



**HAL**  
open science

# Relation entre la microstructure, l'état mécanique et la fissuration de cermets alumine chrome élaborés à partir de poudres nanocomposites

Guillaume Geandier

► **To cite this version:**

Guillaume Geandier. Relation entre la microstructure, l'état mécanique et la fissuration de cermets alumine chrome élaborés à partir de poudres nanocomposites. Autre [cond-mat.other]. Institut National Polytechnique de Lorraine, 2002. Français. NNT : 2002INPL067N . tel-01749770v1

**HAL Id: tel-01749770**

**<https://hal.univ-lorraine.fr/tel-01749770v1>**

Submitted on 29 Mar 2018 (v1), last revised 10 Jun 2004 (v2)

**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.



## AVERTISSEMENT

Ce document est le fruit d'un long travail approuvé par le jury de soutenance et mis à disposition de l'ensemble de la communauté universitaire élargie.

Il est soumis à la propriété intellectuelle de l'auteur. Ceci implique une obligation de citation et de référencement lors de l'utilisation de ce document.

D'autre part, toute contrefaçon, plagiat, reproduction illicite encourt une poursuite pénale.

Contact : [ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr](mailto:ddoc-theses-contact@univ-lorraine.fr)

## LIENS

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 122. 4

Code de la Propriété Intellectuelle. articles L 335.2- L 335.10

[http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg\\_droi.php](http://www.cfcopies.com/V2/leg/leg_droi.php)

<http://www.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm>

**INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE**

[57] 2002 GEANDIER, G.

**Relation entre la microstructure, l'état mécanique et la fissuration  
de cermets alumine chrome  
élaborés à partir de poudres nanocomposites**

Thèse présentée par

**Guillaume GEANDIER**

Pour obtenir le grade de

**DOCTEUR DE L'I.N.P.L.**

Spécialité : Science et Ingénierie des Matériaux

Soutenue publiquement le 29 Octobre 2002

**Composition du jury :**

Andreas MORTENSEN	Professeur	Président
Tanguy ROUXEL	Professeur	Rapporteur
Georges CAILLETAUD	Professeur	Rapporteur
Anke PYZALLA	Privat Dozent	Examinatrice
Sabine DENIS	Professeur	Directrice de thèse
Alain MOCELLIN	Professeur	Directeur de thèse

Service Commun de la Documentation  
INPL  
Nancy-Brabois



Le travail présenté dans ce mémoire a été réalisé au Laboratoire de Science et Génie des Matériaux et de Métallurgie (L.S.G.2M.) de l'Ecole des Mines de Nancy, dirigé par monsieur André Simon puis monsieur Jean-Marie Dubois que je remercie pour leur accueil.

J'exprime ma reconnaissance aux membres du jury qui ont accepté de juger ce travail, monsieur Andreas Mortensen du Laboratoire de Mécanique Métallurgique de Lausanne, monsieur Tanguy Rouxel du Laboratoire de Mécanique Appliquée de l'Université de Rennes, monsieur Georges Cailletaud de l'Ecole des Mines de Paris et madame Anke Pyzalla de la Technischen Universität de Berlin.

Je remercie particulièrement madame Sabine Denis et monsieur Alain Mocellin pour avoir dirigé cette thèse. J'associe à ces remerciements monsieur Alain Hazotte pour avoir dirigé cette thèse de façon non officielle. Leur disponibilité et leur expérience ont permis de mener ce travail au-delà des objectifs premiers.

J'exprime ma gratitude aux membres du L.S.G.2M. qui ont été (contraints et) forcés à s'intéresser aux cermets, David Bonina pour l'élaboration des échantillons que j'ai torturés, Patrick Weisbecker pour l'analyse de la diffraction des rayons X et autres contraintes, Jean-Pierre Haeussler et Jean Bernard Ledeuille pour leur patience face aux caprices de cermets emprisonnés dans une microsonde de Castaing et Pierre Delcroix pour avoir réussi à exploiter les spectres Mössbauer de ces étranges poudres.

J'exprime également ma gratitude à Jean-Lou Lebrun pour m'avoir permis de découvrir la détermination des contraintes par rayonnement synchrotron et Eric Elkaim pour son aide lors des expériences sur le synchrotron du L.U.R.E.

Je remercie également Eric Maire du Groupe d'Etudes de Métallurgie Physique et de Physique des Matériaux (GEMPPM) de Lyon, pour les images de tomographie et Jean-Marie Hiver du Laboratoire de Physique des Matériaux pour son aide dans la destruction contrôlée du verre et des cermets lors des indentations.

Je remercie vivement tous les membres du L.S.G.2M. pour leur aide diverse, dans les domaines scientifiques, techniques et administratifs pour l'accomplissement de ce travail. Ainsi que pour l'ambiance qu'ils contribuent à mettre dans le laboratoire avec l'aide de tous les thésards que je remercie également.

Je remercie tout particulièrement mes parents et ma sœur pour leur soutien lors de ces nombreuses années d'études de même de tous les autres qui sont trop nombreux pour être cités ici. Soyez rassurés les études maintenant c'est fini, je passe à autre chose.

Enfin, je tiens à remercier tous les groupes d'aventuriers et autres créatures féériques des mondes parallèles (et aussi ceux qui les ont manipulés) qui ont peuplé mes nuits et mes week-ends et m'ont permis de ne pas sombrer dans la folie provoquée par les cermets...



---

Oj Darak og gen ak og gen gotrak...

Aux Orcs de ce monde et des autres...

## Sommaire

---



**RELATION ENTRE LA MICROSTRUCTURE, L'ETAT MECANIQUE ET LA FISSURATION  
DE CERMETS ALUMINE-CHROME ELABORES A PARTIR DE POUDRES NANOCOMPOSITES.**

<i>Introduction générale</i> .....	<b>11</b>
<b>Chapitre 1: Elaboration et caractérisation des cermets Alumine/Chrome</b> .....	<b>15</b>
<b>Introduction</b> .....	<b>15</b>
<b>A – Mécanosynthèse : élaboration et caractérisation des poudres</b> .....	<b>15</b>
A-1 Préparation des poudres alumine – chrome : .....	16
A-2 Analyses par diffraction des rayons X .....	17
A-3 Analyses chimiques .....	19
Analyses élémentaires .....	19
Spectroscopie Mössbauer .....	21
A-4 Analyse granulométrique.....	22
Conclusion de l'étude des poudres alumine chrome .....	23
<b>B - Etude du composite densifié</b> .....	<b>25</b>
B-1 Frittage : densification du composite.....	25
B-2 Nature des constituants et composition chimique.....	27
B-2.1 Diffraction des rayons X .....	27
Phases minoritaires par diffraction des rayons X .....	28
B-2-2 Fluorescence.....	29
B-2.3 Analyses chimiques .....	30
a- Analyse chimique locale .....	30
b- Analyse élémentaires sur les échantillons massifs.....	32
c- Spectroscopie Mössbauer.....	32
<b>C – Microstructure : observations et analyses quantitatives</b> .....	<b>33</b>
C-1 Présentation d'ensemble des microstructures .....	33
C-1.1 Evolution de la microstructure en fonction du temps de broyage. ....	33
C-1.2 Evolution de la microstructure avec la fraction volumique .....	35
Taille de grains de l'alumine .....	37
C-2 Taille et forme des particules métalliques .....	37
C-2.1 Fraction surfacique/volumique .....	37
C-2.2 taille des particules métalliques .....	38
Principe de la mesure des surfaces de particules par analyse d'images .....	38
C-2.3 Facteur de forme des particules métalliques .....	40
C-3 Connexité de la microstructure.....	41
C-3.1 Connexité 2D.....	41

Sommaire

C-3.2 microtomographie X .....	42
C-3.3 Connexité de la microstructure 3D .....	44
<b>D – Discussion / Conclusion .....</b>	<b>47</b>
<b>Chapitre II : Contraintes résiduelles dans des cermets Alumine Chrome .....</b>	<b>49</b>
<b>Introduction .....</b>	<b>49</b>
<b>A – Approche micromécanique .....</b>	<b>49</b>
A-1 - Propriétés thermomécaniques des phases .....	50
A-2 - Maillages .....	53
A-2.1 Microstructures idéales .....	53
a) – 3D .....	53
b) – 2D .....	53
A-2.2 Microstructure réelles .....	54
a) - Obtention d'un maillage 2D .....	54
b) - Obtention d'un maillage 3D .....	55
A-3 - Champs de contraintes locales .....	56
A-3.1 Microstructures idéales 3D .....	56
a - Evolution des contraintes en fonction de la température .....	56
b - Effet de la fraction volumique .....	59
c – Effet du comportement mécanique du chrome .....	60
A-3.2 Comparaison entre modèles 2D et 3D .....	60
A-3.3 Microstructures réelles 2D .....	62
Cas d'une particule ayant une forme globalement circulaire .....	64
Cas de deux particules en forte interaction .....	64
Cas de particules présentant des concavités .....	65
A-3.4 Microstructures idéales 3D avec des morphologies complexes .....	66
a- Maillages éléments finis .....	66
b- Résultats .....	67
A-3.5 Microstructure réelle 3D .....	70
A-4 Contraintes moyennes dans les phases .....	73
<b>B - Détermination expérimentale de contraintes par diffraction des Rayons X dans des cermets alumine chrome .....</b>	<b>75</b>
B-1 - Théorie – Méthode .....	75
B-2 Paramètres expérimentaux .....	77
B-2.1 Préparation des échantillons .....	77
B-2.2 Détermination du paramètre $2\theta_0$ .....	79
B-3 - Contraintes dans les cermets alumine chrome .....	80
B-3.1 Vérification de la longueur d'onde .....	80

B-3.2 Diffractogrammes – détermination des paramètres de mailles des échantillons massifs et des poudres .....	80
B-3.3 Application de la méthode des $\sin^2 \psi$ aux cermets .....	83
B-4 Tenseur des contraintes dans les phases.....	86
<b>C - Synthèse - discussion.....</b>	<b>89</b>
Du point de vue expérimental .....	90
Du point de vue du calcul .....	92
<b>Chapitre III : fissuration des composites alumine chrome.....</b>	<b>95</b>
<b>Introduction .....</b>	<b>95</b>
<b>A – Théorie de Hertz – contact élastique.....</b>	<b>95</b>
A-1 Détermination du champ de contraintes .....	96
A-2 Modèles pour la détermination de la ténacité.....	98
Description du modèle de Franck & Lawn .....	98
<b>B – Principe de l'indentation – Application à un matériau connu : le verre.....</b>	<b>101</b>
Modèle de Warren .....	104
Modèle de Franck & Lawn .....	105
Discussion sur les résultats du verre.....	106
<b>C – Application de l'indentation de Hertz aux cermets.....</b>	<b>110</b>
C-1 – Protocole expérimental .....	110
C-2 Echelle macroscopique : applications des modèles de détermination de la ténacité aux cermets.....	112
Observations des fissures superficielles.....	112
Observation des fissures en cône.....	113
Modèle de Warren .....	114
Modèle de Franck & Lawn .....	115
Discussion sur les valeurs de ténacité des cermets .....	117
C-3 Analyse des fissures en cône : du macroscopique au microscopique.....	119
angle du cône .....	119
Rôle de la microstructure.....	122
C-4 Echelle microscopique : interaction fissure - particules.....	123
<b>D- Analyse - discussion .....</b>	<b>128</b>
D-1 Déviation des fissures / Décohésion des particules .....	128
D-2 Déformation des particules .....	130
D-3 Cas intermédiaire : la particule sphérique.....	131
<b>Résumé .....</b>	<b>132</b>
Optimisation des microstructures des cermets .....	134
<b>Conclusions &amp; perspectives .....</b>	<b>135</b>

<b>Annexe 1 - Mesure de la connexité d'une microstructure 3D.....</b>	<b>139</b>
<b>Annexe 2- Etude de sensibilité des résultats de calculs .....</b>	<b>141</b>
I- Sensibilité aux données d'entrée .....	141
I-1 influence des propriétés mécaniques du chrome.....	141
a- limite d'élasticité .....	141
b- module d'écroutissage.....	143
c- Module d'Young et coefficient de Poisson .....	144
I-2 Influence des propriétés mécaniques de la phase céramique .....	144
I-3 Influence de la température de relaxation.....	147
II- Sensibilité des résultats au modèle éléments finis .....	148
II -1 Influence de la taille du maillage .....	148
II-2 Influence des conditions de périodicité.....	149
<b>Annexe 3- Connexité de la céramique.....</b>	<b>151</b>
<b>Annexe 4- Constantes radiocristallographiques.....</b>	<b>153</b>
<b>Annexe 5- Equations du champ de contraintes Hertzien à la surface et sur l' axe.....</b>	<b>156</b>
Pour les contraintes à la surface : .....	156
Pour les contraintes le long de l'axe : .....	156
<b>Annexe 6- Champ de contraintes en contact glissant.....</b>	<b>157</b>
chargement normal.....	157
chargement tangentiel .....	158
<b>Annexe 7- Champ de Hertz dans les cermets .....</b>	<b>160</b>
<b>Annexe 8- Simulation des trajectoires de fissure lors d' un contact de Hertz.....</b>	<b>163</b>
<b>Annexe 9- Profils de contraintes sur des microstructures idéales en traction (avec contraintes résiduelles).....</b>	<b>168</b>
<b>Annexe 10- Liste des publications.....</b>	<b>174</b>
<b>Bibliographie.....</b>	<b>177</b>

**RELATION ENTRE LA MICROSTRUCTURE, L'ETAT MECANIQUE ET LA FISSURATION  
DE CERMETS ALUMINE-CHROME ELABORES A PARTIR DE POUDRES NANOCOMPOSITES.**

## *Introduction générale*

Dans la littérature, de nombreux articles traitent de l'optimisation des propriétés mécaniques des céramiques par l'introduction dans la matrice, soit de fibres céramiques [Gian91a, Urre97, Laar01] ou de particules céramiques [Belm96, Taru97, Wang01, Stern96], soit de particules métalliques par différents procédés comme la mécanosynthèse [Osso95, Guic98a, Guic97, Matt97, Loeh96, Jeon97, Schic97, Slag99] ou l'infiltration de métal liquide dans une matrice poreuse [Rodel95, Lieb01, Kuma01]. Le but de l'addition de métal dans une matrice céramique est l'optimisation de certaines propriétés mécaniques de la céramique [Ewsu96, Seki97], comme sa résistance à la rupture [Walk94, Jeon97, Agha89, Aldri01], sa dureté [Mukh93, Nawa94, Mish01, Dutta01] ou sa ténacité [Cho95, Tuan90, Trust97, Sbal00]. L'amélioration est obtenue par pontage des fissures par les particules ou les fibres de renfort, comme explicité par Bao, et al [Bao90, Sigl88], la déviation des fissures par des interfaces [Sun96b] et la déformation élastique et plastique des particules ou des fibres.

La phase servant de matrice et la phase de renfort ont en général des propriétés thermo-mécaniques très différentes du point de vue du module d'Young, du coefficient de Poisson et de la limite d'élasticité mais également du coefficient de dilatation thermique. Ces différences introduisent dans les deux phases des contraintes lors du refroidissement du composite. Ces contraintes résiduelles peuvent être bénéfiques pour les mécanismes de renfort en permettant de réduire la formation de microfissures et leur propagation. L'analyse des contraintes résiduelles expérimentalement et par calcul est largement pratiquée dans les matériaux métalliques [Akse01, Broec91] ou céramiques avec renforts [Mart99], elle l'est moins dans les composites céramique métal et leurs effets sur la propagation des fissures ont été peu explorés. Certains auteurs [Luo97, Robe00] ont étudié le rôle des contraintes résiduelles sur l'augmentation de ténacité de composites alumine-SiC, mais en utilisant des modèles simples, basé sur l'inclusion d'Eshelby pour la détermination de la distribution de contraintes dans le composite. Des études de répartition des contraintes ont été menées dans des composites alumine-métal par diffraction de neutrons [Choo99, Fitz97] ou de rayons X [Leon98], mais elles n'ont pas fait le lien entre les contraintes, l'augmentation des propriétés mécaniques et la propagation des fissures dans les composites, même si certaines montrent que la forme et la distribution des particules dans les composites à matrice fragile [Sun96a] influencent leurs propriétés.

L'utilisation des calculs par éléments finis, notamment, permet la détermination des contraintes et déformations dans les matériaux multiphasés, avec deux objectifs principaux : la prévision des propriétés macroscopiques du composite [Broec91, Zimm01] ou la connaissance fine des contraintes issues du procédé d'élaboration à l'échelle de la microstructure en utilisant des modèles plus ou moins simples pour représenter au mieux la microstructure réelle des composites étudiés [Chri89].

A ce jour, à notre connaissance, il n'existe pas d'étude faisant le lien entre les contraintes résiduelles issues de l'élaboration d'un composite à matrice céramique renforcée par des particules métalliques et plus

## Introduction générale

généralement l'état mécanique d'un composite et la propagation des fissures dans son volume en prenant en compte la microstructure.

### **Présentation de l'étude :**

L'étude de composites alumine-métal engagée il y a plusieurs années au Laboratoire de Science et de Génie des Matériaux et de Métallurgie, a donné lieu à plusieurs thèses [Osso92, Guic98b], portant sur l'élaboration de poudres et d'échantillons massifs. Ces composites sont obtenus par pressage à chaud de poudres provenant du broyage réactif entre des poudres d'aluminium, d'alumine et d'oxydes de chrome ou de fer.

Un des objectifs de ce travail est de mieux connaître les différents constituants et les différentes phases des poudres mais aussi des échantillons massifs. Les composites alumine chrome sont élaborés par un broyage à haute énergie réalisé dans un broyeur planétaire en présence de billes en acier permettant d'initier la réaction de réduction de l'oxyde de chrome pour produire des poudres constituées d'un mélange d'alumine, d'oxyde de chrome, de chrome et d'aluminium. Par un pressage à chaud de ces poudres, le composite est densifié et est constitué au final de deux phases majoritaires : alumine et chrome. Différents types de composites ont ainsi été caractérisés, ils correspondent à des fractions volumiques de chrome comprises entre 5 et 36%. Pour la fraction volumique à 36%, différentes méthodes d'élaboration ont été testées permettant d'obtenir des microstructures très diverses, l'évolution de la microstructure en fonction des conditions de broyage des poudres a également été analysée.

Pour mieux connaître le champ de contraintes internes ou résiduelles, une approche micromécanique est utilisée. Ces contraintes sont générées lors du refroidissement après le pressage des poudres, du fait des différences existant entre les propriétés thermo-mécaniques des constituants des échantillons massifs. Ces contraintes pouvant conduire à la détérioration et à la fissuration du composite pourraient peut-être aussi être utilisées avec avantage et renforcer le composite, du moins localement selon les tailles et dispositions relatives des phases en présence.

Les calculs par éléments finis ont été mis en œuvre sur des géométries proches de celles de la microstructure réelle en utilisant des arrangements périodiques de particules (en 2D et 3D) avec des formes simples pour les particules (particules sphériques dans un cube d'alumine) avec des fractions volumiques de métal comprises entre 1 et 40%. Puis l'utilisation d'images issues de la microscopie électronique à balayage (pour des images 2D) ou de la microtomographie (permettant d'obtenir une représentation 3D de la microstructure) comme support de maillage pour les calculs ont permis de mettre en évidence des configurations et des arrangements particuliers de particules.

Les résultats des calculs par éléments finis ont été confrontés aux résultats expérimentaux de détermination des contraintes moyennes dans les phases métallique et céramique. La détermination expérimentale des contraintes a été réalisée au LURE en utilisant le rayonnement synchrotron de la ligne DW22. Pour la détermination des contraintes des procédures de préparation des échantillons ont été mises en place pour s'assurer que les résultats expérimentaux sont bien représentatifs du volume et obtenir les paramètres des phases dans leurs états non contraints afin d'obtenir le tenseur complet des contraintes. Les résultats expérimentaux de détermination des contraintes ont été comparés à ceux issus des calculs par éléments finis.

En plus de cette étude des constituants, de la microstructure et des contraintes internes, une procédure d'indentation de type hertzien (indentation d'un échantillon plan par une sphère) a été mise en place pour analyser le mode de fissuration des échantillons massifs. Cette procédure a été choisie en raison de la littérature abondante qui existe à son propos, de la reproductibilité du processus de fissuration qu'elle induit, avec une fissure en cône caractéristique, mais aussi de la possibilité de déterminer analytiquement le champ de contraintes généré par l'indentation pour le cas d'un milieu homogène et isotrope. Cette technique a été calibrée avec un matériau connu, le verre, avant d'être appliquée aux cermets  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -métal.

La technique d'indentation a été éprouvée sur le verre en déterminant par deux modèles utilisant des approches physiques différentes, la ténacité ( $K_{Ic}$ ) du verre qui est bien connue par diverses méthodes dans la littérature. Les deux modèles pour la détermination de la ténacité sont basés pour l'un sur les fissures qui apparaissent à la surface de l'échantillon, au niveau de la fissure circulaire formée près de l'indenteur et l'autre sur ce qui se passe en profondeur, le long du cône de fissure.

