



**HAL**  
open science

# Matériaux et assemblages hétérogènes : de l'élaboration à la caractérisation mécanique

Frédéric Deschaux-Beaume

► **To cite this version:**

Frédéric Deschaux-Beaume. Matériaux et assemblages hétérogènes : de l'élaboration à la caractérisation mécanique. Matériaux. Université Montpellier II - Sciences et Techniques du Languedoc, 2009. tel-00807735

**HAL Id: tel-00807735**

**<https://theses.hal.science/tel-00807735>**

Submitted on 4 Apr 2013

**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.

# Matériaux et assemblages hétérogènes : de l'élaboration à la caractérisation mécanique

Préambule : une thématique de recherche bâtie dans trois laboratoires.....	1
Chapitre 1 : Contrôle et amélioration des procédés de soudage hétérogène.....	5
1.1. Assemblages céramique-céramique et céramique-métal .....	6
1.1.1. Assemblages céramique-céramique par soudage-diffusion .....	6
1.1.2. Assemblages céramique/molybdène par soudage diffusion.....	9
1.1.3. Assemblages céramique-céramique par brasage.....	10
1.2. Assemblages acier-aluminium .....	11
1.2.1. Assemblages acier-aluminium par soudobrasage laser .....	12
1.2.2. Assemblages acier-aluminium par soudobrasage à l'arc .....	14
1.2.3. Assemblages acier aluminium par fusion des deux matériaux en soudage laser ...	15
1.3. Réparation par soudage à l'arc d'aciers réfractaires moulés.....	17
1.3.1. Automatisation d'un banc de soudage à l'arc à l'électrode enrobée.....	18
1.3.2. Etude de la fissuration en soudage des aciers réfractaires moulés.....	20
1.3.3. Réduction de la fissuration en soudage .....	22
1.4. Modélisation du soudage.....	23
1.4.1. Modélisation thermique du soudobrasage laser .....	24
1.4.2. Modélisation thermique du soudobrasage TIG .....	25
1.4.3. Modélisation thermique du soudage à l'arc multi passe .....	27
1.5 Conclusion au chapitre 1 .....	28
Chapitre 2 : Caractérisation et modélisation de l'évolution des microstructures.....	30
2.1. Oxydation d'un composite céramique $\text{Si}_3\text{N}_4$ -TiN.....	30
2.1.1. Observations microstructurales et modèle phénoménologique.....	31
2.1.2. Modèle cinétique .....	33
2.1.3. Analyses thermogravimétriques sous air: identification des paramètres et validation du modèle cinétique .....	34
2.2. Réaction d'une céramiques $\text{Si}_3\text{N}_4$ -TiN avec différents inserts métalliques et céramiques .....	35
2.2.1. Assemblages avec inserts nickel, fer, et Ni-Fe.....	35
2.2.2. Assemblages avec inserts Ni-Cr.....	37
2.2.3. Assemblages avec inserts Fe-Cr-Al .....	38
2.2.4. Assemblages par brasage .....	39
2.3. Evolution des interfaces acier-aluminium obtenues par soudage .....	41
2.3.1. Données bibliographiques .....	41
2.3.2. Etude des interfaces formées lors d'une interaction Al liquide/acier solide .....	42
2.3.3. Etude des interfaces formées lors d'une interaction Al liquide/acier liquide .....	43
2.3.4. Cinétique de croissance des couches de réaction .....	44
2.4. Fissuration en soudage et microstructures de zone fondue et de ZAT d'aciers réfractaires moulés .....	45
2.4.1. Etude des relations entre microstructure et fissuration en soudage des aciers réfractaires moulés .....	46
2.4.2. Etude de la fissuration dans les zones fondues .....	48
2.5. Conclusion au chapitre 2 .....	49
Chapitre 3 : Caractérisation mécanique et modélisation.....	50
3.1. Caractérisation mécanique et modélisation du comportement à rupture d'outils céramiques.....	50
3.1.1. Modélisation du comportement fragile de la céramique .....	51

3.1.2. Identification des paramètres de la modélisation .....	52
3.1.3. Validation expérimentale de la modélisation .....	54
3.1.4. Méthode de dimensionnement des outils .....	55
3.2. Caractérisation mécanique des interfaces .....	56
3.2.1. Caractérisation mécanique des assemblages céramiques.....	56
3.2.2. Caractérisation mécanique des assemblages acier-aluminium.....	58
3.2.2.1. Caractéristiques mécaniques des assemblages avec interface plane.....	59
3.2.2.2. Caractéristiques mécaniques des assemblages avec interface non plane (laser key-hole).....	61
3.2.2.3. Simulation numérique de l'essai de traction .....	62
3.3. Caractérisation mécanique et prévision de la rupture en soudage des aciers réfractaires moulés .....	64
3.3.1. Caractérisation mécanique des aciers réfractaires moulés et des soudures de réparation.....	64
3.3.2. Simulation numérique et prévision du risque de fissuration en soudage .....	67
3.4. Conclusion au chapitre 3 .....	70
Conclusion et perspectives .....	71
Références .....	76
Annexe 1 : Curriculum Vitae .....	81
Annexe 2 : tableau récapitulatif des activités d'enseignement .....	85
Annexe 3 : liste des publications .....	87
Annexe 4 : sélection d'articles .....	93

## **Préambule : une thématique de recherche bâtie dans trois laboratoires**

Les recherches que j'ai menées jusqu'à présent dans le domaine des sciences des matériaux présentaient la caractéristique commune d'être orientées à la fois sur l'étude de la microstructure des matériaux, et sur celle de leurs propriétés, principalement mécaniques, à l'échelle macroscopique. Les microstructures en question présentaient toujours de fortes hétérogénéités, du fait de la nature composite des matériaux étudiés ou de l'assemblage de matériaux différents.

Dans la plupart de mes travaux de recherche, des procédés d'assemblage étaient employés, ayant pour effet de modifier, voire d'annihiler et de reconstituer, par passage à l'état liquide, la microstructure au niveau local des interfaces entre les matériaux, généralement de natures différentes.

L'originalité de ces recherches vient donc principalement de l'approche globale employée pour caractériser les matériaux de structure, intégrant le procédé d'élaboration, les microstructures générées et les caractéristiques mécaniques macroscopiques, avec bien sûr la prise en compte des relations entre ces trois aspects. La plupart de ces travaux de recherche étaient motivés par des problématiques industrielles.

Au cours de ces recherches, la caractérisation expérimentale était primordiale. Mais la modélisation, et parfois la simulation numérique, ont aussi occupé une place importante, par le développement de modèles prédictifs, ou simplement pour permettre d'accéder à des informations non mesurables expérimentalement, et ainsi mieux comprendre les phénomènes.

Ces différents travaux de recherche ont été réalisés au sein de trois laboratoires, sur des matériaux et des problématiques scientifiques parfois assez différents.

### **Etude des composites céramiques au Centre Matériaux de l'Ecole des Mines d'Albi**

C'est en démarrant ma thèse de doctorat en 1994 que commence ma carrière de chercheur. Les travaux alors réalisés portaient sur l'étude de composites céramiques particulières et s'inscrivaient dans une problématique industrielle, celle du remplacement d'outils de matriçage isotherme métalliques par des outils céramiques, plus résistants à haute température.

L'idée d'utiliser des outils en céramiques, matériaux fragiles, impliquait un changement radical dans les habitudes des forgerons, c'est pourquoi il était nécessaire, avant sa mise en œuvre éventuelle, de mener une étude préalable mettant en évidence l'ensemble des difficultés rencontrées, et proposant des solutions pour y remédier.

Lorsque l'entreprise concernée, la société Fortech, une PME de 400 personnes basée en Ariège (aujourd'hui filiale du groupe Aubert & Duval), fait appel au Centre Matériaux de l'Ecole des Mines d'Albi, alors dirigé par le professeur Christophe Levaillant, celui-ci n'a encore que quelques mois d'existence. Les enseignants-chercheurs permanents, alors peu nombreux, sont fortement investis dans l'organisation pédagogique et administrative d'une école en cours de structuration (la première promotion d'élèves ingénieurs en formation initiale ne sera diplômée qu'en 1996), et par l'installation du laboratoire (l'école, initialement hébergée dans les locaux de l'antenne albigeoise de l'université de Toulouse, n'emménagera sur son site actuel qu'en 1995). Ce contexte particulier m'a donné la possibilité, dès mes travaux de thèse, de faire l'apprentissage d'une recherche en quasi-autonomie, à la fois dans la définition de stratégies permettant de satisfaire le besoin industriel tout en approfondissant certains aspects fondamentaux, et dans le travail de recherche propre.

L'analyse de l'environnement caractéristique du procédé de matriçage isotherme en conditions industrielles, et des difficultés résultant de l'introduction de matériaux céramiques pour la réalisation des outils, a révélé que le principal verrou technologique pouvant s'opposer à cette évolution découlait de la nature fragile du matériau, qui introduisait un caractère probabiliste de la rupture, difficile à prendre en compte lors du dimensionnement. L'objectif que nous nous sommes fixé a donc été le développement d'une méthode de dimensionnement des outils, adaptée au comportement de type fragile des matériaux céramiques. Ce travail supposait la caractérisation mécanique des matériaux, dans les conditions d'utilisation prévues en matriçage isotherme, prenant en compte les phénomènes d'endommagement éventuels pouvant intervenir, le développement de modèles et leur implantation dans les outils numériques de dimensionnement utilisés par les forgerons, et la validation finale de la méthode, par la réalisation de cas tests de matriçage isotherme.

La problématique rencontrée était trop complexe pour pouvoir être intégralement traitée dans le cadre d'une thèse, aussi certains de ses aspects ont été abordés dans le cadre de divers stages. Ceci m'a permis, dès ma formation doctorale, de participer à l'encadrement d'étudiants.

La faisabilité du projet n'était possible que si des outils céramiques de dimensions suffisantes pouvaient être réalisés, ce qui nécessitait le développement de techniques d'assemblage. C'est pourquoi une collaboration fut engagée en 1996 avec le Centre Pierre Marie Fourt de l'Ecole des Mines de Paris, spécialisé notamment dans les assemblages céramiques, dans le cadre du stage de DEA de Béatrice Colas [Colas, 1996].

Parmi les facteurs endommageant pouvant intervenir dans les conditions environnementales propres au matriçage isotherme, l'oxydation a été reconnue comme le facteur le plus critique. Une étude phénoménologique, qui conduisit au développement d'un modèle cinétique d'oxydation, a été menée durant ma thèse. L'étude de l'influence de ce phénomène sur le comportement à rupture a en revanche été menée dans le cadre du stage de maîtrise de Stéphane Debano [Debano, 1997].

### **Etude des assemblages céramiques au Centre Pierre Marie Fourt de l'Ecole des Mines de Paris**

A l'issue de ma thèse, on me propose de poursuivre les travaux initiés dans le domaine de l'assemblage des céramiques au Centre Pierre Marie Fourt de l'Ecole des Mines de Paris, dans le cadre d'un contrat de recherche avec la société Fortech.

J'intègre le laboratoire en février 1998, en tant que chercheur associé, dans l'équipe «Elaboration» dirigée par le professeur Yves Bienvenu, pour une durée de un an au départ. Mon contrat fut ensuite renouvelé deux fois. Durant la première année, je travaille principalement à l'élaboration et la caractérisation d'assemblages céramiques par soudage-diffusion à l'aide d'inserts métalliques. Les résultats encourageants obtenus et les très bons rapports entretenus avec la société Fortech conduisent celle-ci à me renouveler sa confiance, en signant deux nouveaux contrats de recherche avec l'Ecole des Mines de Paris, sur la base des programmes que je proposais.

Ces nouveaux travaux nous ont permis en particulier d'étudier l'influence de l'environnement gazeux lors de l'assemblage et de l'état de surface initial des céramiques sur les caractéristiques des liaisons, ainsi que les propriétés mécaniques à très haute température des assemblages. La faisabilité de réalisation d'assemblages céramique-molybdène, dans le but d'obtenir des outils composites à moindre coût, est aussi étudiée. Un autre procédé d'assemblage des céramiques, par brasage, est également abordé, dans le cadre notamment du stage d'élève ingénieur de Oussama Boukraa, de l'Ecole de l'Industrie Minérale de Rabat [Boukraa, 1999].

Pendant ces deux années et demie passées au Centre Pierre Marie Fourt, je me suis aussi investi dans l'encadrement des doctorants de l'équipe, mais j'ai également travaillé avec les équipes voisines, en particulier celle du professeur Michel Boussuge, dont l'un des thèmes concernait l'utilisation des céramiques réfractaires. J'ai ainsi participé à la réalisation d'une étude bibliographique sur les techniques d'assemblage des carbures de silicium, pour la société Snecma.

Enfin, l'expérience acquise à l'Ecole des Mines de Paris m'a aussi permis de découvrir le domaine des procédés de soudage conventionnels, qui deviendra plus tard mon domaine de recherche exclusif, grâce à une collaboration avec l'industriel Castolin, sur l'étude du développement de nouveaux flux de brasage non toxiques. Ce travail fut réalisé en partie dans le cadre du stage de Nicolas Perrin, élève ingénieur de l'ISITEM de Nantes (aujourd'hui Polytech'Nantes) [Perrin, 2000].

### **Etude des procédés de soudage au Laboratoire de Mécanique et Génie Civil de l'Université Montpellier 2**

En 2000, je suis recruté en tant que Maître de Conférences par le Laboratoire de Mécanique et Génie Civil (LMGC), alors dirigé par le professeur Olivier Maisonneuve, pour développer, avec le professeur Gilles Fras, une nouvelle thématique de recherche dans le domaine du soudage. Comme lors de ma thèse, j'intègre alors un environnement en pleine création, dans lequel la future recherche doit s'appuyer sur les compétences des enseignants en soudage, et sur la plate-forme technologique de l'IUT de Nîmes, composante de l'Université Montpellier 2.

Les premières années passées au LMGc sont principalement consacrées à la prise de contact avec différents industriels et laboratoires ou équipes de recherche, et par l'apprentissage de la culture bien particulière du soudage. Le but de ces démarches était d'identifier les besoins en matière de recherche

et les compétences déjà existantes dans le domaine du soudage, de manière à développer des thèmes de recherche originaux et répondant à une réelle demande.

Deux domaines sont alors identifiés : la simulation du soudage, qui nécessite le développement de modèles nouveaux, le caractère prédictif des méthodes actuelles étant encore limité par l'absence de modélisations intégrant les phénomènes physiques résultant de l'interaction procédé-matière, et la caractérisation des processus intervenant en cours de soudage, de manière à mieux comprendre ces interactions, et ainsi mieux maîtriser l'opération de soudage.

Les deux principaux atouts de l'IUT de Nîmes étaient d'une part sa plate-forme d'équipement en soudage, et d'autre part le très bon niveau de connaissance, de la part des enseignants, des procédés de soudage conventionnels (l'IUT de Nîmes avait choisi une spécialisation d'enseignement en soudage dès 1969). Nous choisissons donc de placer le procédé de soudage au cœur de nos thèmes de recherche, et de nous investir dans le second domaine identifié, celui de la caractérisation des phénomènes propres à l'opération de soudage. Trois axes sont alors définis, qui doivent être développés de manière parallèle, car complémentaires :

- la connaissance des sollicitations subies par la matière pendant l'opération de soudage, par des observations et des mesures in-situ ;
- la caractérisation microstructurale et mécanique des soudures, en relation avec les paramètres procédé ;
- la modélisation et la simulation numérique de l'opération de soudage, pour permettre d'accéder aux informations qui ne peuvent être directement mesurées ou observées pendant le soudage.

Dès 2001, nous investissons dans un logiciel de calcul par éléments finis dédié au soudage, Sysweld, et dans des techniques permettant la mesure des températures en cours de soudage. Deux stages DEA, effectués au sein de l'équipe successivement en 2001 et 2002 [Lasky, 2001, Yassef, 2002], nous permettent d'appréhender les difficultés inhérentes à la simulation thermique du soudage, et à la mesure de températures en cours de procédé. En 2002 également, nous recrutons pour huit mois un jeune diplômé de master, qui nous permet d'atteindre une plus grande maîtrise dans l'utilisation du logiciel Sysweld.

En parallèle, nous développons notre connaissance des procédés de soudage à l'arc, notamment à travers une collaboration avec EDF et le Laboratoire de Caractérisation Non Destructive de l'IUT d'Aix-en-Provence, qui porte sur la réalisation et la caractérisation de soudures multi passe sur acier inoxydable austénitique, dans l'objectif final d'améliorer les techniques de contrôle non destructif par ultrasons des soudures.

Grâce aux relations que j'avais conservées avec mes anciens laboratoires d'accueil, et aux contacts engagés pendant ces premières années, trois thèses démarrent ensuite, en 2002 et 2003. Les deux premières, co-encadrées avec le CROMeP de l'Ecole des Mines d'Albi, portaient sur la réparation par soudage à l'arc d'aciers réfractaires moulés [Branza, 2005, Duchosal, 2006]. Ces matériaux, utilisés pour la fabrication d'outils de formage superplastique, procédé intéressant en particulier les industriels du domaine aéronautique, sont difficilement soudables du fait de leur faible ductilité. Les travaux menés concernaient principalement l'étude des relations entre les paramètres de soudage et les caractéristiques des soudures, de manière à optimiser les modes opératoires de réparation.

La troisième thèse, portant sur le soudage hétérogène acier-aluminium en vue d'applications automobiles, est lancée en partenariat avec le Laboratoire d'Application des Laser de Puissance (LALP) et le CEA, et cofinancée par la région Languedoc-Roussillon [Sierra, 2006]. Deux techniques de soudage étaient envisagées, le procédé laser, les assemblages étant réalisés au LALP, et une technique de soudage à l'arc, les assemblages étant réalisés à l'IUT de Nîmes.

Avec le lancement des premières thèses, le LMGC décide la création de l'équipe Assemblages Soudés en 2003, qui devient la septième équipe du laboratoire. Les deux membres fondateurs de l'équipe, Gilles Fras, le responsable de l'équipe, et moi-même, sont vite rejoints par Cyril Bordreuil, recruté en 2004, puis par Fabien Soulié, recruté en 2006, et enfin par Sébastien Rouquette, en 2008. L'année 2009 devrait donc être une année charnière, puisque avec le recrutement d'un cinquième membre, l'équipe dispose désormais de moyens et de compétences pluridisciplinaires, dans les domaines des procédés, des matériaux, de la mécanique, du calcul numérique et de la thermique, qui doivent lui permettre de satisfaire ses ambitions dans les trois axes de développement choisis.

Le mémoire qui suit présente les principaux résultats obtenus dans le domaine des matériaux et assemblages hétérogènes, au sein de mes trois laboratoires d'accueil. Ils sont regroupés en **trois chapitres thématiques** mettant en évidence les trois domaines de compétence que j'ai pu développer en parallèle, à travers ces quatorze années de recherche.

Dans le premier chapitre, les problématiques étudiées sont abordées du point de vu du **procédé**. La préoccupation est alors de comprendre comment chacun des paramètres procédés influe sur les caractéristiques des matériaux ou des liaisons, qui peuvent être de nature microstructurale ou mécanique.

Le second chapitre se focalise sur les **microstructures** des matériaux et leurs **évolutions**, principalement au cours des procédés d'assemblage. Différentes techniques d'analyse sont mises en œuvre pour étudier les microstructures générées lors de l'élaboration du matériau ou de l'assemblage, en relation avec les conditions d'élaboration, pour mieux comprendre les transformations intervenant, éventuellement les prédire, et déduire les effets que ces transformations peuvent avoir sur les caractéristiques mécaniques.

Enfin, dans le troisième chapitre, la **caractérisation mécanique** est la préoccupation majeure, et les effets de l'élaboration et de la microstructure ne sont soulignés que pour préciser leur relation avec les propriétés mécaniques des phases constitutives des matériaux et des assemblages, et des éléments de structure qu'ils vont constituer.

## Chapitre 1 : Contrôle et amélioration des procédés de soudage hétérogène

Le terme « soudage » regroupe des procédés très divers de part leurs caractéristiques de mise en œuvre, les matériaux qu'ils impliquent, et les caractéristiques des liaisons obtenues. Sous sa définition la plus générale, il englobe l'ensemble des procédés d'assemblage permettant d'assurer, de manière permanente, la continuité de deux éléments de structure. La plupart du temps, cette continuité est assurée par l'établissement d'une liaison de nature chimique entre les éléments.

Ce résultat implique que les surfaces à assembler soient d'abord mises en contact intime, avec ou sans l'intermédiaire d'un matériau d'apport, par déformation plastique (cas des procédés de soudage à l'état solide), mouillage d'un matériau liquide sur la surface solide d'un autre matériau (cas du brasage ou du soudobrasage), ou mélange des deux matériaux à l'état liquide. Les mécanismes de liaison font ensuite appel à différents phénomènes de diffusion, réaction, ou fusion-solidification.

Dans le cas de l'assemblage de matériaux différents (on parle alors de soudage hétérogène), des difficultés peuvent apparaître, liées à la mauvaise compatibilité métallurgique des matériaux, c'est à dire l'absence de réaction chimique, ou au contraire la formation de phases présentant des propriétés inadaptées, en terme de fragilité, ou de stabilité thermique par exemple. D'autre part, les matériaux de base à assembler ne possèdent pas toujours des propriétés compatibles avec les sollicitations de nature mécanique et/ou thermique résultant de l'opération de soudage, ce qui peut conduire à des phénomènes d'endommagement.

L'un de mes thèmes de recherche principaux a consisté à apporter une contribution à la problématique très vaste du soudage de matériaux dissemblables métallurgiquement peu compatibles, ou de matériaux qui, de part leurs caractéristiques particulières rendant leur soudage direct difficile, nécessitent le recours au soudage hétérogène, par l'utilisation d'un matériau d'apport de nature différente. Selon les matériaux à assembler et les applications visées, qui déterminent les conditions d'utilisation des assemblages, différents procédés de soudage ont été choisis.

L'approche classiquement employée pour optimiser un assemblage hétérogène consiste à étudier les relations entre les paramètres procédés et les caractéristiques des liaisons formées, en termes de microstructure, composition chimique, structure cristalline, ou propriétés mécaniques. Le contrôle de chacun des paramètres de l'opération de soudage est donc très important. Dans le cas de certains procédés de soudage, traditionnellement manuels, il est indispensable d'automatiser le procédé, pour que chaque paramètre opératoire puisse être fixé de manière précise.

Le contrôle des paramètres du procédé ne permet cependant pas toujours de connaître les sollicitations, de nature thermique et mécanique, subies par la matière, qui expliquent les transformations conduisant à la création d'une liaison. C'est en particulier le cas en soudage à l'arc, où la relation entre les paramètres du courant de soudage et le chargement thermique subi par la matière est mal connue. Pour mieux comprendre les différentes interactions existant entre les paramètres procédés et les sollicitations subies, il peut être utile de réaliser des mesures locales au sein même de la matière, en cours de soudage. Les sollicitations étant la plupart du temps non uniformes, il est aussi souvent nécessaire de coupler ces mesures locales à la simulation numérique, qui permet alors d'accéder aux champs de sollicitations, et à leur évolution au cours du temps.

Dans ce premier chapitre sont présentés différents problèmes d'assemblages hétérogènes, qui ont été en partie résolus par le choix d'un ou de plusieurs procédés et de paramètres adaptés, portant sur plusieurs types de matériaux, céramiques et métalliques.

La première partie est consacrée à l'assemblage de céramiques à base de nitrure de silicium, par les techniques de soudage-diffusion et de brasage. La seconde partie traite de l'assemblage acier-aluminium, par soudage et soudobrasage laser, et soudobrasage à l'arc. La troisième partie concerne la réparation, par soudage à l'arc avec différents matériaux d'apport, d'aciers réfractaires moulés. Enfin, la fin de ce chapitre est consacrée à la modélisation des procédés de soudage avec apport localisé de chaleur, comme le soudage à l'arc ou le soudage laser, menée en vue d'aider à la compréhension des relations entre les paramètres procédés et les sollicitations subies par la matière.

## 1.1. Assemblages céramique-céramique et céramique-métal

Les céramiques thermomécaniques à base de nitrure de silicium possèdent une grande tenue mécanique à chaud, associée à une bonne résistance à l'oxydation et aux chocs thermiques, qui rendent ce type de matériau intéressant pour des applications à très haute température (au delà de 1000°C). Outre leur caractère fragile, les deux principaux inconvénients de ces matériaux sont leur très grande dureté, qui rend leur usinage difficile, et la quasi-impossibilité d'obtenir des composants de grandes dimensions sans défauts avec les procédés d'élaboration conventionnels, par frittage naturel ou sous pression.

Le premier inconvénient peut être contourné grâce à l'ajout d'une seconde phase de faible résistivité électrique, qui rend le matériau usinable par électroérosion. C'est ainsi qu'ont été développés, à la fin des années 1980, des composites céramiques particuliers  $\text{Si}_3\text{N}_4\text{-TiN}$  [Martin, 1989].

La réalisation de composants céramiques de grandes dimensions n'est quand à elle envisageable que par le développement de techniques d'assemblage, pour lier entre eux plusieurs éléments céramiques, ou pour relier ces derniers à des pièces métalliques. Ces techniques ne présenteront d'intérêt que si les assemblages obtenus conservent, au moins partiellement, les bonnes propriétés à chaud des céramiques, en particulier en terme de résistance à l'oxydation et de tenue au fluage.

Si des techniques d'assemblage par brasage ou soudage-diffusion avaient déjà été étudiées pour les céramiques nitrure de silicium monolithiques, en revanche aucun travail n'avait encore été mené, au milieu des années 1990, sur l'assemblage des composites  $\text{Si}_3\text{N}_4\text{-TiN}$ .

Dans cette première partie sont présentés des travaux de recherche réalisés entre 1996 et 2000 sur l'assemblage d'un composite particulière  $\text{Si}_3\text{N}_4\text{-TiN}$  usinable par électroérosion. Le matériau, élaboré par la société Norton Desmarquest (aujourd'hui filiale du groupe Saint-Gobain), est constitué de nitrures de silicium et de titane en proportions pondérales équivalentes, et de quelques pourcent de  $\text{Al}_2\text{O}_3$  et  $\text{Y}_2\text{O}_3$ , qui favorisent la densification lors du frittage par formation d'une phase liquide. Après frittage, le matériau est constitué de particules de TiN de taille comprise entre 0,5 et 5 microns, formant un réseau quasi-continu, et de grains aciculaires très fins de  $\text{Si}_3\text{N}_4\beta$ , entourés d'une phase intergranulaire SiYAlON.

Ces travaux furent initiés durant ma thèse au Centre Matériaux de l'Ecole des Mines d'Albi (aujourd'hui rebaptisé CROMeP), en particulier grâce au travail de stage DEA de Béatrice Colas [Colas, 1996], et se sont poursuivis lors de mon séjour au Centre Pierre Marie Fourt de l'Ecole des Mines de Paris, en collaboration avec Christophe Colin. Ils ont donné lieu à plusieurs rapports contractuels (R1, R2, R3, R5), à une publication (A4), et à une communication dans une conférence (C5.n).

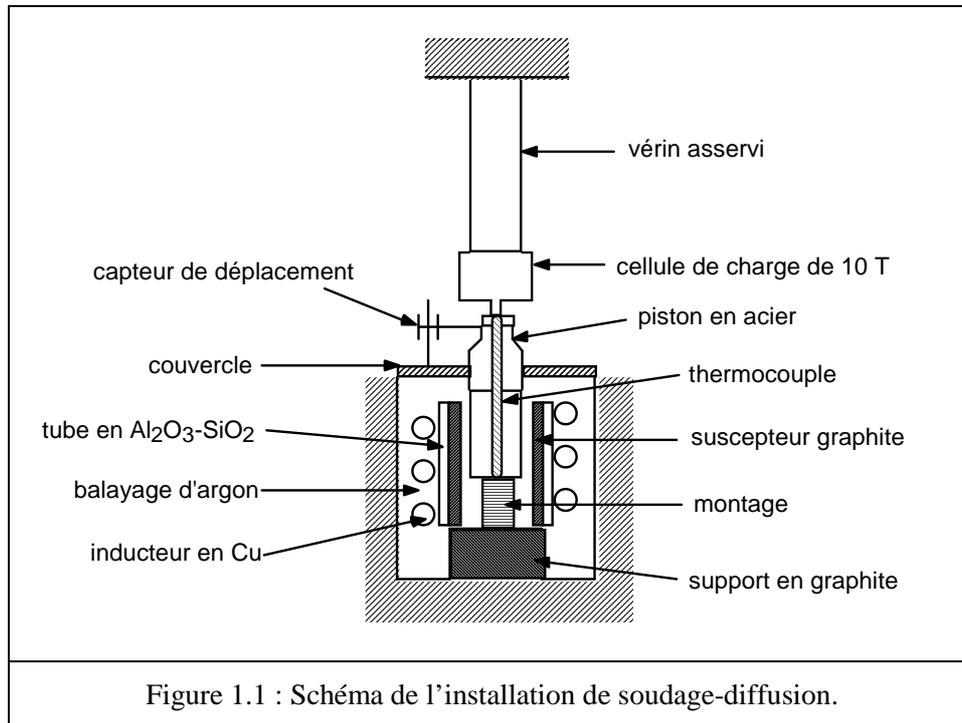
### 1.1.1. Assemblages céramique-céramique par soudage-diffusion

L'assemblage par soudage-diffusion est un procédé de soudage en phase solide qui consiste à élever la température pour activer les phénomènes de diffusion, et éventuellement la réaction entre les matériaux, tout en appliquant une pression entre les deux pièces à assembler pour permettre, par déformation localisée, d'augmenter la surface de diffusion. Pour les matériaux fragiles, il peut être nécessaire d'intercaler un intermédiaire de liaison ou « insert » ductile, pour augmenter la surface de contact.

Les processus d'auto-diffusion dans le nitrure de silicium étant très lents, la liaison directe par soudage-diffusion du nitrure de silicium demande des températures de l'ordre de 1800°C [Kaba, 1983]. De telles températures nécessitent des installations très coûteuses, c'est pourquoi il est préférable d'utiliser des inserts métalliques, sous forme de feuillard de faible épaisseur, pour pouvoir diminuer la température d'assemblage. L'insert retenu doit former avec la céramique une liaison continue, ce qui suppose une réaction entre la céramique et le métal, et doit de plus posséder une tenue à chaud et une résistance à l'oxydation satisfaisantes. Les métaux à bas point de fusion sont donc automatiquement exclus.

Le nitrure de titane est relativement stable en atmosphère non oxydante, et ne commence à réagir avec les éléments métalliques qu'au delà de 1400°C [Suganuma, 1985]. En revanche, le nitrure de silicium est plus réactif avec les métaux, donnant lieu à plusieurs types de réactions selon la nature du métal. Le matériau d'insert est donc choisi principalement au regard de sa réactivité avec la phase  $\text{Si}_3\text{N}_4$  de la céramique.

L'installation utilisée lors de notre étude est constituée d'un vérin asservi permettant de contrôler la pression de contact, d'une enceinte hermétique permettant le contrôle de l'atmosphère, et d'un système de chauffage par induction (Figure 1.1).



Les premiers essais d'assemblage du composite  $\text{Si}_3\text{N}_4\text{-TiN}$  ont été réalisés par soudage-diffusion avec différents inserts constitués de nickel pur, de fer pur, ou d'alliage Ni-Fe, sous atmosphère d'argon, à des températures comprises entre 1100 et 1400°C. Les deux éléments choisis sont les constituants principaux des alliages réfractaires les plus courants, et réagissent avec le nitrure de silicium dès 1100°C, conduisant à la libération d'azote et à la formation de solutions solides et/ou de siliciures de fer ou de nickel [Schuster, 1988a, Vleugels, 1994, 1995]. Ces derniers composés sont toutefois très fragiles.

Lorsque la pression d'assemblage est suffisante, une couche de réaction s'est formée dès 1100°C entre la céramique et l'insert métallique, dans le cas du fer comme du nickel. La couche de réaction est toutefois plus épaisse dans le cas des inserts en nickel. On a pu remarquer que seule la phase  $\text{Si}_3\text{N}_4$  de la céramique (phase sombre) réagissait avec le métal, la phase TiN, qui demeure stable, permettant alors de repérer l'interface initiale (Figure 1.2). Le résultat est identique lorsque l'on utilise des inserts en alliage Fe-Ni, ce qui montre que les deux éléments ont un comportement similaire vis à vis de la céramique. Une phase liquide apparaît toutefois dès 1400°C dans le cas de l'utilisation d'inserts Ni, du fait de l'existence de plusieurs eutectiques Ni-Si à bas point de fusion, ce qui n'est pas observé avec les inserts Fe, les températures eutectiques dans le système Si-Fe étant un peu plus élevées. On peut alors supposer que ce dernier insert forme des liaisons plus réfractaires.

L'épaisseur et la morphologie des couches de réaction formées dépendent principalement de la température d'assemblage (Figure 1.2). On observe toutefois des différences significatives entre le cœur et la périphérie des assemblages, la couche de réaction formée étant généralement plus mince et plus poreuse à cœur, surtout pour les assemblages réalisés à haute température. Ces différences peuvent s'expliquer par la libération d'azote gazeux produite lors de la réaction du nitrure de silicium avec Ni ou Fe, qui doit être éliminé de l'interface pour que la réaction se poursuive, ce qui est plus rapide en périphérie, où une porosité ouverte peut subsister à l'interface, qu'à cœur, où l'azote a tendance à se regrouper pour former des porosités dans la couche de réaction (Figure 1.2b).

La composition de la couche de réaction varie aussi selon la position. Elle est plus riche en silicium en périphérie, indiquant la formation de siliciures de nickel ou de fer, alors qu'à cœur les faibles teneurs en Si mesurées indiquent la formation d'une solution solide Ni(Si) ou Fe(Si).

Ces premiers assemblages présentait plusieurs inconvénients : des siliciures fragiles se formaient en périphérie des assemblages, une porosité importante pouvait apparaître à cœur, et enfin, le fer et le nickel purs présentent une tenue à l'oxydation limitée, ce qui implique des risques de corrosion localisée des assemblages. Il était donc nécessaire de rechercher d'autres matériaux d'insert.

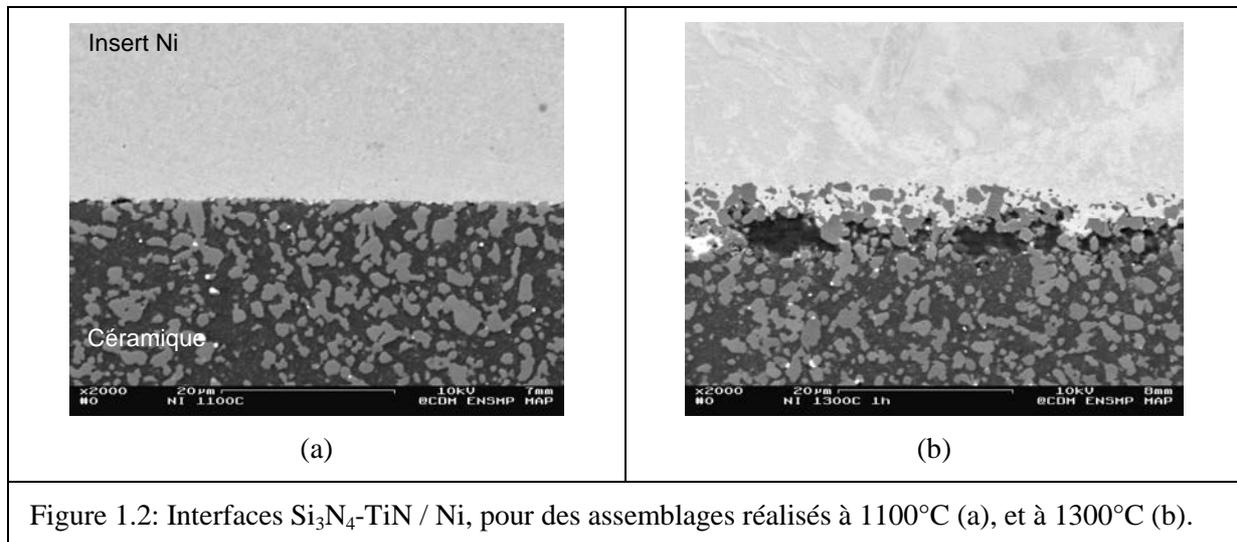


Figure 1.2: Interfaces  $\text{Si}_3\text{N}_4\text{-TiN} / \text{Ni}$ , pour des assemblages réalisés à 1100°C (a), et à 1300°C (b).

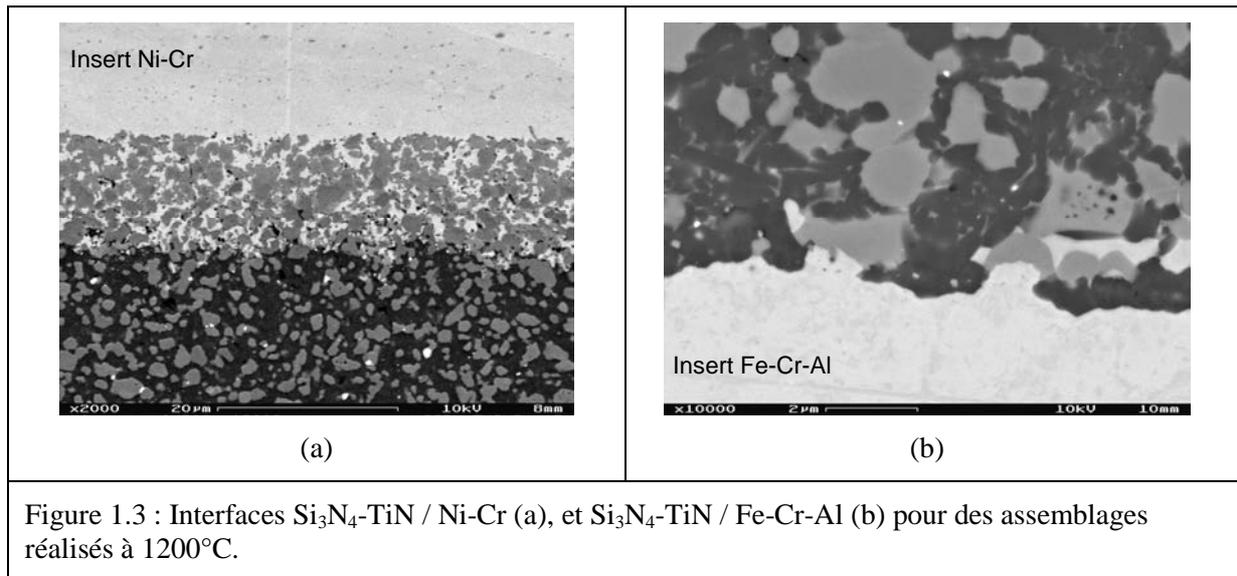
Le chrome permet d'améliorer fortement la résistance à l'oxydation du fer et du nickel. En outre, il a déjà été constaté que cet élément réagissait avec  $\text{Si}_3\text{N}_4$  dès 1000°C, pour former des siliciures de chrome et, si la pression d'azote est assez élevée, du nitrure de chrome [Gotman, 1989], ce qui peut permettre de fixer en partie l'azote libéré, et de limiter la porosité dans la couche de réaction.

Des assemblages avec des inserts constitués d'alliage Ni-Cr ont été réalisés (Figure 1.3a). La couche de réaction possède alors une épaisseur beaucoup plus importante qu'avec le nickel ou le fer, pour les mêmes conditions d'assemblage. De plus, on observe cette fois plusieurs phases distinctes dans la couche de réaction: une phase claire, constituée de siliciures de nickel  $\text{Si}_x\text{Ni}_y$  de composition variable, et une phase plus sombre, constituée de nitrure de chrome  $\text{CrN}$ , située généralement autour de la phase TiN de la céramique initiale. La formation des siliciures de nickel et la croissance rapide de la couche de réaction sont ici favorisées par l'élimination de l'azote moléculaire de l'interface, qui réagit avec le chrome. Une phase liquide apparaît également lorsque la température d'assemblage dépasse 1200°C.

Même si la présence de Cr améliore la tenue à l'oxydation de l'insert, ce type de liaison conduit à une couche de réaction contenant des composés fragiles en grande quantité (intermétalliques et nitrures), et dont la croissance rapide révèle une faible stabilité à haute température. D'autres éléments, permettant de fixer l'azote sans accélérer la cinétique de croissance de la couche de réaction, devaient donc être recherchés.

Dans un article de 1983, Mehan avait observé la formation d'une phase  $\text{AlN}$  formant une fine couche interfaciale lors de l'assemblage par soudage diffusion de  $\text{Si}_3\text{N}_4$  avec un insert en alliage Ni-Cr-Al [Mehan, 1983]. Ce composé présente en effet une énergie libre de formation plus faible que le nitrure de chrome.

Des essais d'assemblage ont donc ensuite été réalisés en utilisant un insert en alliage Fe-Cr-Al, contenant 5% d'aluminium. La couche de réaction alors formée est beaucoup plus fine que celles observées dans les assemblages précédents ( $< 5 \mu\text{m}$ ). Elle est constituée essentiellement de deux phases: une phase siliciure complexe de fer et de chrome, formée par décomposition de la phase  $\text{Si}_3\text{N}_4$ , et une phase nitrure d'aluminium, formée du côté métallique de l'interface initiale (Figure 1.3b). Contrairement au cas de l'assemblage précédent, l'élimination de l'azote par la formation d'une couche quasi-continue de nitrure métallique ne favorise pas ici la croissance de la couche de réaction, mais la ralentit, en créant une barrière de diffusion qui limite la migration des éléments métalliques vers la céramique.



Ce dernier type d'assemblage semble donc répondre à une bonne partie des attentes, tant du point de vue de la tenue à l'oxydation (les alliages Fe-Cr-Al ont une tenue à l'oxydation équivalente voire supérieure à la céramique), que de la stabilité chimique de la liaison à haute température.

### 1.1.2. Assemblages céramique/molybdène par soudage diffusion

Les alliages de molybdène possèdent de bonnes propriétés mécaniques à chaud et, malgré leur coût élevé, demeurent plus économiques que les céramiques thermomécaniques. Leur principal inconvénient est leur faible résistance à l'oxydation, qui empêche leur utilisation à chaud sous atmosphère non contrôlée. Pour remédier à ce problème, il a été envisagé la fabrication de composants composites, constitués d'un cœur massif en alliage de molybdène, recouvert d'une « carapace » de céramique Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>-TiN.

Si quelques études ont déjà révélé la réactivité du nitrure de silicium avec le molybdène [Schuster, 1988b, Heikinheimo, 1992], en revanche la liaison entre ces deux matériaux n'a jamais été réalisée.

Des essais d'assemblage par soudage-diffusion, à l'aide de l'installation décrite dans le paragraphe précédent, ont donc été entrepris entre la céramique Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>-TiN et un alliage de molybdène.

Les données thermodynamiques prévoient la décomposition du nitrure de silicium par le molybdène et la formation de siliciures MoSi<sub>2</sub>, Mo<sub>5</sub>Si<sub>3</sub>, Mo<sub>3</sub>Si [Schuster, 1988b], mais aucune liaison n'a pu être obtenue lors de l'assemblage direct céramique/molybdène, sans doute en raison des cinétiques de réaction trop lentes aux températures d'assemblage choisies (1200°C).

L'utilisation d'un matériau d'apport a donc dû être envisagée. Les inserts en alliage Fe-Cr-Al ayant déjà montré leur efficacité avec la céramique, c'est ce matériau que nous avons retenu. Des assemblages réalisés à 1200°C ont permis d'obtenir la liaison des deux matériaux. L'interface céramique-insert est identique à celle présentée dans la partie précédente. L'interface insert-molybdène est quand à elle constituée d'une couche de réaction (CR) continue composée d'un intermétallique Mo-Fe-Cr (Figure 1.4). L'insert Fe-Cr-Al s'enrichit pendant l'assemblage en molybdène, pour former une structure biphasée constituée d'une solution solide et d'intermétalliques Mo-Fe-Cr. Ces intermétalliques ont un caractère fragile et sont souvent fissurés, probablement sous l'action des contraintes résiduelles induites par la différence de propriétés physiques des deux matériaux, mais les fissures, toujours perpendiculaires à l'interface, ne se propagent pas dans les matériaux de base, ce qui permet d'espérer des comportements mécaniques acceptables (Figure 1.4.b). En revanche, la stabilité de cette liaison est relativement faible, et on peut s'attendre à une diffusion du molybdène dans l'insert à haute température, jusqu'à sa transformation complète en intermétallique.

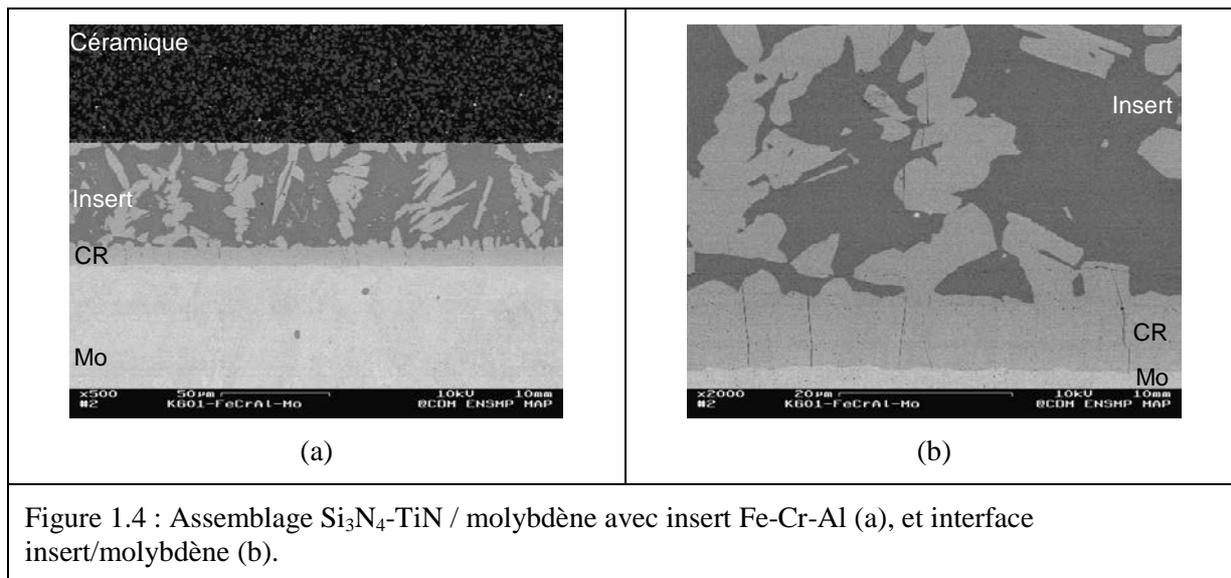


Figure 1.4 : Assemblage  $\text{Si}_3\text{N}_4\text{-TiN}$  / molybd ne avec insert Fe-Cr-Al (a), et interface insert/molybd ne (b).

### 1.1.3. Assemblages c ramique-c ramique par brasage

La technique d'assemblage par brasage des c ramiques  $\text{Si}_3\text{N}_4\text{-TiN}$  a  t   tudi e comme une alternative au soudage diffusion, qui n cessite des installations assez co teuses du fait de l'application d'une pression contr l e. Le proc d  est relativement simple   mettre en  uvre, puisqu'il ne requiert qu'un four sous atmosph re contr l e. En revanche, la technique n cessite l'apparition d'une phase liquide, ce qui demande, si l'on veut obtenir des assemblages r fractaires, de chauffer bien au del  des temp ratures d'utilisation pr vues des c ramiques.

Ce travail a d marr  dans le cadre du stage d' l ve ing nieur de Oussama Boukraa, de l'Ecole Nationale d'Ing nieur de Rabat, en 1999 [Boukraa, 1999].

Le proc d  d'assemblage par brasage implique trois m canismes principaux, qui peuvent  tre contr l s par un choix adapt  de mat riau d'apport et de conditions op ratoires. D'abord, le mat riau d'apport, qui apr s assemblage doit conserver des propri t s m caniques acceptables, en particulier   chaud pour les applications vis es ici, doit passer au moins partiellement   l' tat liquide. Cette condition est souvent remplie par le choix de m langes de constituants, m talliques ou c ramiques, formant un eutectique   une temp rature compatible avec les conditions de brasage. Ensuite, le mat riau d'apport, totalement ou partiellement liquide   la temp rature de brasage, doit pr senter un bon mouillage des surfaces   assembler. Cette condition n'est pas toujours remplie dans le cas du mouillage de m taux sur des c ramiques. Enfin, le mat riau d'apport doit r agir avec les mat riaux de base   assembler, pour permettre l' tablissement d'une liaison de nature chimique.

D'autres consid rations peuvent  galement  tre prises en compte, comme l'aptitude du mat riau d'apport   r agir compl tement avec les mat riaux de base pour former des constituants plus r fractaires (on parle alors de brasage r actif), ou la formation, pendant le refroidissement, de phases durcissantes et/ou fragilisantes dans la brasure.

