, il a été montré que l'angle de contact est peu dépendant du plan cristallographique ou de l'atmosphère de travail. Les tableaux II.4 et II.5 montrent cette faible dépendance [20,28,74,3].

Température (K)	Atmosphère	Plan de surface de l'alumine	$\Theta$ (°)
1823	Ar + H <sub>2</sub>	0112	108
1773	Vide secondaire	0001	110
1773	Vide S, Ar, H <sub>2</sub>	1012	109
1773	Vide secondaire	1012	108
1730	He	quelconque	112

Tableau II.4 : Influence de l'orientation cristallographique de l'alumine sur l'angle de contact du Nickel [3,20,28].

Impuretés ppm	Atmosphère	$\Theta$ (°)	$\gamma_{LV}$ J/m <sup>2</sup>
91	Vide	108.1	1.667
10	Vide	111.3	1.664
91	Argon impur	110.3	1.777
10	Argon impur	110.8	1.779
91	Argon pur	109.1	1.768
10	Argon pur	107.1	1.650
91	Hydrogène pur	109.1	1.768
10	Hydrogène pur	109.0	1.835

Tableau II.5 : Influence de l'atmosphère sur l'angle de contact du nickel sur l'alumine [74].

L'angle de contact qui s'établit entre le nickel et l'alumine en l'absence d'une concentration suffisante en oxygène est de l'ordre de 110°. L'oxygène paraît donc comme le seul paramètre susceptible de faire varier dans une forte proportion l'angle de contact du nickel liquide sur l'alumine et donc de faire varier le travail d'adhésion.

Il a été montré d'une façon quasi certaine dans la liaison Ni/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> l'existence d'une liaison chimique autre que l'interaction de van der Waals. *Johnson et al.* [75] ont montré qu'une liaison directe métal sur oxyde était possible et qu'elle était ionocovalente. La liaison chimique covalente est attribuée à la liaison qui s'établit entre les atomes du métal et les anions oxygène de la surface de l'alumine. En revanche, la contribution de la composante ionique de la liaison est proportionnelle à la différence d'électronégativité de l'orbitale (d) du métal et de l'orbitale (p) de l'oxygène. Mais l'alumine et le nickel peuvent aussi réagir pour donner un composé défini de type spinelle NiAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub> au-dessus de 1000 °C. Le diagramme NiO/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> est donné par la figure II.3.



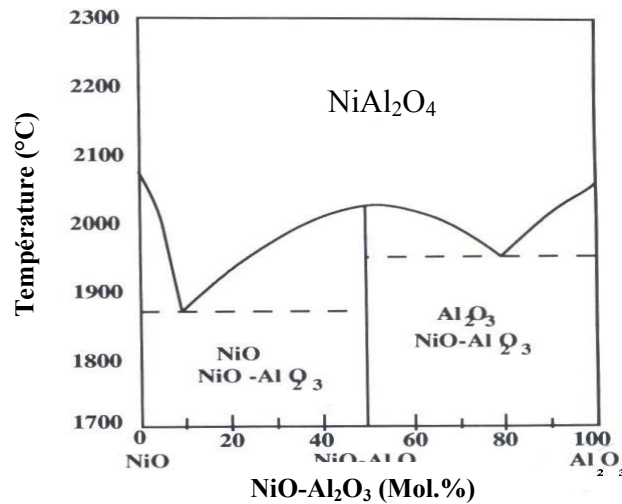


Figure II. 3 : Diagramme binaire  $Al_2O_3$ -NiO.

Trumble *et al.* [58] ont montré qu'il n'est pas nécessaire de mettre de l'oxyde de nickel en contact avec de l'alumine pour former le spinelle  $NiAl_2O_4$  mais qu'il est possible de former ce dernier à partir du nickel pur même dans des conditions de vide très poussé. La formation du spinelle est fortement dépendante du taux d'oxygène contenu d'une part dans l'atmosphère de liaison et d'autre part dans le nickel. La pression partielle d'oxygène nécessaire à la formation du spinelle est :  $P > 3,8 \cdot 10^{-8}$  atm à 1663 K. Les auteurs montrent dans leur étude que l'épaisseur maximale de spinelle qu'il est possible d'obtenir dépend de la quantité d'oxygène dissout dans le nickel et de l'épaisseur de nickel. Aussi il semble que l'orientation cristallographique de l'alumine puisse avoir une influence sur la formation de  $NiAl_2O_4$ , la vitesse la plus faible est relevée sur les plans  $\{0001\}$  de l'alumine. L'influence du spinelle sur le comportement mécanique de la liaison est assez mal connue, et des résultats contradictoires apparaissent dans la littérature. Pour certains auteurs, il conduit à une interface très résistante [53,76,77], alors que d'autres considèrent que le spinelle fragilise la liaison [24,78].

Drillet [32] a mis en évidence par microscopie électronique en transmission, une phase amorphe du type alumino-silicate à l'interface entre le nickel et l'alumine polycristalline industrielle ( $Ni/Al_2O_3$ ) réalisée par thermocompression. La formation de cette phase est due à la migration vers l'interface  $Ni/Al_2O_3$  des impuretés initialement présentes dans la céramique lors de son élaboration. L'auteur ne précise pas l'influence de la formation de cette phase sur la tenue mécanique des assemblages.

## II.4. ADHÉRENCE

D'un point de vue microscopique, nous avons vu que la force de la liaison à l'interface est caractérisée par le travail d'adhésion. D'un point de vue macroscopique, il faut aussi tenir compte du comportement mécanique de l'interface et des corps en présence. Dans un premier temps, nous définissons les mécanismes de fissuration à l'interface ainsi que le paramètre caractérisant la force d'une interface, définie par l'énergie de rupture interfaciale  $G_c$ . Dans un second temps, nous parlons des différentes trajectoires de fissures possibles. Nous voyons enfin le rôle des concentrations de contraintes résiduelles dans la fissuration des assemblages métal/céramique.

### II.4.1. Comportement mécanique à l'interface

La nécessité de comprendre l'endommagement des multimatériaux sous l'effet de sollicitations extérieures a conduit à la mise en place de concepts nouveaux en mécanique de la rupture. La théorie classique de l'endommagement développée pour les matériaux isotropes métalliques ou céramiques est insuffisante pour rendre compte des phénomènes qui interviennent par exemple dans un assemblage métal-céramique.

Les bimatériaux et plus particulièrement les assemblages métal-céramique, du fait de la présence d'une interface, milieu non homogène, ont un comportement singulier vis-à-vis de la rupture. Celle-ci peut intervenir de plusieurs manières [47,79] :

- fragile ou ductile dans le volume de l'un ou l'autre des matériaux en général dans la céramique (rupture cohésive),
- adhésive suite à la propagation d'une fissure dans l'interface,
- mixte, suite à la déviation d'une fissure pré-existante dans l'interface dans l'un ou l'autre des matériaux massifs.

Le comportement vis-à-vis de la rupture d'un multimatériau est fortement dépendant :

- de la distribution des défauts dans les trois milieux : céramique, zone interfaciale, métal,
- de la résistance intrinsèque de chaque milieu (énergies de rupture de chaque milieu),
- du niveau de la répartition des contraintes résiduelles,
- de la proportion relative de métal et de sa contrainte d'écoulement plastique.

L'ensemble conduit à une anisotropie dans les mécanismes mis en jeu lors de sollicitations mécaniques, et l'endommagement peut intervenir soit par rupture fragile dans la céramique, soit par rupture fragile ou ductile dans l'interface ou encore par rupture ductile dans le métal.

Les premiers chercheurs à s'être intéressés aux mécanismes de fissuration à l'interface entre deux matériaux sont *England et al.*, *Erdogan et al.* [80], *Rice et al.* [81]. Les notations utilisées dans cette étude bibliographique sont celles développées par *Hutchinson et al.* [82].

On considère deux matériaux liés ; chacun des matériaux possède des propriétés élastiques isotropes. *Dundurs* [83] a démontré que pour ce type de problème la solution en déformation plane ne dépend que de deux paramètres à savoir :

$$\alpha = \left[ \frac{G_1(1-\nu_2) - G_2(1-\nu_1)}{G_1(1-\nu_2) + G_2(1-\nu_1)} \right] \quad \text{II.6}$$

$$\beta = \left[ \frac{G_1(1-\nu_2) + G_2(1-\nu_1)}{G_1(1-\nu_2) - G_1(1-\nu_1)} \right] \quad \text{II.7}$$

Où :

G : Module de cisaillement des matériaux 1 et 2,

$\nu$  : Coefficient de poisson des matériaux 1 et 2.

$\alpha$  et  $\beta$  tendent vers 0 si la différence des propriétés élastiques des deux matériaux devient nulle. Cependant les paramètres  $\alpha$  et  $\beta$  peuvent avoir des valeurs négatives ou positives, selon les valeurs des constantes élastiques des deux solides.

Pour un couple de matériaux, on peut écrire le champ de contrainte agissant sur l'interface à une distance  $r$  du front de fissure sous la forme complexe suivante :

$$\sigma_{22} + i\sigma_{12} = \frac{(K_I + iK_{II})}{\sqrt{2\pi r}} r^{i\varepsilon} \quad \text{II.8}$$

avec

$$\varepsilon = \frac{1}{2\pi} \ln \left[ \frac{1-\beta}{1+\beta} \right]$$

$K_I$  et  $K_{II}$  sont des facteurs d'intensité de contrainte définis pour être compatibles avec les facteurs d'intensité de contrainte des matériaux homogènes. Ils dépendent linéairement des charges appliquées et de la forme des assemblages.

Lorsque  $\varepsilon \neq 0$ ,  $K_I$  et  $K_{II}$  ne peuvent pas être interprétés comme des facteurs d'intensité de contrainte en mode I (ouverture) et II (cisaillement) directement liés aux contraintes normales et de cisaillement, mais, pour la plupart des couples présentant un intérêt,  $\varepsilon$  reste faible. Par conséquent, un développement de la mécanique de la rupture interfaciale directement applicable à la détermination de la ténacité critique à partir des essais expérimentaux, ou bien permettant de prédire les ruptures à partir des données expérimentales n'est possible qu'en prenant  $\beta = 0$  et donc  $\varepsilon = 0$  [84]. Notons que dans ce cas de figure ( $\beta = 0$  et donc  $\varepsilon = 0$ ),  $K_I$  représente la composante normale de la singularité de contrainte en traction à l'interface,  $K_{II}$  correspond à la composante de cisaillement.

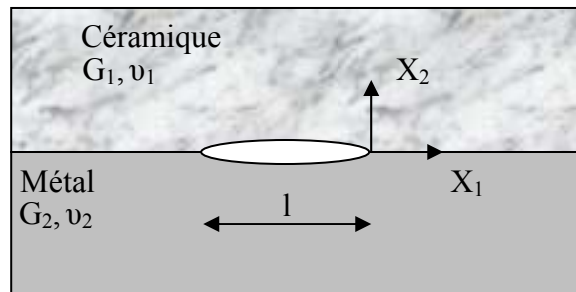
Prenons le cas d'une fissure située sous l'interface à une distance  $h$  petite par rapport à la longueur  $l$  de la fissure (Figure II.4). Lorsque  $h \rightarrow 0$  avec  $l$  fixe, la solution du problème se rapproche de celle à l'interface. *Comninou* [85] a pu développer une relation mettant en jeu les modes I et II des facteurs d'intensité de contraintes complexes au voisinage de l'interface. Le champ de contrainte en fond de fissure est de la forme :

$$\sigma_{\alpha\beta} = \text{Re} \left[ \frac{K}{\sqrt{2\pi r}} r^{i\varepsilon} \sigma_{\alpha\beta}(\theta) \right] \quad \text{II.9}$$

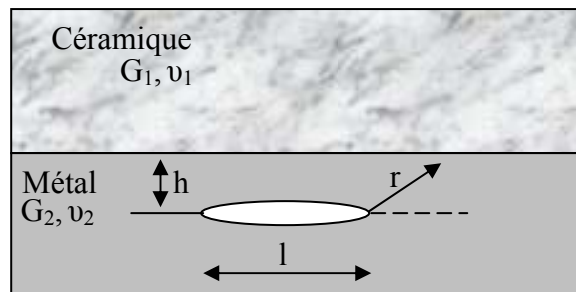
Où:

$r$  et  $\theta$  sont les coordonnées polaires par rapport à l'origine,

$K$  : facteur d'intensité de contrainte au voisinage de l'interface ( $K = K_I + K_{II}$ ) avec une dépendance angulaire pour un couple de matériaux donné.



Fissure à l'interface



Fissure sous l'interface

Figure II.4 : Représentation du problème de fissuration à l'interface.

#### II.4.2.Énergie de rupture interfaciale

D'un point de vue macroscopique, la résistance de l'interface métal/céramique peut être quantifiée par l'énergie de rupture de l'interface notée  $G_c$  (qui a la dimension d'une force).

Dans le cas où  $\varepsilon = 0$ , l'énergie de rupture interfaciale est définie comme la valeur critique du terme énergétique  $G$  associé à la propagation de la fissure dans l'interface. Selon le formalisme de Griffith, la rupture se produit quand la variation d'énergie de déformation est au moins égale à la variation d'énergie nécessaire à la création de nouvelles surfaces. Cette énergie de déformation relâchée par le corps est appelée taux de restitution d'énergie et est notée  $G$ . La fissure s'amorce donc lorsque le taux de restitution d'énergie  $G$  est au moins égal à une valeur critique  $G_c$  (énergie de rupture interfaciale).

L'énergie qui est libérée lors de la propagation sur une unité de longueur de la fissure interfaciale est reliée aux facteurs d'intensité de contrainte en mode I et II [86] :

$$G = \frac{1}{2} \left( \frac{1}{\cosh^2 \pi \varepsilon} \right) \left( \frac{E_1}{E_2} + \frac{E_2}{E_1} \right) (K_I^2 + K_{II}^2) \quad \text{II.10}$$

Cette relation est une généralisation de la formule d'Irwin pour un matériau isotrope homogène en contrainte plane.

$G$  étant une fonction de  $K_I$  et  $K_{II}$ ,  $G_c$  ne peut être défini que comme une fonction de l'angle  $\psi = \text{Arctan}\left(\frac{K_{II}}{K_I}\right)$  et peut être définie par des essais mécaniques sur des échantillons ayant des géométries bien particulières. Cependant, cette détermination expérimentale ne permet pas d'obtenir une valeur empirique de l'énergie de rupture puisqu'il a été montré que celle-ci est fortement influencée par la trajectoire de fissuration et donc par le type d'essai réalisé. Il est cependant intéressant de connaître son ordre de grandeur.

Le tableau II.6 présente différents tests utilisés pour déterminer l'énergie de rupture interfaciale. Chaque test correspond à une gamme de valeurs de  $\psi$ . Une interface métal-céramique donnée n'est donc pas caractérisée par une énergie de rupture spécifique mais par un ensemble de valeurs de  $G_c$  fonction de  $\psi$  [87,88].

Calcul du $G_c$	Tests
$G_c$ dépend des propriétés du film	<p>Test de pelage</p>
$M = \frac{Pl}{2b}$ $\frac{b^2 h^3 E G_c}{P^2 l^2} = k \left( \frac{h}{H} \right)$ <p><math>\Psi \approx 50^\circ</math></p>	<p>Test de délaminage</p>
$\frac{G_c E}{S^2 R} \approx 0.25$ <p><math>70^\circ &lt; \Psi &lt; 90^\circ</math></p>	<p>Test de pull-out</p>
$\frac{b^2 h E G_c}{P^2} = 12 \left( \frac{a}{h} \right)^2 \left[ 1 + \left( \frac{2}{3} \right) \left( \frac{h}{a} \right) \right]^2$ <p><math>0 &lt; \Psi &lt; 5^\circ</math></p>	<p>Test de double cantilever</p>
$\frac{4bwEG_c}{9P(L-l)} = a \left( 1,99 - 2,47 \left( \frac{a}{w} \right) + 12,97 \left( \frac{a}{w} \right)^2 \right)^2$ <p><math>0 &lt; \Psi &lt; 5^\circ</math></p>	<p>Test de flexion 4 points</p>

Tableau II.6 : Différents tests utilisés pour déterminer l'énergie de rupture interfaciale  $G_c$  d'une interface [22].

L'énergie de rupture interfaciale dépend du travail d'adhésion pour une faible part, mais aussi, comme dans un matériau homogène, de phénomènes physiques en bout de fissure tels que la plasticité, le frottement et la rugosité. Cette dernière apporte une contribution à l'augmentation de  $G_c$  avec l'angle  $\psi$  [47,79]. La rugosité en fond de fissure peut être schématisée de la façon suivante (Figure II.5) :

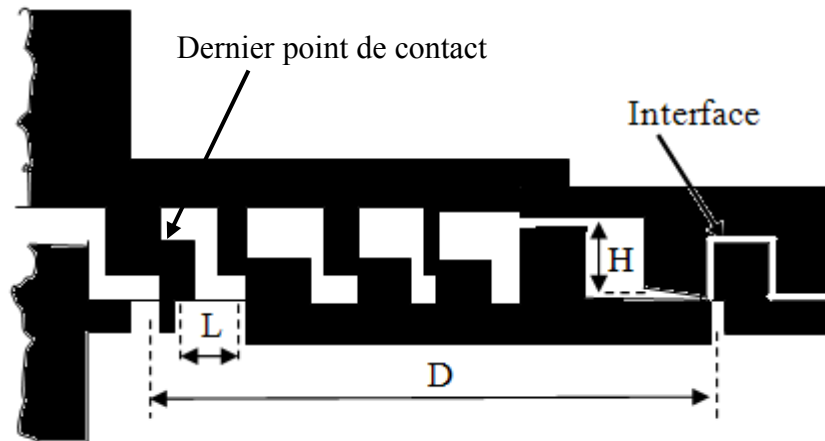


Figure II.5 : Représentation schématique de la rugosité de l'interface en fond de fissure.

Les zones de contact freinent le mouvement de la surface de la fissure par friction et blocage. Par suite la résistance à la rupture interfaciale est modifiée. La longueur de la zone de contact  $D$  et donc l'amplitude du freinage est fonction des paramètres  $\psi$  (cf. Tableau II.6) [89] :

$$\chi = \frac{EH^2}{LG_0} \quad \text{II.11}$$

$E$  : module de Young du métal,

$G_0$  : énergie de rupture interfaciale à  $\psi = 0$ ,

$D$ ,  $H$  et  $L$  définis dans la figure II.4.

- Lorsque  $\psi = 0$  ou  $\chi = 0$  : la longueur de la zone de contact  $D$  est nulle, donc la fissure n'est pas freinée.
- Lorsque  $\psi \neq 0$  ou  $\chi \neq 0$  : il peut y avoir un freinage de la fissure qui va dépendre à la fois des valeurs de l'angle  $\psi$  et du coefficient de frottement  $\mu$  et de la morphologie de la rugosité.

Un autre effet est celui de la plasticité mais aussi de tous les autres termes dissipatifs d'énergie comme le frottement. Ceci conduit à écrire d'une façon générale [1] :

$$G_c = W_{ad} + \Phi (W_{ad} + \sum \text{termes de dissipation}) \quad \text{II.12}$$

En particulier la déformation plastique apporte une forte contribution à l'énergie de rupture dans les liaisons métal-céramique [90]. L'éroussement des fissures par glissement est un aspect important de la plasticité. Les propriétés du métal, notamment sa limite d'écoulement, et la présence de défauts au voisinage de l'interface vont déterminer le mode de rupture (fragile ou ductile) et son énergie. Cependant, jusqu'à présent, les effets de la plasticité en front de fissure sont encore mal connus. Ainsi, *Evans et al.* [47] ont proposé la relation suivante.

$$G_c = W_{ad} + \underbrace{\frac{EH^2}{LG_0}}_{\text{rugosité}} + \underbrace{\frac{EW_{ad}^2}{e\sigma_E^2}}_{\text{déformation}} \quad \text{II.13}$$

$e$  : épaisseur du métal.

$\sigma_E$  : limite d'élasticité du métal.

$E$  : module de Young du métal.

Le 1<sup>er</sup> terme est le travail d'adhésion, le 2<sup>ème</sup> terme correspond à l'effet de rugosité et le 3<sup>ème</sup> à la dissipation par déformation plastique. Plus qualitativement la figure II.6 montre la variation et la dépendance de l'énergie de rupture  $G_c$  en fonction de  $\psi$  prenant en considération l'effet de la rugosité et le terme de dissipation lié à la déformation plastique [91].

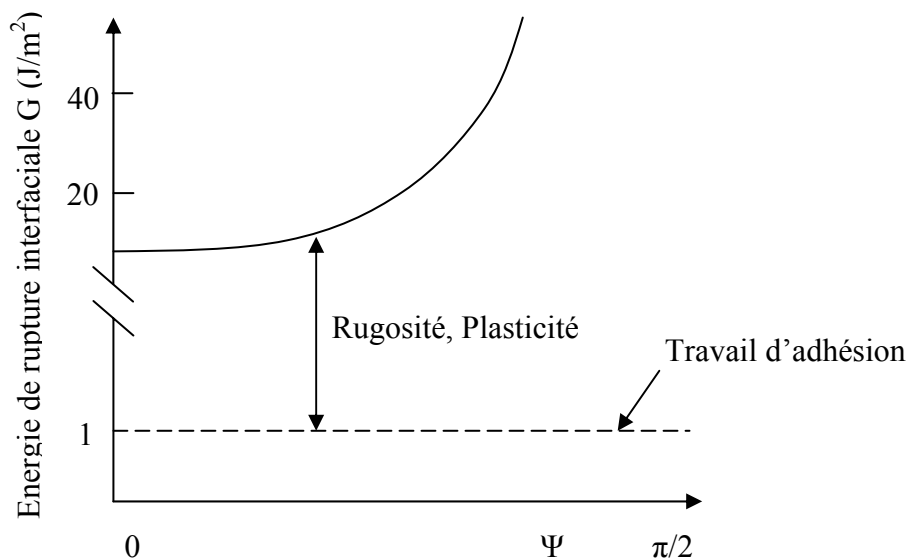


Figure II.6 : Dépendance de l'énergie avec l'angle  $\psi$  [91].

Expérimentalement, *Elsner et al.* [19] ont fait une comparaison entre les valeurs expérimentales des énergies de rupture  $G_c$  et des travaux d'adhésion pour deux types d'interface  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Nb}$  et Verre/epoxy (Tableau II.7).



	<i>Travail d'adhésion (J/m<sup>2</sup>)</i>	<i>Énergie de rupture G<sub>c</sub> (J/m<sup>2</sup>)</i>
<i>Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Nb</i>	0.82	43.4
<i>Verre/époxy</i>	0.178	58.3

Tableau II.7 : Comparaison entre le travail d'adhésion et l'énergie de rupture pour deux interfaces différentes.

On constate que l'ordre de grandeur de l'énergie de rupture est de plusieurs dizaines de J/m<sup>2</sup> alors que celui de l'adhésion est inférieur à 1 J/m<sup>2</sup>. Cette importance s'explique par le fait que la majeure partie de l'énergie est dissipée de façon irréversible par déformation plastique ou autres énergies dissipées. Pour le cas de la liaison Nb/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, les mêmes auteurs ont montré que l'énergie de rupture est dépendante de l'orientation cristallographique de la liaison. Des valeurs record ont été enregistrées dépassant les 2100 J/m<sup>2</sup> (Figure II.7).

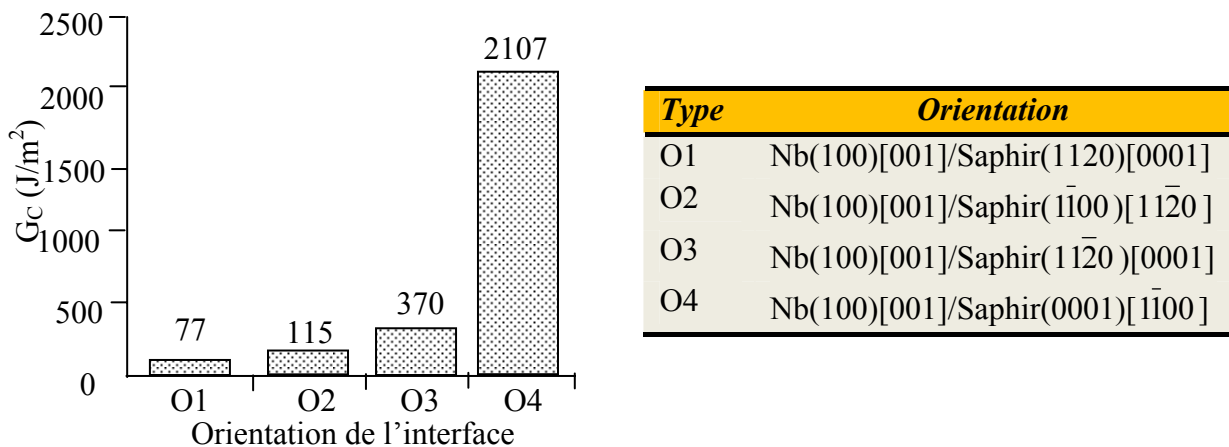


Figure II. 7: Variation du taux de restitution d'énergie  $G_C$  en fonction de l'orientation cristallographique d'une interface non dopée Nb/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (matériaux monocristallins) [19].

#### II.4.3. Trajectoire de fissure

Comme on l'a mentionné dans le paragraphe précédent, l'énergie de rupture de l'interface métal-céramique dépend fortement de la valeur du paramètre  $\psi$  et par suite du test mécanique utilisé. Si cette énergie est supérieure à celle de l'un des deux matériaux de l'assemblage, la rupture peut se produire de façon fragile [86,92]. La question qui se pose alors est : la fissure se propagera-t-elle à l'interface, à travers l'interface, dans le métal, ou dans la céramique ?

Des études approfondies sur les modes de fissuration [89,93,94] ont montré que la trajectoire des fissures dépend du mode de sollicitation : mode I (ouverture) et mode II (cisaillement). Dans le cas d'une sollicitation mixte, deux trajectoires sont possibles :

- le long de l'interface : c'est une rupture adhésive,
- en dehors de l'interface : c'est une rupture cohésive.

Un troisième type de rupture serait possible, à savoir une rupture mixte, mais sous certaines conditions décrites par *Evans et al.* [79].

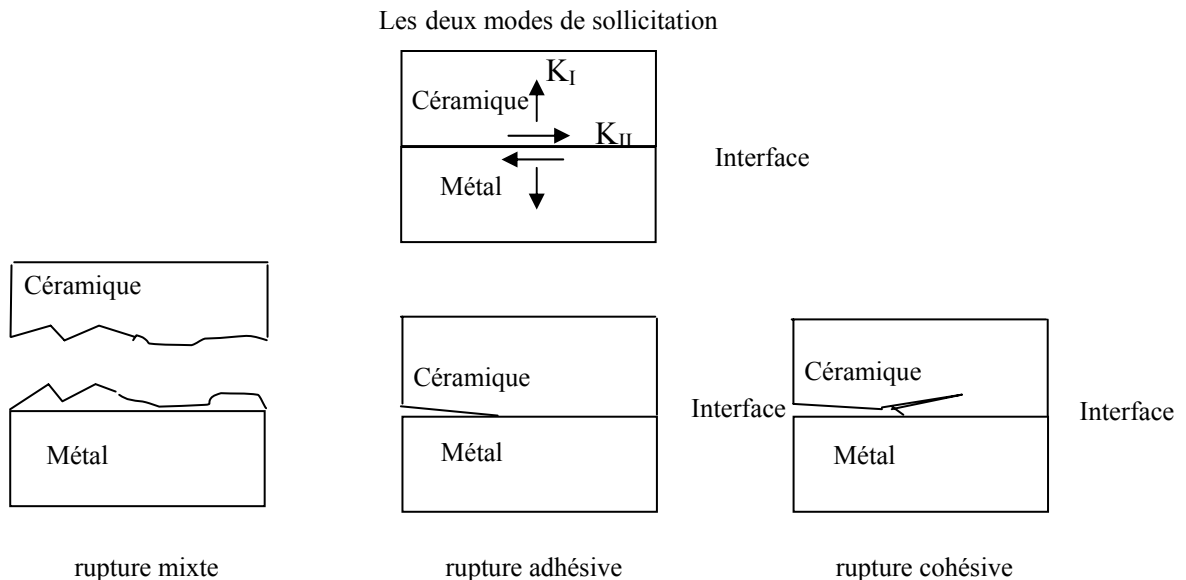


Figure II.8 : Les trajectoires de fissure dans le cas d'une sollicitation mixte.

*Evans et al.* [79] ont présenté une étude synthétique des conditions de fissuration des bimatériaux. De cette étude on peut retenir les grandes idées suivantes :

- lorsque les deux matériaux formant l'interface sont fragiles, la trajectoire de fissure dépend de l'angle  $\psi = \tan^{-1}\left(\frac{K_I}{K_{II}}\right)$ . La probabilité pour que la fissure sorte de l'interface a

été calculée et est maximale pour  $\psi = 70^\circ$ . Dans ce cas, la fissure se propage dans le matériau dont le module de Young est le plus faible,

- lorsqu'un des matériaux est fragile et l'autre ductile, le cas est encore plus complexe. Il a été montré que la trajectoire de fissuration est très sensible au signe de l'angle  $\psi$ , si  $\psi > 0$  on est ramené au cas précédent. Dans le cas contraire ( $\psi < 0$ ) la fissure reste parallèle à l'interface et alors deux cas sont possibles (Figure II.8) :

① cas où le matériau à une faible limite d'élasticité : une déformation plastique aura lieu dans la zone interfaciale et le mécanisme de propagation fera intervenir la ductilité,

② cas où le matériau présente une limite d'élasticité élevée : dans ce cas, la fissure pourra interagir avec des défauts déjà présents dans le matériau fragile et on pourra observer des morceaux du matériau fragile accrochés à la surface de fracture, c'est ce qu'on appelle une fissure mixte.

#### ***II.4.4. Types de rupture***

##### ***II.4.4.1. Rupture ductile***

C'est une rupture qui intervient dans le métal en mode d'ouverture I ( $K_I$ ). La fissure suit alors une trajectoire telle que le facteur d'intensité de contrainte en mode II soit nul ( $K_{II} = 0$ ) [95,96]. Le point d'amorçage de la rupture reste difficile à localiser, car il est fonction des défauts et du champ de contraintes au voisinage de l'interface.

##### ***II.4.4.2. Rupture fragile***

La rupture intervient par un mécanisme classique de rupture fragile, l'interface influence néanmoins la résistance mesurée en agissant comme un site de nucléation des défauts [90]. La présence de zones interfaciales non liées ou de pores situés loin de l'interface favorise ce mode de rupture.

### **II.5. LES CONTRAINTES RÉSIDUELLES**

#### ***II.5.1. Définition des contraintes résiduelles : Aspects macro et microscopique***

Les contraintes résiduelles sont des contraintes multiaxiales statiques. Elles existent dans un système en équilibre mécanique isolé, soumis à aucune force ni moment extérieur [97,98].

A cause du caractère polycristallin et hétérogène des matériaux métalliques, les sources de contraintes peuvent provenir de déformations aux échelles macro- micro- ou submicroscopiques. En effet, un matériau cristallin est constitué de phases, qui elles-mêmes sont formées de grains. Chaque grain est un monocristal qui peut être considéré dans un modèle simple, comme divisé en petits domaines séparés par un réseau de dislocations. Chaque domaine est constitué par un empilement régulier d'atomes, qui peut être défini par un ensemble de mailles cristallines identiques.

Quelle que soit l'échelle à laquelle on considère le matériau, on peut mettre en évidence des contraintes ayant pour origine des déformations assurant la continuité du matériau, par exemple autour des défauts ponctuels, des dislocations, des joints de grains, des joints d'interphase, au niveau des grains, des phases et enfin de la pièce elle-même. Trois ordres de contraintes résiduelles liés à l'échelle d'observation et de mesure ont été définis [98,99,100] :

- les contraintes résiduelles du 1<sup>er</sup> ordre ( $\sigma^I$ ) ou macroscopiques sont homogènes sur un très grand domaine du matériau (plusieurs grains : quelques 1/10 de mm). Les forces internes liées à ces contraintes sont en équilibre dans chaque section, et les moments liés à ces forces sont nuls autour de tout axe. Des variations dimensionnelles macroscopiques résultent toujours d'une modification de l'équilibre des forces et des moments liés à ces contraintes  $\sigma^I$ ,

- les contraintes résiduelles du 2<sup>ème</sup> ordre ( $\sigma^{II}$ ) sont homogènes sur de petits domaines du matériau (un grain ou une phase : quelques 1/10 de  $\mu\text{m}$ ). Les forces internes et les moments liés à ces contraintes sont en équilibre dans un assez grand nombre de grains. Des variations dimensionnelles macroscopiques peuvent résulter d'une modification de cet équilibre,
- les contraintes résiduelles du 3<sup>ème</sup> ordre ( $\sigma^{III}$ ) ou submicroscopiques sont inhomogènes sur les plus petits domaines du matériau (quelques distances interatomiques : quelques 1/10 de nm). Les forces internes et les moments liés à ces contraintes sont en équilibre dans de très petits domaines. Ces contraintes peuvent atteindre des valeurs très élevées mais les dimensions macroscopiques ne peuvent être affectées par une évolution de cette famille de contraintes résiduelles.

Dans le cas de matériaux réels, l'état de contraintes résiduelles résulte de la superposition des contraintes d'ordre I, II et III comme ceci est schématisé sur la figure II.9 dans le cas d'un matériau polyphasé.

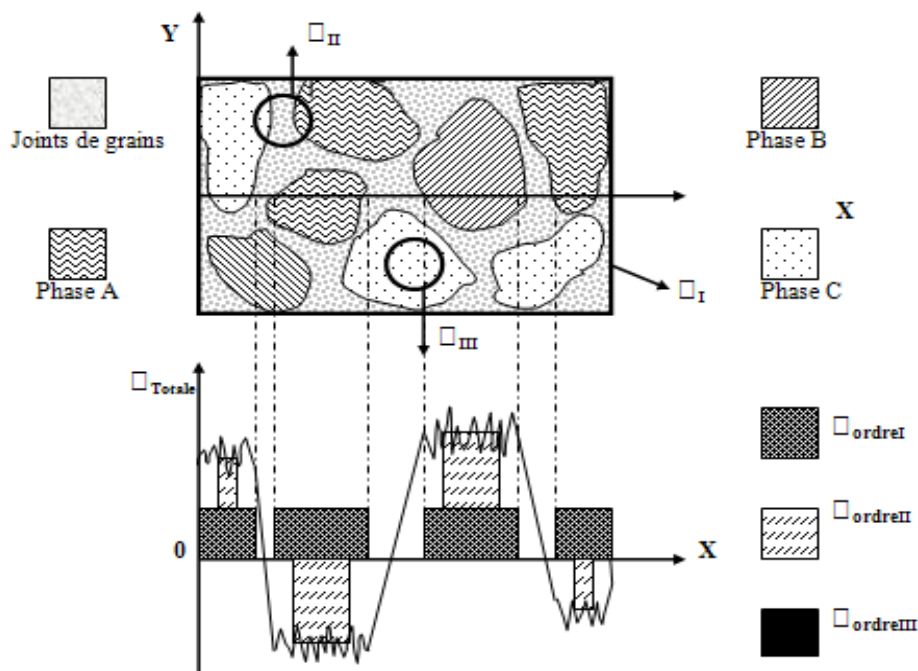


Figure II. 9 : Définition schématique des différents ordres de contraintes pour un matériau polyphasé [101,102].

Localement, la contrainte totale est la résultante des contraintes des ordres I, II et III

$$\sigma_{\text{résiduelle}}^{\text{Totale}} = \sigma_{\text{résid.}}^{\text{I}} + \sigma_{\text{résid.}}^{\text{II}} + \sigma_{\text{résid.}}^{\text{III}} \quad \text{II.14}$$

Cette classification proposée pour les contraintes internes a un aspect pour l'instant théorique, car la séparation effective des différents ordres de contraintes n'est atteinte par aucune méthode de calcul ou de mesure. Cependant, elle a pour intérêt de montrer que

toute hétérogénéité de déformation introduite à toute échelle de la structure entraîne l'existence de contraintes résiduelles.

### ***II.5.2. Les contraintes résiduelles dans les assemblages métal/céramique***

La réalisation d'une liaison entre une céramique et un métal s'accompagne toujours de la création d'un champ de contraintes résiduelles multiaxial. Différentes origines physiques et mécaniques expliquent la genèse des contraintes résiduelles à l'interface de liaison, dans la céramique et le métal lors de la formation de la liaison céramo-métallique :

- les contraintes d'origine thermiques issues du gradient thermique de l'environnement expérimental (loi de refroidissement). Dans ce contexte, un gradient thermique est généré au niveau de l'éprouvette du fait de la différence de conductibilité thermique qui existe entre la céramique et le métal,
- les contraintes issues de la formation de nouvelles phases à l'interface (liaisons réactives), provoquant une augmentation de volume et le blocage des dislocations à courte distance,
- les contraintes générées par une transformation de phase de l'alliage métallique lors du refroidissement,
- les contraintes liées à l'effet de la création de charges électrostatiques d'espace dans la céramique,
- les contraintes d'origine purement mécanique générées par la différence des propriétés physiques ( $\alpha$  : coefficient de dilatation thermique,  $E$  : module d'élasticité).

L'expérience montre que les contraintes résiduelles sont critiques dans la partie céramique et peuvent mener à la rupture du matériau (rupture cohésive) sans chargement extérieur. Lorsque la liaison est réalisée, le champ des contraintes internes existant se superpose au champ appliqué et contribue ainsi à la qualité de la tenue mécanique des liaisons. A terme, la maîtrise des contraintes résiduelles doit conduire à l'amélioration de la tenue et de la fiabilité des assemblages.

Dans ce contexte, l'évaluation de ces contraintes est précieuse pour la réalisation de pièces. Plusieurs méthodes expérimentales existent actuellement qui peuvent être appuyées par des calculs analytiques et/ou numériques.

## **II.6. INCIDENCE DES MÉTHODES DE LIAISON ET DES COUCHES D'OXYDES SUR LES CONTRAINTES RÉSIDUELLES AU NIVEAU DE L'INTERFACE**

### ***II.6.1. Incidence des méthodes de liaison***

Dans le cas des dépôts minces obtenus par voie chimique ou physique (C.V.D ou P.V.D), l'adhérence métal/céramique est assez aisément obtenue, dans la mesure d'une préparation convenable des surfaces. La C.V.D et la P.V.D sont des techniques largement utilisées dans les industries des couches minces comme l'industrie de l'électronique.

L'adhérence est d'autant meilleure par ces méthodes qu'une interdiffusion chimique se manifeste à l'interface.

Par contre, quand les dépôts sont épais ou quand la jonction intéresse des matériaux massifs, ce qui est notre cas, notamment pour des applications de nature thermomécaniques, l'adhérence est bien plus difficile à atteindre. En effet, les coefficients de dilatation thermique des céramiques sont généralement beaucoup plus faibles que ceux des métaux ce qui crée des contraintes résiduelles au niveau de la jonction. L'analyse de ces contraintes résiduelles reste un problème technologique important. Les liaisons étant réalisées à haute température, l'assemblage est soumis au cours du refroidissement à des contraintes, notamment à l'interface, dues à la différence importante des coefficients de dilatation entre les métaux et les céramiques.

Au cours de l'élaboration, qu'elle soit réalisée à l'état solide ou liquide, l'état des contraintes peut être schématisé par le modèle de bloc (Figure II.10). Avant liaison : les deux blocs ont des longueurs identiques. Au cours du refroidissement : le bloc qui se dilate le plus (métal) est soumis à des efforts de compression. Par réciprocity le bloc voisin subit de la traction. Au retour à l'ambiante, il y a déformation plastique inhomogène ; le bloc ductile (métal) se rétracte de façon rémanente. Le bloc fragile (céramique) conserve sa longueur initiale. Après liaison, il y a conservation de la continuité entre les deux blocs. L'équilibre génère des contraintes résiduelles dans chaque bloc. Elles sont de signe opposé au signe des forces ayant servi à les créer. Le bloc fragile est en compression tandis que le bloc ductile est en tension.

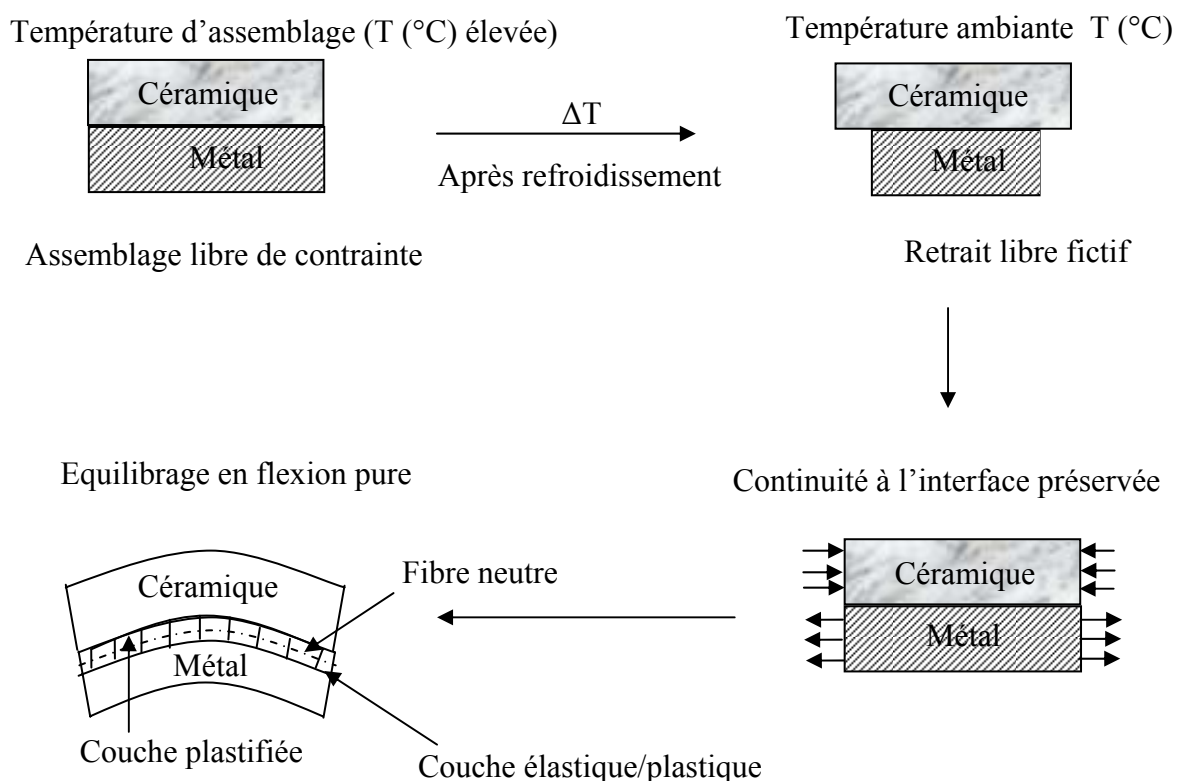


Figure II.10 : Genèse des contraintes résiduelles dans une liaison métal/céramique [103].

A la température de la liaison il y a contact et accommodation des surfaces, les matériaux pouvant être en compression (thermocompression) ou non contraints (métallisation, projection, émaillage, brasure eutectique Cu-Cu<sub>2</sub>O). Si la liaison est effective, il y a apparition de contraintes de cisaillement à l'interface au cours du refroidissement dues à l'égalisation des déformations qui sont respectivement :

$$\varepsilon_c = \alpha_c \Delta T \quad \text{II.15}$$

$$\varepsilon_m = \alpha_m \Delta T \quad \text{II.16}$$

$\alpha_c$  et  $\alpha_m$  sont les coefficients de dilatation de la céramique et du métal.  $\Delta T$  est la différence entre la température d'élaboration et la température ambiante.

Des contraintes sont aussi engendrées dans le volume des deux matériaux, celles-ci dépendent de la différence des coefficients de dilatation mais aussi de facteurs géométriques ainsi que des grandeurs et caractéristiques mécaniques (module de Young, coefficient de Poisson, limite d'élasticité, charge à la rupture...).

Plusieurs techniques sont utilisées afin de minimiser les contraintes internes. Elles consistent à ajuster les coefficients de dilatation en plaçant d'autres matériaux entre le métal et la céramique, soit des métaux mous [104,105], soit une couche composite type cermet composée d'un mélange des deux matériaux à assembler [106].

Dans le cas du couple Cu/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> par exemple, le retrait différentiel est estimé à environ 1 % [107], ce qui est bien inférieur à la limite de rupture, mais suffisant pour introduire des contraintes résiduelles. Elles peuvent se manifester à l'interface sous la forme de contraintes de compression, difficiles à relaxer.

L'expression de ces contraintes résiduelles à l'interface de jonction est exprimée par la formule d'Evans [79] :

$$\sigma = \frac{E \alpha \Delta T}{1 - \nu} \quad \text{II.17}$$

$\alpha$  : coefficient de dilatation moyen du substrat métallique,  
 $\Delta T = T_1 - T_r$  avec  $T_r$  la température de référence,  $T_1$  la température de liaison,  
 $\nu$  : coefficient de Poisson du substrat métallique,  
 $E$  : module de Young du substrat métallique.

La fragilité intrinsèque de la céramique est un obstacle important à la réalisation de couples métal/céramique. Il faut donc dans un premier temps utiliser des méthodes de liaison susceptible de relaxer en partie les contraintes résiduelles interfaciales issues de différences de coefficient de dilatation. La thermocompression permet de réaliser des liaisons directes à l'état solide avec des matériaux présentant des coefficients de dilatation thermique assez différents. Les liaisons obtenues présentent souvent une résistance mécanique élevée. L'application de fortes pressions uniaxiales conduit à une déformation plastique du composant métallique et donc à la relaxation des contraintes thermiques dans les céramiques [108].

D'autres auteurs [7,107] préconisent d'utiliser des processus avec réaction interfaciale (avec formation d'oxydes mixtes ou de phases intermétalliques) qui permettront alors la relaxation des contraintes. Mais de nombreuses études ont montré l'influence souvent néfaste de ces oxydes mixtes sur la tenue mécanique à l'interface et sur la résistance à la corrosion des jonctions [24,78]. Ce qui nous amène à évoquer l'influence des couches d'oxydes.

### **II.6.2. Incidence des couches d'oxydes**

La croissance de nouvelles phases au niveau de la jonction métal/céramique, comme toute croissance par interdiffusion, peut conduire au développement de contraintes d'origines diverses. Le problème a été particulièrement approfondi pour l'oxydation et peut être étendu au cas des liaisons métal/céramique réactives. Ainsi la différence entre le volume d'oxyde formé par rapport au volume équivalent de métal consommé génère des contraintes [32].

Les lois d'oxydation des métaux sont mesurées par les méthodes volumétriques, en fonction du temps et la quantité de gaz consommé à pression constante, par l'échantillon placé dans une enceinte close. Ces méthodes fournissent des informations notamment sur la cinétique de la corrosion sèche.

Dans le cas du système Ni/NiO par exemple [109], il existe une contrainte de compression élevée, causée par oxydation isothermique du Ni qui peut être additionnée à la contrainte générée par la différence de coefficient de dilatation. Cette contrainte peut être cependant éliminée par un recuit sous vide supplémentaire. *Yamané et al.* [109] ont montré dans cette étude que la contrainte de compression était nécessaire au maintien d'une force de liaison entre Ni et NiO.

Les contraintes associées à la formation et à la croissance des couches d'oxyde ont également une influence importante sur la structure de l'interface métal/oxyde, par établissement de relations d'épitaxie entre le métal et son oxyde, ou par des variations de composition. *Ishida et al.* [110] dans leur étude du couple Nb/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ont supposé l'existence d'une fine couche de NbO à l'interface. Ils prédisent une fracture de cette couche intermédiaire résultant d'une large concentration de contrainte dans la couche céramique près de l'interface. Le front de fissure aurait alors pour conséquence de facetter l'alumine, lequel facettage est couramment observé en microscopie électronique en transmission.

C'est la raison pour laquelle de nombreux auteurs préfèrent réaliser des interfaces métal/céramique en évitant au maximum la présence ou la formation d'oxyde ou de couches intermédiaires. Quand dans une expérience de thermocompression, des métaux sont connus pour former des couches d'oxydes, il faut alors appliquer une pression supplémentaire pour casser cette couche et relâcher les contraintes, c'est le cas par exemple des liaisons utilisant des joints d'aluminium [11].

## **II.7. MÉTHODES D'ESTIMATION DES CONTRAINTES RÉSIDUELLES**

Les assemblages métal-céramique peuvent être examinés par diverses méthodes d'analyses des contraintes résiduelles qui sont non destructives (diffraction des rayons X, diffraction des neutrons, interférométrie optique) ou destructives (méthode du trou,



enlèvement de couches, indentation Vickers ou méthode de la flèche). Les calculs par des méthodes analytiques sont réalisables dans des cas simples. L'utilisation de codes de calculs par éléments finis s'avère indispensable pour des modélisations complètes de la répartition spatiale des contraintes résiduelles au sein d'assemblages plus complexes. Les possibilités et les limites des méthodes utilisées sont décrites à la lumière des données bibliographiques concernant l'étude des liaisons métal/céramique.

### ***II.7.1. Techniques diffractométriques***

La technique diffractométrique est considérée comme la plus appropriée à l'étude des assemblages métal/céramique. Cette technique permet d'apprécier le signe, le niveau et la répartition spatiale des contraintes résiduelles au sein d'un assemblage. Seule la diffraction neutronique permet un contrôle totalement non destructif de pièces jointes épaisses du fait de la grande profondeur de pénétration des neutrons [111,112]. Les volumes analysés sont beaucoup plus importants (plusieurs  $\text{mm}^3$ ), ce qui requière un équipement lourd avec des temps de comptages très longs. Pour cette raison, la diffraction des rayons X est plus employée malgré la faible pénétration des photons. Son principe consiste à utiliser le paramètre cristallin comme jauge de déformation. Le protocole de mesure sera décrit au chapitre III, § 6.2.

Les filiations de contraintes résiduelles par diffraction X de l'assemblage peuvent être faites parallèlement ou perpendiculairement à l'interface sur une face latérale dans l'un et/ou l'autre des matériaux. La surface libre plane des pièces assemblées est également analysable en vue de la détermination des contraintes dans un plan parallèle à la zone interfaciale.

#### ***II.7.1.1. Mesures parallèles et normales à l'interface***

*Tanaka et al.* [113] ont conduit des travaux sur des éprouvettes réalisées en vue de tests de flexion 4 points de largeurs différentes avec des liaisons symétriques  $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Cu}/\text{XC45}/\text{Cu}/\text{Si}_3\text{N}_4$  réalisées par brasage. Le métal d'apport intercalé entre les substrats est un alliage de base Ag-Cu-Ti. La figure II.11 reprend les résultats d'une filiation dirigée selon la direction de l'interface  $x$  d'une éprouvette d'épaisseur 30 mm. En chaque point, les contraintes résiduelles dans la direction de l'interface  $\sigma_x$  et perpendiculaire à celle-ci  $\sigma_y$  sont déterminées avec le rayonnement  $K\alpha$  Cr. Les mesures sont pratiquées dans le  $\text{Si}_3\text{N}_4$  à une distance de  $y = 0.1$  mm de l'interface.

Les résultats obtenus montrent que dans la direction normale à l'interface, des contraintes résiduelles de tension ( $\sigma_y = 200$  MPa) existent sur les bords libres de la pièce. Elles décroissent pour atteindre un minimum à environ 2 mm du bord et atteignent à nouveau des valeurs positives plus élevées que sur les bords ( $\sigma_y = 250$  MPa) au centre de la liaison.

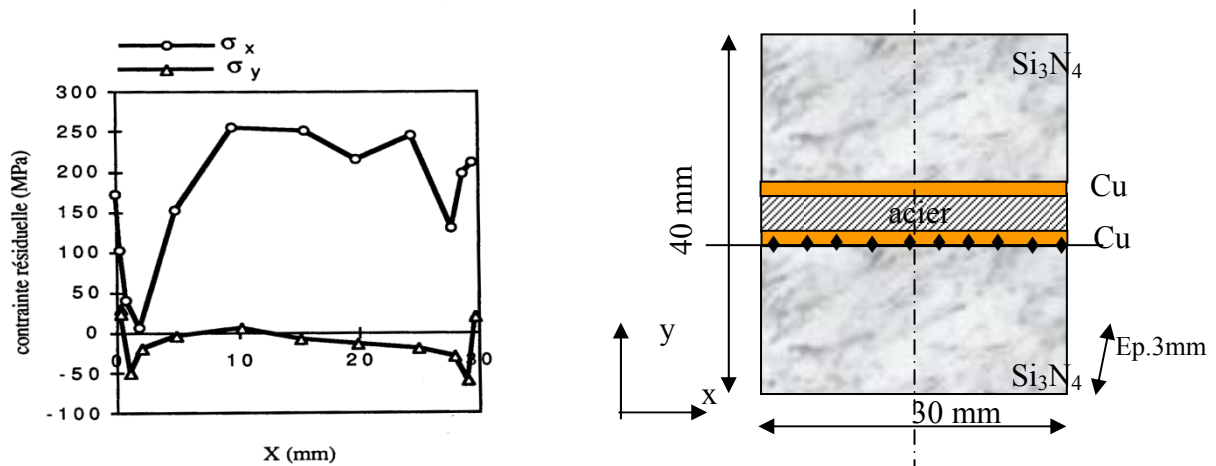


Figure II.11 : Distributions des contraintes résiduelles le long de l'interface d'un joint  $Si_3N_4/Cu/XC45/Cu/Si_3N_4$  [113].

Les résultats de *Tanaka et al.* et *Kurita et al.* [113,114] sont en accord au sujet des filiations de contraintes résiduelles au centre d'une face latérale, dirigées selon l'axe y normal à l'interface. Les contraintes déterminées sont faibles loin de l'interface et toujours maximales à proximité de l'interface. Un extremum intermédiaire est parfois détecté.

Un exemple de profil expérimental réalisé par *Kurita et al.* [114] répondant à cette description est donné sur la figure II.12.

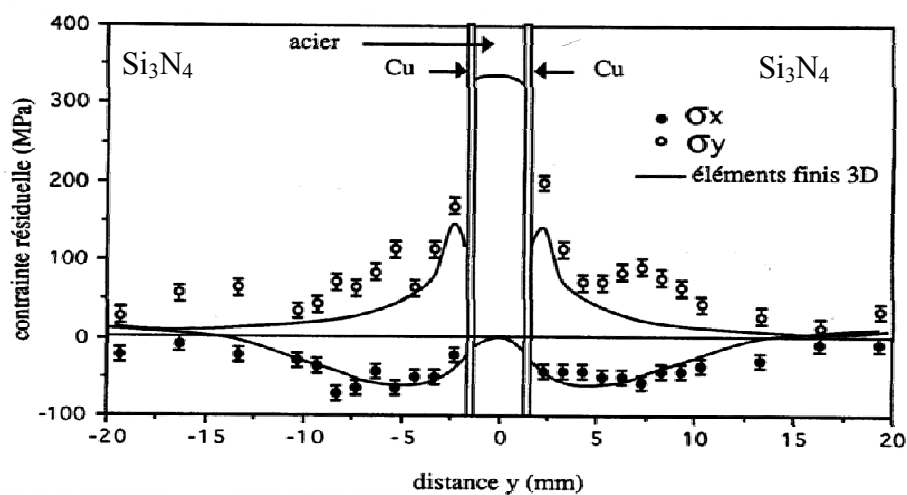


Figure II.12 : Distributions des contraintes résiduelles par diffraction X et par éléments finis du système symétrique  $Si_3N_4/Cu/XC45/Cu/Si_3N_4$  [114].

Avec une géométrie cylindrique, *Colin* [26] qui s'intéresse au couple  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Inconel 600}$  obtenu par compression isostatique à chaud, montre que la composante normale  $\sigma_y$  déterminée dans la partie céramique est positive et maximale près de l'interface et tend vers une contrainte nulle loin de l'interface. Les mesures par diffraction X ont pu être réalisées sur les faces latérales malgré la difficulté posée par la courbure des éprouvettes.

### II.7.1.2. Mesures sur les faces parallèles à l'interface

Des mesures ponctuelles ou une filiation en différents points sont réalisables selon la taille de la zone irradiée comparée à la superficie des faces des éprouvettes. *Colin* [26] a présenté les profils de contraintes résiduelles déterminées par diffraction des rayons X au sommet de pièces cylindriques non symétriques d'épaisseur variable du couple  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Inconel 600}$  obtenu par compression isostatique à chaud (Figure II.13).

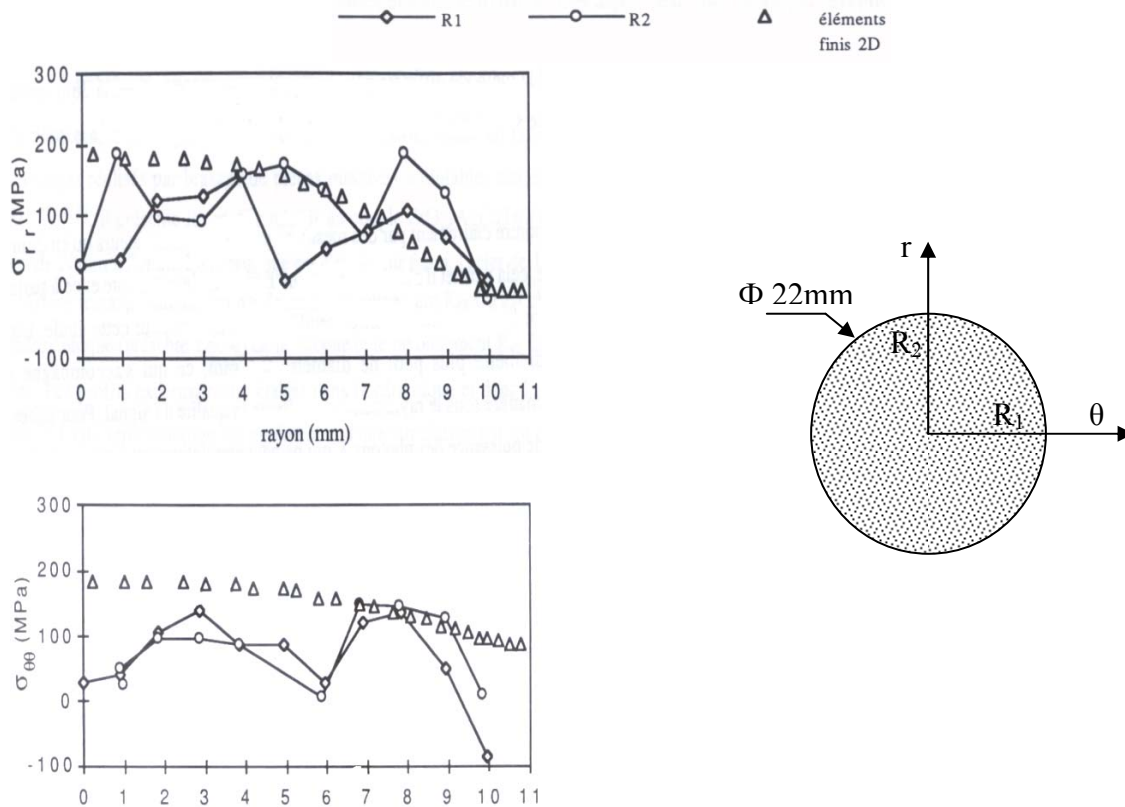


Figure II.13 : Filations des contraintes résiduelles radiales et circonférentielles par diffraction X et par éléments finis au sommet de la céramique alumine de pièces cylindriques [26].

Suivant les deux rayons  $R_1$  et  $R_2$  les profils expérimentaux sont proches : l'hypothèse d'axisymétrie du système est respectée. Les composantes  $\sigma_{rr}$  et  $\sigma_{\theta\theta}$  à la surface de la céramique sont nettement en tension sauf près du bord et dans la direction circonférentielle. A cet endroit, on note une tendance à de la compression mais celle-ci reste d'un niveau faible.

### II.7.1.3. Limite de l'analyse diffractométrique

Les mesures par diffraction des rayons X sur des surfaces gauches ne sont pas rigoureuses du point de vue théorique et doivent être présentées avec précaution. Dans les cas de pièces cylindriques, il faut que la taille de la zone irradiée ne soit pas trop importante pour limiter l'influence du rayon de courbure de la pièce [26].

*Tanaka* [113] démontre l'importance du choix de la taille de la zone irradiée pour la mise en œuvre de la méthode diffractométrique appliquée aux liaisons métal/céramique. Les mesures près de l'interface sont d'autant plus précises et localisées que la taille de la zone irradiée est faible.

### II.7.2. Mesures par indentation Vickers

Moins répandue que la diffraction X mais pourtant aisée à mettre en œuvre pour l'étude des liaisons métal/céramique, la méthode par indentation Vickers peut être appliquée pour évaluer les contraintes résiduelles dans le matériau céramique près de la zone interfaciale (Figure II.14).

*Lascar* [115] décrit le protocole opératoire que nous détaillerons au chapitre III. Il consiste à effectuer des indentations successives dans la céramique en s'éloignant de l'interface d'un pas de 0.1 mm à chaque point. La longueur de la fissure mesurée sur la céramique assemblée correspond à la fissuration dans la direction parallèle à l'interface.

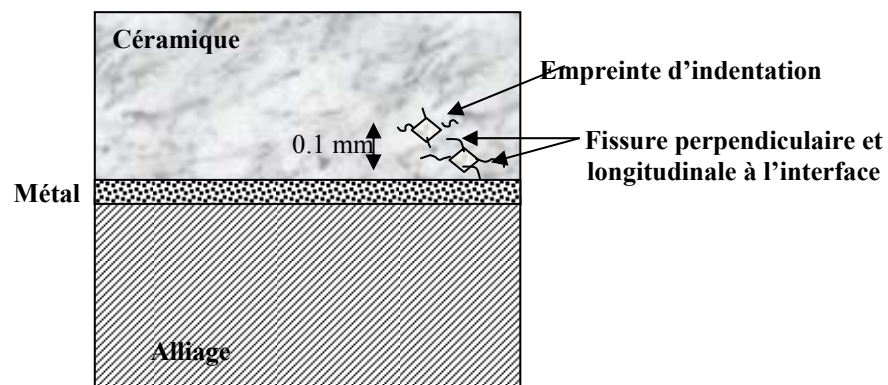


Figure II.14 : Schéma explicatif de la méthode de détermination des contraintes résiduelles par indentation Vickers.

Le tableau II.8 donne des valeurs ainsi mesurées pour différents assemblages métal/céramique. Les longueurs de fissures mesurées sont toutes plus grandes après liaison ce qui vérifie effectivement que les contraintes estimées sont systématiquement en traction. Les valeurs des contraintes estimées doivent être prises avec précaution pour plusieurs raisons. Il s'agit d'une valeur moyenne superficielle entachée d'une erreur liée à la difficulté d'apprécier précisément les longueurs de fissures.

Couple	Technique de la liaison	$\sigma_r$ calculée (MPa)
ZrO <sub>2</sub> (TZP)/XC18	Brasage (Ag-Cu-Ti)	142
ZrO <sub>2</sub> + Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /Ti	Thermocompression	131
ZrO <sub>2</sub> + Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /Zircaloy	Thermocompression	334

Tableau II.8 : Exemple de mesure de contraintes résiduelles à l'interface d'un assemblage métal/céramique par indentation Vickers [115].

### II.7.3. Méthodes numériques

La simulation numérique par éléments finis [116] est un outil puissant dont l'utilisation doit permettre la prédiction de la répartition spatiale des contraintes résiduelles lorsque les méthodes analytiques sont inefficaces.

Le résultat du calcul des contraintes résiduelles dans le cas de l'étude de la liaison brasée Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/Ag-Cu-Ti/XC18 en mode élasto-plastique donne la répartition spatiale des contraintes résiduelles sur l'intégralité de la pièce [101]. La figure II.15 représente les composantes radiale  $\sigma_{rr}$  et circonférentielle  $\sigma_{\theta\theta}$ .

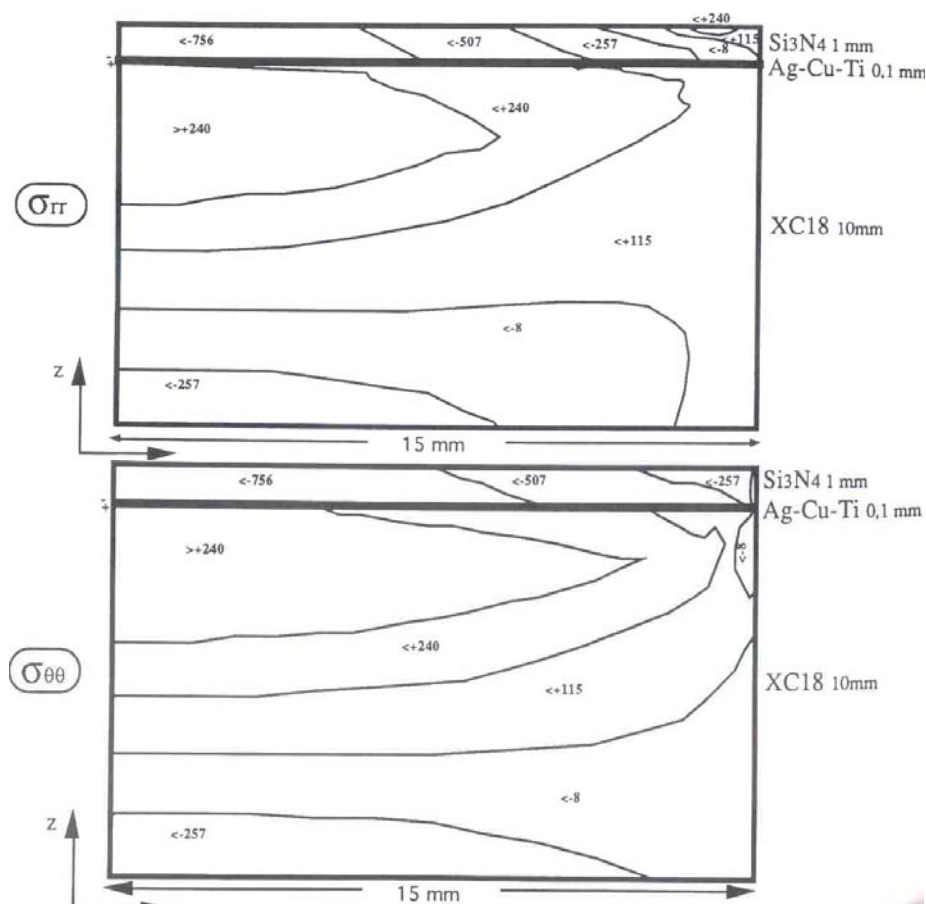


Figure II.15 : Cartographie des contraintes résiduelles d'origine thermique obtenues par éléments finis [101].

Ces représentations donnent un aperçu global du niveau de contraintes résiduelles. La céramique est intégralement en compression avec des valeurs élevées au centre, ce qui est bénéfique pour la tenue de la céramique. En revanche, près du bord, la céramique présente une zone en tension. L'acier est en tension en sous couche de la brasure tandis que la base est en compression.

#### ***II.7.4. Comparaison des méthodes***

L'une des sources de genèse des contraintes résiduelles dans les assemblages métal/céramique est la différence entre les coefficients de dilatation thermique des antagonistes. *Lourdin* [22], dans son étude du couple  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{Al}_2\text{O}_3$  par thermocompression a montré qu'à température ambiante, le taux de contraintes résiduelles dépend uniquement de la vitesse de refroidissement et non de l'écart entre la température de liaison et la température ambiante. En proposant un modèle intégrant la vitesse de refroidissement et le fluage du métal, le même auteur a montré que le fluage permet ainsi une relaxation des contraintes d'origine thermique en plus de la relaxation plastique. D'après l'auteur, le métal va être freiné dans son retrait par la céramique car généralement la céramique se contracte moins vite que le métal. La céramique subit l'effet inverse. En conséquence, la continuité est préservée si les matériaux se déforment à une vitesse correspondant à la différence entre les vitesses de déformation de chacun d'eux.