Les données issues des calculs et de l'étude de la fissuration sont comparées pour mieux comprendre l'influence de la microstructure et des champs locaux de contraintes sur le comportement et les trajectoires des fissures dans des composites biphasés alumine-métal. Des voies concrètes d'amélioration voire d'optimisation des microstructures au regard de la résistance à la fissuration en seront ainsi dégagées.

#### **Plan du mémoire :**

Au premier chapitre de ce document, nous traitons de l'élaboration des composites alumine-chrome et de leur caractérisation microstructurale et chimique tout au long du processus, c'est-à-dire depuis les poudres brutes utilisées pour la mécanosynthèse jusqu'au composite sous sa forme dense. Différents types de composites sont étudiés, ils contiennent diverses fractions volumiques de chrome; différentes voies d'élaboration ont également été testées pour faire varier leurs propriétés mécaniques.

Le second chapitre concerne la détermination des contraintes résiduelles dans les phases alumine et chrome à diverses échelles. Tout d'abord à l'échelle de la microstructure, en utilisant un code éléments finis pour la détermination des champs de contraintes locaux sur des microstructures modèles, simples à mettre en œuvre et aisément analysables, mais également sur des microstructures proches de la microstructure réelle des composites. Ensuite, les résultats des calculs sont confrontés aux résultats expérimentaux avec la détermination des contraintes grâce au rayonnement synchrotron. Un protocole expérimental a été mis en place pour la détermination du tenseur complet des contraintes, pour les cermets alumine chrome.

Le troisième chapitre traite de la fissuration du composite par indentation de Hertz. La méthode est tout d'abord testée sur un matériau connu et pour lequel la littérature est abondante : le verre. Ensuite elle est transposée sur les cermets alumine chrome. Le mode de fissuration des cermets est analysé en relation avec la technique d'indentation, de la microstructure du composite et de son état mécanique.





## *Chapitre 1: Elaboration et caractérisation des cermets Alumine/Chrome*

### Introduction

Les composites étudiés dans ce travail sont obtenus par densification de poudres d'alumine-chrome élaborées par un broyage réactif. Les applications et les utilisations envisagées pour ces composites nécessitent de les préparer sous leur forme dense, pour laquelle il est important de connaître la nature des constituants ainsi que les conditions d'élaboration pour mieux comprendre les effets de ces paramètres sur les propriétés mécaniques du composite final. Sur la base des travaux de J.L. Guichard et D. Osso [Guic98b, Osso92], des analyses des poudres ont été réalisées en faisant varier certains paramètres du broyage, notamment le temps de broyage, pour connaître l'influence des éléments de broyage (billes, jarres, poudres) sur le composite dense. Le but est d'obtenir des échantillons aussi reproductibles que possible, et dont les paramètres microstructuraux sont connus pour la suite des analyses des contraintes internes (dans le chapitre II) et permettant de poser les hypothèses du calcul micromécanique et de la fissuration (chapitre III) des composites.

Dans une première partie, nous nous intéresserons au processus d'élaboration : mécanosynthèse des poudres d'alumine chrome, puis densification. Les effets de certains paramètres de broyage, comme le temps de broyage et la fraction volumique, sur le composite dense seront étudiés dans une seconde partie. La microstructure finale du composite sera décrite dans la dernière partie.

### A – Mécanosynthèse : élaboration et caractérisation des poudres

La mécanosynthèse est un terme général qui définit un procédé d'élaboration à l'état solide d'alliages pulvérulents par des chocs mécaniques. Née aux Etats Unis vers les années 1970, cette technique est initialement développée par Benjamin [Benj70] pour l'élaboration de composites à fins dispersoïdes d'oxydes répartis dans une matrice métallique (alliage ODS), composites à structures résistantes à haute température destinés à l'aéronautique [Grar94].

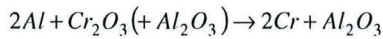
La mécanosynthèse est maintenant un procédé d'élaboration de toutes sortes de composés intermétalliques [Schw83, Caer94, Elka96, Enay97], semi-métalliques [Caer90], nitrures [Chen92], de composés ioniques et de composites [Good97, Taka97] et de façon générale, un moyen d'étude de réactions à l'état solide [Arau93]. Le broyage peut aussi être utilisé comme moyen d'activation de certaines réactions ou formation de composés [Gaff96]. Certaines possibilités de la mécanosynthèse sont détaillées dans la revue bibliographique de Suryanarayana [Sury01]

Il existe une variété importante de broyeurs permettant de faire de la mécanosynthèse : broyeur vibrant, attriteur, broyeur tournant, planétaire... Selon le type d'appareil, les billes et la poudre sont animées d'un

mouvement général d'entraînement mécanique ou de rotation et les quantités d'énergie mises en jeu peuvent varier de plusieurs ordres de grandeur.

## A-1 Préparation des poudres alumine – chrome :

Les poudres de composite alumine-chrome étudiées ici sont élaborées par un broyage réactif :



La réaction initiée par le broyage est la réduction de l'oxyde de chrome par l'aluminium pour obtenir du chrome sous forme métallique et de l'alumine. Par l'addition d'alumine dans le mélange initial de poudres, il est possible de contrôler la fraction volumique finale de chrome dans le composite [Osso92-Guic98b], cette alumine étant supposée inerte pour la réaction. Les masses respectives de poudres de départ : aluminium (ECKA - Aluminium AS 011), oxyde de chrome (Riedel de Haen) et alumine (Baikowski chimie – BaikaloX CR10) sont ajustées en fonction de la fraction volumique finale souhaitée.

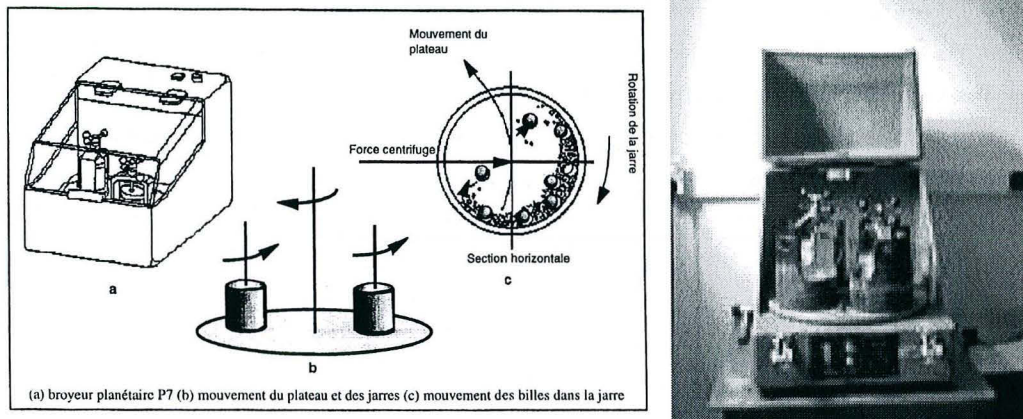


Figure I-1 : Description des broyeurs planétaires et du procédé de mécanosynthèse.

Le broyeur utilisé est un broyeur planétaire P5 (Fritsch) (figure I-1) sur lequel peuvent être placées deux ou quatre jarres d'une contenance de 500ml. Le rapport, masse de poudre sur masse de billes, a été choisi égal à 1/10 pour obtenir un régime chaotique [Maur90]. Ainsi, dans chaque jarre sont placés 500g de billes en acier (100C6) de rayon 20mm et ajouté 50g de mélange de poudre.

Pour l'étude des cermets alumine-chrome, la procédure de préparation des poudres ayant été explorée par J.L. Guichard [Guic98b], il nous fallait déterminer le temps de broyage nécessaire à l'obtention d'une microstructure reproductible, pour laquelle la réaction était la plus avancée, et limiter la pollution due aux éléments de broyage. Pour cela, en utilisant les mêmes poudres de départ et des procédures similaires pour le broyage, des lots de poudres correspondant à différents temps de broyage (entre 2 et 7 heures, avec un quart d'heure de repos après chaque heure) mais conservant une fraction volumique constante de chrome (21%) ont été étudiés du broyage jusqu'au composite dense. Une autre série de poudres conservant un temps de broyage fixe (4 heures), mais ayant des fractions volumiques de chrome comprises entre 9 et 36% a été élaborée. Pour la fraction volumique à 36%. Une seconde méthode d'élaboration a aussi été explorée pour permettre la modification de la microstructure des composites. Cette méthode d'élaboration consiste en un mélange de lots de

poudres issus de processus de broyage différents. Les échantillons correspondants seront identifiés 36% II, alors que ceux obtenus par la méthode standard seront appelés 36% I. Ce sont les études sur ces séries de poudres qui sont développées dans la suite de ce chapitre.

Des analyses par diffraction des rayons X ont été menées afin de s'assurer de la pureté des poudres de départ. Les pics des poudres de départ sont relativement fins et ne présentent pas de pics de phase minoritaire

## A-2 Analyses par diffraction des rayons X

Des diffractogrammes ont été réalisés sur les différents lots de poudres afin de déterminer les phases en présence et voir l'évolution de la réaction de réduction de l'oxyde de chrome au cours du temps. Un appareil (SIEMENS D500), muni d'une anticathode au cobalt ( $\lambda = 0,178897 \text{ nm}$ ), a été utilisé.

La figure I-2 regroupe les différents diffractogrammes pour des temps de broyage variant entre 2 et 7 heures. Les pics visibles sont ceux de l'alumine, du chrome et de l'oxyde de chrome. Sur certains diffractogrammes des pics correspondant au silicium sont visibles, celui ci a été ajouté lors de la préparation et sert d'étalon. Les pics correspondant à l'aluminium sous sa forme métallique ne sont pas visibles, ils sont confondus avec le bruit de fond. Les pics correspondant au fer sont confondus avec ceux du chrome étant donné que leurs structures et leurs paramètres de mailles sont très proches<sup>1</sup>.

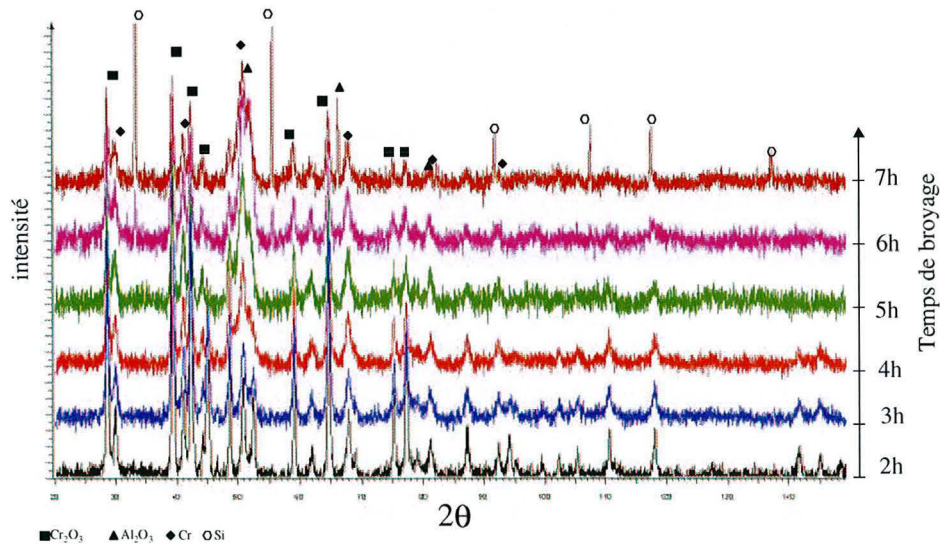


Figure I-2: diffractogrammes de poudres broyées pendant des durées comprises entre 2 heures et 7 heures  
Fraction volumique : 21% de chrome

Ces analyses aux rayons X permettent de déterminer les différentes phases en présence, à savoir, alumine, chrome et oxyde de chrome qui sont les phases majoritaires. Des phases minoritaires ont également été

<sup>1</sup> Paramètres des éléments métalliques

Al	cubique faces centrées	$Fm\bar{3}m$	$a=0.40495 \text{ nm}$	Cr	cubique centré	$Im\bar{3}m$	$a=0.28840 \text{ nm}$
Fe	cubique centré	$Im\bar{3}m$	$a=0.28664 \text{ nm}$				

détectées (aluminium et fer, ce dernier étant difficile à distinguer du chrome). La présence d'oxyde de chrome quel que soit le temps de broyage de la poudre indique que la réaction de réduction n'est pas complète. La progression de la réaction avec l'augmentation du temps de broyage est visible par une diminution de l'intensité des pics d'oxyde de chrome avec une augmentation de l'intensité des pics de chrome et d'alumine.

Ces analyses permettent également de montrer que l'alumine n'est pas pure. En effet, les pics majoritaires de l'alumine ne sont pas exactement aux positions de référence des fiches JCPDS [ $\text{Al}_2\text{O}_3$ ] et des écarts entre les pics des poudres broyées et ceux des poudres de départ (alumine, oxyde de chrome et chrome) sont observables. Cette différence de paramètres de mailles et donc de positions des pics de diffraction, peut être attribuée au chrome en solution dans l'alumine<sup>2</sup>. L'alumine présente dans le composite est donc en réalité du rubis, solution solide d'oxyde d'aluminium et d'oxyde de chrome. Un raisonnement similaire peut être effectué pour le chrome en supposant que la phase métallique est une solution chrome-fer où le fer est minoritaire. Etant donné la forme des pics (voir figure I-3) et notamment leur largeur, il est possible que la concentration en chrome de l'alumine ne soit pas homogène.

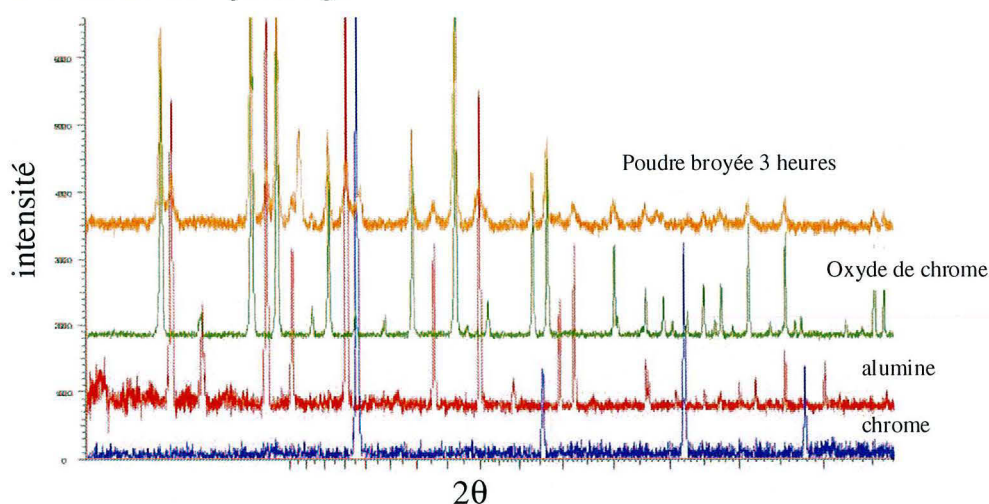


Figure I-3: forme des pics de l'alumine dans les lots de poudres poudres de départ (chrome, oxyde de chrome et alumine) et poudres broyées

L'examen des spectres de diffraction des rayons X des poudres permet d'en extraire les différents éléments [riet69], confirmant la présence des phases minoritaires, et d'évaluer les proportions des phases majoritaires ainsi que leurs variations en fonction du temps de broyage. La figure I-4 montre l'évolution de la fraction massique des phases majoritaires, en fonction du temps de broyage des poudres.

<sup>2</sup> Paramètres corindon et rubis

Corindon	Structure rhomboédrique ( $R\bar{3}C$ )	$a=0.4758$ nm	$c=1.2991$ nm (axes hexagonaux)
rubis	Structure rhomboédrique ( $R\bar{3}C$ )	$a=0.4884$ nm	$c=1.3270$ nm

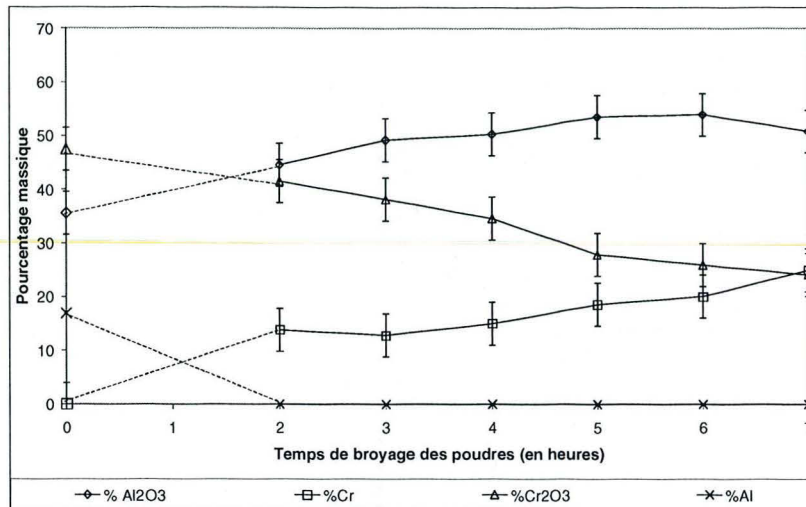


Figure I-4: évolution de la fraction massique des phases en fonction de temps de broyage des poudres pour une fraction volumique de chrome égale à 21%

La fraction massique de l'alumine augmente avec le temps de broyage et celle de l'oxyde de chrome diminue au profit du chrome. Quel que soit le temps de broyage des poudres, il reste les trois phases majoritaires, et l'évolution des taux montre une forme de saturation à partir d'une durée de broyage de 5 heures.

### A-3 Analyses chimiques

L'analyse aux rayons X ne permettant pas de distinguer et de quantifier correctement les constituants minoritaires comme le fer ou la structure de l'alumine dans les poudres (corindon ou rubis), des analyses plus globales ont été faites.

#### Analyses élémentaires

Le fer n'étant pas présent dans les poudres de départ, sa détection est révélatrice de l'usure des billes et des jarres lors du broyage. Des analyses élémentaires sur les différents lots de poudres permettent d'évaluer et de relativiser cette pollution par rapport aux deux sources possibles du fer (billes et jarres), étant données les différences de composition entre les billes et les jarres. Les résultats de ces analyses sont donnés sur la figure I-5. D'après la composition initiale des billes et des jarres, le vanadium provient exclusivement des jarres, le fer et le carbone proviennent à la fois des billes et des jarres, le chrome provient des poudres de départ mais aussi des jarres, enfin l'aluminium n'est présent que dans les poudres de départ. Pour les poudres correspondant à 4 heures de broyage, deux analyses ont été faites pour les éléments majoritaires afin de tester la variabilité en fonction des échantillons.