Nous avons choisi d'utiliser en guise de mat riau d'apport des m langes de poudres, de deux natures diff rentes :

- un m lange   base d'alliage Fe-Cr-Al et de TiN (4 pds%), l'alliage Fe-Cr-Al ayant d j  d montr  son bon comportement vis   vis de la c ramique  tudi e, le TiN  tant ajout  pour am liorer la tenue m canique   haute temp rature.

- des m langes de poudres oxydes  $\text{SiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-Y}_2\text{O}_3$ . Ces m langes sont de composition proche de celle de la phase intergranulaire de la c ramique. Ces trois compos s ont des temp ratures de fusion tr s  lev es, mais le syst me pr sente un eutectique de temp rature comprise entre 1350 et 1400 C.

Des essais de brasage sous argon r alis s avec le m lange   base de poudres de Fe-Cr-Al et de TiN jusqu'  une temp rature de 1550 C n'ont pas permis d'obtenir une liaison, sans doute   cause de la formation, malgr  l'atmosph re d'argon, d'une fine pellicule solide d'oxyde d'aluminium autour des particules de Fe-Cr-Al, qui emp che leur mouillage sur la surface de la c ramique. L'utilisation de ces m langes a donc  t  abandonn e.

En revanche, les mélanges d'oxydes ont fournis des résultats prometteurs.

Le cycle type de brasage consiste à monter la température entre 1400 et 1500°C (au-delà de la température de liquidus des mélanges de poudres), sous balayage d'argon, et de maintenir cette température entre 5 et 45 minutes. Quatre mélanges d'oxydes avaient été choisis, dont les compositions les situaient sur des nappes de cristallisation primaire différentes autour de l'eutectique ternaire, de manière à tenter de favoriser à la fois l'homogénéisation et le mouillage de la brasure par la formation du liquide eutectique, et son durcissement par la précipitation de différentes phases cristallines au refroidissement.

Lorsque la température de brasage est suffisante pour former une grande quantité de liquide (supérieure à 1450°C), le mouillage de la brasure sur la céramique est très bon (angle de mouillage inférieure à 30°C). Quelques minutes sont toutefois nécessaires à 1450°C pour permettre l'homogénéisation par diffusion à l'état solide de certains mélanges, avant de former la phase liquide. Les brasures obtenues, majoritairement vitreuses, présentent quelques phases cristallines, qui correspondent à des restes de poudres « infondues », ou à la cristallisation primaire ou secondaire au refroidissement (Figure 1.5a). Ces cristaux sont de natures différentes selon les compositions. Il est intéressant de constater que seule la phase  $\text{Si}_3\text{N}_4$  de la céramique est dissoute par le liquide formé (Figure 1.5b), la phase  $\text{TiN}$  demeurant quand à elle intacte. Pour chacun des mélanges étudiés, on a observé une couche de réaction continue, d'épaisseur régulière (Figure 1.5c), ce qui laisse espérer de bonnes propriétés mécaniques, qui pourraient être améliorées à chaud en favorisant, par des traitements thermiques, la cristallisation des inserts vitreux.

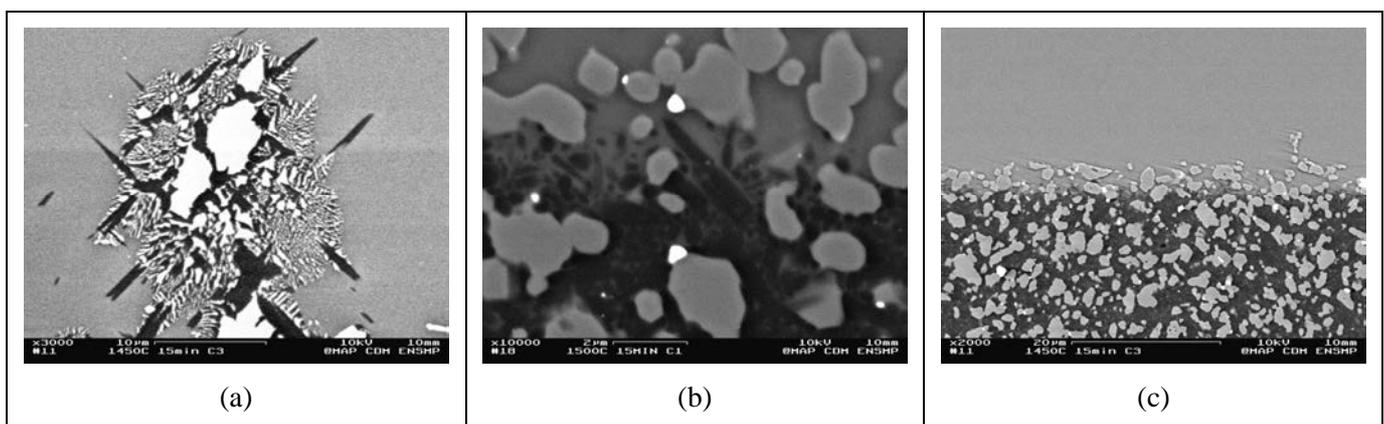


Figure 1.5 : Cristaux formés au sein de la brasure vitreuse (a), zone interfaciale montrant la dissolution sélective de la phase  $\text{Si}_3\text{N}_4$  (b), et épaisseur de la couche de réaction, pour un assemblage réalisé à 1450°C avec un temps de maintien de 15 min.

## 1.2. Assemblages acier-aluminium

La nécessité de réduction de la consommation énergétique dans les transports impose aux constructeurs la recherche de nouveaux modes de conception pour alléger les véhicules. Parmi les solutions envisagées, le concept de multi matériau, qui consiste à remplacer certains éléments de structure traditionnellement en acier par des alliages légers, d'aluminium ou de magnésium, est souvent avancé, notamment dans le domaine automobile. La réalisation de structures multi matériaux nécessite toutefois de revoir les techniques d'assemblage, en particulier par soudage, où des problèmes spécifiques sont rencontrés lors de l'assemblage de matériaux de nature différente. Parmi les couples de matériaux envisagés, les structures acier-aluminium sont les plus étudiées. Cependant, l'assemblage acier-aluminium par les procédés de soudage impliquant la fusion n'est pas maîtrisé actuellement, du fait des grandes différences de propriétés physiques (température de fusion, coefficient de dilatation thermique ...) entre les deux matériaux, mais surtout à cause de la solubilité quasi-nulle du fer dans l'aluminium, qui conduit à la formation de composés intermétalliques très fragiles.

Si les techniques de soudage à l'état solide, par explosion, par friction ou friction malaxage permettent de réaliser des liaisons de qualité par le contrôle de l'épaisseur d'intermétallique formé, en revanche,

avec les procédés par fusion le problème est bien plus délicat, du fait de la forte réactivité des deux matériaux à l'état liquide. Quelques résultats encourageants ont toutefois été obtenus en soudage à l'arc, mais les travaux les plus importants ont été menés ces dernières années avec le procédé laser, qui permet d'atteindre des vitesses d'assemblage très élevées, limitant la quantité de phase intermétallique formée.

Les travaux de thèse de Guillaume Sierra [Sierra, 2006], démarrés en 2003, ont apporté une contribution à la maîtrise de l'assemblage acier-aluminium par soudage. Nous avons choisi, lors de cette étude, d'étudier les possibilités de réaliser une liaison à l'aide de deux procédés de soudage : le procédé laser, qui semble le plus prometteur et est assez largement utilisé dans la construction automobile, et un procédé de soudage à l'arc conventionnel, le procédé TIG (Tungsten Inert Gaz), pour ouvrir une perspective vers d'autres applications que l'automobile. Deux types d'interaction ont également été étudiés : une interaction entre l'aluminium liquide et l'acier solide (technique du soudobrasage), qui permet de limiter la température, avec les deux procédés, et une interaction des deux matériaux à l'état liquide en soudage laser, en essayant de profiter de la vitesse élevée caractéristique du procédé pour limiter la quantité d'intermétallique formée, malgré les températures élevées.

Les matériaux retenus pour nos essais d'assemblage étaient un acier doux de type DC04, couramment employé dans l'automobile, et un alliage d'aluminium 6016, utilisés sous forme de tôles d'épaisseur 1 à 1,2 mm. Les tôles d'acier étaient utilisées à l'état nu ou électrozingué. Le mouillage de l'aluminium liquide sur la surface de l'acier solide pouvant être gêné par la formation d'une fine couche d'alumine recouvrant l'aluminium, un flux décapant à base de fluorures a été parfois utilisé pour les assemblages par soudobrasage. Ces travaux ont donné lieu à quatre publications (A7, A8, A10, A13), et à quatre communications dans des conférences internationales (C6i, C9i, C10i, C12i).

### **1.2.1. Assemblages acier-aluminium par soudobrasage laser**

Pour limiter la quantité et la taille des phases intermétalliques fragiles formées, il est généralement nécessaire de limiter la température de l'interface acier-aluminium. La technique de soudobrasage, qui consiste à ne fondre que le matériau à plus bas point de fusion, et à favoriser son étalement sur le second métal resté solide, permet d'assurer un bon contact acier-aluminium sans produire d'échauffement excessif.

La technique venait d'être employée par Rathod et Kutsuna [Rathod, 2004, Kutsuna, 2006], dans une configuration en transparence (recouvrement des deux tôles), où l'irradiation de l'acier par un faisceau laser défocalisé produisait la fusion de l'aluminium, par conduction à travers l'interface. Dans le même temps, des essais avec matériau d'apport en alliages Al-Si ou Zn-Al étaient entrepris au Bremen Institute of Applied Beam Technology (BIAS) en Allemagne [Kreimeyer, 2004], puis au Laboratoire Laser et Traitement des Matériaux (LTM) du Creusot [Mathieu, 2006, 2007]. Lors de ces travaux, le laser irradiait cette fois directement le métal d'apport et l'aluminium.

Les essais d'assemblage laser de tôles d'aluminium sur acier, que nous avons entrepris à partir de 2003, ont été réalisés au Laboratoire pour l'Application des Lasers de Puissance (LALP) à Arcueil, en collaboration avec Patrice Peyre. La géométrie d'assemblage retenue était une configuration dite « à clin », où le laser irradiait directement l'arête supérieure de la tôle en aluminium, située au dessus de la tôle acier, entraînant sa fusion et son étalement sur la surface solide de l'acier. Des essais avec matériau d'apport étaient également réalisés, avec un fil d'apport de composition Al-12%Si proche de la composition eutectique, le laser irradiant alors à la fois le fil d'apport et la tôle d'aluminium (Figure 1.6).

Nous présentons dans la suite les principales conclusions de cette étude, qui a permis d'identifier les facteurs opératoires déterminants pour la qualité des liaisons.

L'assemblage sur acier nu requiert toujours l'utilisation d'un flux décapant, déposé à la surface de l'acier, pour favoriser l'étalement de l'aluminium. La couche de réaction alors formée à l'interface acier-aluminium, principalement constituée d'intermétallique  $Fe_2Al_5$ , a une épaisseur comprise entre 2 et 16 microns. Sa largeur est conditionnée par le mouillage de l'aluminium sur l'acier, qui est favorisé par la diminution de la vitesse de soudage. Des angles de mouillage de 30 à 40° ont été obtenus lorsque la vitesse laser est inférieure à 800 mm/min. Pour les épaisseurs de couche de réaction les plus élevées, obtenues avec de fortes puissances laser ou des vitesses de soudage limitées, des

intermétalliques sont aussi observés dans la zone fondue de l'aluminium, révélant une dissolution de l'intermétallique ou du fer par l'aluminium liquide (Figure 1.7a). Les couches de réaction les plus épaisses sont fissurées, ce qui confirme le caractère fragile des intermétalliques formés, dont la dureté, mesurée par nano indentation, est de 1200 environ.

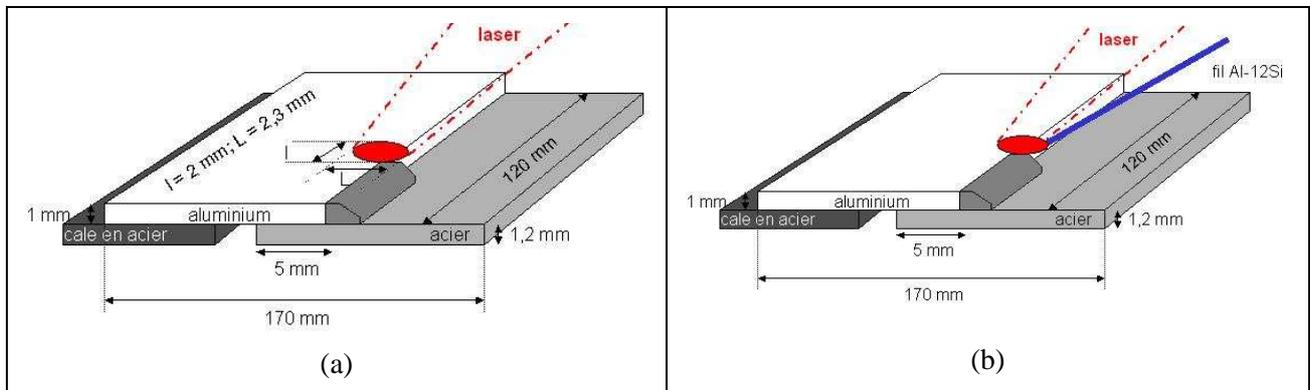


Figure 1.6 : Configuration choisie pour les essais de soudobrasage, sans métal d'apport (a), et avec métal d'apport (b).

Sur acier électrozingué, la présence d'une couche de zinc, qui fond dès 419°C, favorise la dissolution de l'alumine superficielle, et le mouillage de l'aluminium devient possible sans l'utilisation d'un flux décapant. L'angle de mouillage est alors plus faible qu'avec l'utilisation d'un flux, et la couche de réaction beaucoup plus épaisse, pouvant atteindre 40 microns (Figure 1.7b). Des porosités sont aussi observées à l'interface lorsque aucun flux n'est utilisé, dues à la vaporisation du zinc. Le flux de brasage, en plus de favoriser la dissolution de l'alumine, semble donc agir à la fois comme une barrière chimique, en retardant la réaction entre l'aluminium et l'acier, et thermique, en limitant le flux de chaleur transmis à l'acier, et donc la température du substrat sur lequel se dépose l'aluminium liquide.

L'utilisation d'un matériau d'apport Al-12Si, sous forme de fil déposé sous le faisceau laser, modifie la nature de la couche de réaction formée, qui est alors constituée d'intermétalliques ternaires Fe-Al-Si. Ce matériau d'apport, de composition proche de l'eutectique, a été choisi pour favoriser la fusion de l'aluminium, et donc pour tenter de réduire l'apport d'énergie. Les couches de réaction formées sont alors d'épaisseur inférieure à 2 microns, quelque soient les conditions d'assemblage, et ne sont jamais fissurées (Figure 1.7c). L'épaisseur de couche de réaction plus fine obtenue pour ces assemblages est attribuée à la présence de silicium dans l'aluminium fondu, qui accélère la vitesse de dissolution du fer et des intermétalliques [Viala, 2002].

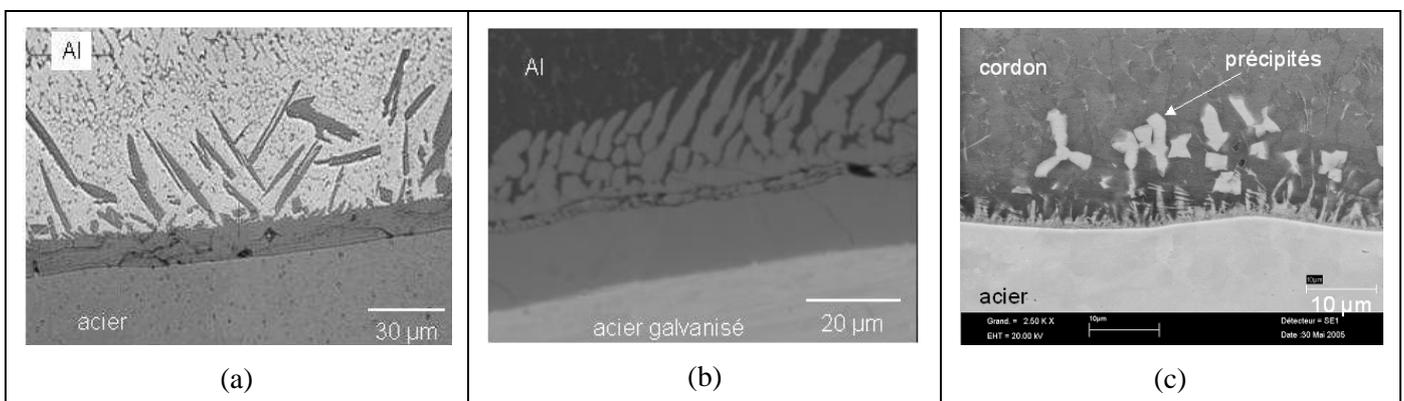


Figure 1.7 : Interfaces obtenues par soudobrasage laser, dans les assemblages acier/aluminium avec flux (a), acier électrozingué/aluminium sans flux (b), et acier/aluminium avec apport Al-12Si et flux (c).

### 1.2.2. Assemblages acier-aluminium par soudobrasage à l'arc

Le procédé de soudage laser, même s'il est de plus en plus répandu dans la construction automobile, demeure d'un coût élevé. Il était intéressant d'envisager un autre procédé de soudage plus conventionnel pour étudier l'assemblage acier-aluminium. Le procédé de soudage à l'arc TIG a été retenu, car il permet une grande stabilité d'arc électrique, et donc un apport énergétique constant, du fait de l'absence de transfert de métal dans l'arc, établi grâce à une électrode non fusible en tungstène. Comme en soudage laser, la principale difficulté rencontrée lors du soudage à l'arc entre acier et aluminium est le contrôle de l'épaisseur des intermétalliques formés [Belchuk, 1973]. Des travaux récents ont montré que des liaisons de qualité acceptable pouvaient être obtenues en utilisant un métal d'apport avec le procédé de soudage à l'arc MIG (Metal Inert Gaz), dans une configuration identique au soudobrasage laser (cf. 1.2.1) [Murakami, 2003, Zhang, 2006].

Dans tous ces travaux, la fusion de l'aluminium était obtenue par chauffage direct avec l'arc électrique, ce qui rendait le contrôle de la température du bain fondu et de l'interface de liaison délicat. Dans le cadre de la thèse de Guillaume Sierra, nous avons retenu une configuration de soudage « par transparence en plafond » (Figure 1.8), dans laquelle l'acier est chauffé par l'arc électrique, ce qui produit par conduction thermique à travers l'interface la fusion de l'aluminium, maintenu au contact de l'acier par l'application d'une pression. Cette géométrie est proche de celle utilisée par Rathod en laser (chauffage indirect de l'aluminium) [Rathod, 2004], mais du fait de la nature de la source de chaleur, les cycles thermiques subis par l'interface sont ici très différents. La technique de chauffage indirect de l'aluminium s'avérait de peu d'intérêt en laser, car elle réduisait fortement les vitesses de soudage, qui est l'un des principaux atouts de la technique laser. En revanche, en soudage TIG, les vitesses sont beaucoup plus faibles, et la configuration choisie ne présente plus un inconvénient majeur.

Cette configuration permet, en limitant l'apport d'énergie, de contrôler la température interfaciale de manière à établir un contact entre l'aluminium liquide et l'acier solide (Figure 1.8a). Le contrôle de l'épaisseur de la couche de réaction formée est également possible, en jouant sur les paramètres de soudage. Pour mieux appréhender la relation entre les paramètres procédés et les cycles thermiques subis par les différents éléments, des thermocouples ont été implantés au niveau des tôles et de la bride permettant de maintenir le contact entre acier et aluminium (Figure 1.9).

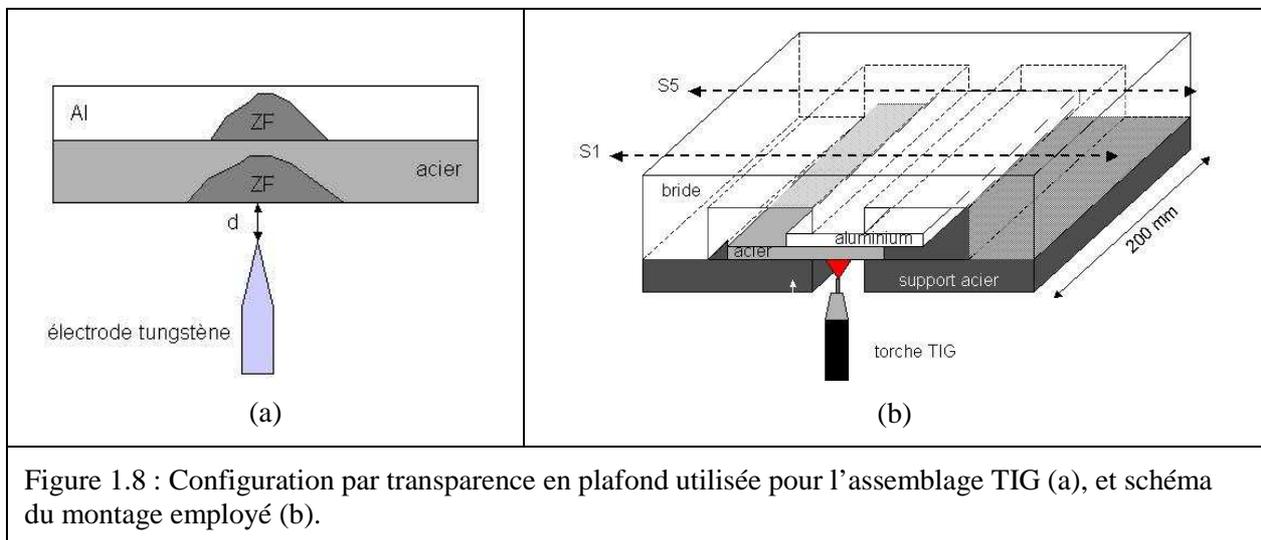
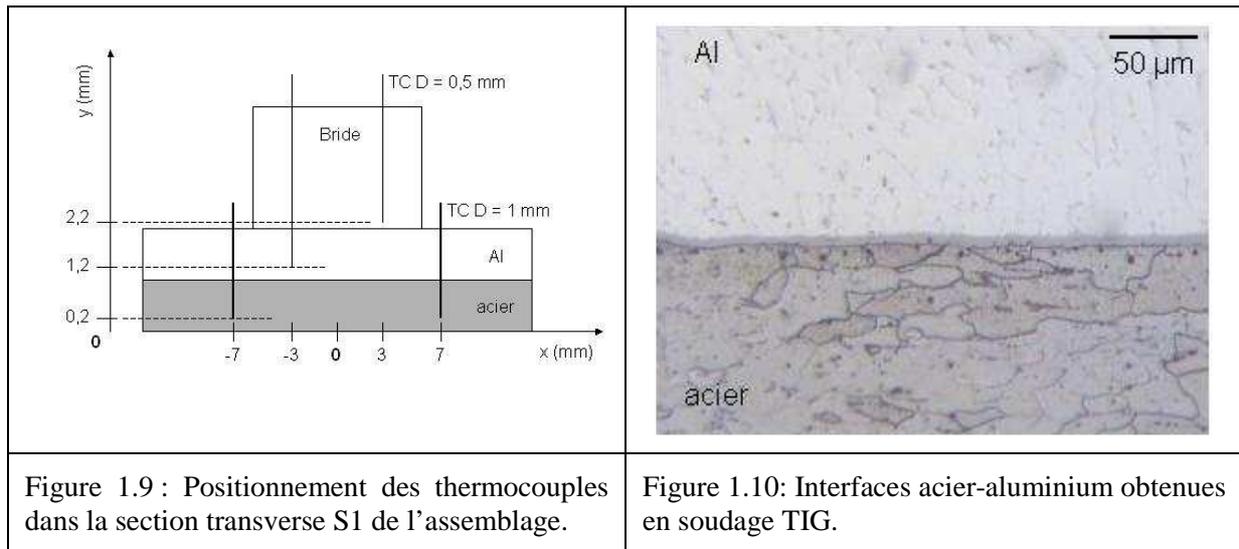


Figure 1.8 : Configuration par transparence en plafond utilisée pour l'assemblage TIG (a), et schéma du montage employé (b).

La qualité et la régularité de la liaison formée sont très dépendantes du contact entre les tôles acier et aluminium, assuré lors des premiers essais par la bride en aluminium (Figure 1.8b). Pour améliorer le contact, un système de molette solidaire de la torche de soudage, qui vient appliquer une pression juste devant l'arc électrique, a été par la suite développé.

D'autres facteurs modifient le flux de chaleur entre les deux tôles, comme l'utilisation d'un flux décapant, déposé à l'état solide entre l'acier et l'aluminium et qui, en fondant à partir de 565°C, favorise le transfert thermique, ou la présence d'une fine couche de zinc sur la surface de l'acier électrozingué.



La morphologie des interfaces obtenues en soudage TIG est relativement proche de celle obtenue en laser (Figure 1.10). Les épaisseurs maximales d'intermétalliques sont toutefois plus faibles (15 microns environ), l'interface entre la couche de réaction et le bain de fusion aluminium est plus plane, et seules quelques rares phases intermétalliques sont observées dans la zone de fusion de l'aluminium. D'autre part, les porosités liées à la vaporisation du zinc, parfois formées en soudage laser, ne sont jamais observées ici. Ces différences s'expliquent principalement par les caractéristiques des cycles thermiques subis à l'interface acier-aluminium en laser et en TIG, ce dernier procédé impliquant des températures interfaciales maximales plus faibles. Cet aspect sera rediscuté au paragraphe 1.4.

Comme pour les assemblages laser, les couches de réaction les plus épaisses, obtenues avec de fortes énergies de soudage (intensité de soudage élevée ou vitesse lente), sont fissurées. La couche de réaction est constituée principalement de  $Fe_2Al_5$  dans le cas des assemblages sur acier nu, et de composés ternaires ou quaternaires contenant 2 à 13% de Si et jusqu'à 7% de Zn dans le cas des assemblages sur acier électrozingué.

### 1.2.3. Assemblages acier aluminium par fusion des deux matériaux en soudage laser

La plupart des procédés de soudage entraînent la fusion localisée des deux matériaux à assembler, et c'est le mélange des deux liquides formés, puis sa solidification, qui constitue la liaison. Dans le cas de la liaison acier-aluminium, le mélange à l'état liquide des deux matériaux, qui nécessite des températures élevées, supérieures à la température de fusion de l'acier, favorise la croissance rapide des composés intermétalliques fragiles. Grâce au procédé laser qui, par les très fortes densités d'énergie qu'il produit, permet des cycles fusion-solidification extrêmement rapides, on peut toutefois espérer, en formant de nouvelles phases hors équilibre thermodynamique, créer des liaisons acier-aluminium saines. La technique avait été employée tout récemment avec un certain succès par Katayama [Katayama, 2004].

Pour permettre des vitesses de soudage élevées, le faisceau laser doit être focalisé, pour atteindre des densités de puissance supérieures à  $10^6 \text{ W.cm}^{-2}$ , et entraîner la vaporisation du métal irradié. Un « capillaire de vapeur » se forme alors, entouré de parois liquides, dont la stabilité est assurée par l'équilibre des pressions produites par la vaporisation du métal et le faisceau laser, qui tendent à son expansion, et celles produites par les tensions superficielles, la gravité et l'hydrodynamiques du bain, qui tendent à le refermer. Dès que le capillaire de vapeur, ou « key-hole » est créé, le couplage laser-matière s'améliore puisque l'absorption du laser par la matière augmente, sous la forme de multi réflexions de Fresnel sur les parois du capillaire, qui atteint un rapport profondeur/diamètre élevé.

Ce mode de soudage « en key-hole » est le plus courant en laser, car il permet d'atteindre des vitesses de soudage dix fois plus élevées qu'en mode de soudage par conduction avec un faisceau défocalisé, où seule la surface du métal liquide est irradiée, comme dans le cas du soudobrasage présenté au paragraphe 1.2.1.

Les essais d'assemblage acier-aluminium par laser en mode key-hole que nous avons réalisés dans le cadre de la thèse de Guillaume Sierra ont également été effectués au Laboratoire d'Application des Laser de Puissance (LALP) à Arcueil, en collaboration avec Patrice Peyre.

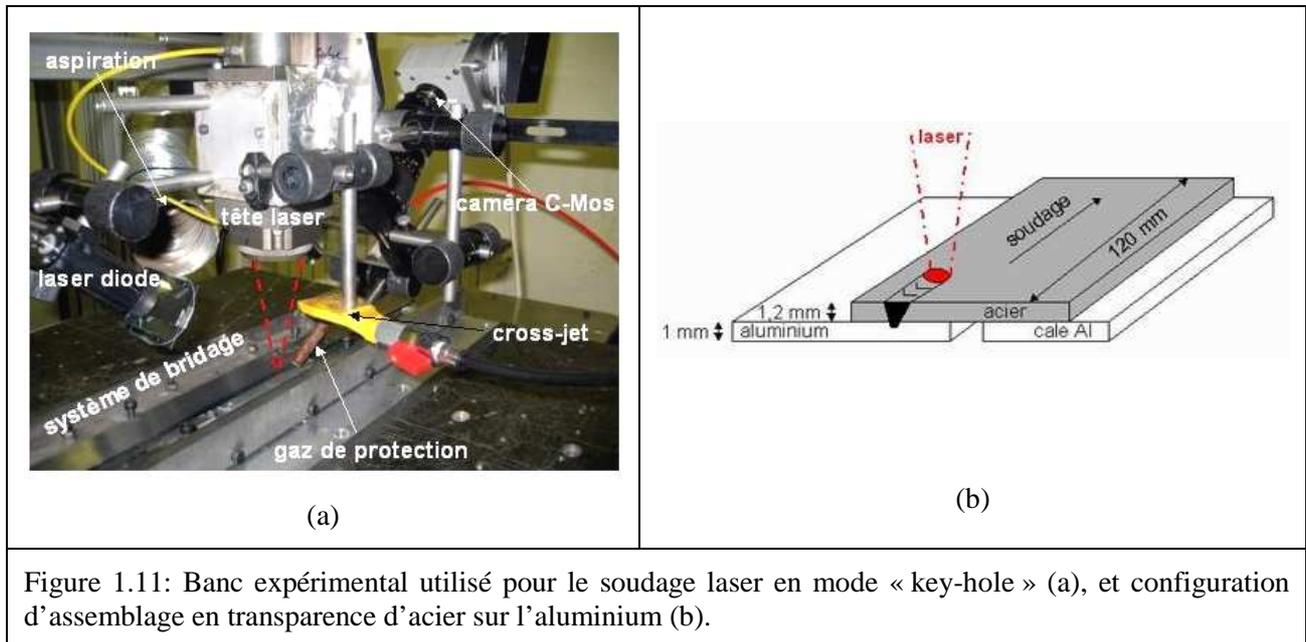


Figure 1.11: Banc expérimental utilisé pour le soudage laser en mode « key-hole » (a), et configuration d'assemblage en transparence d'acier sur l'aluminium (b).

Le dispositif expérimental utilisé, représenté sur la figure 1.11a, est constitué d'une tête laser avec fibre optique, lentille de collimation et lentille de focalisation, d'un système de bridage « statique » solidaire d'une table de déplacement x,y, ou d'un système de bridage par molettes solidaire de la tête laser, et de systèmes de protection gazeuse pour les optiques (cross-jet d'air comprimé) et pour éviter l'oxydation du métal (buse d'argon).

Les essais de soudage laser ont toujours été réalisés « en transparence », le laser venant irradier la tôle supérieure, qui était soit l'acier nu ou électrozingué (Figure 1.11b), soit l'aluminium.

Lorsque l'aluminium est positionné au dessus de l'acier, des fissures sont toujours observées dans le cordon de soudure et/ou à l'interface cordon acier, du fait de la formation extensive de phases intermétalliques  $Fe_xAl_y$  (Figure 1.12a), et la tenue mécanique des assemblages obtenus s'est révélée très faible.

Dans la configuration où l'acier est positionné sur l'aluminium, la qualité des soudures obtenues est en grande partie liée à la pénétration du cordon dans l'aluminium. Ce paramètre est parfois fluctuant le long d'un même cordon, car il dépend du jeu inter tôles, qui doit être quasi nul, mais qu'il est difficile de maintenir avec le système de bridage statique. La mise au point du système de bridage par molettes a permis de mieux maîtriser ce jeu, conduisant à une pénétration presque constante le long de l'assemblage (Figure 1.13).

Les liaisons présentant une pénétration de l'acier dans l'aluminium inférieure à 500  $\mu m$  ne présentent pas de fissures (Figure 1.12b). En revanche, pour des pénétrations élevées, des fissures sont observées au niveau de l'interface aluminium-cordon (Figure 1.12c), ainsi qu'en surface, dans la zone fondue, témoignant de la grande fragilité des phases formées dans les cordons et à l'interface. Une phase  $FeAl$  a ainsi été identifiée au sein de la zone fondue, alors que des composés intermétalliques  $Fe_2Al_5$  et/ou  $FeAl_3$ , d'épaisseur comprise entre 5  $\mu m$  et 20  $\mu m$ , ont été détectés à l'interface cordon-aluminium.

Le soudage en mode key-hole s'est avéré plus délicat sur acier électrozingué, en raison de la vaporisation du Zn ( $T_V = 907^\circ C$ ), qui intervient avant la fusion de l'acier ( $T_f = 1536^\circ C$ ) et provoque des instabilités du bain liquide (éjections de matière) lorsque le jeu inter tôles est faible. Des porosités de taille macroscopique, dues à la vaporisation du zinc, sont également observées dans la zone fondue de l'aluminium (Figure 1.14).

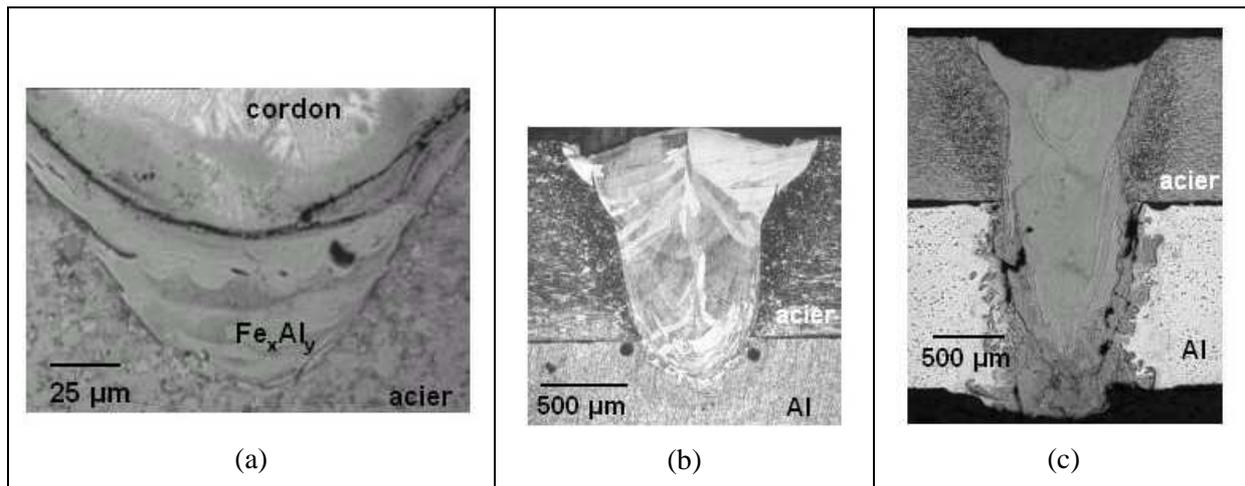


Figure 1.12: Coupes transverses d'assemblages ; aluminium sur acier montrant les phases intermétalliques fissurées en racine de cordon (a), acier sur aluminium avec une faible pénétration dans l'aluminium -  $P = 3,1 \text{ kW}$ ,  $V = 5,5 \text{ m.min}^{-1}$  (b), et acier sur aluminium avec une forte pénétration dans l'aluminium -  $P = 3,1 \text{ kW}$ ,  $V = 5 \text{ m.min}^{-1}$  (c).

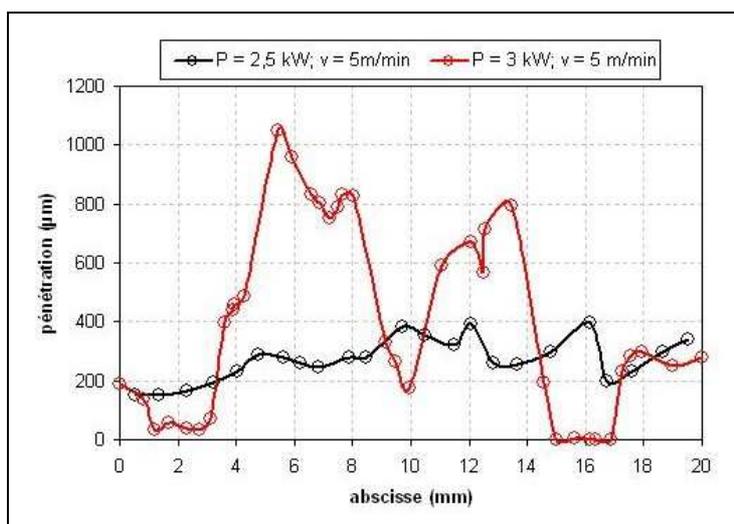


Figure 1.13 : Evolution de la pénétration le long du cordon pour des assemblages réalisés avec un système de bridage statique (en rouge) ou par molette (en noir).

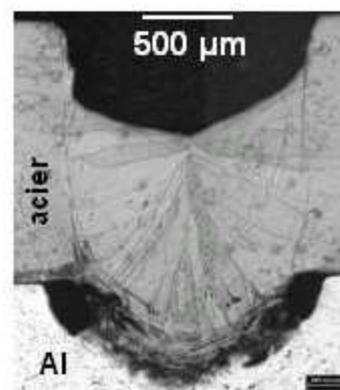


Figure 1.14 : Défauts rencontrés lors du soudage en mode key-hole sur acier électrozingué : porosité en zone fondue de l'aluminium et éjection de matière due à la déstabilisation du bain par la vaporisation du zinc ( $P=3 \text{ kW}$ ,  $V=5 \text{ m/min}$ ).

### 1.3. Réparation par soudage à l'arc d'aciers réfractaires moulés

Du fait de leur grande stabilité métallurgique, leur bonne résistance à l'oxydation, leur tenue au fluage et leur coût modéré comparé aux superalliages de nickel, les aciers réfractaires moulés sont utilisés depuis le début des années 60 pour la fabrication de composants pour l'industrie pétrochimique. Plus récemment ce type d'acier, contenant 20 à 30% de chrome, 20 à 50% de nickel, et jusqu'à 0,45% de carbone, a été utilisé pour la fabrication d'outils de formage superplastique de grandes dimensions destinés à la réalisation de composants pour l'aéronautique.

La résistance au fluage de ces matériaux est due à leur teneur en carbone élevée, qui provoque la précipitation de carbures primaires interdendritiques au moment de la solidification, et de carbures

secondaires qui se forment au sein des grains lors de traitements de stabilisation après coulée ou lors de vieillissements en service [Wu, 2000]. Le principal inconvénient de ces alliages est leur faible ductilité à température ambiante, qui persiste pour les nuances les plus chargées en carbone jusqu'à 700°C ou plus. Cette caractéristique rend ces matériaux sensibles à la fissuration en service, en particulier dans le cas des outils de formage superplastique, qui subissent de sévères cycles thermomécaniques. D'autre part l'assemblage ou la réparation de composants endommagés par soudage est très délicat, les composants ayant tendance à fissurer sous l'effet des contraintes thermiques induites par l'opération.

Pour permettre le soudage, une remise en solution des carbures secondaires, qui améliore légèrement la ductilité du matériau, a été envisagée, mais ce traitement est très onéreux pour des composants de grandes dimensions, car les températures de remise en solution sont souvent supérieures à 1200°C [Ebert, 1976]. Une technique de soudage avec « beurrage » a également été testée, consistant à déposer au préalable par soudage sur la surface à assembler ou à réparer, une couche de métal ductile à faible limite d'élasticité, dont le rôle est de permettre la relaxation des contraintes créées lors de la suite de l'opération [Haro, 2002]. Cette technique n'est toutefois pas toujours suffisante pour éviter la fissuration, et le choix du matériau de beurrage est alors crucial.

Pour tenter d'améliorer les techniques de réparation par soudage à l'arc d'outils de formage superplastique en aciers réfractaires moulés, une collaboration a été engagée avec les principaux industriels de l'aéronautique Français, Airbus, Snecma, Dassault, et l'aciériste Aubert & Duval. Une thèse, co-encadrée par le CROMeP de l'Ecole des Mines d'Albi (Philippe Lours) et le Laboratoire de Mécanique et Génie Civil, a alors démarré en 2002 [Branza, 2005]. La problématique était ici complexe, et a demandé plusieurs étapes successives pour atteindre le but recherché, qui était la réparation saine des outils endommagés. Un banc de soudage à l'arc automatisé a d'abord dû être développé, puis le phénomène de fissuration en cours de soudage étudié, et enfin des solutions ont été recherchées. Ces travaux ont donné lieu à deux publications (A5, A11), et à quatre communications dans des conférences internationales (C4i, C5i, C7i, C13i).

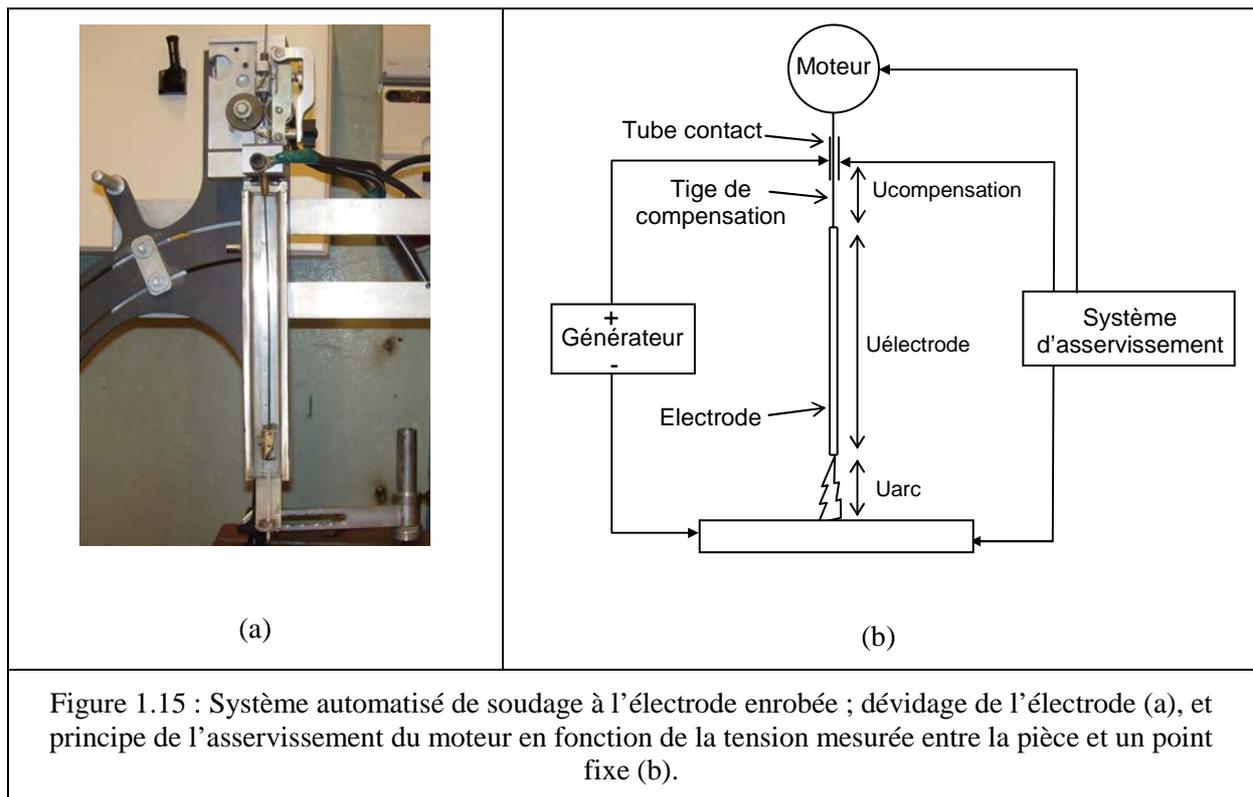
### **1.3.1. Automatisation d'un banc de soudage à l'arc à l'électrode enrobée**

Le principe de la réparation par soudage consiste à éliminer la matière endommagée, par usinage ou meulage, et à remplir la cavité ainsi créée en plusieurs passes de soudage à l'arc, généralement avec la technique manuelle de l'électrode enrobée. Avec ce procédé, un arc électrique est établi entre la ou les pièces à souder (matériau de base) et l'âme métallique d'une électrode (matériau d'apport), qui fond et se dépose dans le bain de métal en fusion formé sur le matériau de base. Pour compenser la fusion de l'électrode, l'opérateur doit laisser progressivement descendre celle-ci pour essayer de maintenir une hauteur d'arc constante. L'enrobage entourant l'électrode a quant à lui pour principale fonction de protéger le métal de l'oxydation, en formant un laitier qui surnage en surface du bain de métal fondu.

La qualité d'une soudure dépendant fortement des paramètres de soudage, il est important de pouvoir régler et contrôler ces derniers de manière précise, ce qui n'est pas possible en soudage manuel, la vitesse de soudage et la tension (qui dépend notamment de la hauteur d'arc) étant ajustées « au jugé » par l'opérateur.

Nous avons donc choisi de développer un banc automatisé de soudage à l'électrode enrobée. La « descente » de l'électrode, qui doit compenser sa fusion, est assurée par deux galets en rotation, dont la vitesse est ajustée en fonction de la tension de l'arc mesurée, de manière à maintenir cette dernière constante (Figure 1.15). Le principe de fonctionnement du système a été décrit en détail dans la thèse d'Arnaud Duchosal [Duchosal, 2006]. La tension d'arc ne pouvant être mesurée directement, du fait de la fusion de l'extrémité de l'électrode, la tension est mesurée entre deux points fixes situés sur la pièce à souder et sur un « tube contact » (Figure 1.15b), et correspond donc à la somme de la tension d'arc et de la tension de l'électrode. Pour que cette dernière demeure constante, la résistance électrique de l'électrode sous le tube contact est maintenue constante grâce à une tige de compensation de même nature que l'âme de l'électrode de soudage, qui compense la réduction de longueur produite par la fusion de celle-ci.

Le montage est installé à l'extrémité d'une potence motorisée, qui permet la translation horizontale de l'électrode à vitesse contrôlée.



Le système développé permet donc le réglage et le contrôle précis de l'intensité, la tension et la vitesse de soudage. Il a été utilisé pour délimiter le domaine de soudabilité opératoire, c'est à dire les plages d'intensité, de tension et de vitesse permettant d'obtenir des cordons de soudure de bonne qualité pour les aciers étudiés. Si l'on sort de ce domaine de soudabilité, des défauts géométriques apparaissent, ou la soudure devient impossible, du fait du collage de l'électrode au métal de base, ou d'une instabilité de l'arc, voire son extinction. Ce domaine dépend du matériau de base à souder, et du matériau d'apport. La figure 1.16a compare les domaines de soudabilité opératoire, pour une vitesse de soudage fixée, d'un des aciers réfractaires étudiés et d'un acier de construction ordinaire, et montre que la soudabilité opératoire est beaucoup plus limitée pour le premier. La vitesse de soudage modifie le domaine de soudabilité opératoire, en l'élargissant ou en le réduisant, ce qui montre qu'il existe une vitesse de soudage optimale permettant d'avoir la plus grande plage opératoire (Figure 1.16b). Ces essais préliminaires ont donc permis d'identifier les paramètres opératoires optimum, permettant de réduire au minimum les risques de défauts géométriques et de rupture d'arc en cours de réparation. Pour chaque couple matériau de base - matériau d'apport, la vitesse de soudage optimale a été retenue, et l'intensité et la tension de soudage ont été choisies au centre du domaine opératoire, de manière à être le plus tolérant possible vis-à-vis des inévitables fluctuations de tension qui peuvent apparaître du fait de la fusion de l'extrémité de l'électrode.