Les vitesses de déformations respectives sont appréciées grâce aux cartes de déformation caractérisant le comportement en fluage des matériaux. Les déformations de l'alumine sont négligeables par rapport à celles du nickel. En conséquence la déformation imposée au cours du refroidissement est totalement prise en compte par le nickel.

En 1992, *Ebihara et al.* [117] sur un assemblage  $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{AgCuTi}/\text{Cu}/\text{SUS 304}$  ont montré l'influence de la géométrie de l'échantillon. Les contraintes résiduelles sont maximales aux coins de l'interface et indépendantes de l'épaisseur de Cu. Des études plus poussées sur un assemblage saphir/Nb conduites par *Ishida et al.* [110] ont démontré que la création d'un produit de réaction à l'interface favorisait le déplacement des dislocations et par conséquent diminuait les contraintes résiduelles.

Trois années plus tard, *Gao et al.* [118] confirment les résultats de Ebihara, à savoir que les contraintes résiduelles sont maximales aux coins de l'interface ce qui est en accord avec les faciès de rupture observés. Par contre, ils constatent l'influence de l'épaisseur de métal sur la répartition et la valeur des contraintes résiduelles en montrant que le paramètre clé reste le choix du coefficient de dilatation thermique.

En 1998, *Kovalev et al.* [119] ont également montré par un calcul par éléments finis que l'épaisseur du métal avait peu d'influence sur les contraintes résiduelles ainsi que la différence entre les coefficients de dilatation thermique entre la céramique et le métal. Ces dernières sont beaucoup plus affectées par les propriétés mécaniques du métal. Les résultats obtenus sur les deux couples étudiés montrent que plus le métal est ductile plus les contraintes sont faibles.

*Colin* [26] a montré qu'il existe une corrélation entre les contraintes résiduelles calculées par éléments finis, et celles déterminées par diffraction X. Cet accord entre les

deux approches concerne les contraintes axiales en fonction de la distance à l'interface (cf. Figure II.13)

*Lasca* [115] d'un point de vue quantitatif a pu estimer le niveau de contraintes résiduelles à l'interface en appliquant la méthode d'indentation. Il a répertorié les valeurs obtenues pour différents couples métal/céramique brasés ou thermocompressés (cf. Tableau II.8).

Les mesures par diffraction des rayons X obtenues à l'interface d'une liaison sur le bord d'une pièce brasée  $\text{Si}_3\text{N}_4$ /acier [113] et les mesures obtenues par indentation Vickers données par *Lasca* [115] sont comparables. Qualitativement, les mesures diffractométriques se caractérisent par  $\sigma_{Rx} \approx 0$  le long de l'interface et  $\sigma_{Ry} > 0$  perpendiculairement à l'interface ce qui est en accord favorable avec les mesures par indentation Vickers qui donnent  $\sigma_{Ry} > 0$ . Ces deux méthodes démontrent l'existence de contraintes superficielles près de l'interface. Qualitativement, la comparaison est délicate car les matériaux assemblés et les géométries sont différents mais l'ordre de grandeur des deux méthodes est proche.

*Guipont* [101] a fait une comparaison entre différentes méthodes de mesures expérimentales et de modélisations sur un assemblage  $\text{Si}_3\text{N}_4$ /AgCuTi/Acier. Deux méthodes expérimentales ont été mises en œuvre : la mesure par enlèvement de couches et jauge de contraintes ainsi que des mesures par diffractions de rayon X au cours de l'enlèvement de couches. Une modélisation élasto-plastique par éléments finis et un calcul analytique ont été réalisés en parallèle (Figure II.16).

Les différences entre les méthodes ne peuvent être négligées. La méthode des éléments finis donne des valeurs plus fortes en compression alors que le calcul analytique prévoit des contraintes moins intenses. Les mesures expérimentales donnent des valeurs intermédiaires.

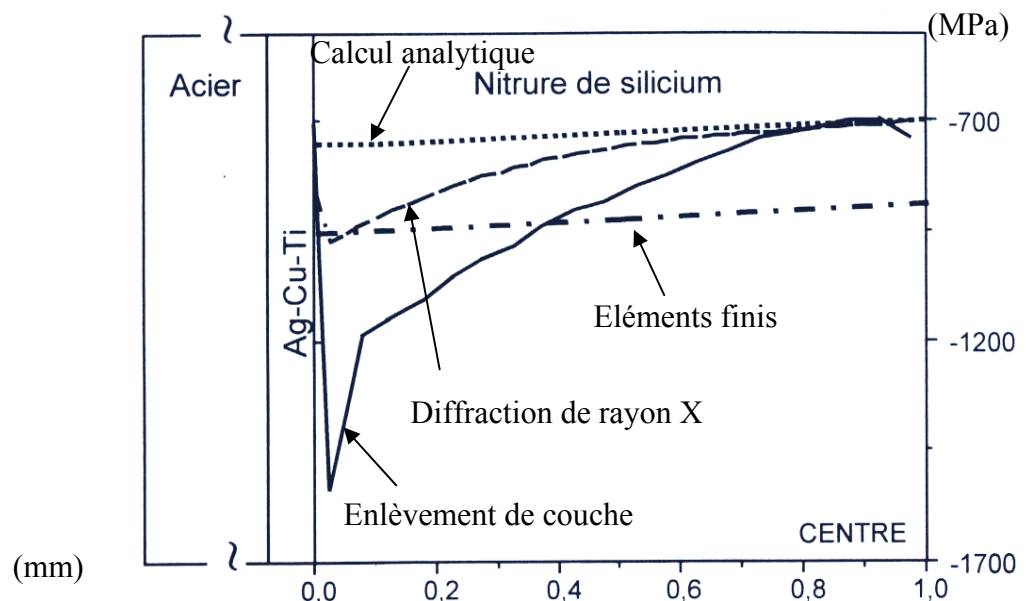


Figure II. 16: Comparaison de quatre méthodes de détermination des contraintes résiduelles dans la céramique (assemblage  $\text{Si}_3\text{N}_4$ /acier par brasure AgCuTi) [101].

Le même auteur a confronté les résultats de la modélisation par éléments finis avec les résultats expérimentaux de la diffraction X obtenus sur une pièce équivalente. Des profils de contraintes résiduelles selon une rangée de nœuds particuliers sont extraits.

Les figures II.17a et b montrent clairement que les valeurs de contraintes résiduelles calculées à la surface de la céramique sont plus élevées (i.e. plus en compression) par rapport aux mesures par diffraction X. L'écart entre les deux méthodes est peu important de l'ordre de 150 MPa mais non négligeable. Si l'on examine les résultats de la simulation, la zone la plus critique est située à environ 1 mm du bord, endroit où le maximum de tension est obtenu. Cette dernière remarque est à prendre avec précaution compte tenu de la taille du maillage qui mériterait d'être affinée pour augmenter la fiabilité des résultats en bordure.

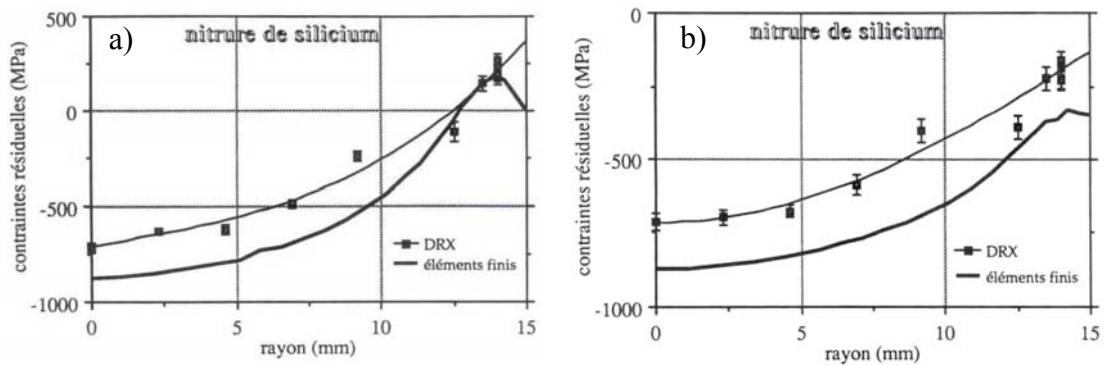


Figure II.17 : Comparaison des profils de contraintes résiduelles à la surface de la céramique  $Ni_3Si$  de l'assemblage  $Si_3N_4/Ag-Cu-Ti/XC18$ . a) direction radiale, b) direction circonférentielle.

## II.8. SOLUTIONS POUR DIMINUER LES CONTRAINTES RÉSIDUELLES DANS LES LIAISONS MÉTAL/CÉRAMIQUE

De nombreuses méthodes ont été développées afin de minimiser les contraintes résiduelles d'un assemblage métal-céramique. Elles font souvent appel à des couches intermédiaires dont le but est d'ajuster les coefficients de dilatation des deux matériaux. Des métaux tels que le cuivre et l'aluminium ont donné de bons résultats. De part sa plasticité et son faible point de fusion, l'aluminium peut donner des liaisons fortes avec les céramiques telles que l'alumine et le nitrure de silicium [104,105].

Un autre métal, le niobium a été étudié [120,121,122]. Il a été utilisé comme couche intermédiaire pour l'élaboration par thermocompression des jonctions alumine/acier. Les effets des contraintes internes à l'interface  $Al_2O_3/Nb$  sont minimisés. A l'interface  $Al_2O_3/Nb$ , la déformation est nulle, et le niobium subit un écrouissage considérable jusqu'à la jonction niobium-acier.

La réduction des contraintes interfaciales peut être assurée par une autre technique, qui consiste à réaliser une couche intermédiaire de type cermet (composée d'un mélange des deux matériaux à assembler) [122]. La méthode de multicouche métallique composée de métal (a) et métal (b) déposée entre les matériaux à assembler (céramique, métal) peut minimiser les contraintes internes à condition que les coefficients de dilatation thermique remplissent les conditions suivantes [122]:



$$\alpha_{\text{céramique}} \approx \alpha_{\text{métal (a)}} > \alpha_{\text{métal (b)}} \text{ et } \alpha_{\text{métal (b)}} > \alpha_{\text{métal}}$$

*Naka et al.* [123] lors des essais de traction sur des assemblages impliquant du nitrure de silicium, ont démontré que la résistance de l'assemblage diminuait quand le différentiel de coefficients de dilatation thermique entre le nitrure de silicium et le substrat métallique augmentait. Par conséquent, l'utilisation d'une couche intermédiaire composée d'un matériau ayant un coefficient de dilatation thermique proche de celui de la céramique devrait limiter les contraintes résiduelles dans la céramique, et donc augmenter la tenue de l'assemblage. Par contre, une faible dilatation thermique est souvent associée à une limite d'élasticité importante, alors que plusieurs auteurs ont montré que l'usage de matériaux ductiles pouvait limiter les contraintes résiduelles [124,125].

*Zhou et al.* [126] dans leur étude des liaisons  $\text{Ni}_3\text{Si}$ /acier ont démontré l'avantage de l'utilisation d'un matériau à forte plastification tel que le cuivre doux, par rapport à un matériau à coefficient de dilatation intermédiaire. La figure II.18 montre l'évolution de la tenue en traction d'un assemblage  $\text{Ni}_3\text{Si}$ /acier en fonction du coefficient de dilatation du matériau de la couche intermédiaire. Le cuivre doux en tant que couche intermédiaire donne un meilleur résultat que le tungstène ou le molybdène qui ont pourtant des coefficients de dilatation beaucoup plus proches de celui du  $\text{Ni}_3\text{Si}$ .

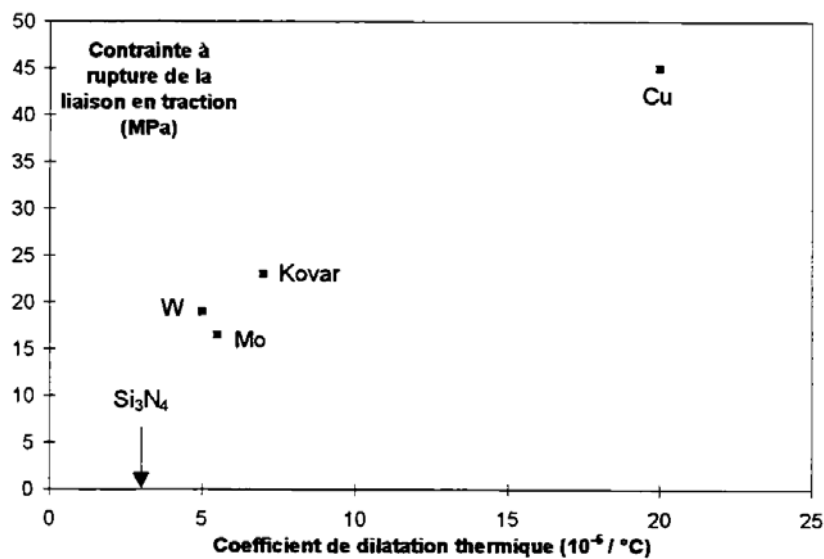


Figure II.18 : Evolution de la tenue en traction d'un assemblage  $\text{Ni}_3\text{Si}$ /acier en fonction du coefficient de dilatation du matériau composant une couche intermédiaire de 1.5 mm de différents métaux [126].

## II.9. LE PROBLEME DU POINT SINGULIER

Il y a une singularité de contraintes sur le bord libre en regard de l'interface entre les deux matériaux (Figure II.19). Cette singularité est due aux différences de propriétés élastiques entre les deux substrats. Les contraintes dans une région proche d'une singularité sont délicates à évaluer numériquement par la méthode des éléments finis. En effet dans ces régions les contraintes calculées dépendent fortement de la taille du maillage. Il est par contre possible par éléments finis de caractériser l'importance de la

singularité, en déterminant son ordre et son facteur d'intensité. Le cas général consiste à étudier la singularité sur le bord libre quand l'angle d'assemblage des deux matériaux est quelconque [127].

$$\sigma_{ij}(r, \theta) = \sum_{k=0}^n \frac{K_k}{\left(\frac{r}{l}\right)^{w_k}} f_{ijk}(\theta) \quad \text{II.19}$$

$r$  et  $\theta$  sont définis sur la figure II.19,  
 $l$  est une dimension caractéristique du composant,  
 Les fonctions  $f$  sont nommées fonctions angulaires,  
 Les  $K_k$  sont les facteurs d'intensité de contraintes,  
 les  $f_{ijk}$  sont les ordres de singularité.

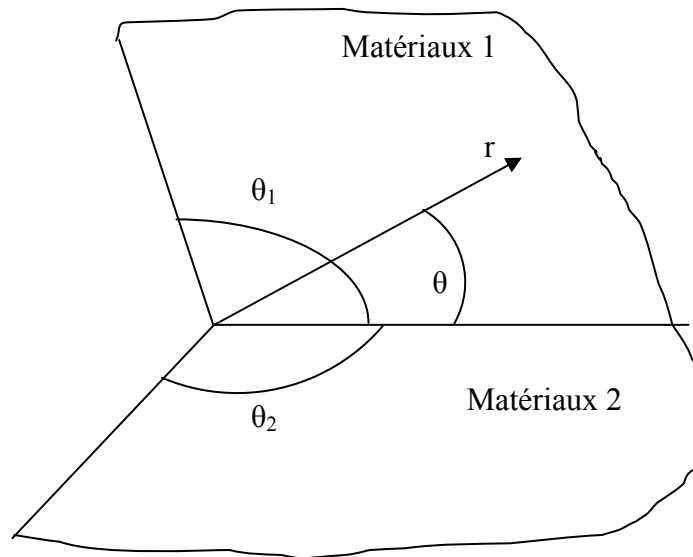


Figure II. 19 : Singularité dans un assemblage quelconque de deux matériaux [127].

Les ordres de singularité et les fonctions angulaires dépendent des propriétés élastiques des matériaux et des angles  $\theta_1$  et  $\theta_2$ , mais sont indépendants des conditions de chargement (ils ne dépendent pas des coefficients de dilatation) tandis que les facteurs d'intensité dépendent des propriétés thermoélastiques des matériaux. Les ordres de singularité peuvent être déterminés analytiquement. Ils sont solutions d'un système d'équations linéaires [128] qui fournit leurs variations en fonction du rapport des modules de Young des matériaux liés, ou de l'angle d'assemblage des matériaux. Si l'on considère l'intersection de l'interface avec le bord libre ( $\theta_1 = \theta_2 = 90^\circ$ ), le champ local des contraintes au point singulier et le long de l'interface ( $\theta = 0$ ) peut être caractérisé par la somme d'un terme singulier et d'un terme non singulier [128]:

$$(\sigma_{yy} - i\sigma_{xy})_{\theta=0} = \frac{K_I - iK_{II}}{\sqrt{2\pi}} r^{-\omega} + \sigma_0 \quad \text{II.20}$$

Le terme non singulier  $\sigma_0$  est fonction du différentiel des coefficients thermiques, du changement de température et des propriétés mécaniques des matériaux. L'évolution de

l'ordre de singularité en fonction du rapport des modules de Young (Figure II.19) montre que la singularité ne disparaît que si les modules des matériaux sont identiques [129]. Pour le même rapport de modules, on peut faire varier la géométrie afin de réduire la singularité avec l'aide de la simulation par éléments finis qui permet d'évaluer l'ordre de singularité.

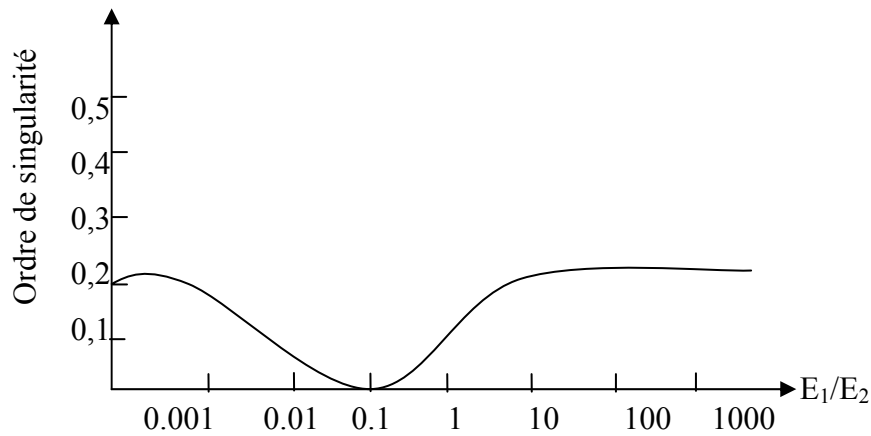


Figure II.20 : Ordre de singularité en fonction du rapport des modules de Young pour un assemblage plan [129].

La présence du point singulier entraîne des contraintes élevées susceptibles de provoquer la rupture de l'assemblage lors du refroidissement après assemblage. Il faut donc développer des techniques visant à limiter ces contraintes résiduelles.

## II.10. APPLICATIONS DES LIAISONS MÉTAL/CÉRAMIQUE DANS LE DOMAINE DES HAUTES TEMPÉRATURES

Ce sont surtout les moteurs à turbine qui constituent les applications les plus importantes dans le domaine des hautes températures (au delà de 1000 °C). Ce type de moteur pourrait être utilisé en aéronautique et pour les turbines industrielles.

Les aubes de stator et de rotor et les rotors monoblocs sont en nitrure de silicium. Les anneaux et chambres de combustion sont, en général, réalisés en carbure de silicium. Les stators céramiques ont accumulé plus de 4000 heures de fonctionnement, démontrant un taux de défaillance divisé par dix par rapport au métal [4].

Une autre application potentielle est le véhicule électrique hybride, où les batteries sont rechargées, en dehors des agglomérations, par un alternateur à grande vitesse entraîné par une turbine. Cela garantirait un taux d'émission de gaz polluant très faible et un excellent rendement. La chambre de combustion catalytique et le récupérateur de chaleur sont aussi en céramique. Les turbines sont déjà mises au point aux Etats-Unis et au Japon.

Une autre utilisation des céramiques à haute température concerne les échangeurs de chaleur. Pour cette application, le carbure de silicium, ayant une forte conductivité (125 W/m.K), constitue la solution optimale du point de vue thermique. Les céramiques oxydes telles que l'alumine ou la cordiérite sont, elles aussi, envisagées pour certaines

applications. La société C&C produit des plaques et des tubes en SiC. Il ne reste plus qu'à les assembler pour constituer un échangeur tubes-calandres (Figure II.21) [4].

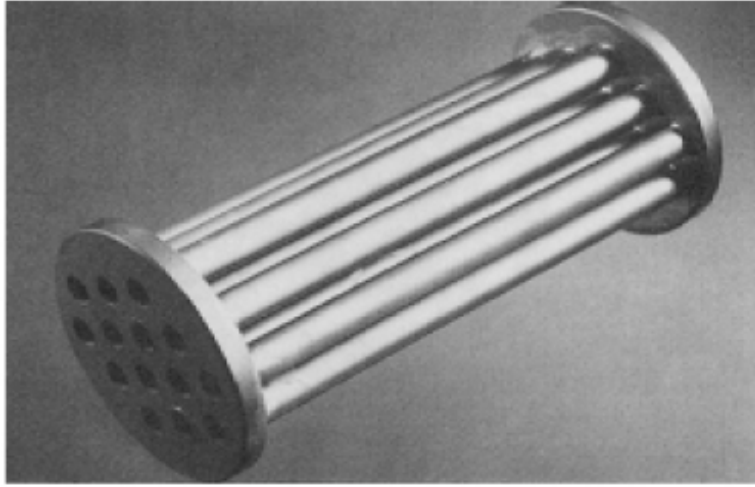


Figure II. 21: Prototype à échelle réduite d'un échangeur de chaleur tube-calandre en SiC.

Ces échangeurs trouvent de nombreuses utilisations potentielles, comme les incinérateurs, l'industrie chimique ou l'aéronautique. Dans l'aéronautique, on essaie d'améliorer le rendement des turbines en augmentant la température d'entrée. Les principaux attraits des échangeurs sont, dans ce cas, constitués par leur rendement élevé, leur faible densité ainsi que leur grande réfractarité. Le nitrure de silicium pouvant être utilisé à l'air jusqu'à 1200 °C et possédant une résistance mécanique supérieure à celle du SiC ou de l'alumine, fait l'objet de nombreuses recherches. La céramique permet de réduire le poids par sa faible densité mais aussi parce qu'elle ne nécessite pas de refroidissement.

On peut citer aussi d'autres applications des liaisons métal/céramique dans le domaine de la physique nucléaire et des plasmas performants de longue durée. La filière d'étude la plus développée à ce jour est celle des tokamaks (figure II.22) (cf. Annexe II).

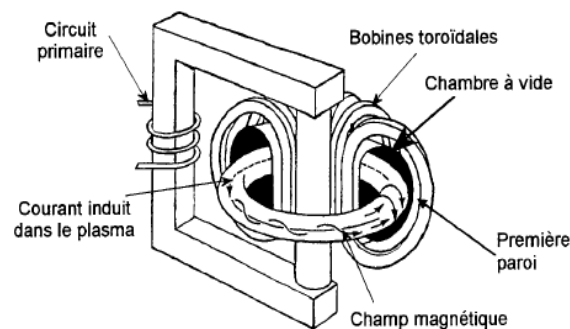


Figure II. 22 : Principe de tokamaks.

Les composants développés concernent des assemblages formés d'une tuile de matériau composite à fibres de carbone liée à un alliage de cuivre via une couche en cuivre pur. Plusieurs composants sont reliés par l'intermédiaire de la structure en alliage de cuivre, formant alors une aiguille (Figure II.23).

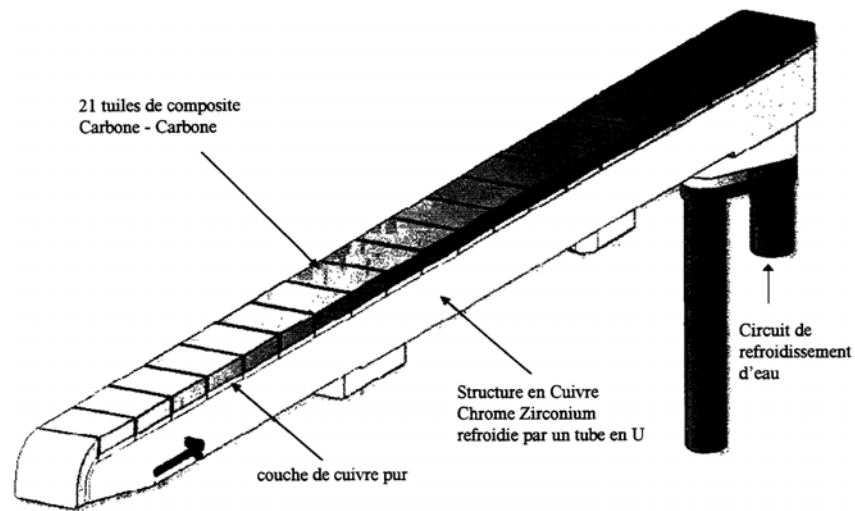


Figure II.23 : L'aiguille, assemblage composite carbone-carbone/alliage de cuivre.

**Seconde Partie**

**MATÉRIAUX ET DISPOSITIFS UTILISÉS,  
RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX**

## CHAPITRE III

# MATÉRIAUX ÉTUDIÉS ET TECHNIQUES EXPÉRIMENTALES

*Ce chapitre porte sur les moyens mis en œuvre pour la réalisation des liaisons  $Al_2O_3$ /joint métallique/HAYNES<sup>®</sup> 214, et SiC/joint métallique/HAYNES<sup>®</sup> 214. Les matériaux, les techniques ainsi que les équipements mis en œuvre pour la caractérisation métallurgique et mécanique font également l'objet d'une description dans ce chapitre.*

### III.1. RAPPEL DE L'APPLICATION VISÉE

Notre étude est basée sur la faisabilité de réalisation de liaisons métal/céramique devant travailler à des températures supérieures à 800 °C. Deux céramiques ont été retenues :  $Al_2O_3$  et SiC ainsi que trois alliages métalliques. Nous avons abordé cette étude en employant volontairement des matériaux industriels de qualité commerciale.

### III.2. LES MATÉRIAUX

#### III.2.1. Alumine $Al_2O_3$

L'alumine est à l'heure actuelle la céramique technique type oxyde la plus répandue. Elle trouve ses applications dans des domaines variés : mécanique, thermique, thermomécanique, électronique... Ces dernières années elle subit la concurrence de céramiques plus performantes ( $ZrO_2$ , SiC,  $Si_3N_4$ , SiALON...) mais aussi plus onéreuses et plus délicates à mettre en œuvre. Elle est aussi utilisée comme matrice pour d'autres céramiques (alumine-zircone, alumine-oxynitride...). Mais c'est dans l'industrie électronique qu'elle garde toute sa compétitivité malgré des recherches vers d'autres matériaux pour certaines applications (nitride d'aluminium et carbure de silicium).

Deux types d'alumine ont été utilisés du fait de leur disponibilité sur le marché et leur large emploi dans l'industrie. L'alumine standard notée 'S' et l'alumine AL23 de Degussit.

L'alumine standard S est une alumine de pureté 96 %, alors que l'AL23 est une alumine de pureté 99.7 %. Le taux d'impureté dans l'AL23 est inférieur à 6000 ppm. L'analyse chimique montre la présence, en très faible quantité, des composés suivants :

<i>MgO</i>	<i>CaO</i>	<i>Na<sub>2</sub>O</i>	<i>Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub></i>	<i>SiO<sub>2</sub></i>
≈ 3000	≈ 500	≈ 1000	≈ 400	≈ 1000

Tableau III.1 : Teneurs en impureté de AL23 (ppm).

Il faut noter que ces impuretés sont des ajouts de frittage qui conduisent à la formation de phases intergranulaires souvent partiellement vitreuses, si bien que la teneur en impuretés dans le volume des grains est inférieure à 1000 ppm.

Les deux aluminés retenues sont polycristallines et du type alpha ( $\alpha-Al_2O_3$ ) corindon aussi bien en volume qu'en surface, après polissage, comme le montrent les diagrammes de diffraction X sous incidence rasante (Figure III.1).



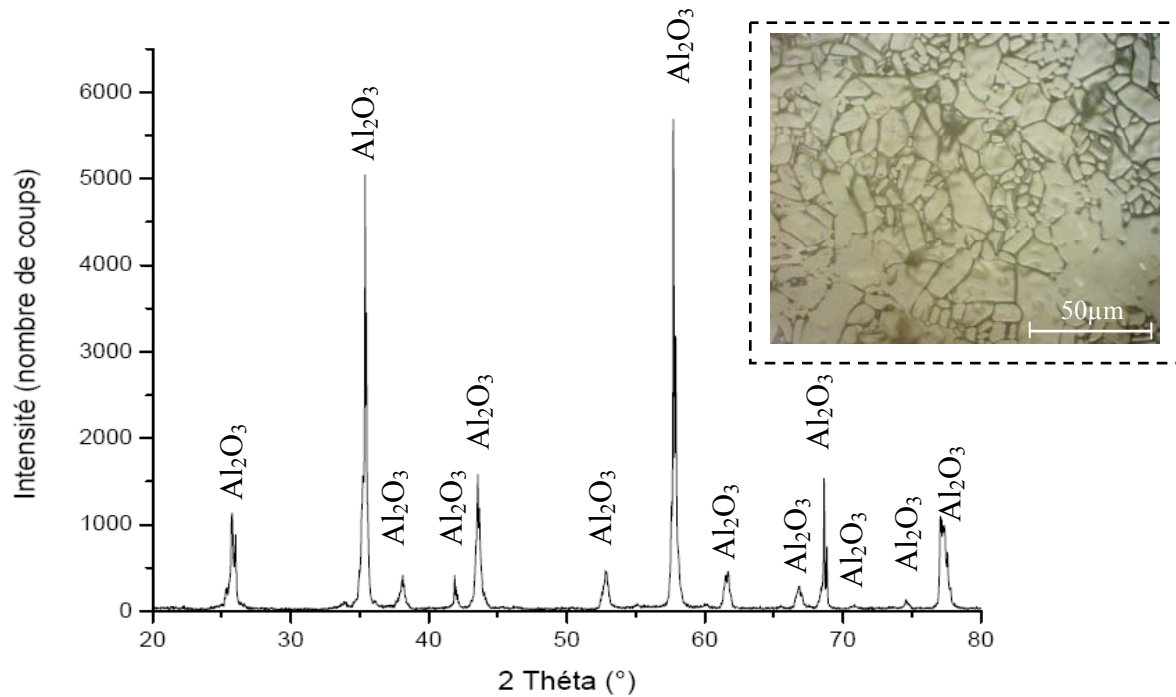


Figure III.1 : Spectre de diffraction X sous incidence rasante ( $\alpha = 1^\circ$ ) des surfaces de l'alumine AL23 (anticathode Cu  $K_\alpha$ ). On note la présence exclusive de tous les pics de l'alumine  $\alpha$  (corindon).

La taille des grains de l'alumine AL23 est hétérogène de l'ordre de 10 à 20  $\mu\text{m}$  en moyenne, avec des grains plus gros dépassant ces valeurs (Figure III.2). L'alumine standard présente une microstructure beaucoup plus fine, de l'ordre de 5  $\mu\text{m}$ , mais vu le fort ressuyage des phases vitreuses aux joints de grains lors de l'attaque thermique, ces derniers sont peu visibles. Ceci est à rapprocher des observations par microscopie électronique à transmission de *Drillet* [32], qui prouvent que sous l'effet de la température, des phases vitreuses de type silico-alumineux, situées aux points triple de l'alumine, peuvent remonter par capillarité vers l'interface Ni/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, l'épaisseur du film vitreux formé à l'interface est inférieure au micromètre. Nous vérifions ce point plus loin.

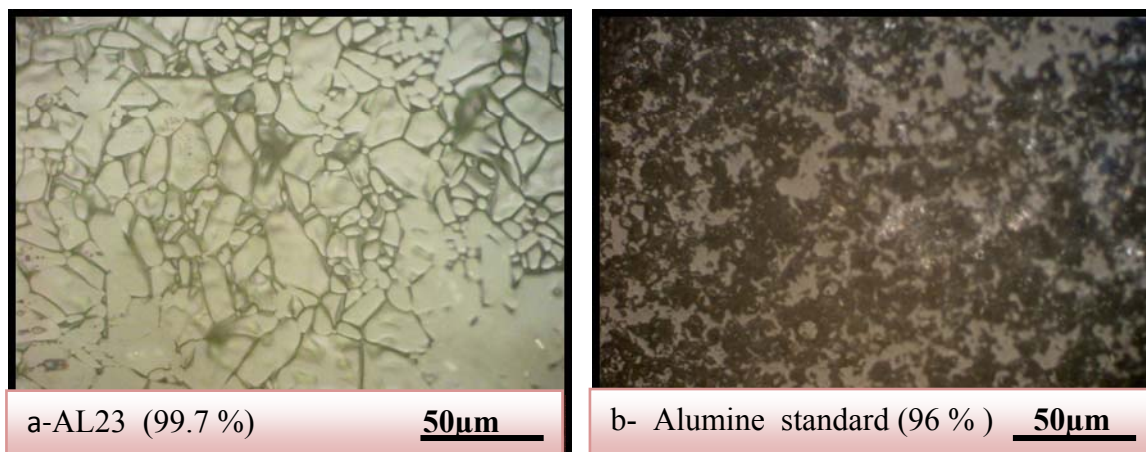


Figure III.2 : Microstructure des deux alumines après une attaque thermique de 5 h à 1200 °C.

Le tableau III.2 résume les propriétés thermomécaniques de l'alumine que nous utiliserons par la suite.

<b><i>T(K)</i></b>	<b>298</b>	<b>398</b>	<b>598</b>	<b>798</b>	<b>998</b>	<b>1098</b>	<b>1198</b>	<b>1298</b>	<b>1398</b>
<b><i>K (W/m K)</i></b>	38	31	19	12	8	7	6.8	6.5	6
<b><i>C<sub>p</sub> (J/Kg K)</i></b>	771	-	-	-	-	-	-	-	-
<b><i>α (x 10<sup>-6</sup> /K)</i></b>	6.9	8.1	10.1	10.7	11.1	11.3	11.4	11.6	-
<b><i>E (GPa)</i></b>	375	375	-	350	-	340	314	305	-
<b><i>ρ (kg/m<sup>3</sup>)</i></b>	-	-	-	-	-	-	-	-	-
<b><i>ν</i></b>	0.28	0.28	0.28	0.3	0.32	0.32	0.35	0.37	0.37

*T*-température, *K*-conductivité thermique, *C<sub>p</sub>*-chaleur spécifique, *α*-coefficient d'expansion thermique, *E*- module d'élasticité, *σ<sub>y</sub>*-limite élastique, *ρ*-densité, *ν*-coefficient de Poisson.

Tableau III.2 : Caractéristiques thermo-mécaniques de l'Alumine [22].

### III.2.2. Carbure de silicium SiC

Les matériaux hautes températures peuvent se concurrencer entre eux. Dans de nombreuses applications, la tendance est au remplacement des aciers et alliages réfractaires par des céramiques thermomécaniques. Par exemple : tubes radiants dans les fours industriels où le carbure de silicium (SiC) gagne du terrain sur les aciers réfractaires, qui limitent les températures de process autour de 1000 °C. Le SiC est utilisé pour des applications thermomécanique, électrique, électronique, nucléaire et chimique. Il est connu pour sa légèreté, sa haute stabilité, sa grande dureté et de bonnes conductivités thermiques et électriques. Par contre, il est très fragile. De plus, il est prédisposé à subir l'attaque de l'atmosphère et présente une réactivité sévère avec les métaux à haute température [68,130].

Le SiC utilisé est une céramique à grain fin ( $\approx 5\mu\text{m}$ ), de nomination industrielle EKasic<sup>®</sup> F et de pureté 99.2 %. Le diagramme de diffraction X sous incidence rasante montre qu'elle est de type SiC $\alpha$  6H (Figure III.3).

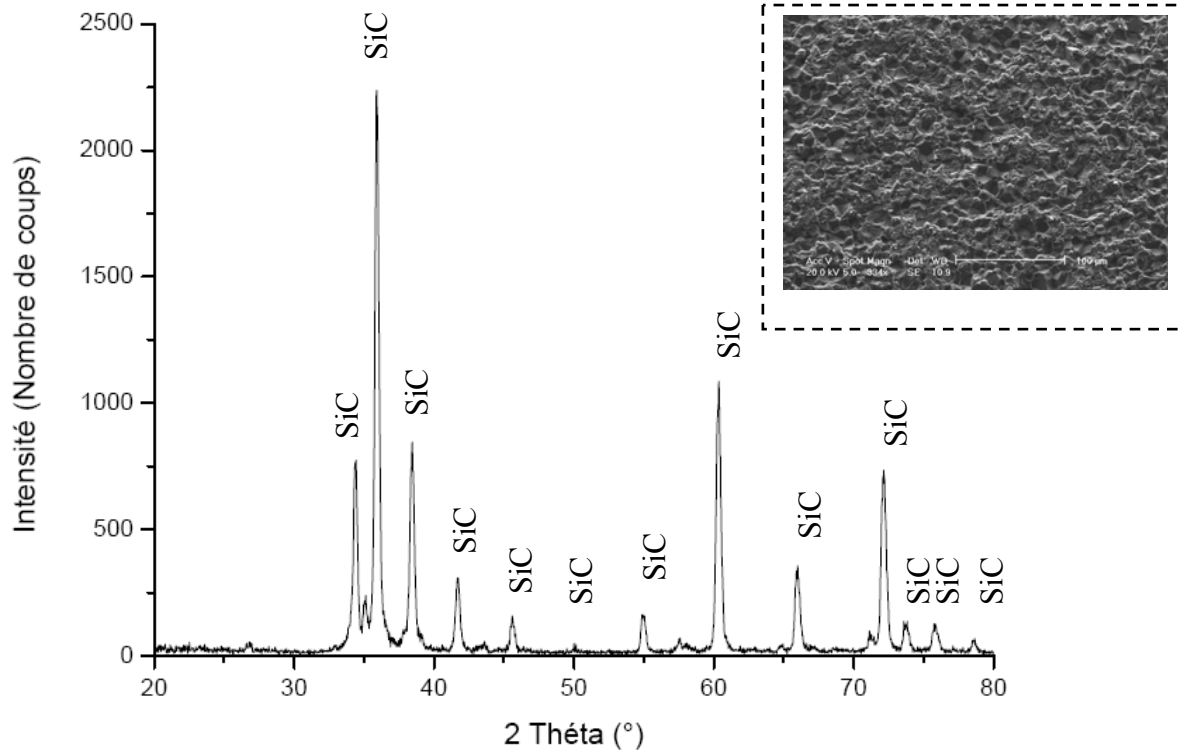


Figure III.3 : Spectre de diffraction  $X$  sous incidence rasante ( $\alpha = 1^\circ$ ) des surfaces de SiC  $\alpha$  6H (anticathode Cu  $K_\alpha$ ).

Ses caractéristiques sont :

- résistance à des températures élevées,
- bonne conductivité thermique,
- résistance à la corrosion,
- excellente résistance aux chocs thermiques.

### III.2.3. Préparation

Les céramiques sont découpées dans des plaques de façon à obtenir des éprouvettes de dimension  $(15 \times 5 \times 5) \text{ mm}^3$ . Ces échantillons ont un état de surface brut de frittage d'une rugosité de l'ordre de  $R_a \approx 1.5 \mu\text{m}$ . Ils sont ensuite polis au feutre diamanté  $3 \mu\text{m}$  afin d'obtenir une rugosité moyenne de  $0.5 \mu\text{m}$  (Figure III.4).

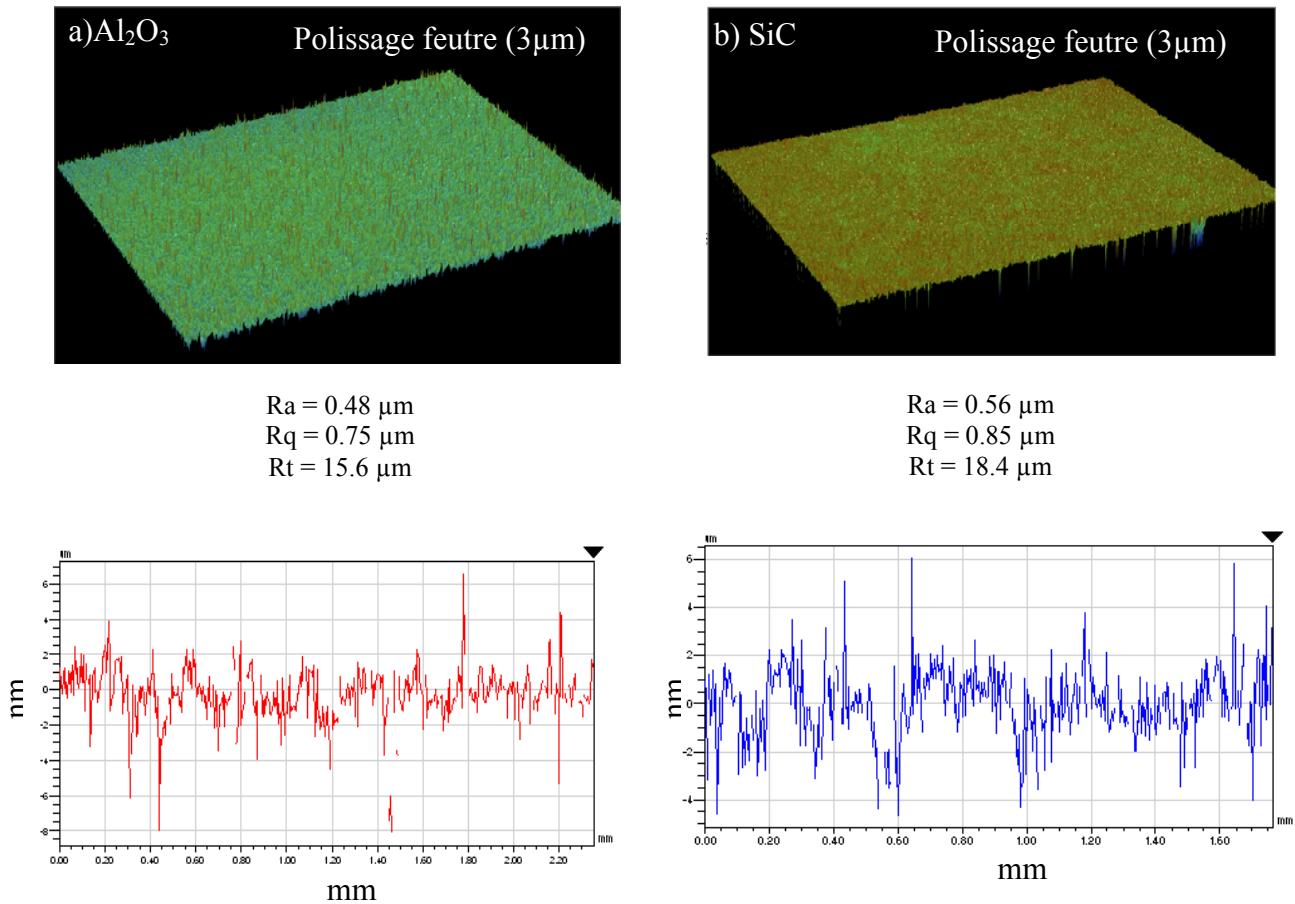


Figure III.4 : Profils de rugosités relatifs aux céramiques utilisées dans les assemblages, a)  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , b) SiC.

#### III.2.4. La méthode de métallisation par procédé Jet-Métal™

La technique de métallisation par procédé Jet-Métal™ est une technique développée par *Stremsdorfer* [131] à partir de 1997. Cette technique de métallisation permet d'amorcer directement le dépôt après un dégraissage et un éventuel conditionnement de la surface (selon les applications et l'épaisseur finale du film métallique). L'épaississement par un dépôt électrochimique classique est possible sur ce film métallique élaboré par cette technique. Appelée méthode de dépôt chimique dynamique, elle permet d'élaborer des films métalliques ou d'alliages ayant des épaisseurs allant de quelques nanomètres à plusieurs dizaines de microns sur la plupart des matériaux conducteurs ou isolants (céramiques et polymères). Cette technique a fait l'objet d'un dépôt de brevet international et de marque portant le nom de Jet Metal™ [131].

Le principe général consiste en la réduction contrôlée d'un cation métallique par des électrons. Grâce à un pistolet pneumatique double buse utilisant de l'air comprimé, deux solutions aqueuses sont projetées sur le substrat à métalliser. Une des solutions contient le ou les sels métalliques de cuivre, nickel, argent et l'autre contient la réserve d'électrons sous forme d'un réducteur (borohydrure de potassium).

Le schéma de principe de cette nouvelle technique de dépôt est présenté sur la figure III.5. Grâce au dispositif, les deux solutions oxydantes et réductrices sont projetées sous forme de gouttelettes. La coalescence des gouttelettes de ces deux solutions ne peut

pas se faire dans le cône de projection du dispositif mais il s'effectue, avec des proportions adéquates, à la surface du substrat (métal, céramique, polymère). La coalescence rapide des gouttelettes conduit ainsi à la formation d'un film liquide qui recouvre et mouille toute la surface exposée à la projection.

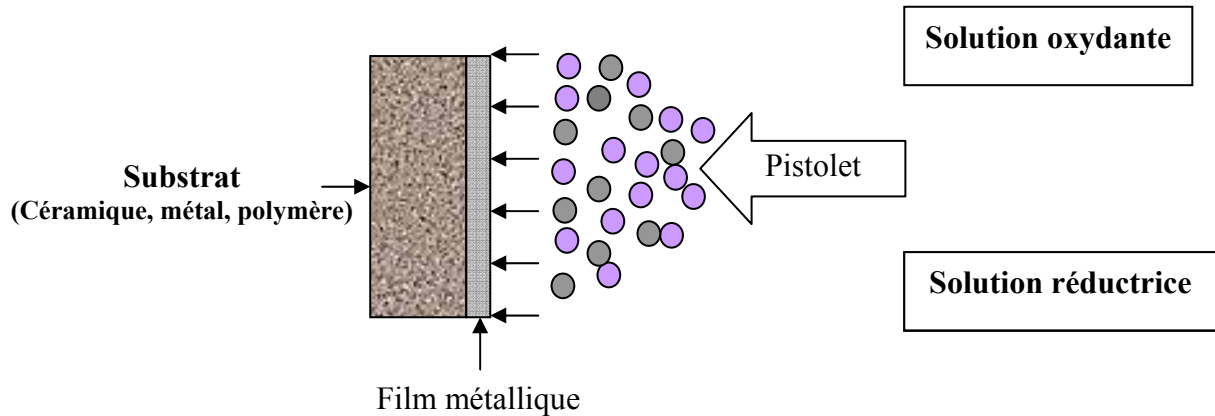


Figure III.5 : Représentation schématique du principe du procédé Jet Métal<sup>TM</sup>.

Après avoir obtenu le film métallique ou l'alliage métallique sur les substrats (alliage ou céramique), la liaison métal-céramique s'effectue d'une façon classique dans un four à thermocompression mais éventuellement sans aucune pression appliquée. Les dépôts utilisés dans notre étude sont  $\text{Ni}_{0,93}\text{B}_{0,07}$  et Ag pur.

### III.2.5. Les joints de liaisons

Le choix du cuivre et du nickel comme joints métalliques pour la thermocompression se justifie d'une part pour l'intérêt industriel, et d'autre part par leur réactivité avec l'alumine en présence d'oxygène à haute température ou inversement par leur non réactivité en absence de ce dernier. Pour le cuivre, l'intérêt pratique dans les composants électroniques n'est plus à démontrer. Son excellente aptitude au brasage et son prix en font un métal très employé en connectique ; son couplage avec l'alumine dans les circuits hybrides hautes fréquences est recherché afin de dissiper les calories de l'ensemble. Il est aussi l'un des composants de nombreuses brasures (Ag-Cu, Cu-Zn...) utilisées dans les liaisons métal/céramique comme nous l'avons vu au chapitre I. Son utilisation peut être intéressante comme joint d'étanchéité. Il présente des propriétés mécaniques, métallurgiques et physicochimiques adaptées aux techniques que nous voulions employer : point de fusion modéré (1083 °C), grande plasticité à chaud, miscibilité totale à l'état solide avec le nickel dans le cas de l'utilisation de multi-joints Cu-Ni (technique dont nous démontrerons l'efficacité pour des applications hautes températures). De plus il permet de former un eutectique avec son oxyde  $\text{Cu}_2\text{O}$  et donc d'utiliser la méthode de l'eutectique (cf. chapitre I, § I.2.5). Signalons enfin que ce choix correspond aussi à la poursuite des travaux entrepris dans notre laboratoire [2,3] sur ce couple et de la diversité des nombreuses études sur les liaisons  $\text{Cu}/\text{Al}_2\text{O}_3$ , que nous avons cité au chapitre I.

### III.2.5.1. Le nickel

Le métal utilisé est du Nickel polycristallin à 99,5%. Sa composition chimique est donnée dans le tableau ci-dessous :

<i>Cu</i>	<i>Si</i>	<i>C</i>	<i>Mn</i>	<i>Fe</i>	<i>Co</i>	<i>O</i>	<i>Ni</i>
< 0,01	0,14	0,051	0,08	0,098	<0,01	35ppm	solde

Tableau III.3 : Composition du nickel en % massique.

Le nickel est utilisé sous forme de plaquette de 0,25 mm d'épaisseur obtenue après laminage et découpage d'une tôle de 1 mm d'épaisseur. Avant thermocompression, il est soumis à un décapage chimique dans une solution aqueuse d'acide nitrique (HNO<sub>3</sub> à 50%, densité : 1,325) puis un nettoyage aux ultra-sons dans un bain d'éthanol.

Le tableau III.4 montre le comportement du nickel en température après un recuit à 1100 °C sous vide. Les essais mécaniques de traction ont été réalisés par *Lourdin* [22] pour une vitesse de traverse de 0.1 mm/mn et une vitesse de déformation de  $1.15 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ .

<i>T(K)</i>	298	398	598	798	998	1098	1198	1298	1398
<i>K (W/m K)</i>	70.3	66.5	61.6	56.8	61.8	57.6	66.1	68.8	-
<i>C<sub>p</sub> (J/Kg K)</i>	456	-	-	-	-	-	-	-	-
<i>α (x 10<sup>-6</sup> /K)</i>	13.1	13.6	14.2	15.3	18.8	16.2	16.6	16.9	17.1
<i>E (GPa)</i>	205	200	190	117	-	-	-	-	-
<i>σ<sub>y</sub> (GPa)</i>	91	94	72	59	49	42	-	-	-
<i>ρ (kg/m<sup>3</sup>)</i>	8700	-	-	-	-	-	-	-	-
<i>ν</i>	0.29	-	-	-	-	-	-	-	-
<i>A</i>	-	-	-	1.6E <sup>-18</sup>	1.57E <sup>-14</sup>	5.53E <sup>-11</sup>	8.18E <sup>-10</sup>	8.3E <sup>-9</sup>	6.26E <sup>-8</sup>
<i>n</i>	6.6	6.6	6.6	6.6	6.6	4.6	4.6	4.6	4.6

*T*-température, *K*-conductivité thermique, *C<sub>p</sub>*-chaleur spécifique, *α*-coefficient d'expansion thermique, *E*- module d'élasticité, *σ<sub>y</sub>* –limite élastique, *ρ*-densité, *ν* – coefficient de Poisson, *A* et *n* paramètre de fluage.

Tableau III.4 : Caractéristiques thermo-mécaniques du nickel [22].

### III.2.5.2. Le cuivre

Nous avons utilisé du cuivre polycristallin type O.F.H.C de pureté supérieure à 99,95% sous forme de plaquette de 0,2 mm d'épaisseur obtenue après laminage et découpage d'une première plaque de 1 mm d'épaisseur. Avant thermocompression, il est soumis à un décapage chimique dans une solution aqueuse d'acide nitrique (HNO<sub>3</sub> à 50%, densité : 1,325) puis un nettoyage aux ultras sons.

Le tableau III.5 montre le comportement du cuivre en température.

<i>T</i> (K)	298	398	598	798	998	1098	1198	1298	1398
<i>K</i> (W/m K)	399	395	390	380	375	368	360	340	-
<i>C<sub>p</sub></i> (J/Kg K)	380	-	-	-	-	-	-	-	-
<i>α</i> ( $\times 10^{-6}$ /K)	16.7	17.3	18.1	18.4	18.7	19.1	20.1	-	-
<i>E</i> (GPa)	132	120	103	90	73	60	-	-	-
<i>σ<sub>v</sub></i> (GPa)	60	40	15	2	-	-	-	-	-
<i>ρ</i> (kg/m <sup>3</sup> )	8940	-	-	-	-	-	-	-	-
<i>ν</i>	0.29	-	-	-	-	-	-	-	-
<i>A</i>	-	-	-	9.2E <sup>-12</sup>	2E <sup>-12</sup>	2.1E <sup>-11</sup>	2E <sup>-9</sup>	-	-
<i>n</i>	-	-	-	4.5	4.5	4.5	4.5	-	-

*T*-température, *K*-conductivité thermique, *C<sub>p</sub>*-chaleur spécifique, *α*-coefficient d'expansion thermique, *E*-module d'élasticité, *σ<sub>v</sub>* -limite élastique, *ρ* -densité, *ν*-coefficient de Poisson, *A* et *n* paramètre de fluage.

Tableau III.5 : Caractéristiques thermo-mécaniques du cuivre [18].

### III.2.6. Alliages (Incoloy 800H, Kanthal APM, Haynes<sup>TM</sup> 214<sup>®</sup>)

Les alliages réfractaires ont été mis au point pour résister à l'oxydation et à la corrosion par les gaz à températures élevées tout en conservant des propriétés mécaniques suffisantes c'est à dire sans subir de déformation plastique. Le terme « réfractaire » est souvent employé pour des nuances très alliées adaptées à des températures de service supérieures à 300 °C, généralement comprises entre 900 et 1150 °C (NF A 35-578).

Les caractéristiques mécaniques à chaud de ces alliages (résistance au fluage) ainsi que certaines données physiques (coefficient de dilatation, conductivité thermique) sont données souvent d'une façon indicative.

Les dimensions de nos alliages sont de 15 mm x 5 mm x 5 mm. Toutes les éprouvettes ont subi un polissage par papier abrasif de granulométrie 600 et un nettoyage dans un bain aux ultras sons.

L'**INCOLOY<sup>®</sup> 800H** est un alliage à base de Fe-Ni-Cr de structure austénitique. Ce matériau est résistant à l'oxydation à haute température, et à la corrosion. A cause de sa haute teneur en nickel et chrome, l'alliage forme une couche d'oxyde protectrice contre l'oxydation de type Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. La composition chimique de cet alliage est donnée au tableau III.6 :

<i>Fe</i>	<i>Ni</i>	<i>Cr</i>	<i>C</i>	<i>Al</i>	<i>Ti</i>	<i>Al + Ti</i>
39,5	30-35	19-23	0,05-0,1	0,15-0,6	0,15-0,6	0,3-1,2

Tableau III.6 : Composition chimique en % en poids de l'**INCOLOY<sup>®</sup> 800H** [132].

Elaboré par la métallurgie des poudres, le **KANTHAL APM** est constitué essentiellement de Fe-Cr-Al de structure ferritique. La particularité de ce type d'alliage est d'être stable à haute température et de résister à l'oxydation (vers 1250 °C). Il présente aussi une bonne résistance à l'environnement sulfureux et carboné. Ci-dessous la composition chimique de l'alliage (Tableau III.7) :

<i>C</i>	<i>Si</i>	<i>Mn</i>	<i>Cr</i>	<i>Al</i>	<i>Fe</i>
0,08	0,7	0,4	23,5	5,8	solde

Tableau III.7 : Composition chimique en % en poids du KANTHAL APM [133].

L'HAYNES<sup>TM</sup> 214<sup>®</sup> est un alliage industriel à base de Ni de structure austénitique. Les principales caractéristiques de cet alliage sont la bonne résistance à l'oxydation et à la corrosion. A une température avoisinant 950 °C, l'alliage forme en surface des oxydes mixtes type Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> et Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> qui lui confèrent une protection à l'oxydation suffisante, comparable à celle obtenue par les alliages à haute teneur en nickel. Il s'agit aussi d'un alliage qui a un très bon comportement à la soudabilité (TIG, MIG...). Sa composition chimique est donnée par le tableau III.8 :

<i>Ni</i>	<i>Cr</i>	<i>Al</i>	<i>Fe</i>	<i>Mn</i>	<i>Si</i>	<i>Zr</i>	<i>C</i>	<i>B</i>	<i>Y</i>
75	16	4,5	3	0,5	0,2	0,1	0,05	0,01	0,01

Tableau III.8 : Composition chimique en % en poids de l'HAYNES<sup>TM</sup> 214<sup>®</sup> [134].

Le tableau III.9 résume les propriétés thermomécaniques de l'alliage que nous avons principalement sélectionné et utilisé dans la suite de notre étude (HAYNES<sup>TM</sup> 214<sup>®</sup>) en fonction de la température.

<i>T(K)</i>	298	398	598	798	998	1098	1198	1298	1398
<i>K (W/m K)</i>	12	12.8	15.9	21.1	26.9	29.7	31.4	32.7	34
<i>C<sub>p</sub> (J/Kg K)</i>	452	470	515	561	668	705	728	742	749
<i>α (x 10<sup>-6</sup> /K)</i>	13.1	13.3	13.6	14.6	15.8	16.6	17.6	18.6	20.2
<i>E (GPa)</i>	218	210	204	184	170	162	151	137	-
<i>σ<sub>v</sub> (GPa)</i>	605	-	-	545	645	610	65	27	12
<i>ρ (kg/m<sup>3</sup>)</i>	8700	-	-	-	-	-	-	-	-
<i>ν</i>	0.3	-	-	-	-	-	-	-	-
<i>A</i>	-	-	-	-	1.12E <sup>-27</sup>	1.48E <sup>-18</sup>	1.53E <sup>-11</sup>	1.13E <sup>-9</sup>	-
<i>n</i>	-	-	-	-	9.2	5.9	5	3.2	-

*T*-température, *K*- conductivité thermique, *C<sub>p</sub>*- chaleur spécifique, *α*- coefficient d'expansion thermique, *E*- module d'élasticité, *σ<sub>v</sub>*-limite élastique, *ρ* -densité, *ν* – coefficient de Poisson, *A* et *n* paramètre de fluage.

Tableau III. 9 : Caractéristiques thermo-mécaniques du HAYNES<sup>TM</sup> 214<sup>®</sup> [134].

### III.3. DISPOSITIF EXPÉRIMENTAL D'ASSEMBLAGE

#### III.3.1. Four presse

Le laboratoire dispose de plusieurs fours de thermocompression travaillant à haute température sous atmosphère contrôlée, ou sous vide (Figure III.6). Pour réaliser les liaisons métal-céramique nous avons utilisé l'un de ces fours dont les paramètres de fonctionnement sont :



- température maximale de travail de 1600°C,
- étanchéité au vide secondaire,
- possibilité de travailler dans le vide ou sous atmosphère contrôlée,
- charge uniaxiale constante et facilement réglable entre 0 et 150 kg.

Le dispositif (Figure III.6) comprend un four à résistance en  $\text{MoSi}_2$  (1) dont la température est contrôlée par un régulateur (12) chauffant un tube vertical en alumine étanche (2). Ce tube est raccordé à ses deux extrémités à des tubes en acier inoxydable refroidis par une circulation d'eau (3). Sur les parties en acier inoxydable, qui assurent l'étanchéité de l'ensemble, sont fixées :

- les entrées et sorties de gaz pour les traitements sous atmosphère contrôlée,
- les prises de vide (primaire ou secondaire) (10),
- la jauge de mesure du vide (4),
- le passage du thermocouple interne (5).

L'intérieur des tubes en alumine comprend :

- un tube bas coulissant en alumine sur lequel les échantillons sont positionnés (8),
- un tube haut mobile en alumine sur lequel est fixé un vérin pneumatique (6).

Les faces en contact avec les échantillons sont également en alumine (9). De plus, cet ensemble est doté :

- d'un régulateur de pression (7),
- d'un débitmètre (11),
- d'un analyseur d'oxygène (13).

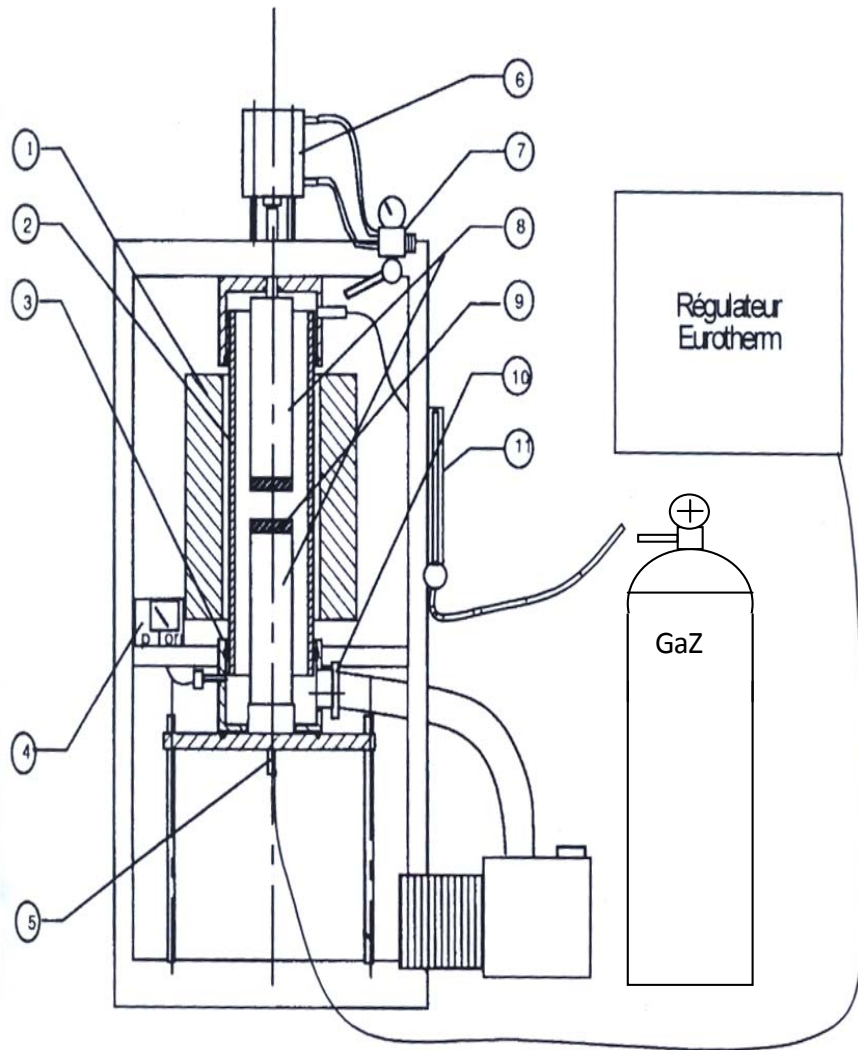


Figure III.6 : Dispositif expérimental de l'appareillage de thermocompression.

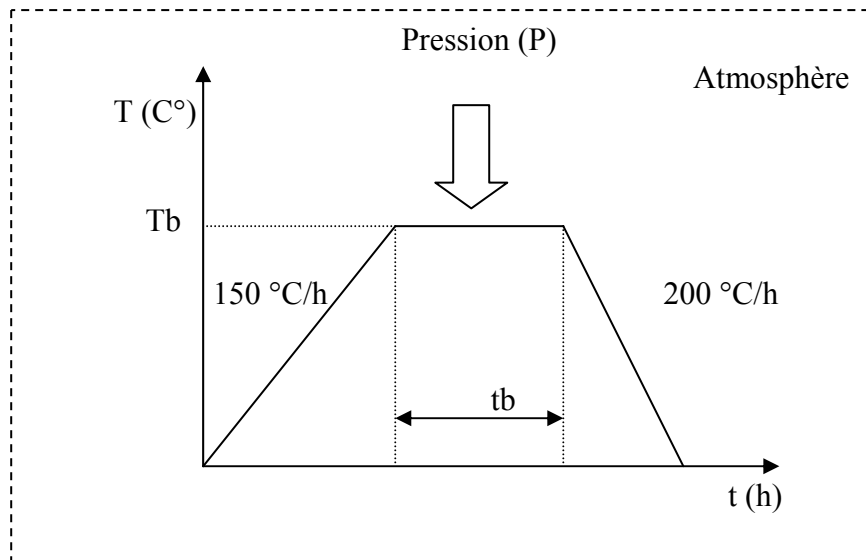


Figure III.7 : Schéma d'un cycle de thermocompression.

### III.3.2. Conditions expérimentales

Comme nous l'avons évoqué au chapitre I, les paramètres à prendre en considération dans le procédé de thermocompression sont les suivants (Figure III.7) :

- la valeur de la pression uniaxiale appliquée au système (P), et à quelle étape du cycle,
- la température de liaison ( $T_b$ ),
- le temps de maintien à la température  $T_b$  ( $t_b$ ) (palier de thermocompression),
- la nature chimique de l'atmosphère de travail,
- l'état de surface et la pureté des échantillons.

Pour le choix de ces paramètres, nous nous sommes appuyés sur les indications fournies par les études menées au sein de notre laboratoire par *Lourdin* [22], *Serier* [31] et *Jacquemin* [135].

#### - **Température :**

Les vitesses de montée et de descente en température sont linéaires et sont fixées respectivement à 150 °C/h et 200 °C/h. Un palier est observé lorsque la température maximale est atteinte et le temps de maintien à ce palier varie de 0 à 2 heures suivant les couples. La température du four a été étalonnée à partir de la température de fusion du cuivre (1083 °C).

#### - **Pression :**

La pression est exercée dès la montée en température et dans certains cas seulement lorsque la température du palier ( $T_b$ ) est atteinte (Figure III.7). Elle est maintenue au cours du refroidissement et est enlevée lorsque le four atteint la température ambiante.

- **Atmosphère :**

Les liaisons sont réalisées sous vide dynamique primaire. Le pompage est effectué pendant tout le cycle d'élaboration.

### III.4. CONFIGURATION DES ASSEMBLAGES

Nous avons opté pour deux types de configurations : une configuration laboratoire avec des géométries prismatiques et une configuration industrielle type Tube-Tube. Les dimensions ainsi que la géométrie sont mentionnées dans la Figure III.8.