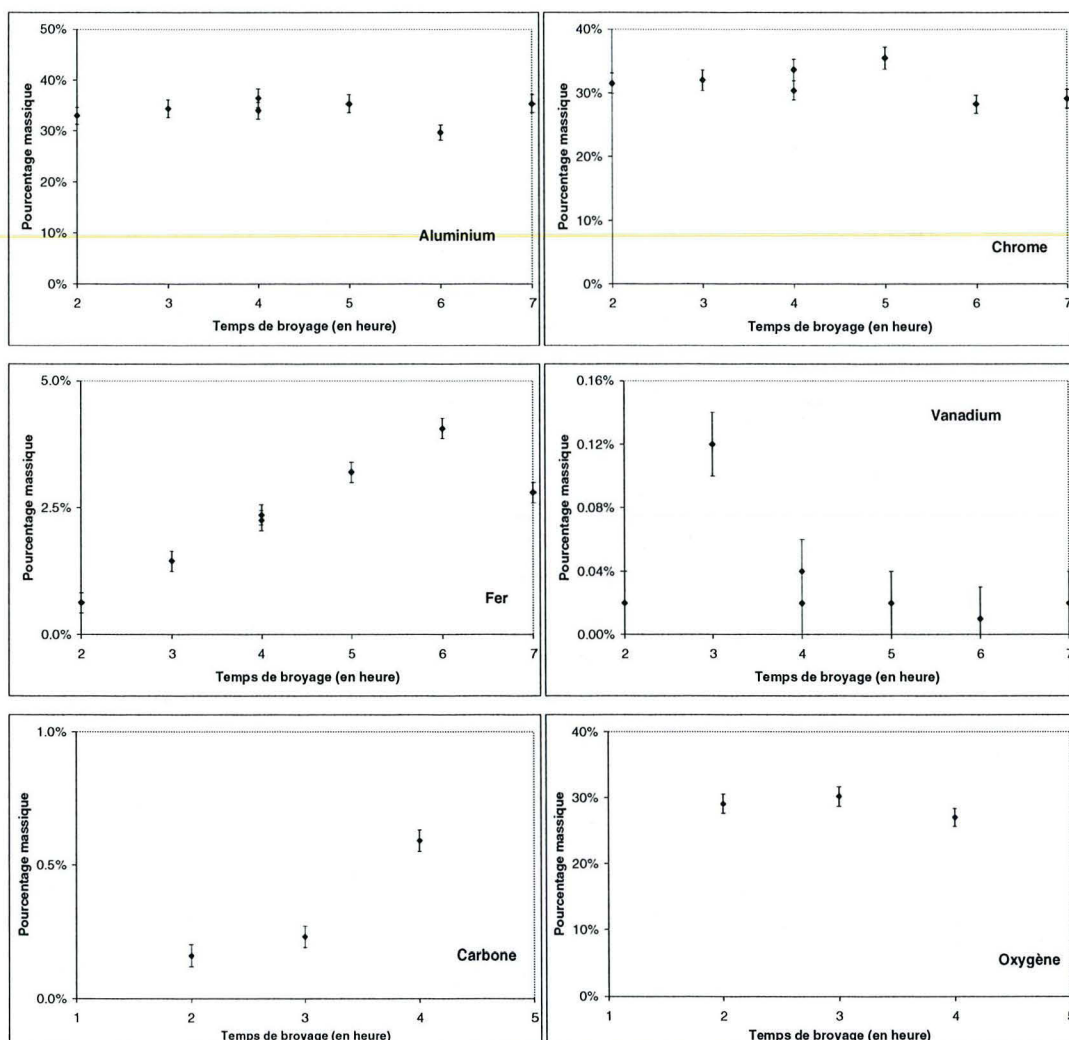


Figure I-5: analyses élémentaires des poudres après broyage

Les fractions massiques de l'aluminium, de l'oxygène et du chrome sont sensiblement constantes. Ces analyses permettent de voir que l'introduction de phases minoritaires est relativement faible : inférieure à 3% massique. Mais l'évolution du taux de fer et de carbone va dans le sens d'un accroissement avec l'augmentation du temps de broyage et donc une usure plus importante des billes et des jarres. La forte fraction massique du vanadium, pour un temps de broyage de trois heures, peut être attribuée à une inhomogénéité de la poudre étudiée, la quantité de poudre analysée étant très faible (quelques microgrammes). Les deux mesures faites pour deux poudres issues de deux broyages différents montrent une dispersion sur les valeurs bien que celles ci restent dans un même intervalle (du fait des incertitudes). Mais, cela laisse envisager qu'il peut y avoir des différences de composition d'un échantillon à l'autre mais également des hétérogénéités de composition locale.

Malheureusement, ces analyses et les données accessibles après le broyage ne permettent pas de déterminer et de quantifier complètement les différentes origines des phases minoritaires. En effet, à l'issue du broyage, les seules informations disponibles sont la perte de masse des billes et la masse de poudre récupérée. Une quantification de l'usure des jarres est compliquée et peu précise et il est difficile de savoir ce qui reste dans

la poudre non récupérée (collée aux parois des jarres et aux billes soit moins de 5% de la masse totale de poudre récupérée). De plus, il n'y a pas de corrélation directe entre le temps de broyage, la masse de poudres récupérées (poudre non collée, poudre collée sur les parois de la jarre et poudre sur les billes) et l'usure des billes. La figure I-6 montre la perte de masse des billes ainsi que la masse de poudre récupérée après le tamisage (à 100 µm). Sur un premier ensemble d' expériences, une augmentation de l'usure des billes avec une forte variation à 6 heures est observée. En comparant à l'analyse élémentaire du fer dans la poudre, pour un broyage de 6 heures, la fraction massique de fer est maximale et correspond à l'usure maximale des billes. Il existe une évolution parallèle entre la fraction de fer mesurée et l'usure des billes, ce qui permet d'expliquer l'évolution de la courbe du pourcentage massique du fer de la figure I-5 pour des temps de broyage de 6 et 7 heures.

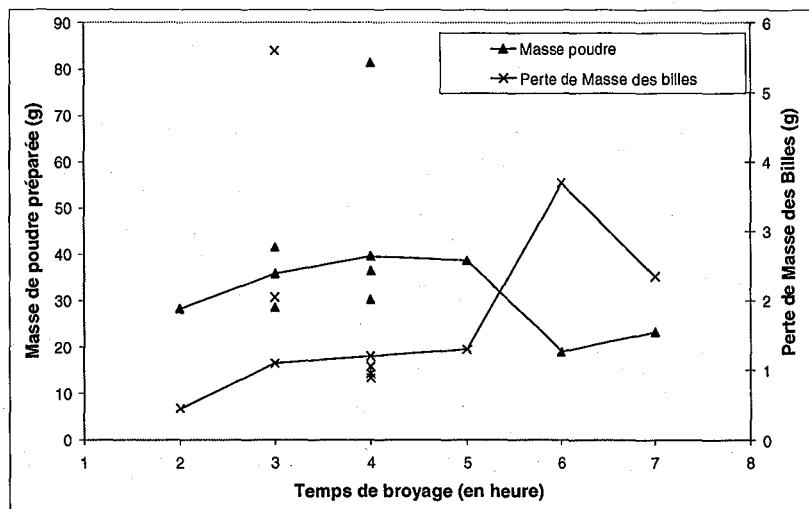


Figure I-6: évolution de la masse de poudre récupérée et de la perte de masse des billes après broyage

Concernant la poudre, la masse récupérée augmente jusqu'à un temps de broyage de 4 heures puis diminue. Cette quantité est quasiment divisée par 2 pour les temps de broyage de 6 et 7 heures. Néanmoins il faut souligner que les masses de poudres récupérées ainsi que l'usure des billes ne sont pas reproductibles. En effet, sur la figure I-6, pour un temps de broyage de 3 et 4 heures, plusieurs broyages sont représentés. Pour 3 heures de broyage, la masse de poudres varie peu alors que la perte en masse des billes varie beaucoup (de 0.2% à 1%). En revanche, pour un broyage de 4 heures, un phénomène inverse est observé, c'est-à-dire que la perte de masse des billes est quasiment identique alors que la masse de poudre varie fortement (du simple ou double) pour les différents broyages. Ainsi pour des broyages qui ont permis de récupérer 90g de poudre, la perte de masse des billes est équivalente à celle mesurée pour des broyages ayant permis d'obtenir ≈40 grammes de poudres composites. L'usure des billes est donc très variable et non reproductible.

### Spectroscopie Mössbauer

Afin de mieux caractériser le fer, sous ses différents états d'oxydation, présent dans les poudres, des analyses en spectroscopie Mössbauer en transmission ont été réalisées sur les poudres en sortie de broyeur pour différents temps de broyage. La figure I-7 présente les spectres typiques de poudre pour des durées de broyage variables et des fractions volumiques variables (avec une durée de broyage fixe).

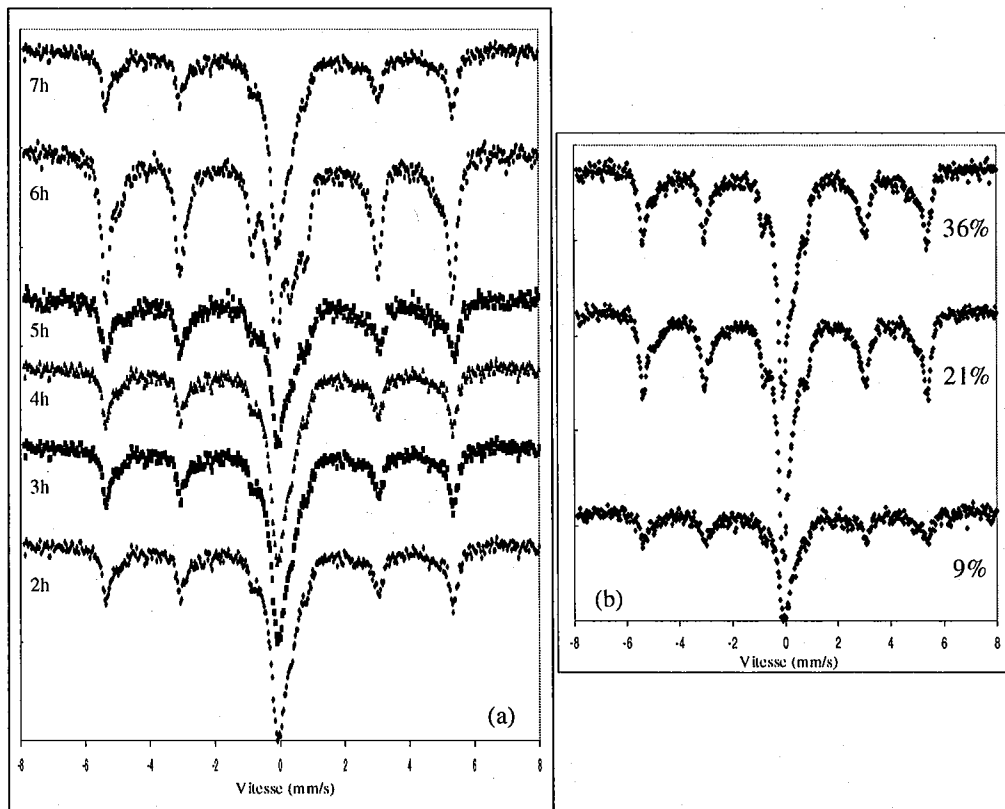


Figure I-7: spectres Mössbauer de poudres alumine-chrome pour différents temps de broyage et une fraction de chrome de 21% (a) pour différentes fractions de chrome et un temps de broyage de 4 heures ( b).

Le pic central est caractéristique du fer allié au chrome et le sextuplet de pics est caractéristique des particules de fer provenant des billes de broyage, celui-ci étant magnétique. Les analyses montrent que le fer se trouve sous différents états : à la fois sous forme métallique et allié au chrome, en fonction de sa provenance (bille ou jarre) mais le fer n'est pas sous forme oxydée. En outre il existe divers composés fer aluminium dans les poudres composites, ainsi que quelques carbures (quelques %). La proportion de fer allié dans une phase fer chrome ou avec l'aluminium résiduel augmente avec le temps de broyage, mais il reste du fer magnétique (caractérisé par le sextuplet) quel que soit le temps de broyage. Avec l'augmentation de temps de broyage des poudres, le taux de fer allié passe de 41,2%at à 48,3%at et alors que le taux de fer non allié passe de 58,3%at à 51,7%at.

#### A-4 Analyse granulométrique

La granulométrie des différents lots de poudres a été mesurée par un granulomètre laser en fonction du temps de broyage (figure I-8). Les résultats sont donnés dans le tableau I-1.



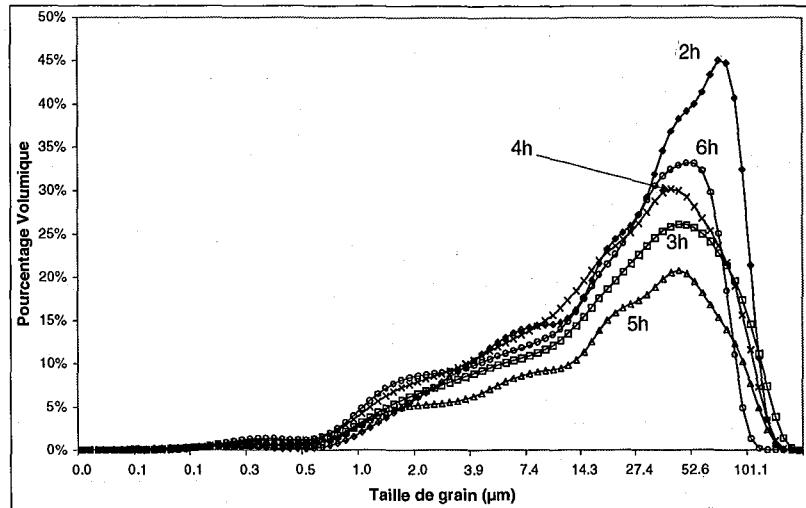


Figure 1-8: évolution de la granulométrie des poudres en fonction du temps de broyage

En analysant les positions des maxima des courbes, une diminution générale de la taille des particules avec un minimum situé aux alentours de 4 heures de broyage est observée. Il existe une forte variation de la taille des particules entre 2 et 3 heures. Les poudres broyées pendant 7 heures n'ont pas été analysées.

	$d_{10}$	$d_{25}$	$d_{50}$	$d_{75}$	$d_{90}$
2 heures	4,268	12,85	35,66	64,88	87,38
3 heures	2,748	8,477	26,12	53,55	83,75
4 heures	2,425	7,483	22,67	47,25	73,35
5 heures	2,362	7,674	23,98	48,30	74,41
6 heures	2,223	7,765	25,45	48,09	69,17

Tableau I-1 : Taille des particules (en microns) de poudre pour différents temps de broyage et pourcentage par rapport au total ( $d_n$  signifie que n% des particules ont une taille inférieure à  $d$ )

## Conclusion de l' étude des poudres alumine chrome

Les diverses analyses réalisées sur les poudres alumine-chrome ont permis de mettre en évidence que la réaction d'oxydation de l'aluminium et la réduction de l'oxyde de chrome n'est pas complète, même avec un nombre important de cycles de broyage (broyage + repos). De plus, ces analyses ont permis de mettre en évidence l'introduction dans les poudres de phases minoritaires par les éléments de broyage (billes et jarres). Ceci impliquant des évolutions de la composition chimique du composite au cours du broyage. Il a également été observé que la présence des phases minoritaires est peu reproductible.

La poudre brute, à la sortie des broyeurs est, même pour les poudres de laboratoire, rarement utilisable directement. De plus, les poudres ont un aspect et un comportement très différent en fonction des conditions expérimentales du procédé d'élaboration, que ce soit la taille, la morphologie. Il existe également des modifications de la morphologie des poudres puisque pour la récupération, il est possible d'utiliser des adjuvants organiques. Ces adjuvants peuvent également être une source de pollution des poudres.

## Chapitre 1: Elaboration et caractérisation des cermets Alumine/Chrome

Etant donnée la faible reproductibilité de la composition des poudres (éléments résiduels, taux des phases majoritaires), il est difficile de caractériser l'ensemble des échantillons par des valeurs uniques. Il est donc nécessaire de considérer chaque échantillon comme un cas particulier dont les paramètres sont proches des paramètres moyens de l'ensemble, rappelés ci dessous.

Paramètres moyens des phases dans les composites alumine chrome (broyés 4 heures) :

Chrome	$(15 \pm 3)\%$ massique	$a = 2.943 \text{ \AA} \pm 0.019$	
Alumine	$(49 \pm 5)\%$ massique	$a = 4.759 \text{ \AA} \pm 0.008$	$c = 13.013 \text{ \AA} \pm 0.012$
Oxyde chrome	$(34 \pm 4)\%$ massique	$a = 4.961 \text{ \AA} \pm 0.003$	$c = 13.595 \text{ \AA} \pm 0.005$
Composition en phases minoritaires			
Fer	$(2 \pm 1)\%$ massique		

B - Etude du composite densifié

B-1 Frittage : densification du composite

Les échantillons que nous étudions sont consolidés par pressage à chaud des poudres sèches ni désagglomérées ni classées selon la procédure suivante :

18 grammes de poudre sont introduits dans une matrice de graphite de diamètre 30 mm, chemisée avec du papier graphite (épaisseur 0.2mm).

Le pressage uni-axial à chaud, réalisé sous vide secondaire selon le cycle de la figure I-9, donne des pastilles d'environ 5mm d'épaisseur.

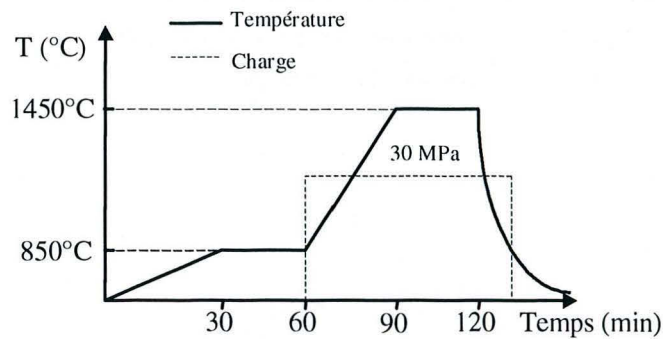


Figure I-9: cycle de température et de pression

Densité des composites

Des mesures de densité utilisant la méthode de la poussée d'Archimède ont été faites pour un composite fritté contenant 21% volumique de chrome, les résultats sont donnés sur la figure I-10.

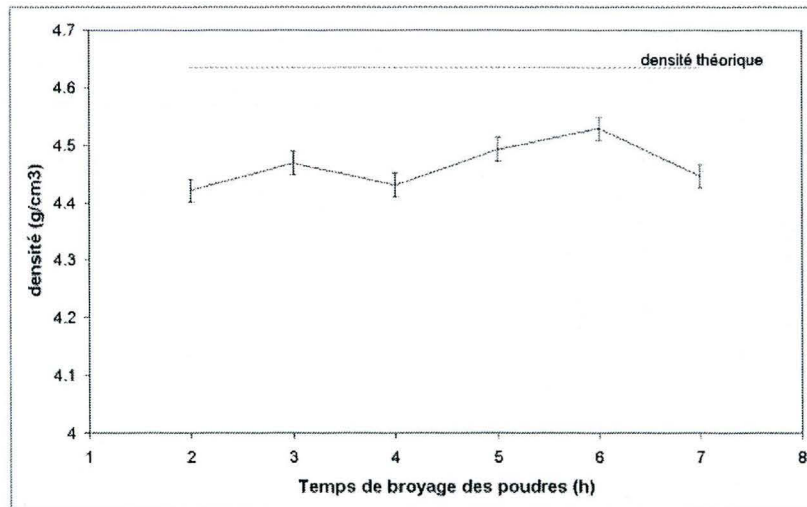


Figure I-10: mesures de densité des cermet frittés

La variation de la densité en fonction du temps de broyage est relativement faible (minimum 4,42, maximum 4,53). La valeur théorique d'un composite contenant 21% volumique de chrome est 4,56 (en considérant l'alumine pure et le chrome pur). Toutes les mesures donnent une valeur inférieure en raison des porosités et de la différence de composition chimique dans le composite réel. Par rapport à la valeur théorique, il est possible d'évaluer le taux de porosité qui est inférieur à 3%. La porosité a également été mesurée par analyse d'images, la résolution du M.E.B. étant suffisante pour distinguer l'alumine, le chrome et les porosités des composites. La comparaison des résultats concernant le taux de porosité est donnée figure I-11. La variation du taux de porosité est similaire par les deux méthodes (analyses d'images et poussée d'Archimède) sauf pour un temps de broyage de 4 heures.

L'analyse d'image ne permet pas de refléter l'évolution exacte de la porosité en fonction du temps de broyage des poudres, mais elle permet d'obtenir un ordre de grandeur de ce taux. En effet, l'analyse d'image représente une analyse locale de la microstructure et est par conséquent sensible à la statistique, alors que la poussée d'Archimède est une mesure moyenne sur l'ensemble du composite.

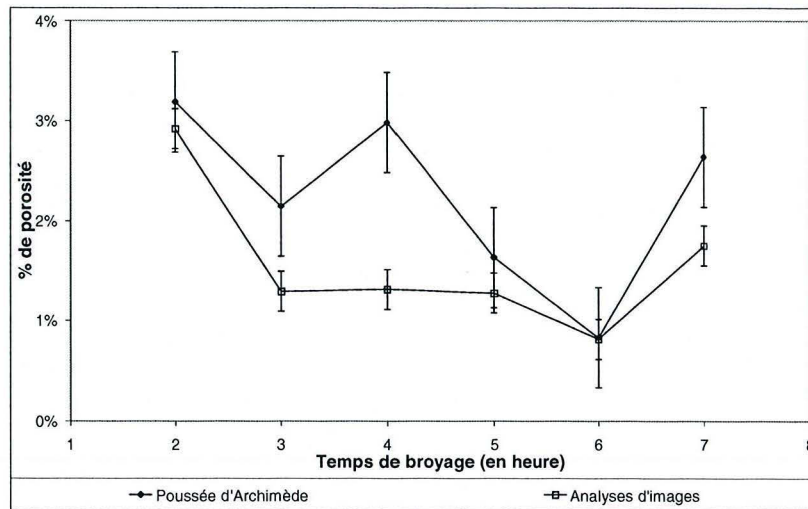


Figure I-11: Comparaison des méthodes de mesures du taux de porosité

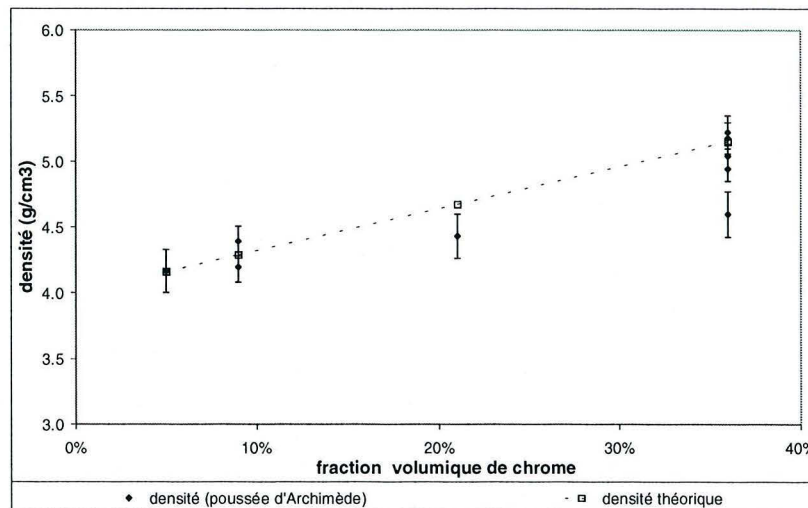


Figure I-12: évolution de la densité avec la fraction volumique de chrome

L'évolution de la densité avec la fraction volumique de chrome, présentée sur la figure I-12, montre que la densité est proche (voire au-dessus) de la densité théorique, en raison de la présence de fer dans ces composites qui représente un volume de la phase métallique plus important que dans le cas des fortes fractions volumiques. C'est pourquoi il est plus fréquent d'avoir des densités supérieures à la densité théorique pour les faibles fractions volumiques de chrome.