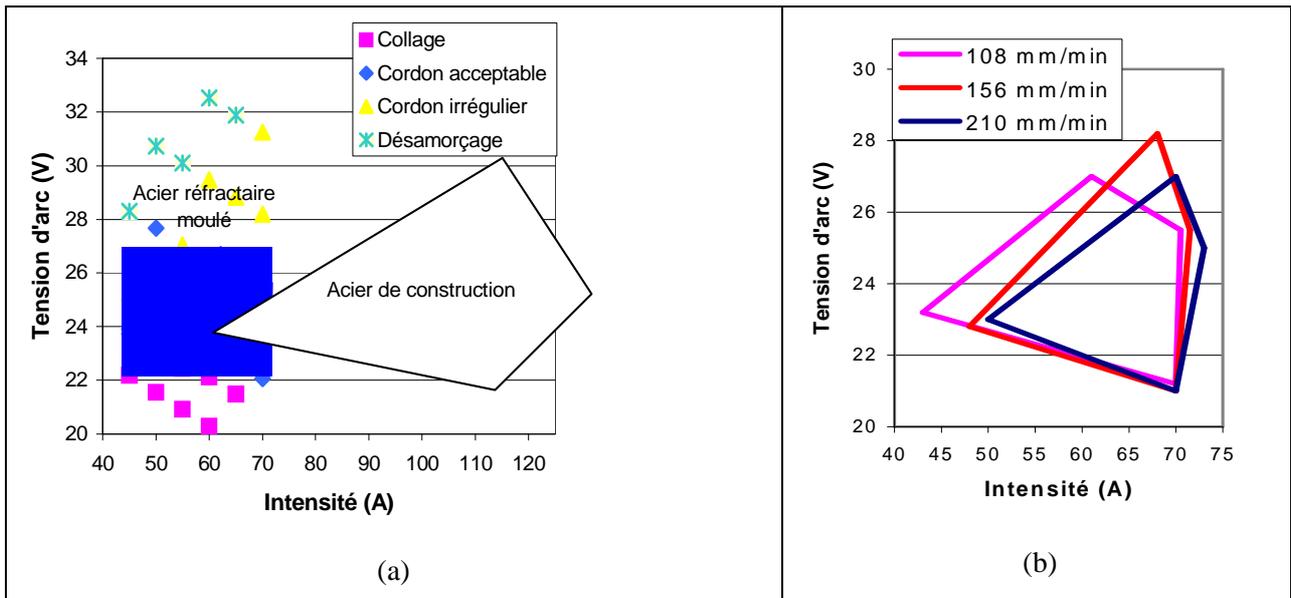


Figure 1.16 : Comparaison des domaines de soudabilité opératoire, pour une vitesse fixée, d'un acier de construction ordinaire et d'un acier réfractaire moulé (a), et influence de la vitesse de soudage sur le domaine de soudabilité opératoire d'un acier réfractaire moulé (b).

### 1.3.2. Etude de la fissuration en soudage des aciers réfractaires moulés

L'objectif de l'étude menée étant d'améliorer la procédure de réparation des outils de formage superplastique, nous avons choisi une configuration géométrique proche des conditions de réparation industrielles. Les éprouvettes d'acier réfractaire étaient constituées de blocs parallélépipédiques massifs, de  $400 \times 160 \times 120 \text{ mm}^3$ , dans lesquelles étaient usinées des rainures de profondeur maximale 20 mm, pour simuler l'enlèvement de matière dans une zone endommagée avant réparation (Figure 1.17).

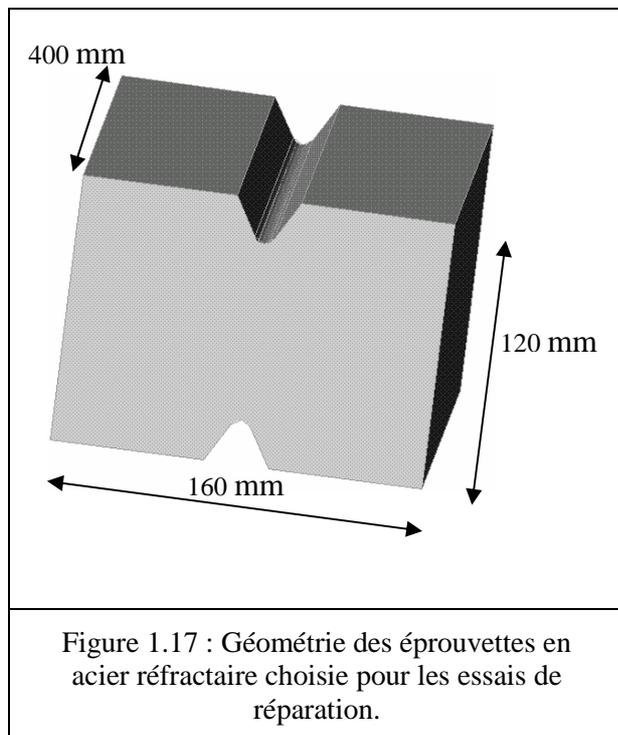


Figure 1.17 : Géométrie des éprouvettes en acier réfractaire choisie pour les essais de réparation.

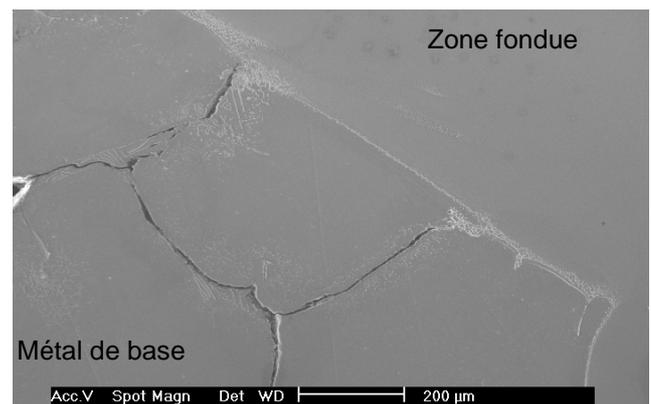
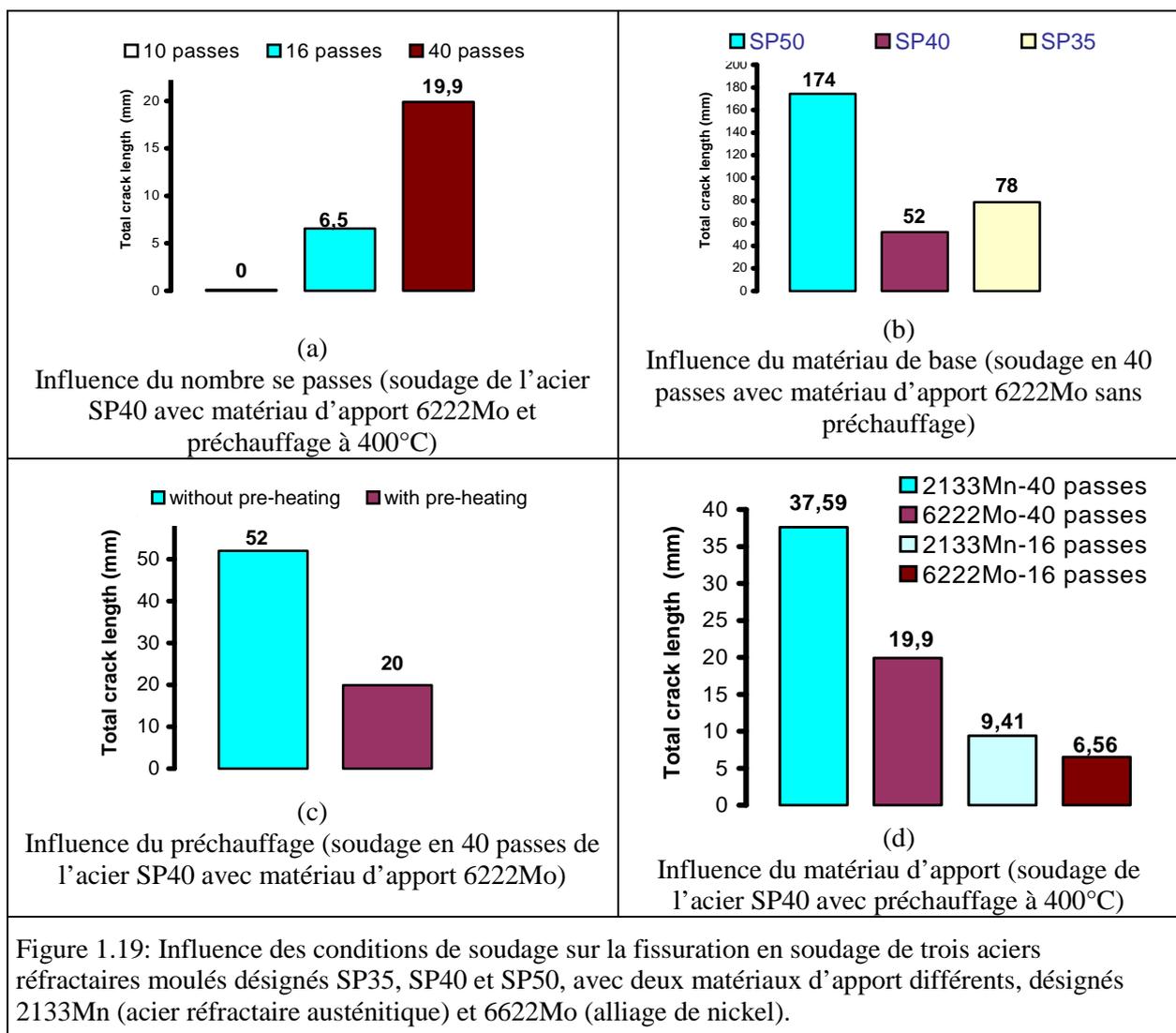


Figure 1.18 : Fissuration des aciers réfractaires moulés lors du rechargement par soudage, au voisinage de la zone de fusion.

Les éprouvettes sont ensuite « rechargées », en remplissant la rainure par des passes successives de soudage (jusqu'à 50 passes), à l'aide du système de soudage à l'électrode enrobée automatisé.

Les observations macrographiques et micrographiques des rechargements obtenus en utilisant une technique de soudage « standard » (sans beurrage) ont presque toujours révélé une fissuration du matériau au voisinage de la zone de fusion (Figure 1.18). Les fissures sont toujours formées dans les zones interdendritiques riches en carbures primaires issues du processus de solidification lors du moulage de l'acier. Ces carbures forment un réseau quasi-continu de phase fragile, conférant au matériau sa très faible ductilité.

Le niveau de fissuration dépend toutefois beaucoup des conditions de soudage, du matériau d'apport choisi, et de la nuance de l'acier réfractaire moulé. On a ainsi pu montrer, en quantifiant par analyse d'image la longueur totale de fissures dans les coupes transversales des soudures, l'influence de plusieurs facteurs sur la sensibilité à la fissuration en cours de soudage. Ces premiers résultats ont permis de définir les principaux paramètres opératoires affectant la fissuration. L'empilement des passes successives, en produisant un accroissement progressif des contraintes résiduelles de soudage, favorise la fissuration, ce qui explique l'apparition du phénomène après la dixième passe de soudage seulement dans certains cas (Figure 1.19a). Les aciers réfractaires moulés les moins riches en carbone, ou formant des carbures primaires plus dispersés, sont moins sensibles à la fissuration que ceux formant des carbures continus. Le préchauffage des éprouvettes avant soudage, en diminuant les gradients thermiques lors de l'opération de réparation, diminue les contraintes de soudage, et la fissuration est alors moins prononcée (Figure 1.19c).



Enfin, les matériaux d'apport à base d'alliage de nickel sont plus favorables que ceux constitués d'aciers réfractaires (Figure 1.19d). Toutefois, même en optimisant ces différents paramètres, des réparations profondes (20 mm) n'ont pu être réalisées sans fissuration avec cette technique de réparation standard, et d'autres solutions devaient être recherchées.

### 1.3.3. Réduction de la fissuration en soudage

Le préchauffage des éprouvettes en acier réfractaire à 400°C, qui est la température maximale admissible pour des réparations manuelles sans protection lourde, a permis de réaliser des réparations en 10 passes, ce qui représente une profondeur de 7 mm environ, sans fissuration. Pour réparer des zones dans lesquelles des fissures plus profondes se sont formées, il est donc nécessaire de coupler le préchauffage à d'autres techniques.

La technique de beurrage (Figure 1.20a) avec différents matériaux d'apport à base de nickel, par la création d'une « couche d'accommodation », a permis de réaliser des réparations en 50 passes environ (profondeur de 20 mm) sans fissures dans le matériau de base. Cependant, des fissures sont alors apparues dans la couche de beurrage elle-même, attribuées à un phénomène de fissuration à chaud, souvent observé dans les alliages de nickel ou les aciers austénitiques (Figure 1.20b).

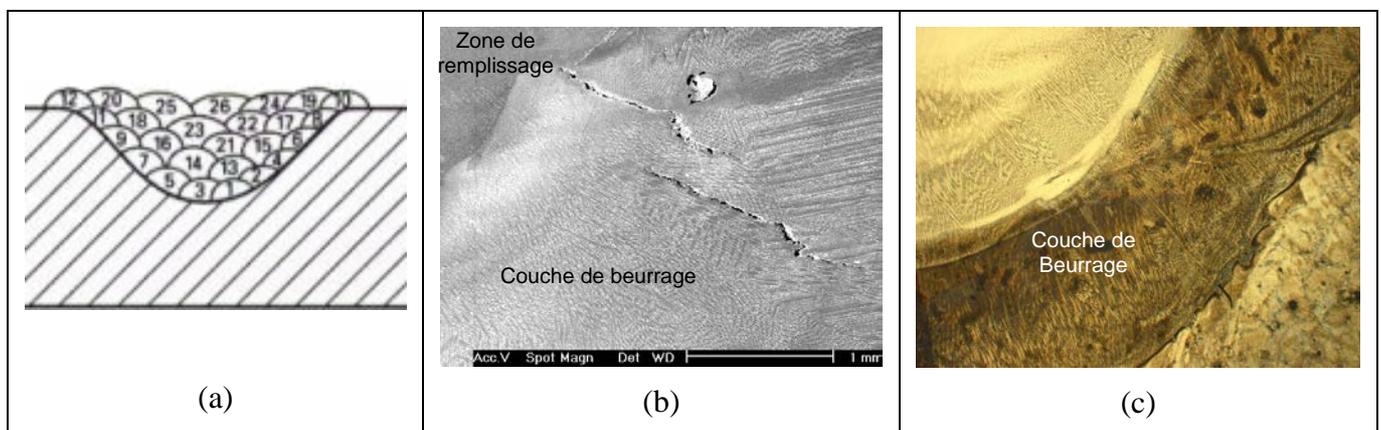
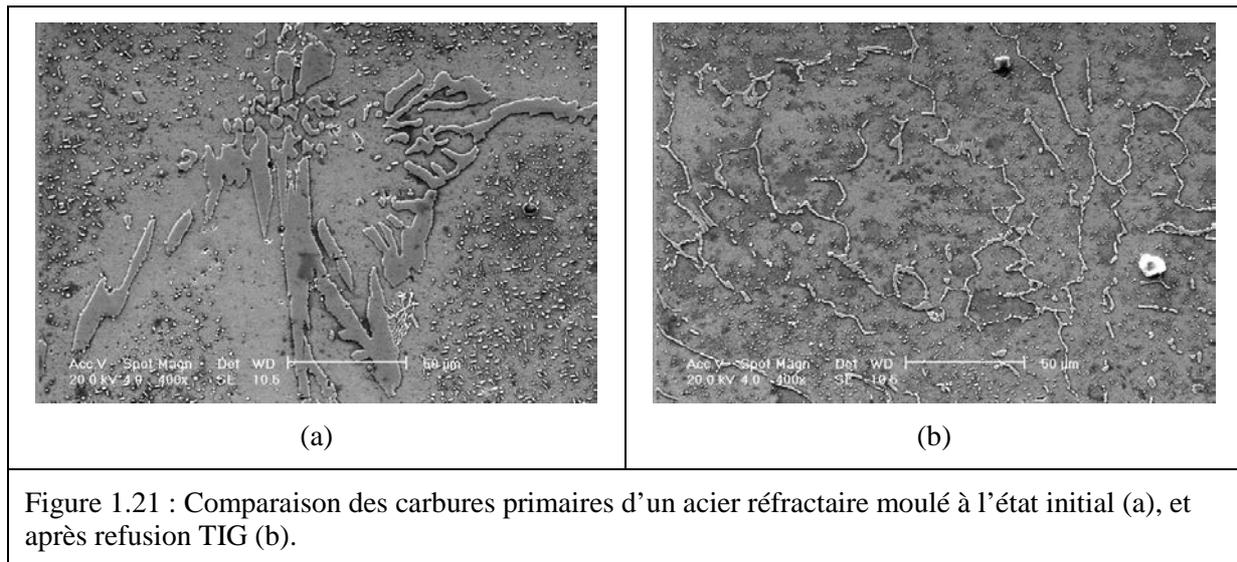


Figure 1.20 : Principe de la technique du beurrage ; les passes 1 à 12 sont réalisées avec un matériau d'apport à faible limite d'élasticité, et les passes suivantes avec un matériau plus résistant (a), fissuration en zone de beurrage lors de l'utilisation d'un matériau de beurrage nickel pur (b), et couche de beurrage saine obtenue avec un matériau de beurrage Ni-Fe (c).

En revanche, lorsque l'on utilise des alliages de beurrage Ni-Fe, moins riches en nickel, la fissuration de la couche de beurrage n'apparaît plus, et des réparations saines ont pu être obtenues (Figure 1.20c). Cependant, la présence d'une couche de faible limite d'élasticité peut réduire la tenue à chaud du composant réparé. Une seconde technique de rechargement a donc été étudiée.

Nous avons constaté, lors de l'étude du phénomène de fissuration en soudage, que la sensibilité des aciers était liée à la taille et à la morphologie des carbures primaires interdendritiques formés. La refusion de la surface de l'acier moulé, à l'aide d'un arc électrique produit avec une électrode de tungstène (procédé de soudage TIG), a permis de produire un affinement local de la microstructure de l'acier moulé, et de modifier significativement la morphologie des carbures interdendritiques, qui sont alors beaucoup plus fins (Figure 1.21). Pour éviter la fissuration de l'acier de base lors de ce traitement de refusion superficiel, il est toutefois nécessaire de préchauffer la pièce jusqu'à 400°C pour réduire les gradients thermiques. L'affinement de la structure, et surtout des carbures interdendritiques, a permis d'améliorer la ductilité du matériau, et la réparation de rainures profondes de 20 mm a été ainsi rendue possible sans beurrage.



#### 1.4. Modélisation du soudage

Les paragraphes précédents ont montré que l'opération de soudage induisait des transformations complexes au sein de la matière, en particulier dans le cas de soudures hétérogènes. Ces transformations sont principalement contrôlées par l'évolution des champs thermiques dans les pièces, sous l'effet d'un apport de chaleur dont la nature dépend du procédé de soudage employé. Les caractéristiques de cette « source de chaleur » peuvent varier de manière très significative avec les paramètres opératoires, qu'il s'agisse de paramètres « énergétiques », géométriques ou mécaniques, comme les conditions de bridage des pièces. Ces diverses relations ne sont pas toujours bien connues, en particulier lorsque l'apport de chaleur est localisé, comme dans le cas du soudage laser ou du soudage à l'arc. Avec ce dernier procédé, la complexité des phénomènes physiques résultant de l'interaction entre la source de chaleur et la matière rend très difficile la prévision de l'apport de chaleur. La réalisation de mesures directes au niveau des zones d'interaction étant souvent impossible, du fait des conditions extrêmes qui y règnent, en termes de températures et de champs électromagnétiques, la modélisation reste le seul moyen de tenter d'appréhender, au moins qualitativement, les différentes interactions.

La modélisation physique complète du soudage avec source de chaleur localisée et mobile (soudage à l'arc ou laser) en est encore aujourd'hui à ses débuts, en raison du nombre important de phénomènes qui interagissent, et de l'absence de données expérimentales concernant les propriétés caractérisant ces phénomènes. Même si des résultats encourageants permettent d'espérer atteindre de tels objectifs dans quelques années [Tanaka, 2004], la plupart des modélisations actuelles sont très simplifiées. L'approche la plus courante consiste à modéliser la source de chaleur d'un point de vue purement thermique, par une distribution de puissance volumique ou surfacique appliquée sur la matière, dont la forme est choisie à partir de considérations sur la géométrie de la source de chaleur et du bain de fusion obtenu. Ces modèles doivent alors toujours être « calés » grâce à la réalisation de mesures effectuées pour chaque condition de soudage simulée, ce qui limite le caractère prédictif de la simulation.

Nous présentons dans ce dernier paragraphe du chapitre 1 des modélisations d'opérations de soudage développées pour accéder à des données non directement mesurables au cours du procédé, ou pour mieux comprendre l'influence de certains paramètres opératoires sur les champs thermiques. Ces travaux, réalisés dans le cadre des thèses d'Arnaud Duchosal et Guillaume Sierra [Duchosal, 2006, Sierra, 2006], en collaboration avec Cyril Bordreuil et Patrice Peyre, ont été en partie décrits dans les publications A7 et A9.

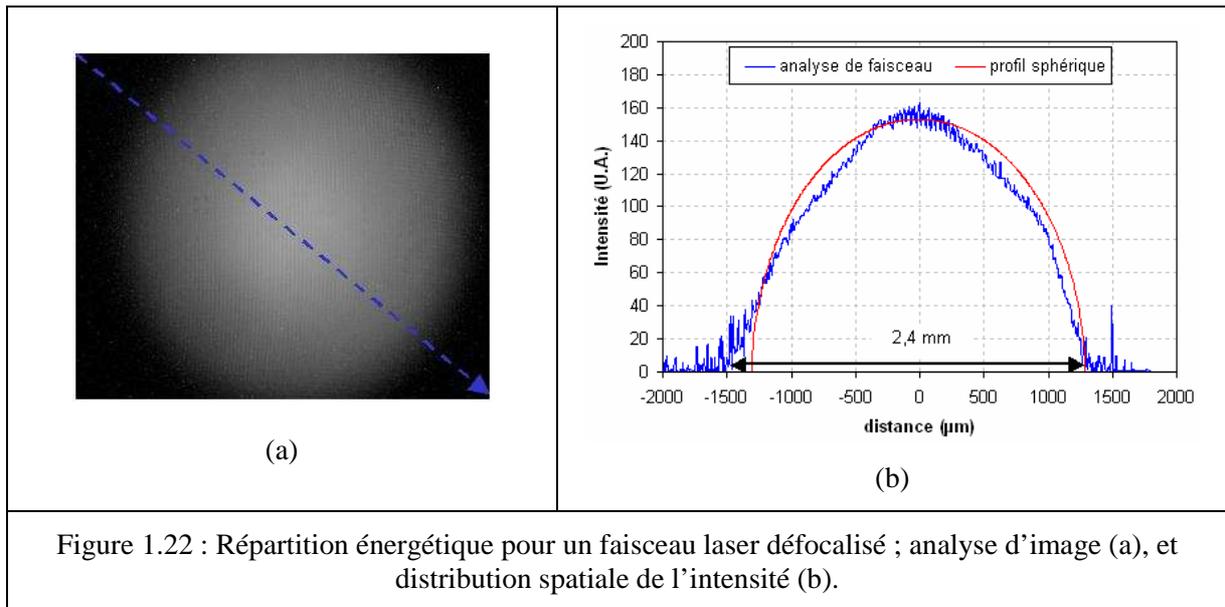
### 1.4.1. Modélisation thermique du soudobrasage laser

Dans le paragraphe 1.2, nous avons montré que les intermétalliques formés lors de l'assemblage entre acier et aluminium avaient une épaisseur très variable selon les conditions opératoires. Lors du soudobrasage laser, l'épaisseur de couche de réaction formée dépend principalement du cycle thermique subi par l'interface acier/aluminium, qui n'est pas directement mesurable.

Pour accéder à cette température, une modélisation thermique de l'opération a été développée. Le faisceau laser étant défocalisé, nous avons considéré que la chaleur était transmise à la pièce à travers la surface elliptique correspondant à l'intersection du faisceau avec la surface de la pièce. La répartition de puissance au sein de cette surface a été estimée en considérant qu'elle était proportionnelle à l'intensité lumineuse de la tâche laser frappant une surface, mesurée par analyse d'image (Figure 1.22). Considérant le résultat de ces mesures, la répartition de puissance dans la tâche a été modélisée par une distribution sphérique le long de chacun des axes de l'ellipse, et est donnée en fonction des coordonnées (x,z) dans le plan de la surface d'interaction par la relation (1.1), l'origine du repère considéré étant mobile, et située au centre de la source :

$$\Phi = \Phi_0 \cdot \sqrt{1 - \left(\frac{x}{r_x}\right)^2 - \left(\frac{z-V}{r_z}\right)^2} \quad \text{avec} \quad \left(\frac{x}{r_x}\right)^2 + \left(\frac{z-V}{r_z}\right)^2 < 1 \quad (1.1)$$

avec  $r_x$  et  $r_z$  : demi axes de la source elliptique,  $\Phi_0$  : flux au centre de la source, et  $V$  : vitesse de déplacement de la source.



La puissance totale absorbée par l'aluminium a pu être déterminée grâce à la mesure de la réflectivité de l'alliage. La source de chaleur est donc ici parfaitement connue. En revanche, la surface sur laquelle s'applique cette distribution dépend du mouillage de l'aluminium sur l'acier, et varie donc entre le début de l'irradiation, où l'aluminium est encore solide, et la fin, où l'aluminium mouille l'acier. Une modélisation simplifiée a été retenue, avec une géométrie intermédiaire, la valeur de l'angle de mouillage étant choisie entre l'état initial et l'état final (Figure 1.23a). Malgré cette simplification, les géométries de bain de fusion obtenus par simulation numérique et filmés par caméra rapide sont très comparables, et les températures mesurées au voisinage du bain et celles calculées aux mêmes points sont relativement proches (Figure 1.24), ce qui permet de supposer que les températures d'interface calculées sont représentatives des températures réelles. Ces résultats ont été utilisés pour tenter de prédire la croissance de la couche de réaction pendant l'opération de soudage, et seront discutés à nouveau au chapitre 2.

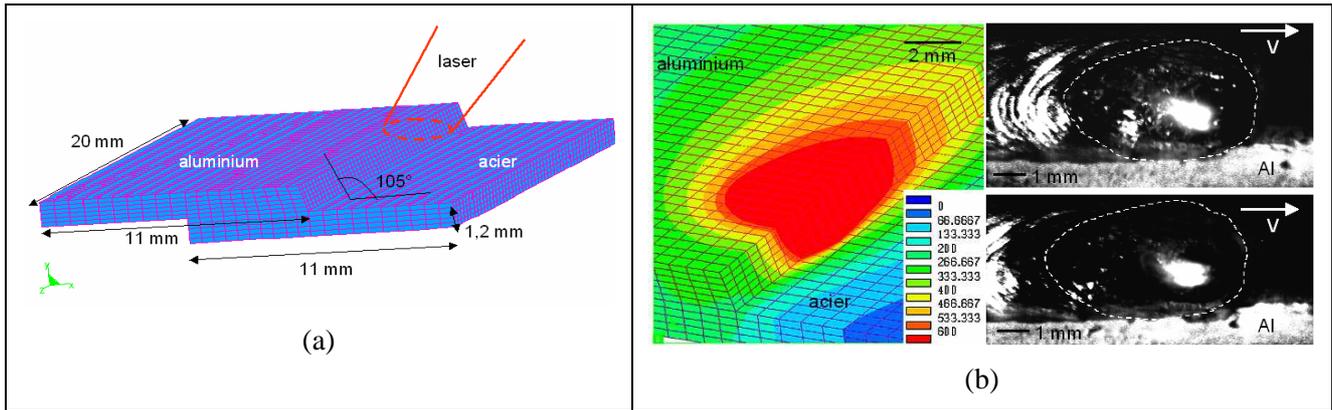


Figure 1.23 : Géométrie choisie pour la modélisation du soudobrasage laser (a), et comparaison des tailles de bain de fusion obtenus par simulation et observés par caméra rapide (b).

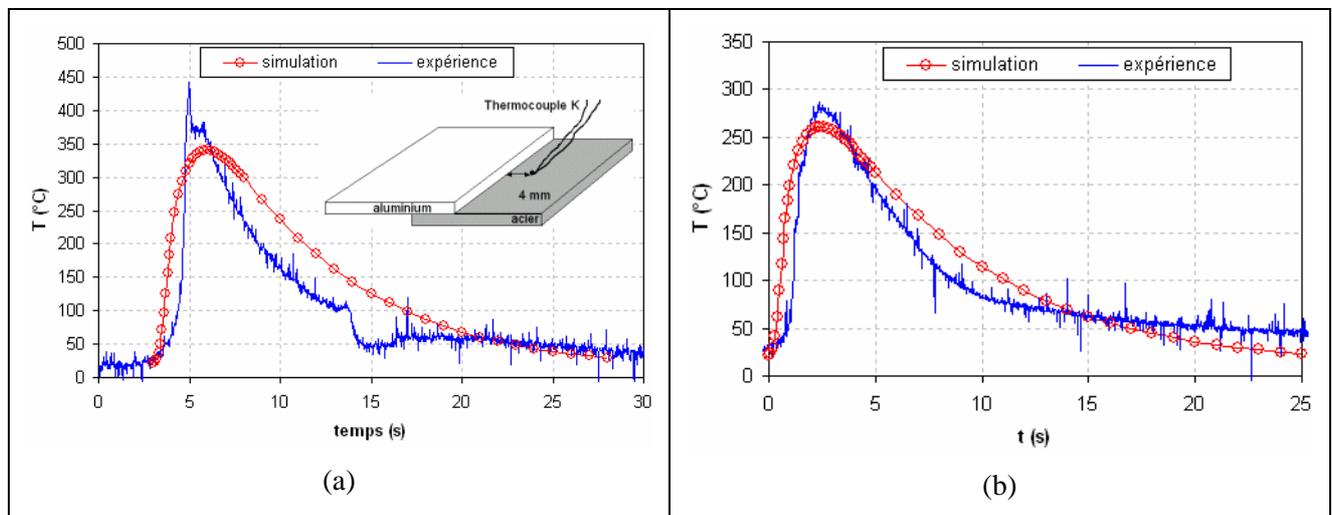


Figure 1.24 : Comparaison des cycles thermiques expérimentaux et simulés ( $P = 3\text{kW}$ ), pour une vitesse de soudage de  $0,7\text{ m}\cdot\text{min}^{-1}$  (a), et pour une vitesse de  $1\text{ m}\cdot\text{min}^{-1}$  (b).

#### 1.4.2. Modélisation thermique du soudobrasage TIG

Les distributions surfaciques de chaleur ne permettent généralement pas de reproduire les géométries de bain de fusion observées en soudage à l'arc, en raison notamment des forts mouvements convectifs dans le bain. C'est pourquoi on utilise généralement des distributions volumiques, dont la plus connue est celle proposée par Goldak [Goldak, 1984]. Il s'agit d'une distribution de puissance, à répartition gaussienne dans les trois directions de l'espace, avec des paramètres de distribution différents à l'avant et à l'arrière du centre de la source, pour reproduire la forme allongée de la « queue » du bain de fusion (éq. 1.2).

$$q(x,y,z) = Q_0 \cdot \frac{6\sqrt{3} \cdot f_\xi}{a \cdot b \cdot c_\xi \cdot \pi^{3/2}} \cdot \exp\left(-\frac{3x^2}{a^2}\right) \cdot \exp\left(-\frac{3y^2}{b^2}\right) \cdot \exp\left(-\frac{3z^2}{c_\xi^2}\right) \quad (1.2)$$

avec  $\xi = f$  ou  $r$  selon que  $x$  est positif ou négatif et  $f_f + f_r = 2$  ;  $f_f = \frac{2c_f}{c_f + c_r}$  et  $f_r = \frac{2c_r}{c_f + c_r}$ .

Le paramètre  $Q_0$  est relié aux paramètres expérimentaux selon l'équation (1.3):

$$Q_0 = \eta \cdot U \cdot I \quad (1.3)$$

où  $\eta$  est le rendement du procédé,  $U$  la tension de soudage, et  $I$  l'intensité de soudage.

Ce modèle présente 5 paramètres, à identifier à partir de données expérimentales. Les paramètres  $a$ ,  $b$ ,  $c_f$  et  $c_r$  sont choisis égaux aux dimensions du bain de fusion observé expérimentalement. Le paramètre  $Q_0$  peut être déterminé à condition de connaître le rendement du procédé  $\eta$ , ce qui nécessite la réalisation d'essais instrumentés de thermocouples.

Dans la configuration d'assemblage choisie en TIG pour souder l'aluminium sur l'acier, d'autres paramètres avaient une très grande influence sur les répartitions de température, les caractéristiques du contact thermique entre les deux tôles, et entre la tôle supérieure et la bride (cf. Figure 1.8b). Ce contact a été modélisé par une résistance thermique variable, pour prendre en compte l'amélioration du transfert thermique après la fusion de l'aluminium et la formation de la liaison. Ce paramètre, qui a une très grande influence sur la géométrie des zones fondues dans l'acier et l'aluminium (Figure 1.25a et b), a été ajusté en fonction des observations expérimentales (Figure 1.26). La modélisation a été validée par comparaison des cycles thermiques mesurés à l'aide de thermocouples et calculés en différents points de l'assemblage (Figure 1.27). Cette simulation numérique a permis d'accéder à l'évolution des températures à l'interface acier-aluminium lors du soudobrasage TIG, qui ont été utilisées par la suite pour expliquer la croissance des couches de réaction formées. Ce dernier travail est décrit dans le chapitre 2.

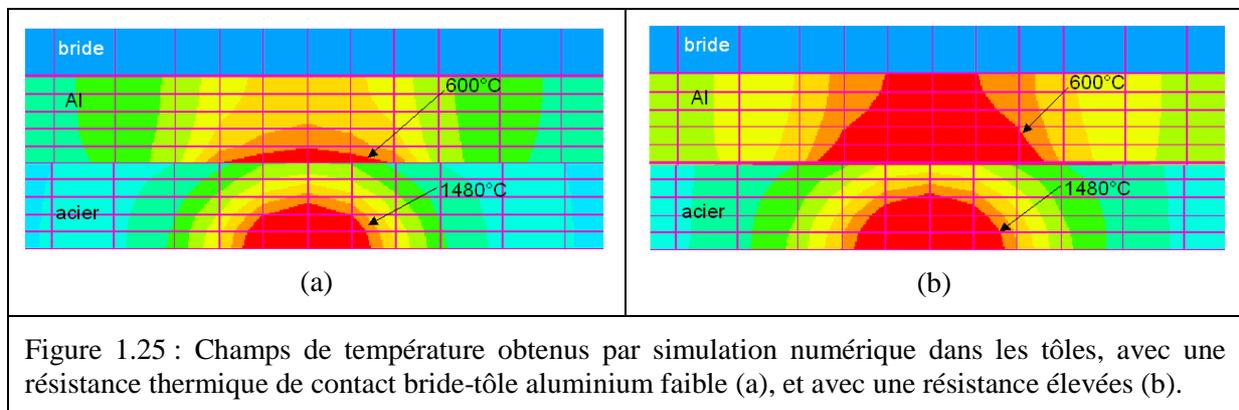


Figure 1.25 : Champs de température obtenus par simulation numérique dans les tôles, avec une résistance thermique de contact bride-tôle aluminium faible (a), et avec une résistance élevées (b).

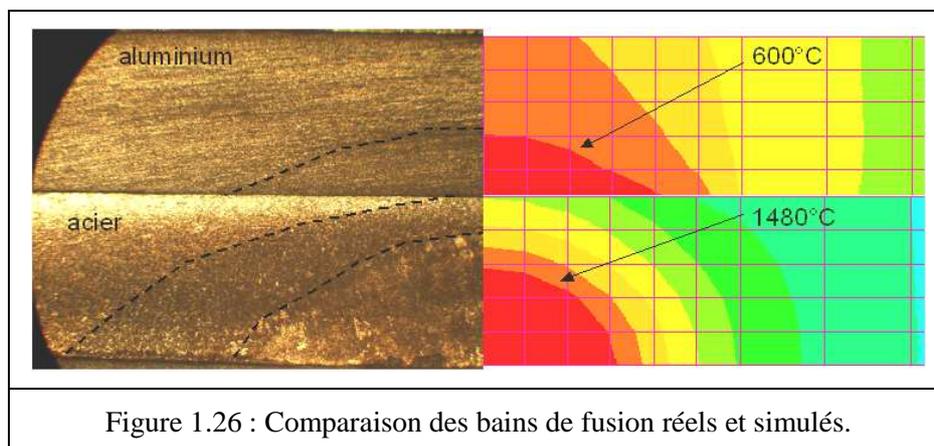


Figure 1.26 : Comparaison des bains de fusion réels et simulés.

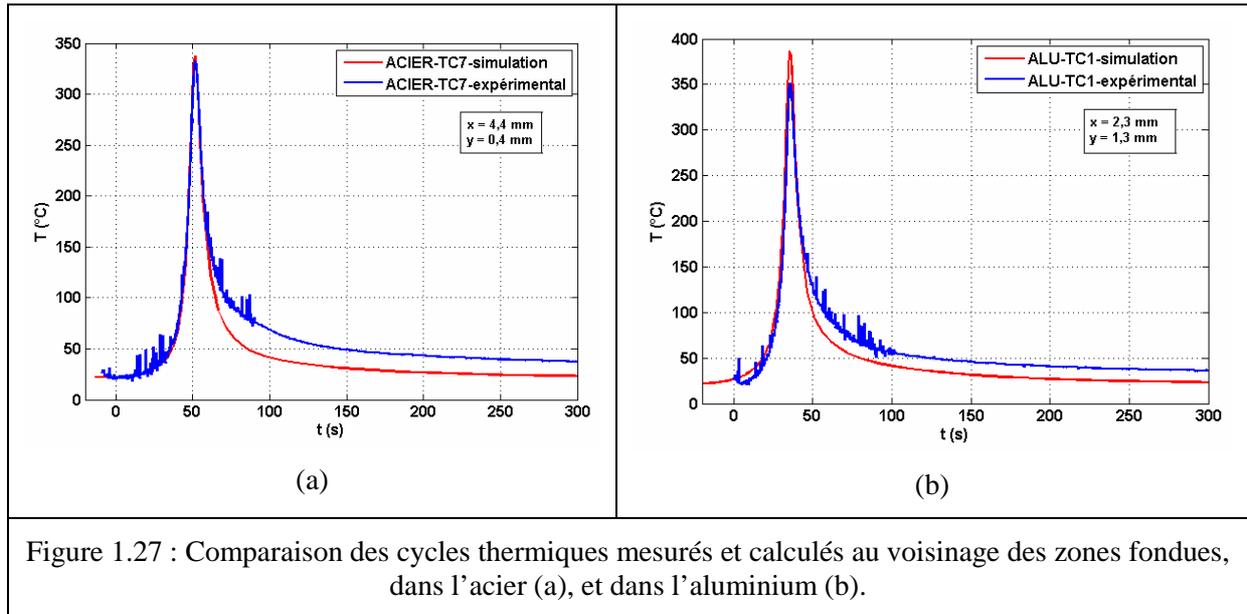


Figure 1.27 : Comparaison des cycles thermiques mesurés et calculés au voisinage des zones fondues, dans l'acier (a), et dans l'aluminium (b).

### 1.4.3. Modélisation thermique du soudage à l'arc multi passe

La fissuration rencontrée lors du soudage de réparation des aciers réfractaires moulés, décrite dans le paragraphe 1.3, est provoquée par l'apparition de contraintes trop élevées dans le matériau de base au voisinage de la soudure, qui induisent la rupture des carbures interdendritiques fragiles. L'évolution des champs de contraintes dépend des conditions de soudage, et la simulation numérique peut permettre d'étudier l'effet de différents paramètres opératoires sur ces contraintes. Cependant, le calcul ne peut être représentatif de la réalité que si les champs de température sont prédits de manière relativement précise par le calcul, c'est à dire si l'apport de chaleur produit par l'arc est bien modélisé. Le modèle de source de chaleur proposé par Goldak [Goldak, 1984], s'il demeure le plus utilisé pour la simulation numérique du soudage à l'arc, n'a pas fait l'objet, depuis sa création en 1984, d'une véritable analyse critique. On peut citer une modification du modèle, proposée par Sabapathi [Sabapathi, 2000], qui conduit à des géométries de bain de fusion simulé plus proches de l'expérience dans le cas du soudage à l'électrode enrobée. L'un des gros avantages du modèle de Goldak réside dans la possibilité d'appliquer une méthode simple pour identifier les 5 paramètres du modèle. Cette méthode n'est cependant valable que dans le cas où le matériau de base peut être considéré comme un massif semi infini, sur lequel on vient créer un échauffement local sans modification de la géométrie de sa surface. Dans le cas d'une géométrie différente, le calage fait appel à des choix arbitraires, et la distribution proposée par Goldak présente alors moins d'intérêt.

Nous avons recherché, à travers une généralisation du modèle de Goldak, la forme de distribution la plus adaptée, et une méthode d'identification associée, pour tenter de modéliser l'apport de chaleur en soudage à l'arc multi passe. Le choix de la distribution a été fait en comparant les cycles thermiques en plusieurs points, mesurés et calculés.

Le modèle généralisé prend la forme suivante, la position de l'origine du repère étant différente pour chacune des passes :

$$q(x, y, z) = q_0 \cdot \exp \left( -f \left( \left( \frac{x}{a} \right)^{n_1} + \left( \frac{y}{b} \right)^{n_2} + \left( \frac{z}{c_i} \right)^{n_3} \right) \right) \quad (1.4)$$

Les paramètres a et b sont reliés à la géométrie de la passe considérée, qui varie selon la position de celle-ci dans la soudure multi passe. Pour simplifier, nous avons considéré trois types de géométries de passe, les passes de fond, les passes de début de remplissage de couche, et les passes de fin de remplissage de couche (Figure 1.28). Le paramètre c est relié à la longueur du bain, comme pour le modèle initial de Goldak. Le paramètre  $q_0$  sert de variable d'ajustement pour chaque passe, de manière à obtenir une largeur de bain de fusion englobant la totalité de la passe.

Les paramètres  $n$  et  $f$  ont quand à eux été choisis en fonction des résultats d'essais de soudage en 3 passes instrumentés (Figure 1.29), pour obtenir la meilleure corrélation entre simulation et expérience. Ces paramètres caractérisent respectivement la forme de la décroissance de la densité de puissance selon un axe, celle-ci étant d'autant plus rapide que  $n$  est élevé, et la largeur de la distribution, d'autant plus grande que  $f$  est faible. Il s'est avéré que si le modèle initial de Goldak permettait de prédire relativement bien la forme du bain de fusion, en revanche il avait tendance à surestimer beaucoup les gradients thermiques au voisinage de la zone fondue, et qu'une augmentation des paramètres  $n$  de 2 à 10 donnait une meilleure prévision des champs thermiques (Figure 1.30).

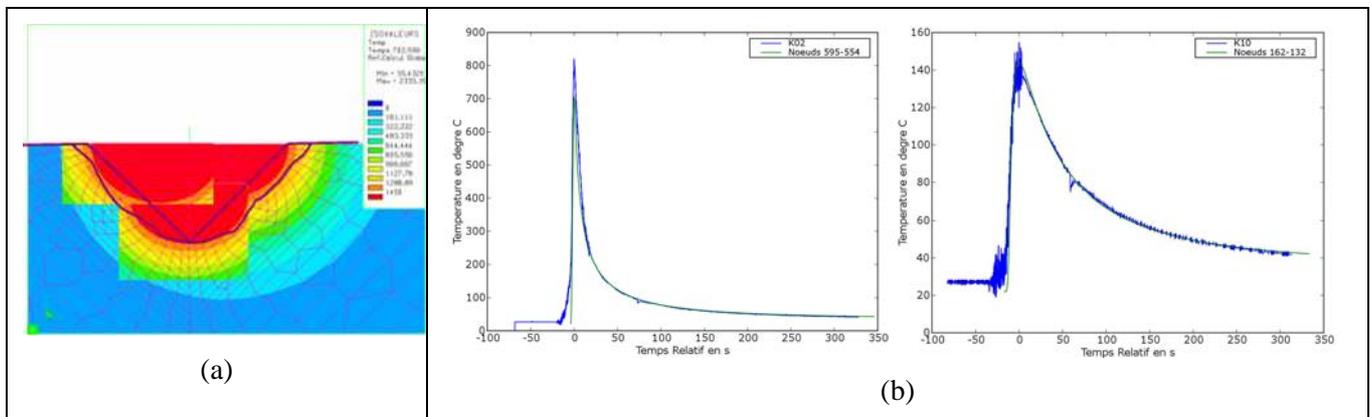
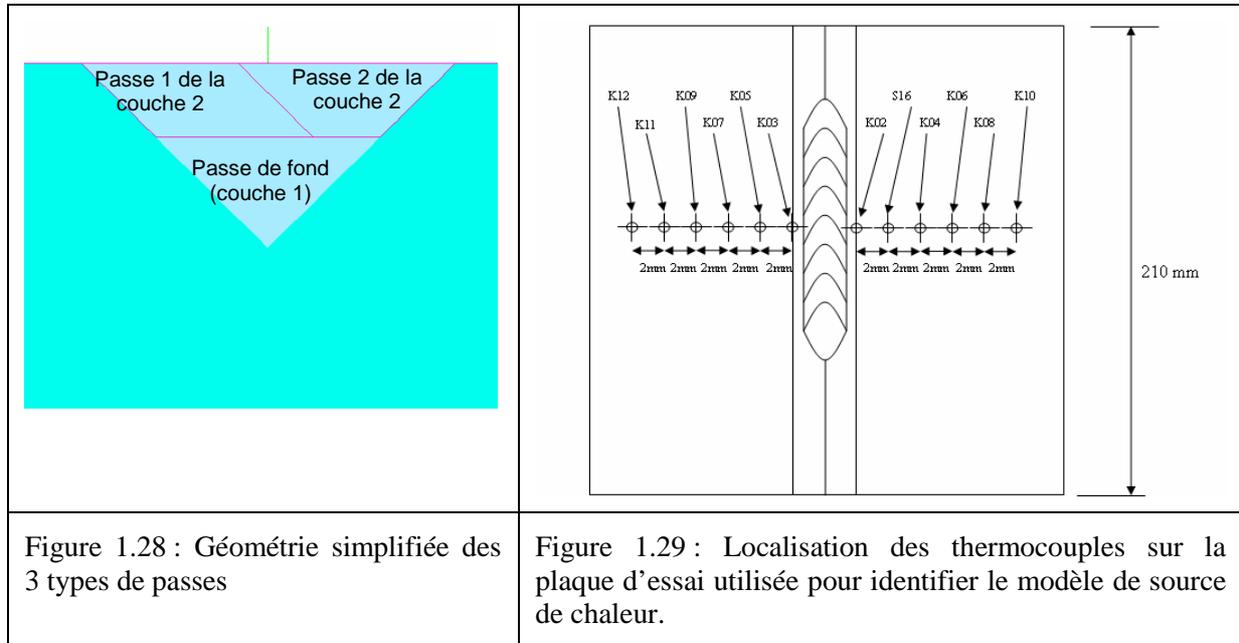


Figure 1.30 : Comparaison des géométries de bords de fusion (a), et des cycles thermiques (b), obtenus expérimentalement et calculés, avec le modèle de source de chaleur optimisé.

### 1.5 Conclusion au chapitre 1

Ce premier chapitre illustre, à travers les différents cas d'assemblages rencontrés, la relation entre les caractéristiques macrostructurales et microstructurales des liaisons obtenues par soudage, et les choix de paramètres opératoires, principalement le matériau d'apport et les « paramètres » du procédé. La nature de ces « paramètres » de soudage diffère d'un procédé à l'autre. En soudage-diffusion, il s'agit de la température, la pression, le temps, et l'environnement gazeux. En brasage au four, seules comptent la température, la durée de brasage et l'environnement gazeux. En soudage ou soudobrasage

à l'arc, c'est l'intensité, la tension et la vitesse de soudage que l'on règle. Enfin, en laser, on contrôle la puissance, la vitesse et le diamètre de la tâche laser.

Nous avons cependant constaté que lors de l'assemblage avec des procédés différents, des paramètres de natures différentes pouvaient avoir des effets similaires sur les caractéristiques des liaisons. Ainsi par exemple, la couche de réaction créée par soudage-diffusion entre une céramique et un insert métallique croît lorsque la température d'assemblage augmente, de même que la couche d'intermétallique formée entre l'acier et l'aluminium lorsque la puissance du laser augmente.

En réalité, la relation parfois empirique observée entre un paramètre procédé et une caractéristique des liaisons générées découle des liens entre cette caractéristique et les conditions locales de chargement, généralement thermique, au niveau des interfaces de liaison. Chaque procédé de soudage, à travers les paramètres qui le contrôlent, va ainsi produire un chargement au niveau de l'interface, qui va déterminer les structures générées.

En soudage-diffusion ou en brasage au four, le chargement thermique est sensiblement homogène dans l'ensemble des éprouvettes, et peut donc être facilement mesuré, et relié aux paramètres du procédé. En revanche, dans le cas d'autres procédés, le chargement thermique est très localisé, et sa distribution hétérogène, ce qui rend sa détermination expérimentale très délicate. Le couplage entre mesures et simulation numérique peut alors être utilisé, pour déterminer la distribution de ce chargement thermique, et la relier aux paramètres procédés.

Cette relation étant connue, il est alors possible d'établir des corrélations entre les caractéristiques des liaisons et les paramètres de soudage, sur la base de considérations physiques.