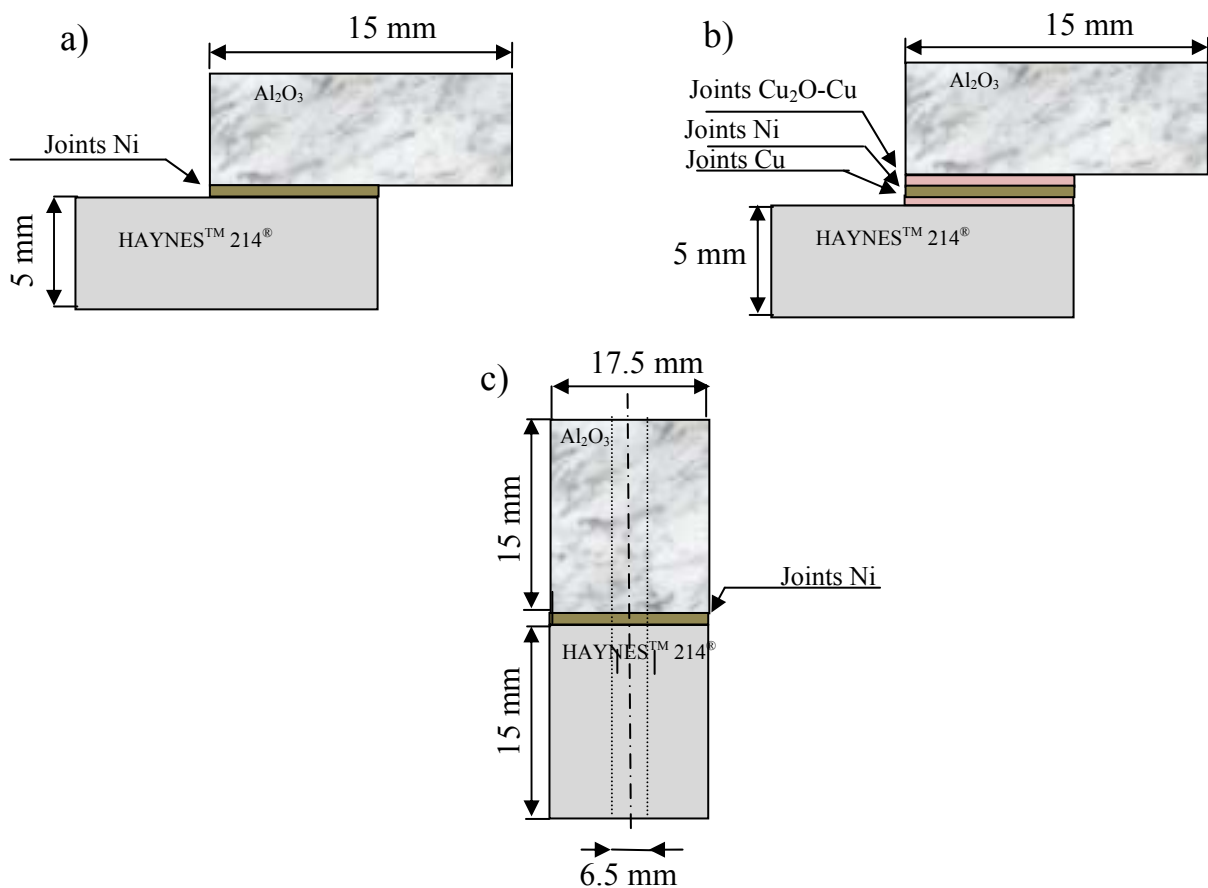


Figure III.8 : Schéma descriptif de différents types d'assemblages réalisés. a) avec un joint en nickel, b) avec un multi-joint Cu-Ni-Cu, c) configuration tube-tube avec un joint en nickel.

Les joints métalliques utilisés sont sous forme d'un feuilard qui est disposé entre la céramique ( $\text{Al}_2\text{O}_3$  ou  $\text{SiC}$ ) et l'alliage. Dans certains cas, un empilement de trois joints métallique Cu-Ni-Cu est utilisé. Ce dernier a pour fonction d'accommoder les déformations et par conséquent de limiter les contraintes résiduelles.

L'étude est faite sur deux types de céramique. La première céramique est le carbure de silicium assemblée avec l'alliage en utilisant différentes barrières chimiques ( $\text{Ni}_{0.93}\text{B}_{0.07}$  et Ag). La deuxième céramique est l'alumine avec l'utilisation du Ni ou des sandwichs CuNiCu comme joint métallique.

### III.5. CARACTÉRISATION PHYSICO-CHIMIQUE ET MÉCANIQUE DES LIAISONS

#### III.5.1. Essai de cisaillement

C'est l'essai le plus souvent employé en thermocompression malgré la dispersion des résultats qu'il entraîne du fait de l'apparition de flexion au moment du test.

Le dispositif de cisaillement (Figure III.9) est réalisé en acier, il est monté et guidé en translation verticale sur une machine de traction de type **Adamel DY25** équipée d'un capteur piézoélectrique de 2000 daN. La vitesse de déplacement de la traverse est de 0,1 mm/mn.

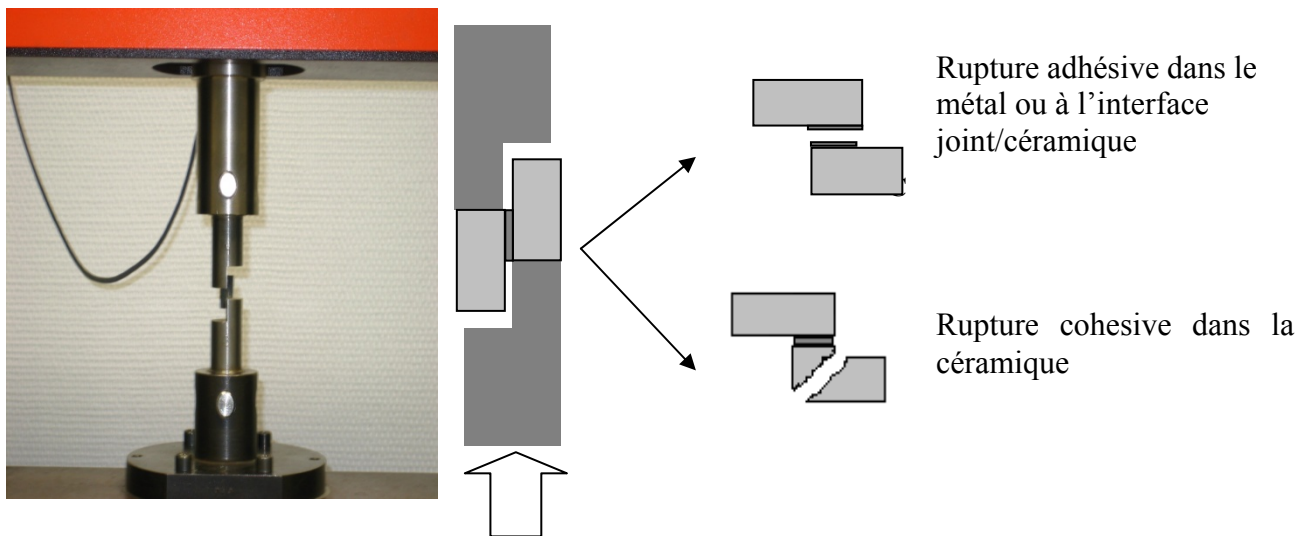


Figure III.9 : Essai de cisaillement avec les deux types de rupture rencontrés.

Cette caractérisation permet de déterminer la contrainte maximale ( $\sigma_{\max}$ ) ainsi que la contrainte à la rupture ( $\sigma_{\text{rup}}$ ) à partir de la courbe force-allongement enregistrée pour chacun des essais effectués. Une observation du faciès de rupture permet de déterminer le mode de propagation de la fissure (adhésif, cohésif ou mixte).

#### III.5.2. Essai de flexion 4 points (délamination)

Le test de flexion 4 points par délamination est un test conventionnel, développé par *Charalambides et al.* [136] à la fin des années 80. Cet essai a pour but de déterminer l'énergie de rupture interfaciale  $G_{IC}$  de la liaison.

Les tests de délaminage (flexion 4 points) sont réalisés sur une machine de traction-compression type **Adamel DY25**. Le montage est constitué de deux parties (Figures III.10 et III.11) :

- une pièce inférieure à fond plat sur laquelle sont collés deux plots en alumine distant de 20 mm ( $2c = 20$  mm),

-une pièce supérieure à fond arrondi sur laquelle sont collés deux plots en alumine distant de  $2L = 40$  mm. Cette pièce est simplement posée sur l'échantillon ; la charge appliquée par l'intermédiaire d'un piston au contact d'une bille est ainsi répartie de façon homogène dans les deux plots.

Le montage est posé sur le capteur de force. Le capteur utilisé est un capteur qui peut supporter des forces supérieures à 2000 daN.

Le test de délaminage permet de déterminer l'énergie de rupture interfaciale (cf. Chapitre I, § II.4.2) car il présente un domaine important dans lequel  $\psi$  et l'énergie de rupture sont indépendants de la longueur de fissure, pour une fissure comprise entre  $0.2h < a < 0.9c$  (Figure III.10) [136].

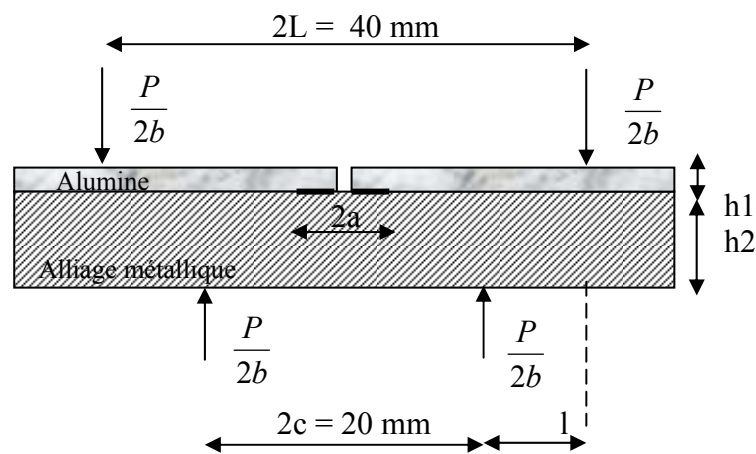


Figure III. 10: Epreuve de flexion 4 points.

$2c$  est l'écartement entre les appuis intérieurs du montage de flexion.

$b$  : largeur du barreau.

$a$  : longueur de la fissure.

$P$  : la charge appliquée.

L'angle de charge  $\psi$  de cet essai dépend essentiellement des contraintes résiduelles, de la différence entre les propriétés élastiques des deux matériaux et du rapport  $\frac{h_1}{h_2}$ .

Pour ce type d'échantillon, l'énergie de rupture est donnée par la relation suivante [136].

$$G_{IC} = \frac{M^2 (1-\nu)}{2E_2} \left[ \frac{1}{I_2} - \frac{\lambda}{I_0} \right] \quad \text{III.1}$$

$G_{IC}$  : Energie de rupture interfaciale.

$$\lambda = E_2 \frac{(1-\nu^2)}{(E_1(1-\nu_2^2))}$$

$$M = \frac{Pl}{2b}$$

$P$  : Charge.

$\nu_i$  : Coefficient de Poisson.

$E_i$  : Module de Young.

$$I_0 = \frac{h_1^3}{12} + \frac{\lambda h_2^3}{12} + \frac{\lambda h_1 h_2 (h_1 + h_2)^2}{4(h_1 + \lambda h_2)}$$

$$I_2 = \frac{h_2^3}{3}$$

$$G_{IC} = \frac{3 P^2 l^2 (1 - \nu_2^2)}{2 E_2 h^3 b^2} \left( \frac{1}{\left(\frac{h_2}{h}\right)^3} - \frac{\lambda}{\left(\left(\frac{h_1}{h}\right)^3 + \lambda \left(\frac{h_2}{h}\right)^3 + 3\lambda \left(\frac{h_1 h_2}{h^2}\right) \left(\frac{h_1}{h} + \lambda \frac{h_2}{h}\right)^{-1}\right)} \right)$$

III.2

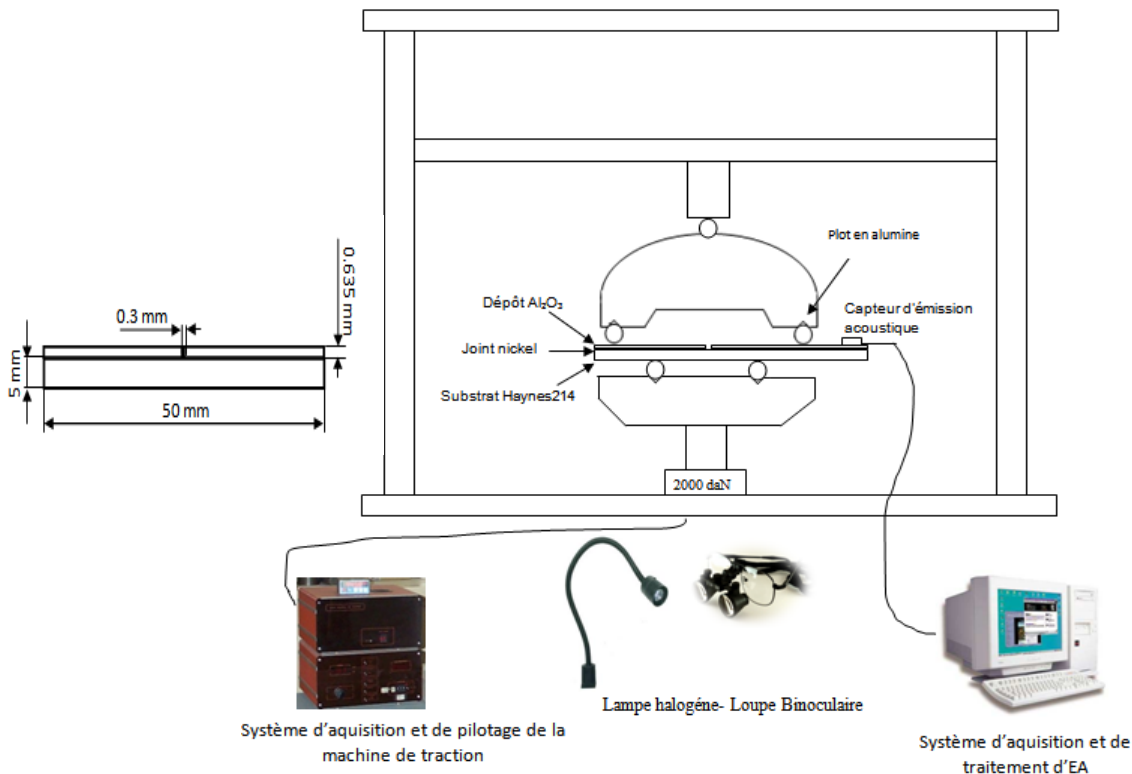


Figure III.11 : Dispositif expérimental du test de délaminage suivi par émission acoustique ainsi que les dimensions des éprouvettes de flexion 4 points type délaminage.

L'alumine utilisée pour ces essais est l'AL23 (99.7% Degussit). Elle se présente sous la forme de barreaux parallélépipédiques de 50 mm x 5 mm x 0.635 mm et 50 mm x 5 mm x 0.385 mm. Le nickel est identique à celui utilisé précédemment. Les faces liées de l'alumine sont brutes de frittage. Les entailles ont été réalisées avec une meule diamantée de 0.3 mm d'épaisseur.

Les conditions des essais de flexion 4 points (délaminage) sont les suivantes :

- la vitesse de la traverse 0.1 mm/mn, vitesse minimale autorisée avec la machine de traction-compression,
- précharge  $\approx 2$  N,
- capteur de force 2000 daN.

Un système optique comprenant une binoculaire permet une visualisation in-situ de l'essai. Le grossissement assuré par ce dernier est assez important pour pouvoir détecter l'apparition des fissures interfaciales. Le côté poli de l'éprouvette de délaminage est placé face à la binoculaire ; l'éclairage est assuré par une lampe halogène.

Il est à noter que ce système ne permet pas de détecter les microfissures et que les fissures sont effectivement observables si elles débouchent sur le côté poli de l'éprouvette d'où l'utilité d'un suivi par Emission Acoustique (EA).

### ***III.5.3. Caractérisation par émission acoustique (EA)***

La chaîne de mesure d'EA provient de Physical Acoustic Corporation (PAC) (Figure III.10). Elle est constituée de :

- un capteur piézo-électrique. L'énergie mécanique des ondes acoustique est convertie en signaux électriques.

Le couplage entre le capteur et l'échantillon est réalisé avec une graisse silicone. Le capteur est placé du côté du dépôt céramique. Le capteur est maintenu grâce à un ressort permettant une optimisation et une bonne reproduction du couplage entre le capteur et le dépôt céramique au cours des différents essais.

- un préamplificateur 1220A de PAC. Le gain d'amplification est de 40 dB,
- un système d'acquisition et de traitement des données d'EA. Il comporte un ampli dont le gain est de 30 dB. L'acquisition des données permet d'obtenir un comptage cumulé ou non du nombre de salves et du nombre de coups par salve. Pour chaque événement, le temps de montée, la durée, l'énergie et l'amplitude sont enregistrés.

Le seuil ou la valeur minimale de détection d'un événement est de 45 dB. Les événements dont l'amplitude est inférieure à 45 dB ne seront donc pas accessibles.

Nous avons utilisé ce suivi en EA pour certains essais en cisaillement et pour les essais de délamination.



### III.5.4. Caractérisation physico-chimique

Nous avons utilisé plusieurs moyens de caractérisation de l'interface. Sur des échantillons non sollicités mécaniquement, les observations sont faites par microscopie optique et microscopie électronique à balayage (MEB). Ces observations sont réalisées sur une coupe métallographique perpendiculaire à l'interface.

Après sollicitation et rupture, ces mêmes échantillons sont caractérisés au niveau de la surface de rupture par :

- microscope optique,
- microscope électronique à balayage,
- analyse EDX,
- diffraction des rayons X (classique et/ou rasant).

## III.6. ESTIMATION DES CONTRAINTES RÉSIDUELLES

### III.6.1. Mesure par indentation Vickers

Moins répandue que la diffraction X mais pourtant aisée à mettre en œuvre pour l'étude des liaisons métal-céramique, la méthode par indentation Vickers peut être appliquée pour évaluer d'une part l'évolution de la ténacité de la céramique au voisinage de l'interface et d'autre part les contraintes résiduelles dans le matériau fragile près de la zone interfaciale. Basée sur la mécanique de la rupture des milieux continus [137], la différence de longueur des fissures que l'on observe pour une même céramique avant et après assemblage est liée au niveau de contraintes résiduelles  $\sigma_R$  au point d'indentation (Figure III.12).

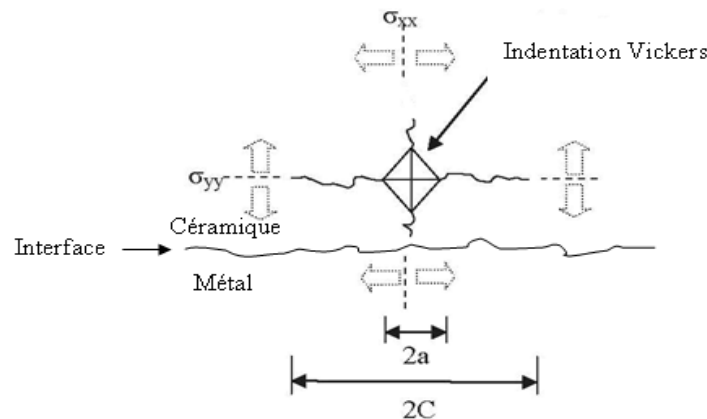


Figure III.12 : Représentation schématique d'une empreinte d'indentation Vickers pour un assemblage métal/céramique.

Les couples étudiés sont  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{HAYNES}^{\text{®}} 214$   $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cu}_2\text{O}-\text{Cu}-\text{Ni}-\text{Cu}/\text{HAYNES}^{\text{®}} 214$ . Ces derniers sont polis jusqu'à la pâte diamantée 3  $\mu\text{m}$ . Les mesures d'indentation sont réalisées sur un microduromètre BUEHLER, avec un indenteur Vickers sous une charge de 300 g pendant 15 secondes. Le facteur d'intensité critique des contraintes ( $K_{\text{IC}}$ ) a été déterminé en utilisant la formule de *Liang et coll* [138] qui a l'avantage d'être indépendante du type de fissure créé, médian ou palmqvist.

$$K_{\text{IC}} = \frac{H_v a^{\frac{1}{2}}}{\alpha} \left( \frac{E\phi}{H_v} \right)^{0,4} \left( \frac{C}{a} \right)^{\frac{C}{18a}-1,51} \quad \text{III.3}$$

Où  $H_v$  est la dureté Vickers,  $E$ , le module de Young,  $\phi$  le facteur de contrainte égal à 3 pour l'alumine,  $\alpha$  est une constante non dimensionnelle qui est fonction du coefficient de poisson  $\nu$  et qui est donnée par :

$$\alpha = 14 \left[ 1 - 8 \left( \frac{4\nu - 0,5}{1 - \nu} \right)^4 \right] \quad \text{III.4}$$

*Lascar* [115] propose, pour le calcul de niveau de contraintes résiduelles au point d'indentation, la relation suivante :

$$\sigma_r = \frac{K_{\text{IC}_i}}{(\pi C \Omega)^{\frac{1}{2}}} \left[ 1 - \left( \frac{C_i}{C} \right)^{\frac{3}{2}} \right] \quad \text{III.5}$$

$K_{\text{IC}_i}$  : facteur d'intensité critique de contrainte initial de la céramique,

$C_i$  : longueur initial du défaut médian ( $C = a + l$ ) obtenu par indentation de la céramique avant liaison,

$C$  : longueur du défaut médian obtenu par indentation après liaison,

$\Omega$  : coefficient géométrique  $\Omega = \frac{4}{\pi^2}$ .

### III.6.2. Mesure par diffraction X

#### III.6.2.1. Principe de la méthode diffractométrique

Parmi les méthodes d'analyse de contraintes résiduelles, la diffractométrie des rayons X est la plus employée dans les laboratoires et l'industrie. Elle permet d'effectuer un contrôle non destructif en proche surface d'un matériau polycristallin. Le calcul de la contrainte d'ordre I (échelle macroscopique) est basé sur une mesure de distance interréticulaire  $d_{\text{hkl}}$  (échelle microscopique). Une analyse correcte des résultats est fondée en partie sur la maîtrise du passage entre les deux échelles macro et microscopique [97].

Le prototype de cette méthode est une technique fondée sur la diffraction des rayons X qui permet de déterminer les déformations du réseau sous un champ de contraintes bi-axiales à la surface d'un solide. Elle est basée sur la mesure des distances inter-réticulaires d'une famille de plans cristallographiques convenablement choisie qui varie en fonction du champ de contraintes imposées [139,102,140].

Soit  $d_{hkl}$  la distance interréticulaire d'une famille de plans  $\{hkl\}$  et  $d_0$  sa valeur au repos. Sous l'effet d'une contrainte, la distance  $d_{hkl}$  va différer de  $d_0$  d'une distance  $\Delta d = d_{hkl} - d_0$ . La mesure de la déformation  $\varepsilon = \frac{\Delta d_{hkl}}{d_0}$  résultante est reliée par la loi de Bragg à la mesure du déplacement  $\Delta 2\theta$ . Sachant que :

$$2 \cdot d_{hkl} \cdot \sin \theta = n \cdot \lambda \quad \text{III.6}$$

Avec :

$\theta$  : angle de diffraction (de Bragg).

$\lambda$  : longueur d'onde des rayons X incidents.

$n$  : nombre entier naturel.

Si l'on différencie en  $d_0$  cette relation, on obtient :

$$\Delta d_{hkl} = -n \cdot \lambda \cdot \frac{\cos \theta_0}{\sin^2 \theta_0} \cdot \Delta \theta \quad \text{III.7}$$

ou bien  $\frac{\Delta d_{hkl}}{d_0} = -\cot \theta_0 \cdot \Delta \theta$  après division par  $d_0$  III.8

La variation totale de l'angle de diffraction et par conséquent la déformation  $\varepsilon$  s'écrit :

$$\varepsilon = \frac{\Delta d_{hkl}}{d_0} = -\frac{1}{2} \cot \theta_0 \cdot \Delta 2\theta \quad \text{III.9}$$

Du fait de la présence du facteur  $\cot$  dans la formule, on utilisera dans la pratique les plus grands angles de Bragg ( $2\theta > 140^\circ$ ) pour augmenter la précision.

La figure III.13 montre l'effet de la contrainte sur l'angle de diffraction.

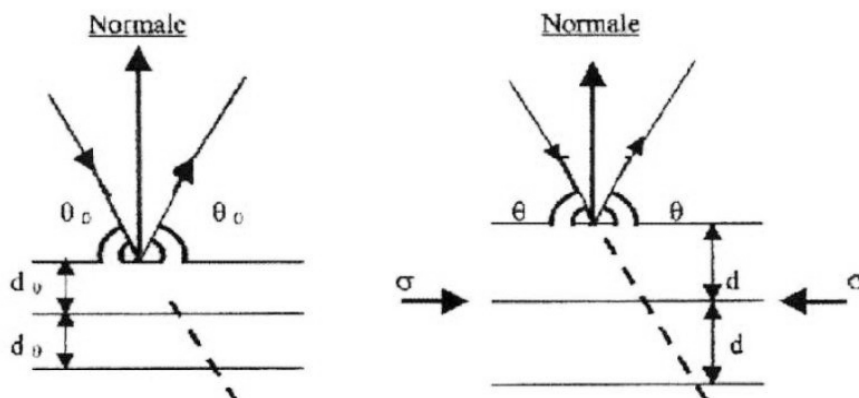


Figure III. 13: Effet des contraintes sur l'angle de diffraction [140].

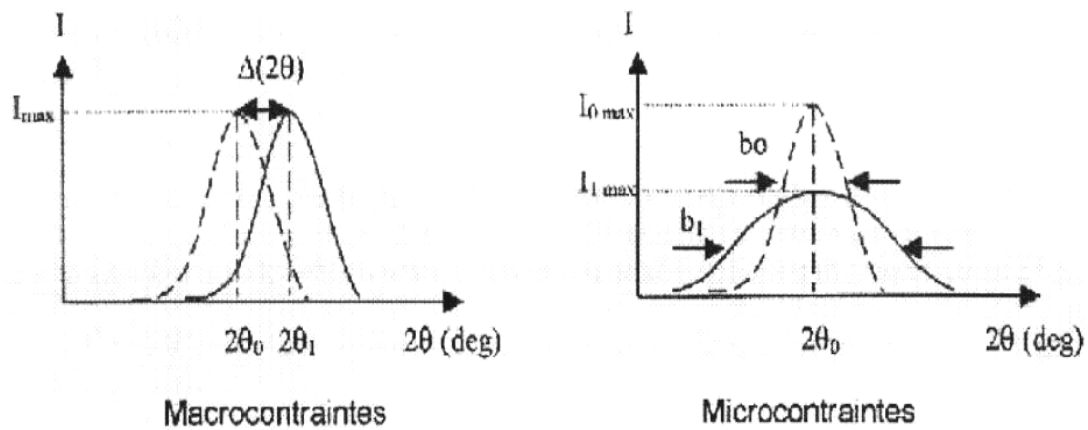
Les variations de  $d_{hkl}$  ont différents effets sur la déformation des raies de diffraction selon leurs échelles.

**A l'échelle macroscopique**, la déformation peut être considérée uniforme et il y a effectivement, dans ce cas, une translation uniforme du pic de diffraction.

**A l'échelle microscopique**, la déformation n'est plus uniforme et il y a élargissement du pic de diffraction qui peut être caractérisé par la mesure de la largeur de corde à mi-hauteur.

On peut donc déduire les contraintes macroscopiques et microscopiques des déformations correspondantes obtenues à partir des raies de diffraction.

La figure III.14 montre l'effet de la contrainte sur le pic de diffraction.



(a) : Translation uniforme du pic de diffraction.

(b) : Élargissement du pic de diffraction.

(Contraintes du premier ordre)

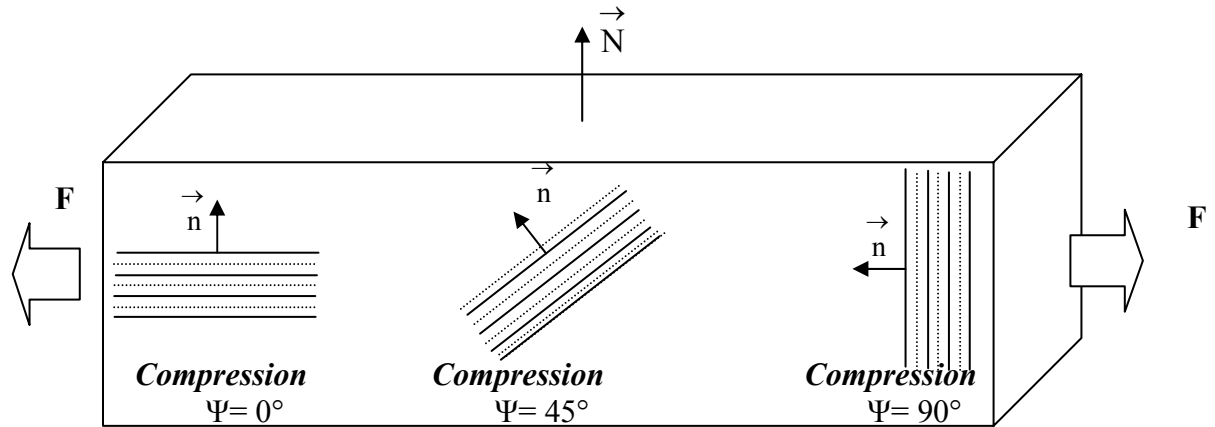
(Contraintes du second et troisième ordre)

Figure III.14 : Effet des contraintes sur le pic de diffraction [140].

### III.6.2.2. La loi des $\sin^2\psi$

Le principe de la méthode est d'amener successivement les plans (hkl) orientés différemment (c'est-à-dire appartenant à des grains différents) en modifiant l'inclinaison de la pièce par rapport au faisceau X. Cette inclinaison est repérée par l'angle  $\psi^* = (\vec{n}, \vec{N})$  définie sur les figures III.15 et 16.

\* Même si la notation est classiquement la même cet angle  $\psi$  n'a aucun rapport avec celui définie en mécanique de la rupture interfaciale.



N : Normale à la surface de la pièce.  
 n : Normale aux plans réticulaires.  
 F : Force appliquée.

Figure III. 15 : Exemple de la traction unidirectionnelle et la variation de l'angle  $\psi$ .

Si le champ de contrainte est isotrope, deux positions  $\psi$  suffisent pour déterminer une contrainte. Un calcul complet du tenseur de contraintes anisotropes à la surface de la pièce est possible à l'aide de la loi des  $\sin^2\psi$  mais nécessite l'augmentation du nombre

d'exposition ( $\psi, \phi$ ). L'angle  $\phi$  correspond à une rotation de l'échantillon sur lui-même.

Seuls les matériaux polycristallins sont analysables par cette méthode. Les figures III.16 et III.17 décrivent schématiquement les directions et rotations utiles pour comprendre la pratique de la méthode des  $\sin^2\psi$  (en montage  $\psi$ ).

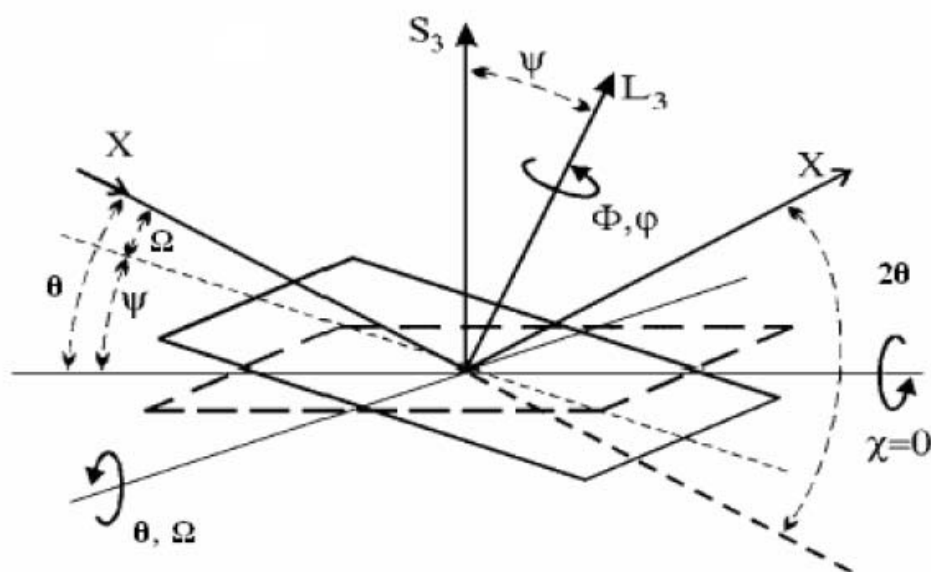


Figure III. 16 : Schéma de principe du dispositif de diffraction X (montage  $\psi$ ) [102].

La distance interréticulaire ( $d$ ) des plans ( $hkl$ ) sur lesquels est effectuée la mesure de DRX est reliée à la position angulaire  $2\theta$  de la raie de diffraction par l'intermédiaire de la loi de Bragg. A partir des relations entre contraintes et déformations mesurées [102,141] :

$$\varepsilon_{ij} = \frac{1+\nu}{E} \sigma_{ij} - \frac{\nu}{E} \delta_{ij} \sigma_{kk} \quad \text{III.10}$$

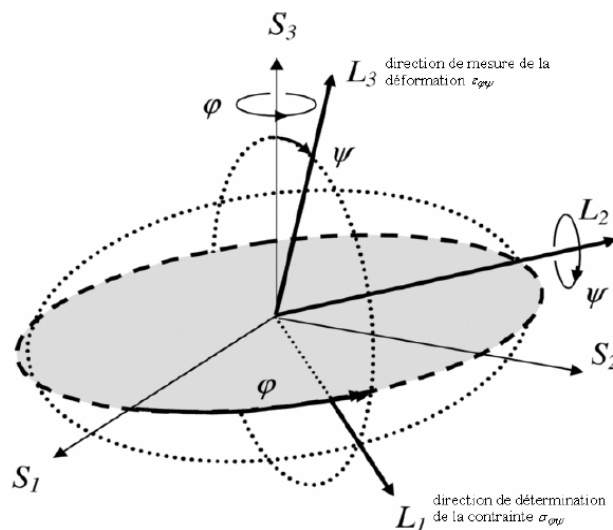
où  $\delta_{ij} = 1$  si  $i = j$  et  $\delta_{ij} = 0$  si  $i \neq j$ . Ici on utilise la convention de sommation d'Einstein : dans un produit de tenseurs, on effectue une sommation sur tout indice répété. La

déformation mesurée  $\varepsilon_{\phi\psi}$  selon la direction  $\phi$  avec l'angle variable  $\psi$  s'exprime alors par :

$$\begin{aligned} \varepsilon_{\phi\psi} = & \frac{1+\nu}{E} (\sigma_{11} \cos^2 \phi + \sigma_{12} \sin 2\phi + \sigma_{22} \sin^2 \phi - \sigma_{33}) \sin^2 \psi + \frac{1+\nu}{E} (\sigma_{13} \cos \phi + \sigma_{23} \sin \phi) \sin 2\psi \\ & + \frac{1+\nu}{E} \sigma_{33} - \frac{\nu}{E} (\sigma_{11} + \sigma_{22} + \sigma_{33}) \end{aligned} \quad \text{III.11}$$

On note pour la suite :

$$\frac{1}{2} S_2 = \frac{1+\nu}{E} \quad \text{et} \quad S_1 = -\frac{\nu}{E}$$



*Figure III. 17 : Définition du repère de mesure et angles  $\phi$  et  $\psi$ .*

Cette expression comprend trois termes : le 1<sup>er</sup> vecteur dépend de  $\sin^2\psi$  (et de  $\phi$ ), il représente la contrainte normale dans la direction  $\phi$  diminuée de  $\sigma_{33}$ , le 2<sup>ème</sup> est fonction de  $\sin 2\psi$  (et de  $\phi$ ) et représente la contrainte de cisaillement selon la direction  $\phi$  et le 3<sup>ème</sup> est indépendant de  $\psi$  (et de  $\phi$ ) et représente la trace du tenseur des contraintes.

### ***III.6.2.3. Description du dispositif des contraintes résiduelles***

Le montage diffractométrique disponible au laboratoire de tribologie et dynamique des systèmes est un montage original. Ses caractéristiques sont :

- ❶ Un tube à rayon X à anticathode de chrome alimenté par un générateur dont la tension et l'intensité sont fixées à 30 KV et 30 mA respectivement. Les longueurs d'onde de l'émission  $K_{\alpha}$  du chrome sont les suivantes :  $\lambda_{K_{\alpha 1}} = 0.22896$  nm et  $\lambda_{K_{\alpha 2}} = 0.22935$  nm,
- ❷ Un goniomètre type Dosophatex, installé en position horizontale (axe vertical), se compose d'un boîtier comportant la couronne porte-berceau d'Euler et la couronne porte-détecteur,
- ❸ Un berceau d'Euler ouvert permettant à l'échantillon des inclinaisons suivant les directions  $\Phi$  et  $\psi$  (Figure III.18) utiles dans le cas des analyses de textures et de contraintes,
- ❹ Un filtre de vanadium permet d'atténuer les raies  $K_{\beta}$  du tube à anticathode de Cr,
- ❺ Un compteur linéaire.

L'ensemble du dispositif tel qu'il est décrit ici autorise des acquisitions jusqu'à  $165^{\circ}$  ( $2\theta$ ).

Le système de dépouillement a été développé par la société INEL.

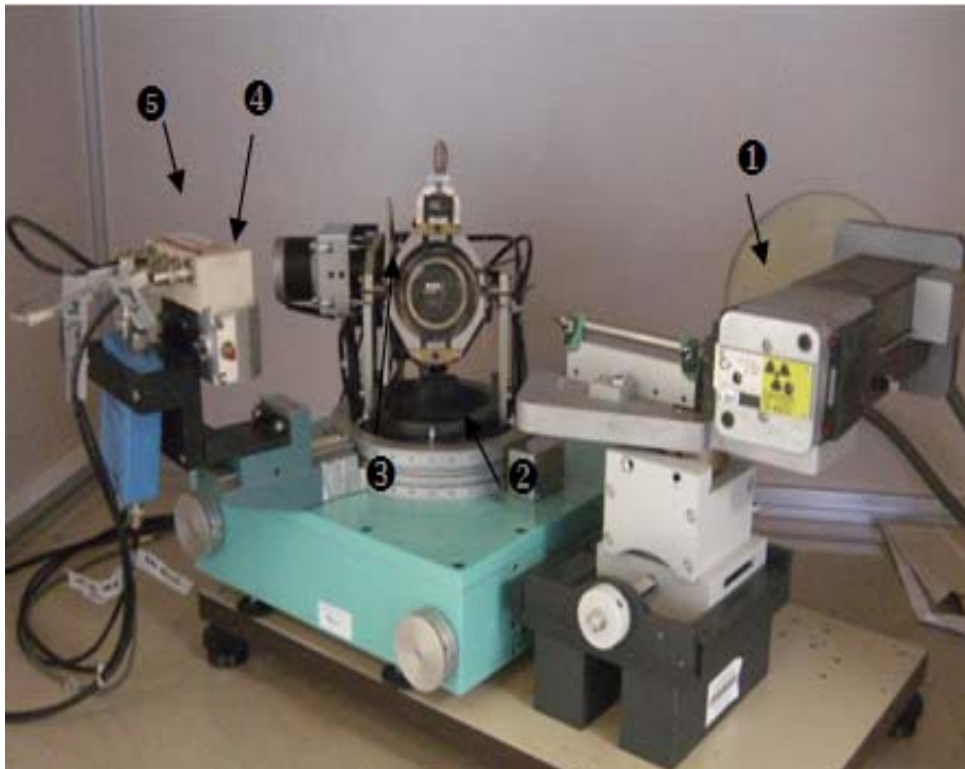


Figure III. 18: Schéma du diffractomètre en configuration  $\theta/2\theta$ .

Le détail des caractéristiques principales du dispositif est donné dans le Tableau III.10.



Porte échantillon	Montage $\psi$ Taille des éprouvettes : (15x5x5) mm <sup>3</sup>
Rayonnements	Tube haute brillance disponible : - Chrome
Collimation	Faisceau avec collimateur circulaire : Tailles disponibles : 0.5, 0.8 et 1 mm
Chaîne d'acquisition	Détection à localisation linéaire (INEL) Plage angulaire : 10° $2\theta_{\max} = 165^\circ$
Données requises	E (MPa) : module de Young de la phase analysée. coefficient de poisson de la phase analysée
Modes d'analyse et présentation des résultats	Loi des $\sin^2\psi$ : 1-Régression linéaire 2-Régression elliptique 3-Calcul du tenseur complet, Contraintes principales, contraintes selon von Mises.

Tableau III.10 : Données concernant le dispositif de mesure des contraintes résiduelles par diffraction X disponible à l'ECL.

#### III.6.2.4. Mise en œuvre de la méthode de détermination des contraintes résiduelles par diffraction X

La méthode d'évaluation des contraintes résiduelles par diffraction des rayons X a fait ses preuves avec les études sur alliages métalliques et particulièrement sur les aciers. Les progrès techniques et technologiques ont permis d'étendre l'application de cette méthode à d'autres matériaux. C'est le cas des céramiques techniques pour lesquelles un certain nombre de conditions opératoires ont pu être dégagées.

Un aspect important concernant les céramiques en général est la connaissance des constantes élastiques macroscopiques d'une pièce massive ou radiocristallographiques d'une famille de plan réticulaires. En effet, les symétries cristallines non cubiques contribuent à l'anisotropie des caractéristiques mécaniques [102]. De la même façon, la porosité et la densité des matériaux fragiles frittés influent de façon non négligeable sur le niveau du module de Young et du coefficient de poisson.

Le tableau III.11 résume les conditions opératoires relatives aux analyses conduites sur la famille de plans réticulaires. Les essais de faisabilité conduits sur les premiers échantillons de l'alumine avant assemblage ont montré qu'il faut augmenter le temps de comptage pour obtenir des pics exploitables par la méthode diffractographique d'analyse des contraintes.

**Matériau**

**Alumine ( $Al_2O_3-\alpha$ )**

Anticathode	K $\alpha$ Cr (30 mA/30kV/filtre arrière V)
Plan (hkl)	(300)
Angle de bragg	$2\theta_0 = 113^\circ$
Nombre d'inclinaison $\psi$	21 angles $:-50^\circ$ à $+50^\circ$ par pas de $5^\circ$
Nombre d'angle $\Phi$	1 ( $\Phi = 90^\circ$ )
Temps de comptage usuel	900 sec/pic
Module de Young : E	375 GPa
Coefficient de Poisson : $\nu$	0.28
Arx (coefficient d'anisotropie)	1

Tableau III.11 : Paramètre d'analyse de contraintes résiduelles par diffraction des rayons X sur le substrat Alumine des assemblages  $Al_2O_3/Ni/Al_2O_3$ ,  $Al_2O_3/Ni/HAYNES^{\text{®}}$  214  $Al_2O_3/Cu_2O-Cu-Ni-Cu/HAYNES^{\text{®}}$  214.

L'allure du pic d'analyse sur l'alumine avec K $\alpha$  Cr pour les temps de comptage retenus est représenté sur la figure III.19.

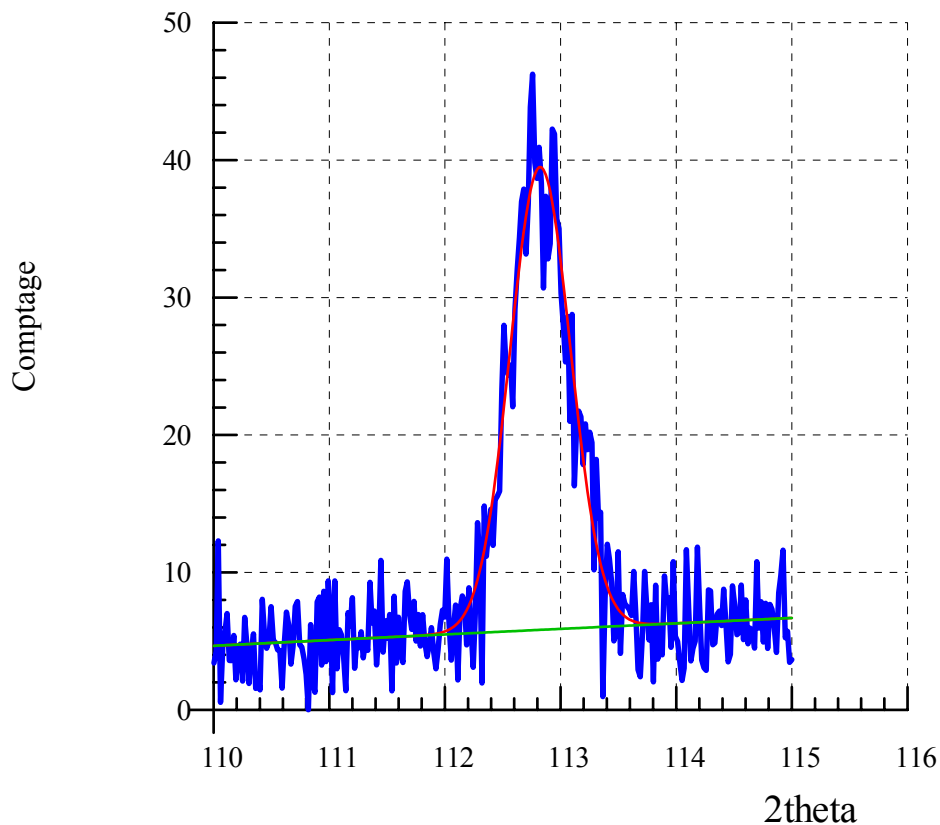


Figure III.19 : Allure du pic (300) enregistré sur  $Al_2O_3$  avec une anticathode de Cr.

Les temps globaux des acquisitions restent très élevés ( $\approx 6$  heures environ). Ceci a constitué l'un des inconvénients majeur des mesures par diffraction des rayons X que nous avons effectuées sur cette céramique.

*Burman et al.* [142] au sujet de la céramique  $Si_3N_4$ , indiquent les difficultés de conclure sur le niveau de contraintes résiduelles qu'il mesure par diffraction X tant les incertitudes sont élevées. On peut expliquer ce phénomène en imaginant que l'état de

cristallisation du matériau fragile est en cause. Il est possible qu'une intensité relative faible des pics analysés conjugué avec la fluorescence des ajouts de frittage tel que  $\text{SiO}_2$  lorsqu'on utilise le chrome soit l'origine de la mauvaise définition des pics.

### III.7. CARACTÉRISATION DIÉLECTRIQUE DE L'ALUMINE

Cette technique permet de caractériser le comportement au piégeage de charges électriques d'un matériau isolant, lorsqu'il est soumis à une injection électronique dans un Microscope Electronique à Balayage (MEB). Le faisceau électronique du microscope est accéléré par une tension de 30 kV. Le but de l'utilisation de cet outil est de trouver une corrélation entre les propriétés mécaniques de l'alumine au voisinage de l'interface, l'intensité des contraintes résiduelles et l'effet de piégeage de charge dans l'alumine avant et après assemblage.

Le comportement de piégeage de charges est caractérisé par :

- La courbe de courant de masse, acquise pendant l'injection électronique. Lors de l'injection, des électrons sont piégés dans le matériau et créent sur les parties métalliques du MEB des charges d'influence. La courbe de courant de masse correspond à l'évolution dans le temps des charges d'influences de la platine porte échantillon (Figure III.20). L'aire sous la courbe donne la quantité de charges totales  $Q_m$  distribuée dans l'échantillon.
- L'effet miroir. Les charges piégées lors de l'injection peuvent être localisées sous le faisceau incident et rester stables après l'injection électronique. Celles-ci génèrent un champ électrique dans le matériau, qui dépend de la densité de charges piégées localisées, et induisent des courbes iso potentielles dans le vide à proximité de la surface de l'échantillon.

La figure III.20 présente le dispositif utilisé :

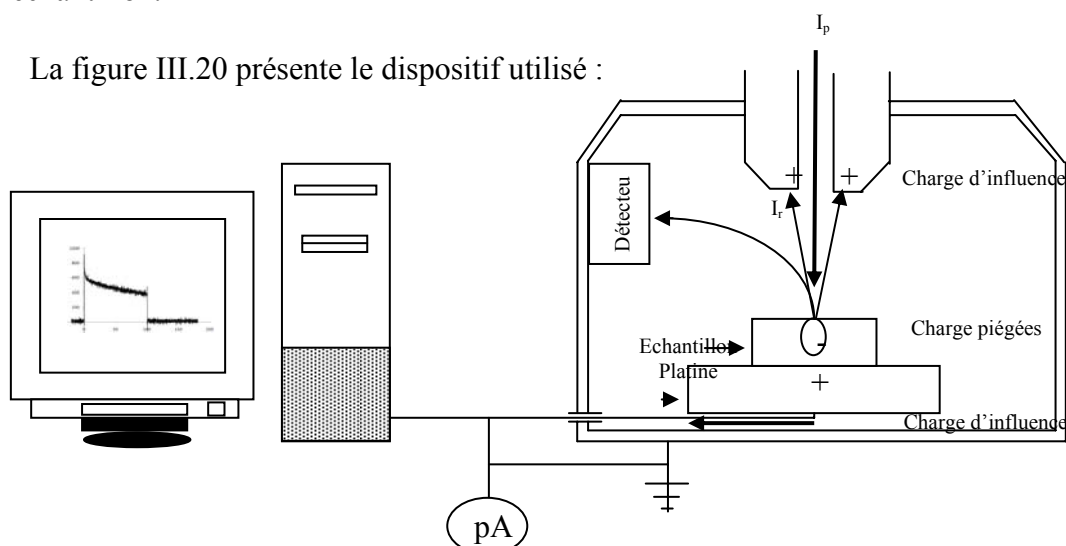


Figure III.20 : Chambre du microscope et acquisition du courant de masse avec un exemple de courbe de courant de masse en fonction du temps d'injection.

La platine échantillon est associée à une régulation en température permettant des essais d'injection à différentes températures.

### III.7.1. Effet miroir

La surface de l'échantillon a été bombardée par un faisceau électronique d'énergie 30 keV pendant le temps d'injection  $t_i$  et délivrant un courant d'injection  $I_i$ ; ces conditions d'injections permettent d'injecter  $Q_i$  charges. L'observation du miroir est effectuée en mode balayage à faible tension d'accélération, cette tension varie de 300 V à 2000 V.

Si une quantité de charges  $Q_p$  est piégée ponctuellement dans le matériau, l'image de l'échantillon est déformée par le potentiel induit par le piégeage des charges. Le faisceau d'électron va être dévié lors de l'observation suivant l'angle d'incidence par rapport aux équipotentiels (Figure III.21). Pour des trajectoires s'écartant de la normale (trajectoire 3), les électrons vont être faiblement déviés. Pour des trajectoires du type 2, les électrons sont fortement déviés et vont frapper la paroi de la chambre du MEB. Pour un angle d'incidence  $\alpha$  très faible, les électrons vont être faiblement réfléchis vers la colonne (trajectoire 1) : ils ne participent pas à la formation de l'image. Le disque sombre de diamètre  $d$  observé au centre de l'image miroir correspond à l'image du dernier diaphragme de la colonne [143,144,145].

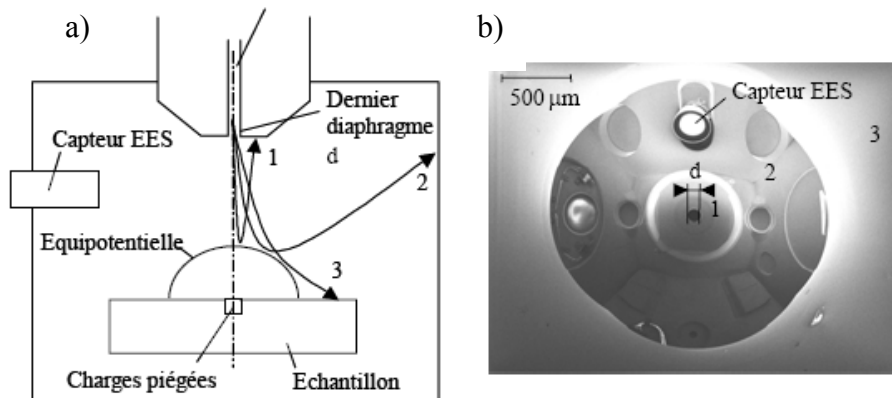


Figure III.21 : Illustration de la méthode miroir.

a) déviation du faisceau d'électrons primaires par les équipotentiels induites par la charge implantée. b) image de la chambre du microscope qui en résulte.

Par l'augmentation de la tension d'accélération de 300 à 3000 V, les électrons incidents vont avoir une énergie croissante et vont pénétrer plus loin dans les niveaux d'équipotentiels. Le diamètre  $d$  va voir sa taille diminuer pour finalement disparaître dès que les électrons atteignent la surface de l'échantillon.

Des calculs faisant appel aux théories électrostatiques conduisent à une expression de l'inverse du diamètre  $d$  en fonction du potentiel d'observation  $V_i$  [145].

$$\frac{1}{d} = \left( \frac{4L}{d'} \right) \left( \frac{1}{A_\infty Q_p} \right) V_i \quad \text{III.12}$$

Avec :

$L$  : Distance de focalisation (10 mm)

$Q_p$  : Charge piégée (pC)

$d'$  : Diaphragme de sortie de la colonne (mm)

$$A_{\infty} = \frac{1}{2\pi\epsilon_0(\epsilon_r + 1)}$$

Avec  $\epsilon_0 = 8.854 \cdot 10^{-14} \text{ F.cm}^{-1}$  et  $\epsilon_r$  la constante diélectrique relative, égale à 10 pour l'alumine. De cette expression, on détermine la valeur de la charge piégée  $Q_p$  en faisant varier la valeur du potentiel d'observation  $V_i$  puis en traçant la courbe  $1/d = f(V_i)$ . Le rapport de la charge piégée  $Q_p$  sur la charge injectée  $Q_i$  nous renseigne sur la valeur du rendement de piégeage. De même la comparaison de  $Q_m$  (obtenue par la courbe de courant de masse) et de  $Q_p$  (obtenue par la formule III.6) permet de voir si les charges sont restées localisées au point d'injection ( $Q_m = Q_p$ ) ou au contraire se sont étalées ( $Q_m > Q_p$ ).

### III.7.2. Protocole expérimental

L'utilisation d'un faisceau électronique pour injecter des charges et observer leur répartition dans le matériau induit des mécanismes complexes d'interaction. Outre les paramètres d'injection ( $I_i$  et  $t_i$ ), il est nécessaire de préciser ceux relatifs à la préparation et à l'observation des échantillons afin d'obtenir une reproductibilité maximale pour l'analyse des résultats.

#### ❶ Préparation des assemblages analysés

- la face de l'alumine à analyser est polie jusqu'à une granulométrie de 3  $\mu\text{m}$ , la face opposée est rodée afin d'obtenir deux faces parallèles,
- recuit à 700 °C pendant 1 heure afin de limiter les contraintes de polissage,
- étuvage dans la chambre du MEB à 60°C pendant 3 heures.

#### ❷ Précaution expérimentales

- éviter d'observer la surface des échantillons à grand champ (faible grossissement) pour éviter toute perturbation du milieu,
- les injections d'électrons se font à des intervalles de 1 mm parfois 2 mm afin que les réponses ne soient pas perturbées par les impacts précédents,
- après injection et observation ou non de miroir, il est nécessaire d'étaler les charges en augmentant le potentiel d'observation.

#### ❸ Condition d'injection

- temps d'injection 100 ms,
- courant d'injection 3000 pA,
- mode focalisé,
- température ambiante.

Le mode focalisé est une approche semi-quantitative : elle permet de caractériser le comportement de piégeage du matériau face à une densité élevée d'électrons injectés. Les

pièges peuvent être saturés sous le faisceau électronique et provoquer des relaxations électroniques.

# CHAPITRE IV

## SYSTÈMES

### SiC/JOINT MÉTALLIQUE/HAYNES™214®

*Ce chapitre présente les résultats expérimentaux concernant le multimatériau SiC/joint métallique/HAYNES™214®. Trois joints métalliques purs ont été utilisés dans l'étude : le nickel, le cuivre et l'argent. Le nickel et le cuivre forment des siliciures stables et à haut point de fusion, mais ces produits de réaction sont très fragiles compte tenu de leur sensibilité à « l'effet Pest ». Afin de minimiser cet effet nous avons ajouté du bore réputé pour son action bénéfique mais nous avons démontré que le bore ne peut à lui seul supprimer la fragilité des assemblages soumis de plus à des contraintes résiduelles. L'autre possibilité consiste à utiliser des dépôts minces d'argent ou des feuilles d'argent. Nous confirmons l'absence de réaction chimique à l'interface Ag/SiC grâce à l'efficacité de la barrière d'argent à partir d'une certaine épaisseur.*

Aujourd'hui, l'absence de solution technologique satisfaisante pour la réalisation d'assemblages SiC/métal [146,147] s'explique par la difficulté à résoudre essentiellement l'incompatibilité chimique (forte réactivité) et thermomécanique (notamment la différence de coefficient de dilatation thermique) qui existe entre la céramique et le métal.

De nombreux travaux ont étudié le mouillage mais aussi la réactivité entre SiC et de nombreux métaux tels que : Al [148], Au [149], Cu [150], Ni [68,150], Co [151]. Tous les métaux à l'exception de l'aluminium et l'argent sont à éviter, car ils conduisent à la formation de siliciures fragiles à bas point de fusion (proche de 900°C). On distingue deux groupes de métaux en fonction de leur réactivité avec le SiC :

- 1-les métaux réagissant uniquement avec le silicium qui conduisent à la formation de siliciures (Ni, Co, Fe...). Cette formation de siliciures s'accompagne d'une précipitation de carbone sous forme de feuillets graphitiques fragilisants pour l'assemblage [151].
- 2-les métaux présentant une réactivité vis-à-vis du silicium et du carbone (Zr, Ti, Hf, Mn...). Ces métaux peuvent conduire à une forte réactivité avec le SiC qui doit être contrôlée afin de sélectionner la nature des produits de réaction ainsi que leurs épaisseurs.

Ce problème du contrôle de la réactivité est d'autant plus important que l'assemblage doit fonctionner à haute température. La température élevée favorise la croissance des couches de réaction et provoque également une évolution de la chimie de la jonction non contrôlée, ce qui est dommageable à la tenue mécanique du joint. Le second point à considérer est la différence de comportement thermomécanique entre SiC et métal. Lors du refroidissement après thermocompression, la grande différence de coefficient de dilatation thermique entre les pièces à assembler induit des contraintes résiduelles d'origine thermomécaniques qui peuvent conduire à la rupture de la céramique, en raison de sa fragilité intrinsèque et de son module de Young élevé.

Dans nos travaux nous avons testé plusieurs méthodes pour résoudre les problématiques rencontrées. Le groupe de couples étudiés comprend :

- a - SiC/Ni<sub>0.93</sub>B<sub>0.07</sub>/Ni/ HAYNES™214®.
- b - SiC/Ni<sub>0.93</sub>B<sub>0.07</sub>/Cu/ HAYNES™214®.
- c - SiC/Ag®/ HAYNES™214®.
- d - SiC/Ag/ HAYNES™214®.

Le Ni<sub>0.93</sub>B<sub>0.07</sub> a été déposé par Jet Metal™ sur SiC. Le prédépôt permet d'incorporer du Bore dans les siliciures. L'argent a été incorporé soit par Jet Metal™ sur SiC soit par une feuille d'argent.

Dans ce groupe de couples, on a étudié essentiellement l'influence du type de joint sur la réactivité chimique de SiC. Les conditions d'élaboration retenues sont :



Paramètre	Joint Ni	Joint Cu	Joint Ag
Température $T_{\text{liaison}}$ (C°)	1100	1083	910
Temps du maintien $t$ (h)	2	0	2
Atmosphère	vide primaire dynamique ( $10^{-1}$ Pa)		
Pression $P$ (MPa)	10	1	6
Epaisseur du pré dépôt $\text{Ni}_{0.93}\text{B}_{0.07}$ ( $\mu\text{m}$ )	2	2	-
Epaisseur du pré dépôt $\text{Ag}^{\text{®}}$ ( $\mu\text{m}$ )	-	-	2
Epaisseur du joint ( $\mu\text{m}$ )	200	200	200

Tableau IV.1 : Conditions d'élaboration des assemblages.

## IV.1. MICROSTRUCTURES DES INTERFACES

### IV.1.1. SiC/ $\text{Ni}_{0.93}\text{B}_{0.07}$ /Ni/HAYNES™214®

Pour des températures supérieures à 700 °C, le nickel en présence de SiC peut donner lieu à plusieurs réactions comme indiqué par le diagramme d'équilibre Ni-Si (Figure IV.1). Ces dernières dépendent de la concentration en silicium et de la température. Essentiellement des siliciures du nickel sont formés [38,68,150,152].

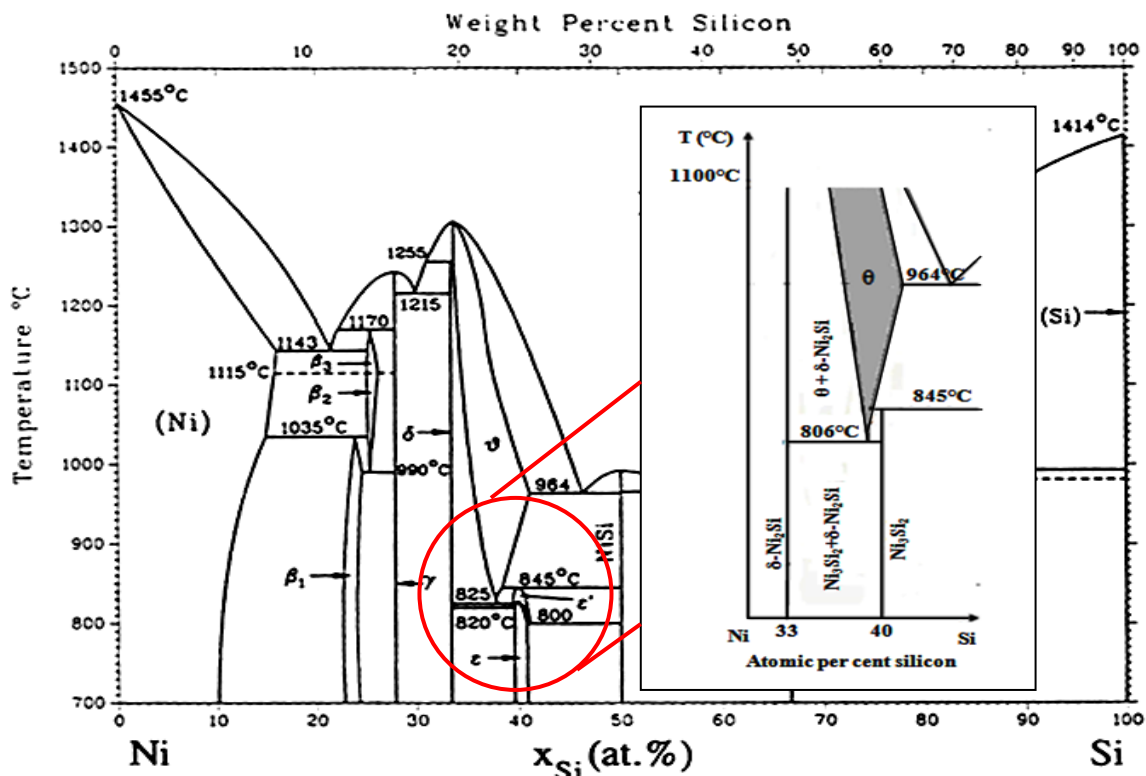


Figure IV.1 : Diagramme d'équilibre Ni-Si [38].

L'intérêt du pré-dépôt  $\text{Ni}_{0.93}\text{B}_{0.07}$  était d'améliorer la tenue mécanique des siliciures de Ni grâce à la présence du Bore [153]. Les examens métallographiques et par microscopie électronique à balayage après assemblage montrent qu'il existe une réactivité importante entre le nickel et le carbure de silicium ce qui conduit à la formation de plusieurs types de

siliciures fragiles et cela malgré la présence du prédépôt  $\text{Ni}_{0.93}\text{B}_{0.07}$  (Figure IV.2b). La profondeur de la réaction varie entre 100 et 200  $\mu\text{m}$  avec une rupture de la céramique sur une profondeur de 2 mm (Figure IV.2a et b), le métal d'apport initial (Nickel) a en majorité réagi avec le silicium. Ceci implique une activité thermodynamique du Nickel en présence du carbure de silicium et une cinétique de réaction importante. *Johnson* et *Rowcliffe* [154] montrent que la différence de coefficient de dilatation thermique entre les céramiques et les métaux peut causer leurs ruptures à cause de la genèse des contraintes résiduelles. Dans notre cas, il est difficile de séparer le rôle des contraintes résiduelles de celui de la réactivité chimique à haute température que le bore ne supprime pas.

L'analyse quantitative par EDX nous a révélé la formation, dans la zone occupée initialement par le joint du nickel, de trois phases riches en Si ; elles contiennent respectivement 38.6, 31.2 et 26.4 at. % Si (Figure IV.2b). Des analyses par cartographie X des éléments Ni, Si et C, montrent que du graphite s'est formé et est distribué sur toute la profondeur de la zone de réaction (Figure IV.2c).

Des analyses complémentaires par diffraction des rayons X après rupture de l'assemblage ont montré la présence de phases telles que  $\gamma\text{Ni}_3\text{Si}_2$  (hexagonale),  $\delta\text{Ni}_2\text{Si}$  (hexagonale) et le graphite. La troisième phase  $\beta\text{Ni}_3\text{Si}$  (cubique) n'a été détectée qu'après enlèvement totale du SiC résiduel par polissage mécanique (Figure IV.3).

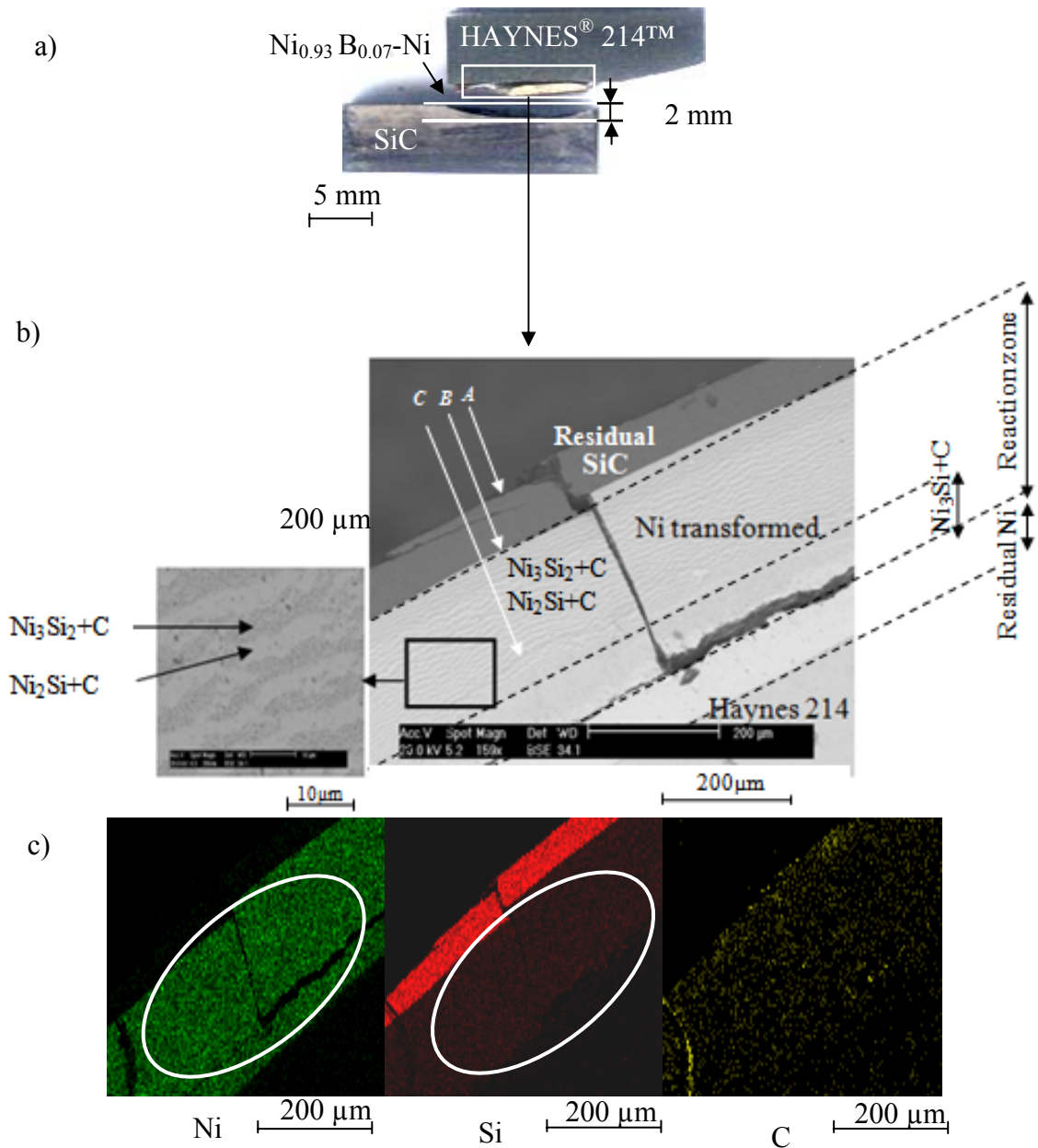


Figure IV.2 : Coupe transversale de la liaison SiC/Ni<sub>0.93</sub>B<sub>0.07</sub>-Ni/HAYNES<sup>TM</sup>214<sup>®</sup> ( $T = 1150\text{ °C}$ ,  $t = 1\text{ heure}$ ,  $P = 16\text{ MPa}$ ) a) macrographie optique de la zone de réaction, b) imagerie en électron rétrodiffusé (BSE) de la zone interfaciale. A, B, C sont les zones analysées par diffraction X (XRD) (Figure IV.3), c) analyse par cartographie X de la zone assemblée.