## B-2 Nature des constituants et composition chimique

### B-2.1 Diffraction des rayons X

Comme précédemment sur les poudres, la diffraction des rayons X est utilisée pour distinguer les différentes phases en présence, suivre l'évolution de la réaction de réduction de l'oxyde de chrome au cours du temps et déterminer l'influence de l'ajout de phases minoritaires. La figure I-13 regroupe quelques uns des diffractogrammes obtenus sur les composites denses. Les pics marqués sont ceux du chrome et ceux correspondant à une phase minoritaire  $\text{Al}_{86}\text{Cr}_{14}$ , les autres correspondent à l'alumine.

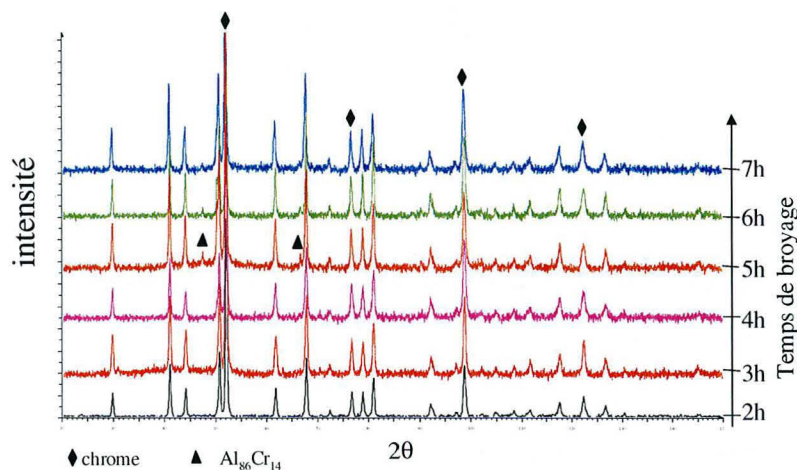


Figure I-13: diffractogrammes de composites denses, à partir de poudres broyées entre 2 heures et 7 heures (les pics non indexés correspondent à l'alumine)

Des analyses aux rayons X ont permis de montrer que le composite, sous sa forme dense, est constitué d'alumine, plus ou moins enrichie en chrome, et de chrome principalement. L'oxyde de chrome a totalement disparu, quel que soit le temps de broyage, la réaction s'est achevée lors du frittage. Les phases minoritaires comme le fer ou l'aluminium ne sont plus détectables, les pics correspondant au fer étant confondus avec ceux du chrome (structure cubique centrée et paramètres de mailles très proches). Pour les temps de broyage très longs (6 et 7 heures), une nouvelle phase constituée d'aluminium et de chrome, identifiée comme étant une structure proche de  $\text{Al}_{86}\text{Cr}_{14}$  est détectable [IC-AlCr]. Les différents diffractogrammes montrent qu'il y a peu d'évolution de l'intensité des pics d'alumine ou de chrome contrairement aux diffractogrammes réalisés sur les poudres.

Une analyse de type Rietveld [riet69] ne permet pas de mettre en évidence les hétérogénéités de concentration en oxyde de chrome de l'alumine, car l'introduction des autres phases (chrome, fer, etc.) et l'affinement des paramètres entraînent des problèmes de convergence des calculs, ne permettant pas d'utiliser les différentes compositions de l'alumine (plus ou moins enrichie en oxyde de chrome) en même temps. Par contre l'existence d' hétérogénéités de composition de l'alumine a pu être mise en évidence par un recuit des poudres à la sortie du broyeur. La figure I-14 montre le diffractogramme d'une poudre (Alumine chrome 21% volumique) recuite à 1400°C pendant une heure. Le recuit a deux objectifs : le premier est de terminer la réaction de réduction de l' oxyde de chrome et le second de relaxer les contraintes dans les poudres. La figure I-14 montre que tous les pics de l'alumine sont en fait la superposition de deux pics, les différences de paramètres de mailles conduisant à une telle distinction des pics peuvent être mises en relation avec la concentration en oxyde de chrome dans l'alumine comprise entre 0 et 5%.

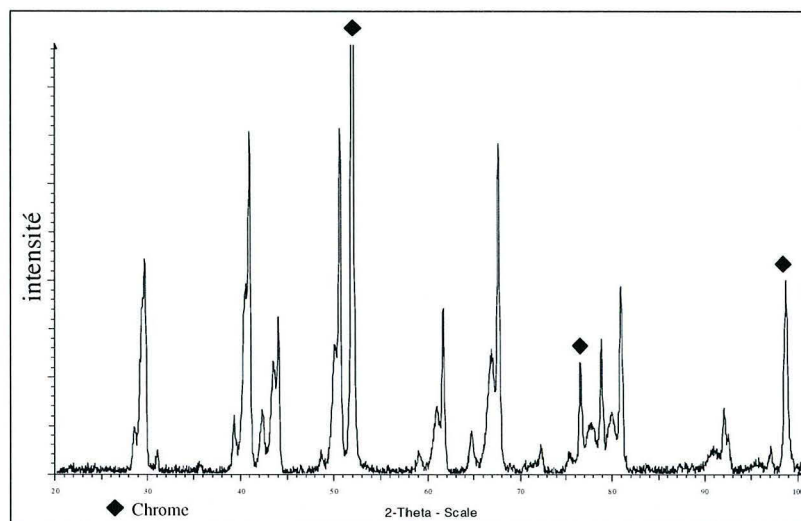


Figure I-14 diffractogramme d'une poudre ( $Al_2O_3$ -Cr 21% volumique) recuit à 1400°C (1 heure)

#### Phases minoritaires par diffraction des rayons X

A partir des paramètres de maille des poudres les plus fines, une estimation de la composition peut être faite. Une loi de Végard est utilisée entre les paramètres de maille du chrome et du fer et il est possible de déterminer le pourcentage massique de fer dans la phase chrome (par rapport au chrome uniquement) :

$Al_2O_3$ -Cr 9% contient 7.35 % de fer

$Al_2O_3$ -Cr 5% contient 11.60 % de fer

Pour les autres échantillons, le paramètre de maille du chrome est supérieur à celui du chrome pur, la loi de Vegard n'est donc plus applicable. Le pourcentage de fer déterminé par cette méthode est supérieur à celui déterminé par les analyses élémentaires (voir partie A), pour l'échantillon contenant 9% de chrome, ce pourcentage est doublé par la détermination de la loi de Végard.

De manière analogue, il est possible de déterminer le pourcentage d'oxyde de chrome dissout dans l'alumine. Le tableau I-2 donne les résultats du calcul du taux d'oxyde de chrome dans l'alumine en prenant en compte les paramètres a ou c de l'oxyde de chrome<sup>3</sup> dans les échantillons massifs.

Echantillon	% de Cr <sub>2</sub> O <sub>3</sub>		Moyenne
	à partir du paramètre a	à partir du paramètre c	
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> – Cr 5 %	2,5 %	2,3 %	2,4 %
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> – Cr 9 %	3,4 %	3,3 %	3,3 %
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> – Cr 21 %	3,2 %	2,6 %	2,9 %
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> – Cr 36 % (I)	5,6 %	4,7 %	5,2 %
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> – Cr 36 % (II)	9,8 %	8,9 %	9,3 %

Tableau I-2 : évaluation du pourcentage d'oxyde de chrome dissout dans l'alumine, en fonction des écarts de paramètres de maille (pourcentage massique)

Une autre méthode pour la détermination du pourcentage de chrome dans l'alumine consiste à analyser les diffractogrammes des poudres et des échantillons massifs. A partir des écarts entre les diffractogrammes expérimentaux et des diffractogrammes calculés pour des fractions de chrome connues, le pourcentage de chrome dissout dans l'alumine peut être estimé.

Echantillon	% massique de Chrome dans l'alumine	
	Poudre	Echantillon Massif
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> – Cr 5 %	0,6 %	-
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> – Cr 9 %	3,7 %	3,8 %
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> – Cr 21 %	7,2 %	3,8 %
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> – Cr 36 % (I)	11,9 %	7,1 %
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> – Cr 36 % (II)	17,8 %	8,3 %

Tableau I-3 : évaluation du pourcentage massique d'oxyde de chrome dissout dans l'alumine, à partir des paramètres de mailles calculés

Des écarts entre les poudres et les échantillons massifs sont observés d'une part à cause des contraintes résiduelles existant dans les massifs et d'autre part en raison des différents traitements effectués pour obtenir les poudres. En effet des échantillons massifs sont broyés puis passés dans des bains d'acide pour dissoudre une partie du chrome massif et faciliter la mise en poudre, diminuant la fraction massique de chrome métallique. Ainsi dans les poudres, la fraction massique de chrome dissout dans l'alumine apparaît plus importante.

### B-2-2 Fluorescence

La diffraction des rayons X ne permet pas d'analyser tous les constituants phase par phase. Par exemple, les mesures donnant la fraction volumique de chrome ne permettent pas de distinguer le chrome sous

<sup>3</sup> Rappels : Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> Structure Rhomboédrique R $\bar{3}$ C ; a = 0,49588 nm ; c = 1,35942 nm

sa forme métallique, correspondant aux particules, et le chrome ionique  $^{3+}\text{Cr}$  qui correspond à l'oxyde de chrome dissout dans l'alumine.

Une autre technique a donc été utilisée pour déterminer la fraction d'oxyde de chrome dissout, elle est fondée sur la fluorescence de l'alumine. L'analyse repose sur l'observation des spectres de fluorescence des raies R1 et R2 du rubis à la suite d'une excitation laser (YAG doublé 532nm). [MA93]. Les résultats présentés dans le tableau I-4 ont été obtenus sur des échantillons massifs. La technique utilisée pour les quantifications étant en cours de développement, il n'a pas été possible de pratiquer des mesures sur des poudres, à cause d'un signal trop faible, qui auraient permis d'affiner les valeurs et notamment d'éliminer les effets des contraintes résiduelles qui perturbent les mesures.

échantillons	5%Cr	9%Cr	21%Cr	36%CrI	36%CrII
%Cr dans $\text{Al}_2\text{O}_3$	2,1%	3,4%	2,6%	4,3%	5,4%

Tableau I-4 : pourcentage massique de chrome dans l'alumine, mesuré par fluorescence sur des échantillons massifs

Les pourcentages massiques de chrome en solution dans l'alumine, mesurés par fluorescence, augmentent avec l'augmentation de la fraction volumique globale de chrome dans le composite. Il est difficile de conclure précisément, pour les fortes concentrations d'oxyde de chrome dans l'alumine [Marg02]. Pour le moment, seuls des tests pour des concentrations inférieures à 2% atomique ont été validés (soit 1% massique). Le pourcentage de chrome dissout dans l'alumine est en bon accord sur le massif avec les mesures réalisées, sur des grains d'alumine, par la méthode de la fluorescence, malgré les limitations de cette technique.

### B-2.3 Analyses chimiques

#### a- Analyse chimique locale

Des analyses à la microsonde de Castaing ont été réalisées sur les composites denses, dont les temps de broyage de poudre sont compris entre 2 et 6 heures. Une analyse quantitative précise des différents constituants n'est pas possible en raison de la taille de la sonde (environ  $1\mu\text{m}^3$ ) par rapport à la taille caractéristique de la microstructure qui sont du même ordre de grandeur. Ceci se traduit par de fortes oscillations sur les profils de composition (comme sur la figure I-15) qui présente des profils de compositions traversant certaines particules). Ces oscillations existent quel que soit le temps de broyage des poudres, la taille caractéristique de la microstructure (distance interparticulaire, taille de grains de l'alumine) étant du même ordre de grandeur quel que soit le temps de broyage, comme nous le verrons ultérieurement (C2.2).

Ainsi, seules les plus grosses particules métalliques (probablement issues de l'usure des billes et des jarres) ont été analysées, ainsi que leur environnement direct. Pour chaque temps de broyage, plusieurs particules ont été choisies selon un critère de taille. Cette taille devait être suffisamment grande pour que le faisceau fasse plusieurs mesures dans le métal. Ainsi les particules analysées ont une surface au moins supérieure à  $10\mu\text{m}^2$ . Mais comme la fraction de métal (Fer + Chrome) n'atteint pas toujours 100%, cela signifie qu'une partie de la matrice a été analysée et donc le résultat n'est que qualitatif (voir figure I-16). Même en prenant en compte les autres éléments connus (aluminium, oxygène, etc.) le résultat oscille autour de 100% et est généralement situé entre 96 et 104%.



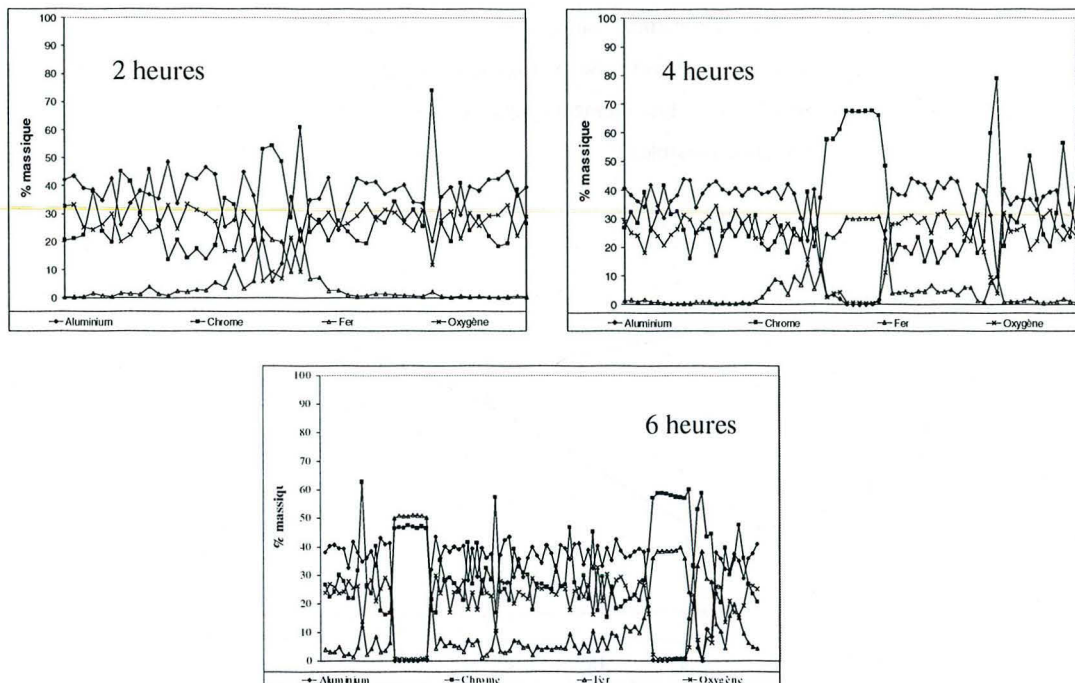


Figure I-15: profil de composition traversant certaines grosses particules de chrome

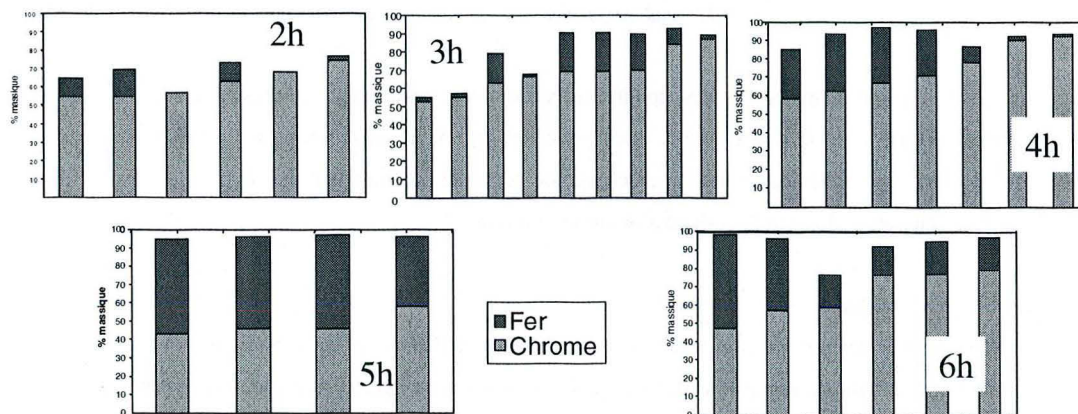


Figure I-16: répartition du fer dans les grosses particules métalliques

La teneur en fer de ces particules augmente avec le temps de broyage. De plus, l'absence de fer dans la matrice indique qu'il n'est présent que dans la phase métallique alors que le chrome est lui présent aussi dans la matrice, sous deux formes : une en solution dans l'alumine, l'autre sous forme de petites particules. De plus, les mesures du taux de fer dans les particules de grande taille montrent une inhomogénéité du fer puisque le taux de fer varie localement de 0 à 50% en masse. Ainsi, les petites particules métalliques semblent être exclusivement constituées de chrome, et le fer est principalement localisé dans les plus grosses particules. Lors de ces analyses, les éléments vanadium et Molybdène, provenant des jarres n'ont pu être détectés.

b- Analyse élémentaires sur les échantillons massifs

Pour mieux analyser la contamination, comme dans le cas des poudres, des analyses élémentaires ont été faites. Pour cette série, ce n'est pas le temps de broyage qui a été pris en compte mais la teneur volumique attendue en chrome (voir figure I-17). Les éléments analysés sont le chrome, le fer et l'aluminium pour l'ensemble de leurs états d'oxydation possibles.

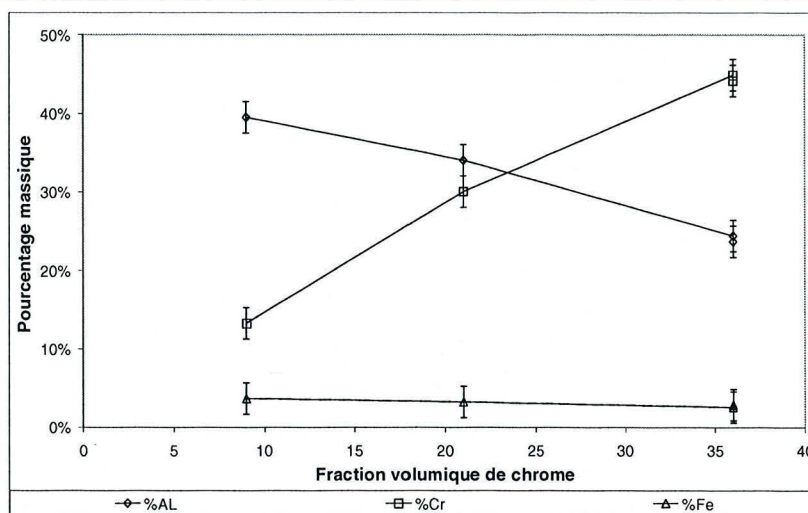


Figure I-17: analyses élémentaires des composites massifs.

Le fer, comme dans le cas des poudres précédemment analysées, est présent en faible quantité. Il représente environ 3% de la masse totale, quelle que soit la teneur en chrome de l'échantillon. La fraction massique de chrome correspond bien au pourcentage de départ et parallèlement à l'augmentation de la fraction de chrome, la fraction d'aluminium et donc d'alumine diminue.

c- Spectroscopie Mössbauer

Comme pour les poudres, des analyses en spectroscopie Mössbauer en transmission ont été réalisées sur des échantillons massifs de composite. La figure I-18 présente un spectre typique réalisé sur un composite obtenu à partir d'une poudre broyée (4) heures.