Cette connaissance des relations entre les paramètres de soudage et les caractéristiques finales des liaisons est cependant insuffisante pour permettre l'optimisation d'une opération de soudage, si les mécanismes élémentaires responsables des transformations observées ne sont pas connus. Le chapitre suivant concerne donc la caractérisation des processus responsables de l'évolution des microstructures, à partir de différentes techniques d'analyses physiques.

## Chapitre 2 : Caractérisation et modélisation de l'évolution des microstructures

Dans le premier chapitre, nous avons présenté, à travers quelques exemples d'assemblages, différentes approches permettant, par le choix du procédé et le contrôle des paramètres de soudage, d'améliorer les caractéristiques des liaisons hétérogènes. Ces caractéristiques étaient évaluées principalement par l'étude de la macrostructure et de la microstructure des assemblages, éventuellement couplée à des analyses de composition par spectrométrie à dispersion d'électrons, qui fournissent de premières indications sur leur aptitude à l'emploi.

L'opération de soudage conduit toujours à des transformations de la matière, qui modifient les microstructures. De la même façon, la microstructure des assemblages, ou des matériaux hétérogènes, peut subir des transformations lors d'utilisations particulières, notamment sous l'effet des hautes températures, ou des atmosphères oxydantes. La connaissance plus fine de ces transformations, et leur modélisation lorsque c'est possible, peut permettre de mieux prédire l'évolution des microstructures au cours du procédé d'assemblage, ou au cours du vieillissement des matériaux et des assemblages.

Dans ce chapitre, nous nous intéressons à la caractérisation de l'évolution des microstructures, sous l'effet de sollicitations liées au procédé de soudage, ou de conditions d'environnement particulières. Le but recherché est ici d'identifier les phénomènes élémentaires responsables des transformations observées, de proposer des modélisations phénoménologiques, et dans certains cas de quantifier ces évolutions, à travers des modélisations cinétiques.

Les caractérisations menées s'appuient sur des techniques d'analyse classiques, de microscopie optique ou électronique à balayage, d'analyse chimique par spectrométrie de rayons X à dispersion d'énergie (EDS) ou de longueur d'onde (WDS), diffraction de rayons X (DRX), analyse thermique différentielle (ATD), analyse thermogravimétrique (ATG), dilatométrie, et parfois sur des techniques de caractérisation mécanique locales, microdureté, nano indentation ou traction in-situ.

Dans la première partie, nous présentons une étude sur l'oxydation à l'air de la céramique  $\text{Si}_3\text{N}_4\text{-TiN}$ , dont l'assemblage a été présenté dans le premier chapitre. Les phénomènes conduisant à l'élaboration des liaisons par soudage-diffusion ou brasage de cette céramique sont étudiés dans une seconde partie. Dans une troisième partie, nous discuterons de la formation des liaisons acier-aluminium, obtenues par soudage laser ou TIG, présentées dans le chapitre 1, à travers une caractérisation plus fine des phénomènes. Enfin, les transformations subies lors du soudage des aciers réfractaires moulés sont étudiées, en fonction des matériaux d'apport choisis et des modes opératoires de soudage, de manière à mieux comprendre les phénomènes de fissuration qui ont été rencontrés en cours de soudage.

### 2.1. Oxydation d'un composite céramique $\text{Si}_3\text{N}_4\text{-TiN}$

Les composites céramiques  $\text{Si}_3\text{N}_4\text{-TiN}$ , dont les caractéristiques ont déjà été présentées dans le premier chapitre (1.1), combinent les bonnes propriétés mécaniques à chaud du  $\text{Si}_3\text{N}_4$  avec une aptitude à l'usinage par électroérosion. Cependant, ces matériaux présentent une résistance à l'oxydation bien plus réduite que le nitrure de silicium pur, à cause de la présence d'un réseau continu de phase TiN, dont la tenue à l'oxydation est limitée.

A cause de son caractère polyphasé, le mécanisme d'oxydation de ces matériaux est assez complexe, et n'avait pas été expliqué lorsque cette étude a démarré, dans le cadre de ma thèse, en 1994. Les rares études menées alors semblaient indiquer que l'oxydation était contrôlée par la diffusion [Gogotsi, 1992, 1993, Bellosi, 1990], mais les mécanismes diffusionnels n'étaient pas clairement établis.

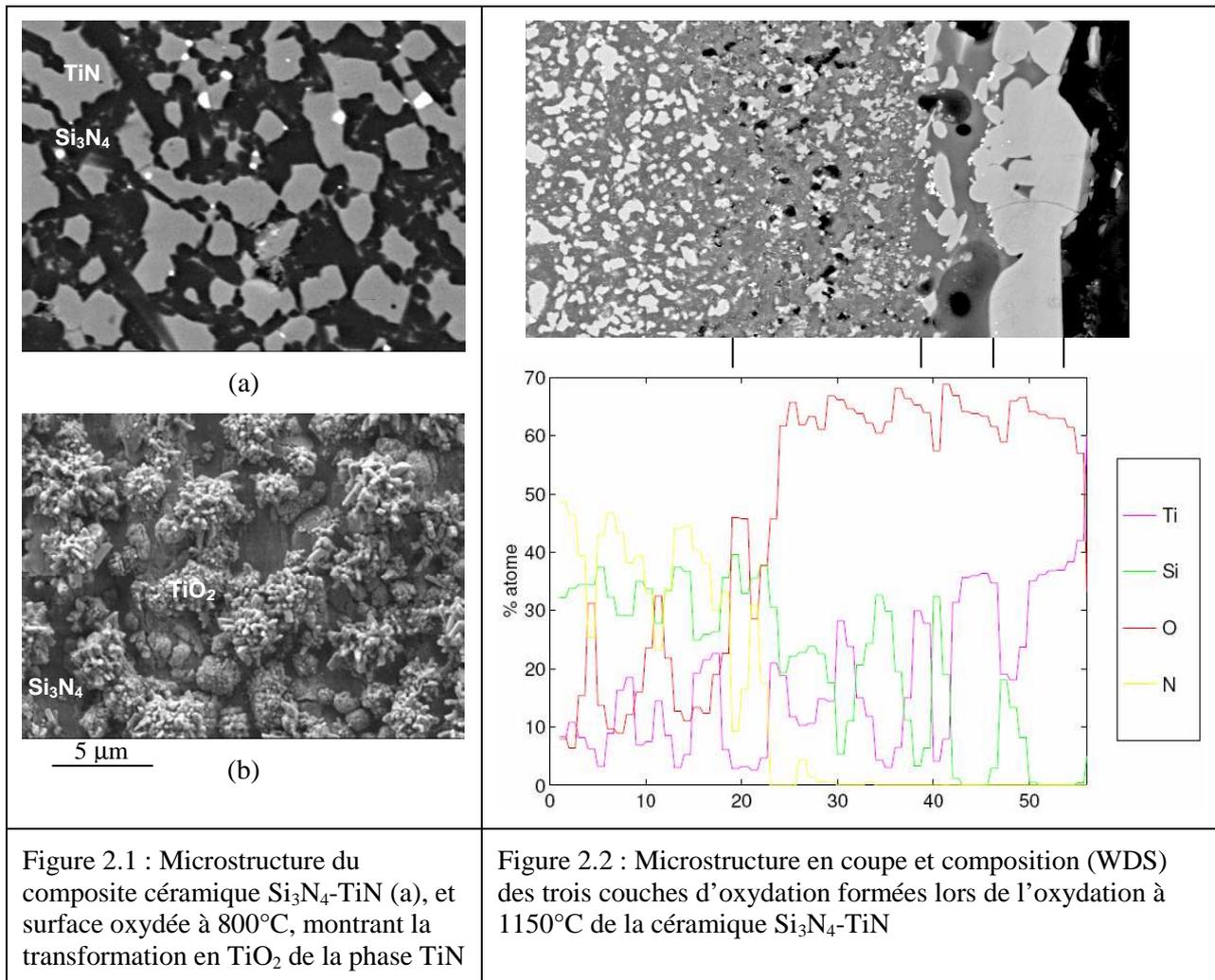
Il est généralement reconnu que l'oxydation du nitrure de silicium pur ne démarre qu'à partir de  $1000^\circ\text{C}$ , et conduit à la formation d'une couche superficielle de silice amorphe, séparée de la céramique par une couche intermédiaire de  $\text{Si}_2\text{N}_2\text{O}$  [Du, 1989] ou d'oxynitrure vitreux  $\text{SiN}_x\text{O}_y$ , de stoechiométrie variable [Ogbuji, 1995]. L'oxydation est alors contrôlée par la diffusion de l'oxygène à travers  $\text{SiO}_2$  et  $\text{SiN}_x\text{O}_y$ . Les nitrures de silicium frittés s'oxydent généralement plus rapidement que  $\text{Si}_3\text{N}_4$  pur, à cause des ajouts de frittage,  $\text{Y}_2\text{O}_3$  et  $\text{Al}_2\text{O}_3$  généralement, qui forment une phase intergranulaire favorisant la diffusion des espèces vers la surface [Lewis, 1980].

L'oxydation du nitrure de titane débute quand à elle dès 500°C, et est contrôlée par la diffusion de l'oxygène à travers la couche de TiO<sub>2</sub> formée [Tampieri, 1991]. A plus haute température cependant, au delà de 1000°C, une diffusion cationique du titane est observée, conduisant à la formation de porosités dans la couche sub-surfacique [Lefort, 1978].

Le comportement des composites Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>-TiN s'avère lui beaucoup plus complexe. Sur la base d'observations microstructurales, un modèle d'oxydation phénoménologique a été proposé. Une cinétique d'oxydation en trois étapes a ensuite été développée, et comparée à des analyses thermogravimétriques à différentes températures sous air. Ce travail, réalisé en collaboration avec Nicole Fréty, Thierry Cutard et Christophe Colin, a donné lieu à trois articles (A3, A6, A14), et à deux communications dans des conférences internationales (C2i, C3i).

### 2.1.1. Observations microstructurales et modèle phénoménologique

L'observation de la surface de la céramique oxydée en dessous de 1000°C a révélé une oxydation seulement partielle de la surface, la phase Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> n'étant pas affectée (Figure 2.1). En revanche, au delà de 1000°C, l'oxydation de la céramique provoque la formation en surface de trois couches distinctes (Figure 2.2). La première couche, qui recouvre la surface, est constituée presque exclusivement de TiO<sub>2</sub>. Sous cette couche se retrouve une zone constituée majoritairement de SiO<sub>2</sub>, avec encore de larges plages de TiO<sub>2</sub>, et de larges porosités. Enfin, une troisième couche est observée en profondeur, constituée de TiO<sub>2</sub>, de fines porosités, et de Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> partiellement oxydé.



L'observation de la microstructure des couches superficielles de la céramique oxydée à 1150°C pendant différentes durées a montré que la première couche se formait très rapidement, puis se

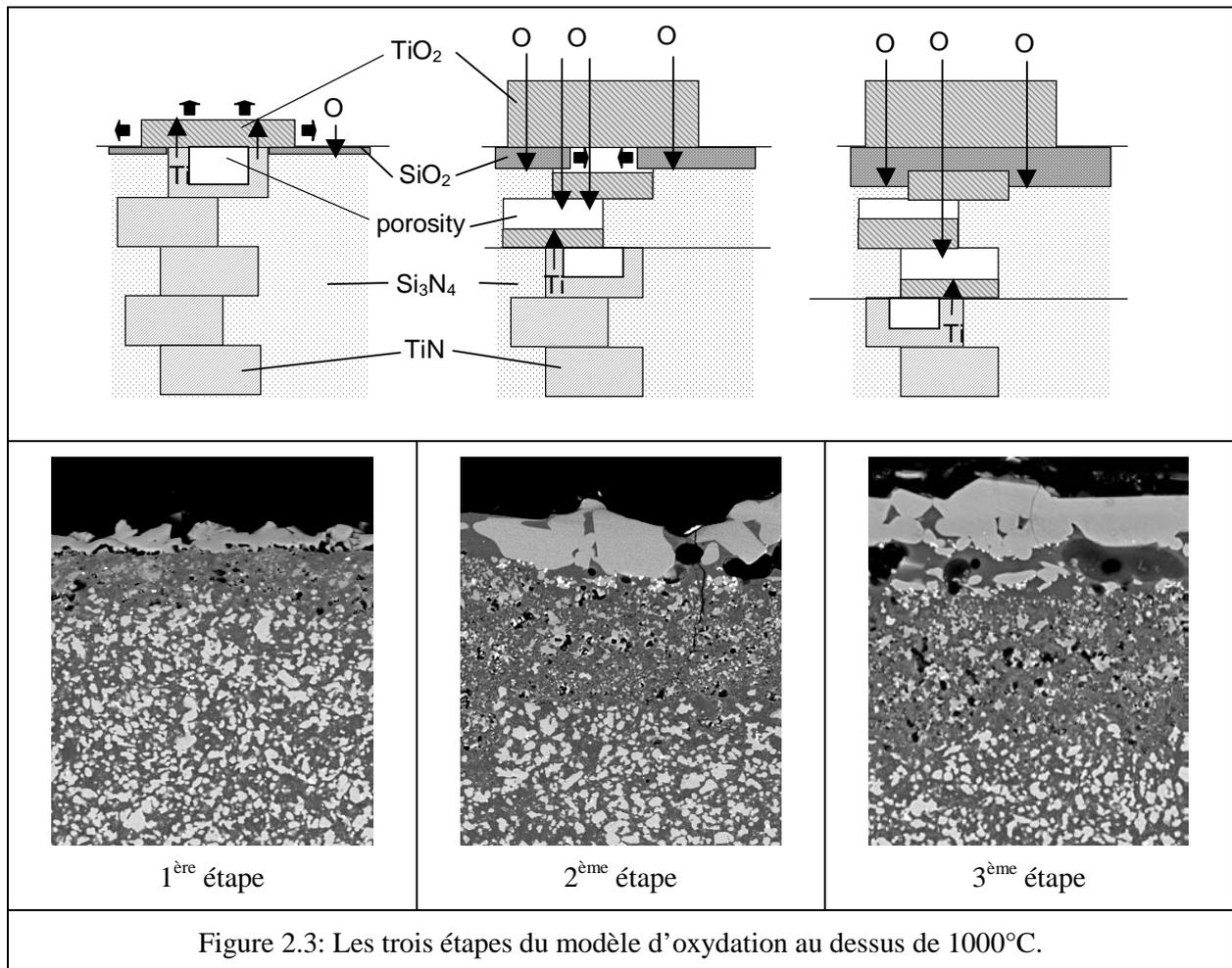
stabilisait après quelques heures, alors que la troisième couche continuait à croître plus longtemps. En revanche, la seconde couche ne se forme qu'après un certain délai.

A partir des observations réalisées, un modèle phénoménologique a été proposé. En dessous de 1000°C, seule la phase TiN s'oxyde en surface, l'oxydation étant contrôlée par la diffusion de l'oxygène à travers la couche formée au dessous de 900°C, ou par la diffusion du titane au dessus de 900°C. Au delà de 1000°C, le mécanisme est beaucoup plus complexe, du fait de l'oxydation simultanée des deux phases, Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> et TiN. Trois étapes peuvent être distinguées (Figure 2.3).

Lors de la première étape, la phase TiN s'oxyde rapidement. A haute température, la diffusion du titane à travers TiO<sub>2</sub> devient plus rapide que celle de l'oxygène, et l'oxydation est contrôlée par la diffusion de Ti vers la surface, laissant des porosités à l'emplacement des anciennes particules de TiN. La formation de ces porosités, en réduisant la surface de diffusion du titane, entraîne un ralentissement de l'oxydation de TiN. Dans le même temps, l'oxydation de la phase Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> a lieu, contrôlée par la diffusion de l'oxygène à travers la couche de SiO<sub>2</sub> formée, beaucoup plus lente que la migration du titane vers la surface.

Dans une seconde étape, la porosité dans la couche sub-surfacique empêche le titane de migrer vers la surface, et l'oxydation interne du TiN se poursuit par diffusion de l'oxygène, qui peut, sous forme moléculaire, traverser les porosités. L'oxydation de Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> en silice se poursuit. Cette transformation s'accompagnant d'une forte augmentation de volume molaire, la silice vitreuse flue à l'intérieur des pores formés dans la sous-couche, formant une couche quasi-continue. La diffusion de l'oxygène étant plus lente à travers SiO<sub>2</sub> qu'à travers TiO<sub>2</sub> ou à travers la porosité, la vitesse d'oxydation diminue.

Enfin, dans la troisième étape, la silice forme une couche continue, et l'oxydation des deux phases est contrôlée par la diffusion de l'oxygène à travers la couche de SiO<sub>2</sub>.



### 2.1.2. Modèle cinétique

Afin de tenter de prédire les vitesses d'oxydation aux différentes températures, une modélisation cinétique, basée sur le modèle phénoménologique proposé, a été développée.

En dessous de 900°C, seule l'oxydation de TiN se produit, gouvernée par la diffusion de l'oxygène à travers l'oxyde formé. La cinétique d'oxydation, que l'on peut quantifier par l'évolution du gain de masse par unité de surface, est donc parabolique, et peut s'exprimer selon l'équation (2.1).

$$\frac{\Delta m}{S} = K^{1/2} t^{1/2} + \frac{\Delta m_0}{S} \quad (2.1)$$

$$\text{avec } K = k_{p_{O/TiO_2}} \cdot \left( \frac{S_{TiN}}{S} \right)^2 \quad (2.2)$$

$k_{p_{O/TiO_2}}$  étant la constante de vitesse parabolique correspondant à la diffusion de l'oxygène dans  $TiO_2$ ,  $S_{TiN}/S$  la fraction de la surface externe correspondant à la phase TiN, et  $\Delta m_0$  le gain de masse au début du régime d'oxydation diffusionnel.

Au dessus de 1000°C, la cinétique est plus complexe, puisque les deux phases s'oxydent simultanément. Les cinétiques sont alors gouvernées par plusieurs mécanismes diffusionnels successifs.

Lors de la première étape de l'oxydation, deux mécanismes agissent simultanément, la diffusion de Ti vers la surface à travers  $TiO_2$ , plus rapide que la diffusion interne de l'oxygène, qui contrôle l'oxydation de la phase TiN, et la diffusion de l'oxygène à travers  $SiO_2$ , qui contrôle l'oxydation de la phase  $Si_3N_4$ . La migration du titane créant des porosités, la surface de diffusion pour le premier mécanisme diminue selon la relation (2.3).

$$S_{Ti/TiO_2} = S_{TiN} \left( \frac{1}{at^{1/2} + 1} \right) \quad (2.3)$$

où  $S_{TiN}$  représente la surface externe de phase TiN dans le matériau initial,  $a$  est un paramètre dépendant de la température, et  $t$  le temps.

Le gain de masse dû à l'oxydation est donc la somme de l'oxydation des phases  $Si_3N_4$  et TiN, que l'on peut exprimer par la relation :

$$\frac{\Delta m}{S} = \int_0^t \frac{1}{2} \left( \frac{S_{Ti/TiO_2}}{S} k_{p_{Ti/TiO_2}}^{1/2} + \frac{S_{Si_3N_4}}{S} k_{p_{O/SiO_2}}^{1/2} \right) t^{-1/2} dt \quad (2.4)$$

où  $S_{Si_3N_4}$  est la surface de phase  $Si_3N_4$  exposée à l'air dans le matériau initial,  $k_{p_{O/SiO_2}}$  et  $k_{p_{Ti/TiO_2}}$  les constantes de vitesse parabolique correspondant respectivement à la diffusion de O dans  $SiO_2$  et de Ti dans  $TiO_2$ .

Les proportions surfaciques de phase  $Si_3N_4$  et TiN ont été estimées par analyse d'image à 0,7 et 0,3 respectivement, et la relation (2.4) peut donc s'exprimer :

$$\frac{\Delta m}{S} = \frac{0,3}{a} k_{p_{Ti/TiO_2}}^{1/2} \ln(at^{1/2} + 1) + 0,7 k_{p_{O/SiO_2}}^{1/2} t^{1/2} + \frac{\Delta m_0}{S} \quad (2.5)$$

où  $\Delta m_0$  est une constante correspondant au gain de masse au début du régime d'oxydation diffusionnel.

Dans la seconde étape, la diffusion interne de l'oxygène devient plus rapide que la diffusion de Ti, qui est limitée par la porosité formée. L'oxydation de la phase TiN devient alors contrôlée par la diffusion de O à travers  $TiO_2$ , caractérisée par la constante de vitesse parabolique  $k_{p_{O/TiO_2}}$ .

L'oxydation de  $Si_3N_4$  se poursuit et conduit à la formation de silice, qui flue dans la porosité de la sous-couche. La surface recouverte par  $SiO_2$  augmente donc, et a été exprimée par la relation (2.6) :

$$S_{SiO_2} = S_{Si_3N_4} (1 + bt^{1/2}) \quad (2.6)$$

où  $b$  est un paramètre dépendant de la température.

L'oxydation de TiN est alors contrôlée par la diffusion simultanée de l'oxygène à travers TiO<sub>2</sub> et SiO<sub>2</sub>, la surface de diffusion correspondant à ce second mécanisme augmentant progressivement avec le fluage de la silice formée. L'oxydation de TiN est donc caractérisée par la constante de vitesse  $S_{O/TiO_2} k_{p_{O/TiO_2}}^{1/2} + S_{SiO_2/TiO_2} k_{p_{O/SiO_2}}^{1/2}$ , où  $S_{O/TiO_2}$  correspond à la surface de phase TiO<sub>2</sub> dans la sous-couche non recouverte par SiO<sub>2</sub>, qui diminue, et  $S_{SiO_2/TiO_2}$  la surface recouverte par SiO<sub>2</sub> (Figure 2.3). L'instant  $t_1$  correspondant à la transition entre les première et seconde étapes est atteint lorsque l'on a l'égalité entre les constantes cinétiques des deux mécanismes en compétition, et peut être obtenu par la résolution de l'équation (2.7):

$$S_{Ti/TiO_2}(t_1)k_{p_{Ti/TiO_2}}^{1/2} = S_{O/TiO_2}(t_1)k_{p_{O/TiO_2}}^{1/2} + S_{SiO_2/TiO_2}(t_1)k_{p_{O/SiO_2}}^{1/2} \quad (2.7)$$

Le gain de masse par unité de surface, durant cette seconde phase, est alors donné par la relation (2.8).

$$\frac{\Delta m}{S} = \left(0,3k_{p_{O/TiO_2}}^{1/2} + 0,7k_{p_{O/SiO_2}}^{1/2}\right)^{1/2} + \frac{0,7}{2} \left(k_{p_{O/SiO_2}}^{1/2} - k_{p_{O/TiO_2}}^{1/2}\right) bt + \frac{\Delta m_0}{S} \quad (2.8)$$

Après un temps  $t_2$ , la sous-couche est entièrement recouverte par SiO<sub>2</sub>:

$$S_{SiO_2}(t_2) = S_{Si_3N_4} \left(1 + bt_2^{1/2}\right) = S \quad (2.9)$$

L'oxydation des deux phases Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> et TiN est alors contrôlée par la diffusion de O à travers la silice. L'oxydation atteint alors un régime stationnaire, gouverné par une cinétique parabolique:

$$\frac{\Delta m}{S} = k_{p_{O/SiO_2}}^{1/2} t^{1/2} + \frac{\Delta m_0}{S} \quad (2.10)$$

### 2.1.3. Analyses thermogravimétriques sous air: identification des paramètres et validation du modèle cinétique

A partir d'analyses thermogravimétriques (ATG) réalisées sous air à différentes températures, les paramètres du modèle cinétique d'oxydation ont pu être identifiés. Les essais réalisés à basses températures (< 900°C) permettent de mesurer la constante de vitesse  $k_{p_{O/TiO_2}}$  et son évolution avec la température. Pour les longues durées d'oxydation au dessus de 1000°C, la cinétique devient sensiblement parabolique, ce qui permet l'identification de la constante de vitesse  $k_{p_{O/SiO_2}}$  à différentes températures. En revanche, la constante  $k_{p_{Ti/TiO_2}}$ , qui caractérise l'oxydation du TiN contrôlée par la diffusion de Ti, n'a pu être identifiée, car ce mécanisme, actif en début d'oxydation au dessus de 1000°C, est simultanément à l'oxydation de Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>. Nous avons donc retenu des données issues de la littérature pour identifier ce dernier paramètre. La figure 2.4a montre l'évolution des constantes  $k_{p_{O/TiO_2}}$  et  $k_{p_{O/SiO_2}}$  identifiées à partir des ATG.

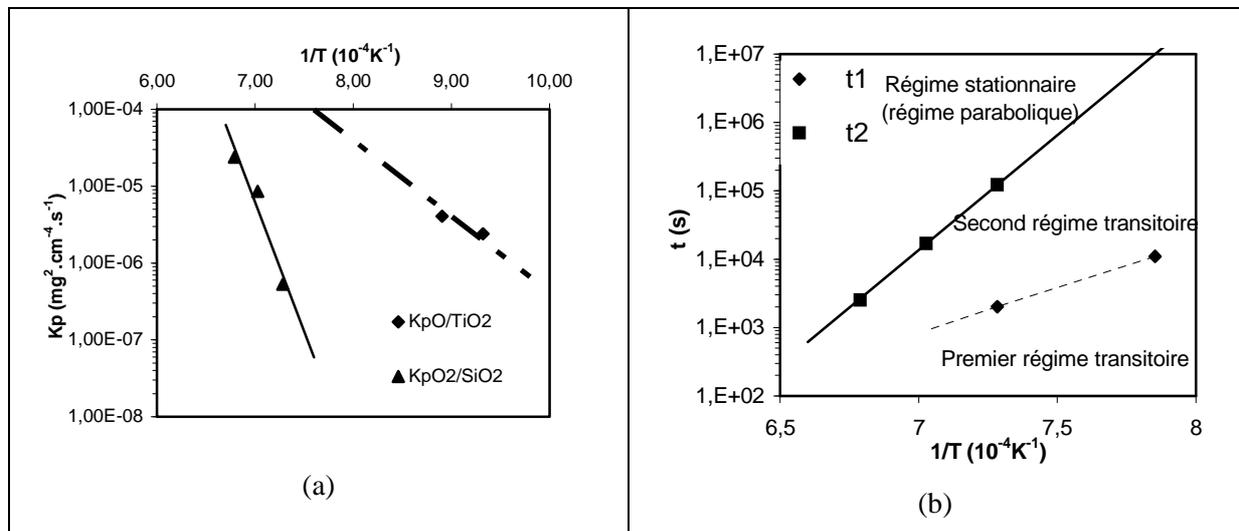


Figure 2.4: Evolution en fonction de la température, des constantes paraboliques  $k_{p_{O/TiO_2}}$  et  $k_{p_{O/SiO_2}}$  (a), et des temps  $t_1$  et  $t_2$  séparant les différents régimes (b).

De la même façon, les temps  $t_1$  et  $t_2$  séparant les trois phases de l'oxydation on pu être identifiés (Figure 2.4b). La figure 2.5 présente une comparaison entre les cinétiques d'oxydation mesurées et issues du modèle, qui montrent une bonne adéquation du modèle jusqu'à 1200°C. A cette température, des fluctuations sont observées sur les courbes expérimentales, qui pourraient être attribuées à la cristallisation de la silice, qui ralentit la cinétique de diffusion de l'oxygène, et/ou à sa fissuration, qui l'augmente.

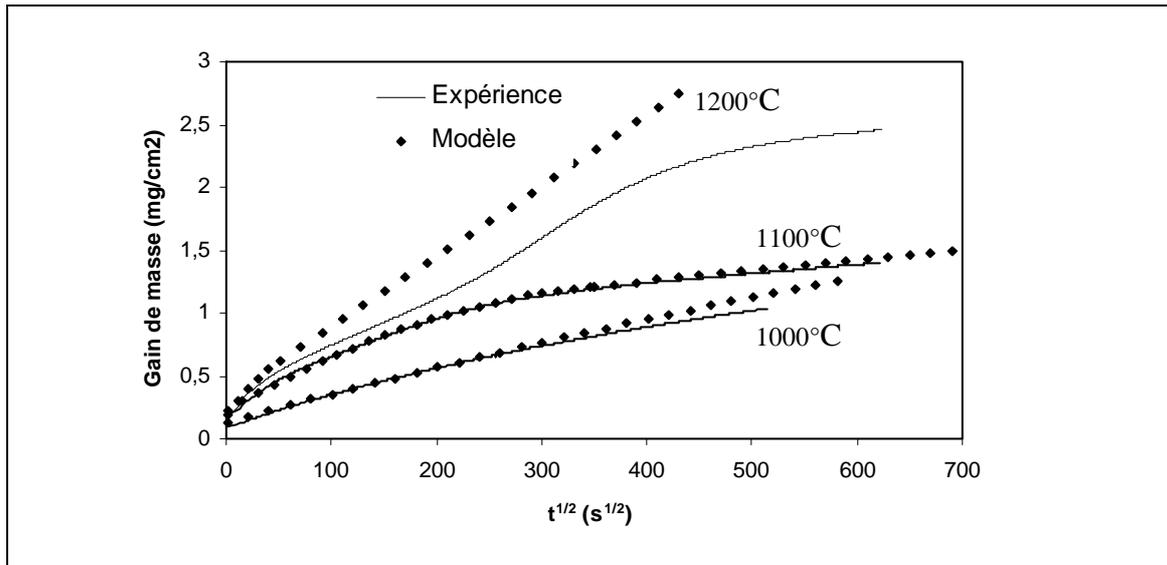


Figure 2.5 : Comparaison entre le modèle cinétique proposé et les résultats d'analyses thermogravimétriques.

## 2.2. Réaction d'une céramiques $Si_3N_4$ -TiN avec différents inserts métalliques et céramiques

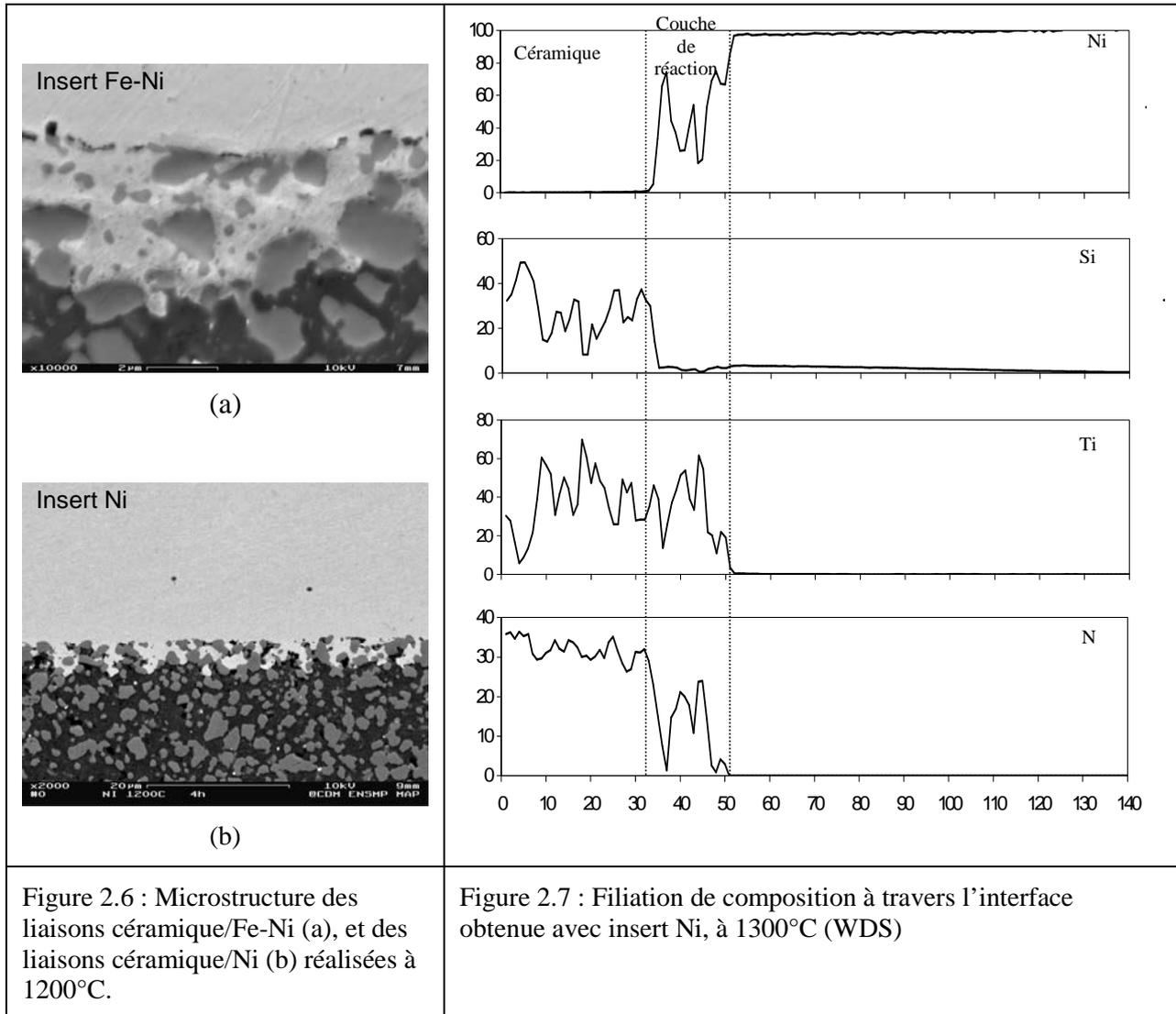
Dans le chapitre 1, nous avons présenté la problématique de l'assemblage par soudage-diffusion et brasage d'un composite céramique  $Si_3N_4$ -TiN. Selon les conditions d'élaboration, en particulier le matériau d'insert choisi, différentes liaisons avaient été obtenues. Nous nous intéressons ici à la caractérisation des interfaces de liaison, à l'aide de diverses techniques d'analyse, afin de tenter de définir les mécanismes réactionnels responsables de la formation des liaisons. L'objectif de cette étude est d'abord de faciliter, par la connaissance des phénomènes intervenant, la définition de conditions d'assemblage optimales, mais aussi de confirmer la nature et les caractéristiques des phases formées, suggérées dans le chapitre 1, afin d'en déduire l'aptitude à l'emploi des liaisons, dans les conditions de hautes températures prévues, qui dépendra notamment de la stabilité à chaud des composés formés. Une partie de ces résultats est décrite dans l'article A4 et dans la communication C5.n.

### 2.2.1. Assemblages avec inserts nickel, fer, et Ni-Fe

L'observation micrographique des assemblages a montré que le nitrure de silicium réagissait avec le fer et le nickel dès 1100°C, conduisant à la formation d'un produit de réaction d'épaisseur d'autant plus grande que la température d'assemblage était élevée. La phase TiN de la céramique demeure quand à elle stable, au moins jusqu'à 1400°C (Figure 2.6). L'analyse par spectrométrie à dispersion de longueur d'onde a montré que les phases formées dans la couche de réaction au cœur de l'assemblage contenaient de 2 à 7% de Si, et correspondaient donc à une solution solide Ni-Si ou Fe-Si, la solubilité du silicium dans le nickel et le fer étant d'environ 8% à température ambiante. En périphérie des assemblages en revanche, les teneurs en Si atteignent 10 à 20%, se qui prouve la formation de

siliciures de fer ou de nickel (les phases  $Ni_4Si$ ,  $Ni_3Si$ ,  $Ni_{31}Si_{12}$  et/ou  $Ni_2Si$  sont en effet prévues par le diagramme de phase Ni-Si). Une partie du silicium issu de la décomposition de  $Si_3N_4$  diffuse également vers l'insert, en quantité limitée (Figure 2.7). L'aluminium, l'yttrium et l'oxygène, constituant initialement la phase intergranulaire de la céramique, semblent former de très fins précipités répartis dans la couche de réaction (Figure 2.6a).

Pour les assemblages avec insert Ni formés à haute température ( $> 1300^\circ C$ ), une phase liquide s'est formée, et la couche de réaction, comme l'insert restant, sont entièrement transformés en intermétallique Ni-Si. La couche de réaction et l'insert sont alors fissurés.



Ces résultats sont en accord avec la littérature, qui indique la réaction de  $Si_3N_4$  avec les métaux Ni et Fe avec formation, selon les auteurs, d'une solutions solides [Esposito, 1997], ou de siliciures [Bennet, 1979]. Les avis divergent sur les mécanismes qui gouvernent l'évolution de l'interface, puisque selon Van Loo [Van Loo, 1993], la pression d'azote contrôle la réaction, alors que selon Esposito [Esposito, 1997], c'est la diffusion du silicium issu de la décomposition de  $Si_3N_4$  à travers l'insert qui contrôle la croissance de la couche de réaction.

Reprenant les conclusions de Van Loo ou de Klomp [Van Loo, 1993, Klomp, 1989], on peut admettre, d'après les résultats obtenus, que la nature des phases formées dépend de la pression d'azote à l'interface de réaction. En effet, la décomposition du  $Si_3N_4$  par le nickel donne lieu à la réaction suivante (la réaction est du même type avec le fer) :



La teneur en Si dans le composé formé, solution solide ou siliciure, dépend de la pression d'azote selon la relation :

$$a_{[\text{Si}]_{\text{Ni}}} \cdot P_{\text{N}_2}^{2/3} = K \quad (2.12)$$

où  $a_{[\text{Si}]_{\text{Ni}}}$  représente l'activité de Si dans la phase formée, et K la constante d'équilibre de la réaction, qui dépend de la température.

Les nitrures de nickel ne sont pas stables thermodynamiquement, et la solubilité de l'azote dans le nickel solide est très faible, se qui fait que l'azote libéré va entièrement se recombinaer sous forme moléculaire et, s'il ne peut être éliminé, former des poches de gaz qui augmentent la pression d'azote. Ainsi, la formation d'une solution solide dans la couche de réaction au cœur de l'assemblage s'explique par une pression de  $\text{N}_2$  élevée, qui crée des porosités au sein de la couche de réaction, alors que la formation de siliciures en périphérie indique une pression de  $\text{N}_2$  plus faible, et donc son élimination, sans doute facilitée par la persistance d'une porosité ouverte à l'interface.

Selon la pression d'azote, la cinétique de croissance de la couche de réaction est contrôlée par des mécanismes distincts. Si la pression d'azote est faible, ce que l'on peut observer en périphérie, où l'azote s'élimine facilement, l'activité du Si dans Ni est élevée, et l'on forme des siliciures de nickel. Le silicium en excès doit alors être éliminé, par diffusion à travers le nickel. C'est ce mécanisme qui contrôle la croissance de la couche de réaction. En revanche, au cœur de l'assemblage, où l'élimination de l'azote est plus difficile, la pression de  $\text{N}_2$  augmente, et l'activité de Si dans Ni, et donc la teneur en Si dans le composé d'équilibre - une solution solide Ni(Si) - diminuent. La quantité de Si libéré par la décomposition de  $\text{Si}_3\text{N}_4$ , qui doit ensuite diffuser dans l'insert, est plus grande, et la vitesse de croissance diminue. En fait, un équilibre s'établit entre pression d'azote et quantité de Si à éliminer par diffusion à travers Ni. Si la pression d'azote diminue, la teneur en Si dans la couche de réaction augmente, ce qui favorise la décomposition de  $\text{Si}_3\text{N}_4$ , qui va libérer de l'azote et faire remonter la pression. La cinétique de croissance de la couche de réaction est donc ici gouvernée à la fois par la pression d'azote et par la diffusion de Si.

### 2.2.2. Assemblages avec inserts Ni-Cr

Les couches de réaction formées avec les inserts en alliage Ni-Cr sont bien plus épaisses que celles obtenues avec le nickel ou le fer. Comme avec les inserts précédents, seule la phase  $\text{Si}_3\text{N}_4$  réagit, mais plusieurs phases sont alors observées dans la couche de réaction, en plus des particules de TiN non transformées (Figure 2.8) : une phase siliciure de nickel, avec des teneurs en Si comprises entre 18 et 44% en poids selon les assemblages, et une phase nitrure de chrome. Une troisième phase, contenant Y, Al et O provenant des ajouts de frittage de la céramique, est aussi observée, comme pour les inserts Ni ou Fe.

La première étape du mécanisme réactionnel est identique à celle observée avec les inserts Ni et Fe, le nitrure de silicium se décomposant au contact de l'insert dès 1100°C pour former des siliciures de nickel et libérer de l'azote et le silicium en excès, qui diffuse dans l'insert :



Mais cette fois-ci, l'azote peut réagir dans une seconde étape avec le chrome de l'insert, pour former du CrN, qui est stable lorsque la pression d'azote est suffisante :



La pression d'azote dans la couche de réaction est donc ici plus faible que lors de l'utilisation des inserts Ni et Fe, ce qui explique la formation de siliciures de nickel au cœur de l'assemblage, et la croissance rapide de la couche de réaction.

Les compositions mesurées par spectrométrie de rayons X à dispersion de longueur d'onde montrent une diminution de la teneur en chrome dans l'insert au voisinage de l'interface, et un profil de diffusion du silicium dans l'insert (Figure 2.9). On peut donc supposer que, comme pour les inserts Ni ou Fe, la croissance de la couche de réaction est contrôlée simultanément par la diffusion du chrome, qui contrôle la pression d'azote en formant des nitrures, et du silicium en excès, à travers l'insert. Les deux mécanismes sont en effet liés, puisqu'un appauvrissement en Cr à l'interface, dû à une diffusion trop lente du chrome dans l'insert, entraîne un ralentissement de la formation de nitrure, et une

augmentation de la pression d'azote, qui diminue l'activité de Si dans Ni, et donc augmente la quantité de Si à éliminer de l'interface par diffusion dans l'insert.

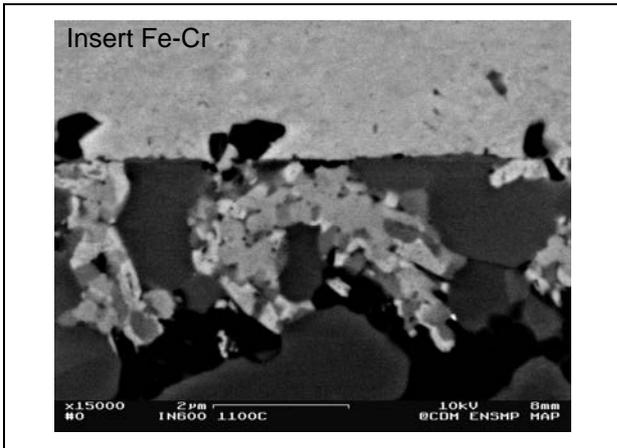


Figure 2.8 : Microstructure de la couche de réaction obtenue avec l'insert Ni-Cr, à 1100°C.

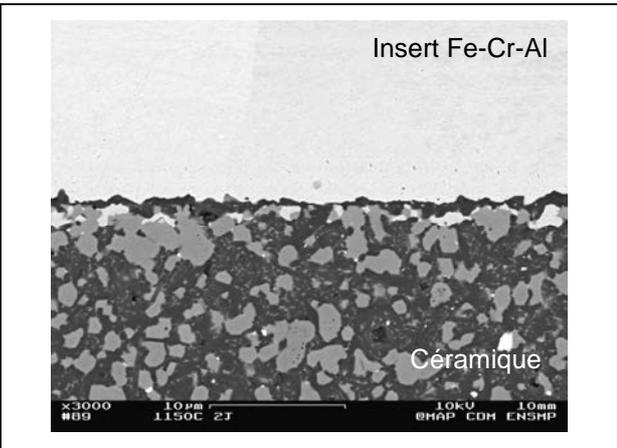


Figure 2.10 : Microstructure de la couche de réaction obtenue avec l'insert Fe-Cr-Al, à 1200°C

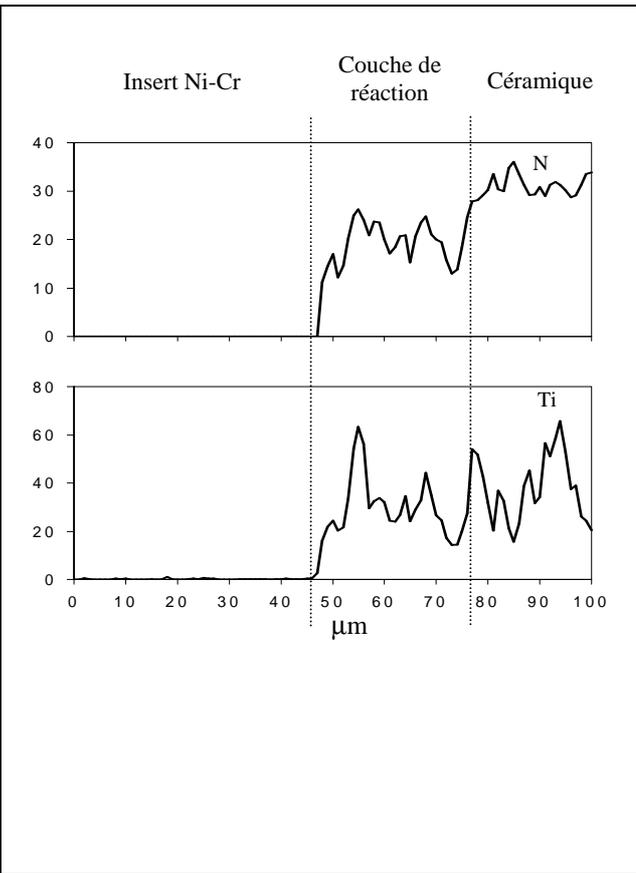
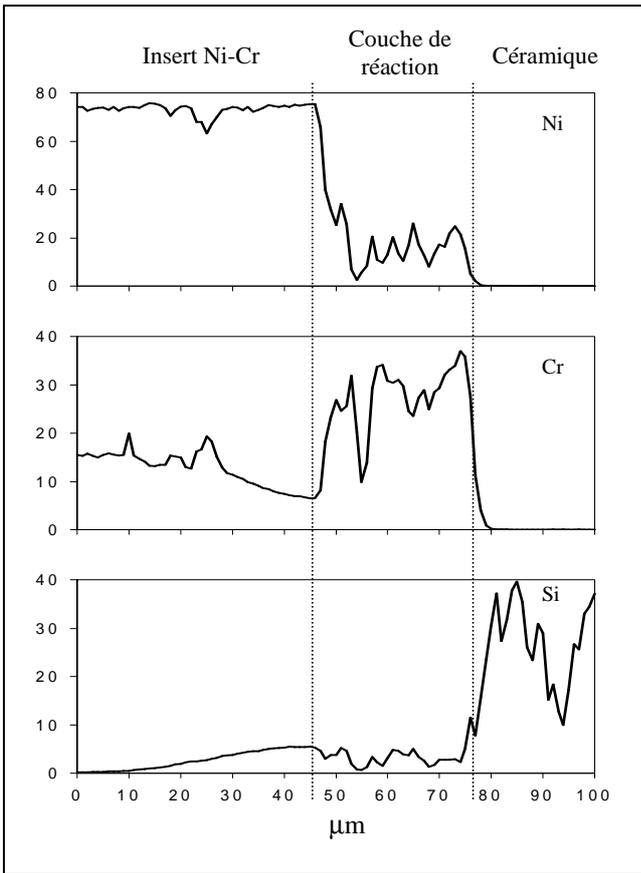


Figure 2.9 : Filiation de composition (WDS) à travers la couche de réaction obtenue avec un insert Ni-Cr, à 1200°C

### 2.2.3. Assemblages avec inserts Fe-Cr-Al

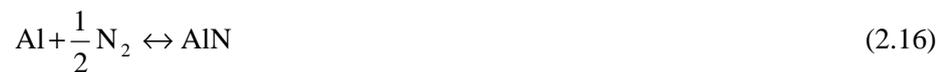
Les épaisseurs de couche de réaction formées avec les inserts en alliages Fe-Cr-Al sont beaucoup plus fines que celles obtenues avec les autres inserts. Même lorsque l'assemblage est réalisé à 1400°C,

l'épaisseur est inférieure à 10 microns, ce qui prouve la grande stabilité de la couche de réaction formée.

On retrouve, comme dans le cas des inserts Ni-Cr, la formation d'un produit de réaction issu de la décomposition de  $\text{Si}_3\text{N}_4$ , constitué cette fois d'un siliciure complexe  $\text{Fe}_x\text{Cr}_y\text{Si}$ . On observe également l'apparition d'une seconde phase, qui forme une couche quasi-continue à l'interface coté insert, constituée de nitrure d'aluminium. Du silicium, issu de la décomposition de  $\text{Si}_3\text{N}_4$ , est également observé dans l'insert, mais sa composition est homogène dans l'épaisseur de l'insert. De la même manière, les concentrations dans l'insert en Fe, Cr et Al sont homogènes, ce qui montre que la diffusion des différents éléments dans l'insert est plus rapide que dans la couche de réaction, qui agit alors comme une barrière de diffusion. L'épaisseur de couche de réaction étant très faible en dessous de  $1300^\circ\text{C}$  (de 1 à 2 microns), sa mesure précise était délicate. Nous avons cependant pu évaluer l'évolution de la réaction par la mesure de la teneur en aluminium de l'insert, qui diminue avec la croissance de la couche de  $\text{AlN}$ , et de silicium, qui augmente avec la formation de siliciures.