Les phases  $\gamma\text{Ni}_3\text{Si}_2$  et  $\delta\text{Ni}_2\text{Si}$  forment une structure bi-phasée de type eutectique, avec une épaisseur de  $170\text{ }\mu\text{m}$ . En se référant au diagramme d'équilibre Ni-Si (Figure IV.1) et à nos observations nous pouvons supposer qu'au cours de la réalisation de l'assemblage les phases  $\theta$  et  $\beta\text{Ni}_3\text{Si}$  sont formées à une température de  $1100\text{ °C}$ , après refroidissement à  $806\text{ °C}$ ,  $\theta$  s'est décomposée par une réaction eutectoïde en  $\gamma\text{Ni}_3\text{Si}_2 + \delta\text{Ni}_2\text{Si}$ . Au même moment, le graphite a été libéré et a précipité.  $\beta\text{Ni}_3\text{Si}$  a une épaisseur de  $70\text{ }\mu\text{m}$  et est très fragile. La fragilité de cette phase est accompagnée par une rupture le long de l'interface Ni/Ni<sub>3</sub>Si (Figure IV.2) qui est attribué à la différence des coefficients de dilatation thermique entre le nickel et les siliciures formés. Des résultats analogues ont été obtenus

par *Schiepers et al.* [152] après un traitement thermique du système SiC/Ni à 850 °C pendant 44 h.

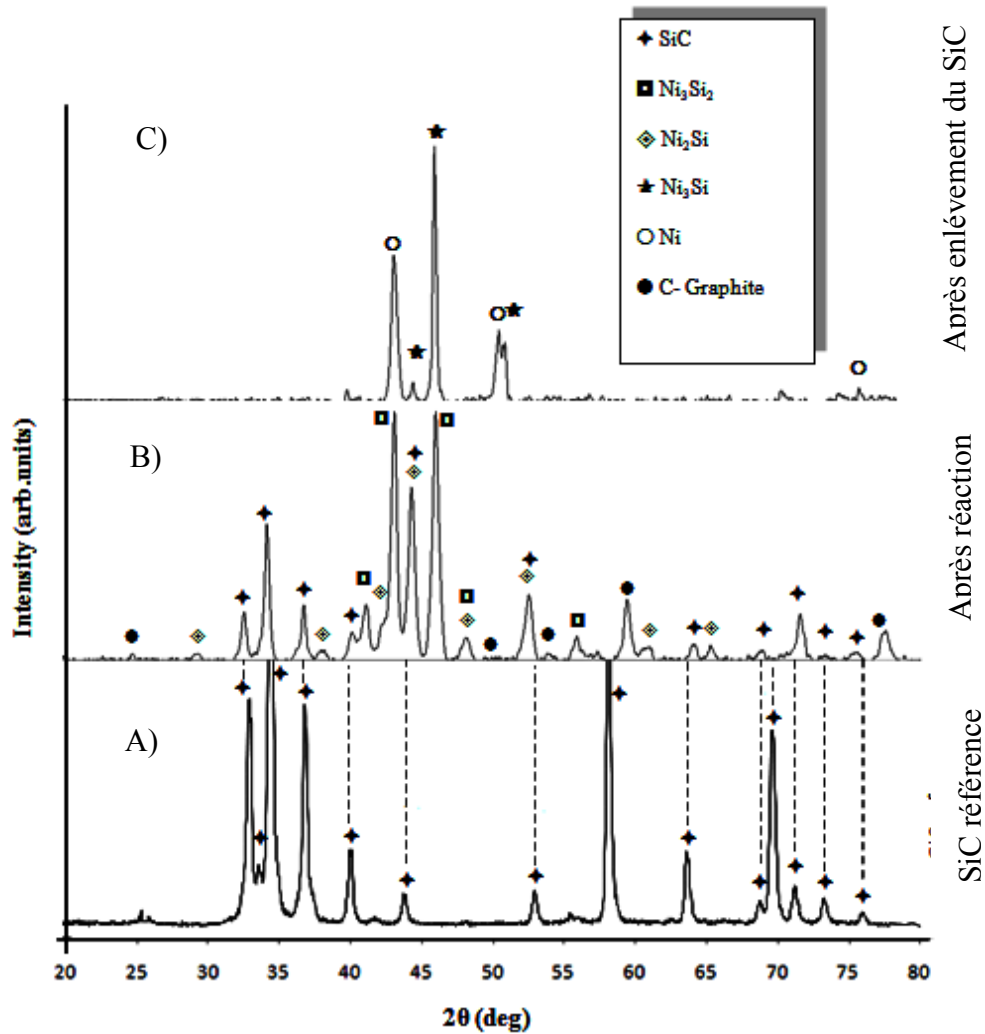


Figure IV.3 : Spectre de diffraction des rayons X ( $\lambda K\alpha$  Cu) de : A) SiC ; B) Après rupture du SiC (zone de réaction) ; C) zone de réaction après enlèvement du SiC résiduel. (A, B, C positions : voir Figure IV.2b).

### IV.1.2. SiC/Ni<sub>0.93</sub>B<sub>0.07</sub>/Cu/HAYNES<sup>TM</sup>214<sup>®</sup>

De même que le nickel, le cuivre est un métal très réactif vis-à-vis du carbure de silicium (Figure IV.4). Il forme plusieurs types de siliciures.

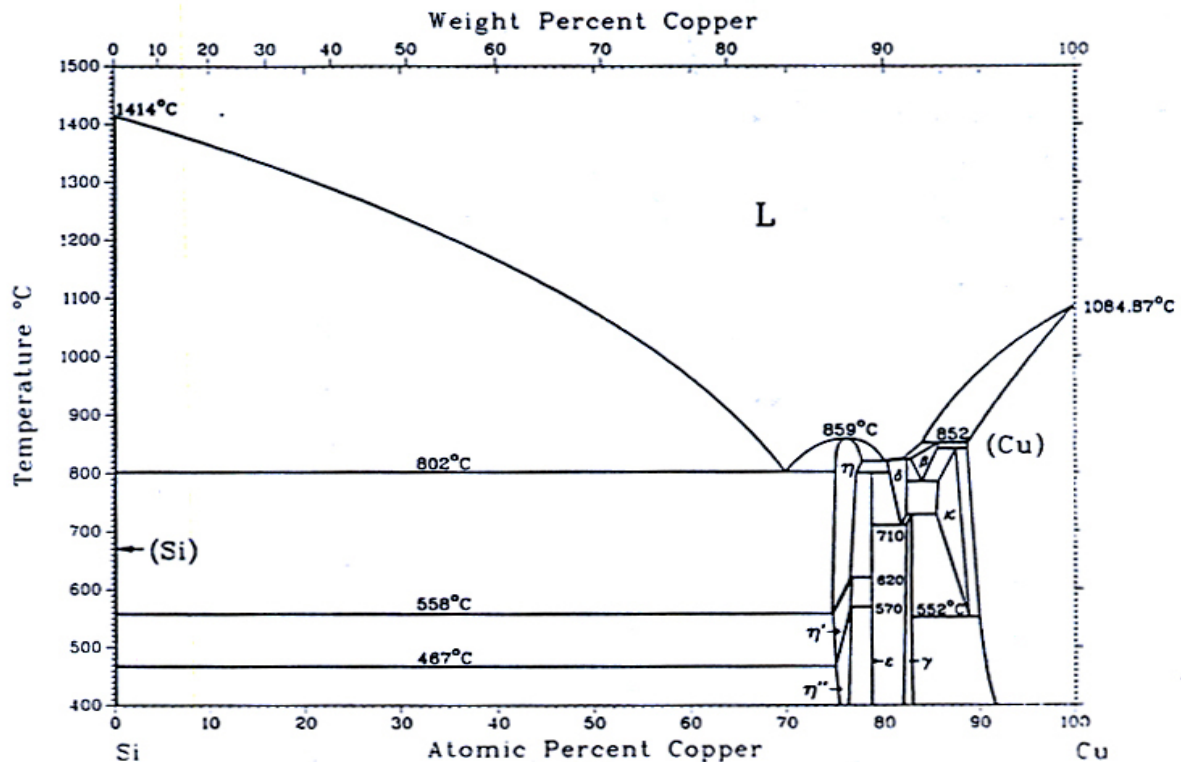


Figure IV.4 : Diagramme d'équilibre Cu-Si [38].

Dans ce cas aussi la liaison a échoué et pour les mêmes raisons que précédemment. Une forte réactivité du cuivre avec le SiC, cependant moins importante que dans le cas de SiC/Ni<sub>0.93</sub>B<sub>0.07</sub>-Ni/HAYNES<sup>TM</sup>214<sup>®</sup> et une rupture de la céramique sur une profondeur de 1 mm.

Des observations par microscopie électronique à balayage montrent l'existence de nouvelles phases formées au niveau de l'interface (Figure IV.5).

L'analyse EDX a confirmé l'hypothèse de la formation de ces siliciures. Notre analyse a mis en évidence la formation des siliciures quaternaire Si-FeCrNi et ternaire Si-CuNi complexes. Des analyses complémentaires par diffraction des rayons X après rupture de l'assemblage montrent que ces siliciures sont du type Cu<sub>4</sub>Si ((CuNi)<sub>4</sub>Si) et Ni<sub>3</sub>Si ((FeNiCr)<sub>3</sub>Si) (Figure IV.5 et 6).

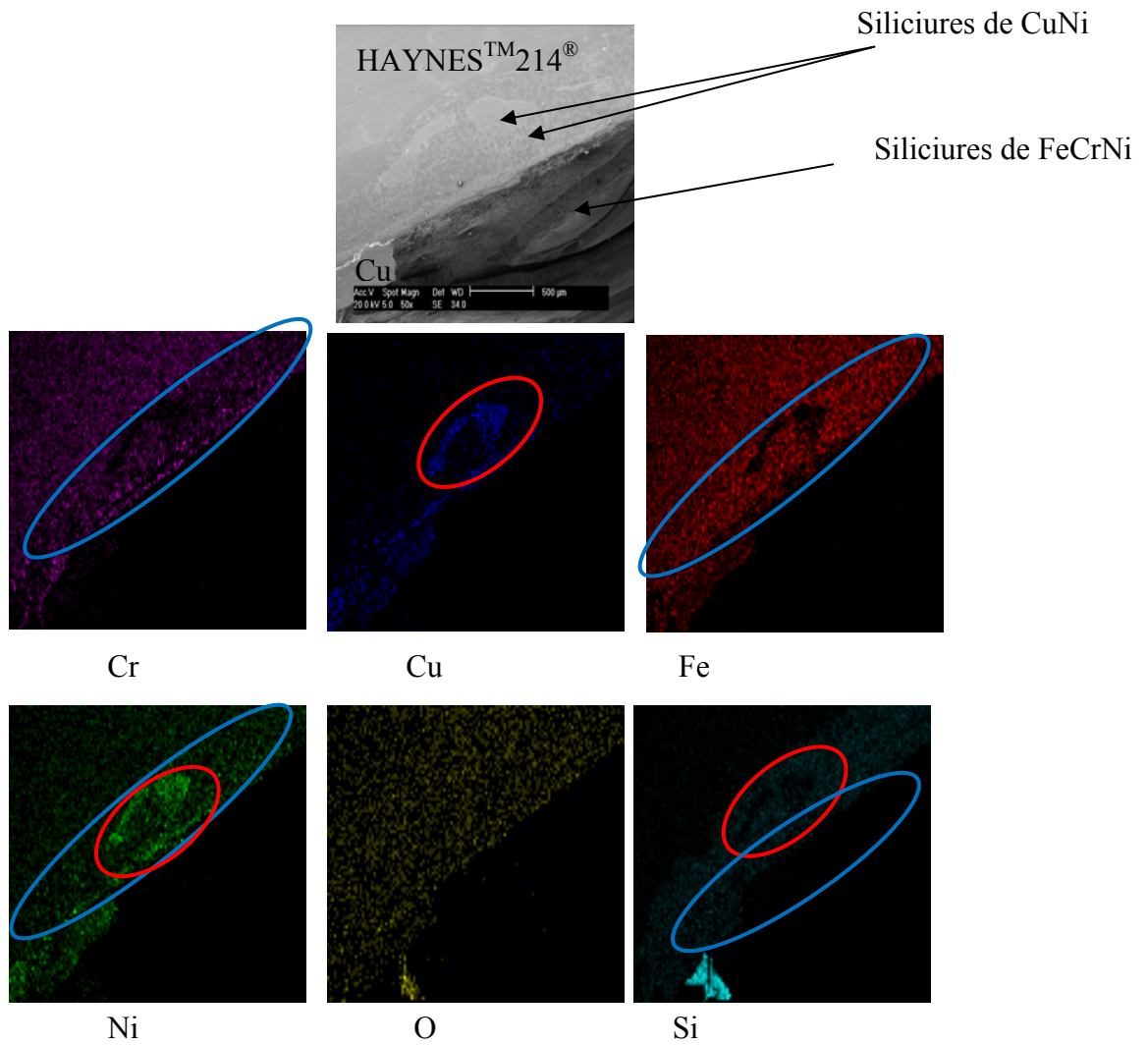


Figure IV.5 : Cartographie de l'interface SiC/Cu par microsonde X.

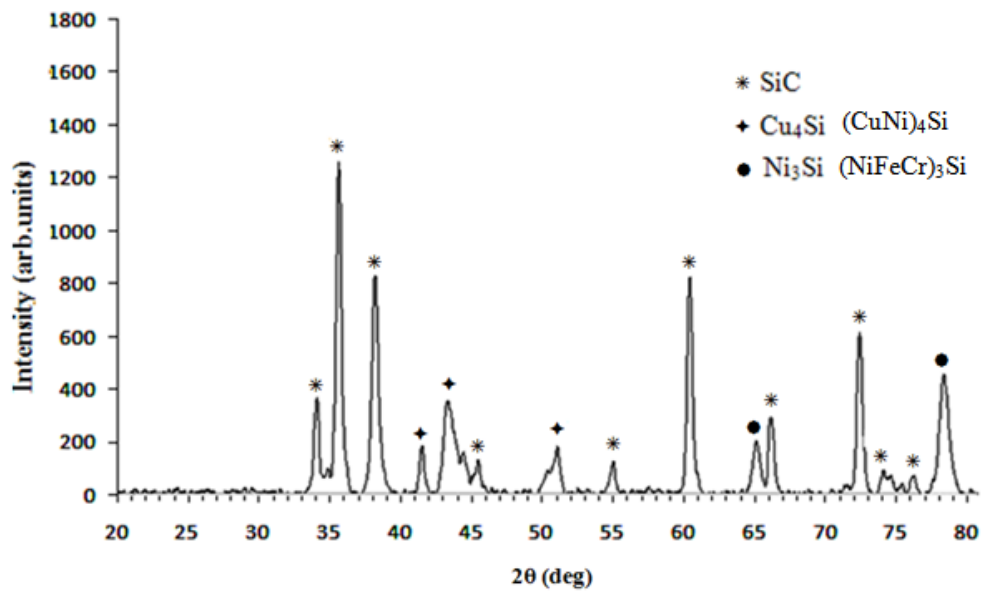


Figure IV.6 : Spectre de diffraction des rayons X ( $\lambda K\alpha$  Cu) de l'interface SiC/Cu après rupture.

### IV.1.3. SiC/Ag/HAYNES<sup>TM</sup>214<sup>®</sup>

#### IV.1.3.1. Utilisation d'un dépôt mince d'Ag

Théoriquement, l'argent est un métal qui ne réagit pas avec le silicium et ne forme pas de siliciures [38]. Nous avons donc assemblé SiC avec le HAYNES<sup>TM</sup>214<sup>®</sup> en utilisant tout d'abord un dépôt mince d'Ag ( $\approx 2 \mu\text{m}$ ) réalisé par la méthode JetMétal<sup>®</sup>. L'analyse de l'assemblage SiC/Ag<sup>®</sup>/HAYNES<sup>TM</sup>214<sup>®</sup> montre effectivement une faible réaction chimique partielle de Ni (élément principal de l'alliage) avec le SiC. Cette dernière a causé la rupture de la jonction à l'interface HAYNES<sup>TM</sup>214<sup>®</sup>/SiC compte tenu de l'épaisseur faible du dépôt d'argent qui a été traversé par le nickel provenant de l'alliage (Figure IV.7a).

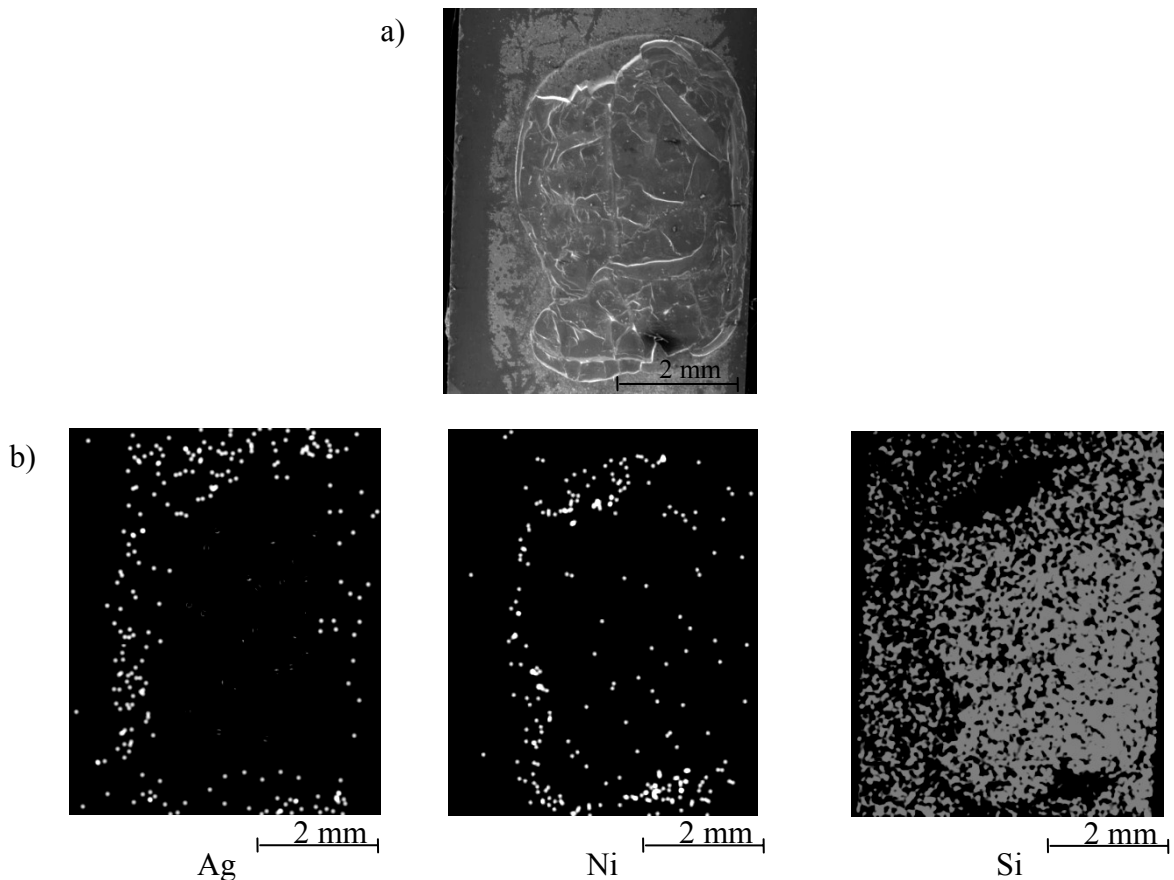


Figure IV.7 : Imagerie par microscopie électronique à balayage, après rupture, de l'assemblage SiC/Ag<sup>®</sup>/HAYNES<sup>®</sup> 214<sup>TM</sup>, réalisé avec un dépôt mince d'Ag ( $\approx 2 \mu\text{m}$ ).

a) MEB b) Cartographie X.

En effet, l'analyse EDX de l'interface fracturée (la face de la céramique en contact avec l'alliage) montre des traces de nickel sur le SiC (Figure IV.7b). Deux raisons peuvent expliquer la présence du Ni sur le SiC. Premièrement, les observations par MEB après rupture de la zone interfaciale montrent que le dépôt d'Ag était discontinu (Figure IV.8). Par conséquent, le nickel a pu diffuser à travers ces discontinuités et ainsi réagir avec le SiC. Il paraît donc nécessaire d'augmenter l'épaisseur de ce dépôt. Deuxièmement, *Tréheux et al* [155] ont montré que les éléments qui ont une faible solubilité chimique, tel que le nickel et l'argent [156] ( $D_{\text{v}(\text{Ni} \rightarrow \text{Ag})}$  at  $910 \text{ }^\circ\text{C} = 5.10^{-13} \text{ m}^2/\text{s}$ ), diffusent plus rapidement que ceux qui ont une forte solubilité. La diffusion du Ni à

travers le dépôt Ag engendre la formation des siliciures de nickel fragiles, qui ont conduit à la rupture de l'interface. Il apparaît après calcul et en utilisant la loi de la diffusion,  $e = \sqrt{D_v t}$ , ( $e$ , épaisseur de la diffusion,  $D_v$ , coefficient de diffusion et  $t$ , temps de diffusion) que le nickel peut diffuser sur une épaisseur de 43  $\mu\text{m}$  pour une durée de 1 heure à une température de 910 °C (conditions utilisées pour l'assemblage). Cependant, il faut noter qu'en utilisant ce dépôt mince d'argent ( $\approx 2 \mu\text{m}$ ), la réactivité a été déjà fortement réduite (Figure IV.7 et Figure IV.8). Une utilisation d'un dépôt d'argent épais ( $> 50\mu\text{m}$ ) pourrait être une solution technologique intéressante.

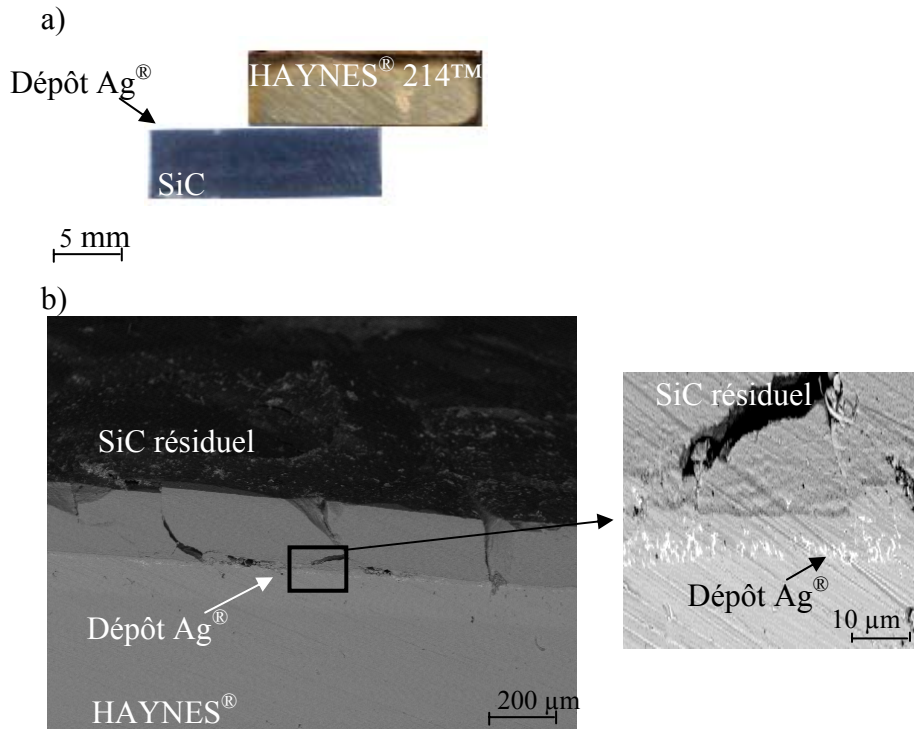


Figure IV.8 : Coupe transversale de l'assemblage SiC/Ag<sup>®</sup>/HAYNES<sup>TM</sup>214<sup>®</sup>  
 a) Macrographie optique de l'assemblage. Micrographie par MEB, b) de l'interface SiC/Ag<sup>®</sup> montrant la non uniformité du dépôt Ag<sup>®</sup> après assemblage.

#### IV.1.3.2. Utilisation d'une feuille d'Ag épaisse

En se basant sur les résultats présentés ci-dessus, SiC est assemblé avec l'alliage de nickel (HAYNES<sup>TM</sup>214<sup>®</sup>) en utilisant une feuille d'Ag ( $\approx 200 \mu\text{m}$ ). L'analyse microstructurale d'une coupe transversale de la liaison par microscopie électronique à balayage (MEB) montre l'absence de réactivité chimique à cette échelle d'observation dans l'interface Ag/SiC. Les figures IV.9b et c montrent une bonne adaptation de l'argent sur le SiC. Cependant, la présence d'oxydes et de porosités à l'interface Ag/HAYNES<sup>TM</sup>214<sup>®</sup> a été observée. On peut en conclure que le vide primaire utilisé lors de la réalisation des assemblages n'était pas suffisant pour éviter l'oxydation de l'alliage.



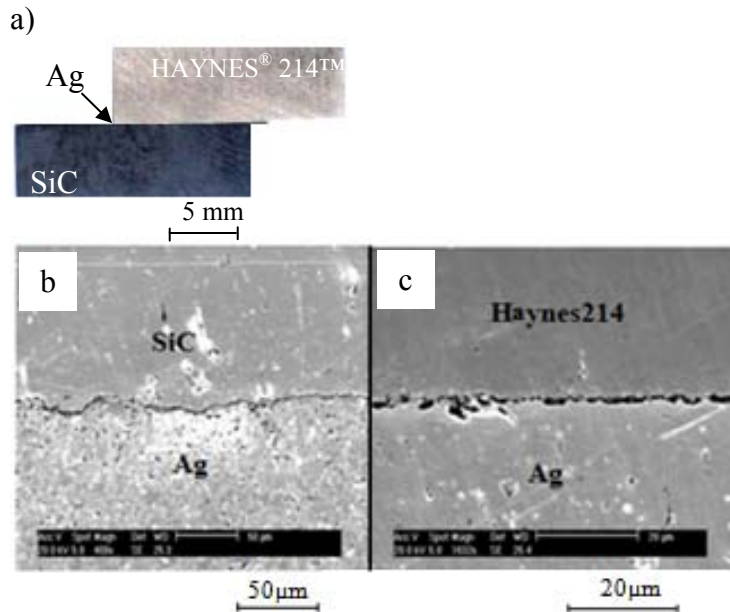


Figure IV.9 : Coupe transversale de l'assemblage SiC/Ag/HAYNES<sup>TM</sup>214<sup>®</sup> a) Macrographie optique de la zone non réactive. Micrographie par MEB, b) de l'interface SiC/Ag, c) de l'interface Ag/HAYNES<sup>TM</sup>214<sup>®</sup>.

Les calculs de diffusion précédemment effectués dans le cas d'un dépôt mince d'Ag sont appliqués maintenant pour une épaisseur de joint d'Ag de 200 μm. A partir de ces calculs, on peut estimer la durée de vie des assemblages en d'autres termes le temps qu'il faut pour que le Ni diffuse à travers l'Ag pour venir réagir avec SiC. Le tableau IV.2 donne les résultats obtenus en fonction de la température d'utilisation.

	Coefficient de diffusion[15] (m <sup>2</sup> /s)	Température (°C)	Durée de vie (h)
SiC/Ag/HAYNES <sup>®</sup> 214 <sup>TM</sup>	5. 10 <sup>-17</sup>	600	> 200000
	10 <sup>-15</sup>	700	> 10000
	10 <sup>-14</sup>	800	> 1000
	5.10 <sup>-13</sup>	900	≈ 22

Tableau IV.2 : Estimation théorique de la durée de vie de l'assemblage SiC/Ag/ HAYNES<sup>TM</sup>214<sup>®</sup> en fonction de la température pour un joint en Ag de 200 μm d'épaisseur.

A partir de ces calculs on peut en conclure que la solution proposée (Ag ≈ 200μm) est une solution technologique intéressante pour des applications industrielles devant travailler entre 600 et 800 °C. Les temps estimés sont respectivement de 200 000 h et 1000 h.

## IV.2. CARACTÉRISATION MÉCANIQUE DES ASSEMBLAGES

La résistance mécanique des liaisons SiC/Ag/HAYNES™214® en utilisant un joint d'Ag de 200 µm a été mesurée par un essai de cisaillement (cf. chapitre III). Ce genre de test permet d'évaluer la qualité des assemblages du point de vue mécanique. Trois éprouvettes ont été testées. Les résultats obtenus donnent une contrainte moyenne de cisaillement de l'ordre de  $25 \pm 6$  MPa avec une rupture adhésive à l'interface Ag/HAYNES™214®. Ce type de rupture est attribué à l'oxydation de l'alliage signalé précédemment et à la faible solubilité de l'Ag dans le nickel et le Cr (éléments constituant l'alliage HAYNES™214®).

Afin d'améliorer le comportement mécanique de ces assemblages, nous avons réalisé d'autres types d'assemblages dans les mêmes conditions en utilisant des prédépôts Ni<sub>0.93</sub>B<sub>0.07</sub> sur l'alliage HAYNES™214® ( $\approx 2$  µm). La contrainte moyenne de cisaillement obtenu est de l'ordre de  $45 \pm 9$  MPa avec une rupture adhésive à l'interface Ag/HAYNES™214®. Nos résultats montrent l'effet bénéfique de prédépôts Ni<sub>0.93</sub>B<sub>0.07</sub> sur l'amélioration du comportement mécanique de l'assemblage essentiellement à l'interface Ag/HAYNES™214® qui a permis de limiter l'oxydation de l'alliage HAYNES™214®.

### IV.3. A PROPOS DES CONTRAINTES RÉSIDUELLES DANS LES ASSEMBLAGES SIC/JOINT MÉTALLIQUE/HAYNES™214®

Dans ce genre d'assemblage, il est très difficile de séparer l'effet de la réaction chimique de celui des contraintes résiduelles. Ce paragraphe est consacré à la compréhension des mécanismes d'accommodation des contraintes résiduelles d'origine thermique qui sont susceptibles de conduire à l'endommagement du matériau qui sont : la plasticité et la fissuration.

#### IV.3.1. Calcul des contraintes résiduelles d'origine thermique

Les joints de nickel utilisés dans l'assemblage SiC/Ni<sub>0.93</sub>B<sub>0.07</sub>/Ni/ HAYNES™214® et les siliciures formés, ayant un coefficient de dilatation  $\alpha_1$  supérieure à celui de SiC  $\alpha_2$ . Leurs dimensions à une température T au cours du refroidissement sera inférieure à celle de SiC. Le joint va donc se trouver en tension pour satisfaire la continuité des déplacements à l'interface. Le SiC se trouve quant à lui en compression. Nous allons calculer dans les deux paragraphes suivants, la déformation induite par le différentiel de coefficient de dilatation thermique entre SiC et le joint métallique (déformation thermique) et par suite les contraintes thermiques qui en résultent.

#### IV.3.2. Déformation thermique

Dans le cas d'un matériau isotrope où la dilatation thermique est la même dans toutes les directions, les allongements entre la température  $T_a$  d'assemblage et l'état non contraint à la température T sont :

Pour le joint ou le siliciure  $\mu_1 = l_0 \alpha_1 (T - T_a)$

Pour le SiC :  $\mu_2 = l_0 \alpha_2 (T - T_a)$

La différence d'allongement entre SiC et le joint ou le siliciure sera alors :

$$\mu = \mu_1 - \mu_2 = l_0 (\alpha_1 - \alpha_2) (T_a - T)$$

Si le joint ou le siliciure est contraint à rester à la même longueur que SiC, alors, la déformation thermique imposée au joint sera :

$$\varepsilon = \frac{\mu_2 - \mu_1}{l_0} = (\alpha_1 - \alpha_2) (T_a - T) = \Delta\alpha (T_a - T) \quad \text{IV.1}$$

Les valeurs des déformations thermiques induites au cours du refroidissement ont été calculées et figurent dans le tableau IV.3. Les coefficients de dilatation thermique utilisés sont pour l'instant considérés constants dans la gamme de température qui nous intéresse. Nous n'avons pas de données thermomécaniques des différents siliciures formés en réalité, néanmoins nous avons considéré le cas simple où seulement NiSi se forme.

	$T_a$ (°C)	$\Delta T = T_a - T$	$\alpha_m$ ( $10^{-6}$ °C)	$\Delta\alpha = \alpha_m - \alpha_c$ ( $10^{-6}$ °C)	$\varepsilon_T(T_a)$ ( $10^{-2}$ )
SiC/Ni/HAYNES®214™	1150	1125	13.1	9	1.01
SiC/NiSi <sup>formé</sup> /Ni/HAYNES®214™	1150	1125	11.8	7.3	0.82

Tableau IV. 3: Déformation thermique  $\varepsilon_T$  induites au cours du refroidissement entre la température d'assemblage  $T_a$  et la température ambiante  $T = 25^\circ\text{C}$ . L'écart entre ces deux températures est noté  $\Delta T$ . L'écart entre les coefficients de dilatation est noté  $\Delta\alpha$ .

### IV.3.3. Contraintes thermiques dans le joint ou le siliciure

On peut supposer que la déformation thermique est accommodée uniquement dans le joint. On peut supposer aussi que :

- 1-La relation entre contraintes et déformations est donnée par la loi de l'élasticité linéaire (Loi de Hooke)
- 2-La déformation thermique induit une contrainte plane selon le plan (Oxy).

Dans le cas d'un matériau isotrope, on a les relations :

$$\begin{aligned} (\lambda + 2\mu)\varepsilon_{xx} + \lambda\varepsilon_{yy} + \lambda\varepsilon_{zz} &= \sigma_{xx} \\ \lambda\varepsilon_{xx} + (\lambda + 2\mu)\varepsilon_{yy} + \lambda\varepsilon_{zz} &= \sigma_{yy} \\ \lambda\varepsilon_{xx} + \lambda\varepsilon_{yy} + (\lambda + 2\mu)\varepsilon_{zz} &= 0 \end{aligned}$$

( $\lambda$  et  $\mu$  sont les coefficients de Lamé).

Dans notre cas, les déplacements en x et y sont égaux dans le plan (Oxy) et s'écrivent :

$$\varepsilon_{xx} = \varepsilon_{yy} = \varepsilon_T$$

On a donc  $\varepsilon_{zz} = \frac{-2\lambda\varepsilon_T}{(\lambda + 2\mu)}$  et  $\varepsilon_{xx} = \varepsilon_{yy} = 2\mu\varepsilon_T \frac{(3\lambda + 2\mu)}{(\lambda + 2\mu)}$

La contrainte thermique dans le joint métallique ou dans les siliciures qui peuvent se former entre le SiC et le joint métallique est donc :

$$\sigma_T = \frac{E\varepsilon_T}{(1-\nu)}$$

$$\sigma_T(T) = \frac{E \Delta\alpha}{1-\nu} (T_a - T) = \frac{E \Delta\alpha T_a}{1-\nu} \left(1 - \frac{T}{T_a}\right) \quad \text{IV.2}$$

Où E est le module de Young du joint métallique ou du siliciure,  $\nu$  est le coefficient de Poisson et  $T_a$  la température d'assemblage.

	<i>Module de Young (GPa)</i>	$\Delta\alpha = \alpha_m - \alpha_c$ ( $10^{-6} \text{ } ^\circ\text{C}$ )	$\sigma_T(T \text{ } ^\circ\text{C})$ (MPa)
<i>Ni</i>	205	9	3031 (1-T/1150)
<i>NiSi</i>	300	7.3	3597 (1-T/1150)

Tableau IV. 4: Contraintes thermiques dans les différents joints et siliciures.

Pour le cas de NiSi, on a supposé  $E = 300$  GPa et nous avons utilisé la déformation thermique globale. En fait, le problème est beaucoup plus complexe étant donné l'anisotropie de la maille [73].

#### IV.3.4. Relaxation des contraintes thermiques

Selon qu'un matériau est fragile ou ductile, il peut accommoder une contrainte externe par plasticité et/ou par fissuration. Le cas de la plasticité s'opère par relaxation par dislocation, alors que la fissuration s'opère par fracturation au-dessous de la température de transition ductile-fragile. D'un point de vue pratique, ces deux mécanismes peuvent intervenir soit simultanément, soit successivement.

#### IV.3.5. Paramètre influant les mécanismes d'accommodation des contraintes

Les deux paramètres influant sur les mécanismes d'accommodation des contraintes sont : les sources de défauts et la vitesse de déformation.

##### IV.3.5.1. Sources de défauts

###### ① Dislocation

Lorsque  $T > T_{td-f}$ , ( $T_{td-f}$ : température de transformation ductile-fragile) l'accommodation de la contrainte thermique  $\sigma_T$  se fait grâce aux dislocations  $\sigma_d$  si  $\sigma_T > \sigma_d$  car dans ce cas, les dislocations sont mobiles et se multiplient [73]. Les sources de dislocations doivent vraisemblablement provenir de défauts se trouvant aux interfaces SiC/siliciure (rugosité, impureté...) ou de joints de grains dans le siliciure.

Lamy [73] dans son étude des interfaces SiC/siliciures de Co, Fe et Ni a montré que le nombre de sources de dislocations dans un eutectique CoSi-CoSi<sub>2</sub> est plus important que

dans le cas des siliciures monophasés CoSi, CoSi<sub>2</sub> et FeSi. Cela est expliqué par le fait que le grain de CoSi dans l'eutectique cité, constitue des sources supplémentaires de dislocations. En effet, il existe un différentiel de coefficient de dilatation entre les deux siliciures de cobalt. Lors du refroidissement de la brasure, ce différentiel induit une déformation thermique pouvant permettre une accommodation par émission de dislocations.

Ce raisonnement peut être aussi applicable dans notre cas de figure où on a formation de plusieurs types de siliciures qui forment plusieurs interfaces depuis le SiC vers l'alliage HAYNES™214® (SiC/Ni<sub>3</sub>Si<sub>2</sub>/Ni<sub>2</sub>Si/Ni<sub>3</sub>Si/Ni/HAYNES™214®). En effet, les sources peuvent se situer aux interfaces mais aussi être aux joints de grains des siliciures. Il faut savoir qu'une trop forte densité de précipités peut induire une fragilisation du matériau. Plus les sources de dislocations sont nombreuses, plus les dislocations le sont. Ceci peut induire l'effet inverse de celui recherché : un durcissement du matériau.

### ② Fissures

La rupture des assemblages et l'apparition de nombreuses fissures aux niveaux des interfaces réactives témoignent de l'existence de microfissures dans le matériau. D'où viennent ces microfissures ?

Voici quelques explications possibles à l'existence de microfissures :

Lorsqu'un épisode plastique existe, un empilement assez long de dislocations peut entraîner une contrainte interne assez élevée pour amorcer une fissure suivant un mécanisme complexe expliqué dans la référence [73].

On peut penser, d'autre part, à l'existence de microvides. En effet, il a été montré que la concentration de lacunes mobiles est assez importante dans le cas de CoSi<sub>2</sub> à hautes température [73]. Lorsque la température diminue, ces lacunes s'agglomèrent pour former des nanotrous pouvant être des amorces de fissures.

#### IV.3.5.2. Vitesse de refroidissement

La vitesse de refroidissement du matériau sandwich est importante car elle conditionne la vitesse de déformation du siliciure et donc, sa limite d'élasticité et sa température de transition ductile-fragile  $T_{td-f}$ . Cependant, la vitesse de déformation au moment de la solidification est mal connue. Il se peut qu'au niveau de l'échantillon, la vitesse de refroidissement soit beaucoup plus rapide. Pour connaître précisément la façon dont se refroidit l'assemblage, il faudrait effectuer des simulations de cartes thermiques. Si la vitesse de refroidissement et donc la vitesse de déformation est trop rapide, le mouvement des dislocations n'a pas le temps de se faire et la contrainte thermique ne sera pas accommodée au fur et à mesure du refroidissement.

## IV.4. CONCLUSION

En dépit de son intérêt technologique pour des applications thermomécaniques, le carbure de silicium pose de nombreux problèmes lorsqu'il est lié à un métal pour des températures supérieures à 600°C, en raison de sa forte réactivité avec les différents métaux qui entraîne la formation de siliciures fragiles. Ainsi, pour résoudre ce problème, différents assemblages SiC/HAYNES<sup>®</sup> 214<sup>TM</sup> ont été réalisées, en utilisant ; un dépôt Ni<sub>0,93</sub>B<sub>0,07</sub>, un dépôt Ag, et une feuille d'Ag. Dans le premier cas, nous avons démontré que l'ajout de bore par l'intermédiaire d'un dépôt Ni<sub>0,93</sub>B<sub>0,07</sub> n'est pas suffisant pour éviter la fragilité des siliciures qui développent de fortes contraintes résiduelles à l'interface au cours du processus de fabrication (essentiellement au cours du refroidissement). Dans le second cas, l'utilisation d'un dépôt Ag ( $\approx 2 \mu\text{m}$ ) permet d'éviter de manière significative la réaction du carbure de silicium avec le nickel. Dans cette logique une nouvelle approche d'assemblage entre le carbure de silicium et l'alliage à base de nickel pour les applications à hautes températures (600 °C < T < 800 °C) à l'aide d'un joint épais d'Ag ( $\approx 200 \mu\text{m}$ ) a été explorée. La capacité à former une liaison forte et à éviter les réactions entre le SiC et le nickel a été démontrée. Pour finir, la figure IV.10 montre une comparaison entre les différentes solutions que nous avons testées.

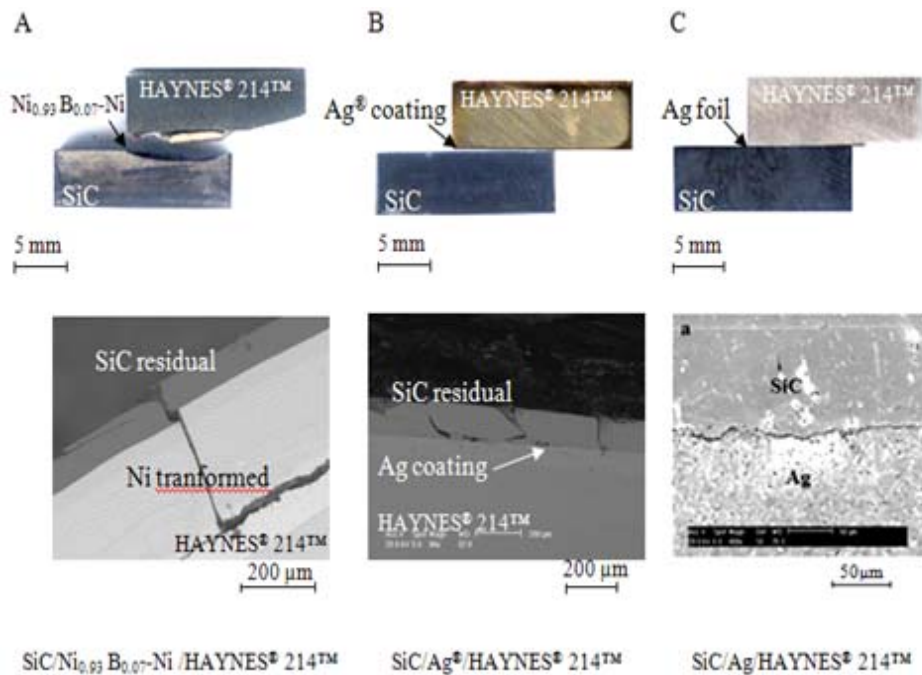


Figure IV.10 : Différence entre les trois méthodes utilisées pour la réalisation de l'assemblage SiC/HAYNES<sup>TM</sup>214<sup>®</sup>. A) utilisation d'un dépôt Ni<sub>0,93</sub>B<sub>0,07</sub> ( $\approx 2 \mu\text{m}$ ), B) utilisation d'un dépôt Ag<sup>®</sup> ( $\approx 2 \mu\text{m}$ ), C) utilisation d'une feuille d'Ag ( $\approx 200 \mu\text{m}$ ).

L'utilisation d'une feuille d'argent ( $\approx 200 \mu\text{m}$ ) entre le SiC et l'alliage (HAYNES<sup>®</sup> 214<sup>TM</sup>) améliore la résistance au cisaillement mécanique à  $45 \pm 9 \text{ MPa}$ , ce qui peut laisser espérer des applications industrielles à 700 °C pendant plus de 10 000 heures.

## CHAPITRE V

# SYSTÈMES

## $Al_2O_3/Ni/HAYNES^{TM}214^{\circledR}$

*Ce chapitre présente les résultats expérimentaux concernant le multimatériau  $Al_2O_3/Ni/HAYNES^{TM}214^{\circledR}$ . Partant des résultats antérieurs de Lourdin [22], Serier [31] et Kara-sleimane [42] nous avons réussi à fabriquer des couples nouveaux, jamais étudiés,  $Al_2O_3/Ni/HAYNES^{TM}214^{\circledR}$  selon le procédé de thermo-compression sous vide, par l'intermédiaire d'un joint métallique en Ni de faible épaisseur.*

*Contrairement au SiC, le nickel est peu réactif avec l'alumine. Cependant, la différence de coefficient de dilatation thermique entre la céramique ( $Al_2O_3$ ) et le métal (Ni et  $HAYNES^{TM}214^{\circledR}$ ) conduit à de forte concentration de contraintes résiduelles à l'interface. Une simulation par éléments finis en utilisant le code ABAQUS, nous a permis de localiser le champ des contraintes résiduelles dans ce type d'assemblage. Une comparaison entre un calcul élasto-plastique et un calcul élasto-visco-plastique a été réalisée. La distribution des contraintes est sensible à l'épaisseur du joint de nickel ainsi qu'aux dimensions et formes respectives de l'alliage et de la céramique. Il est ainsi montré que le calcul élasto-visco-plastique est indispensable pour caractériser la liaison alumine/alliage métallique, contrairement à des liaisons alumine/alumine étudiées plus classiquement. De plus, les contraintes de tension dans la céramique sont beaucoup plus importantes pour l'assemblage alumine/alliage métallique ce qui est retrouvé expérimentalement par les résultats de caractérisation mécanique (cisaillement, délamination) de ces deux types de liaisons et par des mesures expérimentales de contraintes résiduelles par indentation et par diffraction des rayons X. Outre le problème des contraintes résiduelles, il s'avère que la pureté de l'alumine joue un rôle important dans l'établissement de la liaison. Une alumine riche en ajout de frittage conduit au ressuage d'un film au niveau de l'interface, empêchant la liaison. Pour résoudre ces problèmes, des prétraitements de la céramique par le procédé original « Jet-métal » (dépôt chimique de  $Ni_{0.93}B_{0.07}$ ) et par des traitements thermiques ont été testés.*

*La fragilisation de l'alumine près de l'interface est un phénomène connu dû essentiellement à la diffusion du métal de liaison et au frottement entre le joint métallique et l'alumine. Une corrélation entre la ténacité, l'intensité des contraintes résiduelles et le piégeage de charges électriques a été montré.*



*Chapitre V- Partie A*



=====

*OPTIMISATION PHYSICO-CHIMIQUES ET  
MÉCANIQUES*

=====



***Optimisation physico-chimique et mécanique du système Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ni/HAYNES™214®*****V.1. CHOIX DU COUPLE Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ni/HAYNES™214®**

Notre étude a pour but la fabrication de pièces métal/céramique devant travailler à haute température (> 800 °C) et résister aux milieux corrosifs. Pour cela, trois alliages métalliques ont été proposés par l'IFP : INCOLOY 800H, KANTHAL APM et HAYNES™214®.

Les études préliminaires sur la faisabilité de la réalisation des couples métal/céramique pour différents alliages (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ni/INCOLOY 800H, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ni/KANTHAL APM et Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ni/HAYNES™214®), nous ont montré que les assemblages sont équivalents du point de vue tenue mécanique au cisaillement, mais que le HAYNES™214® présente une meilleure résistance à l'oxydation vers 1150 °C, d'où son choix pour la suite de notre travail.

Le nickel quant à lui, est choisi pour son haut point de fusion. De plus, il constitue l'élément principal de l' HAYNES™214® (75%).

Deux types d'alumine ont été étudiées : l'alumine standard 'S' riche en ajouts de frittage et l'alumine haute pureté type AL23 pauvre en ajout de frittage. Il s'avère que la pureté de l'alumine joue un rôle important dans l'établissement de la liaison. Pour cela, plusieurs configurations d'assemblage ont été testées. Dans un premier temps, nous nous sommes inspirés pour les paramètres expérimentaux de la thermocompression, des conditions proposées par *Lourdin* [22] dans son étude des liaisons Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ni/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (Tableau V.1).

<b>Paramètres</b>	
Température (C°)	1150-1200
Pression (MPa)	16
Temps du palier (heures)	1-2
Epaisseur du joint (mm)	0,25
Atmosphère (Pa)	Vide primaire dynamique 10 <sup>-3</sup>

Tableau V. 1 : Conditions d'élaboration de la liaison Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ni/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> [22].

**V.1.1. Utilisation de l'alumine (S)**

Avec cette alumine, ces conditions n'ont pas été favorables dans notre cas. En effet nous n'avons jamais pu obtenir une liaison Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ni/alliage alors que dans le cas du couple Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ni/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> dans les mêmes conditions, une bonne liaison est observée. Cette différence peut être attribuée à la modification des contraintes résiduelles liées à la modification du couple, mais aussi à la température élevée utilisée qui a favorisé le ressuage de la phase vitreuse présente dans les joints de cette alumine (Figure V.1). Cette phase a pour origine les ajouts introduits dans la poudre de départ de l'alumine pour

favoriser le frittage et limiter le grossissement de grains. On retrouve ici le résultat de *Drillet* [32] signalé dans notre étude bibliographique (cf. Chapitre III, § III.2.1).

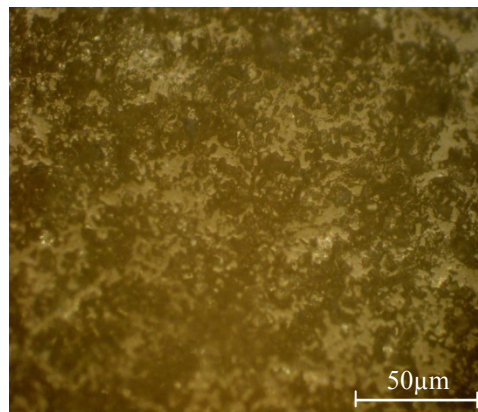


Figure V. 1 : Microstructure de l'alumine S après une attaque thermique de 2 h à 1200 °C.

La diminution de la température de la liaison et du temps de palier ( $T = 1150\text{ °C}$ ,  $t = 1\text{ h}$ ) nous a permis d'obtenir une liaison excellente de point de vue micrographique quel que soit l'alliage utilisé (Figure V.2), avec une très bonne adaptation au niveau des deux surfaces.

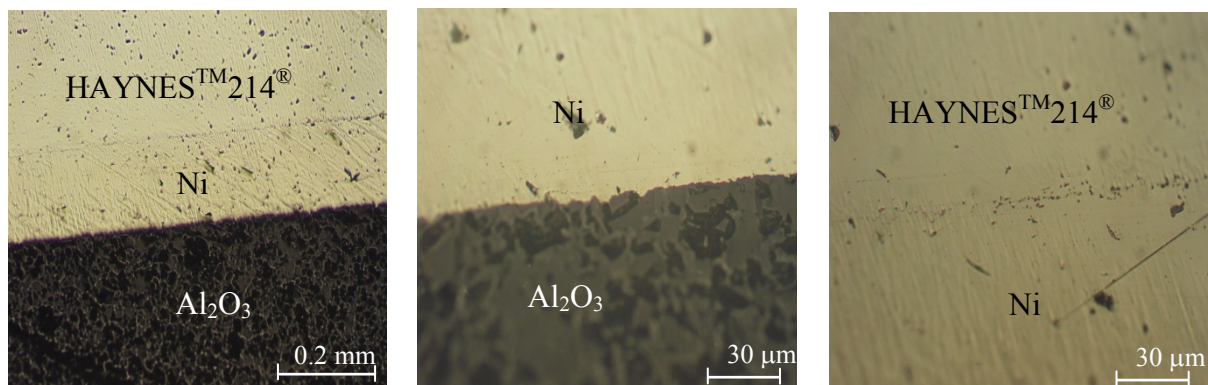


Figure V.2 : Micrographie optique de la liaison  $\text{Al}_2\text{O}_3(\text{S})/\text{Ni}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214^{\text{®}}$  ( $P = 16\text{ MPa}$ ,  $T = 1150\text{ °C}$ ,  $t = 1\text{ heure}$ , vide primaire dynamique  $10^{-3}\text{ Pa}$ ).

Lors de l'essai de cisaillement, la rupture est cohésive dans l'alumine avec une valeur de 12 MPa. Cette valeur est relativement faible, étant toutefois cohésive, on peut là encore faire l'hypothèse de contraintes résiduelles élevées dans l'alumine. Ces conditions ont cependant permis de minimiser la migration des additions au niveau de l'interface entre le nickel et l'alumine et ainsi la formation d'une phase vitreuse.

### V.1.1.1. Utilisation de l'alumine (S) avec un pré dépôt $\text{Ni}_{0.93}\text{B}_{0.07}$

Nous avons tenté de refaire les mêmes expériences, mais en utilisant un pré dépôt  $\text{Ni}_{0.93}\text{B}_{0.07}$  ( $\approx 2\mu\text{m}$ ) sur  $\text{Al}_2\text{O}_3$  (S) dans le but de limiter le ressuage de la phase vitreuse. La liaison est alors effective, avec une rupture cohésive d'une valeur de 12 MPa.

A priori, le dépôt n'a pas amélioré le comportement mécanique des liaisons. Deux hypothèses sont retenues :

- il se peut que le pré dépôt  $\text{Ni}_{0.93}\text{B}_{0.07}$ , n'ai pas joué le rôle de barrière à la migration de la phase vitreuse jusqu'à l'interface,
- existence de fortes contraintes résiduelles au niveau de la céramique.

### V.1.1.2. Prétraitement de l'alumine (S)

Afin de limiter le ressuage de la phase vitreuse, les échantillons de l'alumine (S) sont portés à une température de  $1200\text{ }^{\circ}\text{C}$  pendant 5 heures. Ce traitement thermique a pour but de provoquer le ressuage de la phase vitreuse présente dans les joints de grains de la céramique. Un polissage mécanique au diamant est ensuite nécessaire afin d'éliminer cette phase en surface. Les conditions d'assemblage retenues pour cet essai sont semblables à l'essai précédent.

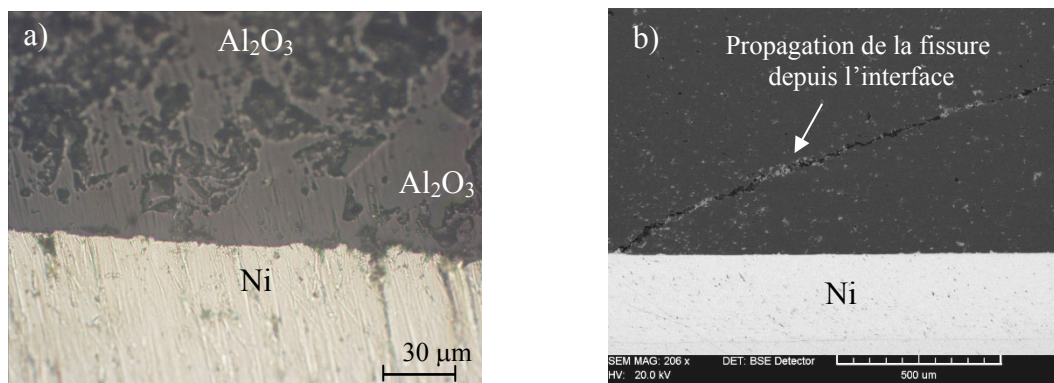


Figure V.3 : Micrographie optique et électronique de la liaison  $\text{Al}_2\text{O}_3(\text{S})/\text{Ni}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214^{\text{®}}$  ( $P = 16\text{ MPa}$ ,  $T = 1150\text{ }^{\circ}\text{C}$ ,  $t = 1\text{ heure}$ , vide primaire dynamique 10-3 Pa).

La liaison présente une très bonne adaptation des interfaces au milieu de la liaison (Figure V.3a). Des observations macroscopiques et microscopiques montrent une fissuration partielle de la céramique au niveau du bord à l'interface (au point singulier). Cette fissuration est probablement liée à de fortes concentrations de contraintes résiduelles dans cette région de l'assemblage (Figure V.3b).

Les tests de cisaillements ont donné une résistance à la rupture de l'ordre de 30 MPa, avec une rupture cohésive côté céramique. Il semble donc que le traitement effectué a joué son rôle quant à l'élimination de la phase vitreuse et à l'amélioration du comportement mécanique de la liaison sans toutefois modifier l'état des contraintes.

La comparaison des tenues mécaniques de différents assemblages réalisés montre que malgré la différence de la composition chimique des trois alliages métalliques leurs comportements ne diffèrent pas trop. Les ruptures sont de type cohésif. L'hypothèse sur la possibilité de formation de la phase vitreuse au niveau de la liaison semble être vraie. Le traitement thermique effectué sur l'alumine a bien amélioré le comportement mécanique des liaisons (Figure V.4).

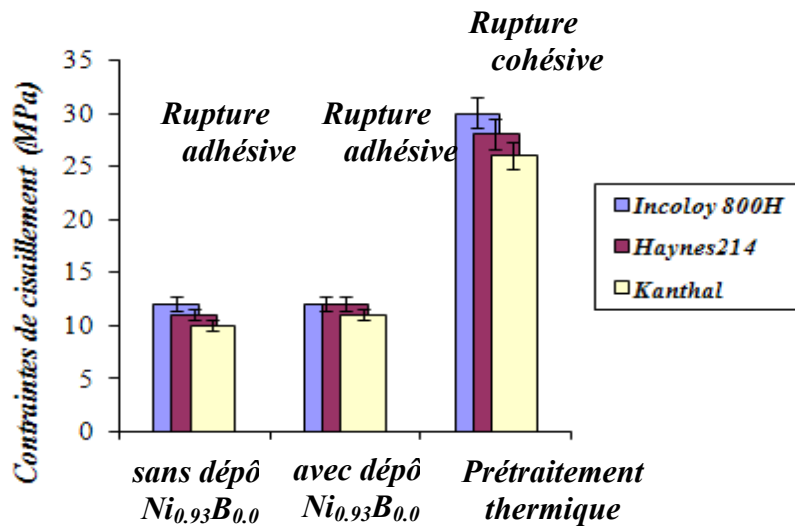


Figure V.4 : Contraintes de cisaillement maximales pour le couple  $Al_2O_3(S)/Ni/HAYNES^{TM}214^{\circ}$ , INCOLOY 800H et KANTHAL APM dans les conditions  $P = 16 \text{ MPa}$ ,  $T = 1150^{\circ}C$ , temps = 1 heures, épaisseur joint nickel = 0,2 mm.

### V.1.2. Utilisation de l'alumine AL23

Afin de résoudre le problème de ressuage de la phase vitreuse au niveau de l'interface. Nous avons utilisé une alumine plus pure, pauvre en ajout de frittage (AL23- 99.7%).

Les bons résultats obtenus nous ont encouragés à l'utilisation de cette céramique pour toute la suite de nos travaux de thèse. La tenue mécanique en cisaillement est de l'ordre de 35 MPa avec une rupture cohésive côté céramique dans les conditions de la figure V.3.

La figure V.5 montre l'interface formée entre le joint de nickel et l'alumine AL23. Le problème de la fissuration de la céramique depuis l'interface reste entier. En thermocompression le bord du joint n'est jamais parfaitement lié, il peut donc y avoir un effet d'entaille qui amorce la fissure dans l'interface puis la propagation se fait dans l'alumine sous contrainte. L'hypothèse des contraintes résiduelles dans le cas du couple alumine/alliage se confirme une fois de plus.

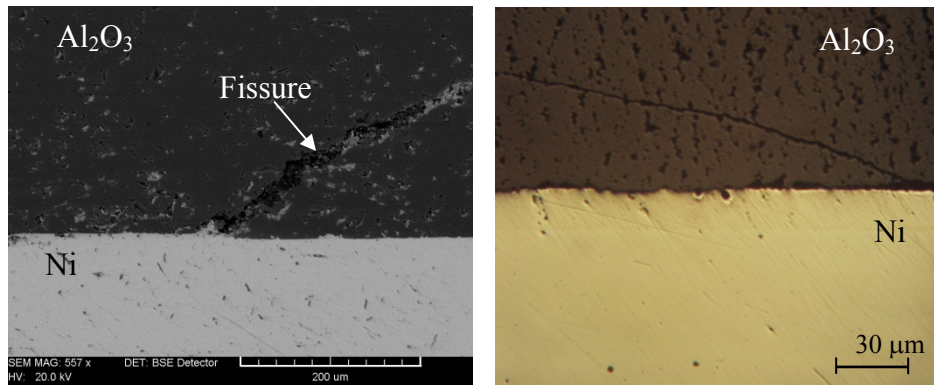


Figure V. 5: Micrographie par MEB de la liaison  $\text{Al}_2\text{O}_3(\text{HP})/\text{Ni}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214^{\text{®}}$  montrant l'effet des contraintes résiduelles sur l'endommagement de l'assemblage. ( $P = 16 \text{ MPa}$ ,  $T = 1150 \text{ °C}$ ,  $t = 1 \text{ heure}$ , vide primaire dynamique  $10^{-3} \text{ Pa}$ ).

Nous avons réalisé des analyses par diffraction X rasante avec un angle d'incidence  $\alpha = 1^\circ$  sur l'interface  $\text{Ni}/\text{Al}_2\text{O}_3$  après rupture. Comme le montre la figure V.6, la phase type spinelle  $\text{NiAl}_2\text{O}_4$  a été identifiée, confirmant le caractère réactif du système  $\text{Ni}/\text{Al}_2\text{O}_3$  dans nos conditions expérimentales.

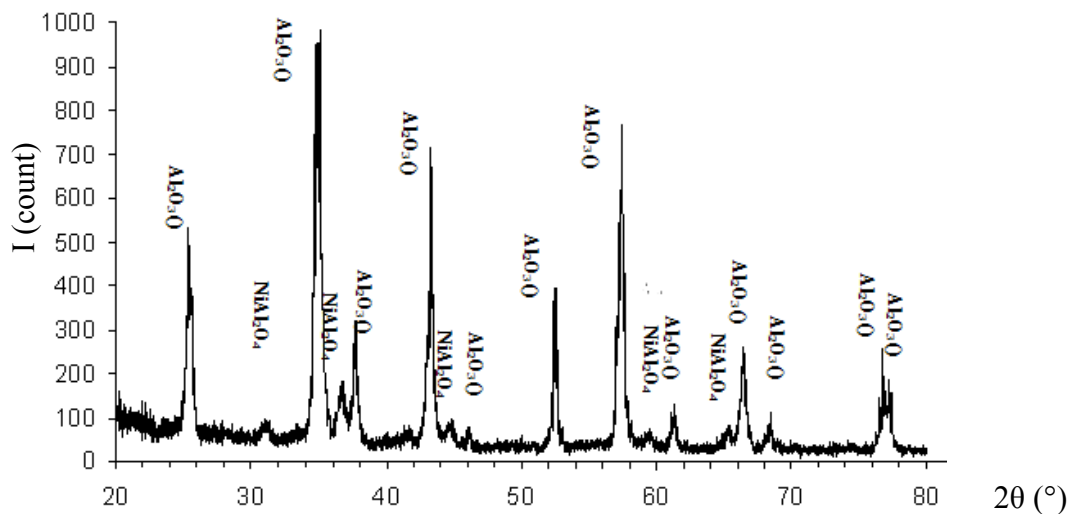


Figure V.6 : Spectre de diffraction X sous incidence rasante ( $\alpha = 1^\circ$ ) d'un faciès de rupture de la liaison  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214^{\text{®}}$  côté  $\text{Al}_2\text{O}_3$ . ( $P = 16 \text{ MPa}$ ,  $T = 1150 \text{ °C}$ ,  $t = 1 \text{ heure}$ , vide primaire dynamique  $10^{-3} \text{ Pa}$ ) (anticathode  $\text{Cu K}\alpha$ ).

## V.2. COMPARAISON DES TENUES MÉCANIQUES

L'influence de la température de liaison sur la tenue mécanique des systèmes  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214^{\text{®}}$  et  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{Al}_2\text{O}_3$  pour les deux types d'alumine utilisée (S et AL23) a été étudiée (Figure V.7). Les résultats montrent que la tenue mécanique des liaisons  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{Al}_2\text{O}_3$  est toujours supérieure à la tenue mécanique des liaisons  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214^{\text{®}}$  dans les mêmes conditions d'assemblage et quel que soit le type d'alumine utilisé. Cette différence dans les propriétés mécaniques est liée directement à la différence des coefficients de dilatation thermique entre les matériaux

composant le système. Par conséquent, des contraintes résiduelles se développent et conduisent à la plastification du métal, à la fissuration de la céramique et/ou à la décohésion interfaciale.

D'autres observations montrent que l'utilisation de l'alumine S conduit toujours à des ruptures adhésives alors que l'utilisation de l'alumine AL23 conduit à des ruptures cohésives.

Comparant les différents histogrammes (Figure V.7a, b et c), nous pouvons constater que la liaison  $\text{Al}_2\text{O}_3(\text{AL23})/\text{Ni}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214^{\text{®}}$  réalisée à 1200 °C a une forte résistance mécanique au cisaillement. Mais, à cause de la forte déformation par fluage de l'alliage HAYNES<sup>TM</sup>214<sup>®</sup>, ces conditions ont été abandonnées pour se fixer à une température de 1150 °C qui conduit à un fluage faible de l'alliage.

On note aussi sur ces histogrammes que le système  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{Al}_2\text{O}_3$  symétrique conduit à des résistances mécaniques toujours plus élevées que le système  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{alliage}$ .