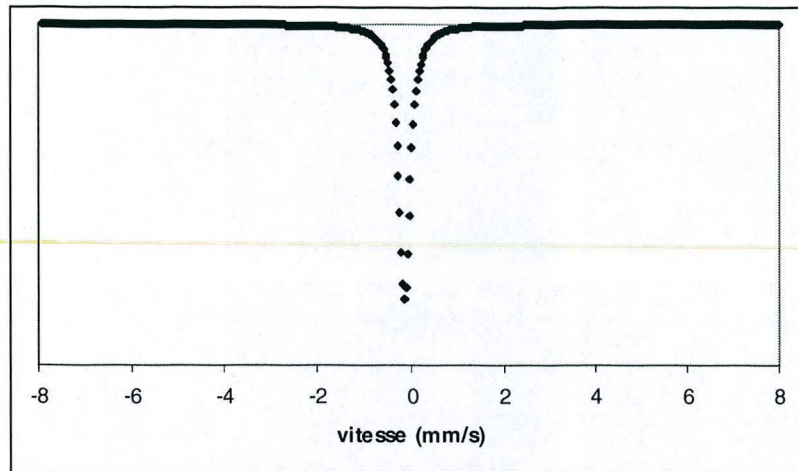


Figure I-18: spectre Mössbauer d'un composite massif alumine-chrome broyé 4 heures contenant 21% volumique de chrome

Le spectre ne présente plus qu'un pic central, le fer est donc combiné avec le chrome, les autres états du fer ont disparu lors du frittage. Les particules métalliques du composite sont donc constituées, au moins pour certaines d'entre elles, d'une solution solide chrome-fer.

## C – Microstructure : observations et analyses quantitatives

### C-1 Présentation d'ensemble des microstructures

#### Préparation des échantillons pour l'observation au MEB

Les composites, une fois densifiés, sont débarrassés de l'enveloppe de carbone par polissage mécanique puis découpés à l'aide d'une micro-tronçonneuse (Struers Labopo). Dans la majorité des cas, les échantillons sont enrobés dans une résine à chaud pour une meilleure tenue lors du polissage. Le polissage mécanique est réalisé grâce à des disques et des poudres diamantées de différentes tailles (250, 20, 6, 3 et 1 $\mu$ m).

#### C-1.1 Evolution de la microstructure en fonction du temps de broyage.

A partir des lots de poudres qui ont été caractérisées dans la partie A, des composites denses ont été élaborés en gardant la même procédure pour chacun d'entre eux. La figure I-19 présente des microstructures de composites Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Cr 21% pour des temps de broyage allant de 2 à 7 heures.

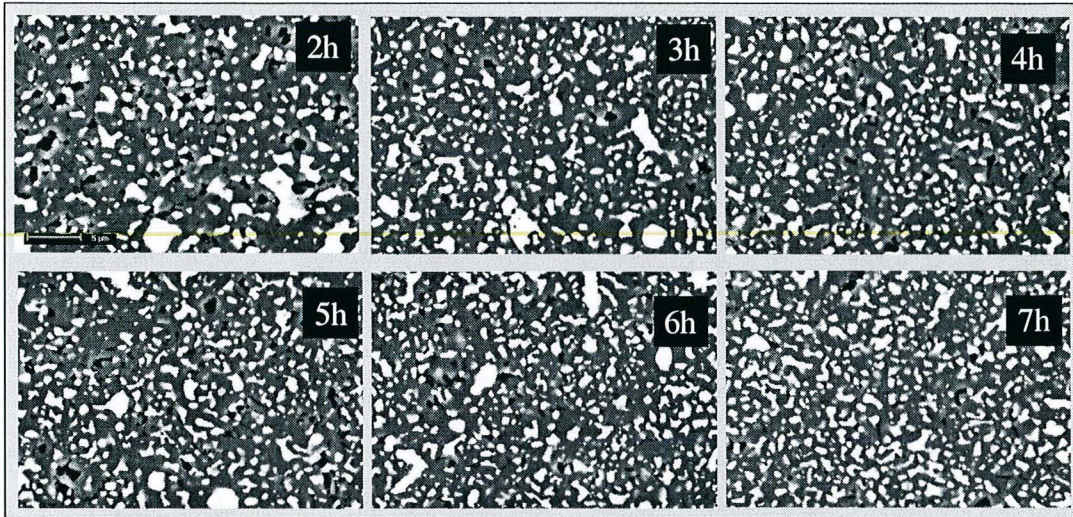


Figure I-19: image de microscopie électronique à balayage illustrant l'évolution de la microstructure des composites en fonction du temps de broyage

L'observation des microstructures pour les faibles temps de broyage indique une répartition hétérogène des tailles de particules, ainsi qu'une plus forte proportion de porosité. Avec l'augmentation du temps de broyage, la distribution des tailles de particules apparaît plus homogène avec une réduction de la proportion de porosité. Ces deux points sont développés dans la suite. Les observations des microstructures mettent en évidence une grande diversité de formes et de tailles des particules métalliques. De façon à mieux apprécier cette diversité de tailles des particules, la figure I-20 présente des images M.E.B. pour différents grossissements autour d'une même particule métallique. On note que les tailles s'échelonnent d'une longueur maximale de  $20\mu\text{m}$  (voire d' avantage) jusqu'à quelques dizaines de nanomètres. De plus, les différentes classes de taille sont réparties aléatoirement, ainsi les plus petites particules de chrome côtoient les plus grosses.

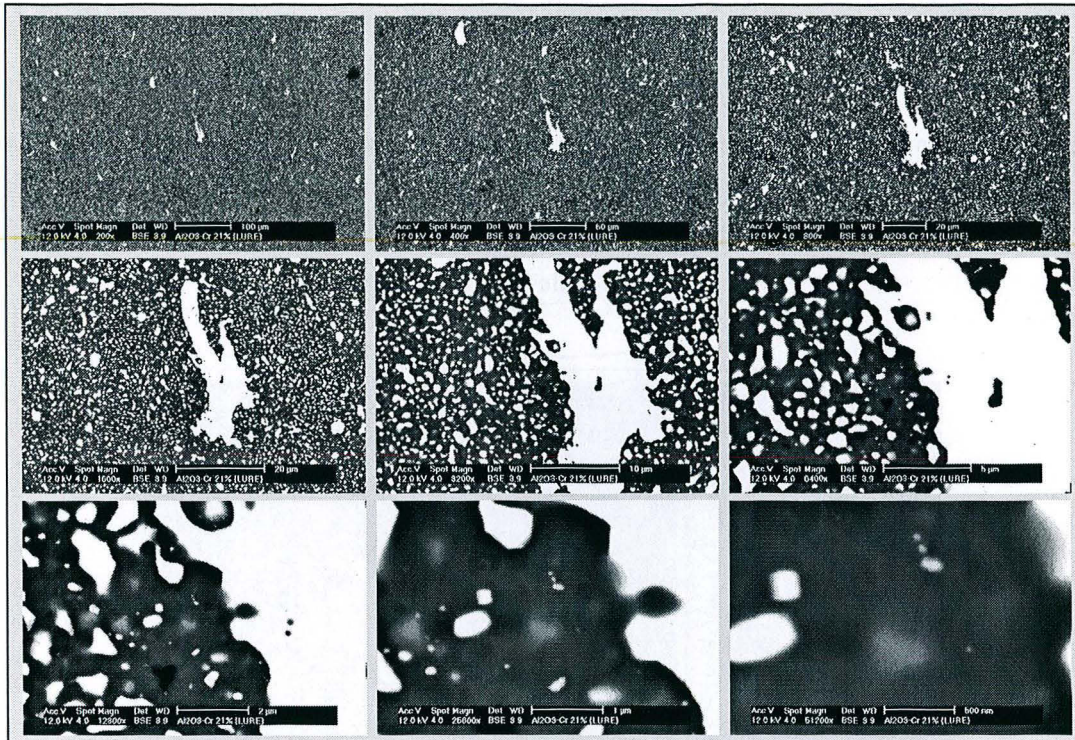


Figure I-20: diversité de tailles de particules dans les composites.

C-1.2 Evolution de la microstructure avec la fraction volumique

Plusieurs composites denses contenant diverses fractions volumiques de chrome ont été élaborés afin d'étudier les effets de la teneur en chrome sur la microstructure. La figure I-21 présente les microstructures correspondantes.

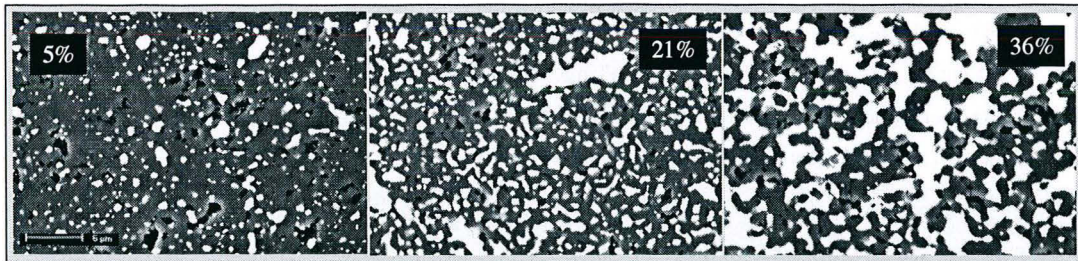


Figure I-21: image de microscopie électronique à balayage pour des composites comportant diverses fractions volumiques de chrome pour un temps de broyage de 4 heures

La microscopie électronique permet de révéler que les composites alumine chrome présentent une forte proportion de porosité lorsque la fraction de chrome est faible. Les échantillons à 21% contiennent qualitativement le moins de porosité. Pour les fractions faibles, les particules métalliques ont une forme globalement circulaire, la régularité de forme des particules diminuant avec l'augmentation de la quantité de chrome. L'augmentation de la teneur en chrome implique une augmentation des contacts entre particules et la

phase métallique se trouve connectée pour les fractions les plus élevées, ceci ayant été mis en évidence par J.L. Guichard [Guic98b] par des essais de conductivité électrique sur les cermets alumine chrome et alumine fer.

Remarque : L'analyse des images de microscopie électronique à balayage à faible grossissement, a montré une tendance des grosses particules métalliques à s'aplatir dans la direction perpendiculaire au chargement, ceci est visible sur les particules de grande taille et à faible grossissement, comme l' illustre la figure I-22

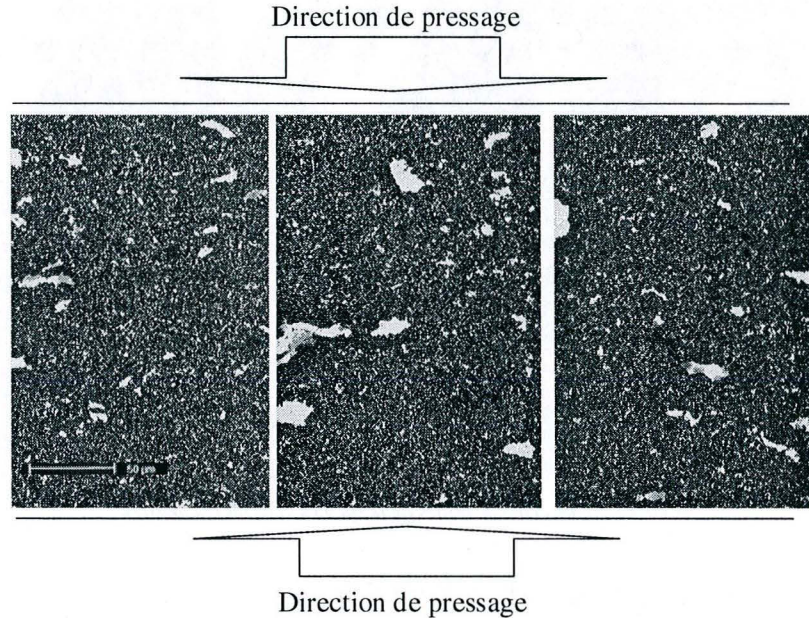


Figure I-22: image de microscopie électronique à balayage à faible grossissement, influence de la direction de pressage sur l'orientation des particules métalliques de grande taille

Ces observations ont également permis de mettre en évidence plusieurs échelles de taille ainsi qu'une très grande variabilité de forme (circulaire, concave, convexe, ...).

D'autres paramètres d'élaboration (mélange de poudres issues de divers broyages) permettent de modifier la microstructure. La figure I-23 présente quelques exemples illustrant, pour une fraction volumique en chrome de 36%, la variété des microstructures pouvant être produites.

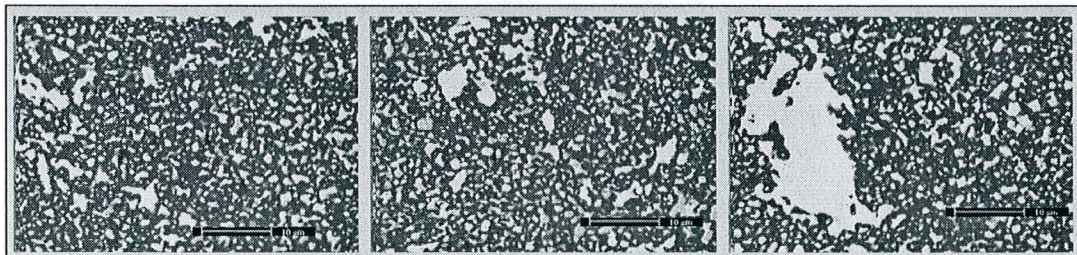


Figure I-23: microstructures de composite contenant 36% volumique de chrome type II (élaborés à partir de plusieurs poudres issues de broyages différents)

### Taille de grains de l'alumine

Les observations faites à partir des images de microscopie électronique à balayage, ont permis de déterminer la taille de grain de l'alumine. Pour cela, des échantillons de cermets contenant diverses fractions volumiques de chrome ont été recuits sous vide secondaire à des températures entre 1000 et 1100°C pour révéler la microstructure de l'alumine et plus particulièrement les joints de grains. Après recuit, l'observation des surfaces est fortement perturbée par la présence des particules métalliques, d'une part par leur grand nombre et d'autre part par leur évolution lors du recuit. Il est donc difficile d'observer correctement un grand nombre de grains d'alumine permettant de faire une analyse systématique et donc des mesures statistiquement satisfaisantes. Toutefois, par des analyses locales, la taille de grain de l'alumine a pu être estimée et vérifiée en différents points de la microstructure pour l'ensemble des composites.

Dans les cermets alumine, pour des fractions volumiques de métal comprises entre 9 et 36%, la taille de grain de l'alumine est de l'ordre de 1µm. Cette taille est suffisamment faible pour pouvoir considérer la matrice comme isotrope sans risque de microfissuration [Zimm01]

## C-2 Taille et forme des particules métalliques

### C-2.1 Fraction surfacique/volumique

A l'aide du logiciel d'analyse d'image Aphelion [aphel00], la fraction de surface occupée par les particules métalliques a été estimée. Dans ce but, les images de microstructures observées au M.E.B. sont seuillées pour différencier les particules métalliques de la matrice (grâce au fort contraste entre l'alumine et de chrome, Les particules apparaissent avec des niveaux de gris élevés sur ces images). Etant donnée la bonne résolution du M.E.B. il est également possible de distinguer les porosités de la matrice et donc d'en analyser la fraction. Après traitement d'un nombre d'images statistiquement représentatif, le logiciel Aphelion restitue la proportion de "pixels" correspondant à une catégorie de niveaux de gris ce qui peut aisément être transformé en fraction surfacique de métal ou de porosité. Les pourcentages surfaciques ainsi mesurés peuvent être comparés aux pourcentages volumiques des composites, les deux valeurs étant égales en moyenne pour un grand nombre d'images.

Ce processus a permis de déterminer la fraction surfacique de phase métallique après frittage. Les résultats présentés ci-dessous (voir figure I-24) concernent un composite contenant 21% volumique de chrome. Cette fraction est, en général, supérieure au 21% attendu. Cette surestimation de la fraction volumique de métal est due aux conditions d'observations et d'analyse des échantillons. En effet, le contraste des phases telles qu'elles sont perçues au MEB dépend de la préparation des échantillons mais également de leur contenu (fraction métallique, porosité, etc). De plus, les conditions d'analyses sont également très sensibles dans le cas des échantillons alumine-chrome. Par exemple pour obtenir un bon contraste, la tension accélératrice doit être relativement élevée et cela entraîne que des particules situées sous la surface sont également révélées. Sur la figure I-24, la variation en fonction du niveau de seuil est reportée et ne présente pas de palier qui permettrait une bonne distinction des phases alumine et chrome. La valeur de seuil entre l'alumine et le chrome dépend donc de l'observateur et de l'échantillon.

Pour une même valeur de seuil, la fraction surfacique de métal augmente légèrement avec le temps de broyage, la fraction surfacique des porosités (porosités réelles + grains d'alumine déchaussés) diminue avec un minimum à 6 heures de broyage et reste inférieure à 3% quel que soit le temps de broyage des poudres.

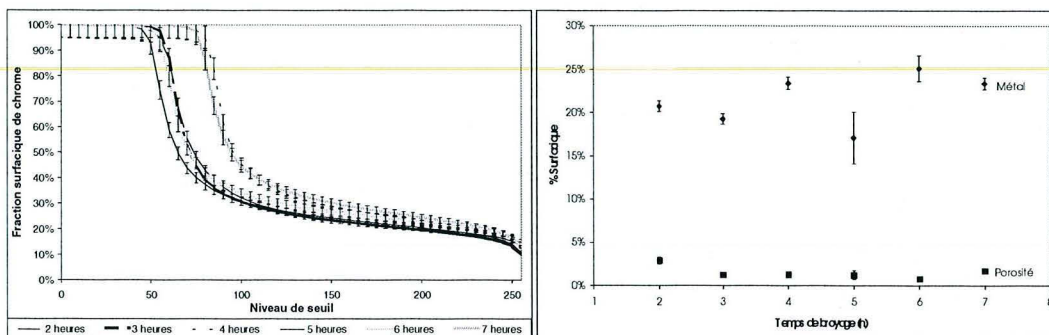


Figure I-24: fraction surfacique mesurée par analyse d'images à partir de photographie M.E.B.

### C-2.2 taille des particules métalliques

Principe de la mesure des surfaces de particules par analyse d'images

Le logiciel d'analyse d'image permet de reconnaître chacune des particules présente sur l'image, après seuillage de celle-ci et de calculer la taille en pixels de chacune de ces particules. Comme les dimensions en pixels et en microns de l'image sont connues, la taille des particules métalliques peut donc être mesurée.

Les mesures de la taille mettent en évidence une grande diversité de tailles, la surface des particules étant échelonnée de  $0,1 \mu\text{m}^2$  jusqu'à  $100\mu\text{m}^2$ , en moyenne. Les résultats des mesures (regroupées par intervalles de tailles) sont présentés sur la figure I-25. Cette figure présente un nombre limité de classes pour augmenter sa lisibilité, mais l'analyse a porté sur un nombre de classes plus important.

La répartition en taille des particules permet de voir que les temps de broyage courts (2-3h) ainsi que les temps longs (6-7 heures) sont propices à la formation de grosses particules métalliques. De plus, un temps court (3h) permet également d'obtenir des particules de métal ayant une surface faible, les histogrammes montrent que le temps de 3 heures est le plus représenté dans la gamme  $0-0,3 \mu\text{m}^2$ . Pour les temps intermédiaires (4 et 5 heures), on observe un comportement semblable, la surface des particules évoluant de façon similaire avec une plus forte proportion de petites particules pour un temps de broyage de 5 heures par rapport à un broyage de 4 heures. Mais pour des poudres broyées 4 heures puis frittées, la proportion de particules dont la surface est entre  $1$  et  $2 \mu\text{m}^2$  est plus importante que pour une poudre broyée 5 heures.



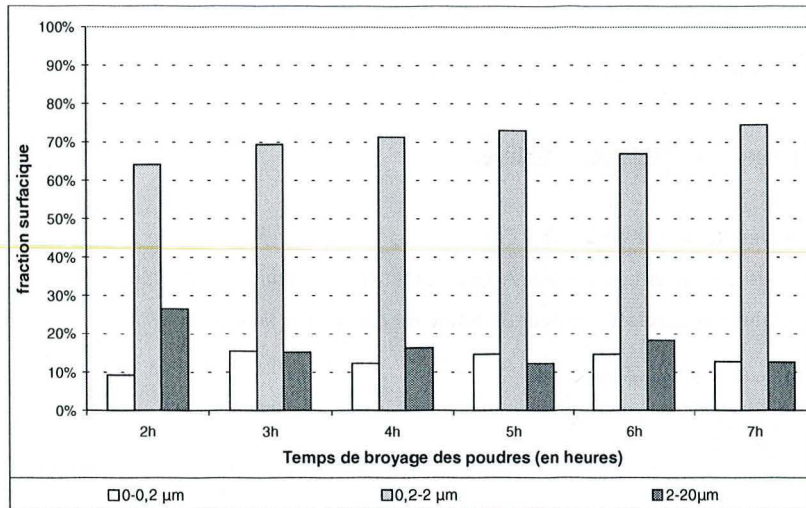


Figure I-25: pourcentage surfacique des particules par classe de taille

La distribution de taille des particules métalliques ne présente pas de différences très significatives en fonction du temps de broyage, les niveaux des histogrammes sont équivalents. En revanche, pour des composites présentant des fractions volumiques de chrome différentes, les distributions de taille peuvent être très diverses, comme illustré sur la figure I-26.