On a pu ainsi constater que les siliciures se formaient rapidement au début de la liaison, puis que leur croissance se stabilisait. En revanche, la formation d' $\text{AlN}$  se poursuit de manière continue.

Le mécanisme réactionnel est ici assez semblable à celui observé avec l'insert Fe-Cr. Dans un premier temps, le nitrure de silicium se décompose au contact de l'insert, pour former des siliciures complexes, et libérer de l'azote, et le silicium en excès. L'azote libéré réagit ensuite avec l'aluminium de l'insert, pour former du nitrure d'aluminium.



Une fois qu'une couche continue d' $\text{AlN}$  s'est formée, elle constitue la barrière de diffusion qui contrôle la cinétique de croissance, à la fois de la couche elle-même, par la diffusion de l'azote, et des siliciures de fer et de chrome, par la diffusion de Fe et Cr. La diffusion de ces éléments étant plus lente que celle de l'azote, la croissance des siliciures se stabilise.

#### 2.2.4. Assemblages par brasage

Une alternative au soudage-diffusion avec insert métallique pour assembler la céramique  $\text{Si}_3\text{N}_4\text{-TiN}$ , présentée au paragraphe 1.1.3, consiste à utiliser un insert constitué d'un mélange de poudres d'oxydes formant un eutectique, et de chauffer au dessus de la température eutectique de manière à produire la fusion partielle de l'insert. Nous avons choisi d'utiliser un mélange de poudres oxydes  $\text{Al}_2\text{O}_3$ ,  $\text{Y}_2\text{O}_3$ ,  $\text{SiO}_2$ , pour se rapprocher de la composition de la phase intergranulaire de la céramique, constituée de  $\text{Al}_2\text{O}_3$  et  $\text{Y}_2\text{O}_3$ . Les mélanges choisis, lorsque la température et le temps de maintien sont assez importants pour produire une quantité de phase liquide suffisante, entraînent la dissolution de la phase  $\text{Si}_3\text{N}_4$  de la céramique, produisant une liaison continue. Cependant, la brasure formée, après refroidissement, est en grande partie vitreuse, ce qui laisse supposer une tenue au fluage médiocre à haute température. Pour renforcer cette résistance, il peut être intéressant de produire la cristallisation partielle du verre formé, en jouant sur la composition de la brasure, et le cycle de brasage (température et temps), ou les traitements thermiques post-assemblage.

Pour mieux appréhender les transformations intervenant dans la brasure au cours d'un cycle d'assemblage, des analyses thermiques différentielles (ATD) des mélanges de poudre ont été réalisées, en chauffant ces mélanges jusqu'à la température d'assemblage, puis en les laissant refroidir.

Quatre mélanges d'oxydes avaient été choisis, dont les compositions les situaient près de l'eutectique ternaire (Figure 2.11), sur des nappes de cristallisation primaire différentes, de manière à tenter de favoriser à la fois l'homogénéisation et le mouillage de la brasure par la formation du liquide eutectique, et son durcissement par la précipitation de différentes phases cristallines au refroidissement. Les quatre mélanges, de compositions C1, C2, C3 et C4, sont situés respectivement dans les domaines de cristallisation primaire en mullite ( $3\text{Al}_2\text{O}_3\text{-2SiO}_2$ ), en  $\text{Y}_2\text{O}_3\text{-2SiO}_2$ , en  $\text{SiO}_2$ , et en  $2\text{Y}_2\text{O}_3\text{-3SiO}_2$  (Figure 2.11).

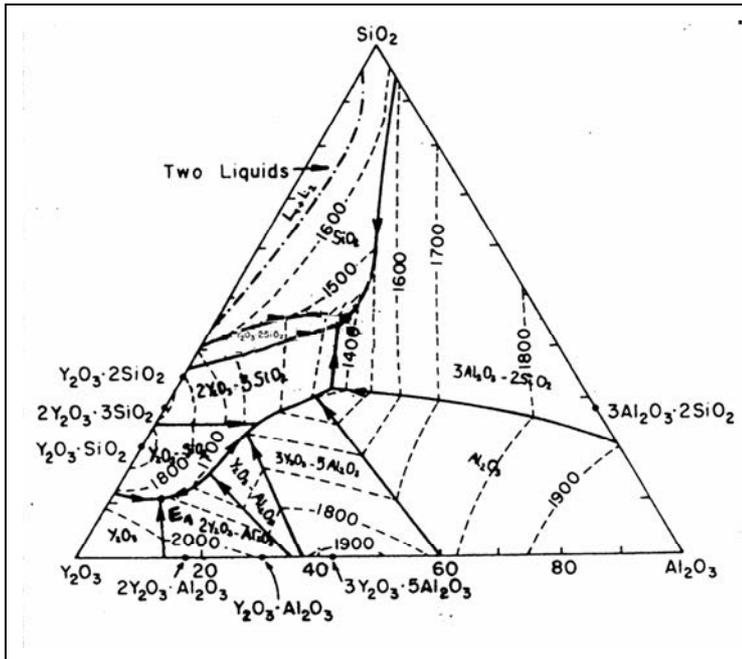


Figure 2.11: Diagramme ternaire du système  $\text{SiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3\text{-Y}_2\text{O}_3$

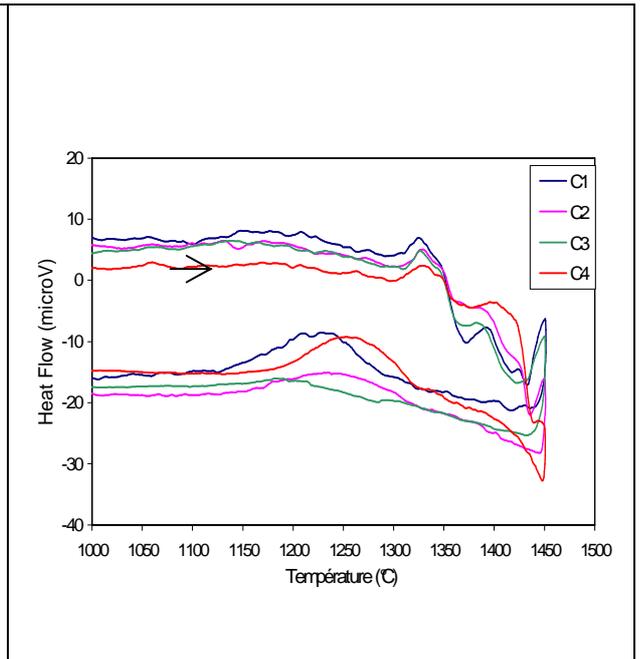
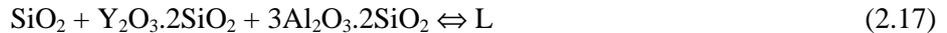


Figure 2.12 : analyse thermique différentielle des quatre mélanges d'oxydes

L'analyse thermique différentielle des quatre mélanges a permis de révéler un début d'homogénéisation des poudres dès  $1300^\circ\text{C}$  (pic exothermique), par diffusion et réaction à l'état solide, puis l'apparition du liquide vers  $1370^\circ\text{C}$  (pic endothermique), qui correspond approximativement à la température de l'eutectique ternaire (Figure 2.12) :



Les mélanges n'ont alors que partiellement fondu. D'après l'intensité des pics, il semblerait que la composition C1 produise plus de liquide eutectique que C3, qui elle-même en produit plus que C2 et C4. Un second pic endothermique est observé, correspondant à l'eutectique binaire, puis un troisième, qui correspond à la traversée des nappes de cristallisation primaire des différents mélanges, qui sont situées à des températures légèrement différentes.

On peut voir qu'à  $1450^\circ\text{C}$ , le mélange C4 n'était pas entièrement fondu. Au refroidissement, aucun pic marqué n'est observé, ce qui montre que la brasure conserve majoritairement sa structure désordonnée, avec seulement une faible cristallisation, malgré les faibles vitesses de refroidissement ( $10^\circ\text{C}/\text{min}$ ), ce qui est bien conforme aux observations micrographiques, qui ne révèlent que quelques cristaux isolés dans une matrice vitreuse (Figure 2.13). Des particules de poudre initiale « infondues » sont également observées (Figure 2.13a).

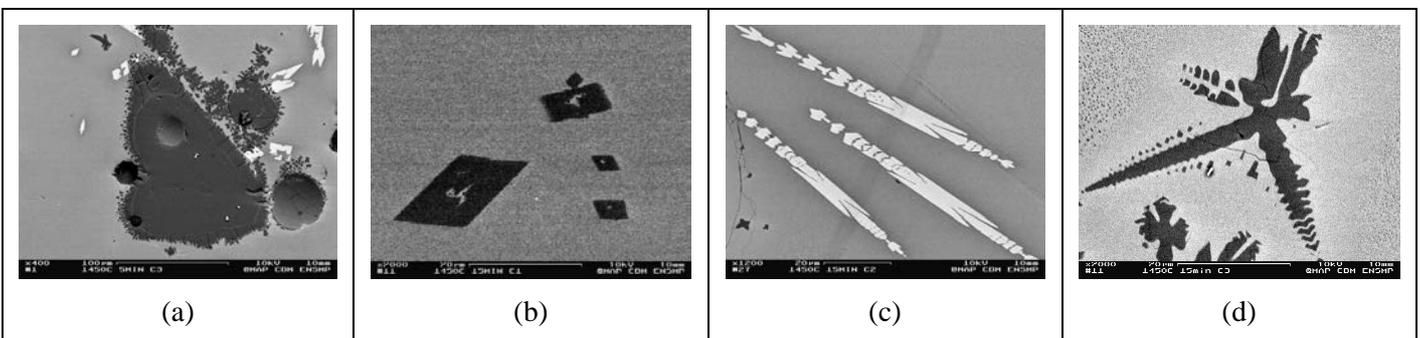


Figure 2.13: « Infondus » de  $\text{SiO}_2$  (phase sombre) dans le verre C3 -  $1450^\circ\text{C}$ -5min (a), précipitation de cristaux primaires de type  $3\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 2\text{SiO}_2$  (mullite) dans le verre C1 -  $1450^\circ\text{C}$ -15min (b), cristaux primaires de  $\text{Y}_2\text{O}_3 \cdot 2\text{SiO}_2$  dans le verre C2 -  $1450^\circ\text{C}$ -15min (c), et cristaux primaires de  $\text{SiO}_2$  dans le verre C3 -  $1450^\circ\text{C}$ -15min (d).

Ces observations ont finalement montré qu'il était difficile d'obtenir une proportion de phase cristalline importante dans la brasure, à moins de réaliser des traitements thermiques très prolongés. On peut cependant s'attendre, avec la dissolution de la phase  $Si_3N_4$  par la brasure, à une cristallisation plus importante dans le cas des assemblages que dans les mélanges de poudre seuls.

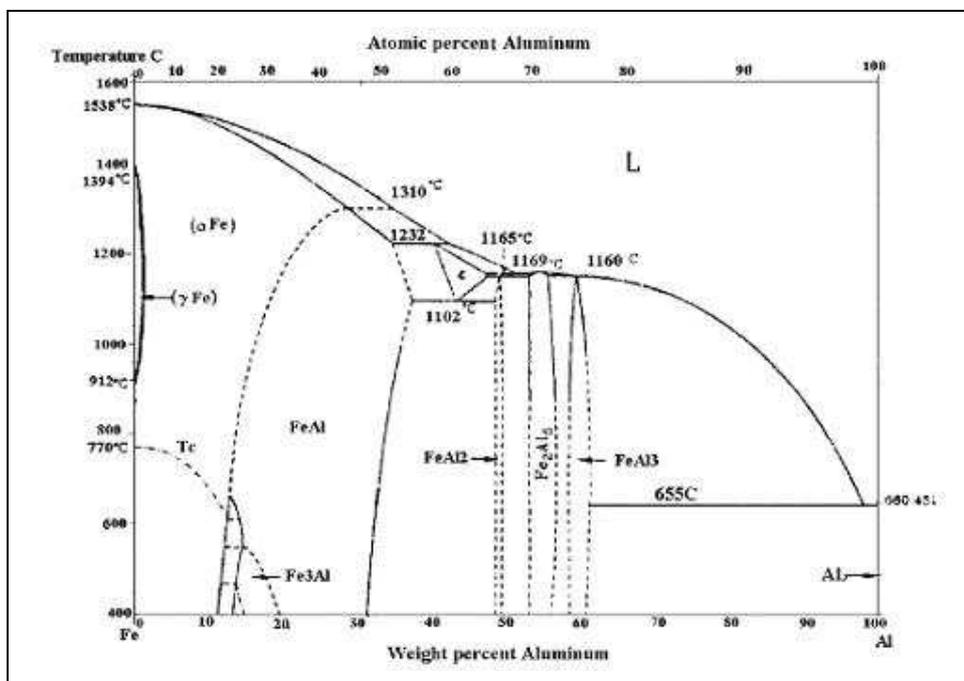
### 2.3. Evolution des interfaces acier-aluminium obtenues par soudage

Dans le premier chapitre de ce mémoire, les procédés de soudage et les techniques opératoires développés dans le cadre de la thèse de Guillaume Sierra pour tenter de réaliser des assemblages acier-aluminium ont été présentés. Ces travaux avaient notamment conduit à démontrer que des liaisons « saines », continues et non fissurées, pouvaient être obtenues lorsque les paramètres opératoires choisis permettaient de limiter l'épaisseur de la couche de composés intermétalliques formés à l'interface acier-aluminium. Ces derniers semblaient toutefois de natures différentes selon les conditions d'assemblage.

Afin de mieux comprendre les relations entre les conditions de soudage et la qualité des liaisons obtenues, il était nécessaire de caractériser plus finement les interfaces formées, et leurs évolutions au cours de l'opération d'assemblage. Nous présentons ici les résultats de ces caractérisations, pour les différents types d'interaction rencontrés avec les procédés d'assemblage retenus, ainsi qu'une méthode de prédiction de la croissance des couches d'intermétalliques au cours de l'opération de soudobrasage, basée sur la simulation numérique. Ces résultats sont décrits dans les publications A7, A8, A10 et A13.

#### 2.3.1. Données bibliographiques

La thermodynamique prévoit la formation de nombreuses phases intermétalliques entre Fe et Al. On peut constater sur le diagramme de phase de la figure 2.14, que la solubilité du fer dans l'aluminium est quasiment nulle à l'état solide, alors que le fer peut, à haute température, contenir en solution solide jusqu'à 25% en poids d'aluminium environ.



	Dureté Vickers	$K_{IC}$ (MPa.m <sup>1/2</sup> )
FeAl <sub>3</sub>	892	2,15
Fe <sub>2</sub> Al <sub>5</sub>	1013	2,30
FeAl	470	
Fe <sub>3</sub> Al	330	

Tableau 2.1 : Propriétés mécaniques des composés intermétalliques  $Fe_xAl_y$  [Yasuyama, 1996]

Figure 2.14 : Diagramme d'équilibre Fe-Al [Kattner, 1990]

Les intermétalliques formés sont toujours fragiles, mais les plus chargés en fer, qui possèdent une dureté plus faible, semblent mieux résister à la fissuration (Tableau 2.1).

Lorsque les deux matériaux sont mis en contact à haute température à l'état solide, la formation d'une couche d'intermétallique  $Fe_2Al_5$  à l'interface est généralement observée, avec parfois une seconde couche de  $FeAl_3$  coté aluminium. La croissance de ces couches est alors contrôlée par la diffusion de Fe et/ou Al à travers les couches de réaction. Si l'aluminium est liquide, on observe de plus une dissolution de  $FeAl_3$  dans l'aluminium, qui modifie la cinétique de croissance de cette phase [Bouhayad, 2003, Bouché, 1995].

### 2.3.2. Etude des interfaces formées lors d'une interaction Al liquide/acier solide

Les études menées dans le cas de l'interaction Al liquide/acier solide, en soudage TIG ou laser, dont les modes opératoires d'assemblage ont été présentés dans le chapitre 1, ont révélé la formation d'une couche sensiblement uniforme, dont la composition, identifiée par spectrométrie par dispersion de longueur d'onde, correspond à la phase  $Fe_2Al_5$ , avec une faible teneur en Si (0,7 à 1,4%). La présence d'autres phases est possible aux interfaces, mais n'a pu être prouvée.

Lorsque l'acier est électrozingué, on retrouve du zinc dans la couche de réaction, dont la teneur varie entre 0,3 et 0,7% lors du soudage laser, et entre 1 et 7% en soudage TIG (Figure 2.15). Ces différences peuvent s'expliquer par la différence des cycles thermiques interfaciaux associés aux deux procédés. En soudage laser, la température maximale est en effet beaucoup plus élevée, de 200 à 400°C selon les vitesses de soudage, et le cycle est beaucoup plus court. Le zinc est donc en majeure partie vaporisé. En revanche, avec le procédé TIG, le zinc recouvrant l'acier est dissout dans l'aluminium liquide, formant un intermétallique plus riche en cet élément à l'interface.

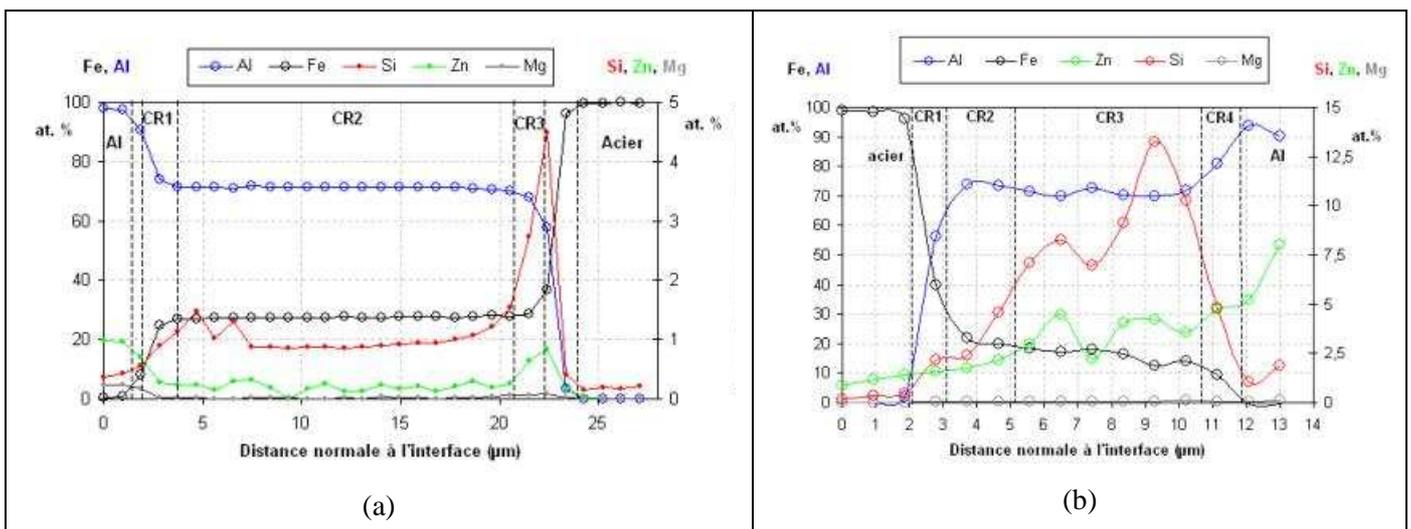


Figure 2.15 : Filiation de composition (WDS) à travers la couche de réaction obtenue entre acier électrozingué et aluminium, en laser (a), et en TIG (b).

Des essais d'assemblage laser ont été également réalisés avec un matériau d'apport Al-12%Si, qui possède une température de fusion plus faible que l'aluminium pur, de manière à tenter de diminuer la température de l'interface. La zone fondue est alors constituée d'un mélange d'aluminium de base et d'alliage Al-12%Si, avec une teneur en Si moyenne de 8% en poids. L'intermétallique formé est très fin, de l'ordre du micron (Figure 2.16), et sa teneur en Si élevée, ce qui semble indiquer la formation d'un composé ternaire Fe-Al-Si ou quaternaire Fe-Al-Si-Zn, comme cela avait été suggéré dans deux études récentes [Viala, 2002, Mathieu, 2006]. La faible épaisseur de la couche d'intermétallique formée, ainsi que la présence de nombreux précipités de phases intermétalliques dans la zone de fusion, ont été expliquées par la dissolution de l'intermétallique par l'aluminium liquide, qui est favorisée par la présence de silicium et les hautes températures [Viala, 2002]. Lors du soudage laser, la température maximale atteinte est élevée (supérieure à 1000°C), et la dissolution de l'intermétallique est plus rapide que sa formation, contrôlée par la diffusion. La couche se forme donc essentiellement lors du refroidissement, la solubilité de Fe dans l'aluminium liquide diminuant. L'utilisation du

matériau d'apport Al-12Si a donc été jugée très prometteuse, car elle permet de limiter très fortement en laser l'épaisseur d'intermétallique formé.

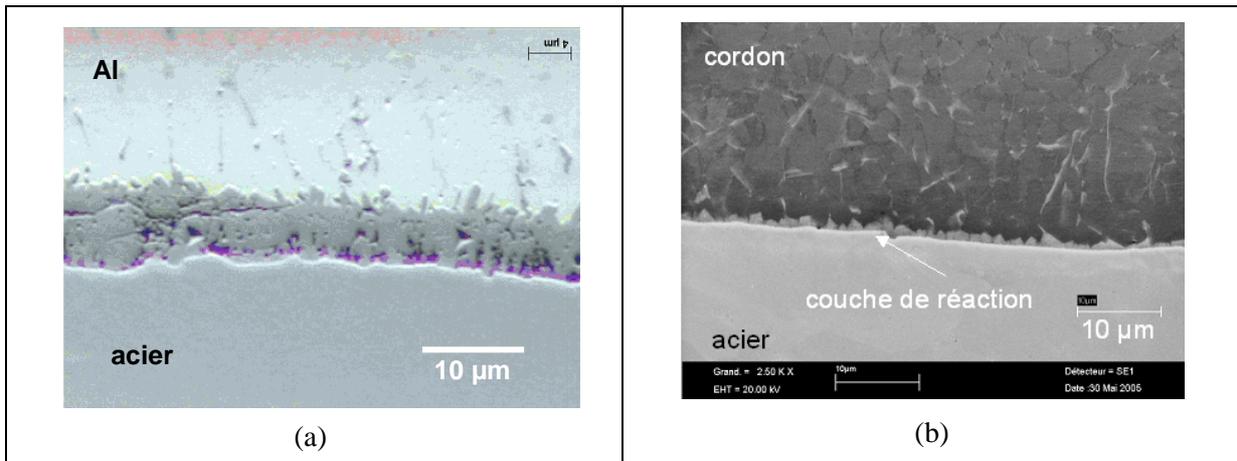


Figure 2.16 : Comparaison des couches de réaction formées lors du soudobrasage laser acier/aluminium, sans matériau d'apport (a), et avec matériau d'apport Al-12%Si (b).

### 2.3.3. Etude des interfaces formées lors d'une interaction Al liquide/acier liquide

Lorsque les deux matériaux sont mélangés à l'état liquide, lors du soudage laser acier sur aluminium en « key-hole » (cf. § 1.2.3), la microstructure est très différente. Le temps de passage à l'état liquide étant très réduit, l'homogénéisation n'a pas le temps de se produire, malgré les forts mouvements de convection présents dans le bain.

La zone fondue est principalement constituée de fer, mais la teneur en Al est très variable, et augmente avec la pénétration du cordon dans l'aluminium (Figure 2.17). La composition très hétérogène en zone fondue laisse supposer la formation d'un mélange de solution solide Fe(Al), sursaturée en Al, et de composés intermétalliques. Ces derniers se présentent généralement sous la forme de « bandes » plus riches en Al, dont les contours rappellent les mouvements de convection du fluide, qui entraîne de l'aluminium dissout depuis l'interface avec l'aluminium solide vers le haut du cordon (Figure 2.18a).

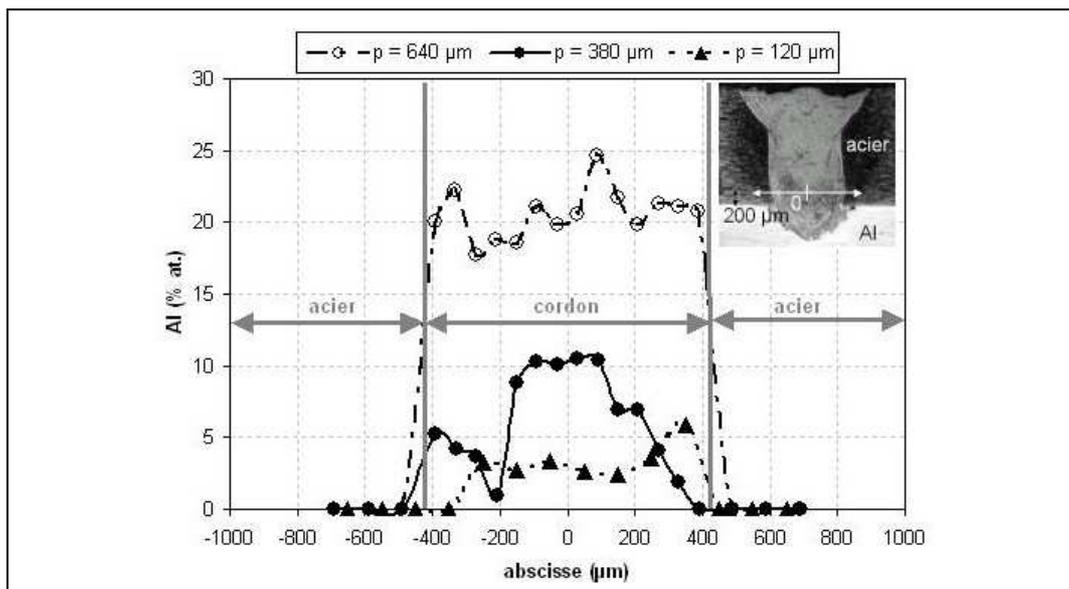


Figure 2.17 : Evolution de la teneur en aluminium de la zone fondue en fonction de la pénétration p du cordon dans l'aluminium

Ces intermétalliques se retrouvent donc dans le cordon, au voisinage de l'interface avec l'aluminium, ou plus haut, près de l'interface avec l'acier. On observe aussi au niveau de l'interface cordon-aluminium une couche plus ou moins continue qui semble être constituée d'intermétalliques. L'analyse par diffraction de rayons X des interfaces cordon/aluminium ou cordon/acier après arrachement a révélé que les composés intermétalliques formés étaient FeAl, et Fe<sub>2</sub>Al<sub>5</sub> ou Fe<sub>4</sub>Al<sub>13</sub>. La phase FeAl, qui constitue les « bandes » observées dans la zone fondue, n'avait pas été observée lors des interactions acier solide/aluminium liquide. Elle semble s'être formée au moment de la solidification du liquide, dans les zones où il s'était enrichi en aluminium.

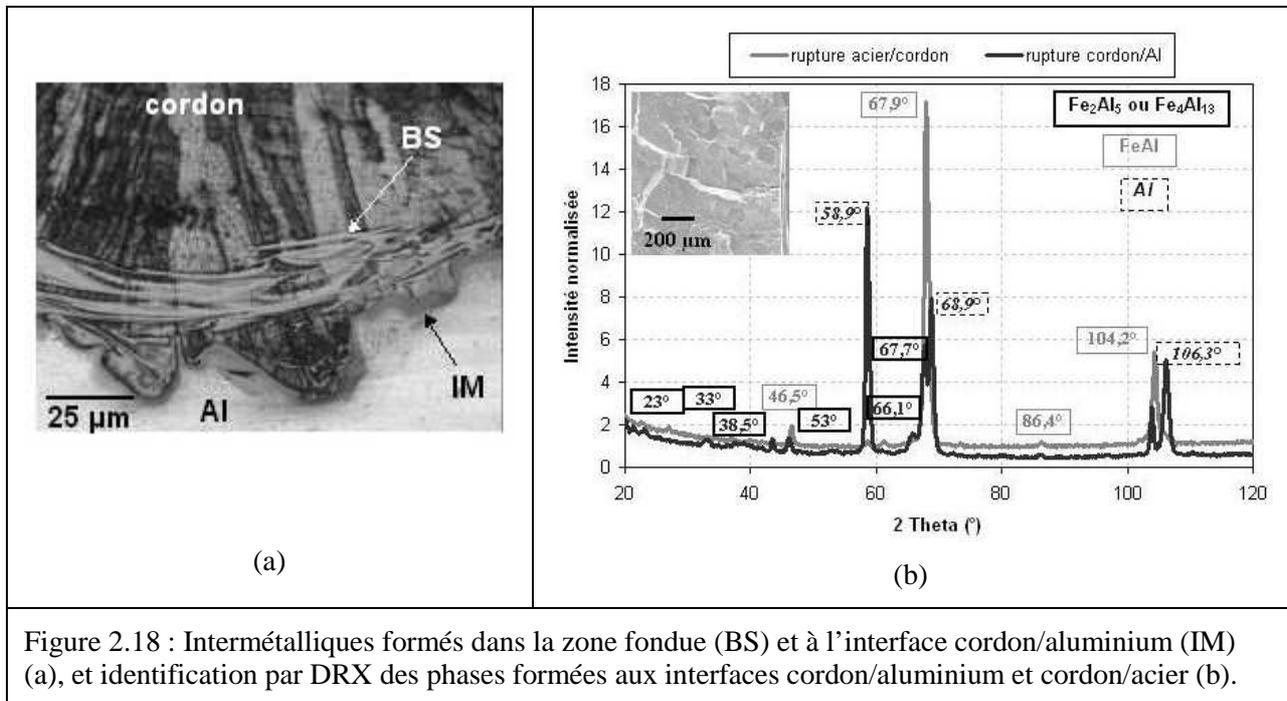


Figure 2.18 : Intermétalliques formés dans la zone fondue (BS) et à l'interface cordon/aluminium (IM) (a), et identification par DRX des phases formées aux interfaces cordon/aluminium et cordon/acier (b).

### 2.3.4. Cinétique de croissance des couches de réaction

La modélisation des procédés de soudobrasage laser et TIG, décrite au chapitre 1, a permis d'identifier les cycles thermiques subis par les interfaces acier/aluminium lors de l'opération d'assemblage. La figure 2.19 compare les cycles thermiques calculés aux interfaces acier/aluminium en soudage TIG et laser.

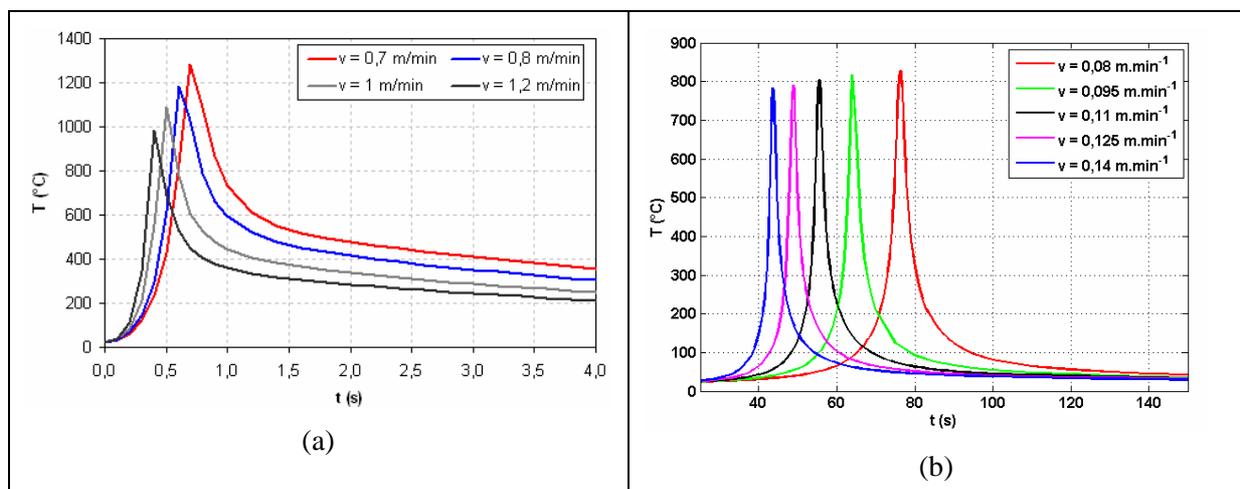


Figure 2.19 : Cycles thermiques à l'interface acier/aluminium obtenus par simulation numérique, en laser (a), et en TIG (b).

On peut constater que, du fait de la nature de la source de chaleur et de la « stratégie de chauffe » employée (fusion direct ou indirect de l'aluminium), les cycles sont très différents. La température maximale atteinte en TIG, de l'ordre de 800°C, est beaucoup plus faible qu'en laser, où elle atteint 1000 à 1200°C selon la vitesse de soudage. En revanche, le cycle est beaucoup plus lent en TIG qu'en laser, l'aluminium restant à l'état liquide plusieurs secondes en TIG, contre moins d'une demie seconde en laser.

Si la croissance de la couche de réaction est contrôlée par la diffusion, ce qui est généralement admis si l'on néglige la dissolution dans l'aluminium liquide, alors en conditions isothermes, et à condition de négliger l'épaisseur de couche de réaction initiale, l'épaisseur  $x$  croît selon la relation :

$$x = \sqrt{2k(T)t} \quad (2.18)$$

où  $t$  est le temps, et  $k(T)$  la constante cinétique parabolique.

Si l'on décompose le cycle thermique en une succession de paliers isothermes de temps infiniment court, l'épaisseur de la couche de réaction peut s'écrire sous la forme :

$$x = \int_0^t \sqrt{1/2k(T)} t^{-1/2} dt \quad (2.19)$$

$$\text{avec } k(T) = k_0 \exp\left(\frac{-E_a}{RT}\right) \quad (2.20)$$

Les valeurs retenues pour  $k_0$  et  $E_a$  sont issues de la littérature [Bouhayad, 2003]. Les épaisseurs d'intermétallique calculées, pour les cycles thermiques caractéristiques du soudobrasage laser et TIG, sont proches de celles mesurées (Figure 2.20), ce qui montre qu'un calcul prédictif de l'épaisseur d'intermétallique formé est possible, à la condition de connaître ou de pouvoir prédire précisément le cycle thermique interfacial.

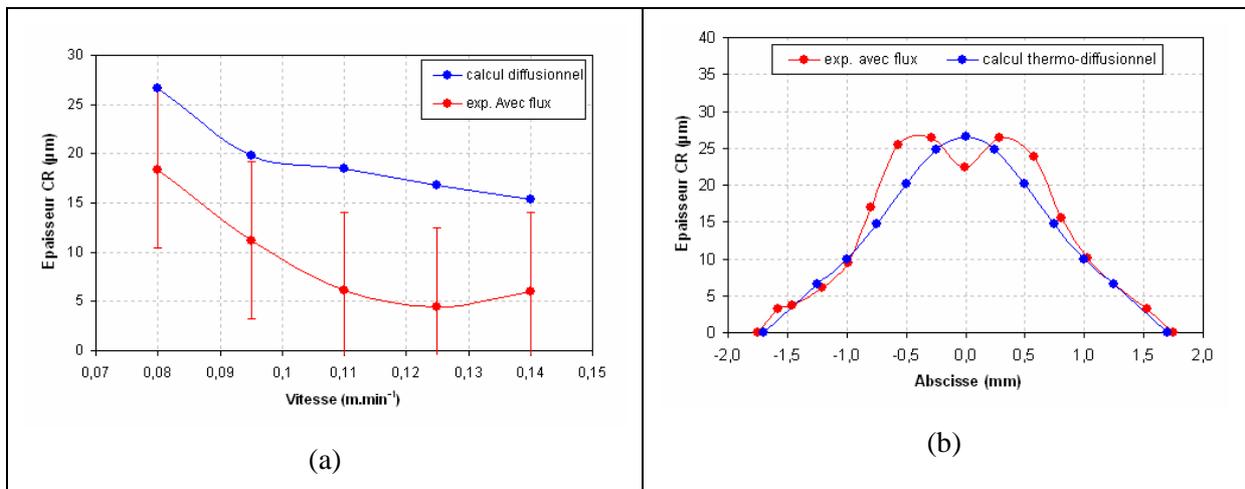


Figure 2.20 : Comparaison des épaisseurs de couche de réaction mesurées et calculées en soudage TIG ; épaisseur maximale en fonction de la vitesse de soudage (a), et épaisseur en fonction de la position par rapport au centre de la liaison (b).

#### 2.4. Fissuration en soudage et microstructures de zone fondue et de ZAT d'aciers réfractaires moulés

Les difficultés rencontrées pour réparer par soudage les aciers réfractaires moulés, du fait de leur très faible ductilité, ont été présentées dans le chapitre 1. Afin de mieux comprendre les mécanismes responsables de l'évolution des microstructures et de l'apparition de la fissuration lors du soudage, une étude de caractérisation microstructurale a été menée, dans le cadre de la thèse de Traian Branza [Branza, 2005], en collaboration avec Philippe Lours. On peut retrouver l'essentiel de ces résultats dans la publication A11.

#### 2.4.1. Etude des relations entre microstructure et fissuration en soudage des aciers réfractaires moulés

Trois aciers réfractaires avaient été utilisés au cours de cette étude, désignés par la suite SP35, SP40 et SP50. Ces trois aciers possèdent des teneurs en chrome sensiblement identiques, d'environ 25 % en poids, et des teneurs en nickel respectivement de 35, 40 et 50 pds%. Outre leur teneur en nickel, les trois aciers se différencient par leur teneur en carbone, et par les éléments d'addition carburigènes qu'ils contiennent, qui déterminent la quantité et la nature des carbures formés. Le SP35 contient environ 1 pds% de Nb, et un peu de Mo et W, le SP40 contient également du niobium en plus faible teneur (0,3 pds%), mais un peu plus de carbone, et le SP50 contient près de 5 pds% de W.

La microstructure des alliages révèle une structure dendritique typique des alliages moulés (Figure 2.21). Les zones interdendritiques sont principalement constituées d'un mélange d'austénite et de carbures de chrome primaires, dont la morphologie varie d'une nuance à l'autre, et de carbures de Nb pour le SP35 et le SP40 (Figure 2.22), ou de carbures de W pour le SP50. Cette structure fortement hétérogène, avec la présence d'un réseau quasi-continu de phases carbures, dures et fragiles (Figures 2.23), induit un comportement global quasi-fragile, malgré la grande ductilité de la matrice austénitique.

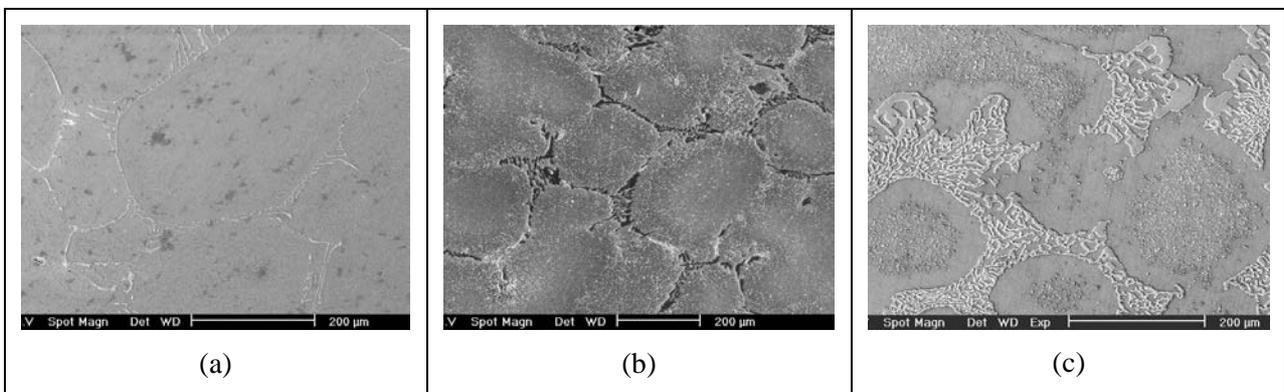


Figure 2.21 : Microstructure des aciers réfractaires moulés SP35 (a), SP40 (b), et SP50 (c).

Les fissures qui se forment en cours de soudage sont localisées dans l'acier moulé à proximité immédiate de la zone soudée, et se propagent exclusivement à travers les espaces interdendritiques (Figure 2.24). Toutefois, la sensibilité à la fissuration n'est pas la même pour les trois nuances. Elle semble principalement liée à la teneur en carbone, qui détermine la quantité de carbures primaires formés, mais aussi à la morphologie de ces derniers. Ainsi, l'alliage SP35, qui contient moins de carbone que le SP40, présente une sensibilité plus marquée, du fait de la morphologie plus élancée des carbures interdendritiques, qui forment un réseau fragile quasi-continu, alors que l'alliage SP40 contient des carbures primaires plus compacts et discontinus (Figure 2.24c et d).

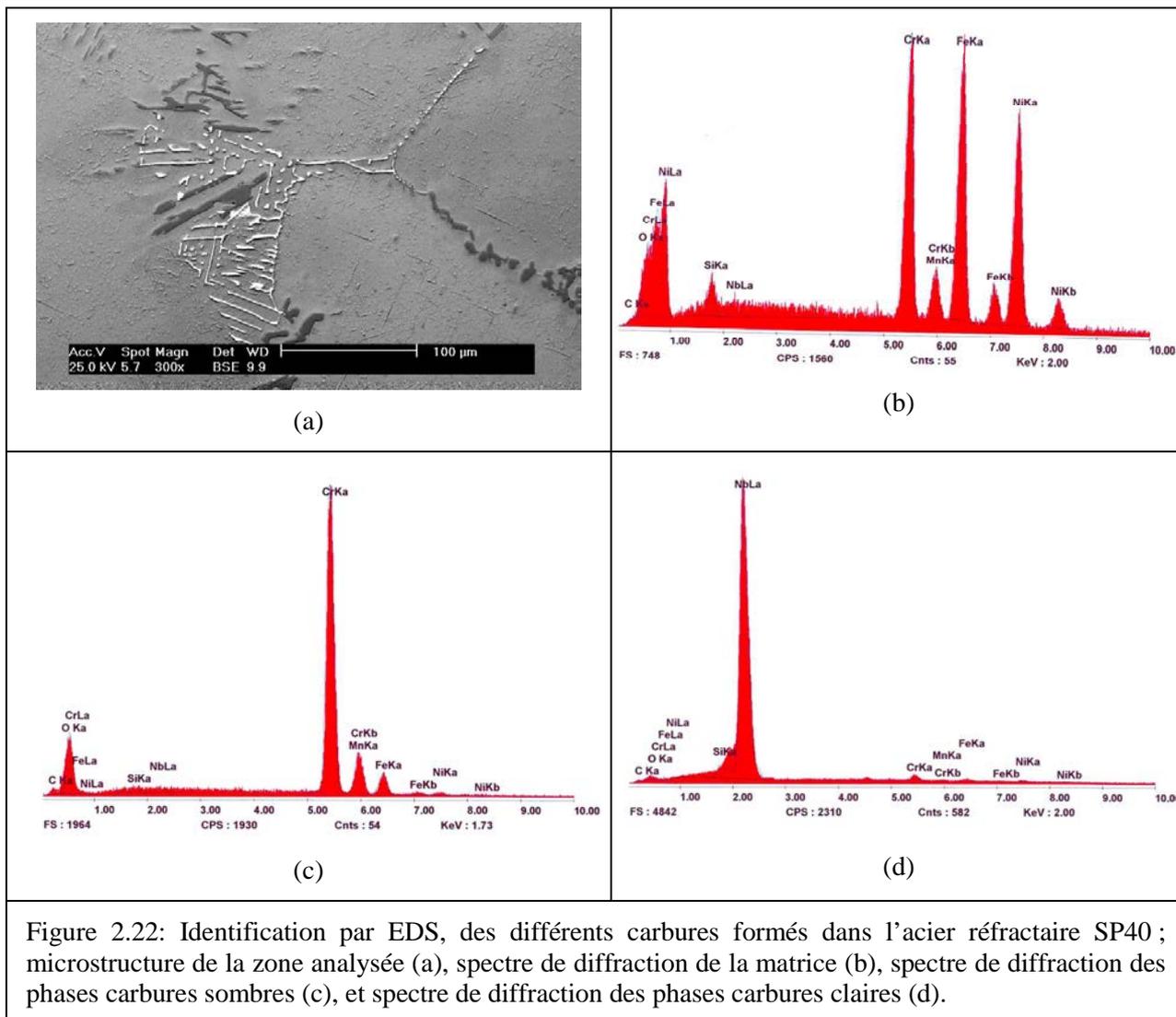


Figure 2.22: Identification par EDS, des différents carbures formés dans l'acier réfractaire SP40 ; microstructure de la zone analysée (a), spectre de diffraction de la matrice (b), spectre de diffraction des phases carbures sombres (c), et spectre de diffraction des phases carbures claires (d).

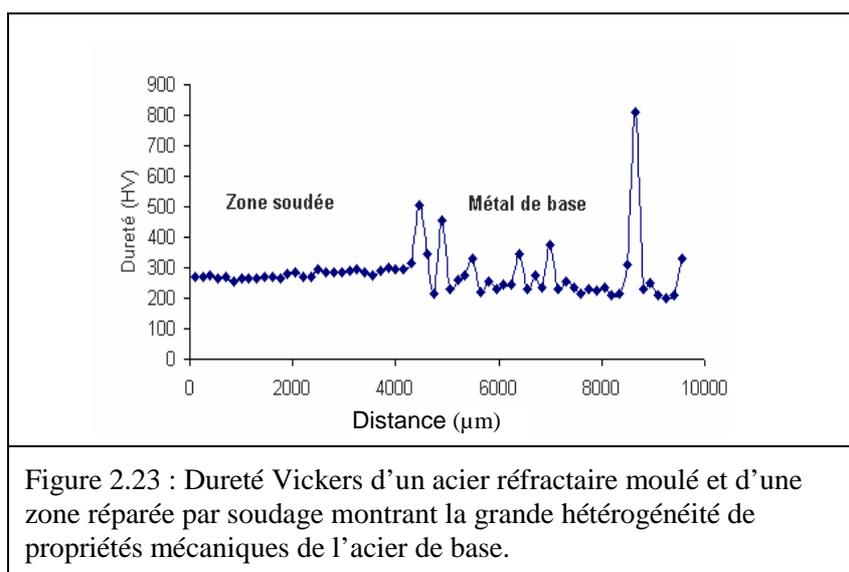


Figure 2.23 : Dureté Vickers d'un acier réfractaire moulé et d'une zone réparée par soudage montrant la grande hétérogénéité de propriétés mécaniques de l'acier de base.

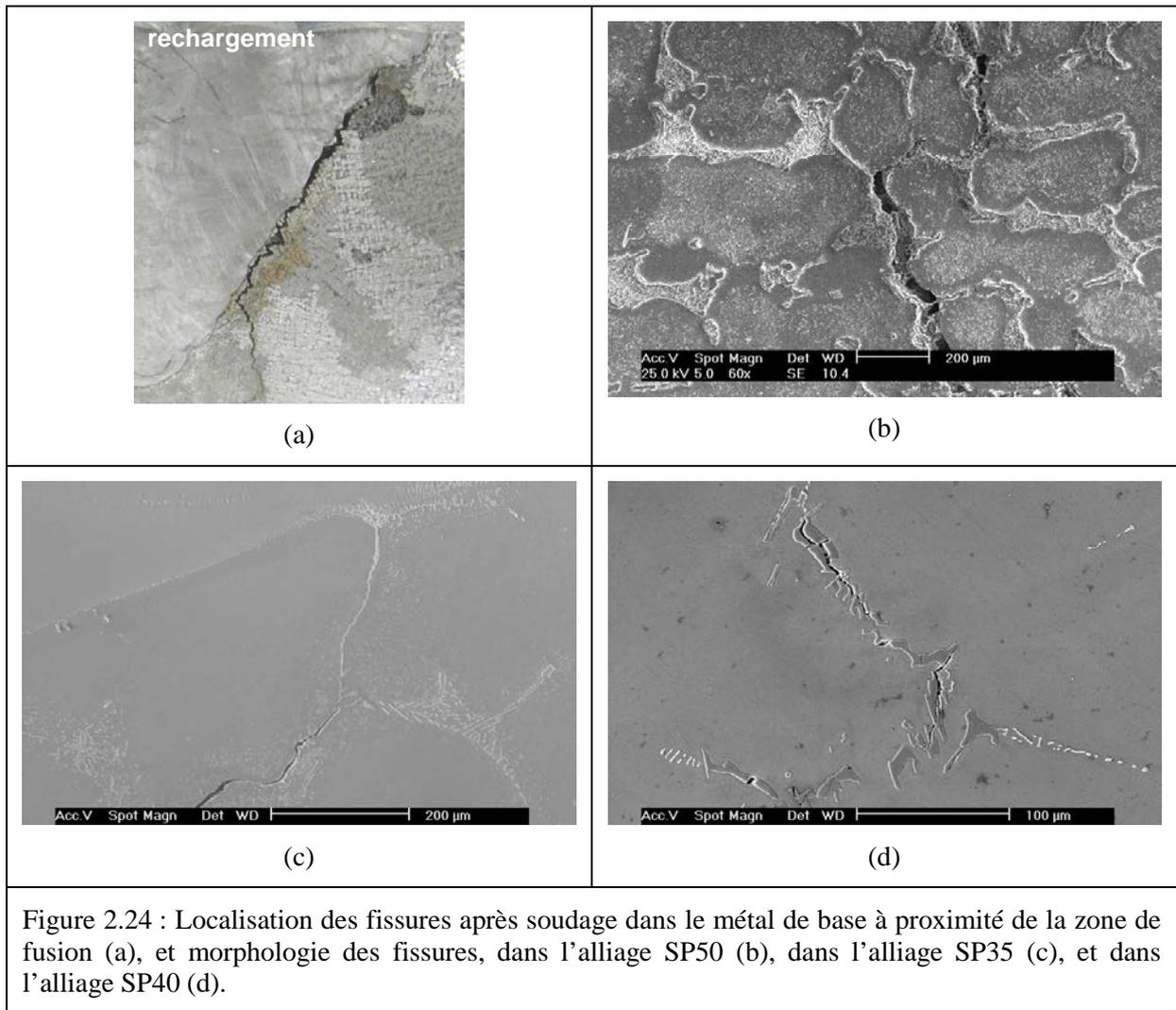


Figure 2.24 : Localisation des fissures après soudage dans le métal de base à proximité de la zone de fusion (a), et morphologie des fissures, dans l'alliage SP50 (b), dans l'alliage SP35 (c), et dans l'alliage SP40 (d).