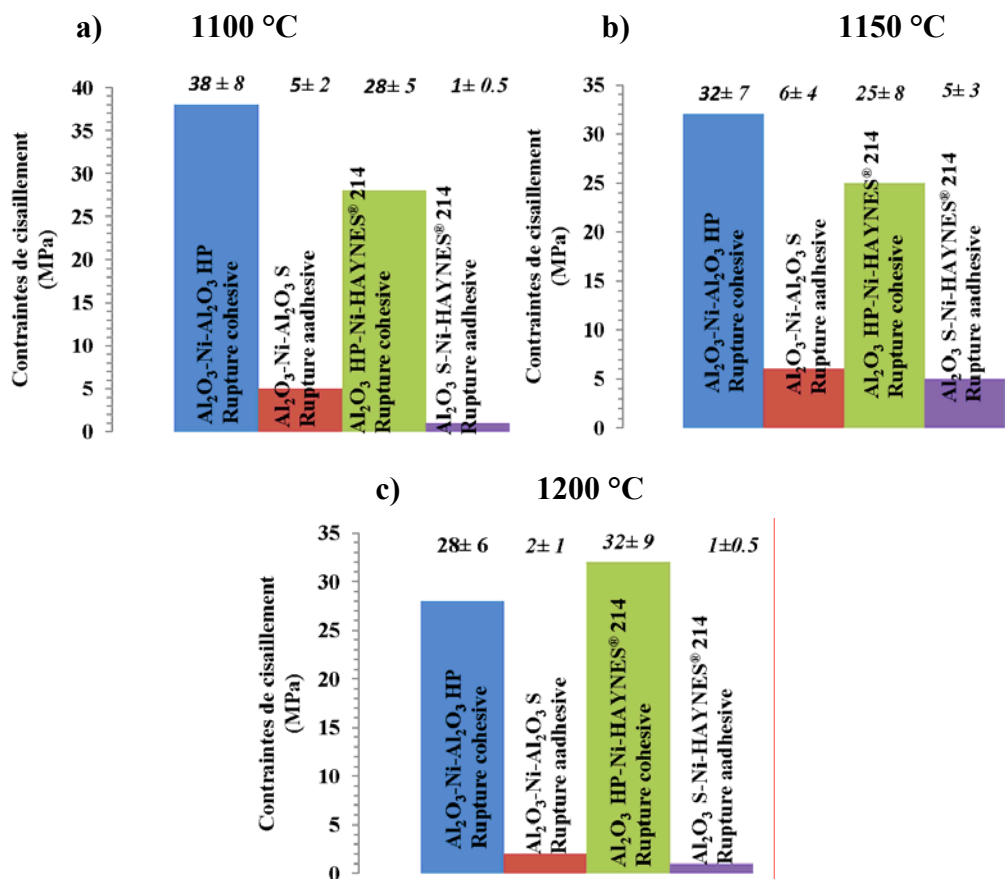


Figure V. 7: Contraintes de cisaillement moyennes des systèmes  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214^{\text{®}}$  et  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{Al}_2\text{O}_3$  élaborés à différentes températures a) 1100 °C, b) 1150 °C, c) 1200 °C) en utilisant les deux types d'alumine S et AL23 (noté ici HP). ( $P = 16 \text{ MPa}$ ,  $T = 1150 \text{ °C}$ ,  $t = 1 \text{ heure}$ , vide primaire dynamique  $10^{-3} \text{ Pa}$ ).

Cependant l'utilisation d'une alumine AL23 de haute pureté, pauvre en ajouts de frittage, nous a permis d'obtenir des tenues mécaniques significatives dans le cas de la liaison Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(HP)/Ni/HAYNES<sup>TM</sup>214<sup>®</sup> ( $\approx 25 \pm 8$  MPa). L'optimum des conditions d'élaboration de l'assemblage Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>(HP)/Ni/HAYNES<sup>TM</sup>214<sup>®</sup> a été choisi en fonction des tenues mécaniques (Figure V.7).

Le tableau V.2 montre les paramètres choisis pour la suite de l'étude.

<b>Paramètres</b>	
Température (C°)	1150
Pression (MPa)	16
Temps du palier (heures)	1
Épaisseur du joint (mm)	0,25
Atmosphère (Pa)	Vide primaire dynamique 10 <sup>-3</sup>

Tableau V.2 : Conditions optimales d'élaboration de la liaison Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ni/HAYNES<sup>TM</sup>214<sup>®</sup>.

### V.3. EFFET DE L'ÉPAISSEUR DE L'ALLIAGE SUR LA TENUE MÉCANIQUE ET LES CONTRAINTES RÉSIDUELLES

Pour confirmer le rôle des contraintes résiduelles dans les liaisons, nous avons modifié l'épaisseur  $E_a$  des alliages utilisés, l'épaisseur  $E_c$  de la céramique restant constante. Nos résultats ont montré que les faibles épaisseurs des alliages c'est-à-dire  $R' = E_c/E_a > 1$  (dans les conditions d'une pression de 16 MPa, température de 1150 °C, temps de maintien  $t = 1$  heure, épaisseur de la céramique  $E_c = 5$  mm et épaisseur de joint de  $E_j = 0,25$  mm), ne permettent pas d'obtenir des liaisons, alors que lorsque  $R' \leq 1$ , les liaisons sont réussies avec cependant des tenues mécaniques des assemblages modérées (Tableau V.3). Seule une modélisation par éléments finis pourra donc nous informer sur l'état des contraintes en fonction des dimensions et géométries.

<b>Liaison</b>	<b>Conditions (MPa, °C, heure, mm)</b>	<b>Contraintes Max de cisaillement (MPa)</b>	<b>Type de rupture</b>
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /Ni/HAYNES <sup>TM</sup> 214 <sup>®</sup>	P=16, T=1150, t = 1, R' = 1.66	0	-
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /Ni/HAYNES <sup>TM</sup> 214 <sup>®</sup>	P=16, T=1150, t = 1, R' = 1.25	0	-
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /Ni/HAYNES <sup>TM</sup> 214 <sup>®</sup>	P=16, T=1150, t = 1, R' = 1	35	cohésive
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /Ni/HAYNES <sup>TM</sup> 214 <sup>®</sup>	P=16, T=1150, t = 1, R' = 0.5	25	cohésive

Tableau V.3 : Conditions d'élaboration de différents assemblages. Effet de l'épaisseur de l'alliage sur la tenue mécanique.  $E_c = 5$  mm et  $E_j = 0.2$  mm dans les conditions de  $P = 16$  MPa,  $T = 1150$  °C,  $t = 1$  heure, vide primaire dynamique 10<sup>-3</sup> Pa. ( $R' = E_c/E_a$ ).

#### V.4. CONCLUSION ET PERSPECTIVE

Dans notre étude de la liaison Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ni/HAYNES<sup>TM</sup>214<sup>®</sup> (ajustement avec Incoloy 800H et Kanthal APM) nous avons trouvé des difficultés à réaliser cette liaison. Plusieurs hypothèses peuvent justifier cette difficulté :

- *formation de phase vitreuse par migration des impuretés de la céramique,*
- *problème des contraintes résiduelles développées au cours de l'élaboration.*

Plusieurs propositions ont été testées pour remédier à ces problèmes :


- *dépôt d'une couche (Ni<sub>0,93</sub>B<sub>0,07</sub>) qui joue le rôle de barrière à la diffusion de la phase vitreuse,*
- *augmenter le temps de maintien afin de permettre de vider les joints de grains de ces phases vitreuses et pour les éliminer par évaporation,*
- *élimination de la phase vitreuse par un traitement thermique suivi d'un polissage mécanique,*
- *utilisation d'une alumine de haute pureté.*

Parmi ces propositions il faut noter que seulement les deux dernières avaient un rôle significatif dans l'amélioration du comportement mécanique des liaisons.

Le rôle de la couche déposée (Ni<sub>0,93</sub>B<sub>0,07</sub>) n'a pas été remarquable. On pense que l'épaisseur faible de la couche était responsable ( $\approx 2 \mu\text{m}$ ) et n'a pas joué le rôle de barrière à la diffusion. Il pourrait être souhaitable de travailler sur des épaisseurs un peu plus grandes afin de stopper la diffusion des phases vitreuses, et améliorer les liaisons dans le cas du choix d'une alumine impure. Ce choix peut apparaître en effet comme le plus économique et le plus facile pour l'approvisionnement, car il faut savoir que la majorité des céramiques industrielles type alumine contiennent des phases vitreuses souvent peu identifiées dans leurs joints de grains (dues aux méthodes d'élaboration).

La comparaison des tenues mécaniques de l'assemblage Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ni/HAYNES<sup>TM</sup>214<sup>®</sup> avec l'assemblage Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ni/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> montre que ce dernier présente toujours des tenues mécaniques au cisaillement plus élevées. Il est à noter que l'utilisation de l'alliage a conduit à la fragilisation de la céramique par localisation des fissures sur les bords libres (points singuliers). Le type de rupture « cohésive » enregistré, nous laisse penser aux contraintes résiduelles. A titre de confirmation, nous avons pu montrer qualitativement par des essais de cisaillement que l'épaisseur de l'alliage joue un rôle important sur la tenue mécanique des assemblages et par suite sur l'intensité des contraintes résiduelles qu'il est indispensable d'étudier maintenant précisément.





*Chapitre V- Partie B*



---

---

***DÉTERMINATIONS NUMÉRIQUES ET EXPÉRIMENTALES  
DES CONTRAINTES RÉSIDUELLES***

---

---

### Résultats de la simulation numérique des contraintes résiduelles

La simulation numérique par éléments finis est un outil puissant dont l'utilisation doit permettre la prédiction de la répartition spatiale des contraintes résiduelles lorsque les méthodes analytiques sont inefficaces.

De multiples exemples d'application existent dans le cas du brasage [157,158,159], de la thermocompression [22,26], de la projection plasma [160,161]. Le champ d'investigation dans ce domaine est vaste et connaît un essor particulier ces dernières années en relation avec l'amélioration permanente des logiciels et des stations de calculs disponibles dans les laboratoires. Dans notre cas nous avons utilisé le logiciel **ABAQUS 6.6.1** développé et commercialisé par la société **SIMULIA**. Cet outil recèle un grand nombre de possibilités parmi lesquelles existe la modélisation du comportement élasto-plastique et élasto-visco-plastique des matériaux.

Le but de notre travail est d'appliquer tout d'abord cette méthode à l'assemblage dont la géométrie est simple (Figure V.8) et correspond à l'optimisation expérimentale précédente. Deux configurations d'assemblage ont été étudiées de façon à expliquer pourquoi les tenues mécaniques sont supérieures pour un assemblage symétrique :

- 1- Assemblage  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{Al}_2\text{O}_3$  symétrique.
- 2- Assemblage  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214^{\text{®}}$ .

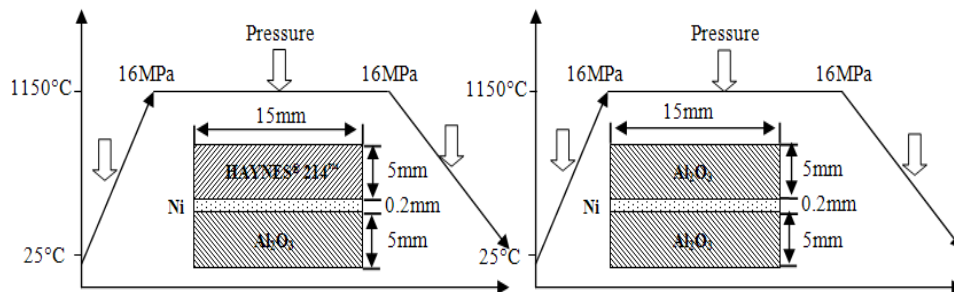


Figure V.8 : Géométrie des assemblages et cycle thermique.

Différents modèles de comportement ont été appliqués (élastique, élasto-plastique et élasto-visco-plastique). Le cas le plus simple revient à considérer des lois de comportement dans le domaine élastique, mais cette démarche n'est généralement pas satisfaisante car elle conduit à des valeurs de contraintes largement surestimées qui dépassent parfois la contrainte à la rupture du matériau. En conséquence, la modélisation par élément finis doit prendre en compte les propriétés élasto-plastiques voire élasto-visco-plastiques.

Une étude paramétrique, doit nous permettre de dégager les facteurs qui influent de façon déterminante sur les contraintes résiduelles d'origine thermomécanique.

## V.5. MÉTHODE NUMÉRIQUE

La modélisation des contraintes d'origines thermiques est conduite sur la pièce de géométrie simple (Figure V.9). La démarche calculatoire entreprise est la suivante :

La première étape d'une modélisation des contraintes résiduelles d'origine thermique est le maillage en éléments finis de la structure à analyser. Puis intervient le calcul du chargement thermique et finalement le calcul des contraintes et déformation au cours de ce chargement. Le maillage et la géométrie des mailles doivent prendre en considération les symétries éventuelles des pièces et peuvent être affinés, si on le désire, aux endroits caractérisés par une discontinuité (bord, interface) qui peuvent être source de forts gradients ou de concentration de contraintes. Un maillage fin sera plus précis mais augmente en conséquence le temps de calcul.

## V.6. DONNÉES ET HYPOTHÈSES DU CALCUL

### V.6.1. Le maillage

Les hypothèses liées à la symétrie permettent de schématiser la pièce par une représentation bidimensionnelle selon un plan délimité par l'épaisseur « y » de l'assemblage et sa longueur « x ». Ceci signifie qu'une ligne repérée par des nœuds peut être considérée comme une ligne isotherme et par voie de conséquence est également une ligne isocontrainte.

Le maillage pratiqué est schématisé sur la figure V.9. Il s'agit de mailles rectangulaires de type DC2D4 (An 4-node linear heat transfer quadrilateral) dans le cas du chargement thermique et de type CPS8R (An 8-node bi-quadratic Plane stress quadrilateral, reduced integration) dans le cas du calcul des contraintes et des déformations au cours du chargement mécanique (Figure V.10).

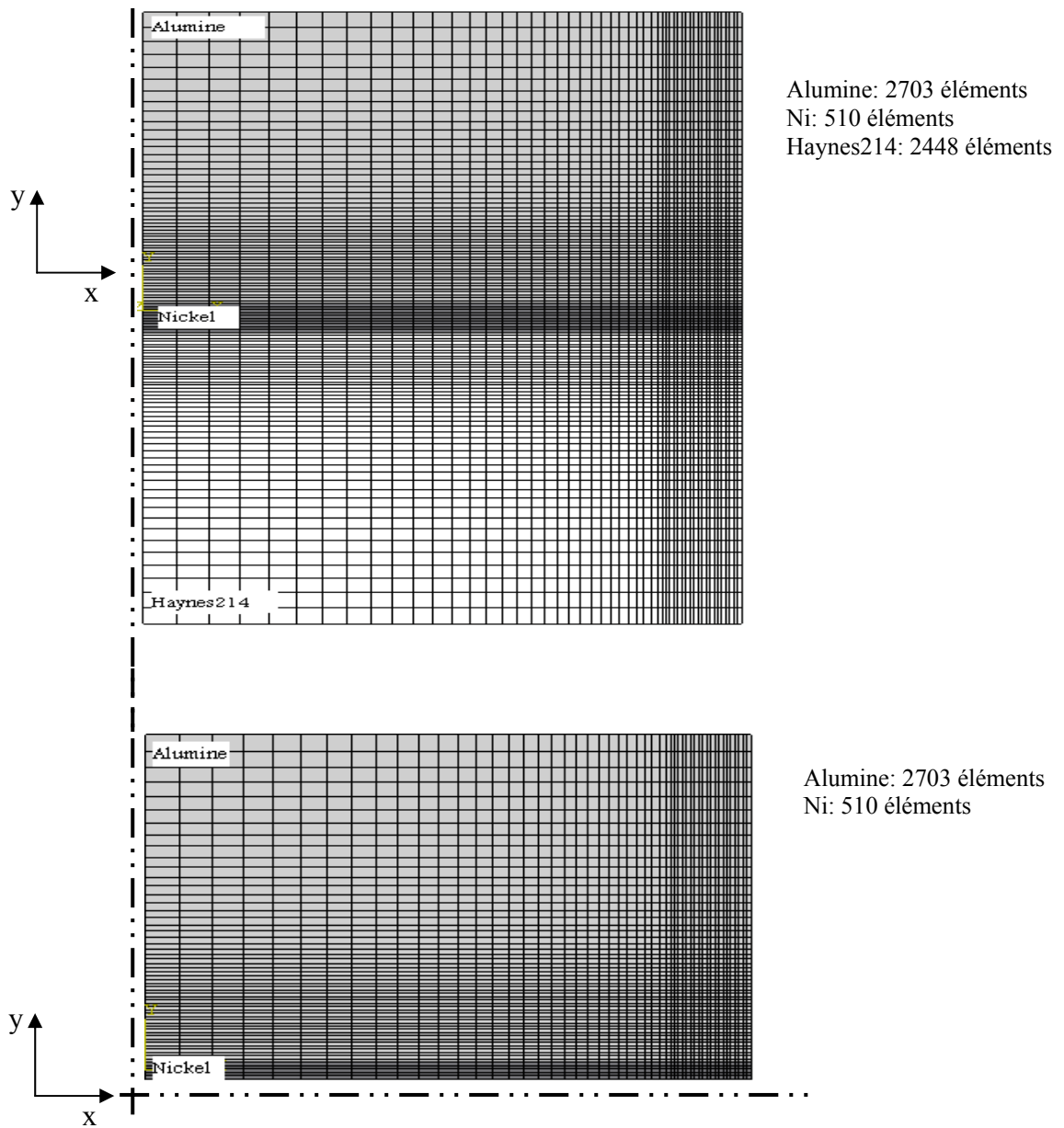


Figure V.9 : Maillage bidimensionnel de l'assemblage  $Al_2O_3/Ni/HAYNES^{TM}214^{\circ}$  et  $Al_2O_3/Ni/Al_2O_3$ .

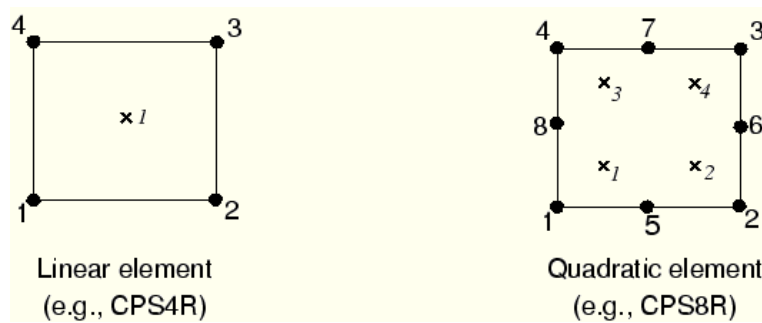


Figure V.10 : Type de maille utilisée pour le calcul des contraintes résiduelles.

### V.6.2. Calcul du chargement thermique

Au cours de la thermocompression, l'assemblage subit un cycle thermique composé d'un chauffage de  $200\text{ }^{\circ}\text{C}/\text{h}$  jusqu'à la température de l'assemblage  $1150\text{ }^{\circ}\text{C}$ , suivi d'un maintien d'une heure, et enfin un refroidissement lent de  $150\text{ }^{\circ}\text{C}/\text{h}$  correspondant approximativement à l'inertie thermique de l'enceinte du four jusqu'à  $25\text{ }^{\circ}\text{C}$ . La pression est maintenue constante à  $16\text{ MPa}$  pendant tout le cycle thermique. On considère que les surfaces externes du multimatériau suivent rigoureusement le refroidissement du four (les coefficients d'échange thermique ne sont pas pris en compte). Le calcul des températures internes de l'assemblage est effectué grâce aux caractéristiques thermophysiques des matériaux polycristallins, si possible en fonction de la température (cf. Tableaux III.2, 4 et 9).

L'examen des cartographies des isothermes au cours du refroidissement, confirme que le refroidissement est tellement lent que le gradient thermique est négligeable. Cela confirme l'hypothèse implicite qui consiste à négliger la genèse des contraintes résiduelles qui sont issue d'un gradient de température entre deux zones distinctes de la pièce (Figure V.11).

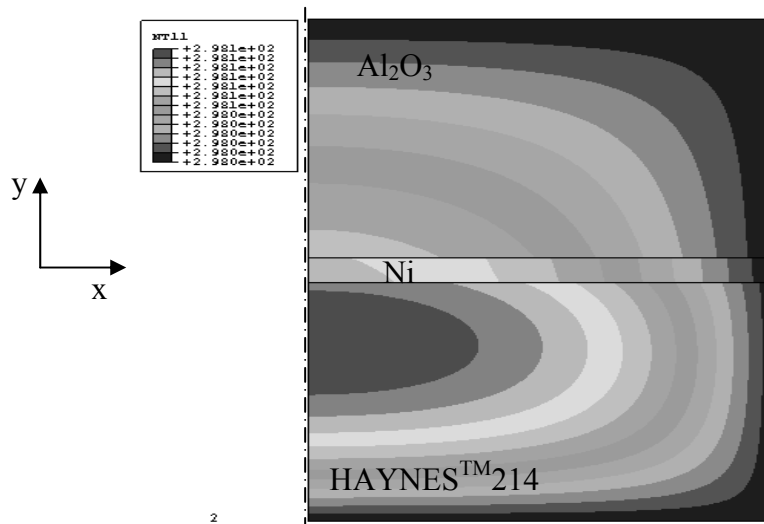


Figure V.11 : Cartographie des courbes isothermes lors du refroidissement d'un assemblage  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214^{\text{®}}$  à  $150\text{ }^{\circ}\text{C}/\text{h}$ .

Les constantes élastiques  $E$  et  $\nu$ , la limite d'élasticité  $\sigma_y$ , les coefficients d'expansion thermique  $\alpha$  ainsi que les paramètres de fluage  $A$  et  $n$  pour chaque matériau en fonction de la température ont été nécessaires pour la simulation (cf. Chapitre III, Tableaux III.2, 4 et 9).

Les propriétés thermomécaniques permettent de décrire les hypothèses de calcul retenues pour chaque matériau. La plupart sont extraites de la littérature, certaines ont pu faire l'objet d'expérimentation [22]. L'absence d'information sur les constantes

élastiques  $v_{\text{Al}_2\text{O}_3}$ ,  $v_{\text{Ni}}$  et  $v_{\text{Haynes214}}$  nous a obligé à les considérer comme indépendantes de la température.

Lors de la mise en données du calcul, nous avons considéré deux modèles :

- 1- Le modèle élasto-plastique où la céramique est considérée fragile, son comportement est supposée purement élastique (pas de limite d'élasticité). Le nickel et le superalliage  $\text{HAYNES}^{\text{TM}}214^{\text{®}}$  sont ductiles, leurs limites d'élasticité évoluent avec la température.
- 2- Le modèle élasto-visco-plastique où la céramique est aussi supposée purement élastique. Le nickel et le superalliage  $\text{HAYNES}^{\text{TM}}214^{\text{®}}$  sont ductiles, leurs limites élastiques évoluent avec la température et leurs déformations sont dépendantes du temps.

Nous avons tout le temps supposé que l'alumine a un comportement élastique. Les cartes de déformation de l'alumine pour une taille de grain de  $10\ \mu\text{m}$  (Figure V.12), qui correspondaient parfaitement aux caractéristiques mécaniques de notre alumine montrent que le fluage débute à des températures supérieures à  $0.5 T_f$  soit  $\sim 1160\ \text{°C}$ . Nous pouvons donc considérer que pour des températures inférieures à  $1160\ \text{°C}$ , ce qui est le cas dans nos assemblages, les déformations de l'alumine sont négligeables par rapport au nickel et l'alliage et que la déformation imposée lors du refroidissement est alors entièrement prise en compte par le nickel et le  $\text{HAYNES}^{\text{TM}}214^{\text{®}}$ .

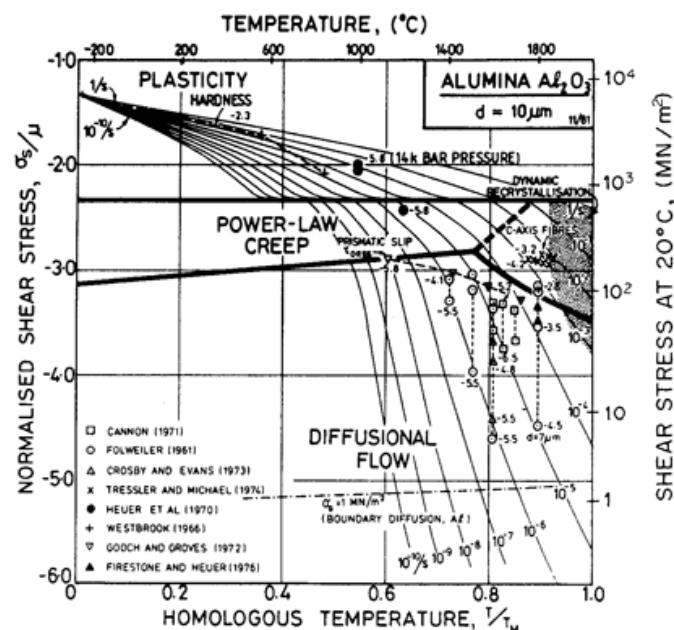


Figure V. 12 : Carte de déformation de l'alumine [22].

## V.7. APPROCHE CALCULATOIRE

### V.7.1. Approche élasto-plastique

Le premier modèle utilisé dans le calcul des contraintes résiduelles dans notre travail est un modèle élasto-plastique appliqué à un phénomène thermomécanique. Le modèle continu est utilisé afin de calculer les déformations et les contraintes développées dans

$\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{Al}_2\text{O}_3$  et  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214^{\text{®}}$  lors du refroidissement depuis la température de 1150 °C vers la température ambiante. Un refroidissement uniforme est appliqué (i.e., pas de gradient thermique), et les propriétés des matériaux sont indépendantes du temps (i.e., pas du fluage).

La solution numérique est obtenue en utilisant le code *ABAQUS 6.6.1*, logiciel de simulation numérique qui utilise l'approche en éléments finis (EF) afin d'obtenir les solutions des équations différentielles partielles de l'équilibre de la forme lagrangienne. Le comportement plastique des matériaux implique une réponse non linéaire. La solution est obtenue après un certain nombre d'incréments suivi de plusieurs itérations afin d'obtenir l'équilibre. Approximativement 85 incrémentes ont été suffisants pour résoudre le calcul dans le cas de la liaison  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214^{\text{®}}$  et 30 incrémentes dans le cas du  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{Al}_2\text{O}_3$ . Dans toute la simulation nous avons utilisé des éléments de second ordre quadratiques avec intégration réduite. Dans notre analyse nous avons supposé que les contraintes étaient planes.

Nous avons analysé par la méthode des éléments finis la répartition des contraintes résiduelles et leurs intensités dans les couples  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{Al}_2\text{O}_3$  et  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214$ . Pour des raisons de symétrie de géométrie de ses couples, nous avons étudié le quart de l'échantillon du bimatériau dans le cas de la liaison symétrique ( $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{Al}_2\text{O}_3$ ) et la moitié de l'échantillon dans le cas de la liaison non symétrique ( $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214$ ). L'analyse de ces contraintes a été faite sur le bord libre de l'échantillon selon la direction 1 (figure V.13). Pour une épaisseur de céramique égale à celle de l'alliage (5mm), un joint de nickel de 0.2 mm et le cycle thermique de la figure V.8.

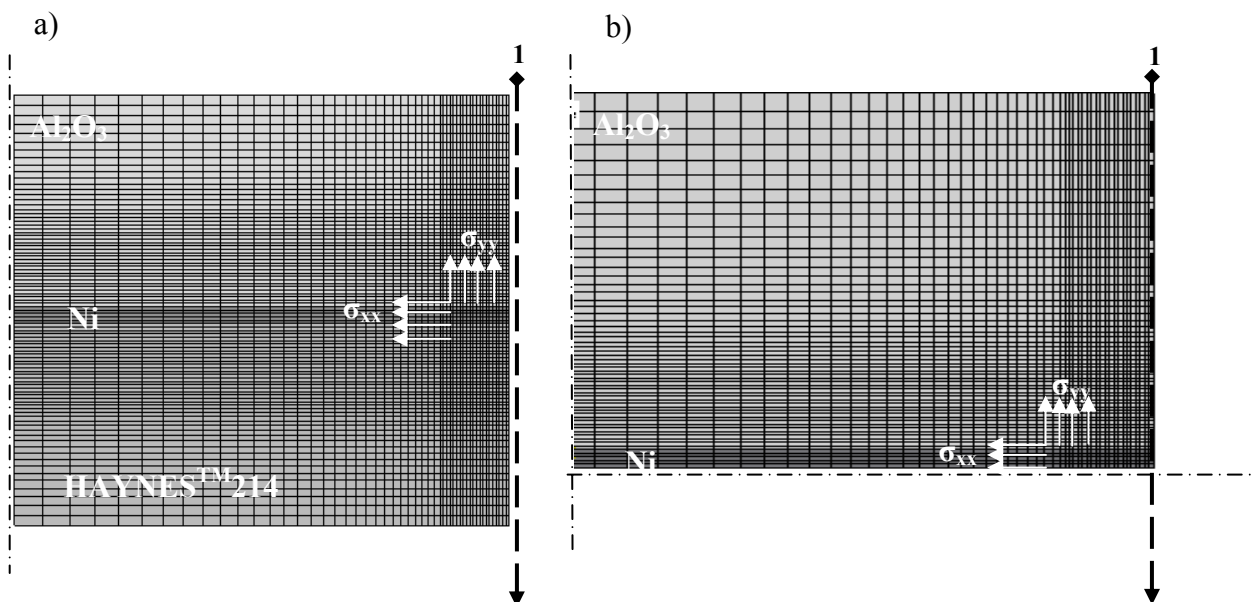


Figure V. 13 : Représentation schématique des deux configurations d'assemblages métal/céramique étudiées avec la direction des contraintes par rapport à l'interface,  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214$  b)  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{Al}_2\text{O}_3$ .

Les résultats ainsi obtenus sont représentés sur les figures V.14, 15 et 16. Ces figures illustrent respectivement la variation des contraintes résiduelles parallèles ( $\sigma_{xx}$ ), perpendiculaires ( $\sigma_{yy}$ ) et de cisaillement ( $\sigma_{xy}$ ) des multimatériaux  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{Al}_2\text{O}_3$  et

$\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214$ , en fonction de la distance à l'interface, pour la direction 1 (cf. figure V.13).

L'analyse de la figure V.14 montre que, quelle que soit la nature du couple, les contraintes résiduelles parallèles  $\sigma_{xx}$  sont fortement localisées au niveau de l'interface au bord libre de l'assemblage. Ces contraintes sont positives dans la céramique et négatives dans le métal.

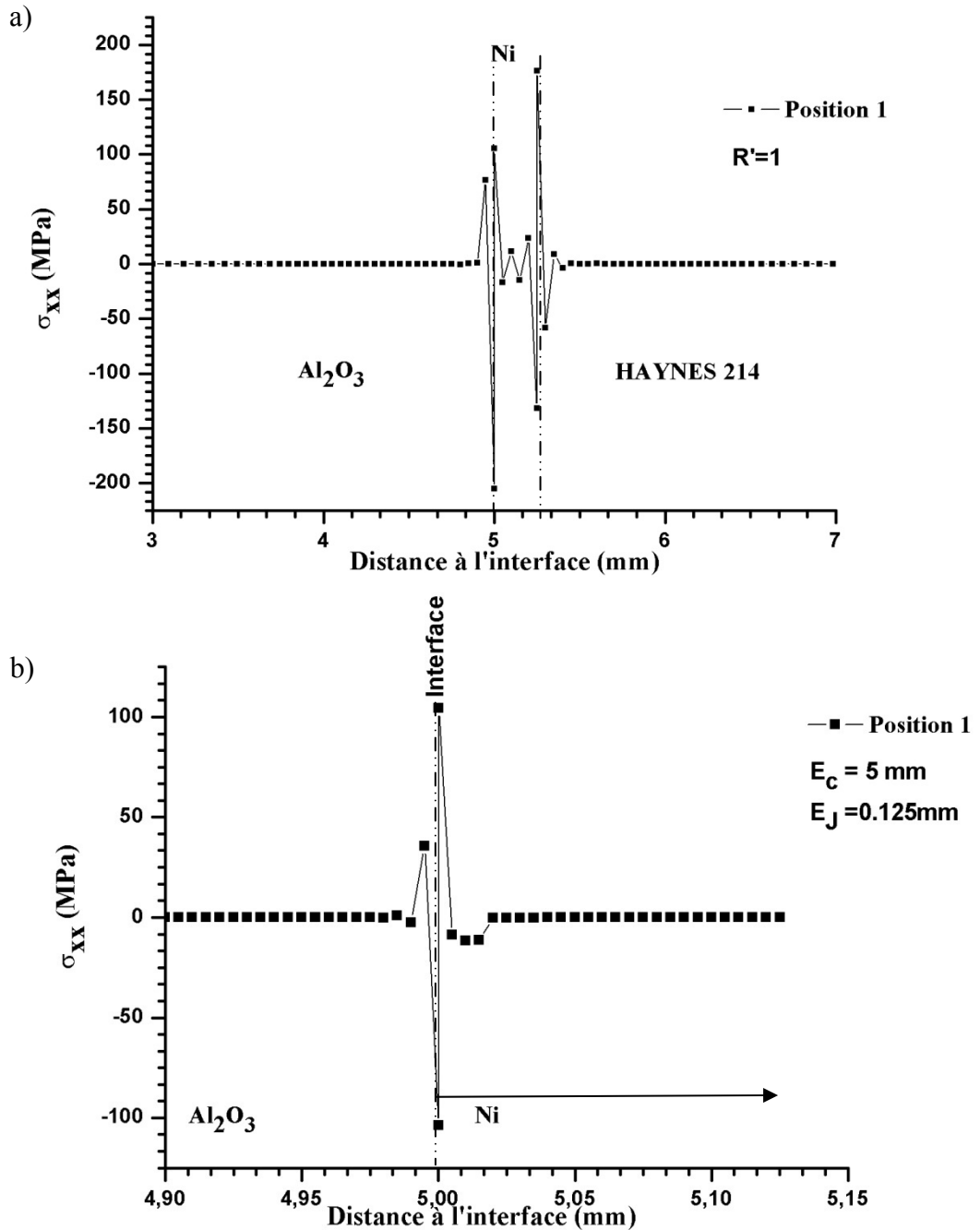


Figure V. 14: Variation des contraintes parallèles  $\sigma_{xx}$  en fonction de la distance à l'interface en mode élasto-plastique a)  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214$  b)  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{Al}_2\text{O}_3$ .



Sur les figures V.15 nous avons illustré la variation des contraintes résiduelles normales  $\sigma_{yy}$  dans les deux couples  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{Al}_2\text{O}_3$  et  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214$  respectivement. Notons que ces contraintes ont été déterminées perpendiculairement à l'interface.

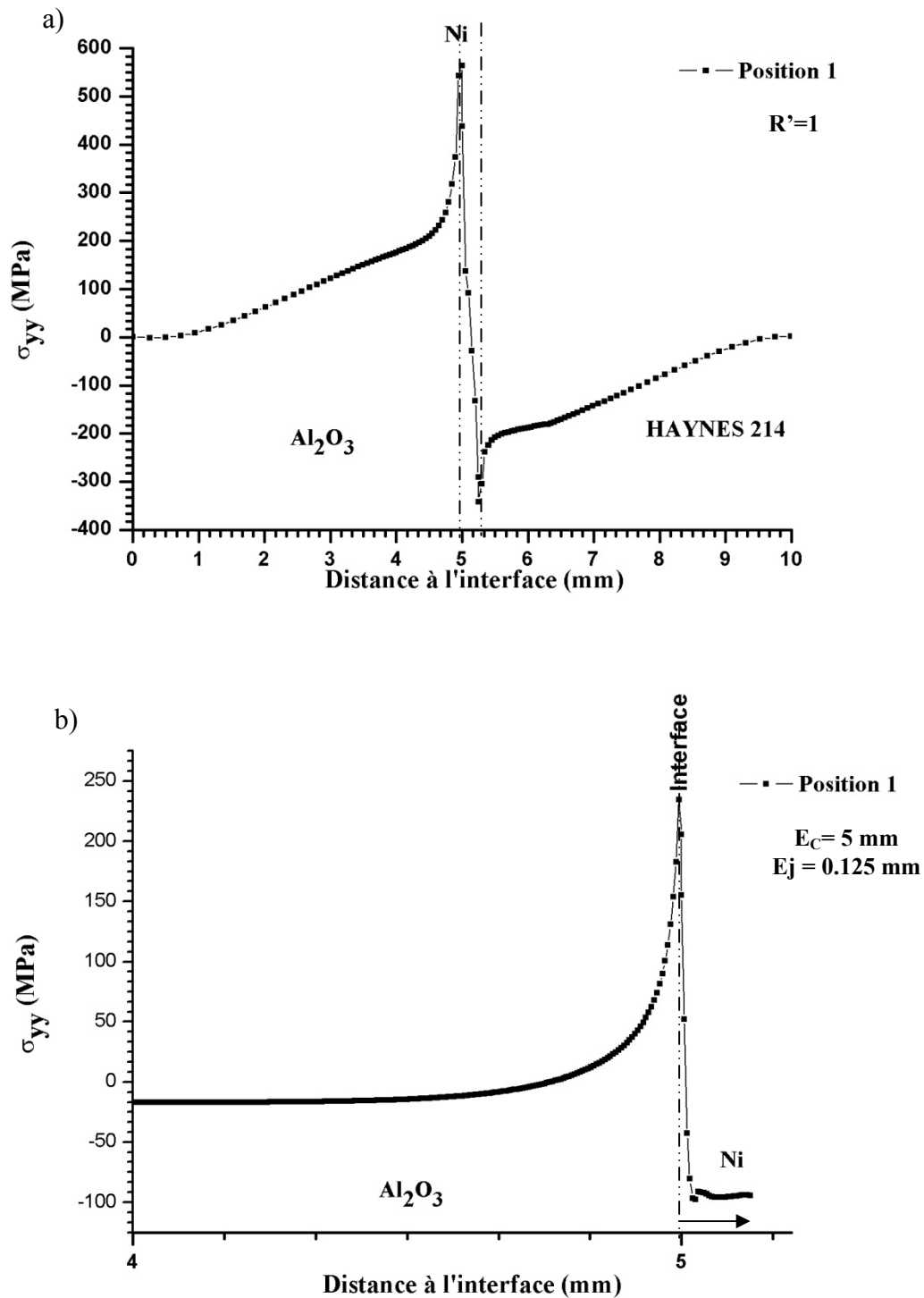


Figure V. 15: Variation des contraintes normales  $\sigma_{yy}$  en fonction de la distance à l'interface en mode élasto-plastique a)  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214$  b)  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{Al}_2\text{O}_3$ .

Les figures V.15a et b montrent clairement que comparativement aux contraintes parallèles  $\sigma_{xx}$ , les contraintes normales  $\sigma_{yy}$  sont d'une intensité plus forte. Elles sont plus

importantes au voisinage de l'interface, près du bord de l'assemblage. L'assemblage Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ni/HAYNES™214 donne naissance à des contraintes plus élevées (> 550 MPa) que l'assemblage Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ni/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (> 230 MPa). De part leurs amplitudes, les contraintes résiduelles normales  $\sigma_{yy}$  restent fortes et peuvent constituer un risque d'endommagement des multimatériaux. Ce comportement est observé quel que soit le couple étudié.

Pour une analyse complète des états de contraintes résiduelles, nous avons déterminé la distribution des contraintes de cisaillement  $\sigma_{xy}$ . Les résultats obtenus sont représentés sur la figure V.16 pour les couples Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ni/HAYNES™214® et Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ni/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.

L'analyse de cette figure montre que ces contraintes sont peu intenses par rapport aux contraintes parallèles ( $\sigma_{xx}$ ) et normales ( $\sigma_{yy}$ ). Proche ou loin de l'interface elles présentent une faible amplitude. Nous notons cependant que cette amplitude est plus forte au bord qu'au centre de la jonction. Ce comportement est observé quelle que soit la nature des couples. Cependant l'assemblage Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ni/HAYNES™214® crée des contraintes internes plus significatives que celles engendrées dans l'assemblage Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ni/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.

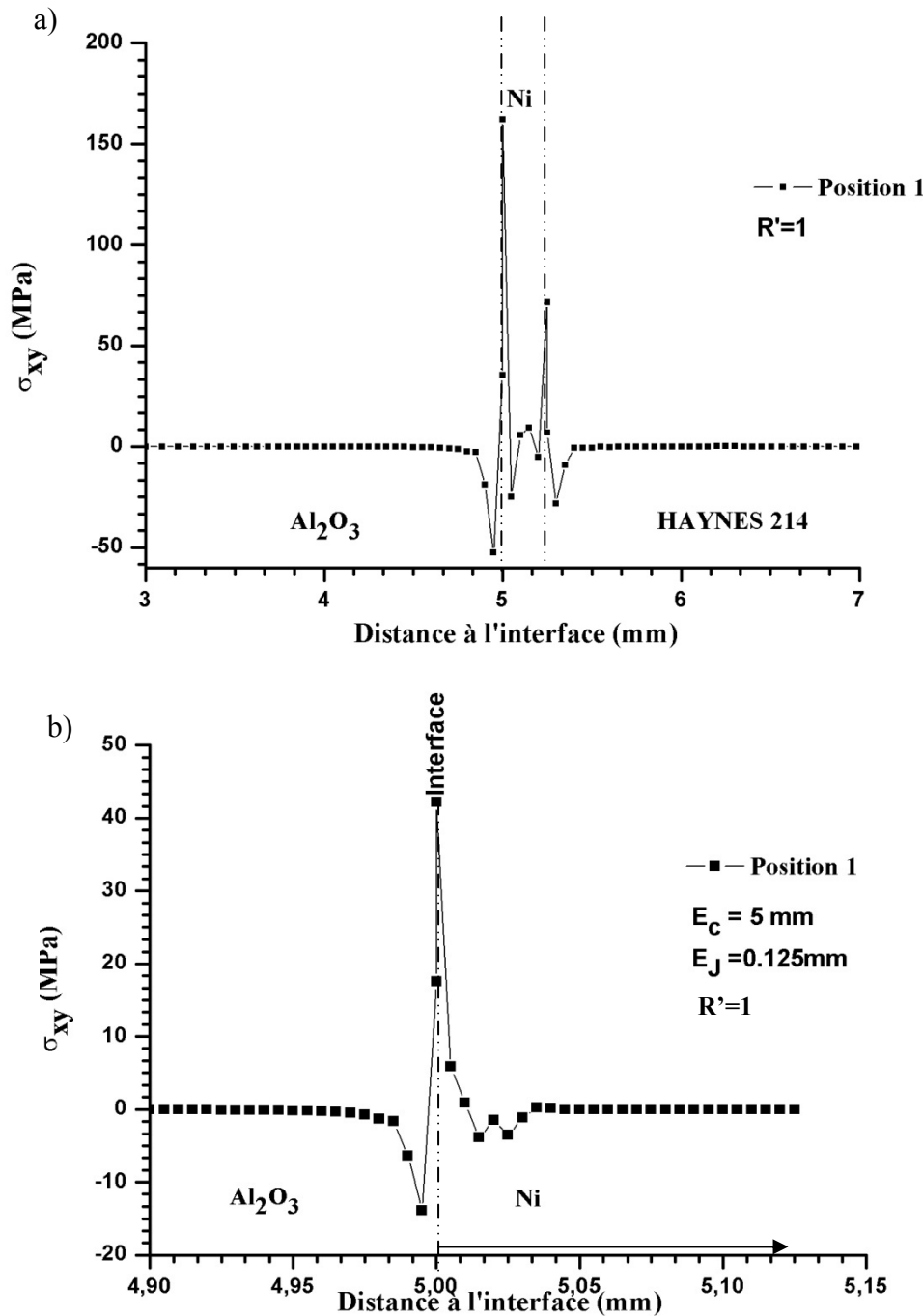
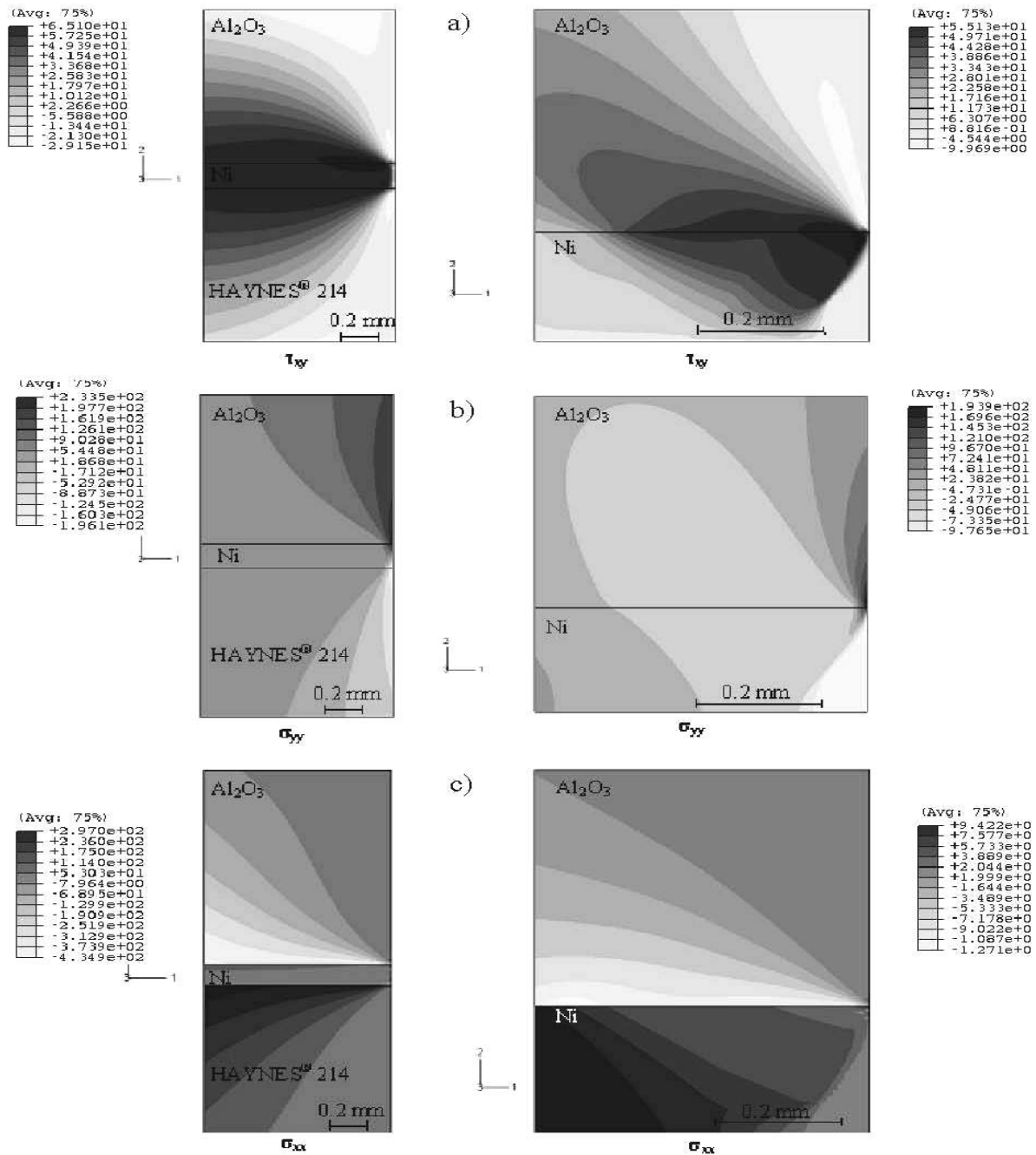


Figure V. 16: Variation des contraintes de cisaillement  $\sigma_{xy}$  en fonction de la distance à l'interface en mode élasto-plastique a)  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214$  b)  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{Al}_2\text{O}_3$ .

### V.7.2. Approche élasto-visco-plastique

La géométrie et les conditions sont les mêmes que pour le modèle élasto-plastique. Dans notre cas et pour les assemblages  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214^{\text{®}}$  nous avons trouvé des contraintes selon le modèle élasto-plastique très élevées. Dans certains cas les contraintes dépassent la limite de rupture en traction de la céramique ( $\approx 450 \text{ MPa}$ ). Il semble donc qu'un calcul en modèle élasto-visco-plastique soit plus réaliste.

La figure V.17 montre la cartographie de la répartition des contraintes résiduelles dans les deux systèmes étudiés :  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{Al}_2\text{O}_3$  et  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214^{\text{®}}$  pour les trois composantes de la contrainte. (i)  $\sigma_{yy}$  contrainte normale à l'interface, (ii)  $\sigma_{xx}$  la contrainte parallèle à l'interface et  $\sigma_{xy}$  contrainte de cisaillement dans le plan des contraintes planes. Ces représentations donnent un aperçu global du niveau de contraintes résiduelles. On remarque que la céramique est globalement en compression, ce qui est bénéfique pour sa tenue mécanique. En revanche, on note la présence d'une zone en très forte tension située près du bord libre de la céramique. Une exploitation précise des résultats est plus aisée à partir du tracé de coupes choisies.



L'analyse des contraintes résiduelles a été faite sur plusieurs positions de l'échantillon numérotées par 1,2,3 et 4 (figure V.18).

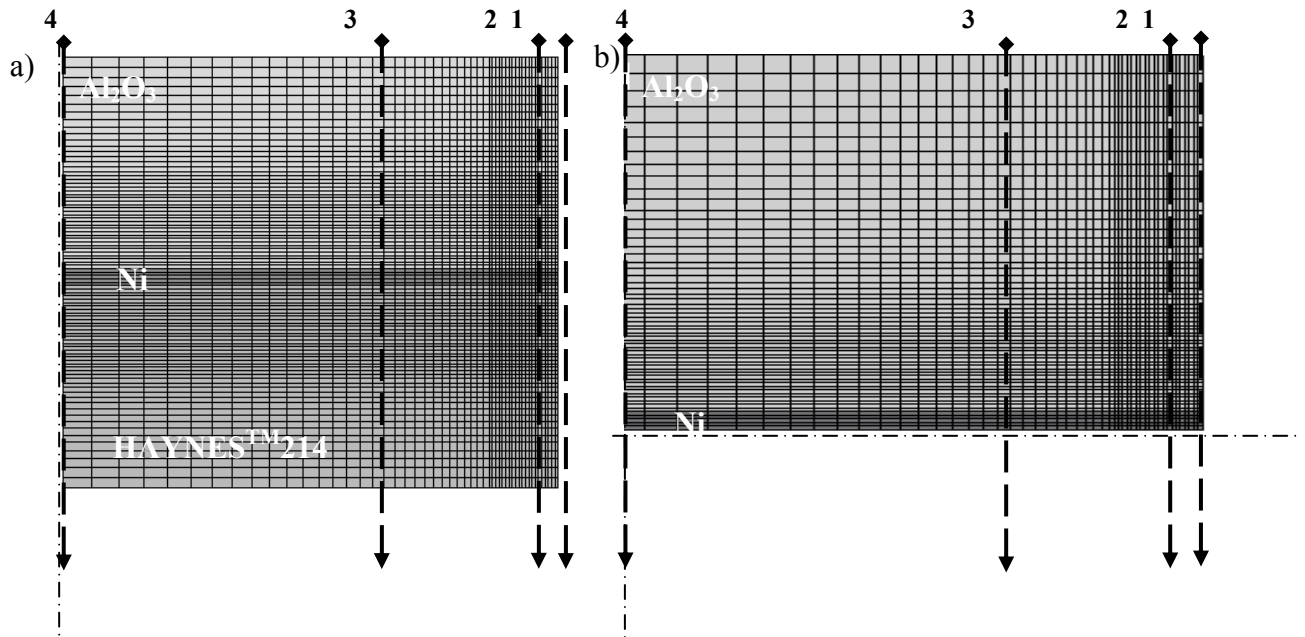


Figure V.18 : Représentation schématique des deux configurations d'assemblages métal/céramique étudiées, a)  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214$  b)  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{Al}_2\text{O}_3$ .

La figure V.19a montre que dans le cas de la liaison  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214$  les contraintes parallèles  $\sigma_{xx}$  sont en traction dans la céramique et en compression dans l'alliage sur le bord libre de l'assemblage. Au fur et à mesure qu'on s'éloigne du bord, ces contraintes changent de signe. Elles augmentent en valeur absolue, montrant ainsi que la céramique est bien globalement en compression et l'alliage en traction. Même constatation pour le système  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{Al}_2\text{O}_3$ .

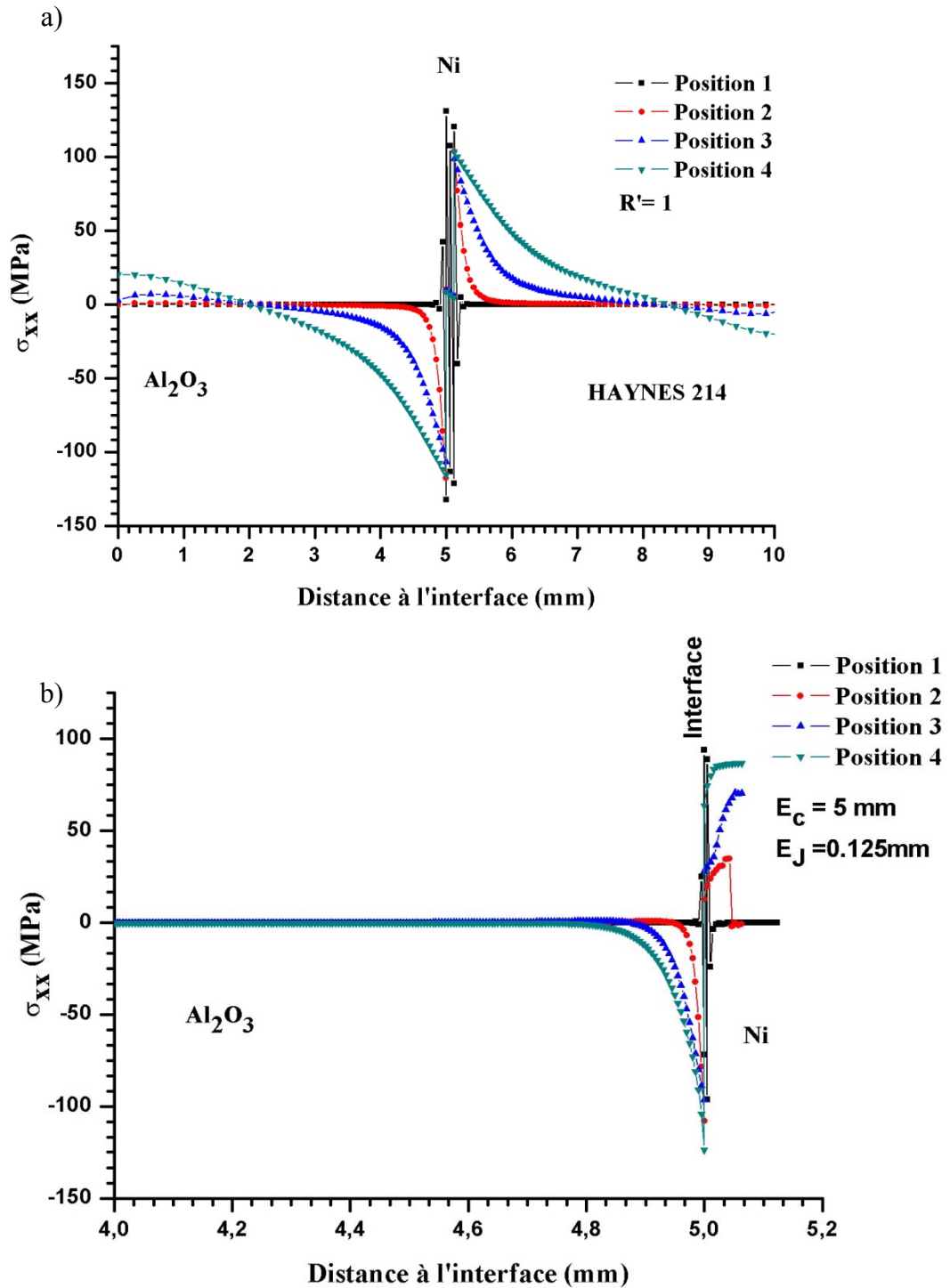


Figure V. 19 : Variation des contraintes parallèles  $\sigma_{xx}$  en fonction de la distance à l'interface en mode élasto-visco-plastique selon les directions 1,2,3 et 4 (cf. Figure V.18),  
 a)  $Al_2O_3/Ni/HAYNES^{TM}214$  b)  $Al_2O_3/Ni/Al_2O_3$ .

Dans la figure V.20a nous avons représenté la distribution des contraintes normales  $\sigma_{yy}$  de l'assemblage  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214$ , dans les différentes directions citées ci-dessus. On remarque qu'au bord de la jonction les valeurs des contraintes sont fortement en tension ( $\approx 233$  MPa, Position 1). Loin du bord les contraintes  $\sigma_{yy}$  tendent à s'annuler. Alors, que dans le cas de l'assemblage  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{Al}_2\text{O}_3$  la traction est observée seulement sur le bord libre de la jonction (Position 1) (Figure V.20b).

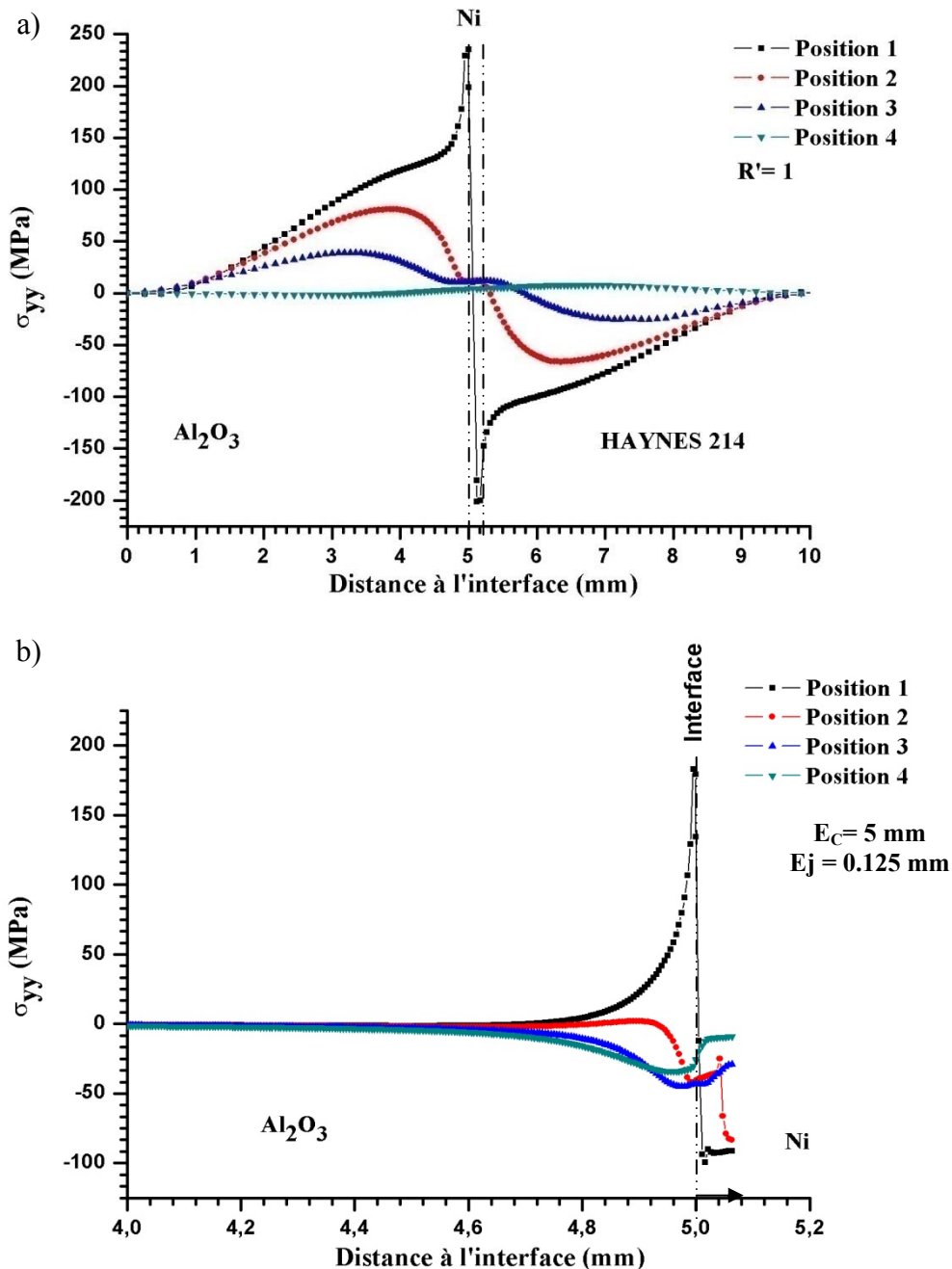


Figure V. 20: Variation des contraintes normales  $\sigma_{yy}$  en fonction de la distance à l'interface en mode élasto-visco-plastique selon les directions 1,2,3 et 4 (cf. Figure V.18),  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214$  b)  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{Al}_2\text{O}_3$ .

L'exploitation des résultats des courbes de cisaillement montre que la céramique et l'alliage (HAYNES<sup>TM</sup>214) présentent des contraintes négatives alors que dans le joint de nickel les contraintes sont positives (Figure V.21a - position 1). En s'éloignant du bord, les valeurs de ces contraintes augmentent en valeurs absolue.

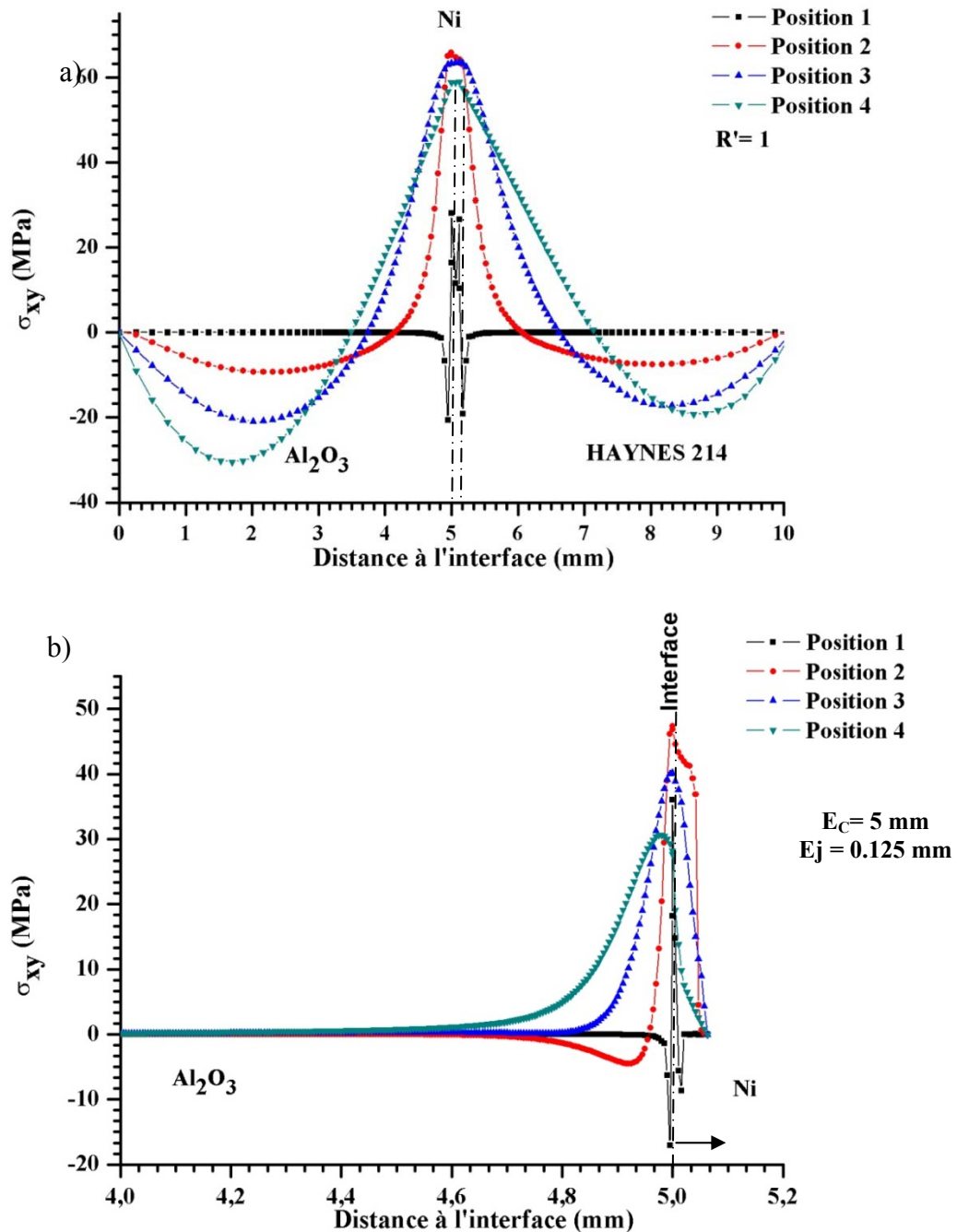


Figure V. 21: Variation des contraintes de cisaillement  $\sigma_{xy}$  en fonction de la distance à l'interface en mode élasto-visco-plastique selon les directions 1,2,3 et 4 (cf. Figure V.18),  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214$  b)  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{Al}_2\text{O}_3$ .



Dans le cas de l'assemblage  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{Al}_2\text{O}_3$  la céramique est en compression seulement dans les régions proches du bord libre (Position 1 et 2). Elle passe des contraintes positives au contraintes négatives (Position 3 et 4) (Figure V.21).

## V.8. COMPARAISON ENTRE LES DEUX MODÈLES DE CALCULS

Les résultats obtenus entre les différents modes de calcul montrent que dans le cas des assemblages  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{Al}_2\text{O}_3$  le calcul en élasto-visco-plastique ne donne pas une grande différence par rapport au calcul en mode élasto-plastique. Alors que dans le cas des assemblages  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214^{\text{®}}$ , la différence existe et cela est dû essentiellement au fluage de l'alliage et du joint de nickel. Une différence de l'ordre de 300 MPa en contrainte  $\sigma_{yy}$  entre le calcul élasto-plastique et élasto-visco-plastique est observée (Figure V.22).

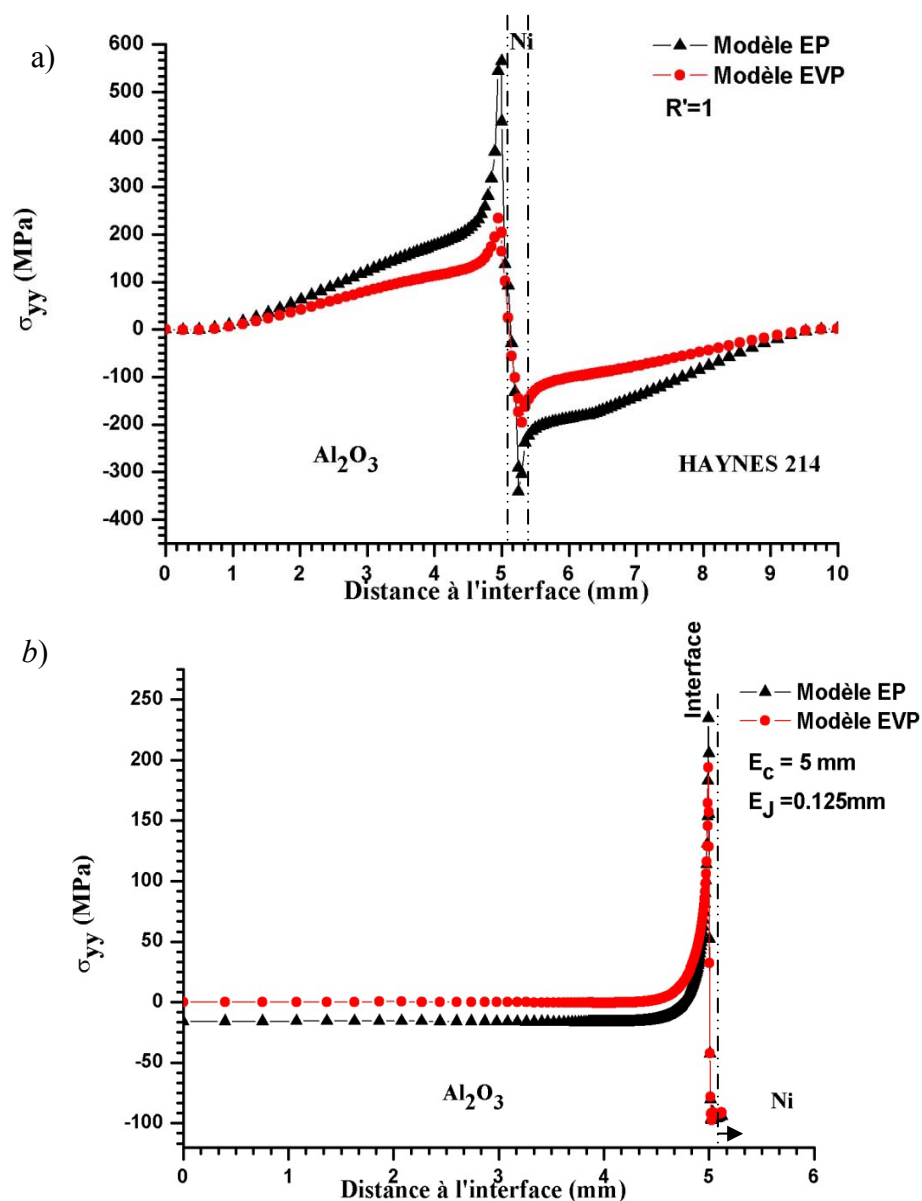


Figure V. 22: Comparaison entre les deux modèles de calculs (EP et EVP) sur le bord libre de l'assemblage. a)  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214$  b)  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{Al}_2\text{O}_3$ .