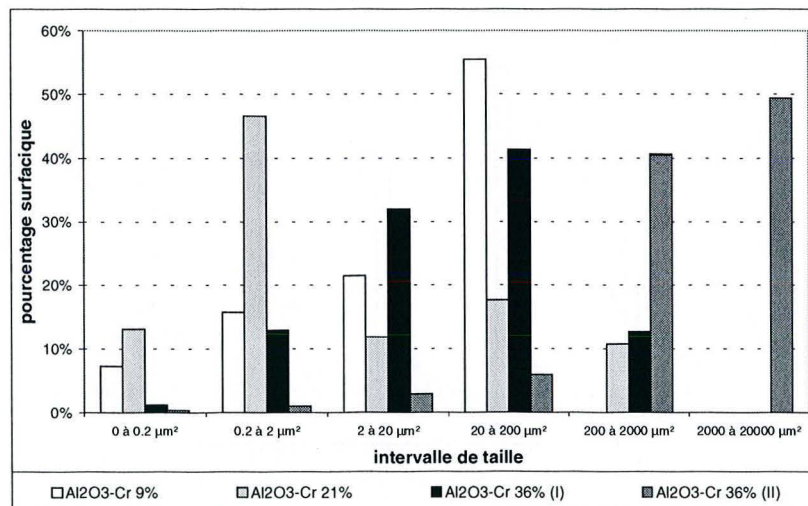


Figure I-26: distributions de taille pour diverses fractions volumiques de chrome.

Les échantillons élaborés par la méthode "standard" correspondent à 4 cycles de broyage, le composite 36% (II) étant la résultante de mélange de poudres issues de broyages différents. Pour les composites contenant 9 ou 36% de chrome, la taille des particules est plus importante alors que pour le composite contenant 21%, la majorité des particules est dans les classes de taille intermédiaires. Pour les composites avec 36% de chrome, en contrôlant le mode de broyage, il est possible d'obtenir des microstructures très diverses. En effet, pour le 36% (II), une préférence pour les classes de taille supérieure à 200 µm² est observée alors que dans le 36% (I), la

majorité des particules ont une taille inférieure. Ces différences dans la répartition en taille des particules sont uniquement dues au mode de broyage.

### C-2.3 Facteur de forme des particules métalliques

#### Principe de la mesure du facteur de forme

Comme précédemment, le logiciel Aphelion reconnaît chacune des particules et mesure l'écart entre la forme de la particule et un cercle. Le facteur de forme est calculé par la relation :

$$\text{facteur de forme} = \frac{4\pi S}{P^2} \quad (=1 \text{ pour un cercle})$$

S : surface de la particule

P : périmètre de la particule

L'étude du facteur de forme des particules (voir figure I-27) montre que des temps de broyage courts favorisent un facteur de forme plus élevé. Ce facteur de forme doit être relativisé : les observations sont faites en microscopie électronique à balayage, la détermination du facteur de forme étant donc réalisée sur des objets 2D qui sont des coupes d'objets 3D. Cependant, on peut admettre qu'une évolution du paramètre 2D rend qualitativement compte d'une tendance similaire en volume.

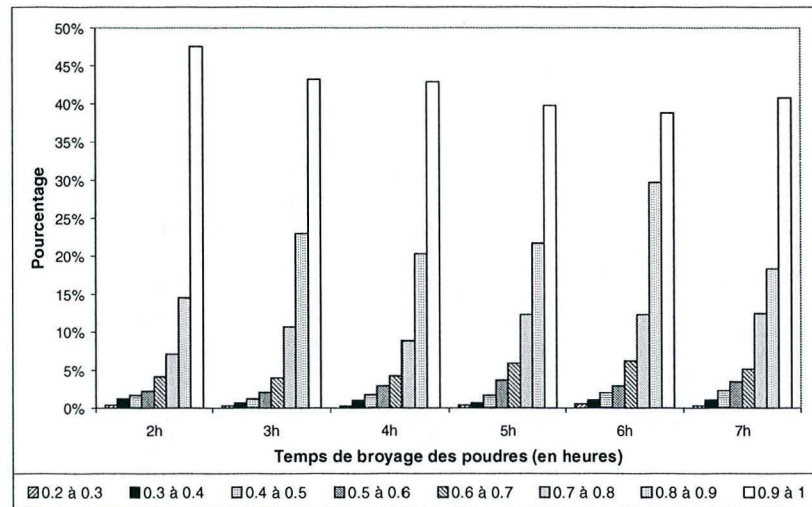


Figure I-27: pourcentage de particules par tranche de facteur de forme

Le facteur de forme des particules métalliques montre que les plus petites d'entre elles présentent le plus de formes convexes, mais ceci est à pondérer par la limite de détection du microscope et la résolution de l'analyseur d'image. Les particules présentant des facteurs de forme plus importants sont les plus nombreuses. Toutefois, il existe une tendance à une augmentation du facteur de forme pour une même classe avec l'augmentation du temps de broyage.

Comme pour la distribution de tailles, les très grosses particules ne sont pas prises en compte, mais étant donné l'écrasement des particules de grande taille (perpendiculairement à la direction de pressage), le facteur de forme de ces particules est faible.

### C-3 Connexité de la microstructure

#### C-3.1 Connexité 2D

En utilisant les images de microscopie électronique à balayage la connexité des particules métalliques peut être déterminée. Cette étude a été menée à l'aide du logiciel Aphelion [aphe00]. Le principe consiste à distinguer les particules métalliques de la matrice dans une image en seuillant celle-ci par rapport à leur niveau de gris. Ensuite le logiciel détermine le nombre de particules dans l'image ainsi que le nombre de trous dans les particules (en fait de l'alumine). La connexité (ou nombre d'Euler) est alors égale à

$$N = \text{nombre de particules} - \text{nombre de trous}$$

Si les particules ne comportent pas de trous, le nombre d'Euler est alors égal à la densité de particules par unité de surface.

La figure I-28 regroupe les résultats de détermination de la densité de particules en fonction du temps de broyage des poudres ayant servi à l'élaboration des composites denses et la figure I-29 représente l'évolution de la densité de particules en fonction de la fraction surfacique de chrome mesurée. La densité surfacique est un indicateur de l'augmentation du nombre de particules.

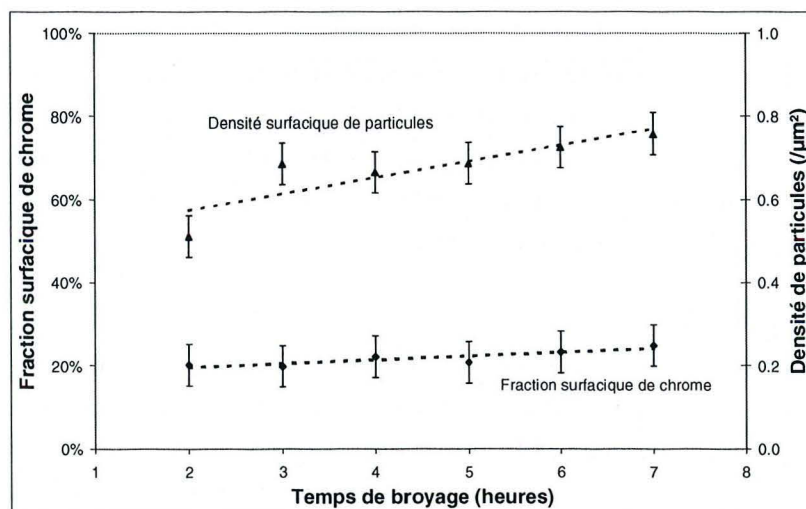


Figure I-28: évolution de la densité de particule en fonction de temps de broyage des poudres échantillons contenant 21% volumique de chrome

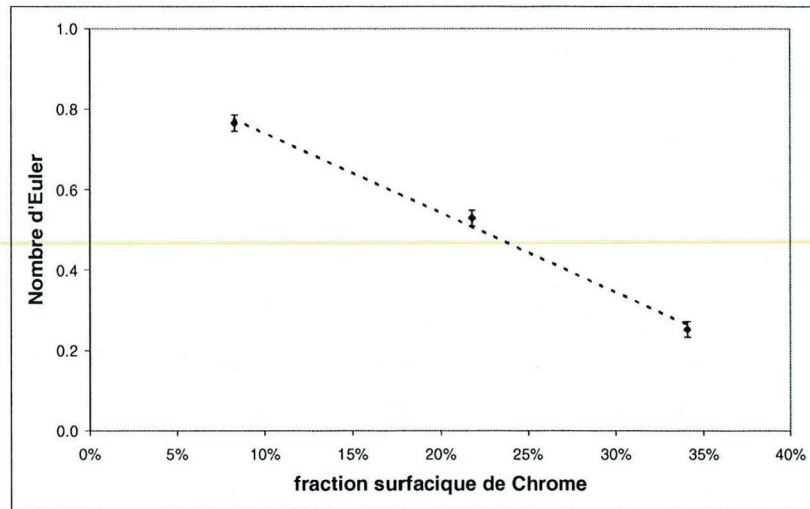


Figure I-29: évolution de la densité de particule en fonction de la fraction surfacique de chrome

La densité de particules augmente en même temps que le temps de broyage des poudres, ce qui indique une diminution de la taille de celles-ci, comme cela a déjà été observé auparavant (figure I-25 & figure I-19). La diminution de la connexité avec l'augmentation de la fraction surfacique de chrome indique que les particules sont de moins en moins isolées dans l'ensemble de la microstructure. La densité de particules diminue avec l'augmentation de la fraction volumique, donc les particules de chrome ont des tailles de plus en plus importantes et celles-ci sont connectées entre elles. Les images de microscopie électronique à balayage reflètent d'ailleurs cet effet (figure I-21). Pour les faibles densités, les particules sont isolées, il existe peu d'interaction entre elles alors que pour les fortes fractions surfaciques de chrome, l'interaction entre particules devient de plus en plus forte. La variation de la densité de particules avec la fraction volumique implique que pour les faibles fractions, il y aura peu d'interaction entre les particules alors que pour les fortes fractions, l'influence des particules sur leurs voisines sera plus importante, les champs de contraintes seront donc modifiés, l'évolution des fissures au voisinage de ces particules en sera également perturbée.

### C-3.2 microtomographie X

La microtomographie X [Mair99, babo01, buff95] permet de reconstruire le volume analysé en 3D. la technique est basée sur l'acquisition d'un grand nombre de radiographies d'absorption par rayon X à travers l'échantillon au moyen d'une caméra CCD. Entre chaque radiographie, l'échantillon est tourné pour être vu sous un angle différent par le détecteur. L'ensemble des radiographies est ensuite traité numériquement pour reconstruire une carte tridimensionnelle des coefficients d'absorption aux rayons X de l'échantillon donnant indirectement une image de la microstructure. Les expériences ont été réalisées sur la ligne ID19 de l'E.S.R.F. à Grenoble avec une résolution de 1µm.

Le principe du stockage des informations repose sur le découpage du volume analysé en domaines de 1micron<sup>3</sup>, à chacun de ces domaines correspond un niveau de gris. Lorsque le niveau de gris, permettant de distinguer les deux phases, pour le matériau a été fixé, il est possible d'attribuer chaque cube, de 1 micron d'arête, formant l'ensemble du volume à une phase ou une autre en fonction de son niveau de gris.

Un échantillon de cermet contenant 21% volumique de chrome, de taille  $1 \times 1 \times 10 \text{ mm}^3$  a été utilisé pour réaliser des images de tomographie. Le volume global ayant été reconstruit a une taille de  $400 \times 800 \times 151 \mu\text{m}^3$ . Des images du volume reconstruit et de quelques particules de chrome issues de ce volume sont présentées sur la figure I-30.

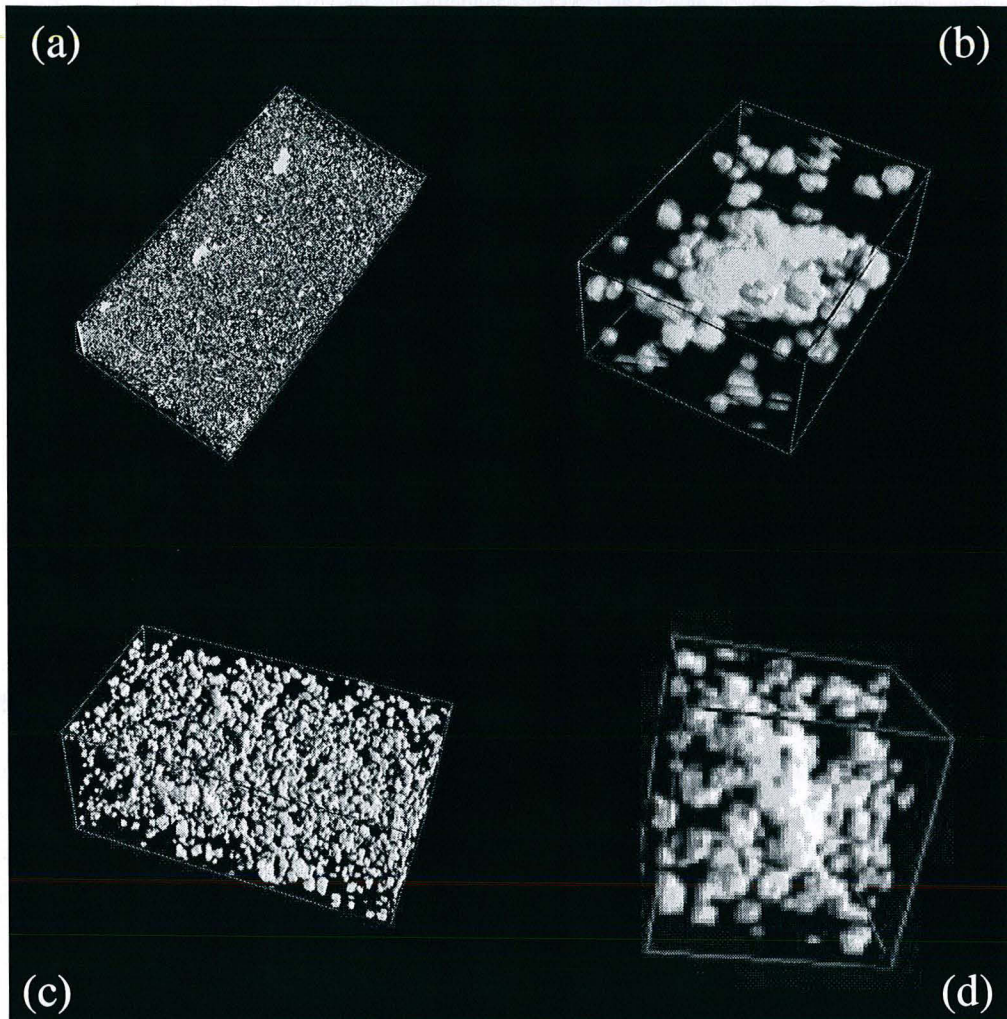


Figure I-30: images issues de la tomographie X  
volume global ( $800 \times 400 \times 151 \mu\text{m}^3$ ) (b) particule de chrome ( $27 \times 37 \times 15 \mu\text{m}^3$ ) (c) ensemble de petites particules de chrome  
( $61 \times 81 \times 151 \mu\text{m}^3$ ) (d) particule de chrome ( $30 \times 30 \times 49 \mu\text{m}^3$ )

Les figures ci-dessus permettent de se faire une idée globale de la forme et de la répartition des particules de chrome dans le volume. Malheureusement, la résolution des images de tomographie est de  $1 \mu\text{m}$  ce qui est supérieur à la majorité des tailles de particules (figure I-25) ce qui implique que de nombreuses particules de chrome ne sont pas visibles car elles sont confondues avec la matrice. Par conséquent les images ci-dessus ne représentent que les particules dont la taille est supérieure au micron. Ceci est visible sur l'évolution de la fraction volumique de chrome en fonction du niveau de seuil (figure I-31). Le niveau de seuil utilisé pour

représenter les particules de la figure I-30 correspond à une fraction volumique de 5 à 10% inférieure au 21% attendu. Donc avec une résolution de  $1\mu\text{m}$ , entre 5 et 10% du volume des particules de chrome sont perdus. Ce seuil n'a pas été sélectionné à une valeur plus élevée car les représentations pour ces seuils ne correspondent pas à la microstructure attendue (figure I-21) avec une structure organisée en filaments. Le seuil correspond à la valeur du niveau de gris (compris entre 0 et 255) pour laquelle tous les voxels ayant un niveau de gris égal ou supérieur au seuil sont considérés comme étant du chrome et tous les voxels ayant un niveau de gris inférieur au seuil sont attribués à la phase alumine.

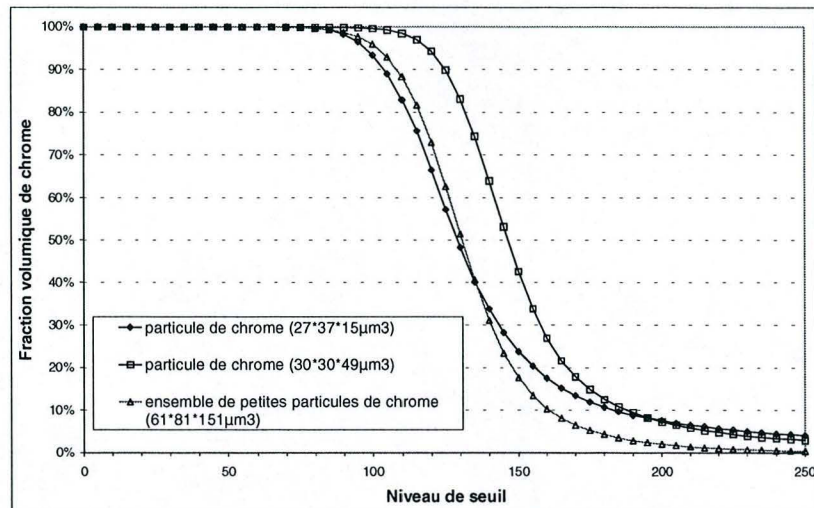


Figure I-31: évolution de la fraction de chrome en fonction du niveau de seuil pour les données issues de la tomographie X

Cette figure montre qu'il faut atteindre une certaine valeur du seuil pour voir une évolution de la fraction de chrome. Pour une valeur de seuil inférieure à 70, la fraction de chrome est 100% ce qui permet de vérifier le fait que la phase alumine est une moyenne entre l'alumine (enrichie en chrome) et les petites particules de chrome (inférieure à  $1\mu\text{m}^3$ ). Au-delà de 70, la fraction de chrome mesurée diminue rapidement pour atteindre une asymptote qui dépend de la taille des particules de chrome dans le volume considéré. Ainsi pour le volume contenant uniquement des petites particules de chrome, la fraction de chrome déterminée au fort niveau de seuil est plus faible que dans le cas où le volume contiendrait une grosse particule de chrome, ceci est dû à une érosion des bords des particules, plus marquée sur les particules de petites tailles.

### C-3.3 Connexité de la microstructure 3D

A partir des images de tomographie X, il est possible de mesurer la connexité des particules, afin de vérifier quelle phase englobe l'autre. Pour cela, l'approche de Jernot & Al [Jern01], décrite dans l'annexe 1, est utilisée. Ce principe a été appliqué aux différents volumes extraits du volume global. Les résultats de mesures de  $N_3$ , nombre de connexité en 3D, sont présentés sur la figure I-32. Ces mesures ont été réalisées en faisant varier le niveau de seuil.

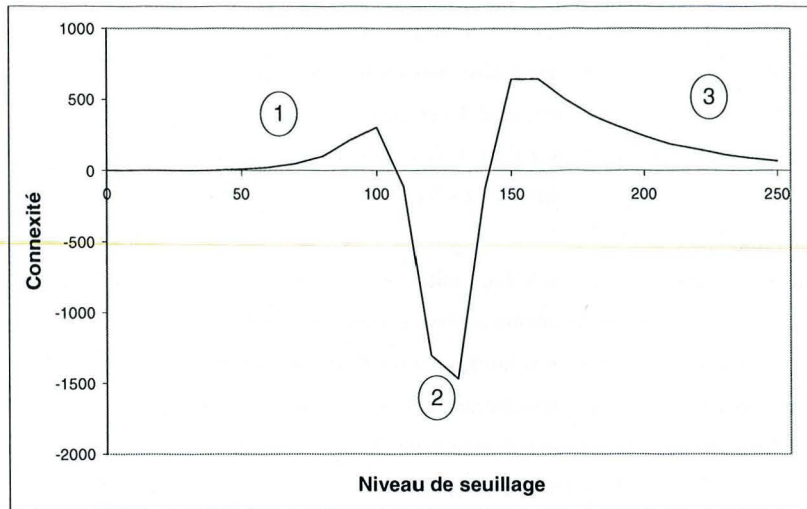


Figure I-32: mesure de  $N_3$  sur l'ensemble du volume.