#### 2.4.2. Etude de la fissuration dans les zones fondues

L'un des moyens retenus pour réduire la fissuration en soudage des aciers réfractaires moulés, décrit dans le chapitre 1, consistait à déposer une « couche d'accommodation » entre le métal de base et le métal d'apport de remplissage, à l'aide d'un alliage de nickel, selon la technique dite « de beurrage ». Si la méthode a permis d'éliminer la fissuration dans l'acier de base, en revanche de nouvelles fissures sont apparues dans la couche de beurrage (Figure 2.25a), issues d'un phénomène de fissuration à chaud.

Le rôle du soufre et du phosphore dans le phénomène de fissuration à chaud en soudage est connu depuis longtemps [Suutala, 1979], même si les mécanismes de fissuration ne sont pas toujours bien identifiés. Le soufre étant très peu soluble dans le nickel, il est rejeté à la solidification dans les espaces interdendritiques, pour former des phases à bas point de fusion, ou fragiles [Matsuda, 1982].

Lors de notre étude, deux phénomènes de fissuration, apparemment différents, ont été rencontrés. Dans le cas de l'utilisation de nickel quasi pur comme matériau de beurrage, la fissuration se produit dès la solidification de la couche de beurrage, vraisemblablement à cause de la formation de phases sulfures de nickel, à bas point de fusion. Dans le cas de l'utilisation d'alliage de Ni contenant 2% de Ti, la fissuration ne se produit pas à la solidification, mais ultérieurement, sous l'effet des contraintes produites par les passes de remplissage. La teneur en titane élevée observée autour de ces fissures (Figure 2.25b) nous a conduit à suggérer la formation de carbo-sulfures de titane, comme l'avait déjà indiqué Shankar [Shankar, 2000], qui fixent le soufre, et empêchent la formation de sulfures à bas point de fusion. Cependant, les phases formées sont alors fragiles, et se fissurent sous l'effet des contraintes thermiques produites lors des passes ultérieures.

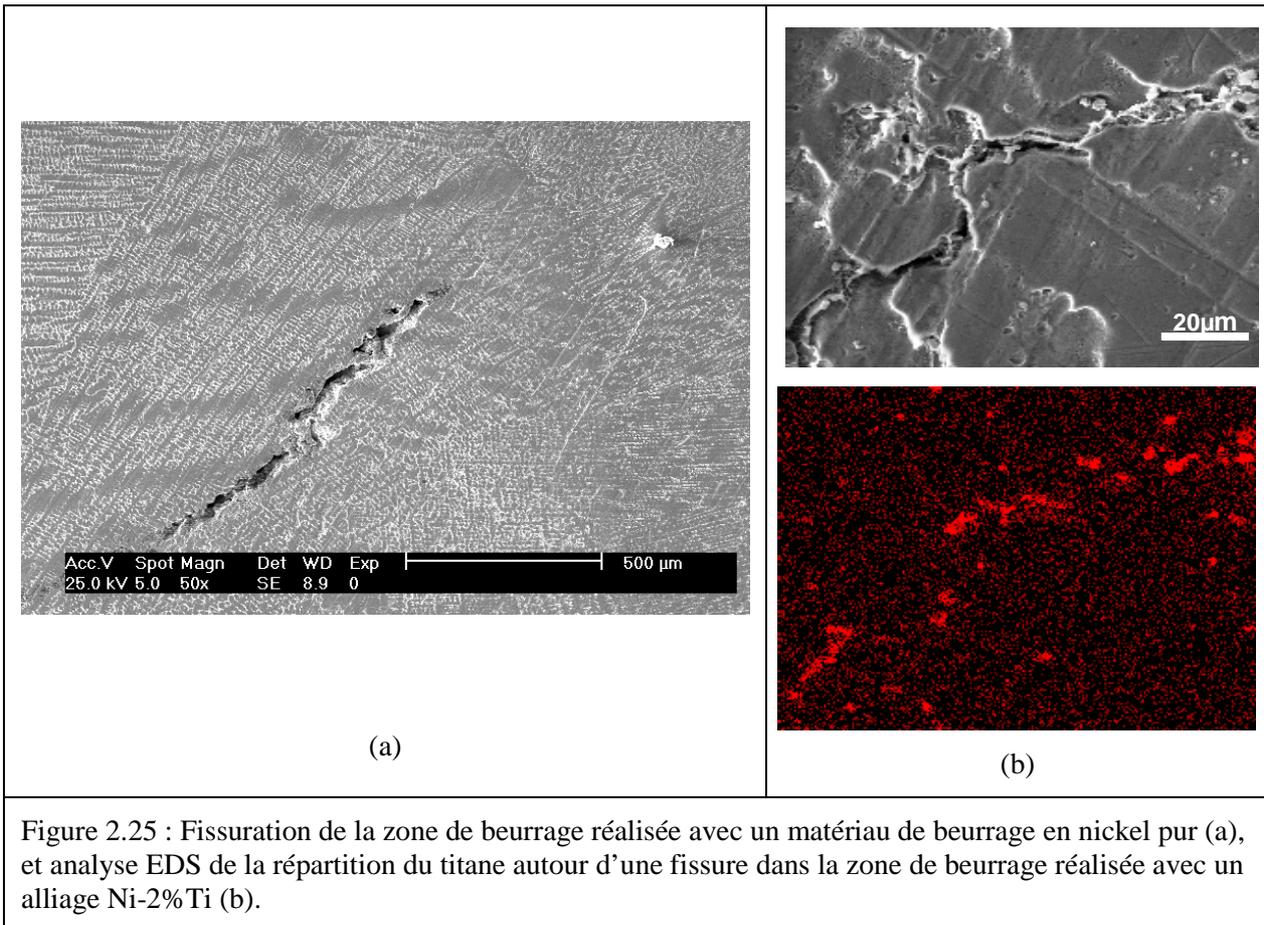


Figure 2.25 : Fissuration de la zone de beurrage réalisée avec un matériau de beurrage en nickel pur (a), et analyse EDS de la répartition du titane autour d'une fissure dans la zone de beurrage réalisée avec un alliage Ni-2%Ti (b).

## 2.5. Conclusion au chapitre 2

Dans ce second chapitre, nous nous sommes intéressés à montrer comment, à travers l'observation des microstructures, associée à différentes techniques d'analyses chimiques, structurales ou thermiques, et des considérations métallurgiques, on pouvait identifier les mécanismes élémentaires responsables de l'évolution des microstructures, sous l'effet de conditions environnementales particulières de température, d'atmosphère, ou de contraintes. Les mécanismes identifiés, assez divers (diffusion, réaction, dissolution, fusion, cristallisation ...) se rencontraient souvent simultanément, ou successivement, au cours d'une transformation.

Ce premier résultat est déjà en soit satisfaisant, car il permet de prédire de manière qualitative les évolutions des microstructures, sous l'effet de conditions de sollicitations particulières de la matière. Il constitue en second lieu une première étape vers la modélisation des cinétiques de transformations, qui permet une prédiction cette fois quantitative des phénomènes. Cette modélisation a été entreprise dans les cas des transformations résultant de l'oxydation de la céramique  $\text{Si}_3\text{N}_4\text{-TiN}$ , et de la liaison entre acier solide et aluminium liquide, majoritairement contrôlées par des mécanismes de diffusion.

Ces résultats sont enfin complémentaires de ceux obtenus dans le premier chapitre. En effet, dans celui-ci nous avons notamment étudié les relations entre les paramètres du procédé de soudage, et les sollicitations thermiques et mécaniques subies par la matière. Avec ce second chapitre, qui établit un lien plus précis entre les transformations microstructurales et les sollicitations du matériau, on peut donc prédire les transformations que subi la matière, en fonction des paramètres de soudage.

Il reste cependant à confirmer les critères de qualité d'une « bonne » microstructure, déjà suggérés dans les deux premiers chapitres. Les matériaux utilisés et les assemblages réalisés étant destinés à des applications structurales, les critères de qualité des microstructures doivent être validés sur la base de leurs caractéristiques mécaniques. Le troisième chapitre concerne donc la caractérisation mécanique des matériaux et des assemblages, en relation avec leurs microstructures.

## Chapitre 3 : Caractérisation mécanique et modélisation

Ce mémoire traite des matériaux à microstructure hétérogène, et plus spécifiquement des assemblages, élaborés à l'aide de divers procédés. Tous les matériaux et les assemblages étudiés étaient des matériaux de structure, c'est pourquoi la connaissance de leurs caractéristiques mécaniques est primordiale. Le troisième thème développé ici concerne donc la caractérisation mécanique des matériaux et des assemblages, en relation avec, d'une part les conditions d'élaboration, et d'autre part les microstructures obtenues.

La connaissance des caractéristiques mécaniques des matériaux et des assemblages est nécessaire pour permettre le dimensionnement des éléments de structure. Lorsque le comportement est atypique, ce qui peut être le cas avec les céramiques à comportement fragile, les aciers réfractaires moulés à structure hétérogène, ou encore lorsque les assemblages sont constitués de matériaux différents, la modélisation des comportements mécaniques, et le recours à la simulation numérique, voire le développement de méthodes numériques originales, peuvent être utiles. La simulation numérique peut d'autre part servir également à interpréter les comportements atypiques observés lors d'essais mécaniques sur des assemblages hétérogènes.

Nous présentons dans ce troisième chapitre les principaux résultats concernant la caractérisation mécanique des matériaux et des assemblages décrits dans les deux chapitres précédents. Ces résultats expérimentaux sont souvent couplés à des calculs numériques. Dans la première partie, le comportement mécanique fragile de la céramique  $\text{Si}_3\text{N}_4\text{-TiN}$  est caractérisé et modélisé à l'aide d'une approche probabiliste, et un outil numérique d'aide au dimensionnement des structures développé pour l'occasion est présenté. Dans la deuxième partie, nous présentons les résultats d'essais mécaniques qui ont permis de caractériser les interfaces, entre matériaux fragiles dans le cas des assemblages céramique-céramique, ou entre matériaux ductiles, dans le cas des assemblages acier-aluminium. Dans les deux cas, des simulations numériques ont été menées pour mieux comprendre le comportement local des assemblages hétérogènes. Enfin, une approche mécanique de la fissuration au cours du soudage des aciers réfractaires moulés décrits dans les premiers chapitres est présentée, ainsi qu'une caractérisation en fatigue des assemblages non fissurés obtenus. Afin de tenter de prédire les risques d'apparition de la fissuration en soudage en fonction des conditions d'élaboration de la soudure, une méthode numérique, basée sur un changement d'échelle macro-micro, est également exposée.

### 3.1. Caractérisation mécanique et modélisation du comportement à rupture d'outils céramiques

La céramique thermomécanique  $\text{Si}_3\text{N}_4\text{-TiN}$ , déjà présentée dans les chapitres 1 et 2, possède des caractéristiques à chaud très intéressantes, malgré sa résistance à l'oxydation plus limitée que le nitrure de silicium pur. Son aptitude à l'usinage par électroérosion, et ses possibilités d'assemblage, en avaient fait l'un des matériaux candidats au remplacement des alliages de molybdène pour la fabrication d'outils de matriçage isotherme, procédé utilisé pour la fabrication de pièces en superalliages pour les turbines aéronautiques. Le molybdène, de part sa faible tenue à l'oxydation, nécessitait en effet l'utilisation de presses sous vide très coûteuses, alors que la céramique pouvait travailler sous air.

Le comportement fragile de ce matériau posait toutefois des problèmes, en particulier pour le dimensionnement des outils de matriçage isotherme. En effet, le caractère probabiliste de la rupture des matériaux fragiles rend difficile l'emploi des méthodes de dimensionnement classiques, qui consistent à comparer une contrainte équivalente caractérisant le chargement à un paramètre de résistance du matériau, généralement sa limite d'élasticité.

La société Fortech, qui souhaitait développer l'utilisation de ces matériaux dans le domaine de l'outillage de mise en forme à chaud, désirait aussi disposer d'une méthode de dimensionnement pour ces outils, intégrant ce comportement particulier, et compatible avec les logiciels de dimensionnement traditionnels qu'elle utilise.

Pour parvenir à ce résultat, nous avons adopté, au cours de mes travaux de thèse, la démarche suivante. Un modèle de rupture adapté à ces matériaux fragiles a d'abord été choisi, et implanté dans un logiciel de calcul par éléments finis dédié à la simulation des opérations de mise en forme. Le

comportement à rupture de la céramique a ensuite été caractérisé, avec la prise en compte des phénomènes d'endommagement susceptibles d'apparaître au cours de la durée de vie d'un outil. Enfin, le modèle et la méthode ont été validés à partir d'un cas test de mise en forme, et une méthodologie de dimensionnement proposée. Ces résultats, obtenus en collaboration avec Fabrice Schmidt, Nicole Fréty, Thierry Cutard et Jean-Claude Boyer, sont décrits dans les publications A1 et A2, et ont fait l'objet de la communication C1.i.

### 3.1.1. Modélisation du comportement fragile de la céramique

La grande dispersion des résistances à rupture mesurées sur les matériaux fragiles est liée à la distribution des défauts microscopiques intrinsèques au matériau. La répartition de ces défauts étant la plupart du temps inconnue, on a recours à une approche probabiliste de la rupture, basée sur la théorie du maillon le plus faible, la probabilité de survie de la structure étant égale au produit des probabilités de survie de l'ensemble des maillons élémentaires qui la constituent. Chaque maillon est alors caractérisé par une « distribution de résistance », qui est liée à la répartition de défauts dans le matériau.

Une distinction doit être faite entre défauts de volume et de surface, qui conduisent généralement à des distributions de résistance à la rupture différentes. Dans le cas d'un matériau présentant une microstructure grossière, les défauts de volume sont généralement plus critiques que les défauts de surface. Ces derniers peuvent néanmoins devenir plus néfastes dans le cas, par exemple, d'un état de surface grossièrement usiné ou oxydé.

La nature des défauts critiques détermine le choix du type d'approche utilisée pour l'analyse de la rupture.

Deux modèles ont été retenus, en raison de leur simplicité de mise en œuvre dans un code éléments finis, et des temps de calcul réduits qu'ils impliquent, qui doivent permettre le dimensionnement d'outils de grandes dimensions et de formes complexes.

Le premier modèle est basé sur la distribution de Weibull [Weibull, 1951], généralisée aux cas de chargements multiaxiaux par le choix d'un critère en "contrainte principale maximale" (CPM), qui a déjà montré son efficacité pour modéliser la rupture de céramiques thermomécaniques [Berdin, 1993]. La probabilité de rupture d'une structure de volume  $V$  et de surface  $S$ , soumise à un champ de contrainte  $\Sigma$  s'écrit alors:

$$P_v(\Sigma, V) = 1 - \exp\left(-\frac{1}{V_e} \int_V \left(\frac{\sigma_1}{\sigma_0}\right)^m dV\right) \quad (3.1)$$

pour une approche volumique, et

$$P_s(\Sigma, S) = 1 - \exp\left(-\frac{1}{S_e} \int_S \left(\frac{\sigma_1}{\sigma_0}\right)^m dS\right) \quad (3.2)$$

pour une approche surfacique,

où  $\sigma_1$  est la contrainte principale maximale positive en tout point,  $V_e$  et  $S_e$  respectivement les volume et surface élémentaires représentatifs, et  $\sigma_0$  et  $m$  les paramètres du modèle, à identifier expérimentalement.

Le second modèle a été proposé par Freudenthal [Freudenthal, 1968], et est basé sur le principe d'indépendance des actions (PIA). Bien que ce critère soit non-conservatif [Batdorf, 1977], il a également été retenu pour sa simplicité:

$$P_v(\Sigma, V) = 1 - \exp\left(-\frac{1}{V_e} \int_V \left[ \left(\frac{\sigma_1}{\sigma_0}\right)^m + \left(\frac{\sigma_2}{\sigma_0}\right)^m + \left(\frac{\sigma_3}{\sigma_0}\right)^m \right] dV\right) \quad (3.3)$$

pour l'approche volumique, et

$$P_s(\Sigma, S) = 1 - \exp\left(-\frac{1}{S_e} \int_S \left[ \left(\frac{\sigma_1}{\sigma_0}\right)^m + \left(\frac{\sigma_2}{\sigma_0}\right)^m + \left(\frac{\sigma_3}{\sigma_0}\right)^m \right] dS\right) \quad (3.4)$$

pour l'approche surfacique,  
 où  $\sigma_1$ ,  $\sigma_2$  et  $\sigma_3$  sont les contraintes principales positives en tout point.

Ces modèles ont été implantés dans le code de calcul éléments finis Pollux, développé par l'équipe de Jean-Claude Boyer, de l'Insa Lyon (Figure 3.1). La probabilité de rupture de l'outil est calculée à chaque incrément, de manière à interrompre le calcul si une valeur limite est dépassée, et ainsi gagner du temps lors du dimensionnement des outils. L'implantation numérique a été validée grâce à la simulation d'un essai de compression de cylindre céramique avec frottement, par comparaison avec une solution analytique approchée (Figure 3.2).

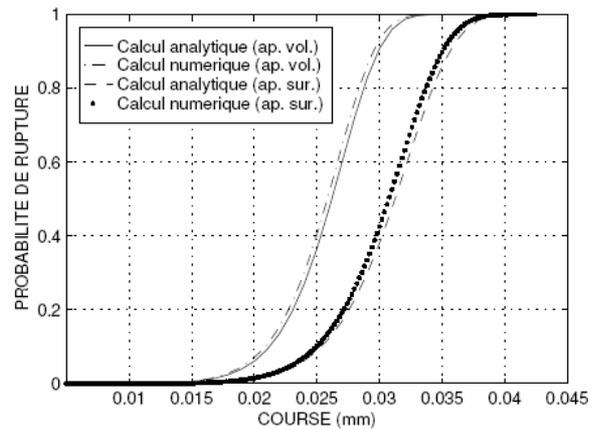
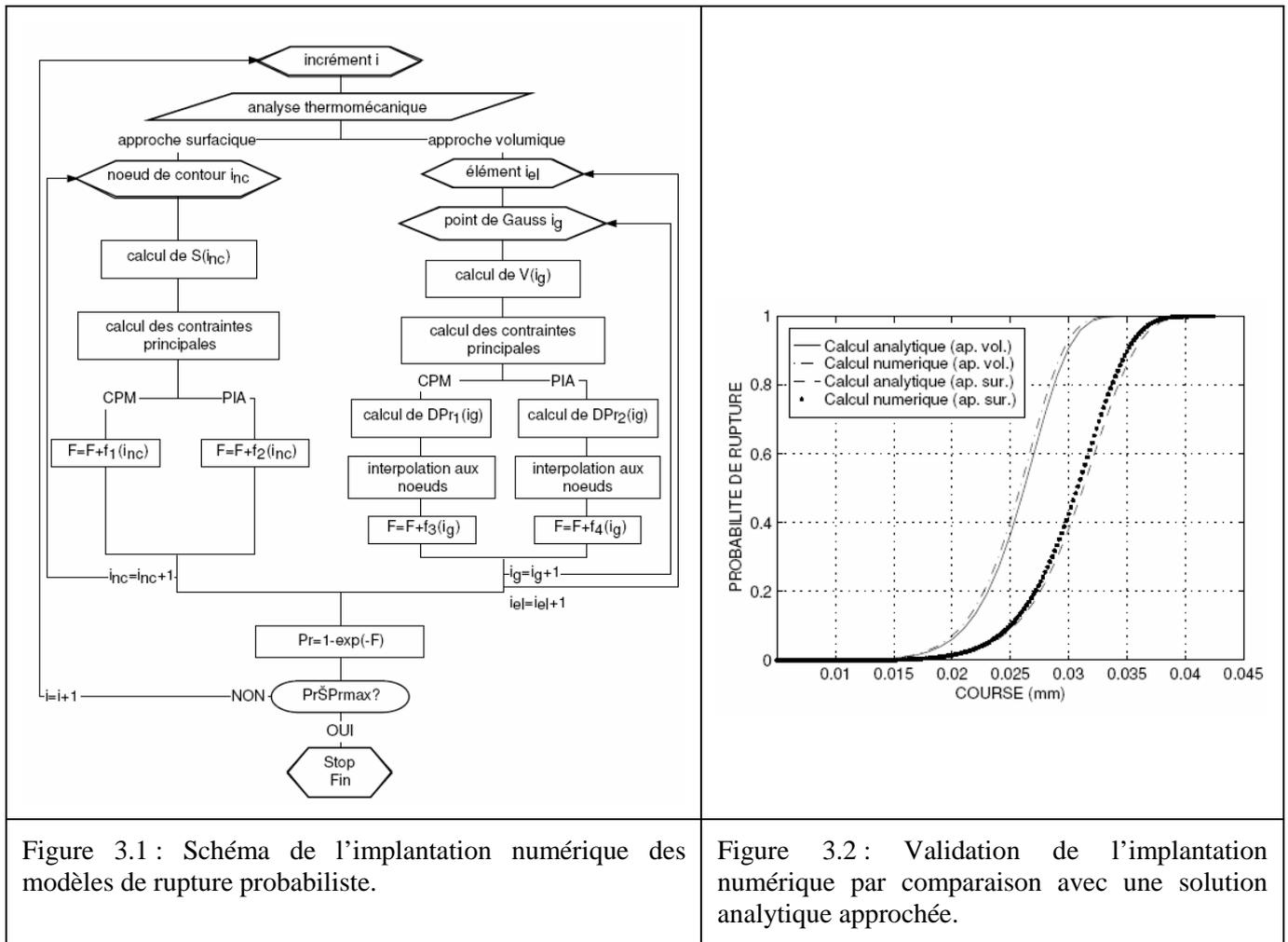


Figure 3.1 : Schéma de l'implantation numérique des modèles de rupture probabiliste.

Figure 3.2 : Validation de l'implantation numérique par comparaison avec une solution analytique approchée.

### 3.1.2. Identification des paramètres de la modélisation

La céramique étant destinée à travailler entre 1100 et 1200°C, la caractérisation de son comportement à rupture a été menée à 1150°C, grâce à des essais de flexion 4 points, réalisés sur un lot d'une dizaine d'éprouvettes au minimum, pour avoir une répartition statistique de la rupture. En conditions d'utilisation de matricage isotherme, la céramique peut subir divers phénomènes d'endommagement. La caractérisation du matériau a cependant montré que les cycles mécaniques subis lors des opérations de mise en forme successives n'avaient que très peu d'influence sur le comportement à rupture, alors que l'oxydation avait un effet significatif (Figure 3.3).

On a pu expliquer la modification de comportement à rupture entre le matériau brut et le matériau oxydé par un changement de nature des défauts critiques. Le matériau initial présente une surface rectifiée avec une faible rugosité, et les défauts initiateurs de la rupture sont des défauts volumiques. L'oxydation crée de nouveaux défauts surfaciques, qui entrent en concurrence après 50h d'oxydation avec les défauts volumiques. On observe en effet après 50h d'oxydation une double répartition de la

rupture, qui correspond pour les contraintes les plus élevées à une rupture produite par des défauts volumiques, et pour les contraintes les plus faibles à des défauts surfaciques. Après 100h d'oxydation, les défauts surfaciques sont devenus les plus nombreux, et sont toujours responsables de la rupture. Un modèle de rupture volumique est donc plus adapté pour le matériau initial, alors qu'un modèle surfacique convient mieux pour le matériau oxydé.

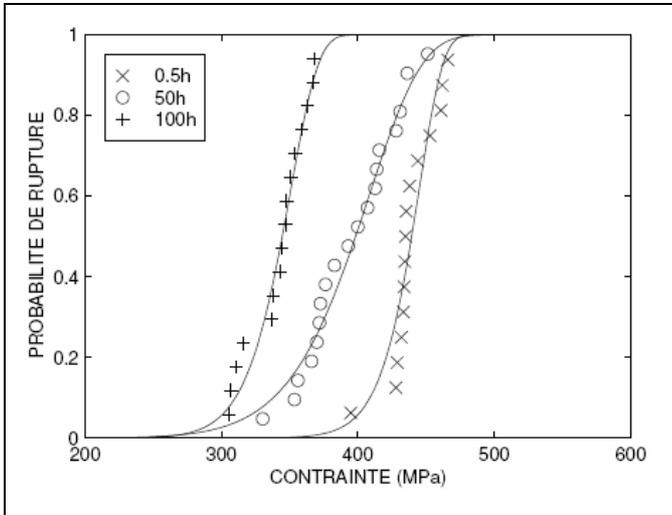


Figure 3.3 : Evolution du comportement à rupture de la céramique avec la durée d'oxydation, à 1150°C

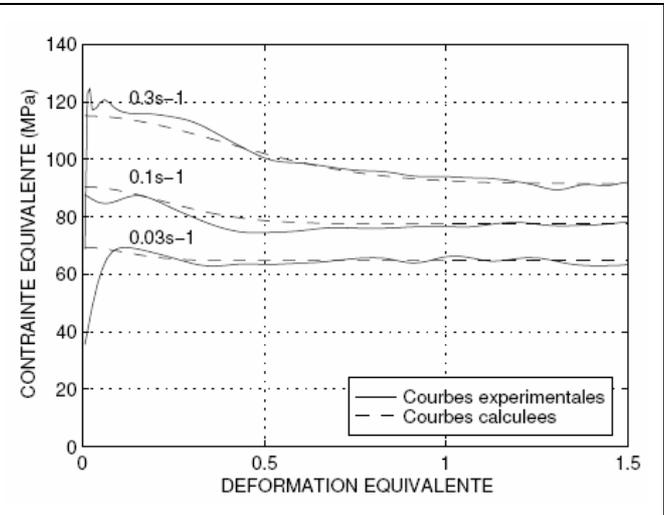


Figure 3.4: Courbe contrainte-déformation de l'Astroloy à 1150°C

Pour pouvoir simuler un essai de mise en forme, il faut aussi modéliser le comportement mécanique du matériau à mettre en forme. Le matériau choisi est un superalliage à base de nickel, le NK17CDAT ou Astroloy. Ce matériau, élaboré par métallurgie des poudres, présente un comportement superplastique au-dessus de 1085°C et pour des vitesses de déformation inférieures à  $10^{-2} \text{ s}^{-1}$  [Combre, 1988]. La loi de comportement s'exprime alors, dans ce domaine, en fonction de la déformation équivalente  $\bar{\epsilon}$  et de la vitesse de déformation équivalente  $\dot{\bar{\epsilon}}$ .

Nous avons choisi d'utiliser l'essai de torsion pour identifier la loi de comportement du matériau à 1150°C. Les essais ont été réalisés à faible vitesse de déformation (vitesse de rotation) de manière à se rapprocher du domaine de superplasticité du matériau.

Les courbes expérimentales, représentées sur la figure 3.4 (moyenne de deux essais pour chaque condition) présentent une allure bien particulière. On observe en effet un pic de contrainte en début d'essai, suivi d'un adoucissement, attribué au phénomène de recristallisation dynamique, qui n'est compensé par l'écroutissage qu'après une déformation minimale, qui correspond au début du régime stationnaire. Nous avons retenu la loi de comportement proposée par Soucail [Soucail, 1993]:

$$\bar{\sigma} = (1 - \alpha)\bar{\sigma}_p + \alpha\bar{\sigma}_s \quad (3.5)$$

où 
$$\bar{\sigma}_p = A_p \dot{\bar{\epsilon}}^{mp} \quad (3.6)$$
 est le pic de contrainte en début d'essai,

$$\bar{\sigma}_s = A_s \dot{\bar{\epsilon}}^{ms} \quad (3.7)$$

correspond à la contrainte dans la partie stationnaire, et  $\alpha$  représente la fraction "recristallisée", déterminée par une équation du type Avrami:

$$\alpha = 1 - \exp(-kt^n) \quad (3.8)$$

t est le temps,  
k, n,  $A_p$ ,  $mp$ ,  $A_s$  et  $ms$  sont des constantes.

### 3.1.3. Validation expérimentale de la modélisation

Pour tester la validité de notre modélisation, nous avons choisi un essai de matriçage isotherme de géométrie simplifiée (Figure 3.5). Les dimensions de l'éprouvette en céramique et du lopin métallique ont été déterminées pour que l'éprouvette se rompe pendant l'opération.

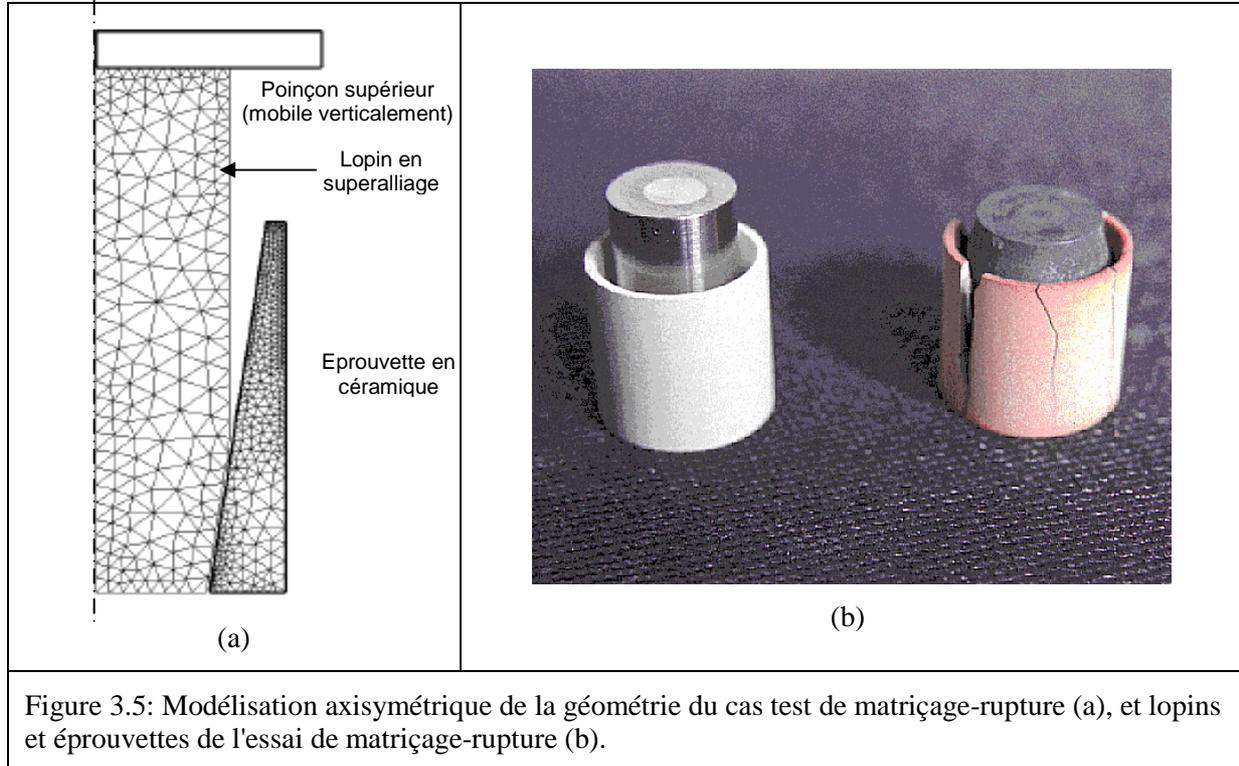


Figure 3.5: Modélisation axisymétrique de la géométrie du cas test de matriçage-rupture (a), et lopins et éprouvettes de l'essai de matriçage-rupture (b).

Les éprouvettes en céramique ont été pré oxydées 50 heures à 1150°C. Avant l'essai, l'ensemble éprouvette-lopins est chauffé à l'aide d'un four à induction jusqu'à 1150°C. Les essais sont réalisés à vitesse de déplacement vertical du poinçon supérieur constante. Dix essais ont été réalisés, ce qui a permis d'obtenir une distribution statistique des ruptures des éprouvettes, en fonction de la course du poinçon supérieur.

La comparaison des efforts de matriçage mesurés et calculés (Figure 3.6a) montre que la simulation numérique surestime la force de matriçage en début d'essai, puis s'aligne sur les résultats expérimentaux, après une course de 2,5 à 3 mm. Ce résultat semble lié à la modélisation adoptée pour le comportement du lopin en superalliage, qui a été identifiée à partir d'essais réalisés à vitesse de déformation plus élevée que les vitesses de déformation en début d'essai. En revanche, comme la déformation se localise rapidement dans la partie supérieure du lopin lorsqu'il commence à remplir la « matrice » céramique, la loi de comportement est mieux adaptée pour la fin de l'essai. Cette comparaison permet donc de valider la modélisation choisie pour le comportement du lopin.

La comparaison du champ de contrainte prédit par le calcul et de l'aspect des éprouvettes après essai fournit un second point d'accord entre la simulation et l'expérience. En effet, le calcul montre que la composante circonférentielle  $\sigma_{\theta\theta}$  du tenseur des contraintes est la plus élevée dans la céramique. L'observation des éprouvettes rompues laisse apparaître des fissures longitudinales, qui sont effectivement le résultat de tels champs de contraintes.

Le dernier élément de comparaison, le plus important, concerne la prédiction du risque de rupture des éprouvettes. Pour déterminer les probabilités de rupture associées aux essais, les courses à ruptures mesurées après chaque essai sont classées par ordre croissant, et une probabilité de rupture, obtenue par calcul statistique, leur est associée. La figure 3.6b représente l'évolution des probabilités de rupture en fonction de la course, calculées par simulation numérique et à partir des résultats expérimentaux.

On peut constater que la simulation fournit une prédiction très satisfaisante. Les deux critères employés, CPM et PIA, conduisent à des résultats très proches, et il paraît difficile de déduire le critère le mieux adapté à partir de ces seules données.

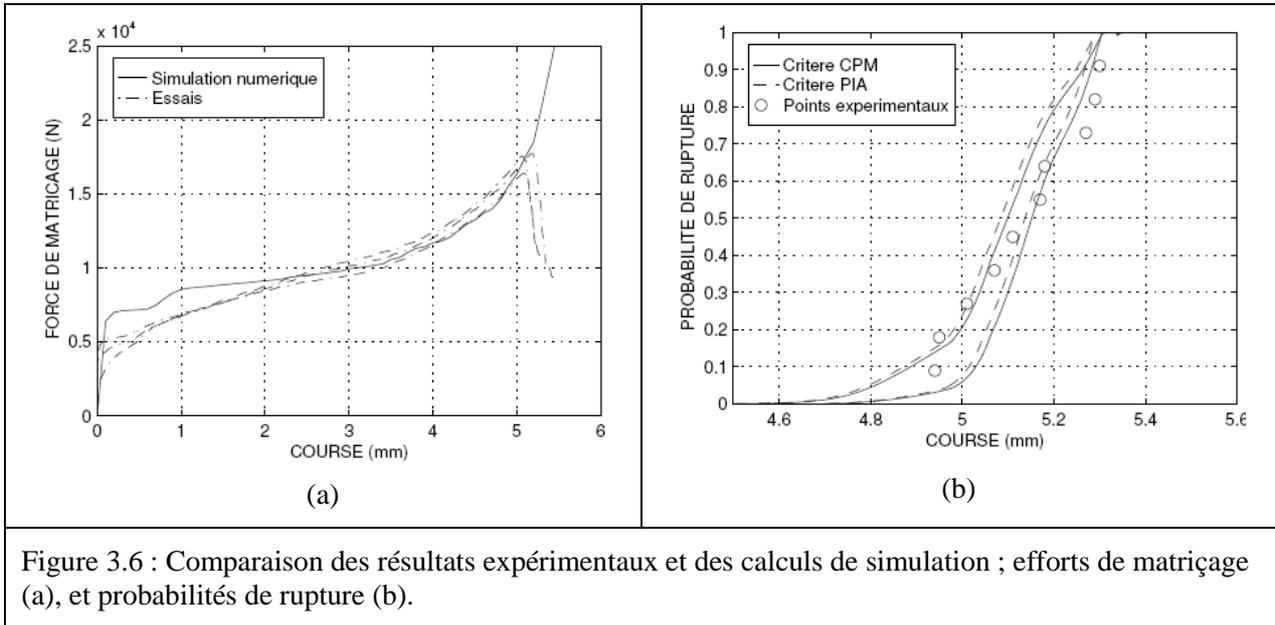


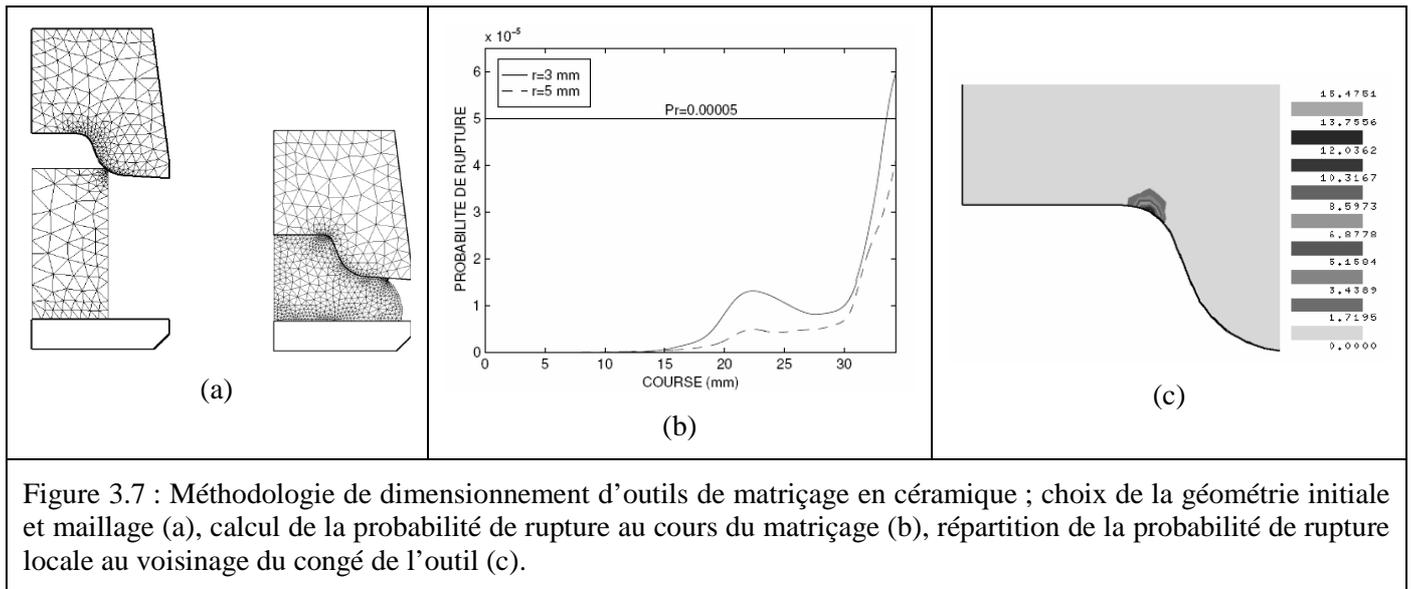
Figure 3.6 : Comparaison des résultats expérimentaux et des calculs de simulation ; efforts de matricage (a), et probabilités de rupture (b).

### 3.1.4. Méthode de dimensionnement des outils

Le programme développé permet de calculer la fiabilité d'outils en céramique pendant une opération de matricage. Une méthodologie de dimensionnement en trois étapes a été proposée. Dans un premier temps, l'utilisateur définit une géométrie d'outils initiale, et une fiabilité minimum désirée, en fonction du type et de la forme de la pièce à mettre en forme. Au cours de la seconde étape, le logiciel calcule la probabilité de rupture des outils au cours de l'opération de matricage, à partir de la géométrie initiale. Si la fiabilité correspondante est compatible avec la fiabilité désirée, alors la géométrie convient. Si, au contraire, la fiabilité calculée est inférieure à celle demandée, la troisième étape consistera à modifier la géométrie de l'outil. Pour cela, le risque de rupture local peut être utilisé pour identifier les régions critiques de l'outil, qui devront subir des modifications.

Pour la géométrie d'outil simple décrite en figure 3.7a, si l'on choisit une fiabilité de 0,99995 (la probabilité de rupture des outils ne doit jamais dépasser  $5 \cdot 10^{-5}$ ), on peut constater que la probabilité dépasse, en fin d'opération, la limite fixée de  $5 \cdot 10^{-5}$ , et la géométrie de l'outil doit donc être modifiée. L'observation de la répartition de probabilité de rupture locale de l'outil supérieur montre que celle-ci est maximale au voisinage du congé de la gravure de l'outil (Figure 3.7c).

Etant donnée la géométrie simple de l'outil, ce résultat était attendu, puisque c'est dans cette zone que les concentrations de contrainte sont les plus élevées. Pour diminuer la probabilité de rupture globale de l'outil supérieur, il faut donc diminuer la probabilité de rupture locale dans les zones où elle est la plus élevée, c'est à dire diminuer les concentrations de contrainte au niveau du congé. La géométrie de l'outil a donc été modifiée, en augmentant le rayon du congé en fond de gravure. La figure 3.7b montre que l'on peut ainsi atteindre la fiabilité souhaitée en choisissant un rayon de 5 mm au lieu de 3 mm.



### 3.2. Caractérisation mécanique des interfaces

La caractérisation mécanique des interfaces obtenues lors de l'assemblage de deux matériaux différents est souvent délicate, du fait de l'hétérogénéité de l'assemblage, qui produit l'apparition de champs de contraintes fortement non uniformes. Ainsi, les méthodes de dépouillement classiques, employées pour les essais de caractérisation mécanique de matériaux homogènes, ne sont pas toujours adaptées. Afin de faciliter le dépouillement des essais mécaniques réalisés sur assemblages multi matériaux, la caractérisation expérimentale a été couplée à la simulation numérique.

Nous présentons ici d'abord les résultats de caractérisations mécaniques des assemblages céramique-céramique obtenus par soudage-diffusion avec insert métallique, puis ceux réalisés sur les assemblages acier-aluminium obtenus par soudobrasage et soudage laser et TIG.

#### 3.2.1. Caractérisation mécanique des assemblages céramiques

Les assemblages céramique-céramique avec insert métallique à base d'alliage Fe-Cr-Al décrits dans les chapitres précédents présentaient, d'un point de vue microstructural, des caractéristiques intéressantes. Ces assemblages, destinés à la réalisation d'outils de matriçage à chaud, devaient supporter des contraintes mécaniques à température ambiante durant les phases de manipulation des outils, mais surtout à haute température, pendant les opérations de mise en forme. La connaissance des caractéristiques mécaniques des assemblages était donc nécessaire pour s'assurer que celles-ci étaient compatibles avec les niveaux de sollicitation subis en matriçage isotherme, et confirmer ainsi le choix des matériaux.

Les assemblages par soudage-diffusion ayant des caractéristiques mécaniques fortement anisotropes, à cause de l'existence d'un plan de liaison, deux types d'essais mécaniques ont été réalisés : l'essai de flexion, au cours duquel la liaison subit essentiellement un effort normal à son plan, et l'essai de cisaillement dans le plan de liaison. Un montage spécifique a été utilisé pour ce dernier essai, permettant de minimiser le moment de flexion de manière à solliciter l'interface de liaison en cisaillement pur.

Le dépouillement des essais de flexion est réalisé, dans un premier temps, en considérant la contrainte de flexion maximale calculée pour une éprouvette homogène et un comportement élastique. A température ambiante, la rupture de l'éprouvette se produit sans déformation plastique apparente de l'insert métallique. La grande dispersion de contraintes à rupture obtenue semble indiquer la présence de défauts au niveau de la liaison. Les faciès de rupture observés présentent souvent trois zones distinctes.

- une zone non liée, qui n'est pas toujours visible. Ce défaut initialement présent dans l'assemblage induit des concentrations de contrainte qui vont entraîner la rupture prématurée de l'assemblage.

- une zone lisse, qui suit l'interface entre la céramique et l'insert. Cette zone, qui correspond à une rupture de type adhésive, traduit une faible résistance de l'interface, ou la présence de micro-défauts de type fissures ou porosités.

- une zone plus rugueuse, présentant même parfois un relief important, où la rupture a lieu dans la céramique (rupture cohésive). Ces zones correspondent à des liaisons de forte résistance.

Selon la proportion relative de ces différentes zones sur la surface de rupture, des niveaux de résistance de 120 à 750 MPa peuvent être obtenus.

Les éprouvettes de cisaillement présentent une surface de liaison environ 30 fois supérieure à celle des éprouvettes de flexion, la probabilité de présence de défauts sévères sur une éprouvette est donc plus grande. Les contraintes de rupture obtenues à température ambiante, sur un ensemble de 16 essais, sont alors comprises entre 40 et 180 MPa, les plus faibles contraintes étant associées à des éprouvettes présentant des zones non liées sur les faciès de rupture.

Les assemblages étant destinés à subir des cycles de chauffe et refroidissement lors des opérations de matricage isotherme, l'effet de cyclages thermiques sur leur tenue mécanique a également été évalué. Le cyclage thermique à vitesse de chauffe et de refroidissement de 200°C/min des éprouvettes de cisaillement n'affecte par leur résistance à température ambiante. En revanche, un refroidissement à 600°C/min produit une fissuration partielle de l'interface, entraînant une diminution de la contrainte de rupture en cisaillement, qui est alors de 30 MPa environ. On a pu constater que la fissuration lors d'un refroidissement rapide se propageait dans la couche de AlN formée, ou à l'interface avec la céramique, et était probablement liée à la différence de coefficients de dilatation des différents matériaux, qui induit de fortes contraintes de cisaillement. On a pu aussi observer des zones d'épinglage des fissures se formant au niveau des particules de TiN (Figure 3.8), ce qui semble montrer que, malgré l'absence de couche de réaction visible formée à l'interface TiN/Fe-Cr-Al, une liaison s'est formée.

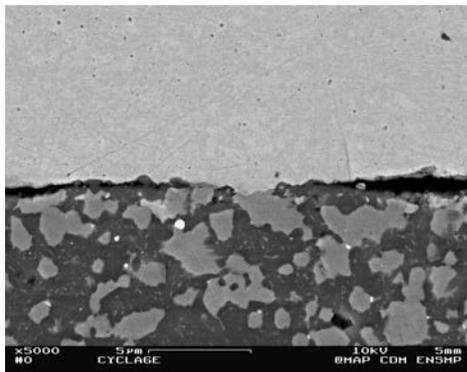


Figure 3.8 : Epinglage par la liaison TiN/Fe-Cr-Al d'une fissure créée à l'interface de liaison lors du refroidissement rapide d'une éprouvette.