Le tableau V.4 donne une analyse complète des états de contraintes résiduelles pour trois lois de comportement ; élastique (E), élasto-plastique (EP) et élasto-visco-plastique (EVP) pour les deux systèmes étudiés.

	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> HAYNES <sup>TM</sup> 214 <sup>®</sup> E <sub>Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub></sub> :5mm E <sub>Ni</sub> : 0.25mm E <sub>Haynes214</sub> :5mm Elasto-plastique	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> HAYNES <sup>TM</sup> 214 <sup>®</sup> E <sub>Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub></sub> :5mm E <sub>Ni</sub> : 0.25mm E <sub>Haynes214</sub> :5mm Elasto-visco-plastique	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> E <sub>Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub></sub> :5mm E <sub>Ni</sub> : 0.25mm E <sub>Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub></sub> :5mm Elastique	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> E <sub>Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub></sub> :5mm E <sub>Ni</sub> : 0.25mm E <sub>Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub></sub> :5mm Elasto-plastique	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> E <sub>Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub></sub> :5mm E <sub>Ni</sub> : 0.25mm E <sub>Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub></sub> :5mm Elasto-visco-plastique
<b>CONTRAINTES RÉSIDUELLES EN MPa</b>					
$\sigma_{\min-xx} =$	-617,7	-113,6	-643,7	-103,9	-96,3
$\sigma_{\max-xx} =$	367,7	93,1	512,3	104,3	93,9
$\sigma_{\min-yy} =$	-342,2	-196,2	-1320	-97,6	-97,6
$\sigma_{\max-yy} =$	583,4	233,5	589,4	234,4	193,8
$\sigma_{\min-xy} =$	-52,3	-8,3	-70,4	-14,21	-9,8
$\sigma_{\max-xy} =$	162,3	42,5	392,8	42,2	34,2

Tableau V.4 : Comparaison entre les différents modèles de calcul pour les systèmes Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ni/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> et Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ni/HAYNES<sup>TM</sup>214<sup>®</sup>.

## V.9. PARAMÈTRES INFLUENÇANT LES CONTRAINTES RÉSIDUELLES

Après avoir souligné l'influence de la loi de comportement choisi sur la valeur des contraintes résiduelles, un autre paramètre peut jouer un rôle prépondérant : la géométrie des matériaux constitutifs de l'assemblage. Pour cela nous avons pris en considération ce paramètre en simulation numérique afin d'optimiser les assemblages.

### V.9.1. Influence de l'épaisseur du joint ou du rapport $R = E_j / l$

L'examen des différents résultats obtenus montre clairement que le niveau des contraintes résiduelles change en fonction de l'épaisseur  $E_j$  du joint en nickel ainsi que du rapport  $R$  défini comme le rapport de l'épaisseur du joint «  $E_j$  » sur la longueur du contact «  $l$  » dans les deux types d'assemblage (Figure V.23).

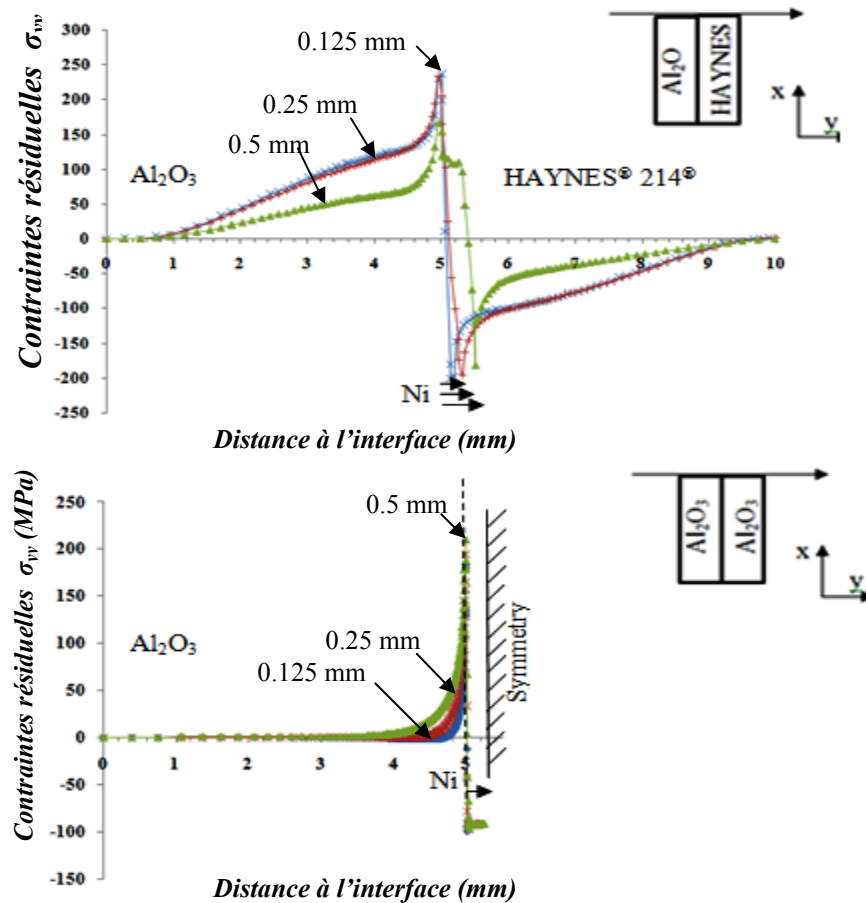


Figure V.23 : Prédiction de la variation de la contrainte normale  $\sigma_{yy}$  avec l'épaisseur du joint (0.125, 0.25, 0.5 mm) pour les deux systèmes  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{Al}_2\text{O}_3$  or  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{HAYNES}^{\text{®}}214$ , en mode élasto-visco-plastique pour une épaisseur de céramique et d'alliage de 5 mm.

Pour le cas du système  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214^{\text{®}}$  les faibles épaisseurs du joint conduisent à de fortes valeurs de contraintes, essentiellement en  $\sigma_{yy}$ . L'optimum des contraintes est obtenu pour une épaisseur de l'ordre de 0.5 mm. Alors que le comportement de l'assemblage  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{Al}_2\text{O}_3$  se comporte en sens inverse. Ce dernier se caractérise par une diminution des contraintes pour des épaisseurs faibles de joint. Pour notre cas, l'optimum est alors obtenu pour une épaisseur du joint de nickel de l'ordre de 0.125 mm (Figure V.23).

La dimension des pièces jouent aussi un rôle important. Cette dernière a une influence directe sur l'intensité des contraintes résiduelles et elle est lié en particulier au rapport de la longueur du contact « l » (ou diamètre « d ») sur l'épaisseur du joint «  $E_j$  ». Un rapport  $R = E_j/l$  important conduit à des contraintes élevées dans le cas du  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{Al}_2\text{O}_3$  et plus faibles dans le cas du  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214^{\text{®}}$  (Figure V.24).

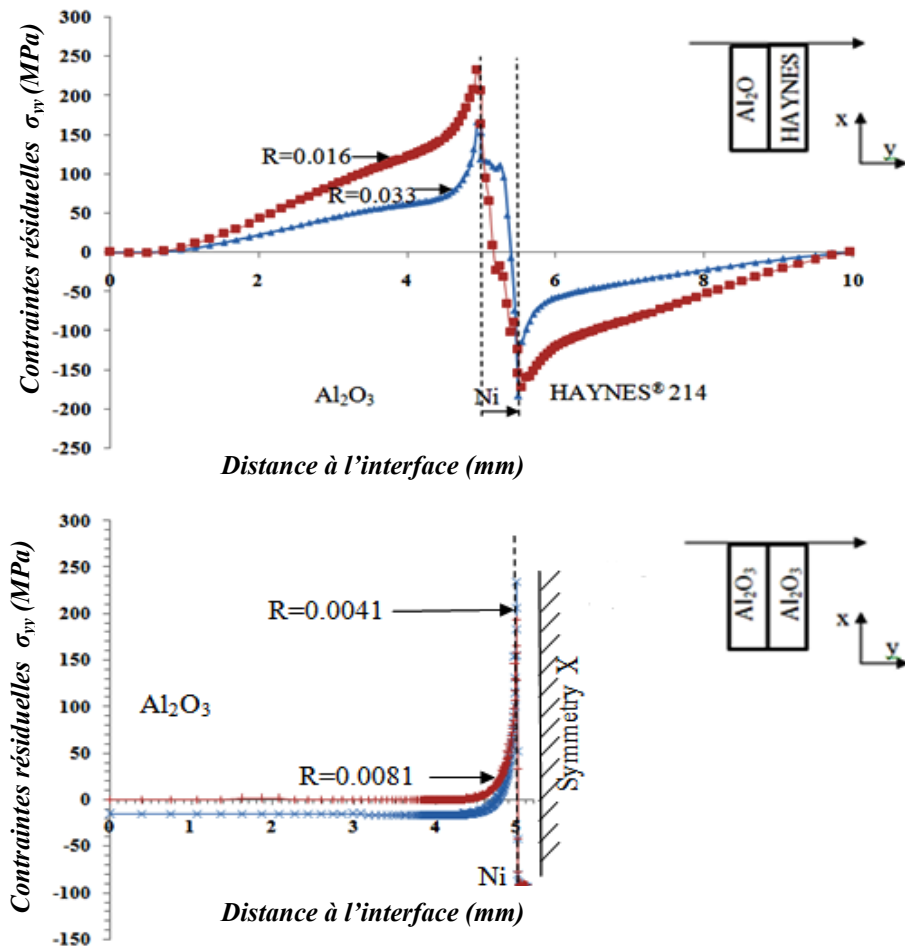


Figure V. 24: Prédiction de la variation de la contrainte normale  $\sigma_{yy}$  avec le rapport  $R = l/Ej$  pour les deux systèmes étudiés  $Al_2O_3/Ni/Al_2O_3$  et  $Al_2O_3/Ni/HAYNES^{TM}214^{\circ}$  en mode élasto-visco-plastique.

L'analyse complète des états de contraintes résiduelles en fonction de l'épaisseur du joint et le paramètre R est illustrée dans le tableau ci-dessous :

Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>
HAYNES <sup>TM</sup> 214 <sup>®</sup>	HAYNES <sup>TM</sup> 214 <sup>®</sup>	HAYNES <sup>TM</sup> 214 <sup>®</sup>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>
E <sub>Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub></sub> :5mm E <sub>Ni</sub> : 0.125mm E <sub>Haynes214</sub> :5mm R = 0.0083	E <sub>Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub></sub> :5mm E <sub>Ni</sub> : 0.25mm E <sub>Haynes214</sub> :5mm R = 0.016	E <sub>Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub></sub> :5mm E <sub>Ni</sub> : 0.5mm E <sub>Haynes214</sub> :5mm R = 0.033	E <sub>Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub></sub> :5mm E <sub>Ni</sub> : 0.125mm  R = 0.0083	E <sub>Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub></sub> :5mm E <sub>Ni</sub> : 0.25mm  R = 0.016	E <sub>Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub></sub> :5mm E <sub>Ni</sub> : 0.5mm  R = 0.033
Elasto-visco-plastique	Elasto-visco-plastique	Elasto-visco-plastique	Elasto-visco-plastique	Elasto-visco-plastique	Elasto-visco-plastique
<b>CONTRAINTES RÉSIDUELLES EN MPa</b>					
$\sigma_{\min-xx}=131,2$ $\sigma_{\max-xx}=-131$	93,1 -113,6	92,6 -125,1	86,8 -123,7	93,9 -96,4	86,6 -94,74
$\sigma_{\min-yy}=235,2$ $\sigma_{\max-yy}=-201$	233,5 -196,1	166,4 -182,6	183,1 -99,4	193,8 -97,64	210,2 -95,9
$\sigma_{\min-xy}=28,1$ $\sigma_{\max-xy}=-20,6$	42,4 -8,3	20,9 -25,5	35,9 -17,1	42,4 -8,32	36,8 -10,1

Tableau V.5 : Influence de l'épaisseur du joint et du rapport  $R=Ej/l$  sur les contraintes résiduelles pour les deux systèmes étudiés Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ni/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> et Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ni/HAYNES<sup>TM</sup>214<sup>®</sup>.

Les résultats obtenus montrent clairement que quelle que soit l'épaisseur du joint ou le rapport R défini, la céramique reste toujours en tension près du bord libre de la liaison alors que le joint en nickel ou l'alliage est en compression. Il est à noter que le joint du nickel permet d'adapter les contraintes entre la céramique et l'alliage (Figure V.24). L'optimum des résultats est obtenu pour  $R = 0.033$  dans le cas de l'assemblage Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ni/HAYNES<sup>TM</sup>214<sup>®</sup> et  $R = 0.0083$  dans le cas de l'assemblage Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ni/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.

**V.9.2. Influence du rapport  $R' = Ec/Ea$**

La figure V.25 et le tableau V.6 montrent clairement que, pour une épaisseur du joint constante ( $Ej = 0.125$  mm) les contraintes résiduelles dépendent de l'épaisseur de la céramique ou en toute rigueur du rapport épaisseur de la céramique sur l'épaisseur de l'alliage «  $R' = Ec/Ea$  ». Dans notre cas de figure, il est impératif d'avoir  $Ea > Ec$  pour minimiser les contraintes ( $R' < 1$ ). Les essais expérimentaux de cisaillement (cf. Chapitre V, Tableau V.2) vont dans le même sens que nos résultats numériques. L'optimum est obtenu dans le cas de la liaison Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ni/HAYNES<sup>TM</sup>214<sup>®</sup> pour  $R' = 0.06$ .

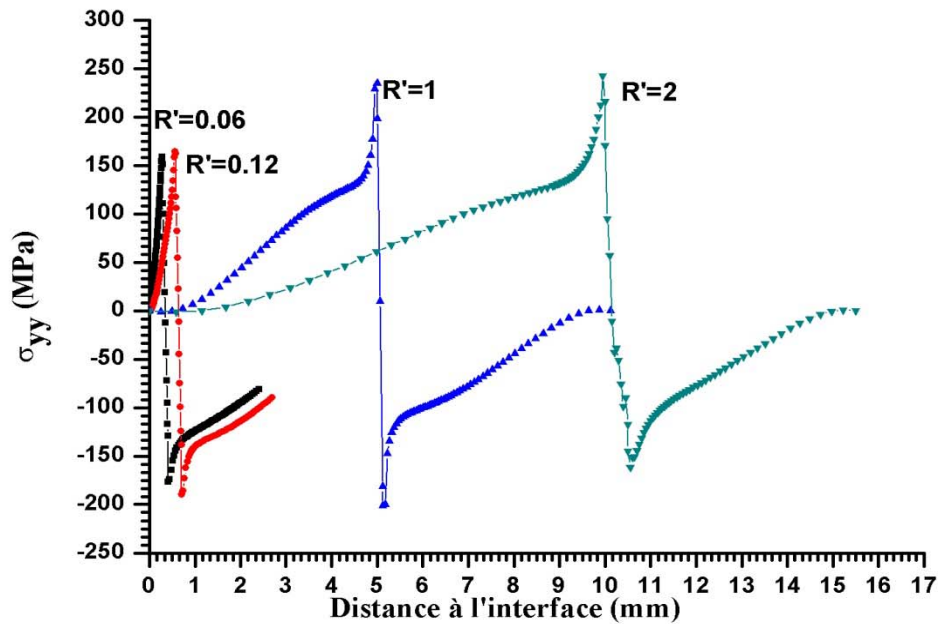


Figure V.25 : Prédiction de la variation de la contrainte normale  $\sigma_{yy}$  avec le paramètre  $R' = Ec/Ea$  (5mm) (0.06, 0.12, 1 et 2 mm) pour le système Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ni/HAYNES<sup>®</sup> 214<sup>TM</sup> en mode élasto-visco-plastique.

L'analyse complète des contraintes résiduelles est illustrée dans le tableau V.6.

Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>
$E_{Al_2O_3} : 0.3\text{mm}$ $E_{Ni} : 0.125\text{mm}$ $E_{Haynes214} : 5\text{mm}$ $R' = 0.06$	$E_{Al_2O_3} : 0.6\text{mm}$ $E_{Ni} : 0.125\text{mm}$ $E_{Haynes214} : 5\text{mm}$ $R' = 0.12$	$E_{Al_2O_3} : 5\text{mm}$ $E_{Ni} : 0.125\text{mm}$ $E_{Haynes214} : 5\text{mm}$ $R' = 1$	$E_{Al_2O_3} : 10\text{mm}$ $E_{Ni} : 0.125\text{mm}$ $E_{Haynes214} : 5\text{mm}$ $R' = 2$
Elasto-visco-plastique	Elasto-visco-plastique	Elasto-visco-plastique	Elasto-visco-plastique
<b>CONTRAINTES RÉSIDUELLES EN MPa</b>			
$\sigma_{\min-xx} = -121,7$ $\sigma_{\max-xx} = 77,1$	-132,3 131	-49,9 31,3	-68,9 33,7
$\sigma_{\min-yy} = -176,2$ $\sigma_{\max-yy} = 159,3$	-189,7 164,4	-201 235,2	-161,3 242,7
$\sigma_{\min-xy} = -8,4$ $\sigma_{\max-xy} = 32,1$	-20,6 28,2	-8,9 35,9	-11,3 52,1

Tableau V 6 : Influence du rapport  $R' = Ec/Ea$  sur les contraintes résiduelles pour le système Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ni/HAYNES<sup>TM</sup> 214<sup>®</sup>.

V.9.3. Influence de la géométrie ; cas d'une configuration Tube/joint/Tube

Des simulations numériques pour une configuration type Tube/joint/Tube de l'assemblage  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214^{\text{®}}$  ont été réalisées. Le calcul a été établi en respectant les conditions de symétrie du tube. Les mailles choisies sont de type DCAX4 (A 4-node linear axisymmetric heat transfer quadrilateral) dans le cas du chargement thermique et de type CAX4R (A 4-node bilinear axisymmetric quadrilateral, reduced integration) dans le cas du calcul des contraintes et des déformations au cours du chargement mécanique.

Les dimensions adoptées sont données dans le chapitre III (cf. Chapitre III, § III.6). La figure V.26 montre que dans le cas d'une configuration tube/tube, les contraintes normales  $\sigma_{yy}$  sont comme précédemment sensibles à l'épaisseur du joint. L'optimum est obtenu pour les épaisseurs les plus faibles  $E_j = 0.3$  mm. On remarque que l'ordre de grandeur de ces contraintes est plus faible que celui engendré par une géométrie prismatique ( $\sigma_{yy} = 120$  MPa et 233 MPa respectivement) (Figure V.27).

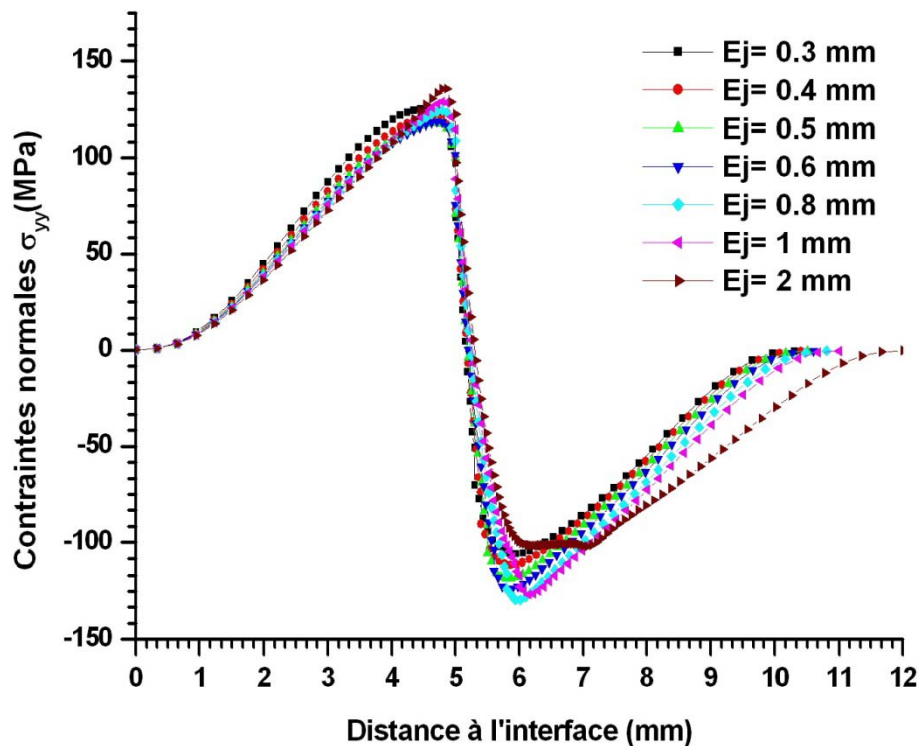


Figure V. 26: Variation des contraintes normales  $\sigma_{yy}$  en fonction de la distance à l'interface pour différentes épaisseurs de joint. Calcul en mode élasto-visco-plastique selon la direction 1 (cf. Figure V.18), cas d'une configuration tube/tube pour l'assemblage  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214$ .

La comparaison entre les profils des contraintes pour une configuration prismatique et une configuration tube/tube conduit à opter pour cette dernière. Le profil est doux et ne correspond pas à un changement brusque de signe.

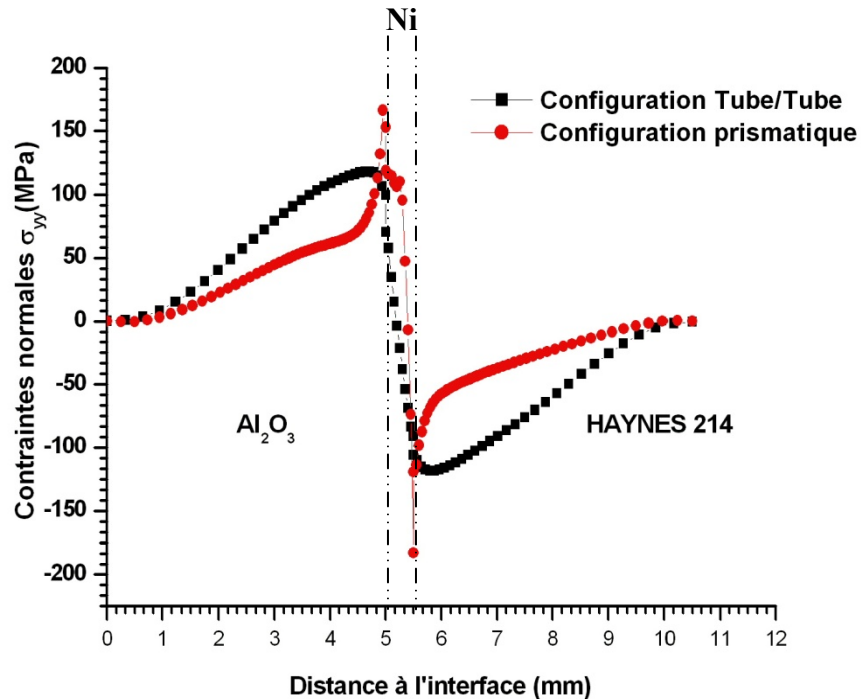


Figure V. 27: Variation des contraintes normales  $\sigma_{yy}$  en fonction de la distance à l'interface pour les deux types de configurations étudiées. Calcul en mode élasto-visco-plastique selon la direction 1 (cf. Figure V.18), cas d'une configuration tube/tube pour l'assemblage  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214$ .

Afin d'avoir une idée globale sur le tenseur des contraintes résiduelles réelles, nous avons réalisé une simulation numérique en 3D. La figure V.28 illustre le champ des contraintes résiduelles près de l'interface. Le calcul 3D a montré que le bord libre de l'assemblage est soumis à une contrainte normale de tension dans la céramique et de compression dans l'alliage. Ces contraintes sont concentrées au niveau de l'interface sur la périphérie du diamètre extérieur et inférieur du tube. Cette concentration de contraintes est due à la forte énergie de déformation plastique emmagasinée dans le volume des matériaux.

Les résultats obtenus dans le cas d'une simulation 3D sont du même ordre de grandeur que pour le cas de la simulation en 2D ( $\sigma_{yy}$  (3D) = 112 MPa,  $\sigma_{yy}$  (2D-axisymétrique) = 124 MPa). La faible différence entre les deux modèles est due essentiellement à la taille et à l'affinage des mailles. Le maillage 3D est moins fin dans la zone du point singulier (250  $\mu\text{m}$ ) que le maillage 2D (50  $\mu\text{m}$ ) afin de limiter le temps de calcul : le calcul 3D est destiné à obtenir le niveau global de contraintes et non pas à faire une analyse fine des contraintes.

Expérimentalement, nous avons réussi à réaliser des assemblages  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214$  type Tube/Tube avec succès en adaptant les dimensions proposées par l'IFP (cf. Chapitre III, Figure III.8).



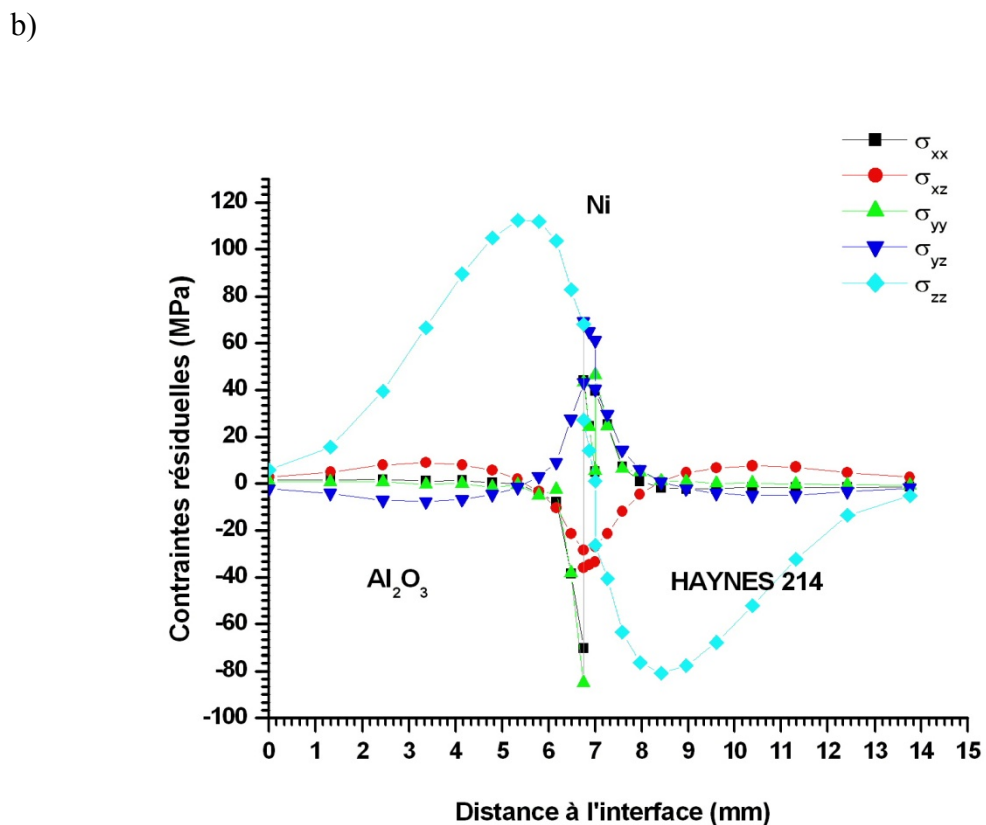
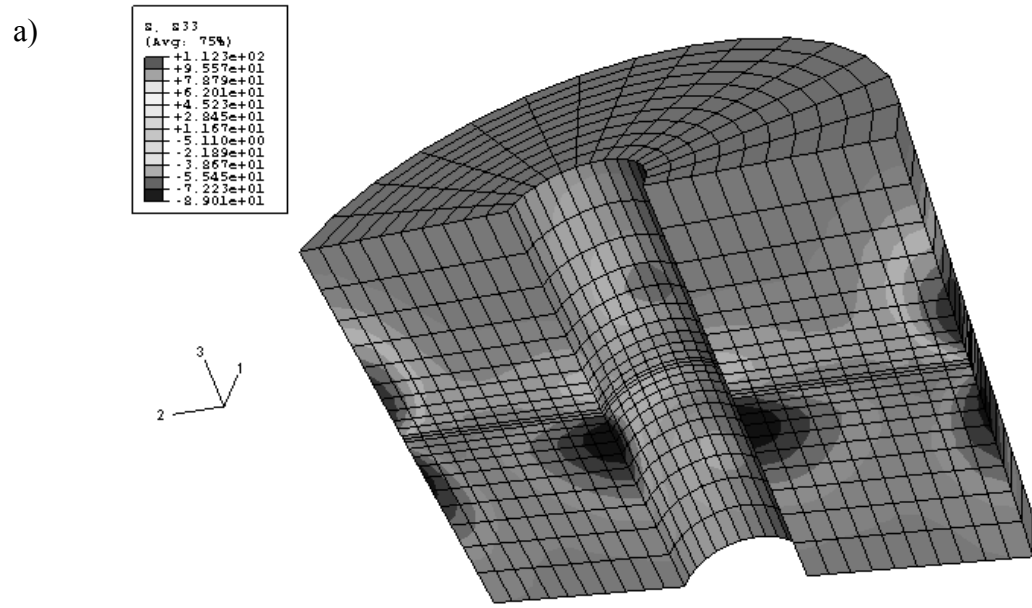


Figure V.28 : Variation de différentes contraintes en fonction de la distance à l'interface selon la direction 1, (cf. Figure V.18), cas d'une configuration tube/tube pour l'assemblage  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214^{\text{®}}$ . a) Cartographie de champ de contraintes normales  $\sigma_{zz}$ , b) variation du tenseur de contraintes en fonction de la distance à l'interface.

## V.10. RESULTATS ET DISCUSSION

L'intensité des contraintes résiduelles  $\sigma_{xx}$ ,  $\sigma_{yy}$ ,  $\sigma_{xy}$  et leur localisation près de l'interface de la jonction dépendent de plusieurs facteurs :

- la taille et la géométrie de l'assemblage ( $E_c$ ,  $E_a$ ,  $E_j$ ),
- les modules de Young des matériaux en présence,
- l'épaisseur et le taux d'écrouissage du métal [31],
- la différence des coefficients de dilatation thermique des matériaux à assembler et les paramètres de la thermocompression (pression appliquée, temps du palier, vitesse de refroidissement).

Nous avons en outre trouvé par la simulation numérique que la pression appliquée ( $5 \text{ MPa} < P < 20 \text{ MPa}$ ) n'a pas d'influence significative sur l'intensité des contraintes résiduelles. Il en va de même pour la durée du temps de palier. Or expérimentalement, ces paramètres jouent un rôle important [22] car certains paramètres ne sont pas pris en compte dans la simulation. Ainsi, nous avons remarqué, lors de la fabrication des assemblages, que l'application de la pression pendant tout le cycle thermique de la thermocompression conduit à la fissuration de la céramique près du bord libre de la jonction, alors que l'application de la pression seulement au début du palier et pendant le refroidissement permet d'éviter cette fissuration. La vitesse du refroidissement joue, elle aussi, un rôle important dans l'établissement de la liaison. La simulation numérique montre que pour des vitesses de refroidissement élevées ( $600 \text{ °C/h}$ ), les contraintes résiduelles sont plus intenses que pour le cas d'un refroidissement de  $150 \text{ °C/h}$ . Dans notre cas, on a opté pour la vitesse de refroidissement choisie par *Lourdin* [22] afin d'éviter le choc thermique des céramiques du four.

L'épaisseur du joint de nickel a un rôle prépondérant sur l'intensité des contraintes résiduelles et tout particulièrement sur les contraintes normales ( $\sigma_{yy}$ ). Dans le cas de la liaison symétrique Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ni/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, une augmentation de cette épaisseur conduit à une dilatation plus considérable suivant cet axe et donc à des contraintes plus intenses. Plus le rapport  $R = E_j/l$  est petit, plus la pression nécessaire à appliquer pour dépasser la limite d'élasticité est élevée. Pour de faibles valeurs de  $R$ , la distribution de contrainte appliquée n'est pas uniforme. L'adaptation est mauvaise. L'épaisseur de métal est insuffisante pour que cette distribution soit homogène. Par contre, pour de grandes valeurs de  $R$ , il se produit une grande déformation du joint qui permet une adaptation, mais en créant des défauts dans la céramique au cours du frottement d'où une fragilisation de la céramique. Ces deux extrêmes ne permettent pas d'obtenir une bonne liaison. Cette dernière peut être obtenue, pour des conditions de thermocompression qui entraînent une distribution de contrainte appliquée uniforme et des déformations soit plastiques, soit par fluage, suffisantes pour permettre d'obtenir une interface morphologiquement optimisée. Dans le cas où  $R$  est faible, il se produit non seulement une distribution non homogène des contraintes, trop élevées au sommet des aspérités, mais aussi l'existence probable de porosités dues à une déformation trop faible du joint, d'où une aire de contact limitée. Le cas optimal est caractéristique d'une bonne déformation suivie d'une homogénéité des contraintes appliquées sur la céramique. Dans le cas où  $R$  est grand, la trop grande déformation du joint qui est éjecté hors de la zone de contact, entraîne non seulement un

arrachement de grains sur les bords [22], mais aussi un glissement constant et un excès de contrainte susceptible d'accroître les contraintes appliquées sur la céramique, d'où un risque de fissuration.

Le paramètre R ne peut pas à lui seul définir les contraintes. Le rapport de taille de la céramique et de l'alliage joue aussi un rôle prépondérant. Le rapport  $R' = E_c/E_a$  montre que plus R' est faible plus les contraintes sont faibles. L'optimisation doit prendre en considération les deux paramètres définis R et R' car qualitativement, nous avons remarqué lors de l'élaboration des éprouvettes de flexion 4 points que la céramique ( $E_c = 0.3$  mm,  $E_a = 5$  mm) se fissure et par conséquent la liaison n'a pas eu lieu. Même remarque a été établie pour le cas d'une épaisseur  $E_c = 0.6$  mm. Alors que dans le cas de l'assemblage Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ni/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> on a pu réaliser ces éprouvettes. Cette difficulté est liée à la longueur du contact dans les éprouvettes de flexion 4 points ( $l = 50$  mm), d'où la nécessité de prendre en considération aussi le paramètre  $R = E_j/l$  que nous avons défini auparavant.

## V.11. CONCLUSION

A la lumière des résultats numériques obtenus, un certain nombre de directives peuvent être proposées en vue de réaliser dans de bonnes conditions un assemblage métal/céramique avec des contraintes résiduelles les plus faibles possibles.

1- Expérimentalement, l'application de la pression au début du palier et pendant le refroidissement permet d'avoir des assemblages sans fissuration de l'alumine. La modélisation montre le faible effet de la pression sur la genèse des contraintes résiduelles. Par contre expérimentalement, cette pression influe fortement sur l'adaptation des surfaces.

2- Choisir la vitesse de refroidissement la plus lente afin d'éviter le choc thermique de la céramique, dans notre cas  $v = 150$  °C/h.

3- Dans le cas de l'étude de l'assemblage Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ni/HAYNES<sup>®</sup> 214<sup>TM</sup>, il a été montré qu'il est nécessairement d'introduire les lois de comportement visco-plastique de l'alliage et du nickel alors que ceci n'est pas nécessaire pour Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ni/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.

4- Choix du paramètre R : épaisseur du joint/longueur du contact ( $E_j/l$ ). Un rapport R faible dans le cas de la liaison Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ni/HAYNES<sup>®</sup> 214<sup>TM</sup> permet d'avoir de fortes concentrations de contraintes et par conséquent l'endommagement de l'assemblage. L'optimum pour ce cas est  $R = 0.033$ . Au contraire, un rapport R faible dans le cas de la liaison Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ni/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> permet de minimiser les contraintes. L'optimum pour ce cas est  $R = 0.0083$ .

5- Choix du paramètre R' : épaisseur de la céramique/épaisseur de l'alliage ( $E_c/E_a$ ). Pour une faible épaisseur de la céramique c'est-à-dire pour R faible les contraintes sont minimales. L'optimum est pour  $R = 0.06$ .

6- Choisir une géométrie cylindrique permet de minimiser les contraintes résiduelles par rapport à une géométrie prismatique.

### Estimation expérimentale des contraintes résiduelles par la méthode d'indentation Vickers

Cette partie présente nos résultats expérimentaux pour les contraintes résiduelles obtenues dans les multimatériaux  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214^{\text{®}}$  par la méthode d'indentation Vickers.

Nous avons mentionné au chapitre précédent l'existence d'un champ de contraintes résiduelles dû en particulier à la différence de coefficients de dilatation thermique qui s'additionne aux champs de contraintes appliquées. Cela s'est manifesté par l'apparition des fissures elliptiques sur la céramique après assemblage et par des ruptures cohésives remarquées lors des essais de cisaillements. Ces contraintes résiduelles sont susceptibles de fragiliser la céramique. Pour déterminer le niveau des contraintes résiduelles dans la céramique près de l'interface nous avons choisi l'indentation Vickers, dont les conditions expérimentales ont été présentées au chapitre III. Différents états du joint ont été étudiés, suivant qu'il soit recuit ou écroui.

Nous détaillons le principe du calcul des contraintes, ainsi que les différentes observations remarquées et nous terminons par une synthèse englobant les résultats obtenus.

#### V.12. TÉNACITÉS AU VOISINAGE DE L'INTERFACE ALUMINE/NICKEL

Nous avons mesuré la ténacité de l'alumine au voisinage de l'interface après la liaison. Les éprouvettes ont été élaborées par thermocompression, dans les conditions classiques retenues ( $P = 16\text{MPa}$ ,  $t = 1\text{h}$ ,  $T = 1150\text{ °C}$ ).

La figure V.29 présente la variation de  $K_{IC}$ , mesuré selon le protocole décrit au chapitre III, § III.6.1, dans la céramique en fonction de la distance à l'interface, pour les couples  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}(\text{écroui})/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214^{\text{®}}$  et  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}(\text{recuit})/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214^{\text{®}}$ .

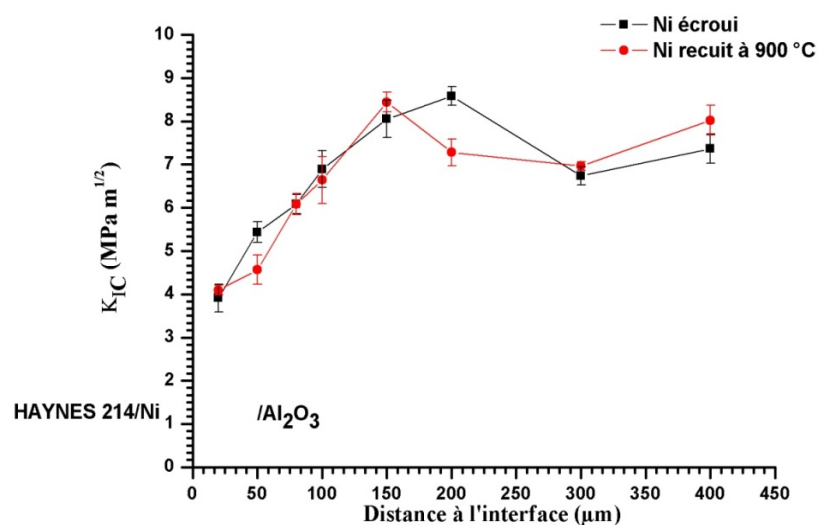


Figure V. 29: Variation de facteur d'intensité de contrainte  $K_{IC}$  sur le bord libre de la céramique pour les liaisons  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214^{\text{®}}$  suivant l'état du joint de nickel (écroui, recuit).

Les résultats obtenus montrent que le facteur d'intensité de contrainte  $K_{\text{IC}}$  est abaissé au voisinage de l'interface sur des distances de l'ordre de 100  $\mu\text{m}$ . Aucune différence significative n'est observée entre les deux courbes, ce qui témoigne de la non influence de l'écroutissage du joint, pour des conditions de thermocompression identiques, sur la fragilisation ou non de la céramique. Ce résultat est en accord avec les résultats de *Lourdin* [22], qui a montré que l'écroutissage du nickel a un effet peu marquant sur la tenue des assemblages  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{Al}_2\text{O}_3$  contrairement au cas des liaisons  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ag}/\text{Al}_2\text{O}_3$  [31]. Rappelons que cette différence peut être expliquée par trois hypothèses décrites dans le chapitre II (cf. Chapitre II, § II.2.4.7).

La baisse de ténacité peut être expliquée par l'effet de la différence de coefficient de dilatation thermique entre le nickel et l'alumine, qui conduit à des contraintes résiduelles et/ou par l'effet de la diffusion du nickel dans l'alumine. La diffusion du métal dans la céramique, en particulier le long de joints de grains ou des dislocations [23], accentue la baisse de la ténacité par création de contraintes mais aussi par création de sites de piégeage de charges électriques comme nous le verrons plus loin.

Pour consolider l'hypothèse sur le rôle de la diffusion, nous avons étudié l'effet d'un traitement de recuit après assemblage. Des mesures de  $K_{\text{IC}}$  ont été effectuées sur des échantillons  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214^{\text{®}}$  thermocompressés puis recuit 120 heures à 900 °C. Les résultats montrent une diminution du  $K_{\text{IC}}$  dans la céramique près de l'interface (Figure V.30). Cette fragilisation après le recuit confirme que la chute de la ténacité de la céramique au voisinage de l'interface ne peut pas être due uniquement à la différence de coefficient de dilatation thermique mais va dans le sens de l'hypothèse de la diffusion du nickel dans l'alumine, fragilisant ainsi la céramique comme cela a été prouvé par *Sérier* [31] lors de l'étude des assemblages  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ag}/\text{Al}_2\text{O}_3$ .

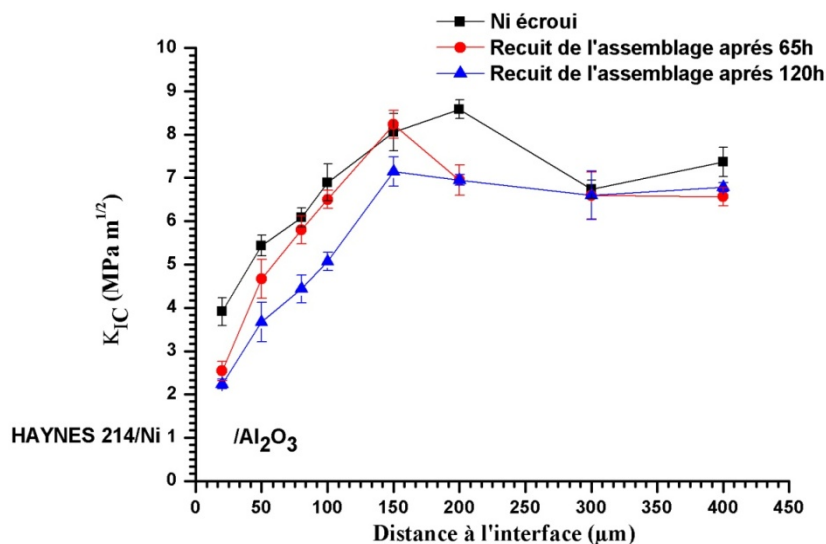


Figure V.30 : Variation de facteur d'intensité de contrainte  $K_{\text{IC}}$  sur le bord libre de la céramique pour les liaisons  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214^{\text{®}}$  après un recuit de 65 et 120 heures.

L'analyse de ces résultats montre une diminution du facteur d'intensité de contrainte  $K_{\text{IC}}$  de l'alumine sur une profondeur d'autant plus grande que le temps de recuit à 900°C est long. Une valeur de  $K_{\text{IC}}$  très faible ( $2.24 \pm 0.5 \text{ MPa}\sqrt{\text{m}}$ ) a été mesurée dans le cas d'un

recuit pendant 120 heures. Nos résultats confirment donc ceux de *Serier* [31], *Lasca* [115] et *Mbongo* [23] qui trouvent que le facteur d'intensité de contrainte  $K_{\text{IC}}$  diminue fortement à l'approche de l'interface sur une distance pouvant atteindre plusieurs dixièmes de millimètres quel que soit le couple étudié. De telles distances ne peuvent s'expliquer que par la diffusion intergranulaire du métal comme l'a montré *Serier* [31]. En effet, la chute n'apparaît pas pour de l'alumine monocristalline dans le système  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ag}/\text{Al}_2\text{O}_3$  [31].

### V.13. ESTIMATION DES CONTRAINTES RÉSIDUELLES PAR INDENTATION VICKERS DANS LE COUPLE $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214^{\text{®}}$

D'un point de vue qualitatif il est possible d'estimer le niveau des contraintes résiduelles à l'interface en appliquant la formulation développée par *Lasca* [115] (cf. Chapitre III, § III.8.1). Des investigations ont été réalisées par indentation VICKERS sur les mêmes types d'éprouvettes afin d'évaluer les contraintes résiduelles dans la céramique au niveau de la surface libre proche de l'interface de liaison. Les mesures sont faites par filiation d'indentation afin d'évaluer le profil des contraintes résiduelles. Ces profils seront comparés à ceux obtenus par diffraction des rayons X et par simulation numérique (Figure V.31).

Le tableau V.7 et la figure V.32 donnent les valeurs des contraintes normales  $\sigma_{yy}$  (mode I) en fonction de la distance à l'interface en comparant l'effet du recuit sur la relaxation de ces contraintes.

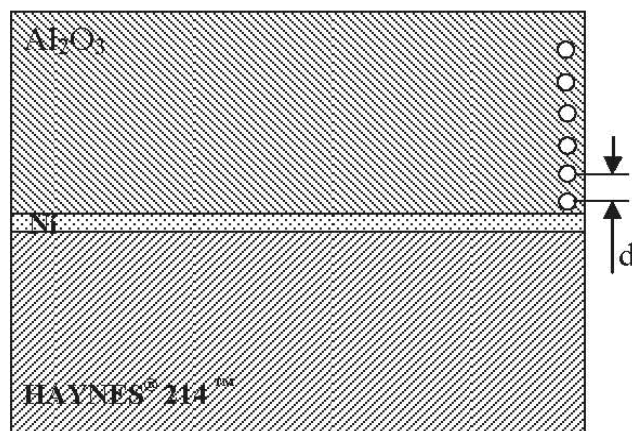


Figure V.31: Représentation schématique d'une filiation d'indentation Vickers pour un assemblage  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214^{\text{®}}$ .

Distance ( $\mu\text{m}$ )	$C_i 10^{-3}(\text{mm})$	$C 10^{-3}(\text{mm})$	$K_{Ici}(\text{MPa}\sqrt{\text{m}})$	$K_{IC}(\text{MPa}\sqrt{\text{m}})$	$\sigma_r(\text{MPa})$
20	140	178	5	3,91±0,32	318±34
50	140	187	5	5,44±0,24	361±42
80	140	140	5	6,08±0,22	0±32
100	140	130	5	6,89±0,43	-144±21
150	140	133	5	8,06±0,43	-972±43
200	140	130	5	8,59±0,22	-144±32
300	140	134	5	6,73±0,21	-82,2±54
400	140	136	5	7,37±0,34	-53,4±43
Avec recuit de 120 h					
Distance ( $\mu\text{m}$ )	$C_i 10^{-3}(\text{mm})$	$C 10^{-3}(\text{mm})$	$K_{Ici}(\text{MPa}\sqrt{\text{m}})$	$K_{IC}(\text{MPa}\sqrt{\text{m}})$	$\sigma_r(\text{MPa})$
20	140	170	5	2,24±0,11	271±30
50	140	172	5	3,67±0,45	284±34
80	140	153	5	4,43±0,32	141±21
100	140	142	5	5,07±0,32	247±45
150	140	131	5	7,15±0,21	-128±50
200	140	131	5	6,95±0,12	-128±35
300	140	134	5	6,60±0,56	-82,2±45
400	140	130	5	6,78±0,1	-144±67

Tableau V. 7 : Mesures sur des liaisons Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ni/HAYNES<sup>TM</sup>214<sup>®</sup> après assemblage sous une charge d'indentation de 300 g. ( $C_i$  : longueur de fissure générée sur la surface de la céramique avant liaison,  $C$  : longueur de fissure générée sur la surface de la céramique après liaison).

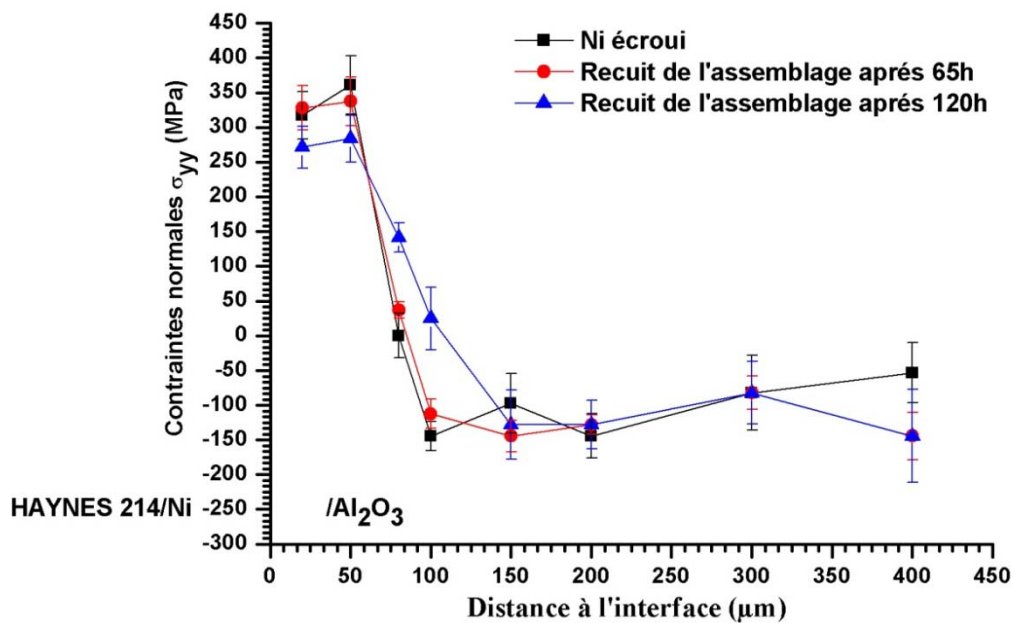


Figure V.32 : Niveau des contraintes résiduelles en fonction du temps de recuit.

Après 120 heures de recuit, il semble que les contraintes soient abaissées de  $318 \pm 34$  MPa à  $271 \pm 30$  MPa. Ces valeurs doivent être prises avec précaution pour

plusieurs raisons. Il s'agit d'une valeur moyenne superficielle entachée d'une erreur liée à la difficulté d'apprécier précisément les longueurs de fissures. Les valeurs de ces contraintes restent relativement importantes.

***Estimation des contraintes résiduelles obtenues par diffraction X***



#### V.14. MESURES DES CONTRAINTES DANS Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> AVANT ASSEMBLAGE

On dispose d'un échantillon de Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (AL23) préparé dans les mêmes conditions que les substrats des assemblages réalisés (cf. Tableau V.2).

Les courbes en  $\sin^2\psi$  (cf. Chapitre III, § III.6.2.2) obtenues conduisent à des valeurs de contraintes  $\sigma_{yy} = -32 \pm 12$  MPa et  $\sigma_{xy} = 7 \pm 5$  MPa. Elles ont une allure elliptique, phénomène généralement attribué à un matériau homogène, macroscopiquement isotrope, il n'y a pas de texture marquée, c'est à dire pas d'orientations préférentielles des grains. Un exemple type de courbe en  $\sin^2\psi$  obtenue est représenté sur la figure V.33.

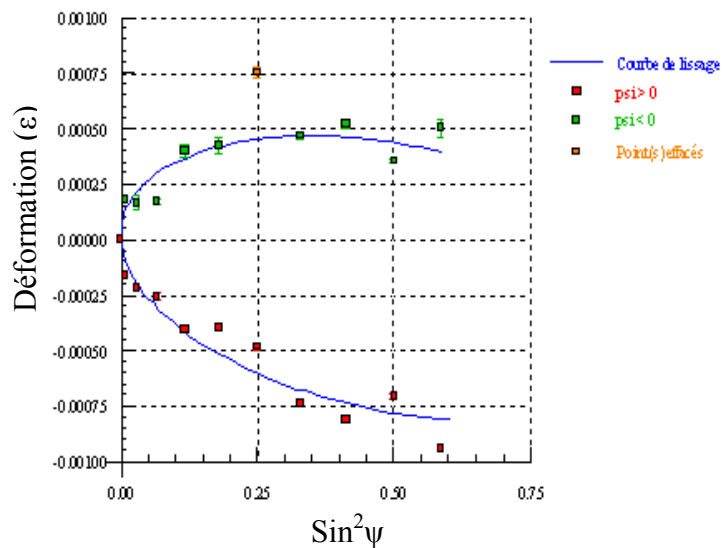


Figure V. 33: Allure d'une courbe en  $\sin^2\psi$  dans l'alumine avant assemblage (anticathode Ka Cr).

#### V.15. MESURES DES CONTRAINTES DANS Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> APRÈS ASSEMBLAGE

Après assemblage, une mesure est effectuée selon deux lignes (Figure V.34) :

- L1 : ligne perpendiculaire à la liaison proche du bord,
- L2 : ligne perpendiculaire à la liaison au milieu de la liaison.

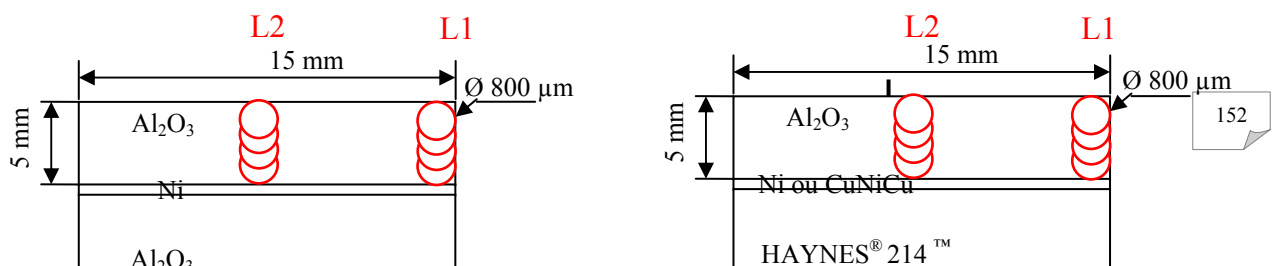


Figure V.34 : Schéma de principe des mesures par diffraction X après assemblage.

Deux éprouvettes type  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{HAYNES}^{\text{®}}214^{\text{TM}}$  et une éprouvette type  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{Al}_2\text{O}_3$  sont analysées par diffraction X. Les mesures par diffraction X dans  $\text{Al}_2\text{O}_3$  sont conduites avec le rayonnement  $\text{K}\alpha$  Cr. La distance entre chaque mesure est de l'ordre de 0.5 mm. L'allure de différents pics enregistrés de  $-50^\circ$  à  $50^\circ$  par pas de  $5^\circ$  est représentée dans la figure V.35.

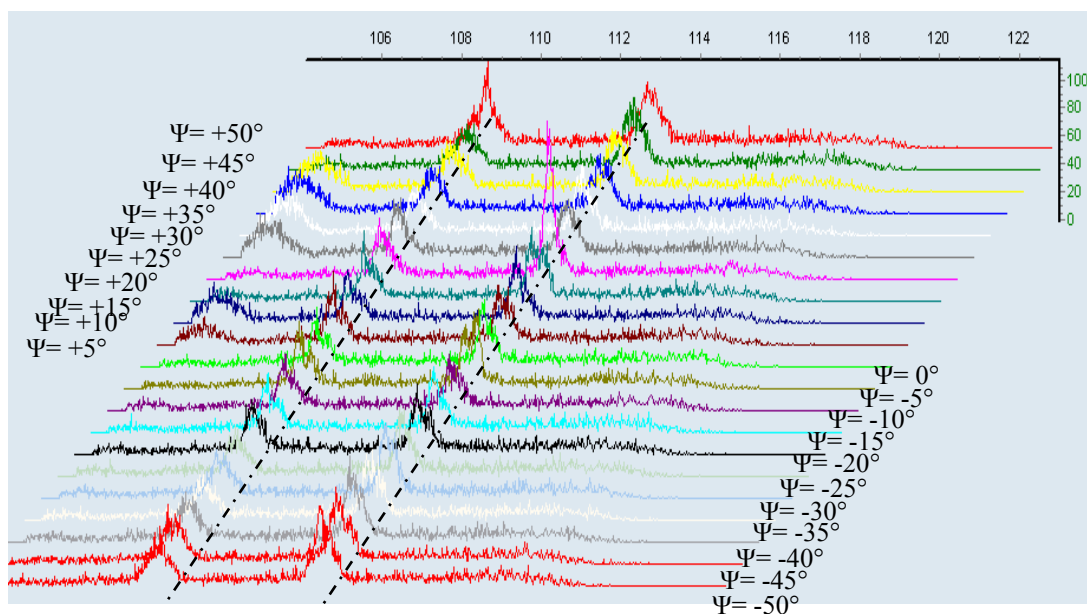


Figure V. 35: Représentation des 21 pics de l'alumine après assemblage.

## V.16. PROFILS BRUT DES CONTRAINTES EN FONCTION DE LA DISTANCE À L'INTERFACE

Les profils des figures V.36 et V.37 sont réalisés selon les deux directions citées dans le paragraphe précédent (Figure V.34).

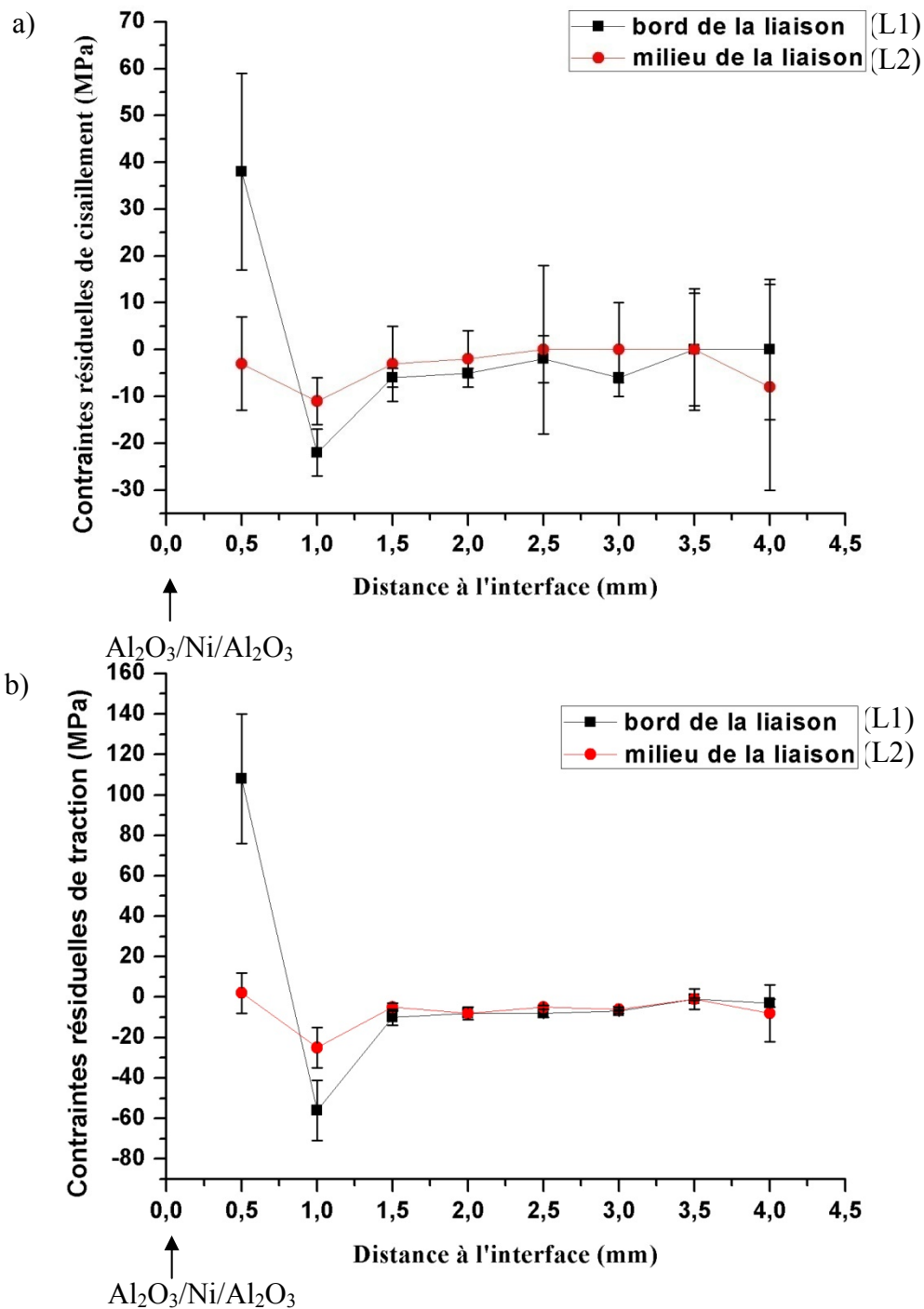


Figure V. 36: Profil des contraintes résiduelles par diffraction X de la liaison  $Al_2O_3/Ni/Al_2O_3$   
 a) profil de contraintes de cisaillement  $\sigma_{xy}$ , b) profil de contraintes normales  $\sigma_{yy}$ .

a)

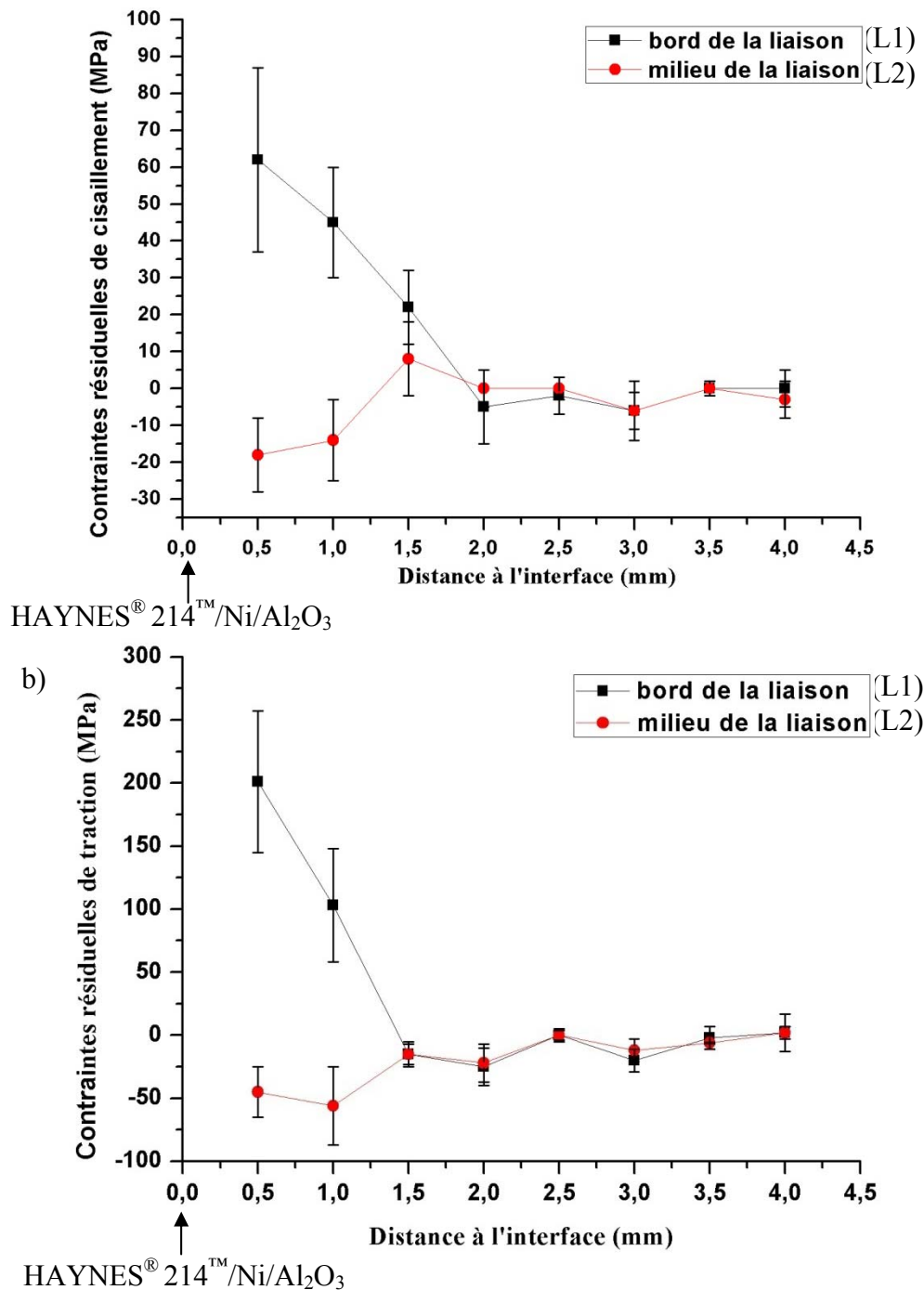


Figure V. 37: Profil des contraintes résiduelles par diffraction X de la liaison  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{HAYNES}^{\text{®}}214^{\text{TM}}$ . a) profil de contraintes de cisaillement  $\sigma_{xy}$ , b) profil de contraintes normales  $\sigma_{yy}$ .

Les informations que l'on peut extraire de l'observation des profils des contraintes résiduelles des figures V.36 et V.37 permettent de mettre en avant les points suivants :

- Les deux types d'assemblages réalisés présentent des profils d'allure globale équivalente. Près du bord libre de l'alumine, les contraintes résiduelles normales  $\sigma_{yy}$  sont positives. Elles sont très élevées dans le cas de la liaison  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{HAYNES}^{\text{®}}214^{\text{TM}}$  et atteignent une valeur de  $201 \pm 53$  MPa à 0.5 mm de l'interface. On note une tendance très

faible à la compression à plus de 1.5 mm de l'interface. Dans le cas de la liaison  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{Al}_2\text{O}_3$  les contraintes résiduelles normales atteignent une valeur maximale de  $108 \pm 42$  MPa à 0.5 mm de l'interface avec une tendance en compression au-delà de 0.75 mm de l'interface. Par contre, les contraintes normales  $\sigma_{yy}$  et de cisaillement  $\sigma_{xy}$  au milieu de la liaison sont toujours en compression et tendent vers des valeurs nulles loin de l'interface.

L'examen des profils sur les bords montre qu'à environ 0.5 mm de l'interface, le niveau des contraintes résiduelles normales  $\sigma_{yy}$  chute brutalement pour afficher des valeurs en compression. Aucune microfissure n'est survenue au cours de l'élaboration, et la diffusion d'éléments du joint dans la céramique n'est pas sensible à cette distance.

On notera cependant que les courbes en  $\sin^2\psi$  près de l'interface ont une allure serpentée (Figure V.38). Cette effet n'est visible qu'au voisinage de l'interface ; à plus longue distance on retrouve des courbes classiques type Figure V.33. La non linéarité des courbes de  $\sin^2\psi$  traduit la variation importante de  $d_{hkl}$  lorsque  $\psi$  croît, c'est-à-dire lorsque la profondeur analysée décroît. Phénomène attribué généralement à un gradient superficiel important de contrainte [101].