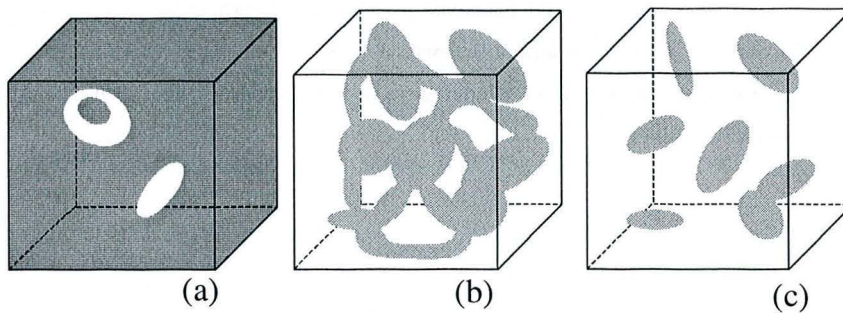


Figure I-33: illustration de l'évolution des particules  
niveau de seuil bas, quelques zones convexes se dessinent  
niveau de seuil intermédiaire, la structure est filamenteuse, entièrement connectée  
niveau de seuil haut, les particules, de forme convexe, se distinguent.

Pour les niveaux de seuils bas, quelle que soit la sélection, il n'y a pas de variation de  $N_3$  en raison de la moyenne faite sur les très petites particules ( $<1\mu\text{m}^3$ ). Avec l'augmentation du niveau de seuil (entre 70 et 100), une augmentation de  $N_3$  est constatée (zone 1), signifiant que quelques zones du volume sont déconnectées de l'ensemble, voir la figure I-33a) pour une illustration. Au-delà d'un niveau de seuil égal à 100,  $N_3$  passe par des valeurs négatives (zone 2). La mesure d'une connectivité négative correspond à une structure filamenteuse (figure I-33b) entièrement connectée ne permettant pas de distinguer les différentes particules formant la microstructure. Lorsque le niveau de seuil dépasse 150 (zone 3), la microstructure n'est plus connectée (figure I-33c), les différents objets formant cette microstructure peuvent donc être différenciés et la connectivité redevient positive, celle-ci diminuant ensuite avec l'augmentation du seuil en raison de la diminution de la fraction volumique de chrome.

D'après les résultats ci-dessus, le niveau de seuil sélectionné (185) correspond à une structure non connectée, c'est-à-dire que la matrice en alumine englobe les particules de chrome, ce qui correspond aux diverses observations faites en microscopie électronique. Des mesures réalisées sur des volumes, extraits du

volume global, contenant différentes fractions volumiques de chrome (entre 3 et 18%) ne changent pas le signe de la connexité dans la zone observée, c'est-à-dire pour un seuil situé autour de 185. Toutefois, des mesures de conductivité électrique globales réalisées sur des cermets alumine chrome [Guic98] indique que ce type de composite est conducteur, donc qu'il existe au moins un chemin où la microstructure est connectée, ce qui n'apparaît pas pour le niveau de seuil choisi et l'échantillonnage de la microstructure sur lequel ont porté les mesures morphologiques.

La tomographie atteint ici sa résolution limite sur les cermets, l'augmentation de la résolution est toute fois possible mais c'est au détriment du volume analysé et donc de la statistique sur les particules. Cela se traduit par des variations continues de la fraction volumique et de  $N_3$  en fonction du seuil. Même si avec une résolution de  $1\mu\text{m}^3$ , une partie des particules n'est pas détectée, celles-ci peuvent être assimilées à des sphéroïdes dispersés dans la matrice. On peut donc penser que la connexité de ces particules est positive, renforçant le caractère englobant de la matrice vis-à-vis des particules de chrome.

Par le choix d'un seuillage visuel, en accord avec les observations faites en microscopie électronique à balayage, on obtient une fraction volumique plus faible que celle attendue à cause de la perte des petites particules, confondues avec la matrice et une connexité positive, indiquant que les plus grosses particules sont isolées les unes des autres. Ce paramètre sera utilisé pour définir les formes des particules de chrome dans les maillages éléments finis des chapitres II et III qui devront correspondre à des formes simples présentant également des connexités positives.



## D – Discussion / Conclusion

Le suivi de l'évolution des poudres lors des différentes étapes de préparation des cermets a permis de mettre en évidence la présence de constituants minoritaires, comme le fer qui provient des billes et des jarres, ou la présence d'oxyde de chrome dans l'alumine. Le suivi par diffraction des rayons X de l'évolution de la réaction permet de dire que la réduction de l'oxyde de chrome suit un processus continu au cours du temps de broyage, mais que celle-ci n'est pas achevée et se termine lors du frittage des poudres pour obtenir un composite dense.

La microsonde de Castaing, la diffraction des rayons X, les analyses chimiques ainsi que la spectroscopie Mössbauer ont confirmé la présence de fer allié au chrome et plus particulièrement dans les particules de plus grande taille. La présence d'oxyde de chrome dans l'alumine a également pu être confirmée, avec une homogénéisation de la structure du rubis au cours du frittage. Ces constituants minoritaires ont pour principal effet de modifier les propriétés mécaniques des phases dans lesquelles ils sont introduits, ainsi le fer a un rôle durcisseur dans le chrome, ainsi que l'oxyde de chrome dans l'alumine où sa concentration reste faible [Ross71]. Il devra en être tenu compte ultérieurement dans l'interprétation des calculs et des observations.

L'examen des microstructures en 2 dimensions (microscopie optique et microscopie électronique à balayage) et en 3 dimensions (microtomographie X) conduit à penser que les composites alumine chrome se présentent sous la forme d'une matrice alumine dans laquelle sont incorporées des particules de chrome non connectées au moins jusqu'à des fractions volumiques de l'ordre de 20%. Pour les fractions supérieures, l'isolement de toutes les particules n'est plus une hypothèse réaliste. De plus, il a été montré que ces particules de chrome possèdent une grande variété de formes, avec des aspects plutôt circulaires/sphériques pour les petites particules et beaucoup plus complexes, présentant notamment de nombreuses concavités pour les plus grosses, rendant leurs interfaces irrégulières et une très forte variabilité de la taille des particules est visible sur les images de microscopie électronique, les particules de chrome pouvant avoir des surfaces (en coupe) de plusieurs centaines de microns<sup>2</sup> jusqu'à quelques nanomètres<sup>2</sup>.

L'observation des microstructures a également mis en évidence la présence de porosités, celles-ci étant présentes en faible quantité, moins de 3% du volume. Mais elles pourront jouer un rôle dans la relaxation des contraintes dans le composite et les mécanismes de fissuration

Cette diversité de formes et de tailles va poser un problème pour la modélisation puisqu'il est difficile de mettre en lumière une quelconque structure "moyenne" simple qui pourrait, en la rendant périodique à l'infini, reconstituer le composite dans son ensemble.

En outre, trois phases sont en présence dans le composite (alumine, chrome et porosité) avec des propriétés diverses et mal connues séparément. Il est en effet difficile d'appréhender les propriétés de la phase alumine et du chrome séparément, les deux étant fortement liées du fait de la mécanosynthèse dont la reproductibilité est encore mal assurée. Ces propriétés vont avoir une influence sur les contraintes résiduelles présentes dans la forme dense des cermets mais également sur son comportement en fissuration.

Le procédé d'élaboration des composites par mécanosynthèse permet de contrôler certains aspects de la microstructure, comme la taille moyenne des particules ainsi que la distribution de ces tailles, ceci en modifiant le temps de broyage ou la fraction volumique de chrome ou encore en utilisant divers cycles de broyages. En

revanche, d'autres aspects sont difficilement contrôlables dans les composites, ce sont notamment les éléments minoritaires qui sont introduits par les éléments de broyage, comme le fer, ou par l'avancement de la réaction de réduction de l'oxyde de chrome par l'aluminium qui conduit à la présence d'oxyde de chrome en solution avec l'alumine. Chaque composite sous sa forme dense est en quelque sorte un cas unique. Même si globalement la composition des composites pour une série de broyages est la même, chacun possède ses particularités locales de composition, de forme, de taille et de répartition des particules métalliques. Grâce aux diverses techniques de visualisation de la microstructure, comme la microscopie électronique et la tomographie X, il va être possible d'utiliser les images produites par ces techniques comme support pour la modélisation du composite.

Grâce aux diverses analyses menées sur les composites, nous avons maintenant une meilleure connaissance de la composition des phases céramique et métallique. Nous pouvons utiliser ces données pour déterminer l'influence des hétérogénéités sur les propriétés mécaniques des phases et donc sur les contraintes résiduelles.

Concernant le comportement en fissuration du composite, sa microstructure et ses propriétés seront confrontées à un champ de contraintes ayant une forme a priori connue si le composite avait des propriétés homogènes, la présence de la phase métallique va bien évidemment perturber ce champ de contraintes théorique. Cela permettra d'analyser la fissuration à diverses échelles, l'une macroscopique en considérant le composite avec des propriétés moyennes, l'autre à l'échelle de la microstructure en tenant compte des effets des propriétés de chaque phase.

## *Chapitre II : Contraintes résiduelles dans des cermets Alumine Chrome*

### Introduction

Les contraintes résiduelles dont l'origine dépend de l'histoire thermique, mécanique et chimique du matériau peuvent avoir une influence sur son comportement ultérieur. Dans un matériau composite subissant des variations de température, leur origine est liée aux différences de coefficient de dilatation thermique entre les différents constituants : renforts et matrice. Leurs niveaux dépendent des propriétés individuelles des constituants (module d'élasticité, coefficient de Poisson, coefficient de dilatation thermique, limite d'élasticité). Les contraintes internes peuvent jouer un rôle sur l'initiation de fissures ou plus largement sur la rupture des matériaux car c'est la combinaison des contraintes résiduelles et des contraintes appliquées qui influencera le comportement global du matériau. C'est pourquoi pour des matériaux où l'on vise à maîtriser les microstructures pour le comportement ultérieur, comme c'est le cas dans les cermets alumine-chrome, il est important de connaître la répartition, le sens et les niveaux de ces contraintes à l'échelle de la microstructure.

Dans une première partie, nous déterminons ces contraintes par des calculs micromécaniques réalisés avec le code de calcul par éléments finis, SYSTUS [Syst01]. Les résultats ont été obtenus en utilisant des microstructures idéales, constituées de particules de chrome de formes simples dans une matrice d'alumine, et des microstructures plus proches de la réalité, pour lesquelles les formes de particules sont issues des observations de la microstructure réelle réalisées par diverses techniques d'imagerie actuellement disponibles. L'étude porte sur les effets de la fraction volumique du chrome, de la géométrie des particules, du comportement mécanique des particules métalliques et de la matrice.

Dans une seconde partie, les résultats de détermination des contraintes résiduelles par diffraction des rayons X, réalisée au L.U.R.E. sont présentés.

Enfin, dans une dernière partie, les résultats des calculs aux éléments finis et les contraintes déterminées expérimentalement sont comparés et discutés.

### A – Approche micromécanique

La méthode des éléments finis est bien adaptée pour la détermination des contraintes et des déformations d'un matériau biphasé, en particulier des gradients présents dans chaque phase. Elle permet aussi de déduire les propriétés macroscopiques des matériaux, à partir de certains paramètres pertinents de la microstructure. De nombreux travaux de la littérature concernent la prévision de ces propriétés (Nous ne citons ici que des travaux portant sur des composites à matrice céramique)

- macroscopiques [Rosp00, Dura90], comme les propriétés élastiques [Jaen72, Ravi94], le comportement en traction [Lamo97] ou en fluage [Holm00] et le comportement en fatigue [Pand02].

- microscopiques où les champs de contraintes locales en se plaçant à l'échelle de la microstructure sont également étudiés [Rosp00 Alos96, Akse01], quant aux effets de fraction volumique [Yilm98] et d'arrangement de la seconde phase (particule, fibre) [Ravi94, Leon98, Fisc94] et dans une moindre mesure de la complexité géométrique de la microstructure [Akse01]. Certains auteurs ont également analysé le rôle des interfaces [Lamo97] et le rôle des porosités [Gian91b, Robe00, Shan01].

Notons que l'analyse de champs mécaniques locaux pour des composites à matrice fragile et renforts métalliques ductiles n'a été que peu abordée dans la littérature [Gree99, Bruc02, Weis97, Kohl96]

Le but de cette étude est de déterminer les contraintes d'origine thermique, dues aux différences de dilatations thermiques entre le chrome et l'alumine, qui apparaissent dans le composite alumine chrome lors du refroidissement depuis sa température de frittage (1450°C) à la température ambiante.

Dans un premier temps, les propriétés thermomécaniques des deux phases utilisées comme données d'entrée, ainsi que les descriptions de la microstructure par éléments finis, sont présentées. Ensuite, nous analysons les résultats pour des microstructures idéales 3D. Puis les différences entre des microstructures idéales en 2D et 3D sont exposées. Finalement nous traitons le cas de la microstructure réelle en 2 dimensions et 3 dimensions.

## A-1 - Propriétés thermomécaniques des phases

Pour réaliser l'étude micromécanique, il est nécessaire de connaître l'évolution des propriétés thermomécaniques telles que le module d'Young, le coefficient de Poisson et le coefficient de dilatation thermique des deux phases en fonction de la température. Ces données ont été extraites de la littérature. Ne connaissant pas l'état chimique exact du chrome et de l'alumine dans le composite et qui, comme nous l'avons montré dans le chapitre I, est variable d'un échantillon à l'autre, les deux phases ont été considérées comme pures. La validité de cette approximation sera discutée par la suite.

Dans le cas du module d'Young, comme pour le coefficient de Poisson, les données de la littérature ne couvrent pas l'ensemble du domaine de température étudié, aussi elles ont été extrapolées linéairement vers les plus hautes températures (entre 600°C et 1450°C).

La figure II-1 donne l'évolution du module d'Young du chrome et de l'alumine depuis la température de frittage et jusqu'à la température ambiante. Pour le chrome, les données choisies sont celles de Maykuth & Jaffer et Munday & al [Mayk57, Mund64] qui correspondent à du chrome polycristallin. Pour l'alumine, il existe un grand nombre de nuances d'alumine  $\alpha$ , les propriétés élastiques dépendant fortement des impuretés, de la taille de grains, des porosités [Teff66, Soyr66, Munr97, Akbu98]. Notre choix s'est porté sur les données fournies par Chung [Chun69] pour une alumine  $\alpha$  polycristalline ayant une taille de grain de 1 $\mu$ m, proche de celle déterminée dans les cermets alumine-chrome.

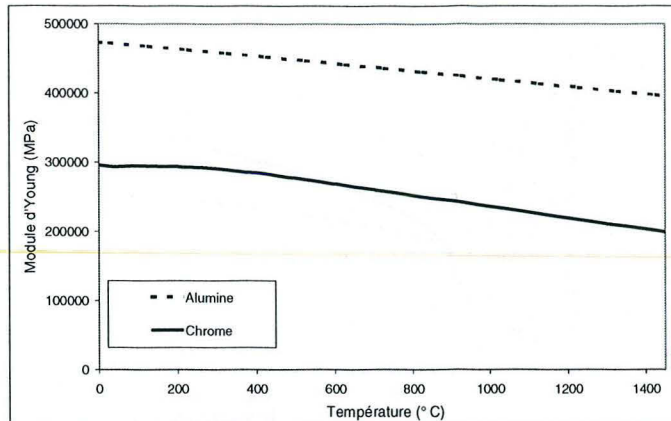


Figure II-1 : Evolution en fonction de la température des modules d'Young du chrome et de l'alumine

La figure II-2 présente l'évolution du coefficient de Poisson du chrome et de l'alumine en fonction de la température. Pour le chrome, nous n'avons pas trouvé de donnée expérimentale sur son évolution en fonction de la température. Les valeurs des constantes d'élasticité  $C_{11}$ ,  $C_{44}$  et  $C_{12}$  [Palm71, Kata79] ont été utilisées pour recalculer le coefficient de Poisson en faisant une hypothèse d'isotropie (Notons que les modules d'élasticité obtenus par cette méthode sont proches de ceux donnés sur la figure II-1).

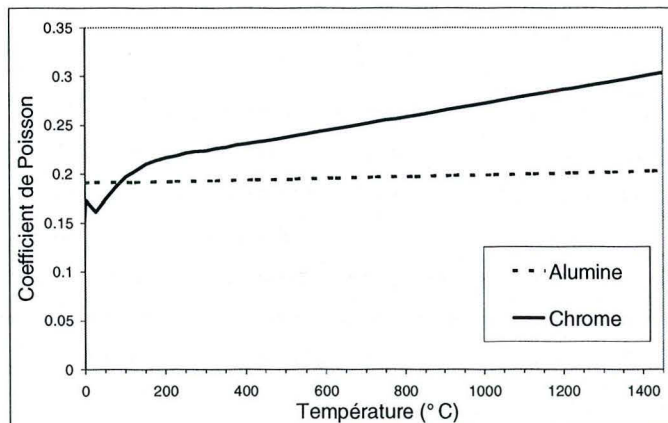


Figure II-2 : Evolution en fonction de la température des coefficients de Poisson du chrome et de l'alumine

La figure II-3 présente les évolutions des coefficients de dilatation thermique de l'alumine et du chrome extraites de [Hand70a, Hand70c]. Ces données sont en bon accord avec diverses études faites sur le chrome [Whit86, Whit96, Stam98, Bole63, Robe83, Dubr97] et sur l'alumine [Wach61, Sglav99, Hoff99]. Les différences de dilatation thermique entre les deux constituants permettent de prédire que l'alumine est globalement en compression et le chrome en traction après le refroidissement.

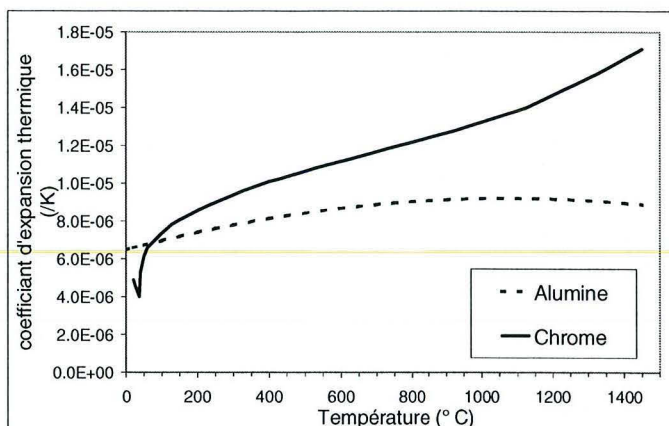


Figure II-3 : coefficients de dilatation thermique du chrome et de l'alumine.

Une inversion du sens de variation des propriétés du chrome est observée autour de 38°C, température de Néel, correspondant à une transition magnétique du chrome. Cette transition magnétique influence l'ensemble des propriétés mécaniques du chrome et elle a fait l'objet (comme la transition magnétique à -120°C), de nombreuses études [Muir87, Albe92, Will81, Cama82, Whit61, Bole63].

Pour l'étude micromécanique, nous supposons un comportement thermoélastique pour l'alumine et un comportement thermoélastoplastique pour le chrome. La possibilité de relaxation des contraintes dans l'alumine par glissement aux joints de grains au-dessus de 1200°C [Digi01, Munr97, Heue70] n' est pas prise en compte dans cette étude.

Les diverses études sur la limite d'élasticité du chrome [Wain57, Gilbe63, Marc62, Mats00, Allen64, Mats96, Manb95, Mori97] montrent que celle-ci et ses variations en fonction de la température dépendent de la pureté du chrome, notamment la teneur en oxygène et azote. La limite d'élasticité du chrome a été fixée à 150 MPa à 20°C, avec une décroissance linéaire jusqu'à 0 MPa à 1853°C (température de fusion du chrome). Nous avons choisi d'utiliser cette évolution de la limite d'élasticité par rapport aux données existantes du chrome [Weav61] en raison du manque d'information sur sa pureté et des inhomogénéités chimiques constatées dans les composites denses. Cette évolution est en assez bon accord avec les études de Stamm et Yomoshu [Stam98, Stam01, Yomo98].

Nous avons considéré un écoulement linéaire avec un module d'écoulement constant et égal à 10000 MPa, de manière quelque peu arbitraire, en l' absence de données plus précises. Cette valeur semble surestimée en particulier à haute température, mais nous montrons dans l'annexe 2 que son incidence sur les valeurs de déformation plastique et les niveaux de contraintes résiduelles calculés est relativement faible.

Ces propriétés mécaniques du chrome et de l'alumine ont été utilisées pour l'ensemble des calculs présentés dans cette partie. La sensibilité du calcul aux variations de ces propriétés a été étudiée et est présentée en annexe 2.

## A-2 - Maillages

Les simulations par éléments finis ont été effectuées pour différents modèles de microstructure : arrangements périodiques 2D et 3D de particules de chrome dans une matrice d'alumine, images binaires de régions caractéristiques de la microstructure réelle en 2D et 3D.