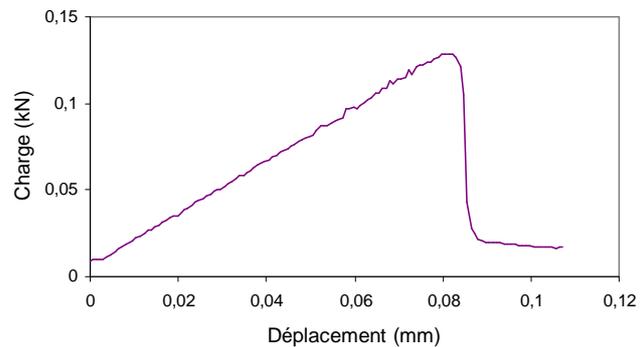


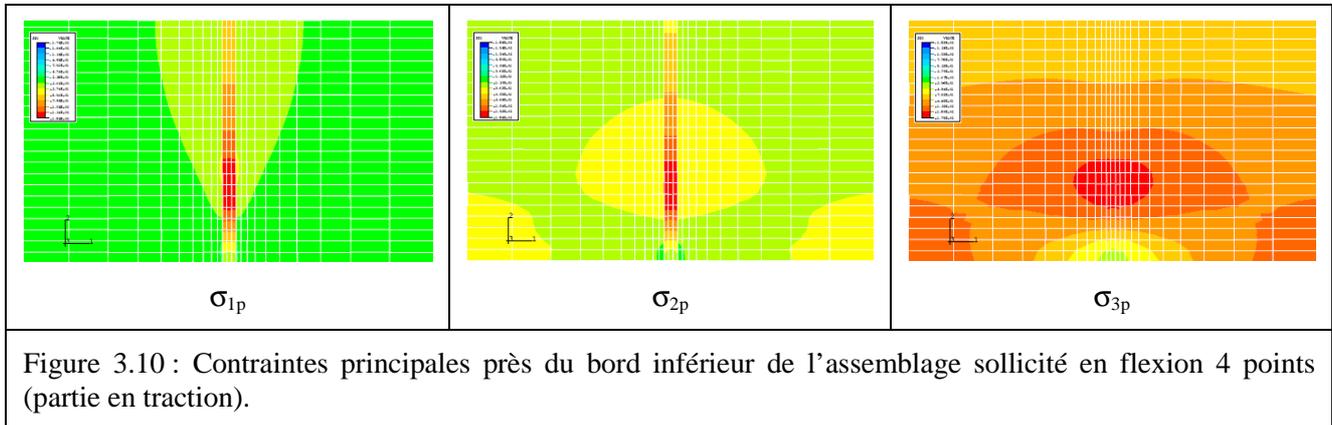
Figure 3.9 : Courbe force-déplacement lors d'un essai de flexion 4 points à 1150°C d'un assemblage.

A haute température, les courbes force-déplacement lors des essais de flexion montrent un comportement atypique (Figure 3.9). Les éprouvettes se déforment dans un premier temps de manière quasi-élastique, jusqu'à des niveaux de contrainte maximum supérieurs à la limite d'écoulement de l'insert métallique. Les interfaces céramique/insert fissurent alors de manière discontinue, à la fois des deux cotés de l'insert, entraînant une chute de l'effort de flexion, puis la déformation de l'éprouvette se poursuit sous charge sensiblement constante, par déformation plastique de l'insert partiellement désolidarisé de la céramique. L'effort en début de fissuration est d'autant plus élevé que l'épaisseur de l'insert est faible.

Afin de mieux comprendre la répartition des champs de contrainte dans l'assemblage hétérogène, la simulation numérique des essais de flexion et de cisaillement a été réalisée. Le but de ces simulations est aussi d'évaluer l'influence de la présence d'une liaison sur le comportement à chaud de structures soumises à différents types de sollicitations. Lors des simulations, la céramique est supposée élastique,

alors que l'insert métallique possède un comportement élasto-plastique sans écrouissage, l'interface entre insert et céramique étant modélisée par un contact parfait.

La simulation de l'essai de flexion 4 points a montré que l'insert présent au sein de l'éprouvette, malgré sa faible limite d'écoulement à chaud, ne subissait quasiment aucune déformation plastique jusqu'à l'effort de rupture, hormis au niveau des bords libres. Ce résultat est lié à l'apparition d'un champ de contraintes triaxial dans l'insert métallique, qui empêche sa déformation plastique et favorise sa fissuration. Une zone de concentration de contrainte est observée dans l'insert, à une faible distance du bord libre de la face en traction de l'éprouvette (Figure 3.10).



Pour confirmer les effets observés en flexion, la simulation numérique d'un essai de traction sur éprouvette assemblée a été réalisée, et a aussi montré que la déformation plastique de l'insert n'apparaissait que pour des niveaux de chargement très élevés, correspondant à des contraintes de traction très supérieures à la limite d'écoulement de l'insert. Ce comportement s'explique encore par des champs de contraintes fortement triaxiaux, notamment dans les zones de concentrations de contraintes générées à proximité des bords libres, comme observé en flexion.

La simulation numérique a permis également de montrer que la plastification de l'insert apparaissait sous des chargements d'autant plus faibles que son épaisseur était grande. La confrontation de ces résultats avec les observations expérimentales nous a conduit à suggérer que la rupture de l'interface céramique-insert à chaud intervenait après un début de plastification de l'insert, qui déclenche la fissuration.

La résistance au cisaillement à chaud des assemblages, étudiée par simulation numérique, est en revanche très limitée, l'insert métallique plastifiant dès de très faibles niveaux de chargement.

L'absence de déformation plastique significative de l'insert lorsqu'il est soumis à des contraintes normales au plan de liaison, jusqu'à des niveaux de contrainte élevés comparé à la limite d'écoulement du matériau, confère donc à l'assemblage un comportement quasi-rigide à haute température, compatible avec les utilisations prévues, les matrices devant conserver une grande résistance à la déformation à chaud.

On a pu montrer par ailleurs grâce à la simulation numérique que la rigidité à chaud des assemblages pouvait être améliorée par la limitation de la déformation plastique de l'insert, qui peut être obtenue, soit en réduisant son épaisseur, soit en utilisant des inserts en alliage Fe-Cr-Al plus réfractaires, comme les alliages ODS, durcis par une fine dispersion d'oxydes.

### 3.2.2. Caractérisation mécanique des assemblages acier-aluminium

L'élaboration des assemblages acier-aluminium a été présentée au chapitre 1, et leurs caractéristiques microstructurales et les mécanismes réactionnels ont été décrits au chapitre 2. L'objectif de ces assemblages étant la réalisation de structures « allégées », le critère de résistance mécanique est alors primordial. Les paragraphes qui suivent présentent les principaux résultats d'une étude de caractérisation mécanique des assemblages obtenus, réalisée dans le cadre de la thèse de Guillaume Sierra, avec la collaboration de Cyril Bordreuil. Les assemblages ont été caractérisés principalement à l'aide d'un essai de traction transverse au cordon, et les résultats analysés et discutés en relation avec

les microstructures générées. La simulation numérique a également été utilisée, pour faciliter l'interprétation des essais mécaniques, réalisés sur des éprouvettes non symétriques et hétérogènes, donc soumises à des états de contraintes non uniformes. Ces résultats ont été présentés dans les communications C11.i, C15.n, C17.n et C18.n.

### 3.2.2.1. Caractéristiques mécaniques des assemblages avec interface plane

Les assemblages réalisés en laser et en TIG par contact entre acier solide et aluminium liquide (technique du soudobrasage) produisent toujours des interfaces de liaison planes, la couche de réaction, constituée de composés intermétalliques, étant très mince. Les essais de traction transverse réalisés ont montré une compétition entre deux mécanismes de rupture principaux. Celle-ci peut avoir lieu par décohésion de l'interface, et est alors principalement de nature fragile, ou par rupture ductile de l'aluminium, à l'interface avec la zone fondue ou dans la zone affectée thermiquement (ZAT). L'état de contrainte étant non uniforme, la résistance des assemblages a été exprimée par unité de longueur de soudure (N/mm).

La rupture est observée dans la zone affectée thermiquement ou dans la zone fondue de l'aluminium lorsque la largeur moyenne de liaison est importante. La résistance de l'assemblage dépend alors principalement de la nature des défauts formés dans la zone fondue de l'aluminium, à l'interface avec la zone affectée thermiquement, ou des caractéristiques de cette dernière. Les défauts formés sont liés au type d'assemblage réalisé. On a ainsi pu identifier trois niveaux de résistance des assemblages, lorsque la rupture a lieu dans l'aluminium, c'est à dire pour des largeurs de liaison assez élevées (Figure 3.11).

Lors du soudage laser sur acier électrozingué sans flux, la présence d'une couche de Zn entraîne la formation de larges porosités dans la zone fondue en pied de cordon dues à la vaporisation du zinc, qui conduisent à des niveaux de résistance assez faibles, de 120 N/mm. En revanche, lorsqu'un flux est utilisé, la température de la surface de l'acier est plus faible, du fait de l'effet de barrière thermique produit par le flux déjà évoqué précédemment, et aucun défaut n'est observé dans la zone fondue, ce qui conduit à des niveaux de résistance moyens de 230 N/mm. La rupture se produit dans ce cas dans la ZAT de l'aluminium, et les résistances à rupture mesurées présentent une certaine dispersion. Celle-ci est attribuée d'une part à des variations de la géométrie en bord d'interface de liaison, zone dans laquelle les concentrations de contraintes générées vont amorcer la rupture de l'aluminium, du fait de légères variations de jeux inter tôles d'une éprouvette à l'autre, et d'autre part à l'évolution des propriétés mécaniques de la ZAT de l'aluminium, dans laquelle les précipités durcissant ont été dissous, et qui évolue au cours des heures et des jours qui ont suivi le soudage, par un effet de maturation.

Lors du soudage laser sur acier nu avec flux, le flux n'est pas entièrement évacué de la zone interfaciale après sa fusion, et de fines porosités dues à sa vaporisation sont observées en pied de cordon, plus fines toutefois que celles produites par la vaporisation du zinc, ce qui conduit à des niveaux de résistance intermédiaires, de 170 N/mm environ.

La rupture est observée dans la couche de réaction ou à l'interface avec les matériaux de base, lorsque la largeur moyenne de liaison est limitée. La résistance augmente alors de manière sensiblement linéaire lorsque la largeur de liaison augmente, alors que la couche de réaction, devenant plus épaisse, contient pourtant généralement plus de fissures. La « contrainte à rupture moyenne », calculée en divisant la charge à rupture par la surface de liaison, diminue toutefois lorsque la largeur de couche de réaction augmente, ce qui pourrait s'expliquer par une augmentation de sa fissuration avec l'épaisseur de couche de réaction, mais cette grandeur n'est pas très significative étant donnée la forte non uniformité de l'état de contrainte dans le plan de l'interface.

La résistance des assemblages est toutefois supérieure, à largeur équivalente, dans le cas des essais laser que dans le cas des essais TIG. Or, on a observé des interfaces de nature sensiblement identique, tant pour la composition que pour la morphologie, avec les deux procédés. Cette différence est attribuée à un effet de structure plutôt qu'à l'influence du procédé, la configuration « par transparence » en TIG (cf. Figure 1.8) étant plus propice aux concentrations de contraintes que la configuration « à clin » du laser (cf. Figure 1.6).

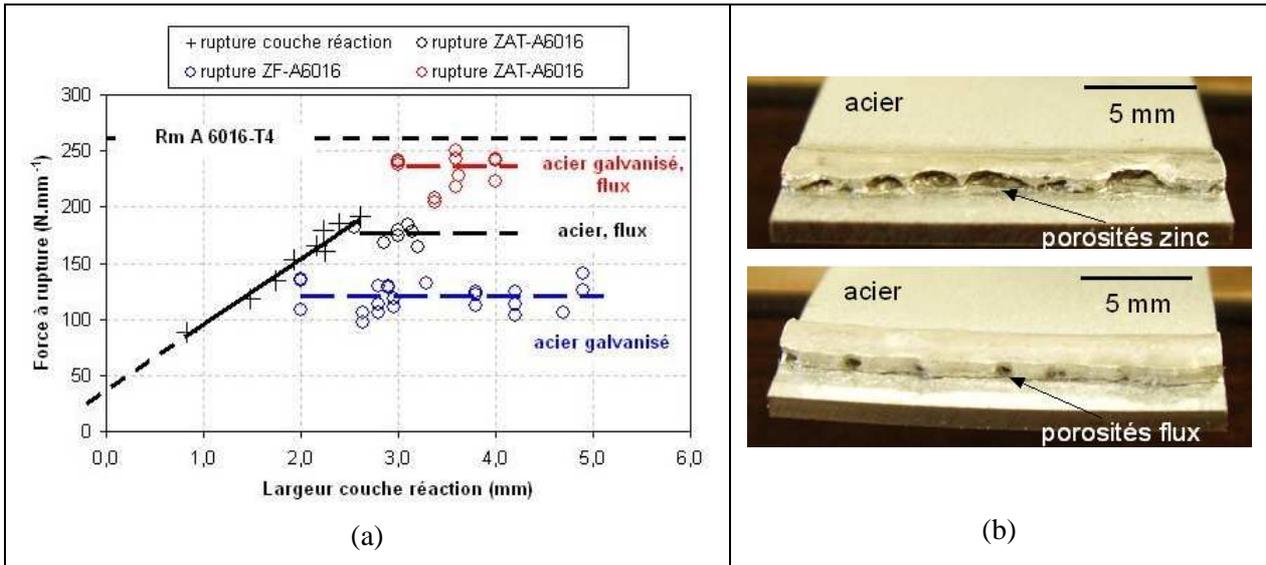


Figure 3.11 : Résistances des assemblages à clin (laser) en fonction de la largeur de la couche de réaction (a), et porosités liées à la vaporisation du zinc sur acier électrozingué sans flux, et à la vaporisation du flux sur acier nu, dans les assemblages réalisés en laser (b).

On a observé l'effet bénéfique sur la tenue mécanique des assemblages de deux éléments.

La présence de zinc, sous forme de revêtement (acier électrozingué), ou de dépôt de poudre de zinc à la surface de l'acier, utilisé sur quelques assemblages TIG, semble améliorer à la fois la résistance mécanique, pour une largeur de couche de réaction constante, et la largeur de couche de réaction, à énergie de soudage équivalente. On a attribué ce phénomène au meilleur contact thermique qui peut s'établir entre l'acier et l'aluminium grâce à la formation d'une couche de Zn liquide dès 419°C, qui en configuration « en transparence » (TIG) favorise la fusion de l'aluminium, et l'établissement d'une liaison régulière et de plus grande largeur.

Le silicium également, lorsqu'il est présent dans le matériau d'apport en configuration à clin (soudobrasage laser), améliore la résistance, à largeur de couche de réaction constante. Ce phénomène est attribué à la dissolution des intermétalliques dans l'aluminium liquide, favorisée par la présence du silicium, et donc à la plus faible épaisseur de couche de réaction alors formée, qui est moins fissurée.

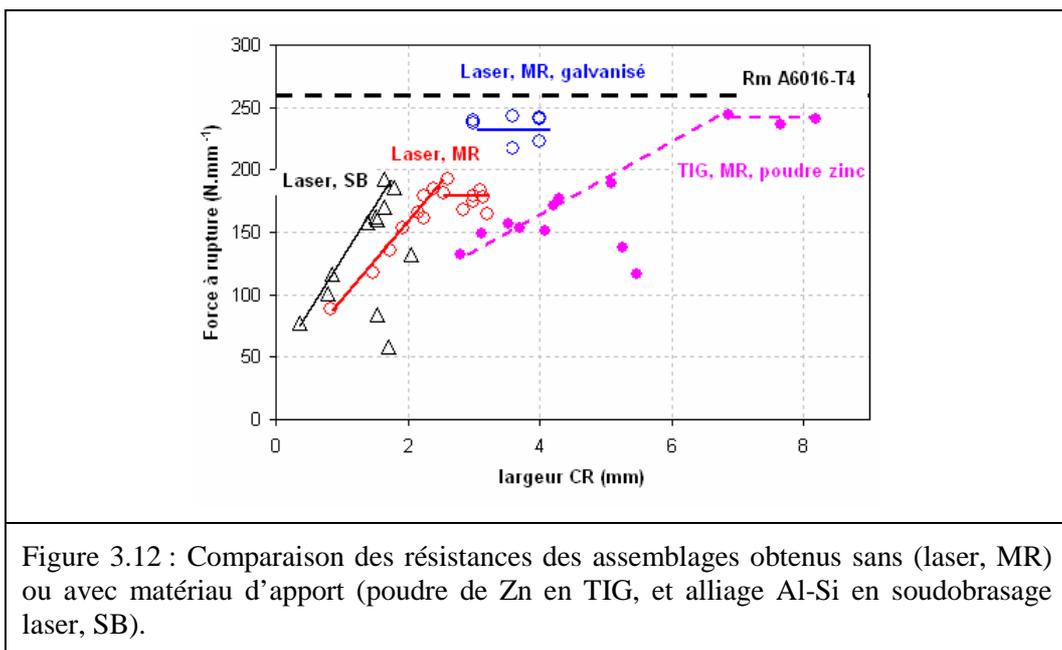


Figure 3.12 : Comparaison des résistances des assemblages obtenus sans (laser, MR) ou avec matériau d'apport (poudre de Zn en TIG, et alliage Al-Si en soudobrasage laser, SB).

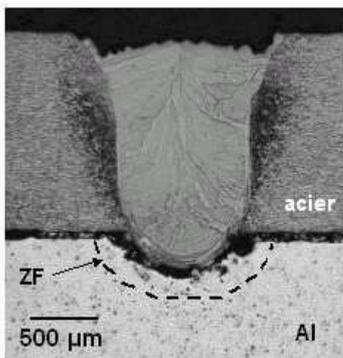
### 3.2.2.2. Caractéristiques mécaniques des assemblages avec interface non plane (laser key-hole)

Dans le cas d'une interface acier-aluminium non plane, comme c'est le cas lors du soudage laser en « key-hole », on observe aussi une compétition entre deux modes de rupture, qui a lieu soit à l'interface cordon-aluminium, soit à l'interface cordon-acier (Figure 3.13).

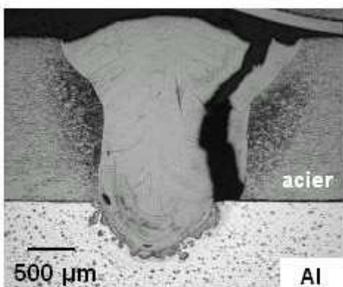
Le paramètre qui semble contrôler à la fois le mode de rupture et le niveau de résistance est la pénétration du cordon dans l'aluminium (Figure 3.14). Lorsque la pénétration est inférieure à 600 microns, la rupture a toujours lieu à l'interface avec l'aluminium (décohésion). En revanche, pour les pénétrations supérieures, la rupture se produit à l'interface avec l'acier.

On a pu expliquer la diminution de la résistance lorsque la pénétration augmentait par la formation de phases intermétalliques fragiles, d'abord en racine de cordon, à l'interface cordon-aluminium, dans la zone où la teneur en Al est la plus élevée, puis pour de fortes pénétrations à l'interface cordon-acier, par remontée d'aluminium dans le bain sous l'effet des mouvements de convection, qui forme au refroidissement les intermétalliques FeAl caractérisés au chapitre 2 (§ 2.3.3).

La forte dispersion de résistance observée est liée à l'irrégularité de la pénétration, qui dépend du contact thermique entre les tôles au moment du passage du laser. Nous avons vu que la régularité de la pénétration pouvait être améliorée par l'optimisation du système de bridage. Ce dernier a aussi un effet sur la dispersion de résistance mécanique, et le système de bridage optimisé permet d'obtenir les meilleures résistances, avec une pénétration comprise entre 200 et 300 microns.



(a)



(b)

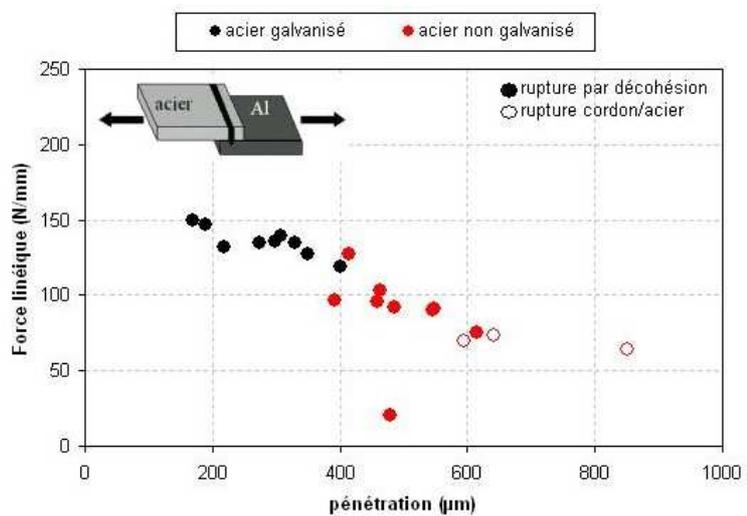


Figure 3.13 : Localisation de la rupture des assemblages, à l'interface cordon-aluminium (a), ou à l'interface cordon-acier (b).

Figure 3.14 : Résistance à la rupture des assemblages en fonction de la pénétration.

### 3.2.2.3. Simulation numérique de l'essai de traction

Afin de tenter de mieux comprendre les différences observées entre les résultats obtenus sur les assemblages TIG « par transparence » et les assemblages laser « à clin », et de corréler les chargements lors de l'essai de traction transverse avec les champs de contrainte locaux, la simulation numérique de l'essai de traction a été menée. Le problème est en effet complexe, du fait de la non symétrie de l'éprouvette, qui induit lors de l'essai un moment flexion qui favorise le gauchissement de l'éprouvette, et de l'hétérogénéité de l'assemblage, qui induit des incompatibilités de déformation se traduisant par l'apparition de concentrations de contraintes.

Une simulation bidimensionnelle a été choisie, en déformations planes, de manière à pouvoir raffiner le maillage au voisinage des pointes d'interface dans les zones de concentration de contraintes, sans induire des temps de calcul excessifs. L'éprouvette a été délimitée en plusieurs zones, zone fondue, zone affectée thermiquement, et matériau de base, supposées homogènes pour chaque tôle (Figure 3.15). Le comportement des matériaux de base et des zones fondues a été déterminé à l'aide d'un essai de traction sur matériau homogène (brut ou refondu par procédé TIG). Le comportement de la ZAT a été évalué grâce à des essais de nano-indentation, en supposant que le rapport des limites d'élasticité était identique au rapport des duretés, et en choisissant un écrouissage identique pour les trois zones.

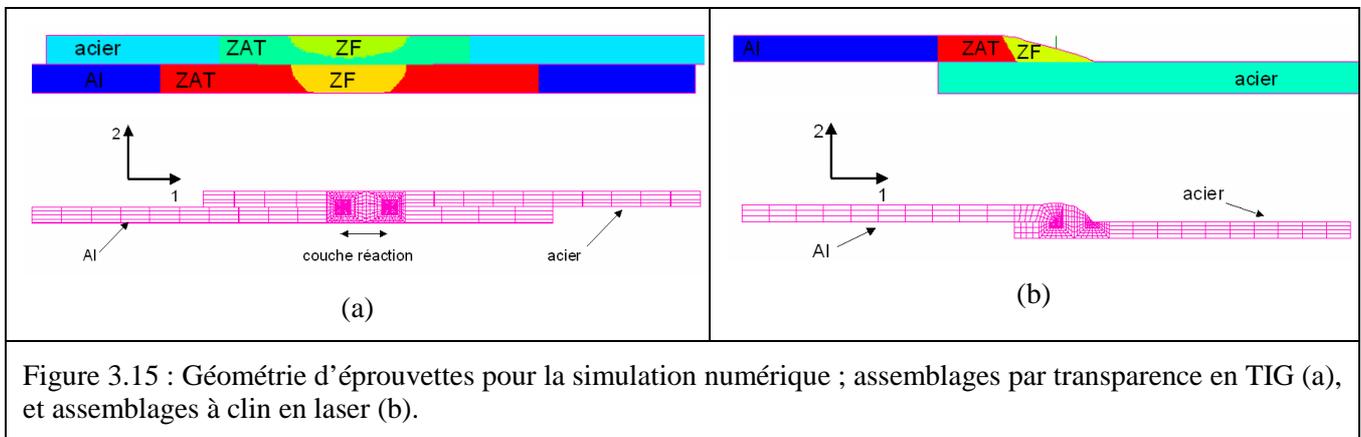


Figure 3.15 : Géométrie d'éprouvettes pour la simulation numérique ; assemblages par transparence en TIG (a), et assemblages à clin en laser (b).

Différents calculs ont été réalisés et comparés à l'expérience, en modifiant pour les assemblages en transparence (TIG) la largeur de la couche de réaction, modélisée par un contact parfait du fait de sa très faible épaisseur et de sa rigidité, et pour les assemblages à clin (laser) la largeur de liaison et l'angle de mouillage (Figure 3.15b).

La comparaison de l'évolution de la force mesurée en fonction du déplacement au cours de l'essai de traction transverse, et des champs de déformation mesurés expérimentalement par corrélation d'image (Bertrand Wattrisse), a permis de valider la simulation (Figure 3.16).

Les résultats ont ainsi montré que, pour un même niveau de chargement de l'éprouvette, les assemblages en transparence supportaient des contraintes normales perpendiculaires au plan de liaison en pointe d'interface, bien plus élevées que les assemblages « à clin » (Figure 3.17). Toutefois, les autres composantes, en particulier la contrainte normale parallèle à l'interface, atteignent également un niveau élevé (Figure 3.18), et peuvent aussi contribuer à la rupture de l'interface.

Pour tester la tenue des assemblages à différents types de sollicitations, quelques essais d'arrachement des assemblages par transparence avaient aussi été réalisés. La simulation numérique de ces essais a montré également une forte singularité de la contrainte normale perpendiculaire à la liaison aux extrémités des interfaces. La contrainte normale au moment de la rupture des liaisons est alors beaucoup plus faible que celle observée en traction transverse (Figure 3.19).

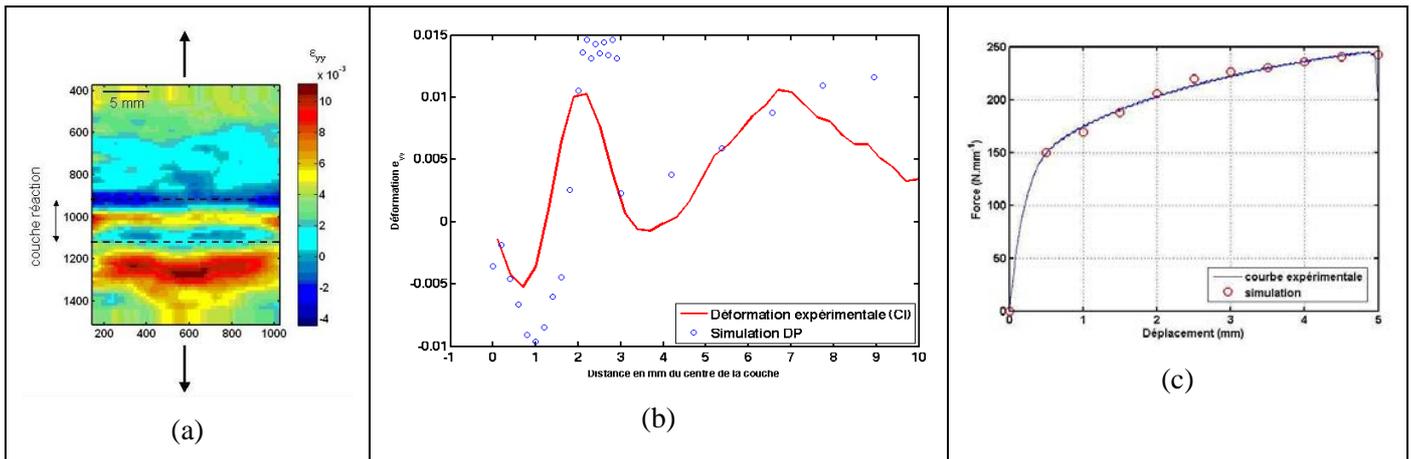


Figure 3.16 : Comparaison simulation-expérience ; champ de déformation déterminé par corrélation d'image au cours d'un essai de traction transverse (a), comparaison des déformations longitudinales en surface (b), et comparaison des effort de traction (c).

Les différences importantes de contraintes en pointe d'interface au moment de la rupture, déterminées par simulation numérique pour les différentes configurations d'éprouvettes, n'ont pas encore permis de faire émerger un critère de rupture en contraintes simple. Des critères basés sur les facteurs d'intensité de contrainte pourraient être recherchés.

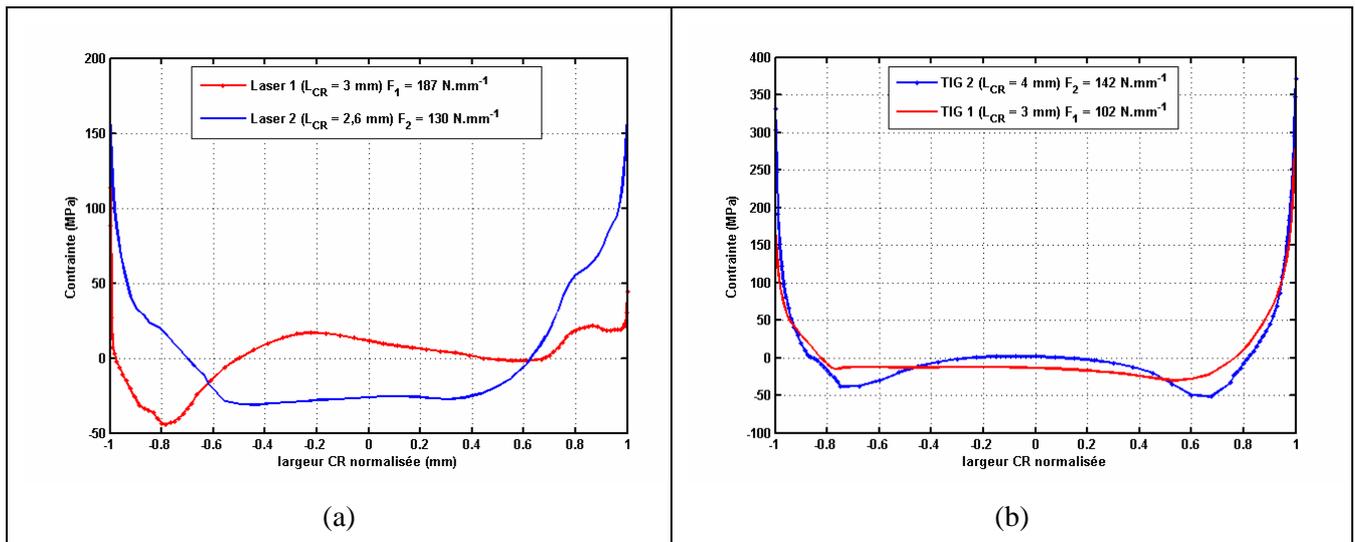
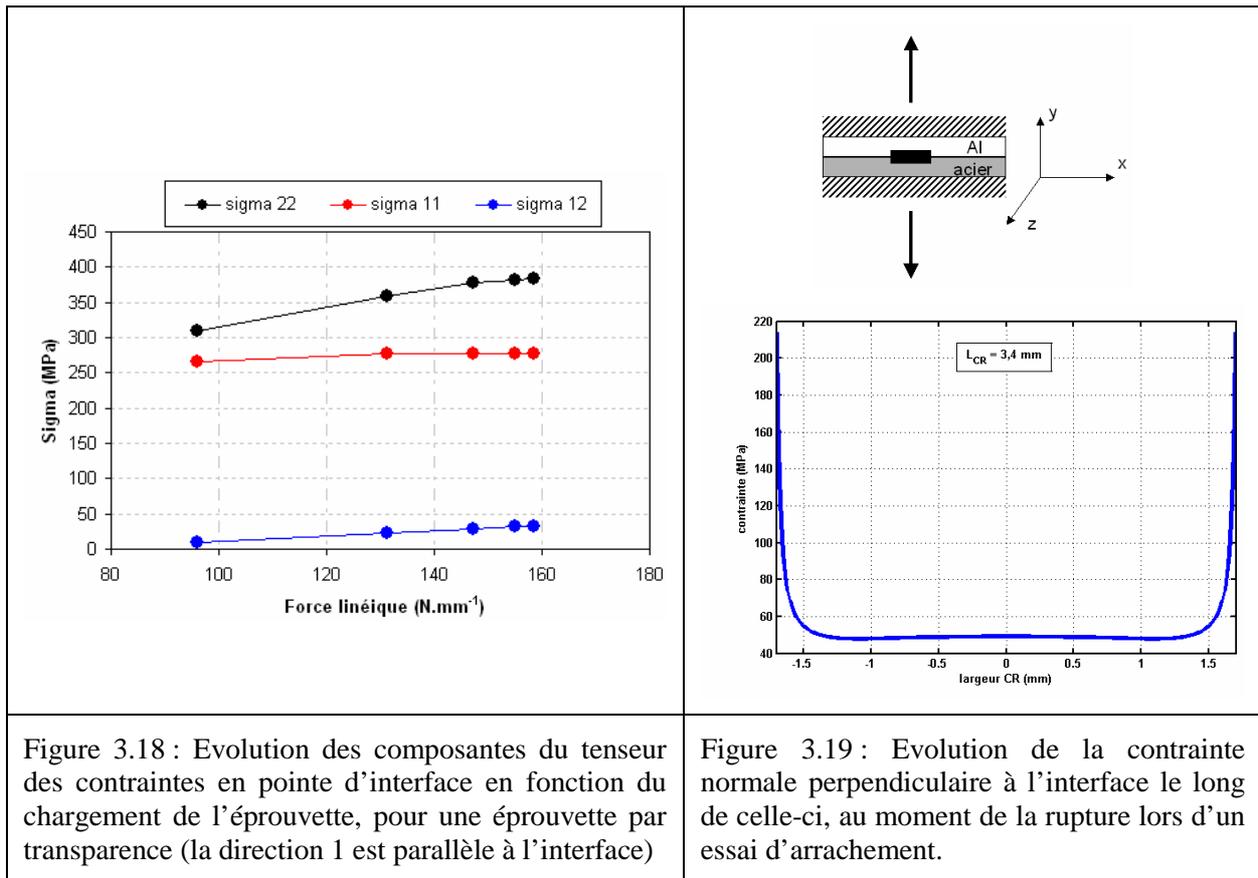


Figure 3.17 : Evolution de la contrainte perpendiculaire à l'interface le long de celle-ci, pour les assemblages à clin (a), et par transparence (b).



### 3.3. Caractérisation mécanique et prévision de la rupture en soudage des aciers réfractaires moulés

Les aciers réfractaires moulés utilisés pour la fabrication d'outils de formage superplastique, dont les caractéristiques microstructurales ont été présentées au chapitre 2, présentent une très faible ductilité à température ambiante, ainsi qu'à température élevée pour les nuances les plus chargées en carbone. Cette très faible ductilité, liée à la microstructure particulière de ces matériaux, constituée d'une matrice austénitique et d'un réseau quasi-continu de carbures eutectiques primaires, induit un risque de fissuration important au cours du soudage, qu'il est difficile d'éviter (Figure 3.20).

Afin de mieux appréhender le phénomène de fissuration en soudage décrit au chapitre 1, mais aussi d'évaluer la durée de vie des soudures de réparation, une étude de caractérisation mécanique, basée sur l'analyse de la fissuration observée en soudage, sur des essais de traction in-situ, et sur des essais de fatigue, a été menée dans le cadre de la thèse de Traian Branza [Branza, 2005], en collaboration avec Philippe Lours. Une méthode prédictive de la fissuration en soudage, développée en collaboration avec Cyril Bordreuil dans le cadre de la thèse d'Arnaud Duchosal [Duchosal, 2006], pour tenter d'optimiser les modes opératoires de réparation des outils de formage superplastique, est aussi présentée. Ces travaux ont fait l'objet de deux articles (A9, A12).

#### 3.3.1. Caractérisation mécanique des aciers réfractaires moulés et des soudures de réparation

Des essais de traction in-situ ont montré que la fissuration à température ambiante apparaissait simultanément en plusieurs zones, pour des niveaux de déformation très faibles, inférieurs à 1%, conduisant à une multi fissuration de l'éprouvette, les fissures prenant naissance dans les carbures primaires les plus favorablement orientés (Figure 3.21). Les fissures se propagent ensuite à travers les carbures moins favorablement orientés, jusqu'à la rupture finale.

La comparaison de la morphologie des fissures et des faciès de rupture observés en traction in-situ avec ceux observés après essai de traction à haute température (jusqu'à 750°C) et après soudage a

permis de vérifier que la fissuration était issue d'un même mécanisme de rupture fragile, la rupture des carbures primaires, intervenant dès que la contrainte de clivage est atteinte. On a pu constater que seuls les carbures primaires de chrome étaient fissurés, les autres carbures (de Nb ou de Mo selon la nuance d'acier) semblant être plus résistants au clivage (Figure 3.22).



Figure 3.20 : Fissures formées dans les aciers réfractaires moulés au voisinage de la zone de fusion lors de leur réparation par soudage.

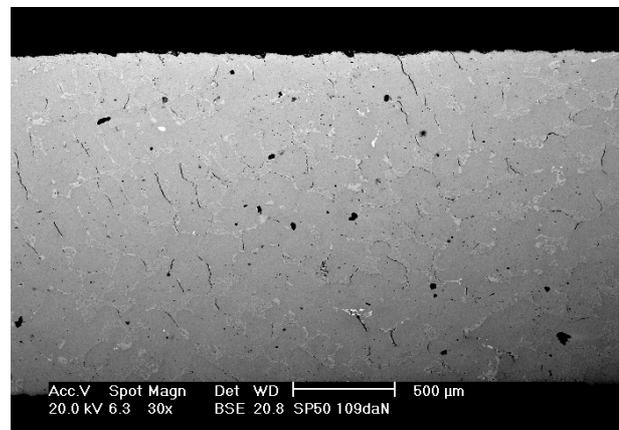


Figure 3.21 : Multi fissuration d'un acier réfractaire moulé observée lors d'un essai de traction in-situ.

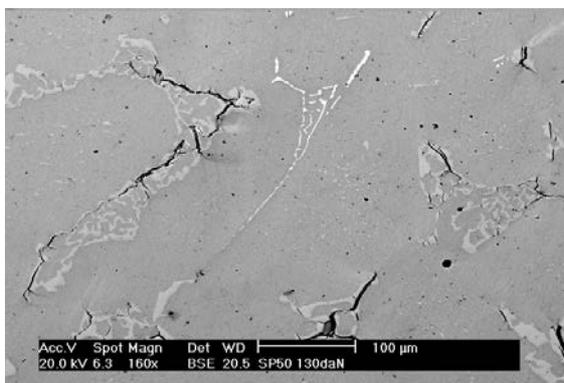


Figure 3.22 : Fissuration des carbures primaires de chrome (en gris), alors que les carbures de niobium (en blanc) ne sont pas fissurés, dans un acier réfractaire moulé.

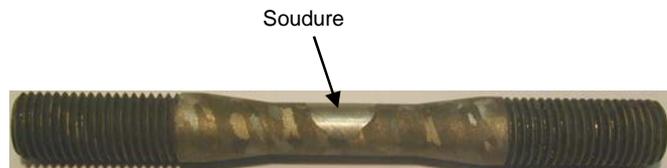


Figure 3.23 : Géométrie et macrostructure des éprouvettes de fatigue soudées

Afin d'étudier l'effet de la présence d'une soudure de réparation sur la durée de vie en service des outils de formage superplastique, des essais de fatigue à haute température ont été réalisés (Figure 3.23). Ces essais présentent en outre un second intérêt : en observant le comportement de l'assemblage hétérogène sous l'effet d'un chargement cyclique, on peut obtenir des informations sur le comportement en cours de soudage multi passe, où le matériau de base subit, à chaque passe de soudage, un cycle de chargement.

Des résultats antérieurs ayant montré que le principal facteur d'endommagement des outils de formage superplastique était lié aux cycles thermiques imposés aux outils [Baleix, 1999], nous avons choisi un essai de fatigue à déformation imposée, pour simuler les déformations élasto-plastiques résultant des gradients de dilatation produits lors des cycles thermiques. Ce type de chargement à déformation imposée est également plus adapté pour reproduire le chargement subi au cours des passes de soudage.

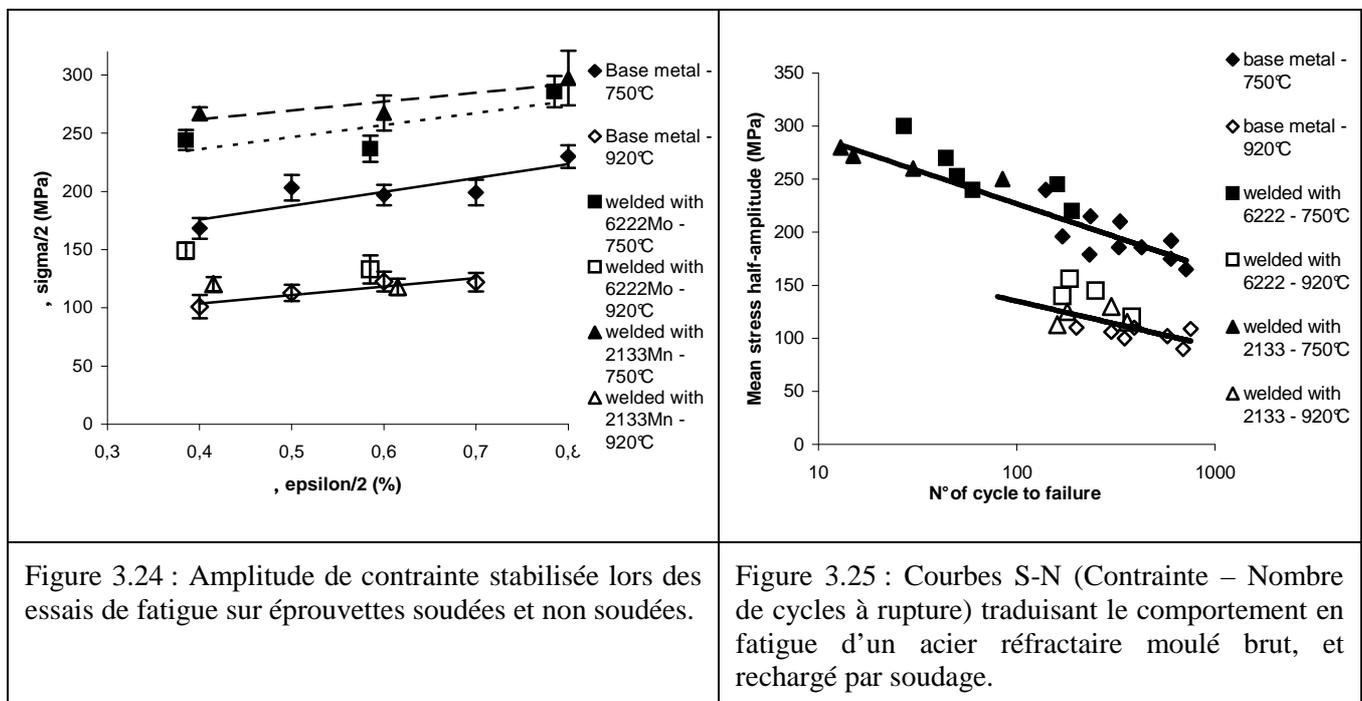
Les amplitudes de déformation ont été choisies pour être représentatives de cycles typiques subis par des outils en conditions industrielles.

Une dispersion assez importante a été observée sur les éprouvettes non soudées et soudées, à la fois sur les niveaux d'amplitude de contrainte et sur le nombre de cycles à rupture, qui a été attribuée à la taille de grain très importante de l'acier, qui fait que la section de chaque éprouvette est constituée de un à quelques grains seulement. L'interprétation des résultats a donc du rester qualitative.

On a pu observer que pour une même amplitude de déformation, les contraintes étaient plus élevées dans les éprouvettes avec soudures que dans le matériau brut (Figure 3.24). Le nombre de cycles à rupture est plus faible sur éprouvettes soudées, et encore plus faible lorsqu'elles ont subi un beurrage préalable. On a pu attribuer les différences observées à deux phénomènes :

- D'abord, la présence d'une soudure dans l'éprouvette augmente sa rigidité, ce qui conduit, pour un même niveau de déformation, à des contraintes plus élevées. Les courbes S-N (contrainte-nombre de cycle à rupture) montrent d'ailleurs que les éprouvettes de fatigue soudées et non soudées sont sensiblement sur les mêmes courbes (Figure 3.25).

- Ensuite, dans les éprouvettes soudées, l'hétérogénéité observée entre le matériau de base et la zone fondue entraîne l'apparition de concentrations de contraintes, dans le matériau de base près de l'interface avec la zone fondue, qui ont pu être identifiées par simulation numérique de l'essai de fatigue (Figure 3.26). Ces zones de concentrations de contraintes correspondent aux zones de localisation de la rupture lors des essais de fatigue.



Lorsque les éprouvettes ont subi un beurrage préalable au soudage, les niveaux de contrainte sont sensiblement équivalents à ceux observés sur matériau soudé sans beurrage. En revanche, la rupture, qui avait lieu dans le matériau de base au voisinage immédiat de la soudure sur éprouvettes soudées sans beurrage, se produit alors dans la couche de beurrage. Dans ce cas, l'amplitude de contrainte diminue dès les premiers cycles, jusqu'à la rupture de l'éprouvette, du fait de la fissuration de la couche de beurrage qui, étant confinée entre deux zones plus dures, subit une forte triaxialité de contraintes, qui empêche sa déformation plastique et favorise sa fissuration [Angamuthu, 1999, Kim, 2004]. Ce mécanisme explique que les niveaux de contrainte soient aussi élevés avec et sans beurrage, malgré la faible limite d'écoulement du matériau de beurrage. Ces résultats montrent que, si la technique du beurrage a permis d'éliminer la fissuration en soudage (les conditions anisothermes et le dépôt de la couche de beurrage avant le remplissage ne favorisent pas lors du soudage l'établissement de contraintes fortement triaxiales, ce qui permet la déformation de la couche de beurrage), elle ne permet pas de conserver une durée de vie résiduelle des outils acceptable.

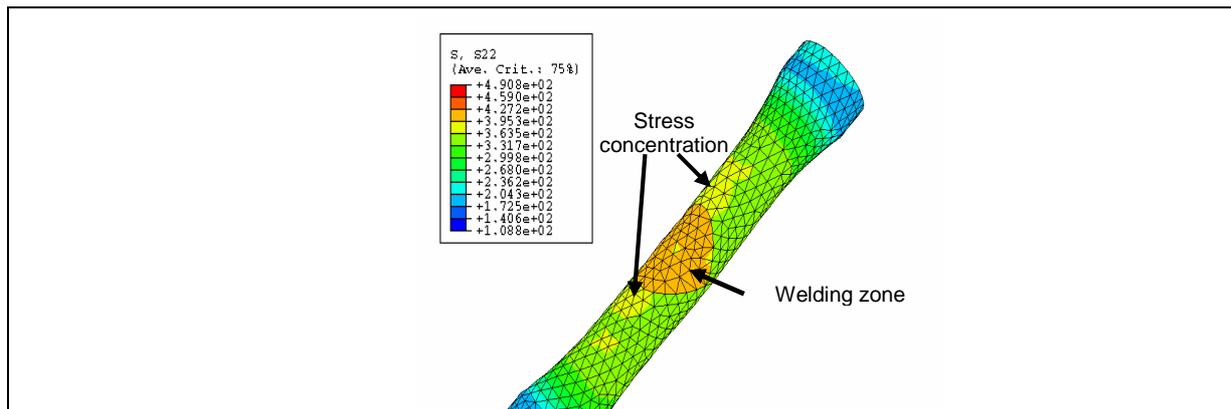


Figure 3.26 : Concentrations de contraintes localisées dans le métal de base à proximité de la zone soudée lors de l'essai de fatigue.

### 3.3.2. Simulation numérique et prévision du risque de fissuration en soudage

La fissuration en cours de soudage des aciers réfractaires moulés dépend des conditions opératoires, comme cela a été présenté au chapitre 1. L'influence de certains paramètres sur la fissuration est toutefois mal connue, et il était intéressant de disposer d'un outil numérique, basé sur la modélisation des phénomènes intervenant au cours du soudage et des mécanismes de fissuration, permettant de prédire l'effet des paramètres opératoires, sans avoir à réaliser d'essais long et coûteux.

La modélisation de l'ensemble des paramètres responsables de la fissuration en cours de soudage est cependant complexe, puisqu'elle dépend de facteurs macroscopiques, comme le chargement thermique associé à l'opération, ou le bridage ou l'auto bridage des pièces, et de facteurs microscopiques, liés à la microstructure hétérogène de l'acier moulé. En effet, du fait de la grande différence de comportement entre les différentes phases du matériau, et de la morphologie particulière de la microstructure des aciers étudiés, qui forme un réseau de carbures quasi-continu, la fissuration est contrôlée par des mécanismes locaux, et une modélisation microscopique doit être adoptée, prenant en compte les champs de contrainte locaux.

Il est cependant impossible de modéliser à la fois la géométrie d'ensemble de la structure soudée (l'outil de formage massif à réparer), qui conditionne les champs thermiques et les champs de contrainte macroscopiques, et la microstructure du matériau, les échelles étant trop différentes. Nous avons donc développé une méthodologie basée sur un calcul en trois étapes, dont l'une des particularités consiste à effectuer un changement d'échelle entre les deux dernières étapes.

Dans une première étape, la modélisation thermomécanique de l'opération de soudage, en considérant le matériau continu et homogène, est réalisée. La source de chaleur est modélisée par une distribution de puissance basée sur le modèle de Goldak, déjà décrit au chapitre 1 (§ 1.4.3.), et le comportement des matériaux est supposé élasto-plastique.

Dans une seconde étape, un critère de localisation est défini, pour identifier les zones de la pièce soudée les plus « critiques ». Ce critère de localisation doit être établi à partir des champs macroscopiques. Quatre critères très simples ont été comparés, et l'expérience a permis d'en retenir un.