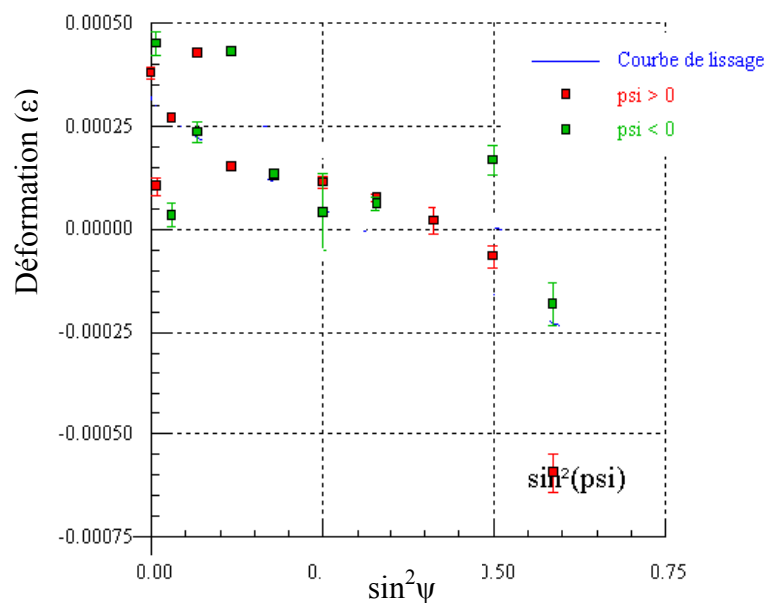


Figure V. 38: Allure serpentée d'une courbe en  $\sin^2\psi$  proche de l'interface  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}$ .

La comparaison entre les différentes méthodes d'estimation des contraintes (FEM, Indentation et diffraction des rayons X) montre que l'allure des courbes est similaire. En allant de l'interface vers la céramique en profondeur, les contraintes normales  $\sigma_{yy}$  passent de valeurs positives très élevées à des valeurs nulles pour le modèle numérique alors qu'elles passent de valeurs positives (traction) vers des valeurs négatives (compression) puis elles s'annulent loin de l'interface pour les mesures expérimentales (Figure V.39). Comme nous le pensions le modèle numérique élasto-plastique surestime les contraintes normales alors que le modèle élasto-visco-plastique va dans le sens des deux méthodes expérimentales.

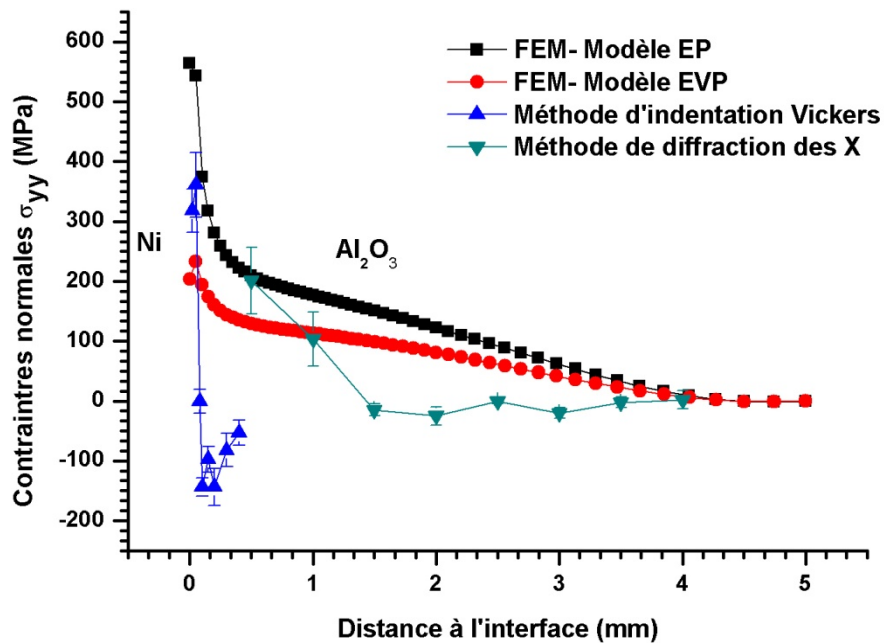


Figure V.39 : Comparaison de différentes méthodes d'estimation des contraintes normales.

La différence entre les résultats de la modélisation et les mesures expérimentales par indentation montre un passage brutal de la contrainte normale  $\sigma_{yy}$  de la traction vers la compression peut-être dû au phénomène de diffusion qui fragilise la céramique et donne un apport de contrainte. Or cette diffusion n'est pas prise en compte ni dans la modélisation ni dans la méthode diffractométrique alors que la mesure par indentation y est sensible.

### Corrélation entre la répartition de la charge d'espace et les contraintes résiduelles

### V.17. CARACTÉRISATION DU PIÉGEAGE DES CHARGES ÉLECTRIQUES SUR UNE ALUMINE AVANT LIAISON

Selon le protocole décrit précédemment (cf. Chapitre III, § III.9), avant l'injection des électrons, les échantillons d'alumine AL23 subissent un cycle thermique identique à celui des assemblages. L'étude de piégeage des charges dans ces matériaux s'effectue suivant la méthode classique de la mesure du courant de masse pendant l'injection puis de la mesure miroir après injection.

Les conditions expérimentales utilisées sont données dans le tableau V.8. La quantité d'électrons injectés à la température ambiante en mode focalisé (spot) est de 100 pC.

Les différentes caractéristiques mesurées sont :

- $Q_m$  : quantité de charges d'influence obtenue par la courbe de courant de masse,
- $I_{max}$  : courant maximal à l'injection,
- $t_r$  : temps avant la première relaxation ou temps avant passage du courant de masse en négatif,
- $Q_l$  : quantité de charges limite (intégrale du courant jusqu'à  $t_r$ ),
- $Q_p$  : quantité de charges piégées localement au niveau du point d'injection obtenue par la méthode miroir,
- $V$  : tension de dissipation de l'effet miroir.

<i>Paramètres</i>	<i>AL23</i>
Tension	30 kV
Courant	1000 pA
Temps	100 ms
Température	25 °C
Ø Faisceau	spot

Tableau V.8: Conditions expérimentales utilisées dans l'étude.

Les différents types de courbes obtenues sont reportés sur la figure V.40.

Les quatre injections réalisées présentent des valeurs très proches ( $I_m = 942$  pA,  $Q_m = 47$  pC). La présence d'un miroir indique que les charges restent concentrées, de plus elles sont stables (tension de disparition de 2200 V environ).

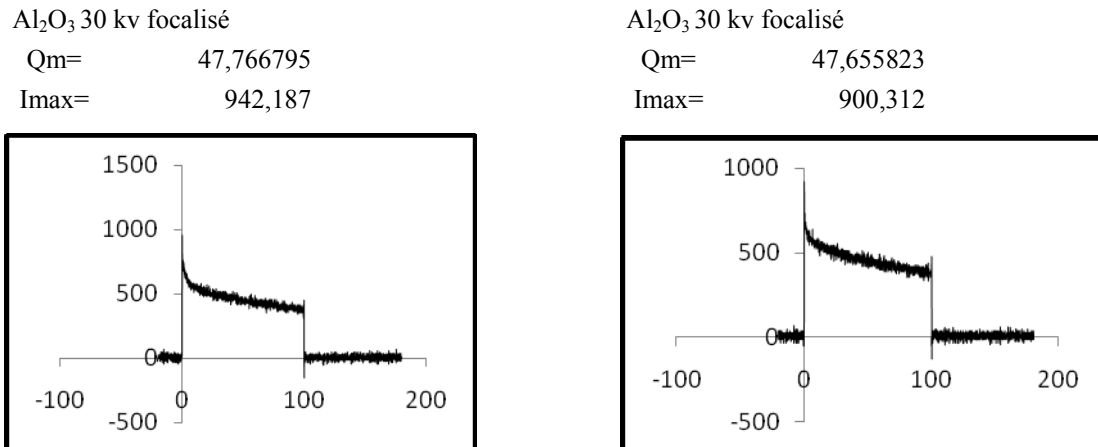


Figure V.40 : Exemples de courbes de courant de masse.

## V.18. CARACTÉRISATION DU PIÉGEAGE DES CHARGES SUR UNE ALUMINE APRÈS LIAISON

Après assemblage, le multi matériau Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ni/HAYNES<sup>TM</sup>214<sup>®</sup> subit un recuit sous vide à 700 °C pendant 3 heures. Le but de ce recuit est de limiter les défauts (dislocations) créés par la préparation de l'assemblage (polissage). Ce recuit conduit également à la neutralisation, totale ou partielle, des lacunes d'oxygènes par les impuretés monovalente ou divalente. Les investigations ont lieu sur le bord libre de la céramique près de l'interface.

La taille de la zone analysée choisie est de 2 µm de diamètre. Elle est assez grande pour permettre de moyennner la réponse du matériau mais aussi d'injecter une densité de charges suffisamment grande. Pour mettre en évidence l'influence des contraintes résiduelles (essentiellement  $\sigma_{yy}$ ) sur le phénomène de piégeage des charges nous avons choisi de réaliser une filiation d'injection de charge depuis l'interface Ni/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> vers l'alumine loin de l'interface.

Les caractéristiques de ces injections figurent dans le tableau V.9. La majorité de ces injections conduit à des miroirs plus ou moins stables et plus ou moins déformés, dans certains cas, soit par effet de rugosité de la surface soit par le champ de contraintes résiduelles près de l'interface Ni/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Ces miroirs ont pu être mesurés et ont permis de déterminer les quantités de charges restées piégées localement après injection  $Q_p$ . On note dans certain cas l'existence de phénomène de relaxation des charges pendant l'injection. Deux exemples typiques de courbes de courant de masse sont donnés sur la figure V.41 et V.44.



Distance à l'interface (μm)	$I_{max}(pA)$	$Q_m(pC)$	$Q_p(pC)$	$Q_p/Q_m$	relaxations
Avant liaison	942.187	47.65	46.1	0.967	non
0	879.37	69.7	35.5	0.509	oui
50	750.34	26.16	2.96	0.113	non
100	832.44	29.9	0	0	non
140	856.34	26.8	0	0	non
250	829.43	26.1	6.9	0.264	non
500	789.34	21.2	10.5	0.495	non
1000	709.4	38.9	15.2	0.391	non

Tableau V.9 : Mesures caractéristiques des injections et des miroirs proche de l'interface Ni/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.  $Q_p = 0$  indique l'absence de miroir, donc une forte diffusion des charges.

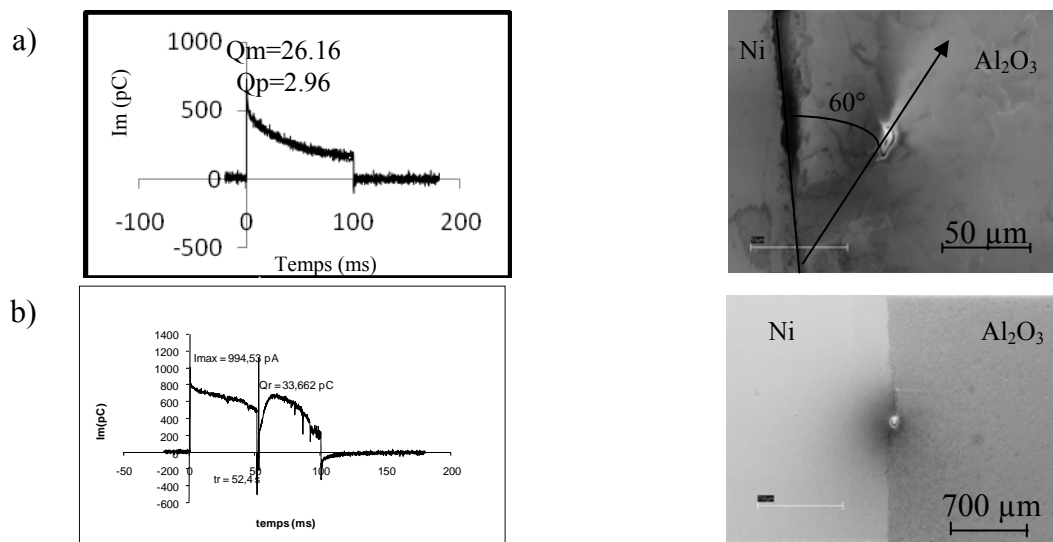


Figure V.41 : Evolution du courant de masse lors de l'injection de 1000 pC sur la surface de l'alumine. a) comportement de piégeage-localisation des charges, b) comportement de relaxation électronique secondaire périodique.

La courbe V.41a présente une décroissance très rapide du courant de masse dès les premiers instants de l'injection. L'observation post-injection met en évidence un effet miroir qui traduit une certaine quantité de charges localisées  $Q_p$  sous le faisceau électronique incident. La valeur asymptotique du courant de masse est faible voire nulle. On parle de comportement de piégeage-localisation des charges. La courbe V.41b est très différente de la première. Il se produit lors de l'injection, un phénomène de relaxation des charges par émission brutale d'électrons secondaires généralement induits par la saturation locale des pièges. On parle de comportement de relaxation secondaire périodique qui n'altère pas le comportement initial de piégeage de charges entre deux relaxations.

Nous avons remarqué que près de l'interface, pour des distances inférieures à  $100\ \mu\text{m}$ , il y a souvent des relaxations (dans 5 cas sur 6). Ne pouvant s'écouler, les charges ont créé dans le matériau un champ électrique supérieur au champ critique de dépiégeage. Elles ont été relarguées dans la chambre du MEB par émission secondaire.

Après chaque injection, une observation à basse tension (V) de la zone irradiée est effectuée. L'observation du miroir est possible et indique que les charges restantes au moment de l'arrêt de l'injection sont localisées au voisinage du point d'injection. Lorsqu'il y a présence d'un miroir, ce dernier reste stable jusqu'à une tension de 2 à 2.4 kV. Jusqu'à une tension de lecture d'environ 600 V, le rapport  $1/d$ , où  $d$  est le diamètre apparent de la sortie de colonne, suit une loi de proportionnalité avec la tension de lecture et permet le calcul de la quantité de charges piégées sous le faisceau  $Q_p$  selon la formule décrite dans le chapitre III (cf. Chapitre III, § III.9). Ensuite le miroir s'étire et se déforme plus ou moins. Puis la pente  $1/d = f(V)$  décroît, indiquant que les charges s'étalent latéralement (Figure V.42) [145].

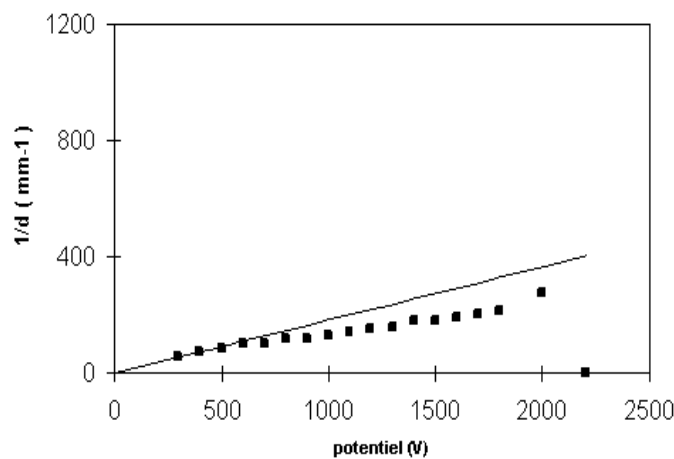


Figure V.42 : Evolution du rapport  $1/d$  en fonction du potentiel de lecture après injection de  $100\ \text{pC}$  sur la surface de l'alumine près de l'interface ( $\approx 90\ \mu\text{m}$ ).

Les résultats des quantités de charges d'influence  $Q_m$  et de charge piégée localement  $Q_p$  de la liaison  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214^{\text{®}}$  sont confrontés à ceux des contraintes résiduelles déterminés par la simulation numérique (Figures V.43 et 44).

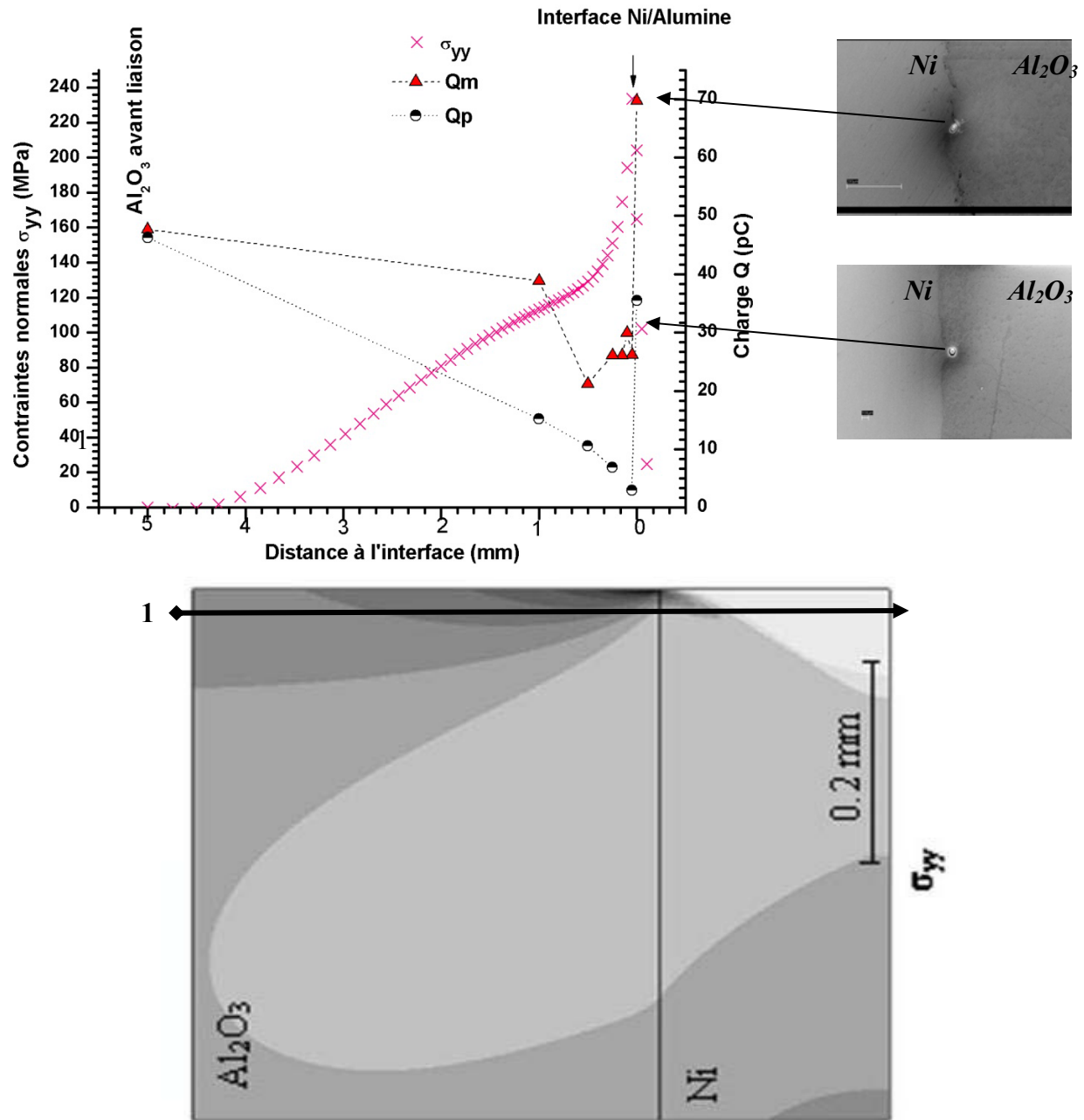


Figure V.43 : Evolution des  $Q_m$  et  $Q_p$  en fonction des contraintes normales  $\sigma_{yy}$  tracées sur le bord libre de l'assemblage  $Al_2O_3/Ni/HAYNES^{TM}214^{\circ}$  et déterminées par éléments finis.

L'évolution des quantités de charges  $Q_m$  et  $Q_p$  en fonction de la distance à l'interface (Figure V.44 et Tableau V.9) indique que:

- La quantité de charge  $Q_m$  du matériau est très fortement augmentée près de l'interface. Par contre, entre  $50\ \mu m$  et  $250\ \mu m$  environ, on note peu d'évolution dans la quantité de charges retenue.  $Q_m$  redevient plus élevée à grande distance (1 mm) en tendant vers la valeur de l'alumine non liée. On notera que la forte chute de  $Q_m$  à environ

250  $\mu\text{m}$  de l'interface est reliée à la chute de contraintes observée par indentation sur des distances du même ordre de grandeur (Figure V.32 et 39).

-La charge piégée localement  $Q_p$  est moins élevée : le rapport  $Q_p/Q_m$  voisin de 1 pour l'alumine de départ est abaissé dans les zones fortement contraintes pour très peu augmenter ensuite. Ceci montre que les contraintes favorisent la mobilité des charges à partir du point d'injection des électrons.

Les miroirs présentent dans certains cas des orientations préférentielles (miroirs elliptiques) qui forment avec l'interface un angle de  $40^\circ$  à  $60^\circ$  dans ce cas on observe généralement en parallèle des phénomènes de relaxation avec émission secondaire. La figure V.44 donne l'évolution des courbes de courant de charge d'influence en fonction du temps d'injection avec les correspondances en contraintes normales  $\sigma_{yy}$  obtenues par la simulation. A forte contrainte, la courbe de courant de masse conduit à un plateau signe d'un fort étalement des charges à partir du point d'injection. Ces résultats sont à rapprocher de ceux obtenus par injection d'électrons in-situ sur de l'alumine soumis à des efforts de flexion [162]: toute contrainte mécanique influence la capacité du matériau à piéger et/ou écouler les charges. L'interprétation qui peut être donnée a été développée dans [162].

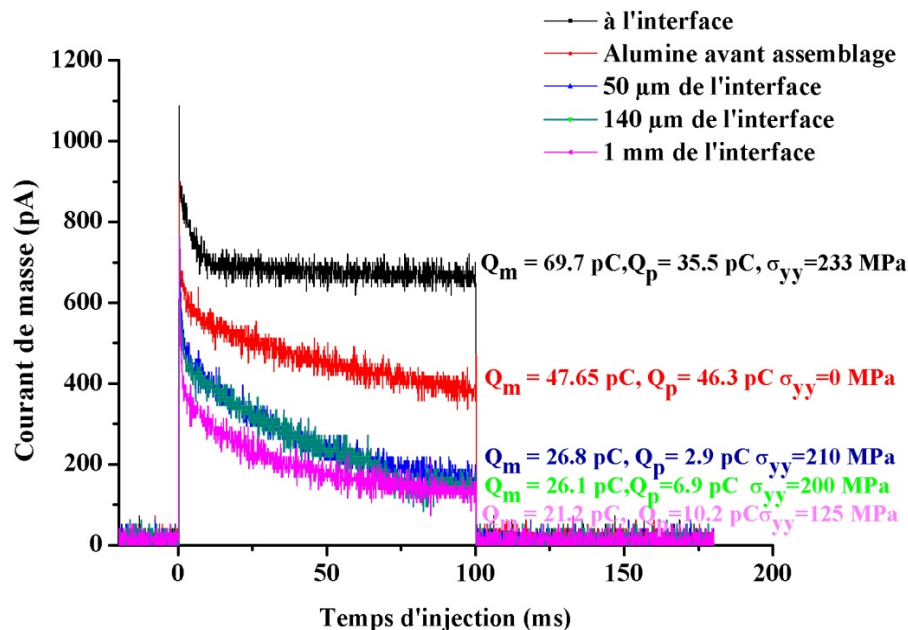


Figure V.44 : Evolution de  $Q_m$  en fonction des contraintes résiduelles déterminées par éléments finis.

Sous l'effet d'une contrainte les distorsions du réseau peuvent permettre un piégeage de charges conduisant à un stockage d'énergie de déformation de l'ordre de 5 eV/charge piégée [145]. Cette énergie peut être suffisante pour créer des dislocations qui apparaissent dans le réseau de l'alumine créant de nouveaux sites de piégeage. Ces dislocations créées, sont mobiles puisque soumise à un champ électrique. En conséquence, on assiste à une augmentation du piégeage des charges avec la contrainte mais ces charges ne restent pas localisées (miroir peu stable  $Q_p/Q_m < 1$ ). Au delà d'une

certaine contrainte, on peut penser que la concentration en défauts dans l'alumine est telle qu'un désordre apparaît. Dans ce cas on assiste à une conduction des charges et à l'absence de localisation des électrons ( $Q_m$  augmente).

Notons que ces mesures sont sensibles aussi bien aux contraintes qu'à l'effet de diffusion du nickel. Ces deux facteurs jouent sur le piégeage et/ou la mobilité des charges.

## V.19. CONCLUSION ET PERSPECTIVE

L'étude de la jonction Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ni/HAYNES<sup>TM</sup>214<sup>®</sup> et Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ni/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> élaborées par thermocompression et l'évaluation des contraintes résiduelles par simulation numérique et expérimentation (méthode d'indentation Vickers, diffraction des rayons X et méthode miroir (SEMME)) nous conduit aux conclusions suivantes :

- Existence d'un champ de contraintes résiduelles de traction au niveau de l'interface et des bords dû, en particulier, aux différences de coefficient de dilatation thermique du métal et de la céramique.
- La comparaison entre les différentes méthodes d'estimation des contraintes révèle une tendance, dans la céramique, de passer de la traction (interface) vers la compression (milieu de la céramique) avant de s'annuler (loin de l'interface).
- Les résultats d'indentation nous ont principalement révélé que la ténacité de la céramique chute au voisinage de l'interface. Cette chute peut être expliquée par l'existence du champ de contrainte et/ou la diffusion du nickel du joint dans l'alumine, en particulier le long des joints de grains. En effet, les contraintes qui se développent vont créer une distorsion du réseau cristallin, pouvant jouer le rôle de sites de piégeage de charge puis de création de dislocations. Le frottement entre le joint métallique et la céramique participe aussi à créer des charges. Ces dernières par effet d'écoulement, participent à la baisse de la ténacité, ce qui conduit à la fragilisation de la céramique.
- La méthode SEMME a permis de mettre en évidence le rôle joué par les contraintes résiduelles dans l'écoulement de charges dans une liaison alumine-métal. Le champ de contraintes résiduelles près de l'interface modifie de manière importante la capacité de piégeage de charge. Moyennant une étude systématique étalonnée, cette méthode permettrait d'avoir un étalonnage des contraintes résiduelles développées dans un assemblage.
- De toute façon réaliser des assemblages type Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ni/HAYNES<sup>TM</sup>214<sup>®</sup> est difficile, d'où une recherche d'optimisation consistant à modifier le joint nickel par un joint de cuivre en adoptant la méthode des joints multicouches type Cu<sub>2</sub>O-Cu-Ni-Cu<sub>2</sub>O-Cu qui sera analysée dans le chapitre suivant.

# CHAPITRE VI

## SYSTÈMES

### $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cu}/\text{Ni}/\text{Cu}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214^{\text{®}}$

*Partant des résultats du chapitre V, nous avons montré par voie de calcul (simulation numérique) et d'expérience (essais de flexion, cisaillement, indentation et diffraction des rayons X) que les contraintes de tension dans la céramique près du bord sont beaucoup plus importantes pour l'assemblage alumine/alliage comparativement à l'assemblage alumine/alumine, mais qu'une optimisation géométrique et des conditions de thermocompression était insuffisante pour obtenir des assemblages performants avec le joint de nickel seul.*

*Pour minimiser l'intensité des contraintes résiduelles, nous avons donc opté pour l'utilisation d'un joint de cuivre seul puis associé au nickel. Connue par sa grande plasticité à chaud et ses propriétés de fluage, l'utilisation du cuivre comme joint de liaison permet d'abaisser les contraintes résiduelles dans les assemblages métal/céramique. Son point de fusion modéré (1083°C) rend son utilisation pour des applications > 1000 °C très limitée. L'utilisation d'un joint multicouche type Cu/Ni/Cu devrait permettre d'augmenter la température du joint jusqu'à 1300 °C par un traitement thermique adéquat grâce à la miscibilité totale à l'état solide du cuivre avec le nickel. Cette technique est particulièrement prometteuse et conduit à des contraintes à rupture de l'assemblage particulièrement élevées, en particulier si le cuivre est oxydé en surface coté alumine, reproduisant ainsi la « méthode de l'eutectique », utilisée industriellement pour des systèmes cuivre-alumine.*

*Les résultats de la caractérisation mécanique (cisaillement, flexion 4 points), ainsi que les méthodes de caractérisations des contraintes résiduelles (indentation, diffraction des rayons X) confirment clairement que les contraintes résiduelles sont fortement abaissées par ce joint multicouche.*



## *Chapitre VI- Partie A*



---

---

### *CARACTÉRISATIONS PHYSICO-CHIMIQUES ET MÉCANIQUES*

---

---

## ***Optimisation des assemblages par un joint de cuivre***

### **VI.1. CHOIX DU JOINT DE CUIVRE**

Plusieurs auteurs ont montré que l'usage de matériaux ductiles pouvait limiter les contraintes résiduelles [146,147]. L'avantage d'un matériau à forte plastification tel que le cuivre doux, par rapport à un matériau à coefficient de dilatation intermédiaire a clairement été démontré par Zhou [126]. C'est pour cette raison que nous nous sommes orientés vers l'utilisation d'un joint en cuivre. Le choix du cuivre se justifie aussi par son intérêt industriel, par sa réactivité avec l'alumine en présence d'oxygène à haute température ou inversement par son non réactivité en absence d'oxygène et aussi de pouvoir appliquer la méthode de l'eutectique. Rappelons enfin que ce choix correspond aussi à la poursuite des travaux entrepris dans notre laboratoire ainsi qu'à la diversité des études sur les liaisons Cu/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.

Nous nous sommes inspirés dans un premier lieu, des conditions expérimentales issues des travaux de Courbière [3]. Ces conditions sont :

- Température de thermocompression  $T_b = 1000$  °C.
- Charge de compression  $\sigma_c = 4$  MPa.
- Temps de compression  $t_c$ , c'est le temps de maintien à  $T_C$ . Nous l'avons fait varier de 0 à 2 heures.
- Epaisseur initiale du joint métallique égale à 0.2 mm dans le cas de la liaison Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Cu/ HAYNES™214®.

Nous avons retenu ces paramètres de façon à mieux mettre en relief des effets favorables ou non de la liaison dus aux différents paramètres choisis dans notre étude.

Les conditions choisies pour nos essais sont regroupées sur le tableau VI.1 :

<b><i>Paramètres</i></b>	
Température (C°)	1050
Pression (MPa)	1
Temps du palier (heures)	0 à 2
Epaisseur du joint (mm)	0,2
Atmosphère (Pa)	Vide primaire dynamique 10 <sup>-3</sup>

Tableau VI.1 : Conditions d'élaboration de la liaison Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Cu/HAYNES™214®.

Une observation par microscopie optique après liaison montre une très bonne adaptation du cuivre avec l'alumine. Bien que la pression appliquée ne soit que de l'ordre de 1 MPa, le cuivre a bien comblé les rugosités de la surface de l'alumine au fur et à mesure que le temps augmente (Figure VI.1).



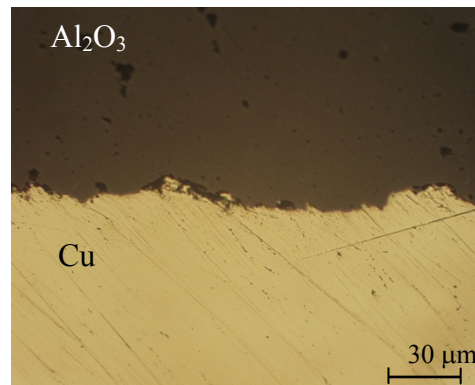


Figure VI.1 : Micrographie optique de la liaison  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cu}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214^{\text{®}}$  obtenue dans les conditions de  $T = 1050\text{ °C}$ ,  $P = 1\text{ MPa}$ ,  $t_c = 0\text{ h}$ .

L'examen macroscopique de la surface du cuivre après rupture révèle la présence de zones adhérentes irrégulières et de zones non adhérentes. La contrainte à rupture mesurée était de l'ordre de 22 MPa. Cette valeur est jugée intéressante comparativement aux résultats obtenus dans le cas des liaisons  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cu}/\text{Al}_2\text{O}_3$  [3]. La rupture est cohésive et se fait dans l'alumine à partir de l'interface en suivant un angle de  $40^\circ$ .

Afin d'améliorer le comportement mécanique des liaisons, un maintien à  $1050^\circ\text{C}$  pendant 2 heures a été nécessaire. Les micrographies optiques (Figure VI.2) montrent une bonne adaptation. Les essais de cisaillements donnent des résultats meilleurs que précédemment, la contrainte à la rupture est de 36 MPa, et la rupture est cohésive.

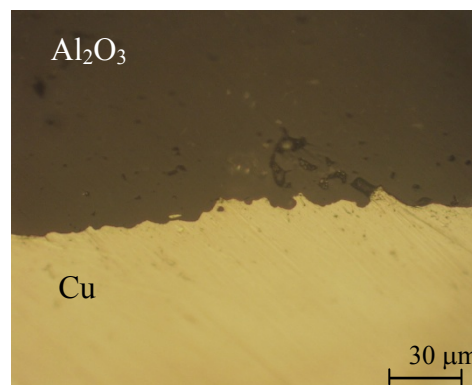


Figure VI. 2: Micrographie optique de la liaison  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cu}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214^{\text{®}}$  obtenue dans les conditions de  $T = 1050\text{ °C}$ ,  $P = 1\text{ MPa}$ ,  $t_c = 2\text{ h}$ .

## VI.2. APPLICATION DE LA MÉTHODE DE L'EUTECTIQUE

### VI.2.1. $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cu}_2\text{O}-\text{Cu}-\text{Cu}_2\text{O}/\text{Haynes}^{\text{TM}}214^{\text{®}}$

Le rôle de l'oxyde de cuivre en thermocompression ainsi que dans la technique de l'eutectique  $\text{Cu}-\text{Cu}_2\text{O}$  (cf. Chapitre I, § I.2.5, Figure I.9) nous a amené à étudier la faisabilité de la réalisation de la liaison  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cu}_2\text{O}-\text{Cu}-\text{Cu}_2\text{O}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214^{\text{®}}$ .

Une légère oxydation de la surface du cuivre en  $\text{Cu}_2\text{O}$  est réalisée par traitement d'un certain nombre de joints de cuivre de surface totale connue. Pour faire croître une couche

d'oxyde  $\text{Cu}_2\text{O}$  sur le cuivre, ce dernier est porté à une température de 950 °C pendant 30 minutes sous vide primaire dynamique. Après oxydation superficielle de la feuille de cuivre en  $\text{Cu}_2\text{O}$ , l'ensemble cuivre (oxydé)-céramique est porté à une température de 1075°C pendant 5 minutes dans un four sous vide primaire. Les conditions de l'élaboration du couple métal- céramique sont présentées dans le tableau ci-dessous (Tableau VI.2).

<i>Paramètres</i>	
Température (C°)	1075
Pression (MPa)	1
Temps du palier (minutes)	5
Epaisseur du joint (mm)	0,1
Atmosphère (Pa)	Vide primaire dynamique $10^{-3}$

Tableau VI. 2: Conditions d'élaboration de la liaison  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cu}_2\text{O}-\text{Cu}-\text{Cu}_2\text{O}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214^{\text{®}}$ .

La morphologie de l'alliage Cu- $\text{Cu}_2\text{O}$  obtenus est donnée par les micrographies de la figure VI.3.

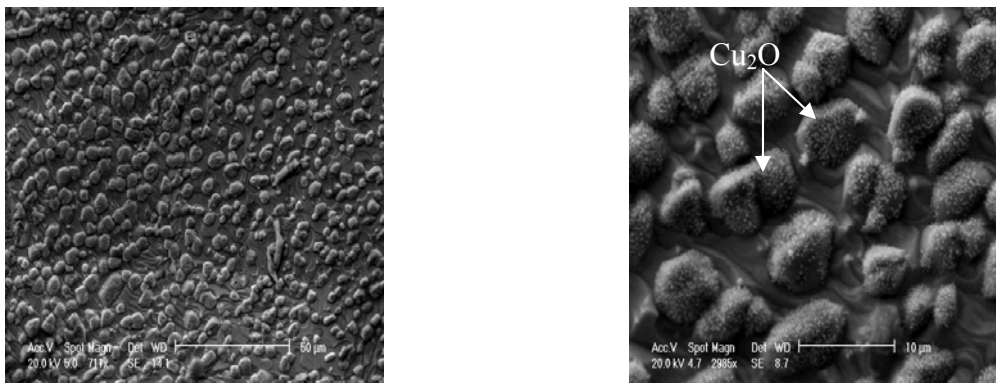


Figure VI.3 : Micrographie par MEB d'une couche d'oxyde  $\text{Cu}_2\text{O}$  réalisée en surface du cuivre.

La technique de l'eutectique Cu- $\text{Cu}_2\text{O}$  repose sur la possibilité de former en surface du cuivre une phase liquide apte à mouiller l'alumine constituant ainsi une véritable brasure. La phase liquide qui intervient est l'eutectique Cu- $\text{Cu}_2\text{O}$  dès que l'on franchit le palier situé à 1065 °C (cf. chapitre I, § I.2.5). La phase liquide apparaît donc dans l'interface Cu- $\text{Cu}_2\text{O}$ . Pour une température de 1075 °C (Condition de nos essais) son abondance dépend de la quantité de l'oxyde de cuivre dont l'épaisseur est limitée à quelques micromètres. La formation de la brasure eutectique peut être résumée par la figure VI.4.

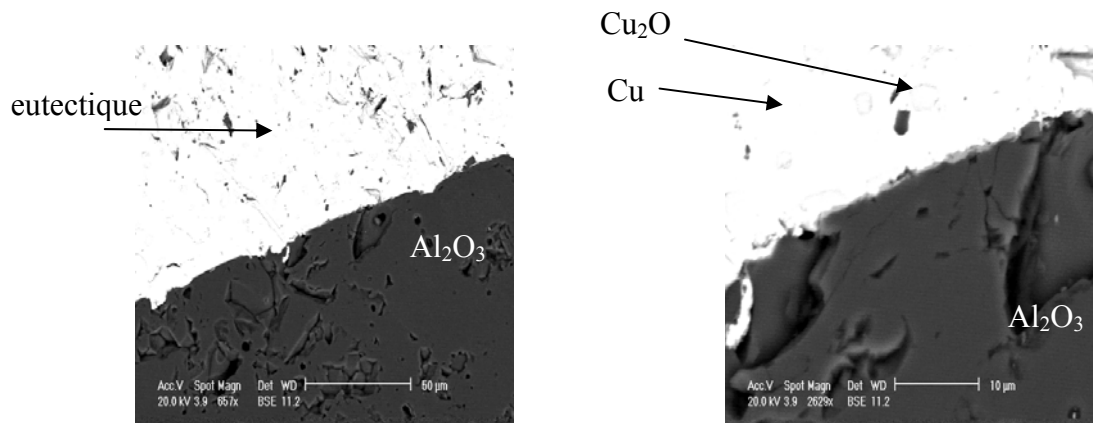


Figure VI.4: Coupe transversale de l'interface  $\text{Cu}/\text{Al}_2\text{O}_3$  montrant la présence de l'eutectique  $\text{Cu}+\text{Cu}_2\text{O}$ .

Les micrographies de la figure VI.4, montrent que le cuivre a bien rempli les cavités de l'alumine et la coupe transversale d'une liaison non rompue montre la présence de l'eutectique  $\text{Cu}+\text{Cu}_2\text{O}$ .

Nous noterons que nous n'avons jamais mis en évidence l'oxyde  $\text{CuAlO}_2$ . La réaction qui conduit à sa formation est en effet très limitée et nécessite la microscopie électronique à transmission (MET) pour sa mise en évidence (cf. chapitre I, § I.2.5).

Les résistances à la rupture en cisaillement sont de l'ordre 51 MPa. La rupture se fait dans la céramique par propagation de la fissure à partir de l'interface. Les ruptures sont le plus souvent mixtes, c'est-à-dire de l'alumine reste imbriquée dans le cuivre avec des ruptures à l'interface  $\text{Cu}/\text{Al}_2\text{O}_3$ . Contrairement à la thermocompression, les bords du joint semblent être parfaitement liés : le liquide de la composition eutectique formé mouille toute la surface de l'alumine.

### VI.2.2. $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cu}_2\text{O}-\text{Cu}-\text{Cu}_2\text{O}/\text{Ni}/\text{Cu}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214^{\text{®}}$

Le cuivre et le nickel forment une solution solide complète à l'état solide. Les joints multicouche type  $\text{Cu}/\text{Ni}/\text{Cu}$  évoluent à haute température vers une solution solide homogène. Par un traitement thermique adéquat on arrive à former une solution solide riche en Ni proche de l'interface, avec un point de fusion supérieur à celui du cuivre pur.

Travailler sur des systèmes multicouches a pour but l'accommodation des déformations et par conséquent de limitation des contraintes résiduelles pénalisantes avec le joint Ni. Le système est composé d'une feuille de cuivre pré oxydé en  $\text{Cu}_2\text{O}$  sur les deux faces, une feuille de nickel et enfin une feuille de cuivre coté alliage. La liaison en sandwich ainsi formée est schématisée sur la figure VI.5.

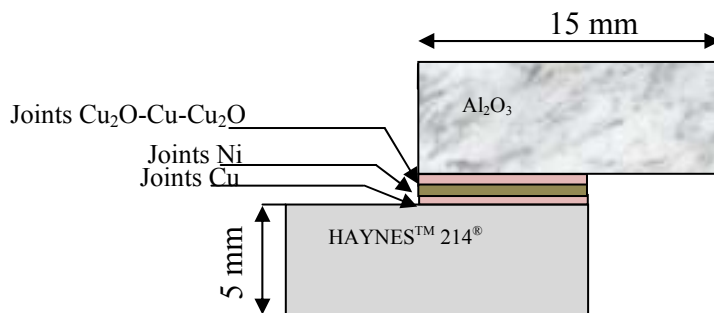


Figure VI.5: Schéma descriptif d'un assemblage  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cu}_2\text{O}-\text{Cu}-\text{Cu}_2\text{O}/\text{Ni}/\text{Cu}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214^{\text{®}}$ .

Les conditions expérimentales retenues pour cet essai, sont représentées dans le tableau V.6. On notera que les conditions utilisées, en particulier la pression et le temps du palier correspondent à celles d'un brasage.

<b>Paramètres</b>	
Température (C°)	1075
Pression (MPa)	1
Temps du palier (heures)	0.5
Épaisseur du joint (mm)	0,1 (Cu), 0,2 (Ni)
Atmosphère (Pa)	Vide primaire dynamique $10^{-3}$

Tableau VI.3: Conditions d'élaboration de la liaison  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cu}_2\text{O}-\text{Cu}-\text{Cu}_2\text{O}/\text{Ni}/\text{Cu}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214^{\text{®}}$ .

Les micrographies par MEB présentent des interfaces intéressantes que ce soit du côté céramique ou du côté alliage (Figure VI.6). À l'interface  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cu}$  on retrouve la morphologie classique de la liaison par eutectique cuivre /alumine. Aux interfaces initiales  $\text{Cu}/\text{Ni}$  et  $\text{Cu}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214^{\text{®}}$ , l'interdiffusion cuivre-nickel conduit à des interfaces métalliques parfaites. La technique d'assemblage retenue montre un grand potentiel pour la fabrication de liaisons résistantes. En effet la résistance à la rupture en cisaillement de ces couples est de l'ordre de 68 MPa, avec une rupture cohésive. Cette valeur est donc très intéressante.

Nos résultats précédents montrent que les liaisons type  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214^{\text{®}}$  étaient tributaires de l'intensité de contraintes aux niveaux de leurs interfaces. On peut conclure ici que les joints multicouches favoriseront la réduction de l'état des contraintes résiduelles ce qui permet de gagner en contraintes de cisaillement.

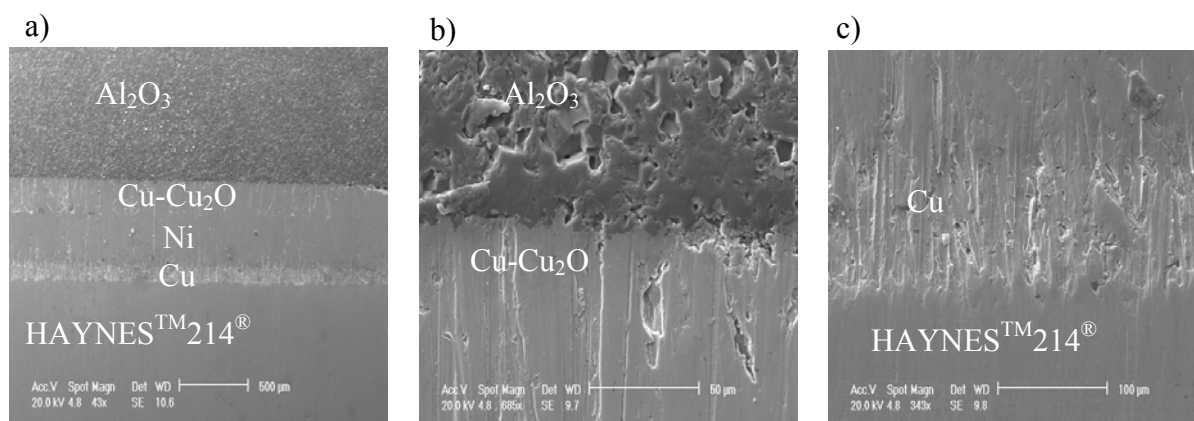


Figure VI.6: Micrographie par MEB du couple  $Al_2O_3/Cu_2O-Cu-Cu_2O/Ni/Cu/HAYNES^{TM}214^{\circledR}$ . a) vue général, b) interface  $Cu/Al_2O_3$ , c) interface  $Cu/HAYNES^{TM}214^{\circledR}$ .

### VI.3. COMPARAISON DES TENUES MECANIQUES

Concernant le système  $Al_2O_3/Cu/HAYNES^{TM}214^{\circledR}$ , nous avons remarqué que le traitement de pré oxydation du cuivre a amélioré la tenue mécanique de l'ordre de 15 MPa. Ce résultat confirme que l'oxygène joue un rôle important dans ce type de liaison. Le système  $Al_2O_3/Cu_2O-Cu-Cu_2O/Ni/Cu/HAYNES^{TM}214^{\circledR}$  quant à lui reste la solution technique la plus efficace qui nous permet d'atteindre une résistance mécanique au cisaillement très importante de l'ordre de 68 MPa (Figure VI.7).

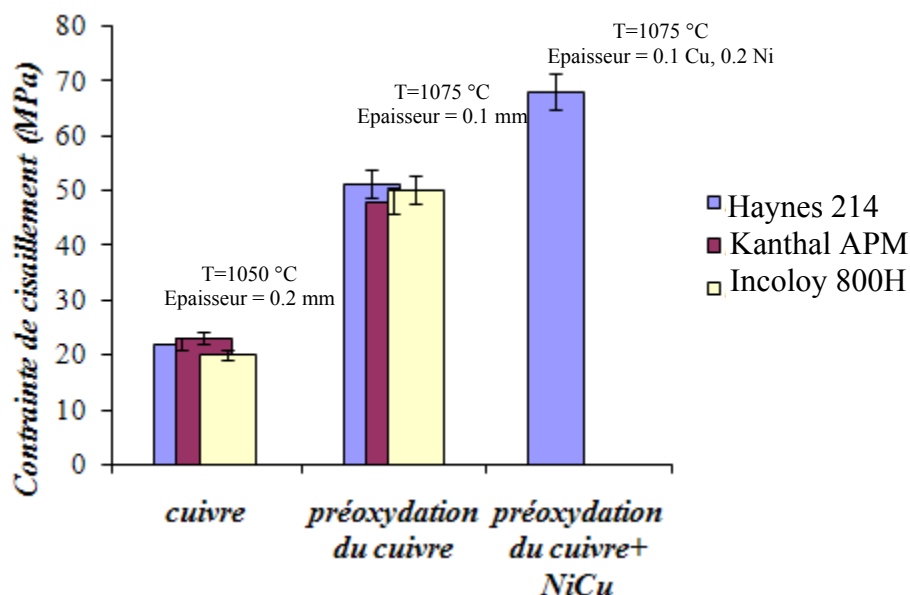


Figure VI.7: Contraintes de cisaillement maximales obtenues pour des systèmes  $Al_2O_3/HAYNES^{TM}214^{\circledR}$ , INCOLOY 800H et KANTHAL APM dans les conditions  $P = 1$  MPa et le temps  $t = 0$  heure.

#### VI.4. POST TRAITEMENT D'HOMOGENÉISATION

Afin d'augmenter la température de service du couple, un traitement thermique d'homogénéisation serait souhaitable. D'après le diagramme d'équilibre Ni-Cu (Figure VI.8), si on arrive à homogénéiser la solution solide Ni-Cu, la température de fusion du joint atteindra les 1300 °C pour des épaisseurs équivalentes en Ni et Cu. Il faut savoir cependant qu'un tel traitement peut durer longtemps et dépend des coefficients d'interdiffusion du cuivre et du nickel ainsi que de leur épaisseur relative.

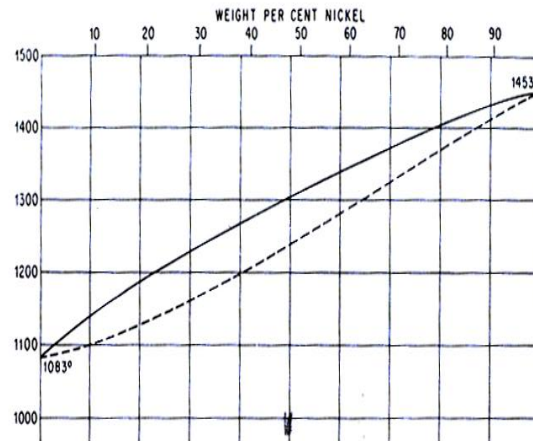


Figure VI. 8: Diagramme d'équilibre Ni-Cu [38].

Pour voir l'évolution de l'interface en fonction du temps, on a effectué un traitement thermique à 900 °C pendant 30 heures sous vide primaire dynamique. Ce traitement a révélé la formation d'un oxyde à l'interface  $\text{Cu}_2\text{O}-\text{Cu}/\text{Ni}$  d'une épaisseur moyenne de 7  $\mu\text{m}$  avec présence de porosités (Figure VI.9). L'analyse par EDX a permis d'identifier l'oxyde, il s'agit de l'oxyde de nickel NiO. Ce dernier est formé par la diffusion de l'oxygène issue de l'eutectique vers le joint de nickel. Son effet sur la tenue mécanique de l'assemblage est néfaste.

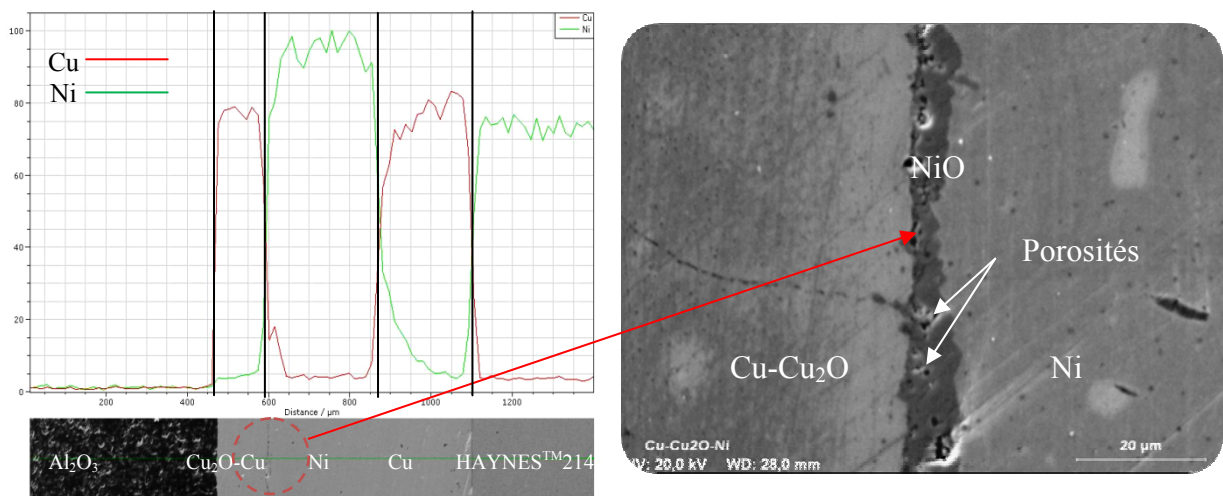


Figure VI. 9: Micrographie par MEB et Analyse ponctuelle et linéaire par EDX du système  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cu}_2\text{O}-\text{Cu}-\text{Cu}_2\text{O}/\text{Ni}/\text{Cu}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214^{\text{®}}$  après un traitement thermique à 900 °C pendant 30 heures.

Pour éviter la formation de d'oxyde de nickel ( $\text{NiO}$ ) lors du post traitement thermique, nous avons fait un polissage mécanique de la feuille de cuivre pré-oxydé du coté nickel, avant assemblage.

Un traitement thermique identique au précédent a été réalisé. La figure VI.10 montre une très bonne adaptation des différentes interfaces avec absence de l'oxyde de nickel entre  $\text{Cu}-\text{Cu}_2\text{O}/\text{Ni}$ .

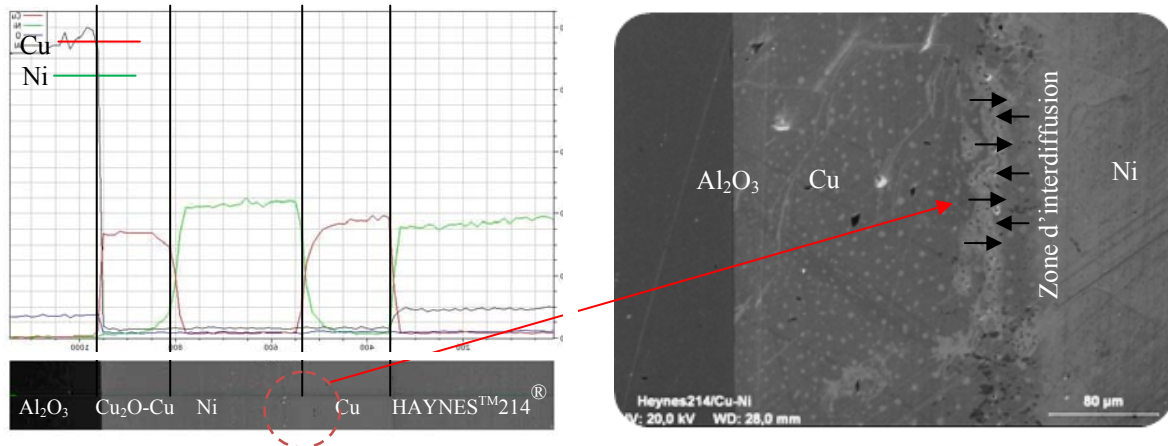


Figure VI. 10: Micrographie par MEB et analyse linéaire par EDX du système  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cu}_2\text{O}-\text{Cu}-\text{Cu}_2\text{O}/\text{Ni}/\text{Cu}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214^{\text{®}}$  après polissage mécanique du joint  $\text{Cu}-\text{Cu}_2\text{O}$  côté nickel.

## VI.5. CONCLUSION

L'utilisation du cuivre est intéressante surtout si on pratique la méthode de l'eutectique ; l'assemblage  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cu}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214^{\text{®}}$  conduit alors à des tenues en cisaillement supérieures à 50 MPa.

Les résultats sont encore supérieurs en utilisant un joint multicouche  $\text{Cu}/\text{Ni}/\text{Cu}$  complété par la méthode de l'eutectique avec le cuivre préoxydé côté alumine seulement (pour éviter la formation d'oxyde  $\text{NiO}$ ). Les résistances au cisaillement sont alors de 68 MPa. Outre les valeurs élevées de tenue mécanique, on notera que les conditions d'élaboration correspondent à celle d'un brasage (charge appliquée extrêmement faible 1 MPa) ce qui rend possible des assemblages de grande série, par exemple dans des fours à passage. Le handicap lié à la thermocompression (Charge de 16 MPa pour le joint Ni) est alors résolu.

Pour comprendre cet effet bénéfique, nous avons repris les mesures expérimentales de contraintes résiduelles par diffractions des rayons X, d'indentation et des mesures d'énergie de rupture interfaciale sur ce couple optimisé. Compte tenue de la complexité du joint multicouche dont les propriétés évoluent en fonction de la température, et sont donc difficiles à intégrer, nous n'avons pas repris le calcul par éléments finis.



*Chapitre VI- Partie B*



=====  
*CARACTÉRISATIONS MÉCANIQUES*  
=====



**Caractérisation des liaisons par des essais de flexion 4 points****VI.6. ESSAIS DE FLEXION 4 POINTS (DÉLAMINAGE)**

Les trois types d'assemblage (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ni/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ni/HAYNES<sup>TM</sup>214<sup>®</sup> et Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Cu<sub>2</sub>O-Cu-Cu<sub>2</sub>O/Ni/Cu/HAYNES<sup>TM</sup>214<sup>®</sup>) ont été étudiés afin de calculer leurs énergies de rupture interfaciale  $G_{IC}$  selon l'essai de délaminage décrit au chapitre III (cf. Chapitre III, § III.7.1.b). Cette énergie est calculée pour deux épaisseurs différentes de la céramique ( $E_c = 0.381$  et  $0.635$  mm,  $E_a = 5$  mm). Les conditions de thermocompression utilisées sont mentionnées dans le tableau VI.4.

Type d'assemblage	T (°C)	P (MPa)	t (h)
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /Ni/Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	1150	4	1
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /Ni/HAYNES <sup>TM</sup> 214 <sup>®</sup>	1150	4	1
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /Cu <sub>2</sub> O-Cu-Cu <sub>2</sub> O/Ni/Cu/HAYNES <sup>TM</sup> 214 <sup>®</sup>	1075	1	0.5

Tableau VI. 4: Conditions expérimentales utilisées pour l'élaboration des éprouvettes de flexion 4 points ( $E_a = 5$  mm,  $E_{j_{Cu}} = 0.1$  mm,  $E_{j_{Ni}} = 0.2$  mm).

Pour déterminer la délamination, nous avons pu suivre par émission acoustique la liaison Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ni/HAYNES<sup>TM</sup>214<sup>®</sup> au cours de l'essai de flexion 4 points (délaminage).

La figure VI.11 montre les courbes  $F = f(t)$  obtenues lors des essais de flexion 4 points sur l'alliage HAYNES<sup>TM</sup>214<sup>®</sup> utilisés pour l'étude de l'adhérence de l'alumine.

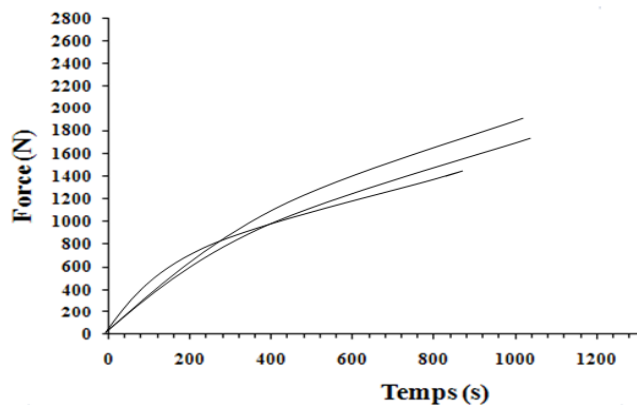


Figure VI. 11: Courbe de flexion 4 points de l'alliage HAYNES<sup>TM</sup>214<sup>®</sup> non assemblé.

Au cours de ces essais, aucune émission acoustique n'a été détectée, ce qui nous permet d'affirmer que la plasticité de cet alliage ne peut être analysée avec le système d'acquisition d'émission acoustique que nous avons employé. Par la suite, l'émission acoustique enregistrée au cours des essais de délaminage proviendra donc forcément de la fissuration de l'alumine assemblée et de l'interface métal/céramique.

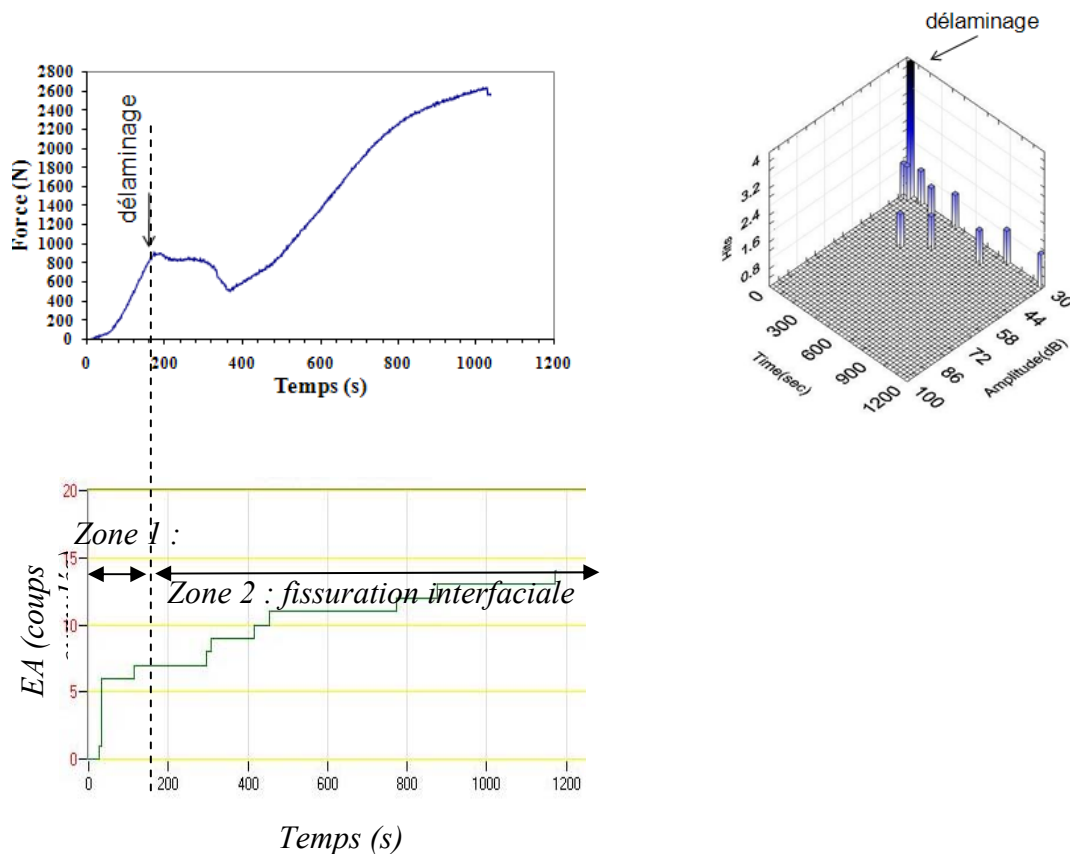


Figure VI. 12: Essai de délaminage d'un assemblage  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cu}_2\text{O}-\text{Cu}-\text{Cu}_2\text{O}/\text{Ni}/\text{Cu}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214^{\text{®}}$ .

L'émission acoustique est donc utilisée pour détecter les temps et la force auxquels a lieu le délaminage (cf. III.7.1). La courbe coups cumulés =  $f(t)$  présente 2 zones (Figure VI.12) :

- une zone 1 avec un taux d'événements très faible : elle est caractéristique de la microfissuration et de l'amorçage de la fissure,
- une zone 2 avec un taux d'événements plus élevé pour laquelle la fissure est interfaciale.

Ceci permet de connaître la force correspondant au délaminage. Le changement de pente détermine le temps et la force auxquels il y a délaminage.

Les valeurs d'énergies de rupture obtenues pour différentes épaisseurs d'alumine sont regroupées dans le tableau VI.5. Dans le tableau VI.6 sont rassemblées pour comparaison quelques valeurs de la littérature.

Type d'assemblage	Épaisseur Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (mm)	Nombre d'échantillon	G <sub>IC</sub> (J/m <sup>2</sup> )
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /Ni/Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.381	2	6 ± 2
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /Ni/Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	0.635	2	4 ± 1
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /Ni/HAYNES <sup>TM</sup> 214 <sup>®</sup>	0.381, R' ≈ 0.08	4	0
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /Ni/HAYNES <sup>TM</sup> 214 <sup>®</sup>	0.635, R' ≈ 0.13	2	1.5 ± 0.5
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /Cu <sub>2</sub> O-Cu-Cu <sub>2</sub> O-Ni-Cu/HAYNES <sup>TM</sup> 214 <sup>®</sup>	0.381, R' ≈ 0.08	3	122 ± 8
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /Cu <sub>2</sub> O-Cu-Cu <sub>2</sub> O-Ni-Cu/HAYNES <sup>TM</sup> 214 <sup>®</sup>	0.635, R' ≈ 0.13	3	89 ± 12

Tableau VI. 5: Essais de délaminage réalisés sur différents couples étudiés (E<sub>a</sub> = 5mm, E<sub>jCu</sub> = 0.1 mm, E<sub>jNi</sub> = 0.2 mm).

Type d'assemblage	Température (°C)	G <sub>IC</sub> (J/m <sup>2</sup> )
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /Ni/Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> [22]	1050	6
	1100	31
	1150	33
	1250	34
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /Nb/Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> [47]	-	80±30
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /verre/Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> [136]	-	8±1
Au/saphire (0001) [163]	-	30-60

Tableau VI. 6: Quelques valeurs de l'énergie de rupture interfaciale trouvées dans la littérature.

Dans le cas de la liaison Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ni/HAYNES<sup>TM</sup>214<sup>®</sup>, le délaminage s'effectue bien avant que le seuil de plasticité de l'alliage soit atteint et la rupture de la céramique est mixte. On note la présence de fissures sur la céramique même avant l'essai mécanique. La réalisation de cette liaison nous a posé beaucoup de problèmes contrairement au cas de la liaison Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ni/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Il s'agit sans doute du problème des contraintes résiduelles et pourtant on est a priori dans un cas favorable R' < 1 (cf. Chapitre V, Tableaux V.3 et 6). L'explication peut-être liée à la géométrie de l'éprouvette de délaminage (R = 0.004).

L'observation du comportement à la rupture de la liaison Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Cu<sub>2</sub>O-Cu-Ni-Cu/HAYNES<sup>TM</sup>214<sup>®</sup> montre que la fissuration interfaciale est amorcée lorsque la déformation plastique de l'alliage commence et elle se propage brutalement jusqu'aux plots internes du montage de flexion 4 points. La rupture est adhésive. On remarque une valeur très élevée de l'énergie de rupture interfaciale comparativement aux autres liaisons (89 ± 12 et 122 ± 9 MPa). Les valeurs de G<sub>ic</sub> sont comparables à celle des meilleures interfaces métal/céramique (Nb/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> et Au/saphire (0001)) comme on peut le voir dans le tableau VI.6. Il faut noter que l'on est supérieur avec une alumine de faible épaisseur, ce qui est le cas dans la géométrie de l'éprouvette de délaminage résultats déjà confirmés par la simulation numérique et les essais de cisaillement (cf. Chapitre V, § V.3 et V.9.2). On confirme donc encore l'excellente tenue des assemblages Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Cu-Cu<sub>2</sub>O-Ni-Cu/HAYNES<sup>TM</sup>214<sup>®</sup>.

## Résultats des mesures de contraintes résiduelles par la méthode d'indentation Vickers

Cette partie du chapitre présente nos résultats expérimentaux sur les contraintes résiduelles obtenus dans le multimatériau  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cu}_2\text{O}-\text{Cu}-\text{Cu}_2\text{O}/\text{Ni}/\text{Cu}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214^{\text{®}}$  par la méthode d'indentation Vickers. Une comparaison avec les résultats obtenus précédemment sur l'assemblage Alumine/Ni/ HAYNES<sup>TM</sup>214<sup>®</sup> a été faite.