Le premier critère est un critère en déformation plastique cumulée. La fissuration étant le résultat d'une plastification localisée à l'interface, due aux incompatibilités de déformations entre matrice et carbures, nous supposons que cette plastification est la plus importante lorsque la déformation plastique homogène équivalente sur un volume élémentaire représentatif, calculée avec une approche milieu continu, est maximale. Nous choisissons alors comme variable interne responsable de la fissuration la déformation plastique équivalente cumulée, par référence au modèle d'endommagement plastique ductile linéaire en déformation, proposé par Lemaître et Chaboche [Lemaître, 1988].

Pour intégrer les conditions anisothermes dans lesquelles se produit la déformation, les incréments de déformation plastique sont pondérés par un facteur dépendant de la déformation à rupture de l'acier, à la température considérée.

Le « risque de fissuration » est alors calculé selon la relation (3.9) :

$$D_1 = \int_0^t \frac{dD}{dt} dt \quad \text{avec} \quad \frac{dD}{dt} = \frac{1}{\varepsilon_R(T)} \frac{d\varepsilon_p}{dt} \quad (3.9)$$

où  $\varepsilon_R(T)$  correspond à la déformation à rupture en traction du matériau, à la température T.

Le second critère est un critère en contrainte principale maximale, le risque de fissuration étant supposé le plus élevé dans les zones où la valeur maximale, lors du cycle de soudage, du rapport entre la contrainte principale maximale  $\sigma_{Pmax}$  et la contrainte à rupture en traction du matériau  $\sigma_R(T)$  est la plus élevée.

$$D_2 = \left( \frac{\sigma_{Pmax}}{\sigma_R(T)} \right)_{max} \quad (3.10)$$

Le troisième critère est un critère de taux de restitution d'énergie élastique. Il est basé sur le modèle proposé par Lemaître pour décrire l'endommagement fragile, qui apparaît lorsque le taux de restitution d'énergie élastique atteint une valeur critique [Lemaître, 1991].

Le risque de fissuration s'exprime alors par le paramètre  $D_3$  :

$$D_3 = \left( \frac{\sigma^*}{\sigma_R(T)} \right)_{max} \quad \text{avec} \quad \sigma^* = \sigma_{eq} \left( \frac{2}{3}(1+\nu) + 3(1-2\nu) \left( \frac{\sigma_H}{\sigma_{eq}} \right)^2 \right)^{1/2} \quad (3.11)$$

où  $\sigma^*$  est la contrainte équivalente d'endommagement définie par Lemaître,  
 $\sigma_{eq}$  est la contrainte équivalente de Von Mises,  
 et  $\sigma_H$  la contrainte hydrostatique :  $\sigma_H = 1/3 \text{Tr}(\sigma)$ .

Enfin, le quatrième critère est un critère en contrainte principale maximale et déformation plastique cumulée, choisi par analogie avec les phénomènes observés en fatigue oligocyclique, où la contrainte à rupture dépend du nombre de cycles à amplitude de déformation imposée [Lemaître, 1988].

Le risque de fissuration s'exprime alors en fonction de la contrainte principale maximale et d'une contrainte critique dépendant de la déformation plastique cumulée et de la température.

$$D_4 = \left( \frac{\sigma_{Pmax}}{\sigma_R(T, \varepsilon_p^c)} \right)_{max} \quad (3.12)$$

La contrainte critique  $\sigma_R(T, \varepsilon_p^c)$  a été déterminée à partir d'essais de fatigue isotherme oligocyclique réalisés dans le cadre des travaux de thèse de A. Martiniez [Martinier, 2005].

Dans la troisième et dernière étape de notre méthodologie, l'histoire des sollicitations thermiques et mécaniques subies par les zones critiques identifiées à partir des critères de localisation est injectée comme condition aux limites d'une cellule élémentaire représentant un élément de microstructure caractéristique de l'acier (Figure 3.27). Cette dernière, qui correspond à un « lobe » de dendrite entouré par son réseau de carbures primaires, a été modélisée par deux phases homogènes, représentant le réseau de carbures, supposé continu, et la matrice austénitique (Figure 3.27).

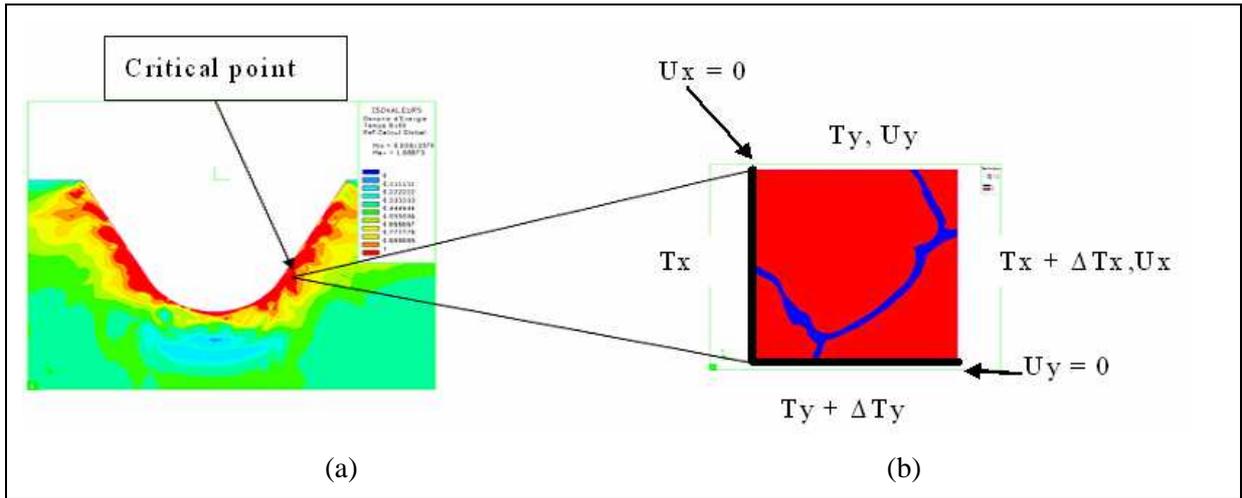


Figure 3.27: Localisation de la zone critique à l'aide d'un critère macroscopique (a), et conditions aux limites imposées à la cellule de référence représentant un élément de microstructure de l'acier (b).

Cette méthode se voulant prédictive de la fissuration, la dernière étape doit être associée à un critère de fissuration. Nous avons considéré que la fissuration se produisait lorsque la contrainte principale maximale dans les carbures atteignait la contrainte de clivage, identifiée en modélisant l'essai de traction in-situ sur une cellule de référence, et en relevant la contrainte principale maximale dans les carbures lorsque le chargement en traction correspond à l'apparition de la multi fissuration observée in-situ (Figure 3.28).

La comparaison entre les calculs de simulation (Figure 3.29) et les essais de soudage a permis de valider en partie la méthode, qui permet de reproduire les effets bénéfiques ou négatifs des facteurs opératoires, mais a tendance à surestimer le risque de fissuration en soudage.

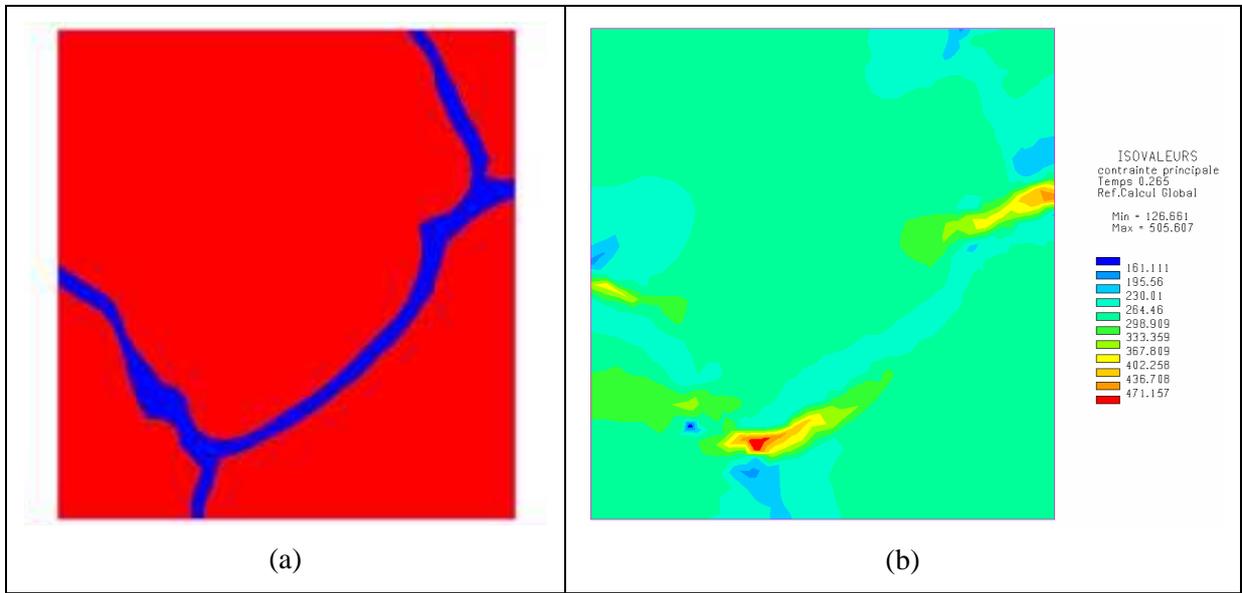


Figure 3.28: Géométrie de la cellule représentative montrant le réseau continu de carbures primaires (a), et champ de contrainte principale maximale dans la cellule soumise au chargement correspondant à l'apparition de la multi fissuration observée en traction in-situ (b).

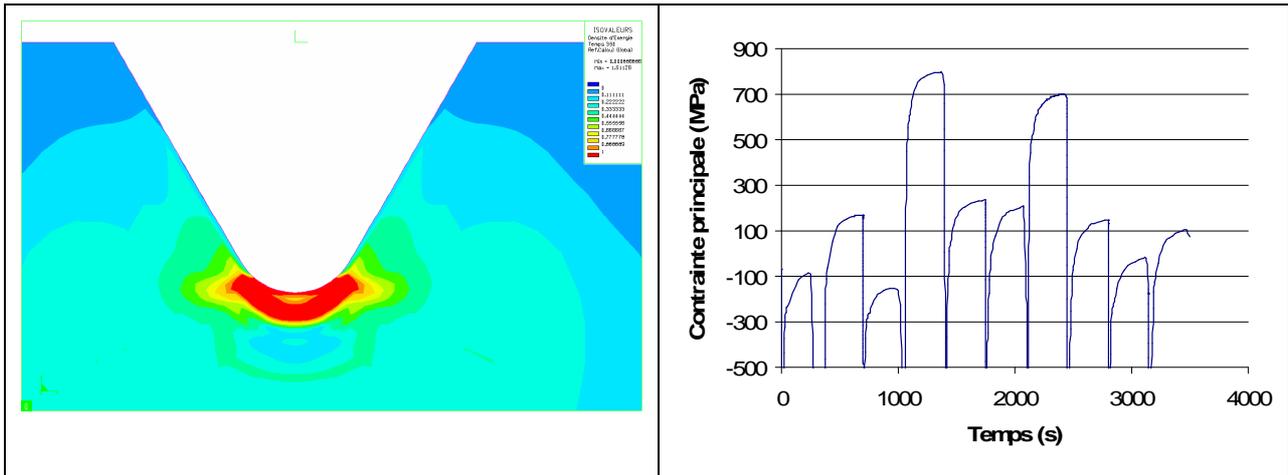


Figure 3.29: Localisation des zones critiques (a), et évolution de la contrainte principale maximale calculée dans les carbures primaires de la cellule soumise à l'histoire thermomécanique de la zone critique (b). La contrainte de clivage des carbures (505 MPa) est atteinte lors de la quatrième passe d'après la simulation.

### 3.4. Conclusion au chapitre 3

Ce troisième chapitre était consacré à l'étude des comportements mécaniques des matériaux et des assemblages. S'agissant de matériaux de structure, il était nécessaire d'aborder cet aspect pour justifier leur utilisation, et évaluer l'influence, néfaste ou bénéfique, des transformations subies sous l'effet d'une opération d'assemblage ou de conditions d'environnement ou de chargement particulières, étudiées dans les deux premiers chapitres.

La maîtrise des techniques expérimentales de caractérisation mécanique n'est toutefois pas toujours suffisante pour pouvoir interpréter le comportement des structures hétérogènes. Il a donc parfois fallu recourir à la simulation numérique, pour expliquer certains résultats d'essais mécaniques. La modélisation et la simulation numérique ont également été employées pour prédire le comportement des matériaux et des assemblages, sous l'effet d'un chargement donné.

Ce chapitre vient clore la présentation de mes activités de recherche, dont la structure a été choisie pour mettre en évidence une méthodologie globale d'étude des matériaux de structure, intégrant les relations entre les trois aspects que sont le procédé d'élaboration, les microstructures générées, et leur comportement mécanique.

Le premier chapitre avait montré des éléments de méthode permettant l'étude des relations entre le procédé de soudage et les transformations du matériau, à travers les sollicitations locales induites dans la matière par le procédé. Le second chapitre a décrit, à travers les différents cas traités, les moyens d'étude des mécanismes élémentaires responsables de ces transformations, de manière à pouvoir prédire celles-ci en fonction des sollicitations subies par la matière. Enfin, ce troisième chapitre illustre la démarche permettant de caractériser mécaniquement les structures obtenues, et ainsi d'identifier les caractéristiques microstructurales qui doivent être recherchées. Il est alors possible, connaissant les mécanismes qui ont conduit à leur apparition, de déterminer les conditions de sollicitations aptes à les produire, et enfin d'identifier les paramètres de procédé à choisir.

## Conclusion et perspectives

Les expériences acquises depuis ma thèse dans les domaines de la caractérisation microstructurale et mécanique des matériaux, et depuis 2000 dans le domaine des procédés de soudage, m'ont permis de développer une connaissance relativement fine dans ces trois domaines, nécessaire pour mener une activité de recherche en soudage, qui resterait limitée si elle n'était abordée que par un seul de ces aspects. Les chapitres de ce mémoire illustrent les travaux réalisés sur différentes problématiques dans ces trois domaines, qui une fois regroupés ont permis des avancées parfois significatives dans le développement ou l'amélioration d'assemblages particuliers. Ces résultats s'inscrivent toutefois dans le travail de toute une équipe, dont les compétences sont bien sûr beaucoup plus larges que les seuls trois aspects que j'ai abordés.

En 2003, les contacts et les réflexions engagés m'avaient conduit à identifier trois axes de recherche, qui jusqu'à présent sont restés les thèmes principaux de l'équipe Assemblages Soudés. Le premier concernait l'étude du procédé de soudage, dans le but d'en maîtriser les subtilités, mais surtout pour accéder, à travers l'instrumentation, à des mesures caractérisant les conditions d'environnement et de chargement de la matière au cours de l'opération de soudage. Le second axe concernait la caractérisation des matériaux obtenus après soudage et des transformations se produisant, à travers des techniques d'analyse et d'essais classiques. Enfin, le troisième axe concernait la simulation numérique et le développement de modélisations permettant de prédire les caractéristiques des soudures, mais surtout de mieux connaître l'évolution des champs de sollicitation subis par la matière, lorsqu'ils ne sont pas directement mesurables, durant un cycle de soudage.

La transformation de l'équipe, dont l'effectif permanent a plus que doublé en quatre ans, passant de deux à cinq personnes, va toutefois nécessiter un réajustement des objectifs de certains axes et une nouvelle répartition des tâches. En tant que membre fondateur de l'équipe, je me dois de participer à la réflexion engagée et d'accompagner les évolutions de chacun des axes, mais aussi de spécialiser mes actions de recherche dans les domaines où ma contribution sera la plus efficace.

Dans cette dernière partie du mémoire, je vais tenter de montrer en quoi les recherches menées depuis mon arrivée au LMGC ont alimenté ces trois axes, en les replaçant dans chacun d'eux, et de présenter les perspectives de développement de l'équipe, en précisant celles dans lesquelles je compte plus particulièrement m'impliquer.

### Modélisation et simulation numérique

A travers les travaux de thèse d'Arnaud Duchosal et Guillaume Sierra, nous avons utilisé l'approche classique pour modéliser le soudage à l'arc (électrode enrobée ou TIG) et le soudage laser. Celle-ci est basée sur une modélisation purement thermique de la source de chaleur, arc électrique ou laser, à travers une distribution surfacique ou volumique, dont la forme dépend du procédé et des conditions opératoires. Ces premiers travaux nous ont révélé les limites de l'approche classique, qui nécessite en particulier de disposer de certaines données expérimentales, comme le cycle thermique en certains points, ou la taille réelle du bain de fusion, pour pouvoir « caler » la distribution modélisant la source de chaleur, ce qui limite le caractère prédictif des modèles. Cette approche s'est toutefois avérée très utile pour étudier qualitativement l'influence de certains paramètres opératoires sur l'évolution des champs thermiques et mécaniques, et continuera à être utilisée en complément de l'expérience pour aider à l'interprétation de certains résultats.

Si l'approche classique est toujours développée pour étudier les contraintes et les déformations dans les structures en cours de soudage, la communauté scientifique s'intéressant à la simulation du soudage admet cependant qu'une modélisation réellement prédictive, notamment des tailles et formes des bains de fusion, passe nécessairement par la modélisation physique de la source de chaleur.

Plusieurs équipes reconnues, notamment le groupe Mécanique Numérique du Laboratoire de Tribologie et Dynamique des Systèmes de l'ENISE, dirigé par Jean-Michel Bergheau, ou le Centre de Mise en Forme des Matériaux (CEMEF) à Sofia-Antipolis, ou encore le CEA, qui a démarré récemment une collaboration avec l'équipe de Marc Médale, à l'IUSTI de l'Ecole Polytechnique Universitaire de Marseille pour développer une modélisation physique de l'arc électrique et des interactions avec la matière, ont acquis un grand savoir-faire dans le domaine de la modélisation du soudage par la méthode des éléments finis. Nous ne nous lancerons donc pas dans de tels

développements, mais rechercherons plutôt des collaborations avec ces équipes, qui ont déjà été engagées avec Jean-Michel Bergheau et Marc Médale.

En revanche, d'autres techniques numériques, basées sur les méthodes sans maillage, ont été identifiées par Cyril Bordreuil, l'animateur de l'axe, comme une alternative aux éléments finis bien adaptée à la modélisation des déplacements des fronts liquide/solide. Le développement de ces méthodes est aujourd'hui le thème prioritaire de l'axe, et la collaboration engagée avec Marc Médale devrait permettre à terme de les comparer avec les méthodes de calcul par éléments finis. Cette action est principalement menée par Cyril Bordreuil, mais j'apporterai une contribution pour le choix des modèles et des méthodes employés pour décrire les transformations métallurgiques de la matière en cours de soudage, en particulier lors de la solidification.

Un rapprochement a également été initié avec l'équipe Axiom de l'Institut de Mathématiques et de Modélisation de Montpellier (Gérard Michaille et Oana Iosifescu), pour développer un modèle de prédiction de la fissuration dans les interfaces rigides, comme celles rencontrées dans les assemblages hétérogènes acier-aluminium, basé sur des méthodes asymptotiques. Cette collaboration devrait se poursuivre à travers le co-encadrement par les deux laboratoires d'un stage Master, et peut-être d'une thèse.

Si j'ai été amené, au début de mon activité de recherche au LMGC, à développer quelques travaux sur la modélisation et la simulation numérique du soudage, cet axe de recherche demeure cependant le plus éloigné de mes compétences. Mes contributions au développement de cet axe seront limitées à une aide apportée à Cyril Bordreuil sur certains choix stratégiques, et sur la modélisation des phénomènes métallurgiques, même si j'envisage d'utiliser les outils qui seront développés, à plus long terme. Mon investissement scientifique s'exercera plutôt dans les deux autres axes, qui sont plus en rapport avec mes compétences.

### **Contrôle des procédés et mesure des sollicitations en cours de soudage**

Une meilleure qualité des soudures passe nécessairement par un contrôle précis des paramètres opératoires, et une compréhension accrue des mécanismes intervenant pendant la phase d'élaboration de la soudure, qui suppose la connaissance des sollicitations thermiques, mécaniques, voire environnementales, subies par la matière.

Au cours de mes travaux de recherche, deux bancs de soudage ont été conçus, afin de pouvoir réaliser des opérations de soudage en contrôlant tous les paramètres opératoires. Un système automatisé de soudage à l'électrode enrobée original a ainsi été développé pour les besoins de la thèse d'Arnaud Duchosal, et un banc de soudage TIG pour le soudage acier-aluminium dans une configuration en transparence a été conçu et fabriqué pour la thèse de Guillaume Sierra. Dans le cadre de cette thèse, nous avons aussi travaillé à l'amélioration du système de bridage en soudage laser, en développant un bridage solidaire de la tête laser. Une acquisition synchronisée de l'ensemble des paramètres électriques en soudage à l'arc a également été développée, qui permet la connaissance précise de ces paramètres au cours d'une opération de soudage.

La connaissance des sollicitations subies par la matière en cours de soudage suppose quant à elle le développement de techniques d'observations et de mesures in-situ, qui ne soient pas affectées par les conditions extrêmes produites dans la zone proche de la source de chaleur, arc électrique ou faisceau laser. Les études menées à ce jour dans le cadre des trois thèses achevées dans l'équipe ont permis de développer l'instrumentation thermique par thermocouples, mais ont aussi montré la difficulté de réaliser des mesures fiables en soudage à l'arc près du bain de fusion, du fait des perturbations produites par l'arc. Les champs électro-magnétiques produits sont en effet très perturbateurs des systèmes de mesure basés sur la quantification d'un signal électrique. Il est donc nécessaire de développer une procédure permettant d'éviter l'endommagement des systèmes électroniques de mesure et de traitement du signal, et d'intégrer les perturbations subies par les capteurs, en les corrigeant, pour avoir une mesure fiable.

Des techniques de mesure de températures et de déformations, à l'aide de capteurs classiques, thermocouples et jauges de déformation, compatibles avec le soudage à l'arc, sont actuellement en cours de développement dans l'équipe, grâce à une collaboration avec Yves El Kaim, Ingénieur de Recherche au LMGC.

Une autre technique est en cours de développement, et doit nous permettre d'obtenir de nouvelles informations, l'enregistrement à grande vitesse des images de la scène de soudage (> 10 000 images

par seconde). Pour réaliser ces observations, nous venons d'acquérir une caméra rapide, et une seconde sera prochainement commandée, pour filmer des séquences en stéréovision, ou pour filmer la scène à deux échelles différentes. L'observation du bain de fusion à travers un arc électrique nécessite cependant de sur éclairer la scène, et/ou d'utiliser différents filtres pour s'affranchir du rayonnement parasite instable de l'arc électrique, qu'il faut adapter selon le procédé, les matériaux ou les énergies employées. Ce travail, réalisé principalement en collaboration avec Fabien Soulié, a déjà démarré dans le cadre de la thèse de Julien Chapuis.

Ces différentes techniques de mesure et d'observation in-situ font partie du projet TEMMSA, qui a été retenu par l'Agence Nationale de la Recherche en 2007 dans le cadre de l'appel à projet « Jeunes Chercheurs », et doit s'étaler sur quatre ans.

Je compte, au cours des prochaines années, utiliser les différents moyens de mesure développés pour mieux comprendre les relations entre les paramètres du procédé, ou paramètres « globaux » (tension, intensité, efforts de bridage), et les sollicitations de la matière, ou paramètres « locaux » (températures, déformations, caractéristiques géométriques et stabilité du bain de fusion et du métal déposé). L'apport de l'imagerie rapide sera primordial dans ces travaux, car cette technique récente permet d'observer in-situ des phénomènes qui jusqu'à présent étaient expliqués à partir d'observations réalisées à posteriori.

L'influence des nouvelles formes de courants « contrôlés », basés sur des cycles pulsés ou alternatifs plus ou moins complexes, et qui sont maintenant fréquemment rencontrés dans les générateurs de soudage à l'arc modernes, sera en particulier étudiée à travers des mesures et observations in-situ couplées. Ces nouvelles formes de courant sont sensées agir sur le transfert de métal dans l'arc électrique, la création et la solidification de bain de fusion, ou la dissipation de chaleur, mais le rôle de chaque paramètre du courant sur ces mécanismes est mal connu.

Dans d'autres domaines, des observations in-situ permettront de re-visiter les théories avancées pour expliquer certains phénomènes, de manière à les valider ou les faire évoluer. Le travail de thèse de Julien Chapuis, démarré en 2007, s'inscrit dans ce cadre. Il porte sur l'observation du phénomène de « humping », qui se manifeste lors du soudage à grande vitesse. Plusieurs théories parfois divergentes existent pour expliquer le phénomène, et l'étude doit permettre d'apporter des éléments de choix et d'amélioration.

Dans la thèse d'Aurélié Niel, démarrée en 2008, nous allons utiliser ces techniques de mesure et d'observations in-situ couplées pour mieux comprendre les relations entre les énergies de soudage, les efforts de bridage, et le phénomène de fissuration à chaud, avec pour objectif principal de faire le lien entre les paramètres globaux, et les paramètres locaux. Les différents modèles proposés pour prédire la fissuration à chaud en fonction des paramètres locaux pourront alors être discutés.

### **Caractérisation des soudures et amélioration de la qualité des soudures de matériaux nouveaux ou hétérogènes**

Les objectifs du troisième axe de recherche de l'équipe, portant sur la caractérisation expérimentale, tant microstructurale que mécanique, des soudures, méritaient d'être redéfinis, car la grande diversité des techniques de caractérisation, des types d'assemblages, ou encore des échelles de caractérisation, donnait un champ trop vaste à cet axe.

Au cours des thèses de Traian Branza et Arnaud Duchosal, nous avons caractérisé la microstructure et le comportement mécanique de nuances d'aciers réfractaires moulés, spécialement développées pour la fabrication d'outils de formage superplastique. Un travail relativement similaire a été réalisé au cours de la thèse de Guillaume Sierra, pour les assemblages acier-aluminium. La caractérisation menée était toujours associée à une stratégie d'amélioration de la qualité des soudures, par la prise en compte des paramètres d'assemblage dans l'analyse des résultats.

Ma triple culture, dans les domaines des procédés de soudage, des transformations de la matière, et du comportement mécanique des matériaux, doit nous permettre de généraliser cette démarche à l'étude de la « soudabilité globale » des matériaux. Nous sommes en effet l'un des rares laboratoires universitaires à pouvoir à la fois réaliser des soudures avec différents procédés, caractériser les microstructures et leur comportement mécanique, et interpréter et relier ces différents résultats.

Le champ le plus intéressant pour développer cette démarche concerne les assemblages hétérogènes, les couples de matériaux dont l'assemblage peut présenter un intérêt étant très nombreux, et le soudage de nouveaux alliages.

Les travaux réalisés sur le soudage acier-aluminium concernent la première catégorie d'assemblages, et entrent parfaitement dans les thèmes de cet axe de recherche. Ils devraient se poursuivre, avec notamment la caractérisation en fatigue des assemblages en fonction des conditions d'élaboration, en collaboration avec le professeur Gérard Mesmacque, du Laboratoire de Mécanique de l'Université de Lille. Pour améliorer la qualité des soudures hétérogènes obtenues, certaines des voies identifiées au cours de la thèse de Guillaume Sierra, en soudage TIG ou en laser, pourraient être approfondies. En TIG, la priorité devrait être portée sur le développement d'un système de bridage mobile et facilement transposable à plusieurs configurations, pour faciliter le contact acier-aluminium. Le matériau d'apport Al-12Si ayant montré son efficacité en laser, il pourrait aussi être testé en TIG, mais avec une configuration à clin. En laser, la voie du soudobrasage avec apport Al-12Si devra aussi être privilégiée.

L'étude sur la réparation des aciers réfractaires concerne la deuxième catégorie d'assemblages, ces matériaux étant développés et améliorés par la société Aubert & Duval en fonction de leurs applications spécifiques. Bien que cette étude soit aujourd'hui terminée, il conviendrait de confirmer les résultats très prometteurs obtenus par la technique d'affinement de la microstructure par refusion TIG. La caractérisation du matériau refondu, en particulier sa ductilité, et le comportement à la fissuration, devraient être étudiés de manière plus approfondie.

L'étude de la soudabilité des nouveaux alliages doit se faire de préférence en collaboration directe avec les élaborateurs de matériaux, en particulier les aciéristes, qui intègrent maintenant souvent, lors du développement de nouvelles nuances, non seulement les propriétés d'usage du matériau, mais aussi son aptitude au soudage, qui devient un critère majeur. Dans ce contexte, il est important de pouvoir proposer une méthodologie permettant d'étudier la soudabilité de ces nouveaux matériaux, en fonction du procédé de soudage choisi, et des paramètres opératoires.

C'est dans ce contexte que la thèse de Vincent Villaret a démarré en janvier 2009, dans le cadre d'un contrat Cifre avec les sociétés Air Liquide et Arcelor-Mittal, dont l'objet principal est d'étudier les relations entre soudabilité et composition de nuances d'aciers inoxydables ferritiques à haute teneur en chrome en cours de développement, de manière à identifier les compositions les plus adaptées et les conditions de soudage adéquates.

### **Constitution d'un pôle de compétences en soudage à l'IUT de Nîmes**

D'une manière plus générale, nous allons continuer à œuvrer pour la constitution d'un pôle de compétences en soudage reconnu sur le site de l'IUT de Nîmes. Le rappel de l'historique du développement de l'activité soudage ces dernières années permet de mesurer le chemin déjà parcouru, et nous conforte dans notre volonté de poursuivre sur la même voie.

Dès la fin des années 90, le Laboratoire de Mécanique et Génie Civil de l'Université Montpellier 2 avait annoncé sa volonté de développer une activité de recherche délocalisée à l'IUT de Nîmes, de manière à tenter de valoriser l'équipement et le savoir-faire technologiques du personnel technique et enseignant de l'établissement. En parallèle, le pôle « soudage » de l'IUT, constitué principalement d'enseignants, souhaitait développer de nouvelles formations post-DUT, qui méritaient de s'adosser à une équipe de recherche pour assurer un niveau de formation constamment réactualisé. Ces initiatives étaient fortement encouragées par la profession, qui observait alors un manque d'intérêt et un retard important des établissements d'enseignement supérieur publics français dans le domaine du soudage, comparé à nos voisins européens, en particulier allemands. Ces encouragements se sont concrétisés par un partenariat entre le Syndicat National de la Chaudronnerie, Tôlerie et Tuyauterie Industrielle (SNCT) et l'Université Montpellier 2 pour la création d'une formation, par apprentissage, d'ingénieurs en Fabrication Chaudronnée en 1999.

C'est dans ce contexte que je suis recruté en 2000 en tant que Maître de Conférences par le Laboratoire de Mécanique et Génie Civil, avec une affectation pour l'enseignement au département Génie Mécanique et Productique (GMP) de l'IUT de Nîmes. La mission qui m'est assignée par le professeur Gilles Fras, alors chef du département GMP, est de participer au développement du soudage tant au niveau de l'enseignement que de la recherche, dans une stratégie de mutualisation des compétences et des moyens, qui était une démarche originale pour l'époque. Nous décidons alors de fixer comme objectif à long terme de créer à l'IUT de Nîmes un pôle de compétences en soudage, associant formation et recherche.

En 2002, je prend la responsabilité de l'activité de transfert de technologie au sein de l'IUT, et pousse au rapprochement avec les Plateformes Technologiques (PFT) récemment créées dans les Lycées et soutenues par la région Languedoc-Roussillon, dont la vocation est de fournir une aide technologique aux entreprises. Les missions de transfert de technologies et de conseil en soudage viennent alors compléter et faire le lien entre les actions d'enseignement et de recherche dans le projet de création d'un pôle de compétences. L'activité de conseil et de prestation ne démarre réellement qu'en 2005, avec une moyenne de 2 à 6 interventions par an, généralement auprès d'entreprises locales, pour un chiffre d'affaire encore modeste, de 4000 € par an environ.

En 2003, je participe à la création d'une Licence Professionnelle en Structures Métalliques et Assemblages Soudés (SMAS), et en 2004 au projet d'habilitation, par l'Association Française du Soudage (AFS) à délivrer, après examen, la qualification de Technologue International en Soudage (IWT) aux étudiants ayant suivi l'enseignement complet de la licence professionnelle SMAS à l'IUT de Nîmes.

Un projet de master est actuellement en cours d'élaboration dans le cadre d'une collaboration avec la nouvelle université Nîmoise, avec une spécialisation « soudage » en seconde année pour permettre de délivrer la certification d'Ingénieur International en Soudage (IWE).

En 2003 également, notre action dans le domaine de la recherche (2 thèses viennent de démarrer, et une troisième en co-encadrement) est reconnue par le LMGC, qui décide la création officielle de la septième équipe de recherche du laboratoire, l'équipe « Assemblages Soudés ». Celle-ci, constituée à la base des deux enseignants-chercheurs impliqués dans le soudage, Gilles Fras et moi-même, est renforcée par le recrutement de trois autres Maîtres de Conférences, successivement en 2004, 2006 et 2008. Deux de ces postes sont le résultat de créations ou d'échanges de postes liés à l'essor de l'activité d'enseignement en soudage.

En 2005 le laboratoire, en tant qu'UMR, est audité par le CNRS. Le rapport d'audit approuve et consacre la création de l'équipe AS.

La spécialisation de l'équipe, dans le domaine du procédé de soudage, constitue maintenant son originalité. La priorité est ainsi mise sur la connaissance et la maîtrise, à travers les paramètres procédé, des phénomènes intervenant au cours du soudage, dans le but d'optimiser les procédés existants, et d'améliorer le soudage des matériaux réputés « non soudables », ou le soudage hétérogène.

L'originalité de cette thématique, et les compétences scientifiques de l'équipe sont reconnues en 2007 par l'Agence Nationale de la Recherche (ANR), qui a sélectionné le projet TEMMSA présenté par l'équipe, dans le cadre de l'appel à projets Jeunes Chercheurs, sur le développement de systèmes de mesures in-situ sur banc de soudage à l'arc.

Nos compétences sont également reconnues dans le milieu industriel, puisque la société Areva a fait appel à l'équipe en 2007 pour coordonner un projet visant à mesurer différentes caractéristiques en cours de soudage, en vue d'apporter des éléments permettant d'orienter et de valider la simulation numérique. Une collaboration est également engagée avec les sociétés Air-Liquide et Arcelor-Mittal, dans le cadre d'une thèse Cifre portant sur le soudage de nouvelles nuances d'aciers inoxydables ferritiques.

Tous les éléments sont maintenant réunis pour que la création du pôle de compétence se concrétise. L'effectif de l'équipe est encore modeste (sept enseignants ou enseignants-chercheurs permanents, trois doctorants et un post doctorant), mais l'ouverture de nouvelles formations et les demandes de collaborations des industriels pourraient permettre d'associer à l'activité d'autres enseignants de l'IUT, et chercheurs de disciplines voisines, mathématiciens, mécaniciens, physiciens ou chimistes, dont les compétences peuvent trouver de nombreuses applications en soudage.

## Références

- K. Angamuthu, B. Guha, D.R.G. Achar, Investigation of dynamic fracture toughness (J<sub>Id</sub>) behaviour of strength mis-matched Q & T steel weldments using instrumented Charpy impact testing, *Engineer. Fract. Mech.*, 64 (1999), p. 417-432.
- S. Balex, Oxydation et écaillage d'alliages réfractaires moulés pour outils de formage superplastique, Thèse de l'Université Paul Sabatier, Toulouse (1999).
- S.B. Batdorf, Some approximate treatments of fracture statistics for polyaxial tension, *Int. J. Fracture*, 1-13 (1977), p. 5-11.
- G.A. Bel'Chuk, State of the art of argon-arc welding technology in joining aluminium and aluminium alloys to steel, Naval Intelligence Support Center, Washington DC (1973).
- A. Bellosi, A. Tampieri, Y.Z. Liu, Oxidation behaviour of electroconductive Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>-TiN composites, *Mater. Sci. Eng. A*, 127 (1990), p. 115-122.
- M.J. Bennett, M.R. Houlton, The interaction between silicon nitride and several iron, nickel and molybdenum-based alloys, *J. Mater. Sci.*, vol. 14 n° 1 (1979), p. 1984-1996.
- C. Berdin, Etude expérimentale et numérique de la rupture des matériaux fragiles, Thèse de doctorat de l'Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris (1993).
- A. Bouayad, Etude expérimentale et modélisation numérique des mécanismes physico-chimiques et des comportements thermomécaniques au niveau de l'interface alliage coulé/insert métallique, Thèse de l'ENSAM Angers, Angers (2003).
- K. Bouché, Etude thermocinétique de la dissolution de métaux solides (fer et nickel) dans l'aluminium liquide, Thèse de l'université de Provence, Marseille (1995).
- O. Boukraa, Etude du brasage d'une céramique thermomécanique, projet de fin d'étude d'ingénieur, ENIM Rabat (1999).
- T. Branza, Rechargement par soudage d'aciers réfractaires moulés, application à la réparation des matrices de formage superplastique, Thèse de l'université Toulouse III, Génie Mécanique, Toulouse (2005).
- B. Colas, Assemblage de céramiques à base de nitrure de silicium par soudage-diffusion au moyen d'un feuillard métallique, projet de fin d'étude d'ingénieur-DEA ENI Tarbes (1996).
- Y. Combres, Etude du comportement superplastique des alliages de titane TA6V et de nickel NK17CDAT au moyen de l'essai de torsion, Thèse de l'Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris (1988).
- S. Debano, Influence de l'oxydation sur la contrainte à rupture d'une céramique en Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>-TiN, projet de fin d'étude, Maîtrise de Sciences des Matériaux de l'université Nancy 1 (1997).
- H. Du, R.E. Tresseler, K.E. Spear, Thermodynamics of the Si-N-O system and kinetic modeling of oxidation of Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>, *J. Electrochem. Soc.*, 136 (11) (1989), p. 3210-3215.
- A. Duchosal, Réparation par soudage multipasse d'aciers réfractaires moulés : utilisation de la simulation numérique pour prédire les risques de fissuration, thèse de l'université Montpellier II, Mécanique (2006).

- H.W. Ebert, Fabrication of HK-40 in the Field, *Weld. J. nov.* (1976), p. 939-945.
- L. Esposito, A. Bellosi, G. Celotti, Silicon nitride-nickel joints through diffusion bonding, *Acta Mater.*, vol.45 n°12 (1997), p. 5087-5097.
- A.M. Freudenthal, Statistical approach to brittle fracture, in *Fracture*, vol. 2, An advanced treatise, mathematical fundamentals, Edited by H. Liebowitz, Academic Press, New-York (1968), p. 591-619.
- Y.G. Gogotsi, F. Porz, The Oxidation of particulate-reinforced Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>-TiN composites, *Corros. Sci.*, vol.33 n°4 (1992), p. 627-640.
- Y.G. Gogotsi, F. Porz, G. Dransfield, Oxidation behavior of monolithic TiN and TiN dispersed in ceramic matrices, *Oxid. Met.*, vol.39 n°1/2 (1993), p. 69-91.
- J. Goldak, A. Chakravarti, M. Bibby, A new finite element model for welding heat sources, *Metal. Trans. B*, 15 (1984), p. 299-305.
- I. Gotman, E.Y. Gutmanas, Interaction of Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> with chromium powder, *J. Mat. Sc. Letters*, 8 (1989), p. 1103-1106.
- S. Haro, R. Colas, A. Velasco, D. Lopez, Study of weldability of a Cr-Si modify heat-resistant alloy. *Mater. Chem. Phys.* 776 (2002), p. 831-835.
- E. Heikinheimo, A. Kodentsov, J.A. Van beek, J.T. Klomp, F.J.J. Van Loo, Reactions in the systems Mo- Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> and Ni- Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>, *Acta Metall. Mater.*, 40 (1992), p. S111-119.
- T. Kaba, M. Shimada, M. Koizumi, Diffusional reaction-bonding of Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> ceramics under high pressure, *Communication of the American Ceramic Society*, 8 (1983), C135-C136.
- S. Katayama, Laser welding of aluminium alloys and dissimilar metals, *Welding International*, vol.18 n°8 (2004), p. 618-625.
- U. R. Kattner, Binary alloy phase diagrams, 2<sup>d</sup> Ed. (1990), ed by Massalski et al., ASM International, Materials Park, OH, USA.
- Y.J. Kim, K.H. Schwalbe, Numerical analyses of strength mis-match effect on local stresses for ideally plastic materials, *Engineer. Fract. Mech.*, 71 (2004), p. 1177-1199.
- J.T. Klomp, Chemistry and kinetic aspects of metal ceramic diffusion bonding, *Joining ceramics, Glass and metal*, Ed. W. Kraft (1989), p. 55-64.
- M. Kreimeyer, F. Wagner, G. Sepold, Development of a combined joining-forming process for aluminium-steel joints, *Proc of 23<sup>rd</sup> Int. Conf. on Applications of Lasers and Electro-Optics (ICALEO'2004)*, San-Francisco (USA) (2004).
- M. Kutsuna, N. Yamagami, M.J. Rathod; H.Y. Azar Ammar, Laser roll welding for joining of low-carbon steels to aluminium alloys, *Welding International*, vol.20 n°6 (2006), p. 446-456.
- A. Lasky, Simulation des contraintes résiduelles au cours d'une operation de soudage à l'aide du logiciel Sysweld, *Rapport de DEA Mécanique des Matériaux et des Milieux Complexes, des Structures et des Systèmes*, Université Montpellier 2 (2001).
- P. Lefort, J. Desmaison, M. Billy, Cinétique d'oxydation du nitrure de titane: comportement de plaquettes de nitrure TiN<sub>0,91</sub> en atmosphère d'oxygène, *J. Less-Common Met.*, 60 (1978), p. 11-24.

- J. Lemaître, J.L. Chaboche, *Mécanique des matériaux solides*, Dunod (1988).
- J. Lemaître, *A course on damage mechanics*, Springer, 2<sup>nd</sup> Edition (1991).
- M.H. Lewis, P. Barnard, Oxidation mechanism in Si-Al-O-N ceramics, *J. Mater. Sci.*, 15 (1980), p. 443-448.
- C. Martin, B. Cales, P. Vivier, P. Mathieu, Electrical Discharge Machinable Ceramic Composites, *Mater. Sc. Eng. A*, 1009 (1989), p. 351-356.
- A. Martinier, *Durée de vie des aciers réfractaires pour outillages SPF : essais et simulation*, Thèse de l'Ecole Nationale Supérieure des Mines de Paris (2005).
- A. Mathieu, S. Pontevicci, J.-C. Viala, E. Cicala, S. Mattei, D. Grevey, Laser brazing of a steel/aluminium assembly with hot filler wire (88% Al, 12% Si), *Mater. Sci. and Eng A*, 435-436 (2006), p. 19-28.
- A. Mathieu, R. Shabadib, A. Deschamps, M. Suery, S. Mattei, D. Grevey, E. Cicala, Dissimilar material joining using laser (aluminum to steel using zinc-based filler wire), *Opt. & Laser Tech.*, 39 (2007), p. 652-661.
- Matsuda, F., Nakagawa, H., Katayama, S., Arata, Y., Weld metal cracking and improvement of 25% Cr - 20% Ni (AISI) fully austenitic stainless steel. *Trans. IWS 13* (1982), p. 41-58.
- R.L. Mehan, M.R. Jackson, M.D. McConnell, N. Lewis, The solid-state reaction of silicon nitride with an Ni-base alloy, *J. Mat. Sc.*, 18 (1983), p. 508-514.
- T. Murakami, K. Nakata, H. Tong, M. Ushio, Dissimilar metal joining of aluminium to steel by MIG arc brazing using flux cored wire, *ISIJ International*, vol.43 n°10 (2003), p. 1596-1602.
- T. Murakami, K. Nakata, H. Tong, M. Ushio, Dissimilar metal joining of steel to aluminium by lap joint MIG arc brazing, *Transactions of JWRI*, vol.32 n°1 (2003), p. 35-37.
- L.U.J.T. Ogbuji, S.R. Bryan, The SiO<sub>2</sub>-Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> interface, part I: nature of the interface, *J. Am. Ceram. Soc.*, vol.78 n°5 (1995), p. 1272-1278.
- L.U.J.T. Ogbuji, The SiO<sub>2</sub>-Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub> interface, part II: O<sub>2</sub> permeation and oxidation reaction, *J. Am. Ceram. Soc.*, vol.78 n°5 (1995), p. 1279-1284.
- N. Perrin, *Développement de nouvelles nuances de flux non toxiques pour la brasage fort, projet de fin d'études de l'Ecole Polytechnique de l'Université de Nantes* (2000).
- M.J. Rathod, M. Kutsuna, Joining of aluminium alloy 5052 and low-carbon steel by laser roll welding, *Welding Journal*, (2004), 16s-26s.
- P.N. Sabapathi, M.A. Wahab, M.J. Painter, Numerical models of in service welding of gas pipelines, *International Journal of Pressure Vessels and Piping*, 77 (2000), p. 669-677.
- J.C. Schuster, F. Weitzer, J. Bauer, H. Nowotny, Joining of silicon nitride ceramics to metals : the phase diagram base, *Mat. Sc. Eng. A*, 105/106 (1988a), p. 201-206.
- J.C. Schuster, Silicon nitride-metal joints : phase equilibria in the systems Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>-Cr, Mo, W and Re, *J. Mat. Sc.*, 23 (1988b), p. 2792-2796.

- V. Shankar, T.P.S. Gill, A.L.E. Terrance, S.L.M. Mannan, S. Sundaresan, Relation between microstructure, composition and hot cracking in Ti-stabilized austenitic stainless steel weldments, *Metall. Mater. Trans. A*, 31 (2000), p. 3109-3122.
- G. Sierra, Etude métallurgique et mécanique de l'assemblage hétérogène acier/aluminium par les procédés laser et TIG, Thèse de l'université Montpellier 2 (2006).
- M. Soucail, L. Naze, A. Moal, J.P. Ferté, Modélisation du soudage par friction inertielle du superalliage à base de nickel Astroloy, *Revue Scientifique Snecma*, 4 (1993), p. 33-44.
- K. Sukanuma, T. Okamoto, M. Shimada, High pressure bonding of nitrides and iron, *High Temperature-High Pressures*, 16 (1985), p. 627-635.
- Suutala, N., Takalo, T., Moisio, T., The relationship between solidification and microstructure in austenitic and austenitic-ferritic stainless steel welds. *Metall. Trans. A*, 10 (1979), p. 512-514.
- A. Tampieri, E. Landi, A. Bellosi, The oxidation behaviour of monolithic TiN ceramic, *Br. Ceram. Trans. J.*, 90 (1991), p. 194-196.
- M. Tanaka, M. Ushio, J.J. Lowke, Numerical study of gas tungsten arc plasma with anode melting, *Vacuum*, 73 (2004), p. 381-389.
- F.J.J. Van Loo, J.H. Gulpen, A. Kodentsov, *Joining Ceramics, Glass and Metal*, Ed. H. Krappitz and H.A. Schaeffer (1993), p. 3-14.
- J.C. Viala, M. Peronnet, F. Barbeau, F. Bosselet, J. Bouix, Interface chemistry in aluminium alloy castings reinforced with iron base inserts, *Composites Part A*, 33 (2002), p. 1417-1420.
- J. Vleugels, T. Laoui, K. Vercammen, J.P. Celis, O. Van Der Biest, Chemical interaction between a sialon cutting tool and iron-based alloys, *Mat. Sc. Eng. A*, 187 (1994), p. 177-182.
- J. Vleugels, O. Van Ver Biest, Chemical reactivity of nickel and nickel-based alloy with a SiAlON ceramic, *J. Am. Ceram. Soc.*, vol.78 n°11 (1995), p. 3002-3008.
- W.A. Weibull, A statistical distribution of wide applicability, *J. Appli. Mech.*, vol.18 n°3 (1951), p. 293-297.
- Wu, X.Q., Jing, H.M., Zheng, Y.G., Yao, Z.M., Ke, W., Hu, Z.Q., The eutectic carbides and creep ruptures strength of 25Cr20Ni heat-resistant steel tubes centrifugally cast with different solidification conditions, *Mater. Sci. Eng. A*, 293 (2000), p. 252-260.
- N. Yassef, Etude du régime thermique lors du soudage d'un acier austénitique, Rapport de DEA Mécanique des Matériaux et des Milieux Complexes, des Structures et des Systèmes, Université Montpellier 2 (2002).
- M. Yasuyama, K. Ogawa, T. Taka, Spot welding of aluminium and steel sheet with an insert of aluminium clad steel sheet: dissimilar metal joining of aluminium and steel sheet (1<sup>st</sup> report), *Welding International*, 10-12 (1996), p. 965-970.
- H.T. Zhang, J.C. Feng, P. He, H. Hackl, Interfacial microstructure and mechanical properties of aluminium-zinc-coated steel joints made by a modified metal inert gaz welding-brazing process, *Materials Characterization*, vol. 58, n°7 (2006), p. 588-592.