### VI.7. TÉNACITÉS À L'INTERFACE $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cu}_2\text{O}-\text{Cu}-\text{Cu}_2\text{O}$

Des mesures de  $K_{IC}$  ont été effectuées sur des échantillons  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cu}_2\text{O}-\text{Cu}-\text{Cu}_2\text{O}/\text{Ni}/\text{Cu}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214^{\text{®}}$  thermocompressés. Les résultats révèlent une plus faible diminution du  $K_{IC}$  de l'alumine près de l'interface par rapport au cas de la liaison  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214^{\text{®}}$  (Figure VI.14). Cette amélioration du  $K_{IC}$  confirme nos résultats sur la bonne tenue mécanique en cisaillement des assemblages réalisés par la méthode de l'eutectique. Il semble que le cuivre affecte moins la ténacité de l'alumine que le nickel.

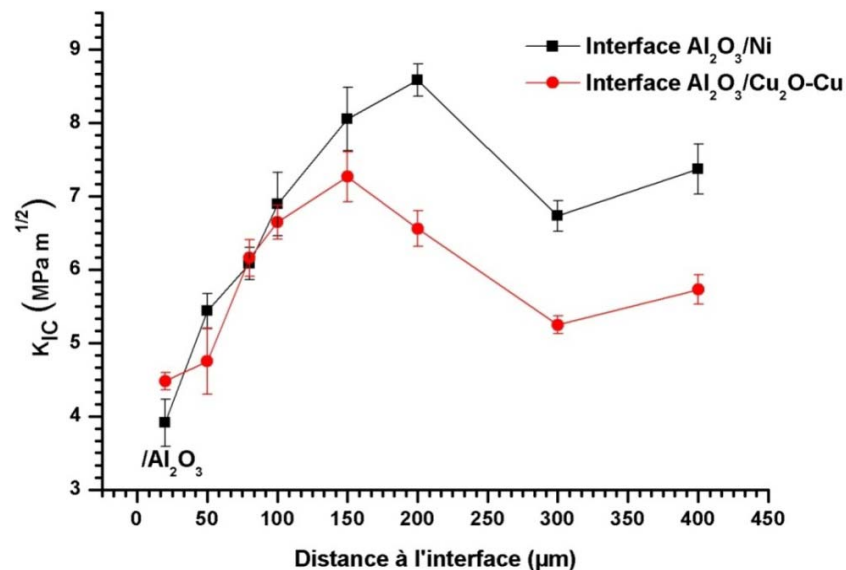


Figure VI. 13 : Variation de  $K_{IC}$  pour le cas du couple  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214^{\text{®}}$  et  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cu}_2\text{O}-\text{Cu}-\text{Cu}_2\text{O}/\text{Ni}/\text{Cu}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214^{\text{®}}$ .

### VI.8. ESTIMATION DES CONTRAINTES RÉSIDUELLES PAR INDENTATION VICKERS

Les résultats obtenus avec l'interface  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214^{\text{®}}$  ont été comparés avec le cas de l'assemblage  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cu}_2\text{O}-\text{Cu}-\text{Cu}_2\text{O}/\text{Ni}/\text{Cu}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214^{\text{®}}$ . La figure VI.15 représente la variation du niveau de contraintes résiduelles ( $\sigma_{yy}$ ) en fonction de la distance à l'interface pour les deux interfaces.

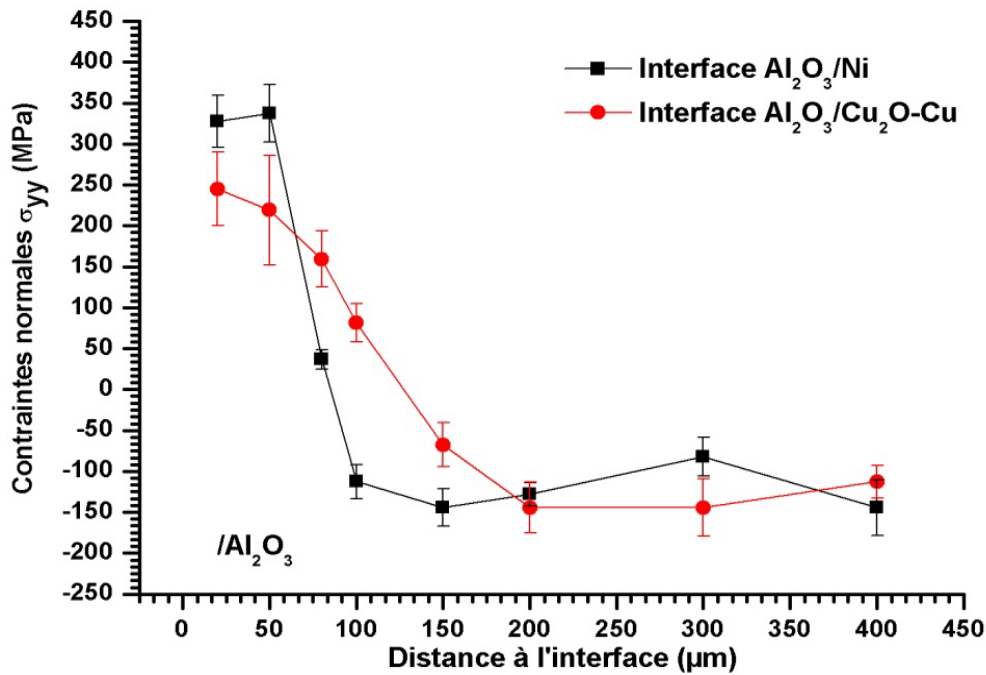


Figure VI. 14: Niveau des contraintes résiduelles des liaisons  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214^{\text{®}}$  et  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cu}_2\text{O-Cu-Ni-Cu}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214^{\text{®}}$ .

Nos estimations des niveaux de contraintes résiduelles dans les couples  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214^{\text{®}}$  et  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cu}_2\text{O-Cu-Ni-Cu}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214^{\text{®}}$  sont différents ( $318 \pm 34$  MPa,  $245 \pm 22$  MPa, respectivement). De plus, le profil de contraintes est moins abrupt. Avec du cuivre, les contraintes résiduelles devraient être plus fortes, si l'on se réfère seulement à la différence de coefficients de dilatation thermique du nickel et du cuivre avec l'alumine ( $\Delta\alpha = 6,2 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$  et  $9,8 \cdot 10^{-6} \text{ K}^{-1}$  respectivement). Ce n'est pas ce que nous observons, nous confirmons que ce paramètre, trop souvent avancé, est souvent mis en défaut par l'expérience comme nous l'avons souligné dans la bibliographie (cf. Chapitre II, § II.8).

Est-ce que la profondeur de la diffusion en est la cause ?

L'hypothèse de la diffusion a été introduite par *Sérier* [31] dans le cas des liaisons  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ag}/\text{Al}_2\text{O}_3$ . Nos résultats avec le nickel vont dans le même sens à savoir la baisse de la ténacité est immédiate après élaboration et se renforce avec le temps de diffusion.

Dans les études menées sur les assemblages  $\text{Ag}/\text{Alumine}$  [31] et  $\text{Pt}/\text{Alumine}$  [23] comparés avec  $\text{Cu}/\text{Alumine}$  [3], la fragilisation a été reliée à la taille de l'atome de cuivre qui est inférieure à celle de l'argent et du platine [23]. Par conséquent cette différence de taille peut être à l'origine d'une fragilisation plus prononcée de l'alumine par l'argent et le platine. Dans notre cas, nous attribuons cette différence de contrainte aux paramètres de fluage car le cuivre flue plus que le nickel dans le cas de la méthode de l'eutectique puisqu'il passe à l'état liquide, et ne peut être dû à la taille des deux atomes qui est de même ordre de grandeur ( $R_{\text{Ni}} = 0.124\text{nm}$  et  $R_{\text{Cu}} = 0.128\text{nm}$ ) [23]. De plus, la température de la liaison avec le joint en cuivre est plus basse qu'avec le joint en nickel ( $1075 \text{ °C}$  et  $1150 \text{ °C}$  respectivement), ce qui limite la diffusion et rend la comparaison difficile.

**Résultats des mesures de contraintes résiduelles obtenues par la méthode de la diffraction X****VI.9. PROFILS BRUT DES CONTRAINTES EN FONCTION DE LA DISTANCE À L'INTERFACE**

Les profils de la figure VI.16, sont réalisés pour le système  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cu}_2\text{O}-\text{Cu}/\text{Ni}/\text{Cu}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214^{\text{R}}$  selon les deux directions citées dans le chapitre V, figure V.34.

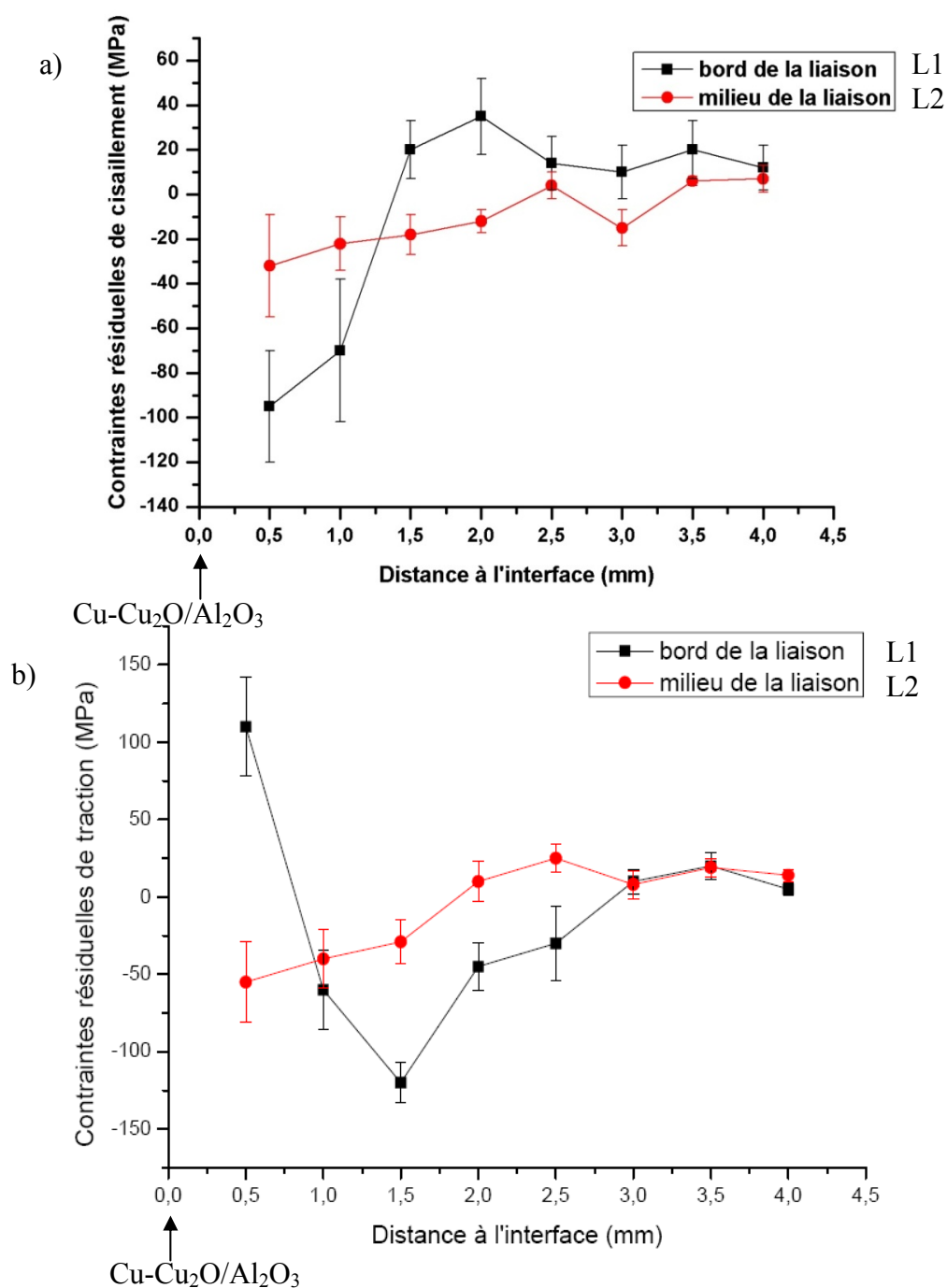


Figure VI. 15: Profil des contraintes résiduelles par diffraction X de la liaison  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cu}_2\text{O}-\text{Cu}/\text{Ni}/\text{Cu}/\text{HAYNES}^{\text{R}}214^{\text{TM}}$ . a) profil de contraintes de cisaillement  $\sigma_{xy}$ , b) profil de contraintes normales  $\sigma_{yy}$ .

Près du bord libre de l'alumine, les contraintes résiduelles de traction  $\sigma_{yy}$  sont positives. Elles sont très élevées sur le bord de la liaison et atteignent une valeur de  $107 \pm 32$  MPa à 0.5 mm de l'interface. On note une tendance très faible à la compression loin de 1 mm de l'interface. Cet état de contrainte présente le cas le plus favorable. Les contraintes résiduelles de traction  $\sigma_{yy}$  et de cisaillement  $\sigma_{xy}$  au milieu de la liaison sont toujours en compression et tendent vers des valeurs nulles loin de l'interface.

La comparaison de différents assemblages réalisés montre clairement que les contraintes résiduelles en système dissymétrique  $\text{Al}_2\text{O}_3$ /alliage semblent importantes ce qui conduit à une fragilisation de l'alumine. Ces contraintes sont plus élevées avec le nickel ( $201 \pm 53$  MPa) qu'avec le multicouche de cuivre. L'utilisation de ce dernier permet de se rapprocher de l'état de contrainte du système  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{Al}_2\text{O}_3$  (Figure VI.16).

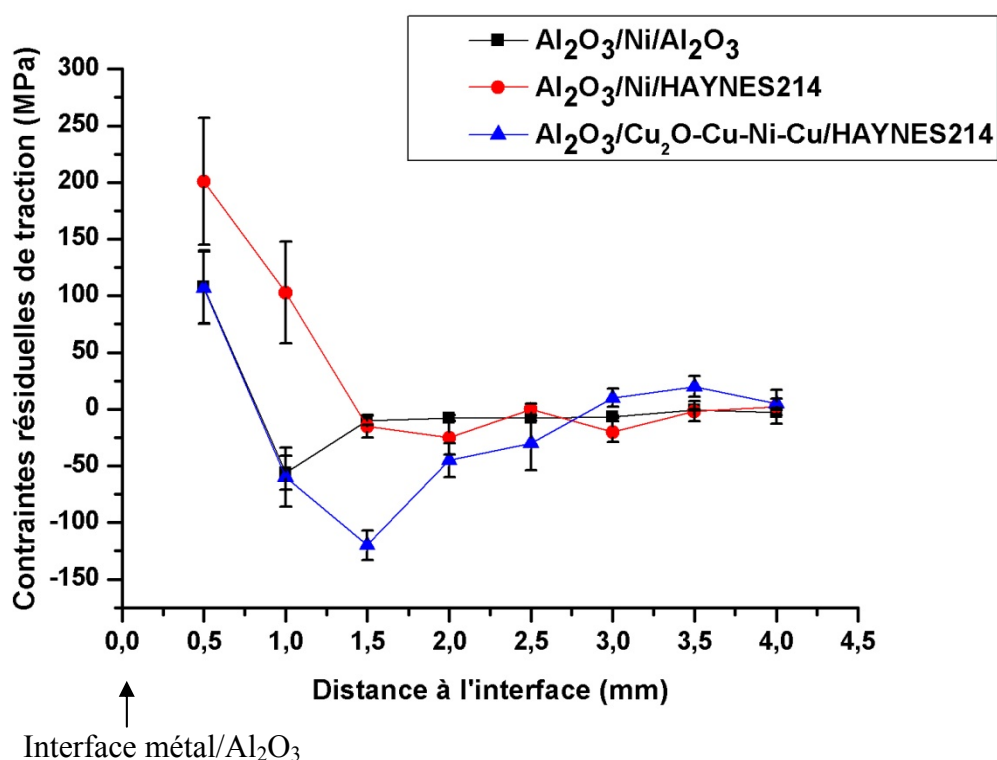


Figure VI. 16: Comparaison des contraintes résiduelles de traction déterminées par diffraction des rayons X sur le bord de trois types d'assemblages réalisés  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214^{\text{®}}$  et  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cu}_2\text{O-Cu-Ni-Cu}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214^{\text{®}}$ .

***Corrélation entre la répartition de la charge d'espace et les contraintes résiduelles*****VI.10. CARACTÉRISATION DU PIÉGEAGE DES CHARGES SUR UNE ALUMINE APRÈS LIAISON**

Les conditions expérimentales sont celles décrites dans le chapitre V § V.16. Les caractéristiques d'injections d'électrons sont décrites dans le tableau VI.7. Les miroirs sont plus ou moins stables dans certains cas et plus ou moins déformés à cause de la rugosité de la surface ou du champ de contraintes résiduelles près de l'interface Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Cu<sub>2</sub>O-Cu. On note dans certain cas l'existence de phénomènes de relaxation des charges près de l'interface comme pour la liaison Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ni/HAYNES<sup>TM</sup>214<sup>®</sup>.

<i>Distance à l'interface (μm)</i>	<i>I<sub>max</sub> (pA)</i>	<i>Q<sub>m</sub> (pC)</i>	<i>Q<sub>p</sub> (pC)</i>	<i>Q<sub>p</sub>/Q<sub>m</sub></i>	<i>relaxations</i>
Avant liaison	942.187	47.65	46.1	0.967	non
20 μm	822.43	58.2	37.5	0.644	Oui
45 μm	788.33	29.12	-	-	-
80 μm	790.45	28.32	-	-	-
120 μm	844.21	26.1	-	-	-
250 μm	756.2	26.45	12.3	0.465	non
1000 μm	734.12	22.1	14.45	0.653	non

*Tableau VI. 7: Mesures caractéristiques des injections et des miroirs proche de l'interface Cu<sub>2</sub>O-Cu/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.*

La comparaison des résultats présentés dans les figures VI.18 et V.43 et les tableaux VI.7 et V.9 pour les assemblages Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ni/HAYNES<sup>TM</sup>214<sup>®</sup> et Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Cu<sub>2</sub>O-Cu/Ni/HAYNES<sup>TM</sup>214<sup>®</sup> montre clairement que si on prend l'hypothèse de l'augmentation de la capacité de la charge avec l'intensité des contraintes on peut en déduire que l'assemblage Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Cu<sub>2</sub>O-Cu-Ni-Cu/HAYNES<sup>TM</sup>214<sup>®</sup> est moins contraint que l'assemblage Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ni/HAYNES<sup>TM</sup>214<sup>®</sup> (Q<sub>m</sub> plus faible), ce qui a été toujours prouvé dans nos résultats précédents (essai de cisaillement, flexion, indentation et diffraction X) (Figure VI.17).



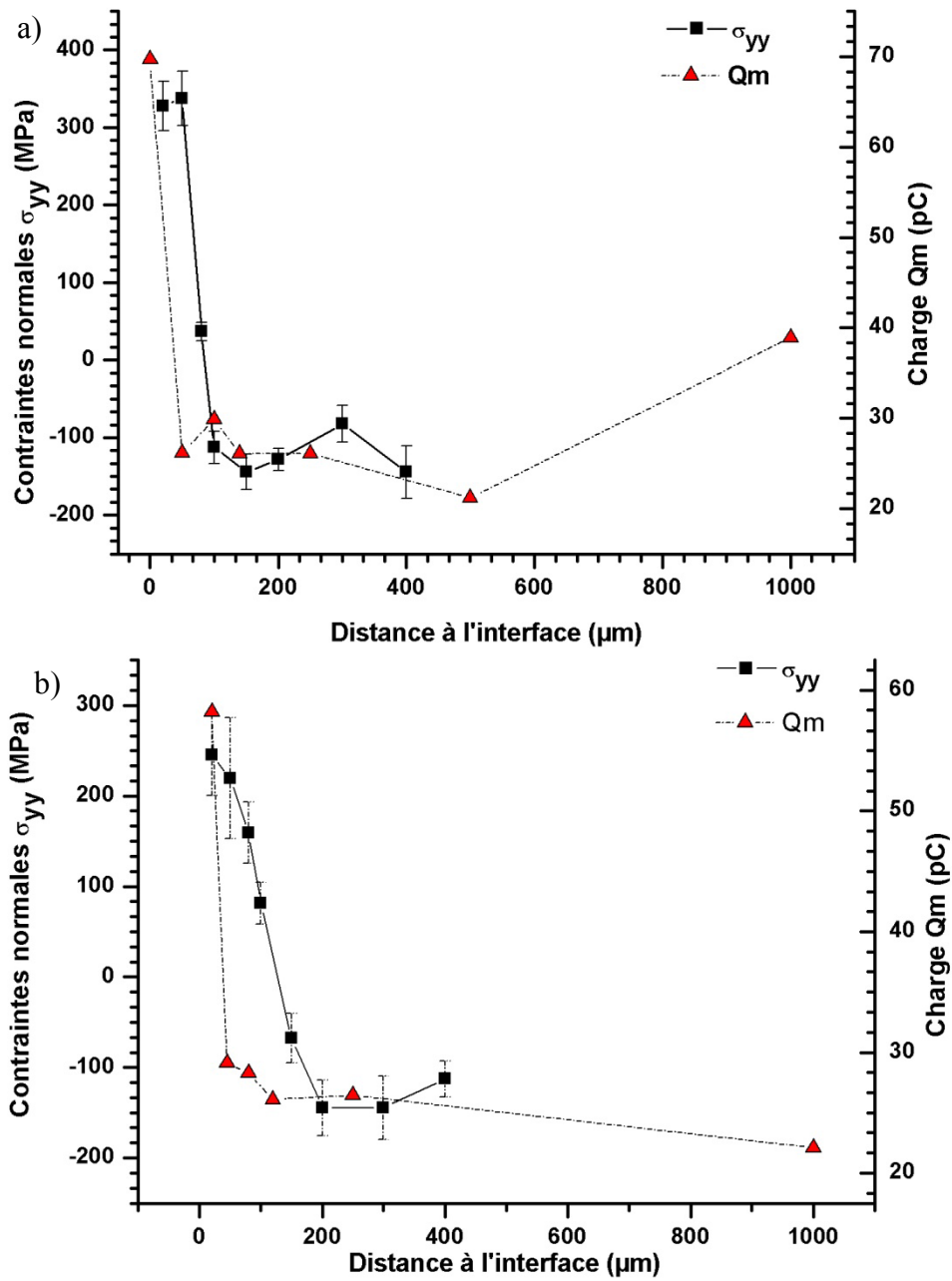


Figure VI. 17: Comparaison entre la quantité de charge d'influence  $Q_m$  dans les deux types d'assemblage a)  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214^{\text{®}}$ , b)  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Cu}_2\text{O-Cu-Ni-Cu}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214^{\text{®}}$ .

# **CONCLUSION GÉNÉRALE**

## CONCLUSION

L'objectif de cette étude était d'étudier la faisabilité de réalisation de liaisons métal/céramique destinées à un fonctionnement à hautes températures ( $> 800\text{ °C}$ ) dans une atmosphère agressive (Corrosion). Deux céramiques techniques industrielles ont été retenues : le carbure de silicium SiC et l'alumine  $\text{Al}_2\text{O}_3$ . Elles sont assemblées à un superalliage de Nickel réfractaire (HAYNES<sup>TM</sup>214<sup>®</sup>), selon le procédé de thermocompression sous vide, par l'intermédiaire d'un joint métallique de faible épaisseur.

Pour atteindre cet objectif, une approche expérimentale et numérique a été utilisée. Les principales idées qu'il faut retenir de ce travail sont :

### *✍ Pour l'utilisation du SiC ;*

- La réalisation des liaisons carbure de silicium/alliage à haute température ( $> 700\text{ °C}$ ) semble dans certains cas très difficile, voire impossible, vue la forte réactivité de la céramique avec les métaux par la formation de siliciures. Le nickel et le cuivre réagissent avec le SiC dès l'état solide et forment des siliciures qui provoquent des fissurations. L'origine de ces fissurations est liée à la différence de coefficient de dilatation thermique existant entre le SiC et à la grande fragilité de ces siliciures. Ce problème est non résolu même par l'addition de bore.
- La forte réactivité du SiC avec l'alliage de nickel nous a conduit à rechercher une barrière de diffusion entre l'alliage et la céramique. Un joint d'argent ne formant aucun siliciure permet d'éviter cette réactivité et conduit ainsi à des tenues mécaniques en cisaillement significatives (45 MPa) avec une estimation de durée de service supérieure à 10 000 h à  $700\text{ °C}$ . Une optimisation serait à faire en particulier avec une analyse des contraintes résiduelles et des conditions opératoires pour renforcer l'interface Ag/alliage qui se révèle plus faible que l'interface SiC/Ag.

### *✍ Pour l'utilisation de l'alumine ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) ;*

- La réalisation de liaisons alumine/alliage est toujours délicate. La formation des phases vitreuses à l'interface dans le cas de l'alumine industrielle et le différentiel des coefficients de dilatation des deux matériaux empêchent l'obtention des liaisons et minimisent la résistance de l'interface. Pour résoudre le problème du ressuage des phases vitreuses, plusieurs propositions ont été testées. Parmi ces propositions, seuls le traitement thermique suivi d'un polissage avant liaison et l'utilisation d'une alumine de haute pureté donnent des résultats satisfaisants.
- De toute façon, le différentiel des coefficients de dilatation thermique entre l'alumine, le nickel et l'alliage induit la naissance de contraintes résiduelles lors du refroidissement de l'assemblage. Ces contraintes ont été mesurées par indentation Vickers, diffraction des rayons X et par simulation numérique. La méthode d'indentation confirme en outre que les liaisons réalisées à l'état solide et par brasage

affectent l'alumine par une fragilisation sur une distance de 50  $\mu\text{m}$  de l'interface (diminution de la ténacité  $K_{IC}$  dans la zone de liaison alumine/métal d'apport, fissuration de l'alumine sur les bords). Cette chute de  $K_{IC}$  peut être expliquée par :

- ✓ L'existence du champ de contraintes résiduelles.
- ✓ La diffusion du métal dans la céramique, en particulier le long des joints de grains, qui accentue la baisse de la ténacité par création de contraintes mais aussi par création de sites de piégeage de charges électriques.
- Si on s'intéresse au problème des contraintes résiduelles, l'ensemble conduit à une zone de tension dans la céramique proche de l'interface et sur les bords. Le reste de la céramique est largement dominé par des contraintes de compression. Ces résultats ont été bien montrés par la méthode d'indentation, la diffraction des rayons X ainsi que par les résultats de la simulation numérique.
- Le modèle élasto-visco-plastique (EVP) est indispensable pour rendre compte des contraintes résiduelles dans un système alumine/alliage.
- La méthode diffractométrique est un outil de précision au même titre que la modélisation par éléments finis. Ces deux méthodes ont été comparées avec la méthode d'indentation lors de l'étude de l'assemblage. Les résultats sont encourageants et présentent une bonne corrélation et invitent à développer les investigations de modélisation des contraintes résiduelles dans le cas de système multicouche CuNiCu. Les axes de recherches futures devront prendre en considération de façon plus précise cet aspect.
- Le phénomène de diffusion du métal dans la céramique est un phénomène généralement négligé. Il peut cependant modifier les contraintes résiduelles et les propriétés mécaniques de la céramique au voisinage de l'interface. Son existence a été confirmée par les mesures de ténacités. Il n'est pas pris en compte dans la modélisation, alors qu'il est intégré dans deux mesures expérimentales (indentation, effet des charges électriques). Ceci peut être à l'origine des différences observées entre modélisation et mesures.
- La comparaison des tenues mécaniques de l'assemblage  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{HAYNES}^{\text{TM}}214^{\text{®}}$  avec l'assemblage  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ni}/\text{Al}_2\text{O}_3$  montre que ce dernier présente toujours des tenues mécaniques au cisaillement plus élevées. Il est à noter que l'utilisation de l'alliage a conduit à la fragilisation de l'alumine par localisation des fissures sur les bords libres (points singuliers).

*➤ Du point de vue technologique :*

- Afin de réaliser dans de bonnes conditions un assemblage métal/céramique par thermocompression avec des contraintes résiduelles les plus faibles possibles nous avons proposé de tenir comptes des points suivants :
  - ✓ Application de la pression au début du palier et pendant le refroidissement.
  - ✓ Tenir compte du paramètre R: épaisseur du joint/longueur du contact ( $E_j/l$ ). Un rapport R faible dans le cas de la liaison  $Al_2O_3/Ni/HAYNES^{TM}214^{\circledR}$  permet d'avoir de forte concentration de contrainte et par conséquent l'endommagement de l'assemblage. L'optimum pour ce cas est  $R=0.033$ . Contrairement à cela, un rapport R faible dans le cas de la liaison  $Al_2O_3/Ni/Al_2O_3$  permet de minimiser les contraintes. L'optimum pour ce cas est  $R=0.083$ .
  - ✓ Tenir compte du paramètre R': épaisseur de la céramique/épaisseur de l'alliage ( $E_c/E_a$ ). Pour une faible épaisseur de la céramique c'est-à-dire pour  $R' < 1$ , les contraintes sont minimales. L'optimum est pour  $R' = 0.06$ .
  - ✓ Choisir une géométrie cylindrique minimisant les contraintes par rapport à une géométrie prismatique.
  - ✓ Malgré ces recommandations, la liaison  $Al_2O_3/Ni/HAYNES^{TM}214^{\circledR}$  reste soumise à de fortes concentrations de contraintes résiduelles sur le bord. Pour résoudre ce point nous avons proposé de travailler sur des systèmes multicouches CuNiCu qui ont permis d'accommoder les contraintes et d'améliorer la résistance de l'assemblage. De plus, la pré-oxydation des joints de cuivre nous a permis d'avoir de bonnes résistances au cisaillement et en flexion 4 points, par effet de mouillage et de réaction, avec formation de  $CuAlO_2$ .

Les points qu'il convient de développer concernent le niveau des contraintes juste à l'interface pour lequel les informations obtenues par nos techniques expérimentales ne permettent pas de conclure avec la précision requise.

Nous venons de définir un certain nombre de points pouvant aider à comprendre le comportement des céramiques vis-à-vis des métaux. Il ne faut cependant pas perdre de vue que ce type de liaison va être sollicité lors de leurs applications futures. Un travail supplémentaire doit prendre en considération l'évolution de différentes caractéristiques observées en fonction des contraintes de service.

**RÉFÉRENCES  
BIBLIOGRAPHIQUES**

## BIBLIOGRAPHIE

- [1] D. TREHEUX, F. GAILLARD, and M. ROMAND, Bull, Cercle d'étude des métaux, vol. XVI, no. 6, pp. 1.1-1.10, 1993.
- [2] N. IKHLEF, "Influence des éléments d'addition dans le cuivre ou implantés dans l'alumine sur l'adhérence à l'état solide du systèmes cuivre/alumine," Ecole Centrale de Lyon, Lyon, Thèse de doctorat 1991.
- [3] M. COURBIERE, Ecole Centrale de Lyon, Lyon, Thèse de doctorat 1991.
- [4] M. LAVALOU, "Les céramiques industrieilles; Application industrielles et développements potentiels dans les alpes-Maritimes," C.A.R.M.A Centre d'animation régional en matériaux avancés, 1999.
- [5] M. COURBIERE, D. TREHEUX, C. BERAUD, and C. ESNOUF, Annales de chimie, vol. 12, no. ", pp. 295-312, 1987.
- [6] G. LASCAR, "Colloque liaisons céramique-métal," , Tarbes, 1987.
- [7] G. LASCAR, Soudage et Techniques connexes, pp. 9-20, 1987.
- [8] C. BERAUD, INSA Lyon, N° 86 ISAL 0017, Thèse de doctorat 1986.
- [9] J. PETIT, Matériaux et Techniques, pp. 13-21, mars 1989.
- [10] G. LASCAR, Verres réfract, vol. 39, no. 4, pp. 569-585, 1985.
- [11] J. KLOMP, Ceram.Bull, vol. 51, no. 9, pp. 683-688, 1972.
- [12] H. DE BRUIN, A. MOODIE, and C. WARBLE, Gold Bull, no. 5, pp. 62-64, 1972.
- [13] R. ALLEN and W. BORBIDGE, J.Mater.Sci, vol. 18, pp. 2835-2843, 1983.
- [14] S. MOROZUMI, M. KIKUCHI, and T. NISHINO, J.Mater.Sci, vol. 16, pp. 2137-2144, 1981.
- [15] D. JOSHUA et al., J.Euro.Cera.Soc, vol. 26, pp. 363-372, 2006.
- [16] J. PARK, F. PATRICIO, W. THOMAS, and EAGAR, Scripta Materialia, vol. 53, pp. 857-861, 2005.
- [17] O. DEZELLUS et al., Materials Science and engineering, pp. 1-2, 2008.
- [18] L. MONCEL, "Etude des mecanismes d'endommagement d'un assemblage cuivre/composite carbone-carbone sous chargement thermomécanique," Université de Bordeaux, Bordeaux, Thèse de doctorat 1999.
- [19] G. ELSSNER, T. SUGA, and M. TURWITT, Journal de physique, vol. C4, p. p 597.
- [20] M. GERL and J. ISSI, Physique des matériaux. Tome 8, 1997.
- [21] C. GUERRET-PIECOURT et al., European Physical Journal. Appl.Phys, vol. 28, no. 4, pp. 65-72, 2004.
- [22] P. LOURDIN, Ecole Centrale de Lyon, Lyon, Thèse de doctorat 1991.
- [23] B. MBONGO, "Liaisons métal-céramique par thermocompression, influence de l'état initial des matériaux et de la pression partielle d'oxygène," Ecole Centrale de Lyon, Lyon, Thèse de doctorat 1991.
- [24] C. CALOW and J. PORTER, J.Mater.Sci, vol. 6, pp. 156-163, 1971.
- [25] P. LOURDIN, D. JUVE, and D. TREHEUX, J. Euro.Ceram.Soc, vol. 16, pp. 745-752, 1996.
- [26] C. COLIN, Ecole Normale Supérieure des Mines de Paris, Paris, Thèse de doctorat 1991.

- [27] D. TREHEUX, S. FAYEULLE, V. GUIPONT, and J. JACQUEMIN, Science in ceramic joining, pp. 311-318, 1998.
- [28] J. RITTER and M. BURTON, Trans of the Metall Soc of Aim, vol. 239, pp. 21-26, 1967.
- [29] J. DUH and W. CHIEN, J.Mater.Sci, vol. 25, pp. 1529-1536, 1990.
- [30] B. DERBY, J.Mater.Sci, pp. 319-328, 1986.
- [31] B. SERIER, Ecole Centrale de Lyon, Lyon, Thèse de doctorat 1991.
- [32] P. DRILLET, "Contribution à l'étude des liaisons céramique/métal: Elaboration et études structurales d'interfaces alumine/nickel," Université de Rennes, Rennes, Thèse de doctorat 1996.
- [33] J. BURGESS, C. NEUGEBAUER, and E. FLANAGAN, J.Electrotech.Soc, vol. 122, p. 689, 1975.
- [34] G. BABCOK, W. BRUYANT, C. NEUGEBAUER, and J. BURGESS, Brevet US N° 3 766 634.
- [35] D. CUSANO, J. LOUGHRAN, and Y. SUN, Brevet US N° 3 944 430.
- [36] S. MELLUL, Université de Paris VI, Paris, Thèse de doctorat 1988.
- [37] Y. YOSHINO, J.Amer.Ceram, vol. 72, no. 8, pp. 1322-1327, 1985.
- [38] M. HANSEN and K. ANDERKO, Constitution of binary alloys, 1th ed. New York: McGraw-Hill, 1958.
- [39] B. GALOIS, University of Pittsberg USA, Thèse de doctorat 1980.
- [40] A. CHAKLADER, W. GILL, and S. MERMOTRA, J.Mater.Sci.res, vol. 14, pp. 421-432, 1981.
- [41] J. DICKSON, Int.J.Hybrid.Microelect, vol. 5, no. 2, pp. 103-109, 1982.
- [42] A. KARA-SLIMANE, "Assemblage métal/céramique (oxyde,nitruure) par métallisation brasage: influence des interactions chimiques dans les zones interfaciales," Ecole Centrale de Lyon, Lyon, Thèse de doctorat 1996.
- [43] G. ELSSNER and G. PETZOW, ISIJ international, vol. 30, no. 12, pp. 1011-1032, 1990.
- [44] A. KARA-SLIMANE, B. MBONGO, and TREHEUX, J. Adhesion.Sci.Technol, vol. 13, no. 1, pp. 35-48, 1999.
- [45] R. GOOD, , R. PARICK, Ed.: Marcel Dekker, 1981.
- [46] D. TREHEUX, P. LOURDIN, and D. JUVE, J.Phys, vol. 3, no. 4, pp. 1883-1898, 1994.
- [47] A. EVANS, M. RUHLE, B. DALGLEISH, and CHARALAMBIDES, J.Mater.Sci and Eng, vol. A126, pp. 53-64, 1990.
- [48] Y. NAIDICH, Progress in surface and membrane science, vol. 14, p. 353, 1981.
- [49] D. CHATAIN, I. RIVOLLET, and N. EUSTATHOPOULOS, J.Chim.Phys, vol. 84, p. 201, 1986.
- [50] D. CHATAIN, I. RIVOLLET, and N. EUSTATHOPOULOS, J.Chim.Phy, vol. 84, p. p 201, 1987.
- [51] D. SUSNITZKY, S. SUMMERFELT, and C. CARTER, Ultramicroscopy, vol. 30, pp. 249-255, 1989.
- [52] J. MC DONALD and J. EBERHART, Trans.Met.Soc.Aim, no. 239, p. 512.
- [53] W. SUTTON and FEINGOLD, The role of grain boundaries and surfaces in ceramics, W. a. P. III, Ed. New York: Plenum Press , 1966.



- [54] S. WOLF, A. LEVITT, and J. BROWN, Chem.Eng.Progr, p. 74, 1966.
- [55] M. NICHOLAS, J.mAter.Sci, vol. 3, pp. 9-14, 1968.
- [56] A. STONEHAM and P. TASKER, J.Phys, colloque C5, supplément au N°4, pp. 99-113, 1988.
- [57] B. DERJAGUIN and V. SMILGA, ibid, vol. 38, p. 4609, 1967.
- [58] K. TRUMBLE and M. RUHLE, Zei tschrift für metalkunde, vol. 81, no. 10, pp. 749-755, 1990.
- [59] G. BORDIER and C. NOGUERA, Le vide des couches minces, no. 260, pp. 268-275.
- [60] W. KINGERY, BOWEN, H.K, and D. ULMAN, Introduction to ceramics, 2th ed.: John Wiley & Son.
- [61] J. BIKERMAN, BERLIN: Springer Verlag, 1978, vol. 77, ch. 2nd Ed, pp. 1-66.
- [62] R. PILLIAR and J. NUTTING, Phil.Mag, vol. 16, pp. 181-188, 1967.
- [63] A. FEINGOLD and C.-Y. LI, Acta. Metal, vol. 16, p. 1101, 1968.
- [64] M. Mc LEAN and E. HONDROS, J.Mater.Sci, vol. 6, pp. 19-24, 1971.
- [65] C. MULDER and T. KLOMP, J.Phys, pp. 111-116, 1995.
- [66] T. HONG, J. SMITH, and D. SROLOVITZ, Acta.metal.Mater, vol. 43, p. p 2721, 1995.
- [67] S. LI, R. Arsenault, and P. JENA, J.Appl.Phys, vol. 83, p. 177, 1986.
- [68] C. RADO, Institut National Polytechnique de Grenoble, Grenoble, Thèse de doctorat 1992.
- [69] G. TREMOUILLES, J. DEREPE, and R. PORTIES, "11th international thermal spraying conference," , 1986, pp. pp. 445-454.
- [70] C. WAN, Institut National Polytechnique de grenoble, Grenoble, Thèse de doctorat 1992.
- [71] M. SEAH and E. HONDROS, Proc.R.Soc, no. 335, p. 191, 1973.
- [72] L. JIAN-GUO, Institut National Polytechnique de Grenoble, Grenoble, Thèse de doctorat 1988.
- [73] M. LAMY, Institut Nationale Polytechnique de Grenoble, Grenoble, Thèse de doctorat 2000.
- [74] D. CHATAIN, I. RIVOLLET, and N. EUSTATHOPOULOS, J. Chimie physique, vol. 84, no. 2, pp. 201-203, 1987.
- [75] K. JOHNSON and S. PEPPER, J.Appl.Phys, vol. 53, p. 6634, 1982.
- [76] C. CALOW and I. PORTER, "The solid state bonding of nickel to alumina," J.Mater.Sci, vol. 6, p. p 150, 1971.
- [77] F. BAILEY and W. BORBIDGE, J.Mater.Sci, vol. 14, p. 525, 1981.
- [78] C. VARDIMAN, J.Mater.Res, Bull, vol. 7, p. 699, 1972.
- [79] A. EVANS, B. DALGLEISH, and J. HUTCHINSON, Acta.metal, vol. 37, p. 3249, 1989.
- [80] F. ERDOGAN and G. SIH, ASME.J.Appl.Mech, vol. 32, pp. 418-423, 1965.
- [81] J. RICE and G.C.SIH, ASME.J.Appl.Mech, vol. 32, pp. 418-423, 1965.
- [82] J. HUTCHINSON, M. MEAR, and J. RICE, ASME.J.Appl.Mech, vol. 54, pp. 828-832, 1987.
- [83] J. DUNDERS, ASME.J.Appl.Mech, vol. 36, pp. 1923-1931, 1989.
- [84] M. HE and J. HUTCHINSON, ASME.J.Appl.Mech, vol. 56, no. 2, pp. 270-278, 1989.

- [85] M. COMNINOU, ASME.J.App.Mech, vol. 44, pp. 631-636, 1977.
- [86] M. HE and A. EVANS, Acta.metall.Mater, vol. 39, no. 7, pp. 1587-1593, 1991.
- [87] J. KNOTT, Fundamentals of fracture Mechanics. Londre: Ed. Butherworth, 1973.
- [88] B. LAWN and T. WILSHAM, Fracture of brittle solids.: Cambridge University Press, 1975.
- [89] A. EVANS and J. HUTCHINSON, Acta.Met, vol. 37, p. 909, 1989.
- [90] H. CAO and A. EVANS, Mech.of Mat, vol. 7, pp. 295-304, 1989.
- [91] Z. SUO and J. HUTCHINSON, Int J.Solids Struct, vol. 25, p. 1337, 1989.
- [92] M. MU and A. EVANS, Acta.Met, vol. 39, pp. 1587-1503, 1989.
- [93] J. HOWE, International materials reviews, vol. 38, p. 233, 1993.
- [94] J. HOWE et al., Joining and adhesion of advanced inorganic materials.: MRS, 1993.
- [95] B. DALGLEISH, K. TRUMBLE, and A. EVANS, Acta.Metall, vol. 37, no. 7, pp. 1923-1991, 1989.
- [96] M. DRORY and A. EVANS, J.Am.Ceram.Soc, vol. 73, p. 634, 1990.
- [97] J. SPRAUEL, "Etude par diffraction X des facteurs mécaniques influençant la corrosion sous contraintes d'aciers inoxydables," Université Paris VI, Paris, Thèse de doctorat 1988.
- [98] L. L. MET-X, "Détermination des contraintes résiduelles par diffraction des rayons X," ENSAM Paris, Paris, Document de formation générale 1997.
- [99] E. MACHERAU, H. WOHLFAHRT, and WOLFSTIEG, HTM, vol. 23, p. 201, 1973.
- [100] K. KLAUS, Eigenspannungen.: Deut. Gesell. Metallkde, 1981.
- [101] V. GUIPONT, "Déterminations expérimentales de contraintes résiduelles au sein d'assemblages céramique/métal réalisés par brasage:Application au couple nitrure de silicium/acier doux," Ecole Centrale de Lyon, Lyon, Thèse de doctorat 1994.
- [102] A. E1426-94, Standard test method for determining the effective elastic parameter for X-ray diffraction measurements of residual stress., 1994.
- [103] C. HSUEH and A. EVANS, J.Eur.Ceram.Soc, vol. 13, no. 1, pp. 35-48, 1999.
- [104] M. NICHOLAS and R. CRISPIN, Proc.Brit.Ceram.Soc, vol. 32, pp. 33-40, 1982.
- [105] K. SAGANUMA, T. OKAMOTO, M. KOIZUMI, and M. SHIMADA, J.Mater.Sci, pp. 648-650, 1985.
- [106] W. POREMBKA, Batelle Tech. Rev, vol. 13, no. 19, pp. 2-7, 1964.
- [107] J. BERNIER, Industrie céramique, vol. 9, no. 819, pp. 569-574, 1987.
- [108] Y. ISHIDA, J. WANG, and T. SUGA, MRS Int Mtg on Adv.Mats, vol. 8, pp. 145-158.
- [109] T. YAMANE, Y. MINAMINO, K. HIRAO, and H. OHNISHI, J.Mater.Sci, pp. 4227-4232, 1986.
- [110] Y. ISHIDA and J. WANG, Anal.Sci, vol. 7, pp. 1231-1234, 1991.
- [111] W. REIMERS and R. DUPKE, "Colloque contraintes résiduelles," in Current and future activities in residual stress analysis by diffraction methods in HMI, Portugal, 1992, pp. 1-23.
- [112] E. WELLE and W. REIMERS, "International conference on residual stresses," in Investigations of residual stress states in brazed meta/ceramic compound, USA, 1994, pp. 8-10.
- [113] S. TANAKA and TAKAHASHI, "ISIJ International," in Effects of X-ray beam collimation on the measurement of residual stress distribution in a Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/Steel joint,

- vol. 30, 1990, pp. 1086-1091.
- [114] M. KURITA, M. SATO, and I. IHARA, *J.Amer.Ceram.Soc*, vol. 86, no. 60, 1977.
- [115] G. LASCAR, HDR, Université de Metz 1999.
- [116] J. CHASKALOVIC, *Méthode par éléments finis pour les sciences de l'ingénieur.*: Ed. Lavoisier ISBN, 2004.
- [117] Y. EBIHARA and K. KADOTA, *JSME Inter*, vol. 35, no. 4, pp. 489-495, 1995.
- [118] M. GAO and F. BAO, *J.Mater.Sci*, pp. 399-404, 1995.
- [119] S. KOVALEV, P. MIRANZO, and M. OSENDI, *J.Amer.Ceram.Sci*, pp. 2342-2348, 1998.
- [120] K. SUGANUMA, T. OKMATO, M. KOIZUMI, and M. SHIMADA, *J.Amer.Ceram.Soc*, 1983.
- [121] K. SUGANUMA, T. OKMATO, M. KOIZUMI, and M. SHIMADA, *J.Amer.Ceram.Soc*, pp. 256-257, 1984.
- [122] K. SUGANUMA, T. OKMATO, M. KOIZUMI, and M. SHIMADA, *J.Amer.Ceram.Soc*, pp. 648-650, 1985.
- [123] M. NAKA, T. TANAKA, and I. OKAMOTO, *Trans.Jpn weld res.Inst*, vol. 14, no. 2, pp. 85-91, 1985.
- [124] K. SUGANUMA, T. OKAMOTO, Y. MIYAMOTO, M. SHIMADA, and M. KOIZUMI, *J.Mater.Sci*, vol. 2, pp. 1156-1161, 1986.
- [125] T. YAMADA, K. YOKOI, and A. KOHNO, *J.Mater.Sci*, vol. 25, pp. 2188-2192, 1990.
- [126] Y. ZHOU, F. BAO, J. REN, and T. NORTH, *J.Mater.Sci and Tech*, vol. 7, p. 863, 1991.
- [127] N.-L. PENG, J. YANG, and M. WANG, *Inter.J.Fracture*, vol. 134, pp. 387-397, 2005.
- [128] M. WILLIAMS and Y. YANG, *J. Appl.Mech*, vol. 74, pp. 526-528, 1952.
- [129] V. HEIN and F. ERDOGAN, *Inter.J.Fracture.Mech*, vol. 7, no. 3, pp. 317-330, 1971.
- [130] M. LOCATELLI, B. DALGLEICH, K. NAKASHIMA, A. TOMSIA, and A. GLAESER, *Ceram.Int*, vol. 23, pp. 313-322, 1997.
- [131] G. STREMSDOERFER, "Procédé direct de revêtement métallique par projection de solution aqueuses sur tout type de substrat," Brevet 97 06-834, publication n° FR276396 1997, 1997.
- [132] Spécial Metals, Inc. Accessed 3 june 2008. [Online]. *HYPERLINK* "[www.spécial%20metals.com](http://www.spécial%20metals.com)" [www.spécialmetals.com](http://www.spécialmetals.com)
- [133] Custom-electric. Accessed 3 june 2008. [Online]. *HYPERLINK* "[www.custom-electric.com/apm-alloy-tube.htm](http://www.custom-electric.com/apm-alloy-tube.htm)" [www.custom-electric.com/apm-alloy-tube.htm](http://www.custom-electric.com/apm-alloy-tube.htm)
- [134] Haynes International, Inc. Accessed 3 june 2008. [Online]. *HYPERLINK* "[www.haynesintl.com](http://www.haynesintl.com)" [www.haynesintl.com](http://www.haynesintl.com)
- [135] J. JACQUEMIN, "Etude des interfaces Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> et Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>/Ni obtenues par liaison à l'état solide," Ecole Centrale de Lyon, Lyon, Thèse de doctorat 1998.
- [136] P. CHARLAMBIDES, J. LUND, A. EVANS, and McMEEING, *J. App.Mech*, vol. 56, pp. 77-82, 1989.
- [137] D. MARSHAL and B. LAW, *J.Amer.Ceram.Sci*, no. 60, pp. 86-87.
- [138] LIANG, G. ORANGE, and G. FANTOZZI, *J.Mater.Sci*, vol. 25, pp. 207-214, 1990.
- [139] G. MAEDER, *Matériaux et techniques*, pp. 5-12, 1988.
- [140] A. E915-85, Standard method for verifying the alignment of X-ray diffraction instrumentation for residual stress measurement., 1985.

- [141] J. SPRAUEL and J. LEBRUN, Experimental techniques of structure analysis.: Deut. Gesell. Metallkde, 1986.
- [142] C. BURMAN and T. ERICKSON, "Conference on residual stress (ICRS2)," in Residual stress measurement in advanced ceramics, 1989, pp. 335-340.
- [143] T. TEMGA, D. JUVE, D. TREHEUX, C. GUERRET-PIECOURT, and C. JARDIN, Nuclear instruments and methods in physics research, vol. 245, pp. 519-527, 2006.
- [144] M. TOUZIN et al., J.Euro.Ceram.Soc, vol. 27, no. 2, pp. 1193-1197, 2007.
- [145] B. VALLAYER, G. BLAISE, and D. TREHEUX, Review of scientific instruments, pp. 3102-3112, 1999.
- [146] M. LIPA, "TPX Workshop on plasma facing components," in Developement and fabrication of new generation of CFC-brazed plasma facing componement to e installed in Tore Supra, 1995.
- [147] L. DOCEUL et al., "18th Symp on fusion technology," in Conceptual design of a high heat flux toroidal pumped limiter for Tore Supra, Germany, 1994.
- [148] P. B.-E. AMBRA, Production of high temperature resistance joints between engineering ceramics and metals by active metals brazing, 1997.
- [149] B. DREVET, S. KALOGEROLPOLOU, and N. EUSTATHOPOULOS, Acta.Metal.Mater, vol. 41, p. 3119, 1993.
- [150] C. RADO, B. DREVET, and N. EUSTATHOPOULOS, Acta.Mater, vol. 48, no. 18-19, p. 4483\_4491, 2000.
- [151] W. TANG, Z. ZHENG, H. DING, and Z. JIN, Mater.Chem.Phys, vol. 74, no. 3, pp. 258-264, 2002.
- [152] R. SCHIEPERS, F. VAN LOO, and G. DE WITH, J.Amer.Ceram.Soc, vol. 71, no. 6, pp. 284-287, 1988.
- [153] H. XIONG et al., Matere.Lett, vol. 61, no. 25, pp. 4662-4665, 2007.
- [154] S. JOHONSON and D. ROWCLIFFE, J.Amer.Ceram.Soc, vol. 68, no. 9, pp. 85-88, 1985.
- [155] D. TREHEUX, A. HEURTEL, and P. GUIRALDENG, Acta.Met, vol. 24, pp. 503-509, 1976.
- [156] T. HIRONE, S. MIURA, and T. SUSUOKA, J.Phys.Soc.Japan, vol. 16, pp. 2456-2459, 1961.
- [157] B. STOOP and G. DEN OUDEN, Calculation of thermal stresses in ceramic-metal joints.: W. kraft Ed, 1989.
- [158] O. IANCU and D. MUNZ, Residual thermal stresses in ceramic/solder/metal multilayered plate, W. Ed, Ed., 1989.
- [159] A. LEVY, J. Amer.Ceram.Soc, vol. 74, no. 9, pp. 2141-2147, 1991.
- [160] D. LEE, Inter.Journal.Mech.Sci, vol. 25, pp. 543-551, 1987.
- [161] M. HOUHOU, J. LEBRUN, M. ZAOUALI, J. PINA, and A. DIAS, "Colloque contraintes résiduelles," in Genèse des contraintes résiduelles dans le procédé plasma, expérimentation et modélisation, Portugal, 1992, pp. pp. 1-10.
- [162] D. JUVE, D. TREHEUX, J. BIGARRE, and P. HOURQUEBIE, Le vide, science technique et application, no. numéro spécial, pp. 463-466, 2001.
- [163] I. REIMANIS, B. DAGLEISH, and A. EVANS, Acta.Metal.Mater, vol. 39, pp. 3133-3141, 1991.
- [164] A. PINCUS, J. Am. Ceram. Soc, vol. 36, no. 5, pp. 152-158, 1953.

## *Références bibliographiques*

- [165] O. KURBASCHEWSKY and E. EVANS, J. West. Scot. Iron Steel, vol. 42, no. 6, pp. 99-104, 1935.
- [166] G. JONKER, J. KLOMP, and BOTDEN, Sciences of ceramics, E. G. Stewart, Ed., 1965.
- [167] C. SMITHELS, The nature of the chemical bond.: Cornal univer. Press, 1948.
- [168] A. ENGLAND, ASME.J.Appl.Mech, vol. 32, pp. 400-402, 1965.
- [169] C. LEGRESSUS and P. MAIR, Surface and interface analysis, vol. 11, pp. 283-321, 1983.

# **ANNEXES**

## ANNEXE I

### TECHNIQUES DE BRASAGES

#### I. Techniques de brasage céramo-métallique

Le brasage consiste à réaliser une liaison par l'intermédiaire d'un métal d'apport appelé brasure qui vient en contact avec les surfaces de la céramique et du métal à lier. L'un des principaux paramètres de brasage est donc la mouillabilité de la brasure sur les surfaces à relier, qui va conditionner l'énergie d'adhésion de ce métal d'apport aux interfaces.

Les angles de mouillage des métaux liquides non réactifs sont souvent supérieurs à 90°, ce qui est significatif d'une mauvaise mouillabilité du métal d'apport sur la céramique et donc d'une grande difficulté à créer de larges surfaces de contact. Ceci se traduit par des valeurs élevées du travail d'adhésion. Il s'avère donc nécessaire de réaliser des traitements de surface de la céramique ou d'utiliser des alliages contenant des éléments réactifs avec la céramique, afin de diminuer l'énergie d'interface et d'augmenter le travail d'adhésion.

##### I.1. Brasage à basse température

Ce terme est appliqué pour toute liaison brasée réalisée à une température inférieure à 450°C. Le procédé consiste dans un premier temps à réaliser un traitement superficiel de la céramique, sous la forme par exemple d'une métallisation, qui permettra par une brasure classique de créer une liaison céramique-métal. La métallisation peut s'effectuer par pulvérisation cathodique de quelques angström jusqu'au millimètre de Ni ou Ni Cr. Le brasage quant à lui est réalisé sous un très bon vide ( $10^{-8}$  Pa) avec un métal d'apport.

En plus d'une bonne mouillabilité avec la céramique et le métal à lier, le coefficient de dilatation thermique de la brasure doit être compris entre celui du métal et de la céramique, aux températures de travail. D'autres facteurs sont primordiaux dans le processus de fabrication, à savoir l'atmosphère du traitement et les impuretés. Il est en effet souhaitable d'éviter la formation de composés intermétalliques ou d'oxydes mixtes qui le plus souvent fragilisent les interfaces. Les brasures les plus utilisées dans ce domaine sont des alliages type : Sn-Pb, Ag-Sn-Pb et Au-In.

##### I.2. Brasage à haute température

Le terme brasage à haute température regroupe toutes les opérations de liaisons brasées réalisées à une température supérieure à 450°C. Il englobe plusieurs techniques à savoir :

- métallisation directe,
- liaisons actives,
- brasage pour fusion d'oxydes,
- brasage eutectique direct,
- brasage réactif.

### I.2.1. Métallisation directe

#### ❶ Procédé molybdène-manganèse

Cette technique est sans doute l'une des plus anciennes et celle qui a fait l'objet du plus grand nombre d'études. Elle est très utilisée dans l'industrie électronique qui exige de bonnes caractéristiques mécaniques et d'étanchéité pour ses liaisons. La métallisation directe du substrat céramique est réalisée par frittage de poudre métallique du type molybdène-manganèse, molybdène oxyde sur la céramique ou par cofrittage métal/céramique [3].

#### ❷ Mise en œuvre

La poudre utilisée généralement 80 % Mo ( $\varnothing = 4 \mu\text{m}$ ) et 20 % Mn ( $\varnothing = 10 \mu\text{m}$ ) est mélangée à un liant nitrocellulosique afin d'obtenir une viscosité suffisante pour être ensuite appliquée sur la céramique, soit au pinceau, soit par pulvérisation. L'épaisseur de la couche doit être de 50  $\mu\text{m}$  environ [164]. Après séchage, les pièces sont portées entre 1300 °C et 1550 °C pendant 30 minutes sous atmosphère d'hydrogène humide. On obtient ainsi un dépôt de 25 à 30  $\mu\text{m}$  d'épaisseur dû au frittage de la poudre métallique. La céramique est alors prête à être brasée. Le brasage du substrat métallique sur la céramique est effectué sous vide ou sous atmosphère contrôlée à 820-850 °C, en utilisant un alliage Ag-Cu eutectique comme métal d'apport [164].

#### Mécanismes

En atmosphère d'hydrogène humide le manganèse métallique s'oxyde facilement suivant la réaction :



Cette oxydation commence très tôt et est complète à 800 °C. Dès 950 °C MnO réagit avec l'alumine pour former un aluminate de manganèse type spinelle  $\text{MnAl}_2\text{O}_4$  principalement aux joints des grains de l'alumine où les cinétiques de diffusion sont les plus rapides. En général, ce phénomène fragilise l'alumine et on observe une diminution des caractéristiques mécaniques après métallisation d'un facteur deux environ CITEUR KUR35 \l 1036 [165].

#### Développement de la méthode

La présence d'une phase liquide est capitale pour permettre l'accrochage entre la céramique et les poudres métalliques. Par conséquent, la technique Mo-Mn n'est applicable qu'aux céramiques présentant des éléments fondants intergranulaires ( $\text{SiO}_2$ , MgO et CaO).

Le procédé molybdène oxyde remplace la technique (Mo-Mn) pour la métallisation des céramiques ne contenant pas de phase vitreuse intergranulaire ( $\text{SiO}_2$ , MgO et CaO). Le manganèse est donc remplacé par des oxydes servant d'éléments fondants pour favoriser l'adhésion mécanique des poudres métalliques sur la céramique par mécanisme de capillarité. Les mécanismes à l'interface de la céramique mettent en jeu des réactions entre les oxydes et la céramique et entre les oxydes et le molybdène.



La mise en œuvre de la méthode est analogue au procédé molybdène-manganèse. On distingue deux classes d'oxydes utilisés comme fondant :

- le système  $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-MnO-SiO}_2$ .
- le système  $\text{Al}_2\text{O}_3\text{- SiO}_2\text{- CaO-MgO}$ .

La technique de cofrittage de poudres métalliques avec la céramique compactée à froid, consiste à recouvrir la céramique d'un film de poudre métallique pour ensuite fritter l'ensemble. Les poudres sont constituées d'un mélange 80 % Mo et 20 % de Mn ou Mo-W. Le cofrittage est réalisé sous hydrogène humide entre 1550 et 1750 °C, ce qui permet une bonne densification de la céramique. L'adhérence est liée dans ce cas à la migration dans les interstices d'une phase vitreuse si celle-ci existe CITATION PIN53 \ 1036 [164] .

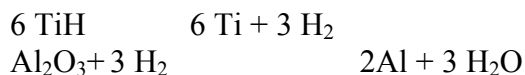
### **I.2.2. Liaisons actives**

#### **Mise en œuvre**

Le principe de cette technique repose sur la réalisation sur la surface de la céramique des dépôts avec des éléments possédant une réactivité chimique élevée avec l'oxygène CITATION COU91 \ 1036 [3] . C'est le cas des métaux tels que Ti, Cr, Nb et Ta. La métallisation est effectuée conjointement à l'opération de brasage. La température de brasage varie en fonction des brasures utilisées (Ag-Cu, Ag-Cu-Cr, Ag-Cu-Ti) de 800 °C à 1400 °C.

#### **Mécanismes**

Si l'on prend le cas d'une métallisation d' $\text{Al}_2\text{O}_3$  par Ti pulvérisé sous la forme d'un film d'hydrure de titane (TiH), il peut se produire une réaction de réduction de la céramique en surface suivant une réaction du type :



À l'interface  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{Ti}$ , il se forme de l'aluminium. Ce dernier diffuse dans le titane et conduit à la création de phases et composés intermétalliques donnés par le diagramme d'équilibre Al-Ti. A cause de la formation de ces derniers, ce genre d'assemblage ne peut être utilisé pour un fonctionnement à haute température, et ceci quelle que soit l'atmosphère de travail.

### **I.2.3. Brasage par fusion d'oxydes**

Mise au point dans les laboratoires de recherche de PHILIPS dans les années 60 et dérivée de la technique « molymetal process » CITATION SOO84 \ 1036 [166] , elle permet de supprimer l'emploi du brasage du métal contre la céramique et donc de la métallisation préalable. La liaison s'établit directement par la fusion d'oxydes qui forment des eutectiques complexes à hautes température qui jouent le même rôle qu'une brasure classique. Ceci est dû à l'excellente mouillabilité de ces alliages d'oxydes sur les métaux réfractaires tels que le molybdène, le tungstène, mais aussi sur les bases nickel CITATION COU91 \ 1036 [3] .

Comme dans les techniques « molybdène -metal oxide » on utilise principalement deux bases d'oxydes :

- le système  $\text{Al}_2\text{O}_3 - \text{MnO} - \text{SiO}_2$
- le système  $\text{Al}_2\text{O}_3 - \text{CaO} - \text{MgO} - \text{SiO}_2$

Le choix de ces systèmes est basé sur la grande stabilité chimique à haute température en atmosphère réductrice ainsi que sur leur point de fusion qui est bas comparé à d'autres systèmes d'oxydes plus stables ( $\text{ZrO}_2$ ,  $\text{Y}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Cr}_2\text{O}_3$ ...).

#### **I.2.4. Brasage réactif**

Le brasage s'effectue sans métallisation préalable de la céramique, par l'intermédiaire de brasures contenant des éléments possédant une réactivité chimique avec la céramique. Ces brasures sont en général des alliages à base d'argent et contiennent du titane comme éléments d'addition CITATION COU91 \l 1036 [3] .



## ANNEXE II

### SOLUTION TECHNOLOGIQUE ADAPTEE POUR LA DIMINUTION DES CONTRAINTES RESIDUELLES DANS LE TORE SUPRA

Le tore supra est un tokamak supraconducteur, en exploitation depuis 1988 à Cadarache (France). Tore Supra est principalement dédié à l'étude de la physique et des technologies permettant de réaliser des plasmas performants de longues durées (Figure II.1) CITATION MON99 \ 1036 [18] .

Figure 1 : Intérieure de l'enceinte Tore Supra en 2002.

L'une des solutions techniques que l'on peut employer afin de limiter les contraintes résiduelles dans les assemblages métal/céramique est l'insertion d'une couche intermédiaire entre les deux matériaux. Cette couche peut être composée de différents types de matériaux.

#### II.1. Composants de première génération

Le matériau de première paroi choisi pour le fonctionnement de Tore Supra était le graphite polycristallin. Le matériau de structure était l'acier inoxydable. La liaison entre le graphite et l'acier a été développée à partir d'études bibliographiques. Peu à peu l'introduction des calculs par éléments finis à l'aide du code de calcul CASTEM 2000 a permis de déboucher sur les principaux résultats à savoir :

Insertion d'une couche d'adaptation en cuivre non allié (Cu-OFHC) qui compense par sa plastification les dilatations différentielles des matériaux en liaison, Ajout d'une couche intermédiaire en molybdène entre la couche d'adaptation (Cu-OFHC) et le graphite.

Les coefficients de dilatation du molybdène et du graphite sont proche ( $4.9 \cdot 10^{-6} / ^\circ\text{C}$  et  $4.2 \cdot 10^{-6} / ^\circ\text{C}$  respectivement). La concentration de contraintes à l'interface Mo/graphite est faible. Par contre, la concentration de contraintes à l'interface Mo/Cu est mieux tolérée par le molybdène, plus résistant que le graphite. Les liaisons entre les différentes couches du composant sont réalisées par brasage.

Les composants face au plasma doivent non seulement résister au processus de fabrication, mais aussi être capables de supporter le cyclage sous flux thermique une fois installés dans le Tore. 7 % des tuiles ont été constatées en défaut dès les premiers cycles de fonctionnement dans Tore Supra et ont été retirées. La décision a été prise de remplacer une partie de ces composants par des composants d'une nouvelle génération CITATION MON99 \ 1036 [18] .

#### II.2. Composants de la deuxième génération

Le graphite est remplacé par un composite à fibre de carbone, en raison de sa meilleure résistance à la fissuration et de sa meilleure conductivité thermique. En effet, le graphite a un comportement fragile, la naissance d'une fissure conduit immédiatement à la rupture du matériau. Dans un composite, ces fissures sont arrêtées par les fibres.

En raison de la meilleure résistance du composite, le composant final ne comporte plus de couche en molybdène. L'épaisseur de la couche d'adaptation en cuivre doux a été portée à 2 mm. Afin d'améliorer la résistance de la liaison en cisaillement, des traitements de surface ont été réalisés sur les composites à savoir le rainurage ou le perçage de cônes.

Depuis l'installation de cette nouvelle génération de composants dans Tore Supra, aucun endommagement macroscopique n'a été constaté : ces composants ont parfaitement rempli leur rôle.

### **II.3. Composants de troisième génération**

Dans le but de fabriquer un composant à haut flux recouvrant le plancher de Tore Supra, un nouvel ensemble a été conçu. Il s'agit d'une structure en cuivre refroidi à l'eau, recouverte de tuiles en composite. Les meilleurs résultats ont été obtenus avec des alliages de cuivre à durcissement structural, tels le cuivre-chrome-zirconium. Ces alliages ont des conductivités proches de celles du cuivre pur, et beaucoup plus résistants notamment à hautes températures. Malheureusement, le brasage de tuiles sur ce matériau nécessite un cycle thermique spécial (mise en solution à plus de 950 °C et trempe à l'eau). En plus, les propriétés thermiques des alliages Cu-Cr-Zr chutent si le matériau est exposé à une température supérieure à 500 °C CITATION MON99 \l 1036 [18] .

Une méthode complètement différente a donc été mise en place, consistant à fabriquer l'assemblage en deux étapes différentes. Dans un premier temps, les tuiles de composite sont assemblées à la couche d'adaptation en cuivre doux. Cette liaison n'est plus réalisée par brasage, mais par un nouveau procédé de liaison breveté (Active Metal Casting AMC). Le principe consiste à faire un traitement laser des tuiles de composite afin d'accroître la surface de contact entre le composite et le cuivre. Dans un deuxième temps, l'ensemble tuile plus couche d'adaptation est soudé par faisceau d'électrons à la structure en Cu-Cr-Zr CITATION MON99 \l 1036 [18] .