### A-2.1 Microstructures idéales

#### a) – 3D

Des arrangements périodiques de particules sphériques de chrome dans la matrice alumine ont été construits en 3D. Pour des raisons de symétrie, seulement un huitième de l'ensemble de la cellule est nécessaire pour effectuer le calcul thermo-mécanique. La périodicité est assurée en imposant aux nœuds des faces externes de rester dans un plan parallèle à celui de leurs positions de départ. Différentes fractions volumiques de chrome comprises entre 1 et 40% (voir figure II-4) ont été considérées.

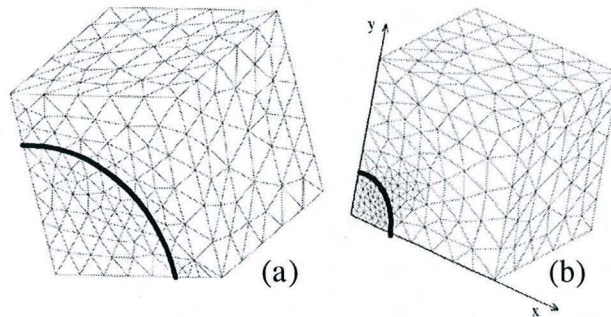


Figure II-4 : microstructures idéales 3D (a) 20% volumique (b) 1% volumique

Des éléments tétraédriques à 10 nœuds ont été utilisés, les autres formes d'éléments ne permettant pas d'approcher de façon satisfaisante la forme sphérique des particules métalliques.

#### b) – 2D

Des microstructures idéales 2D, plus simples à mailler, ont aussi été envisagées. Ces maillages ont été réalisés avec pour base une cellule carrée contenant une particule métallique circulaire. Pour l'étude de la fraction surfacique, les particules métalliques ont des rayons variables (figure II-5) pour représenter des fractions surfaciques de 1 à 50%.

Pour des raisons de symétrie, seulement un quart de la cellule globale est nécessaire pour les calculs micromécaniques. Pour toutes ces microstructures en 2D, un arrangement périodique de cellules identiques a été supposé, en imposant aux lignes externes de demeurer parallèles à elles-mêmes, de façon analogue aux microstructures idéales 3D. Dans la direction perpendiculaire à la cellule une condition de déformation plane généralisée a été imposée.

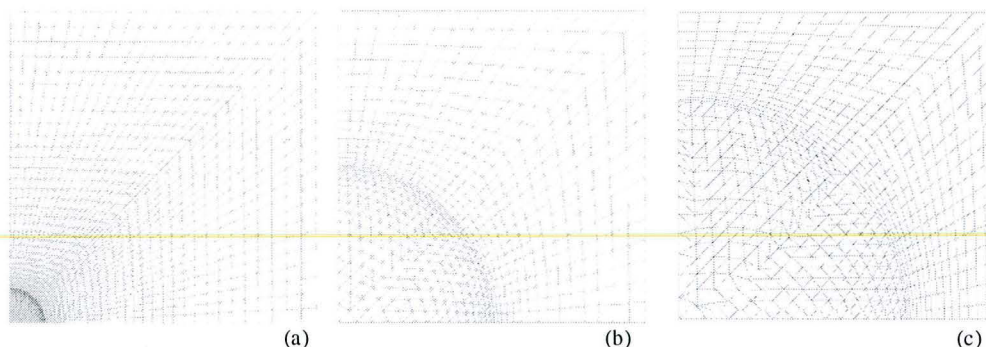


Figure II-5 : microstructures idéales 2D (a) 1% (b) 20% (c) 40% fraction surfacique

### A-2.2 Microstructure réelles

#### a) - Obtention d'un maillage 2D

Un maillage de la microstructure réelle en 2D a été réalisé à partir d'une image obtenue en microscopie électronique à balayage. Celle-ci est seuillée pour distinguer les particules et la matrice. Un algorithme de traitement d'images développé à l'aide du logiciel Aphelion [Aphe00] détermine les contours des interfaces chrome/alumine, permettant ainsi à l'utilitaire de maillage de SYSTUS [Syst01] de réaliser un maillage des particules et de la matrice (voir figure II-6). La taille de la cellule a été fixée à cinq fois la portée du covariogramme de l'image dont est issue la partie utilisée pour le maillage [Serr82]. Ce covariogramme est donné sur la figure II-7. Le principe du covariogramme est de mesurer les écarts de surface (ici celle des particules) entre une image et la même image légèrement décalée de quelques pixels. Il est ainsi possible de déterminer la surface pour laquelle la différence entre les deux images est sensiblement la même. La portée de la microstructure est définie comme l' intersection de la courbe avec son asymptote.

Le maillage a été réalisé de manière à obtenir des éléments relativement fins à proximité des interfaces tout en conservant des temps de calcul raisonnables (de l'ordre d'une journée CPU).

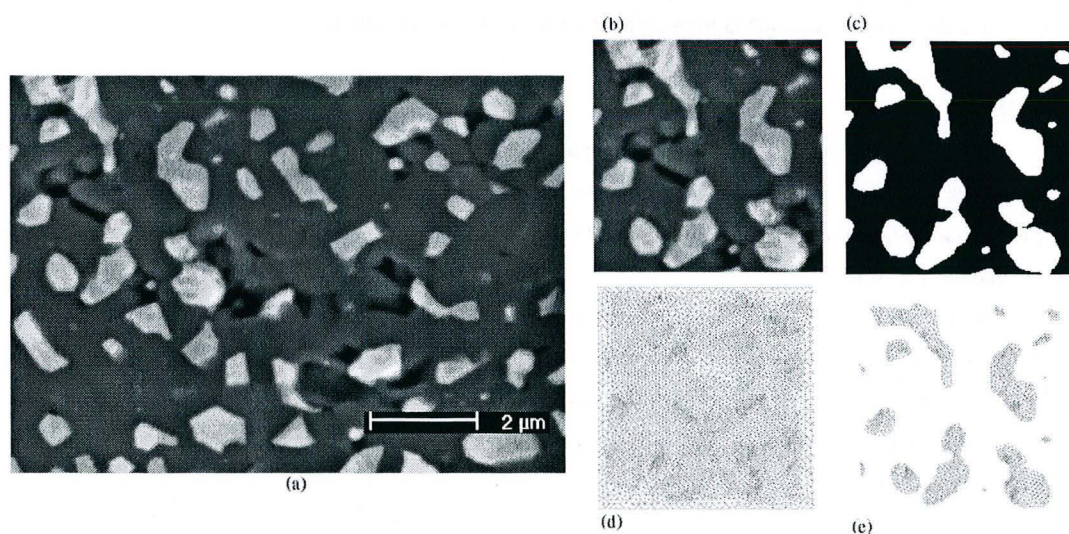


Figure II-6 : (a) image MEB de la microstructure, (b) zone sélectionnée (c) image seuillée (d) Maillage complet de la cellule (e) maillage des particules



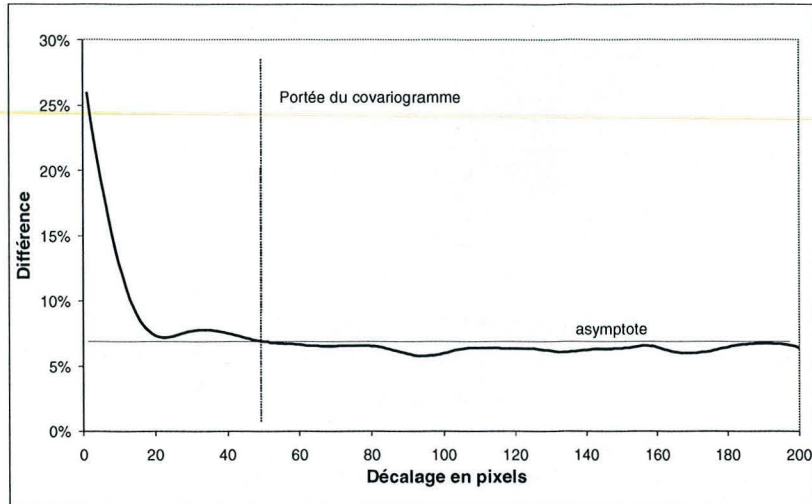


Figure II-7 covariogramme de l'image MEB.

La cellule de calcul est ici supposée libre de se déformer. Un calcul effectué avec une hypothèse de périodicité n'a pas montré de différences majeures sur les champs locaux de contraintes (de 100 à 200 MPa sur les composantes du tenseur des contraintes) qui seront analysés par la suite. Comme précédemment, une hypothèse de déformation plane généralisée est utilisée.

#### b) - Obtention d'un maillage 3D

La microtomographie par rayons X permet de reconstruire le volume analysé en 3D, comme nous l'avons décrit dans le chapitre I. Le principe du stockage des informations de microtomographie est un découpage du volume analysé en domaines de  $1 \mu\text{m}^3$ . A chaque voxel correspond un niveau de gris. Lorsque le niveau de gris permettant de distinguer les deux phases, a été fixé, il est possible d'attribuer à chaque voxel (de 1 micron d'arête) une phase ou une autre (alumine ou chrome) en fonction de son niveau de gris.

Pour passer des données issues de la microtomographie au maillage 3D de la microstructure, il faut construire un volume équivalent à celui sélectionné, discrétiser ce volume en cubes dont la taille est équivalente à chaque voxel et attribuer à chacun de ces voxels les propriétés du chrome ou de l'alumine (voir figure II-8)

Le problème du maillage de la microstructure en 3D est le même que celui lié à son observation. Comme une partie des particules ont une taille inférieure à  $1 \mu\text{m}^3$ , les images issues de la microtomographie ne reflètent pas exactement la microstructure réelle. De plus l'utilisation d'éléments cubiques impose des conditions de continuité particulières aux interfaces, avec des singularités aux sommets des cubes.

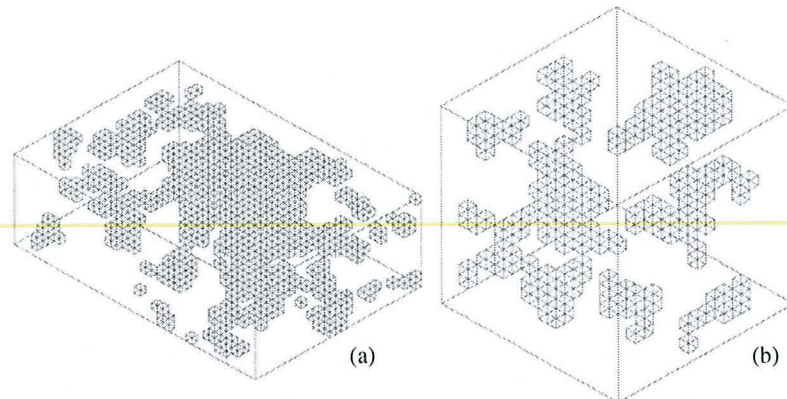


Figure II-8 : exemple de maillages de la phase métallique réalisé à partir des données de la microtomographie ; les dimensions totales des zones sélectionnées sont (a)  $39 \times 42 \times 14 \mu\text{m}^3$  et (b)  $40 \times 40 \times 40 \mu\text{m}^3$ , seuls les éléments associés au chrome sont représentés.

Pour les calculs de contraintes réalisés sur la microstructure réelle en 3D, la cellule est libre de se déformer. En effet, en raison de capacités de calcul, pour le moment insuffisantes, il n'a pas été possible de prendre en compte des conditions de périodicité, ni un volume suffisamment grand pour être représentatif de l'ensemble de la microstructure. Les volumes sélectionnés sont donc des zones particulières de la microstructure. Toutefois différents types de zones ont été choisis comme l'environnement d'une « grosse » particule de chrome figure II-8 (a) ou un ensemble de petites particules de chrome figure II-8 (b).

Pour tous les calculs, les interfaces métal-céramique ont été considérées comme parfaites. Les résultats des calculs correspondant aux nœuds de l'interface alumine-chrome ne sont pas représentés, en raison du fait que nos maillages ne sont pas suffisamment fins près des interfaces. Les calculs sont réalisés dans l'hypothèse des petites déformations en supposant un écrouissage isotrope.

### A-3 - Champs de contraintes locales

Dans cette partie, les contraintes résiduelles dans le composite alumine-chrome générées lors du refroidissement de  $1450^\circ\text{C}$  (température de frittage) à la température ambiante sont calculées. Tout d'abord, les microstructures idéales sont étudiées pour mettre en évidence les effets de la fraction volumique et de la plasticité des particules métalliques sur les contraintes internes. Comme la microstructure réelle est modélisée à partir d'une image 2D, nous nous intéresserons aux différences entre des modèles 2D et 3D dans une seconde étape. Enfin le cas de la microstructure réelle sera étudié en 2D et 3D.

#### A-3.1 Microstructures idéales 3D

##### a - Evolution des contraintes en fonction de la température

Pour bien comprendre les états de contraintes résiduelles après refroidissement, nous analysons d'abord l'évolution des contraintes en fonction de la température. Considérons le cas d'une distribution de particules

sphériques correspondant à une fraction volumique de 20% de chrome. Il est possible de suivre l'évolution des contraintes en fonction de la température pour certains points particuliers : le centre de la particule métallique, le premier nœud du maillage situé après l'interface dans la matrice et le nœud au bord de la cellule. Comme le montre la figure II-9.

Pour la présentation des résultats, nous avons choisi d'utiliser la contrainte hydrostatique ( $\sigma_m = \sigma_{kk}/3$ ), car elle représente la triaxialité des contraintes et la contrainte de Von Mises ( $\sigma_v = ((3/2)\sigma_{ij}\sigma_{ij})^{1/2}$ ) car nous nous intéressons à la possibilité de déformation plastique du chrome qui peut influencer le comportement ultérieur du composite à la fissuration. Nous présentons aussi l'évolution de la déformation plastique équivalente cumulée ( $\epsilon^p = \int d\epsilon^p$  avec  $d\epsilon^p = (2/3 d\epsilon_{ij}^p d\epsilon_{ij}^p)^{1/2}$ ) à l'interface (premier nœud dans le chrome.).

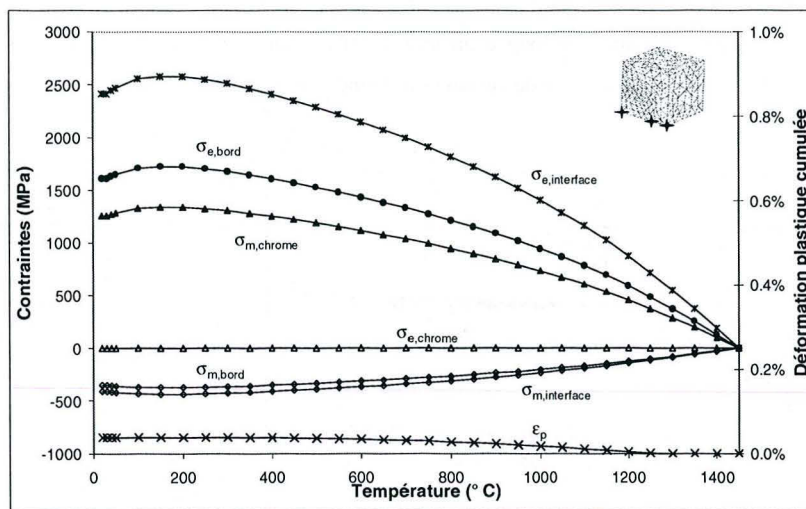


Figure II-9 : évolution en fonction de température des contraintes de Von Mises et hydrostatique pour trois points particuliers d'un maillage sphère dans cube, contenant une fraction volumique de 20% de chrome

On a considéré de façon un peu arbitraire, 1450°C comme étant la température où les contraintes sont totalement relaxées. Généralement, on considère, de façon également arbitraire, qu'il existe de la relaxation dans l'alumine polycristalline jusqu'à 1200°C [Munr97, Wach61] en raison de la présence d'une phase vitreuse entre 1200°C et 1450°C et des glissements aux joints de grains. Ces phénomènes n'étant pas pris en compte, nous avons suivi le cycle de refroidissement du composite, son influence sur les niveaux de contrainte est analysée en annexe 2. Pendant le refroidissement, comme la contraction thermique du chrome est plus importante que celle de l'alumine, celui-ci est mis en traction tandis que l'alumine est en compression.

Dans l'alumine, entre 1450°C et 150°C, la contrainte de von Mises augmente pour atteindre son plus haut niveau à 150°C, ensuite, elle diminue faiblement en raison des variations respectives des coefficients de dilatation thermiques des deux phases (figure II-3). Lorsque la transition magnétique du chrome intervient, un léger changement du sens de variation de la contrainte de Von Mises est observé. Au bord de la cellule, la contrainte de von Mises a un niveau beaucoup plus faible mais suit une évolution similaire. Au centre de la particule de chrome, la contrainte de von Mises reste nulle durant tout le refroidissement, du fait d'un état de

contrainte hydrostatique. De faibles déformations plastiques (inférieures à 0,04%, donc négligeables) sont générées dans le chrome au cours du refroidissement entre 1250°C et 300°C.

L'évolution de la contrainte hydrostatique dans le chrome et l'alumine est en accord avec les variations respectives des coefficients de dilatation thermique des deux phases. Le chrome est en traction et l'alumine en compression. Comme pour la contrainte de Von Mises, la contrainte hydrostatique augmente jusqu'à 150°C puis diminue, la transition magnétique a également un effet sur son évolution.

Dans la plupart des cas qui seront étudiés par la suite (en particulier ceux correspondant à des géométries convexes), les contraintes de Von Mises et hydrostatique ont des évolutions similaires avec la température, seuls les niveaux des contraintes diffèrent. C'est pourquoi les résultats suivants ne concerneront que les profils de contraintes résiduelles (à 20°C).

L'évolution des contraintes le long d'un axe, à 20°C, dans le cas d'un maillage sphère dans cube contenant une fraction volumique de 20% de chrome est donnée sur la figure II-10.

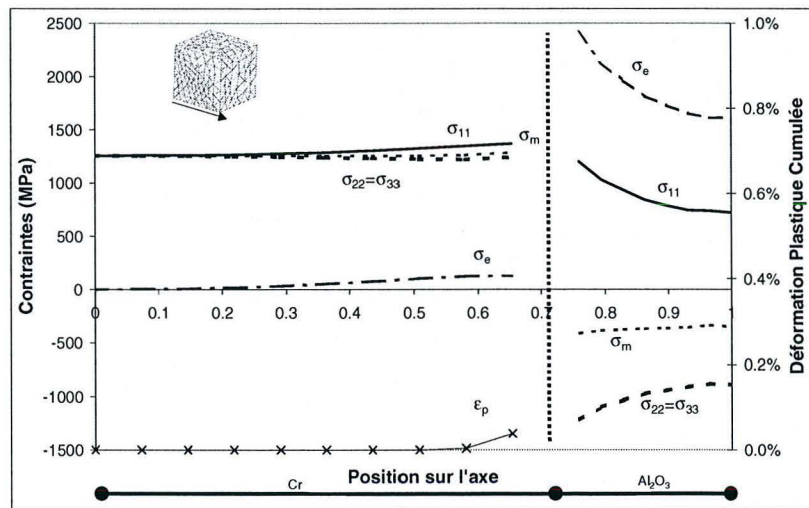


Figure II-10 : Evolution des contraintes le long d'un axe dans le cas d'une sphère de chrome dans un cube d'alumine (20% volumique)

Au centre de la particule de chrome, un état de contrainte hydrostatique avec  $\sigma_{11} \cong \sigma_{22} \cong \sigma_{33}$  ( $\sigma_c=0$ ) est observé, l'état de contrainte s'écarte de l'état hydrostatique quand on s'approche de l'interface métal-céramique et la contrainte de Von Mises augmente. C'est également près de l'interface que le chrome est déformé plastiquement. Cet effet est dû à l'interaction entre particules comme nous le discuterons ultérieurement.

Dans l'alumine,  $\sigma_{11}$  est en traction alors que  $\sigma_{22}$  et  $\sigma_{33}$  sont en compression ( $\sigma_{22}=\sigma_{33}$ ). Les niveaux de contraintes diminuent lorsque l'on s'éloigne de l'interface, comme on peut le voir aussi pour la contrainte de Von Mises. Notons aussi que  $\sigma_c$  reste élevée au bord de cellule en raison de l'interaction avec les particules voisines. La contrainte hydrostatique est en compression et son niveau est quasiment constant à -350 MPa le long de l'axe. Une simulation effectuée sur un maillage plus fin (annexe 2) a permis de montrer que nos résultats

ne sont pas très sensibles à la taille des éléments et que l'on peut se permettre une extrapolation des profils des contraintes obtenus dans chaque phase au niveau de l'interface.

b - Effet de la fraction volumique

Les composites alumine chrome, élaborés par mécanosynthèse, peuvent contenir des fractions de chrome allant de 9% à 36% [Guic98b]. Pour analyser l'effet de la fraction volumique sur les contraintes, les calculs ont été réalisés sur des maillages représentant différentes fractions volumiques. La figure II-11 montre les évolutions des contraintes le long d'un axe pour les cas 20 et 40%.

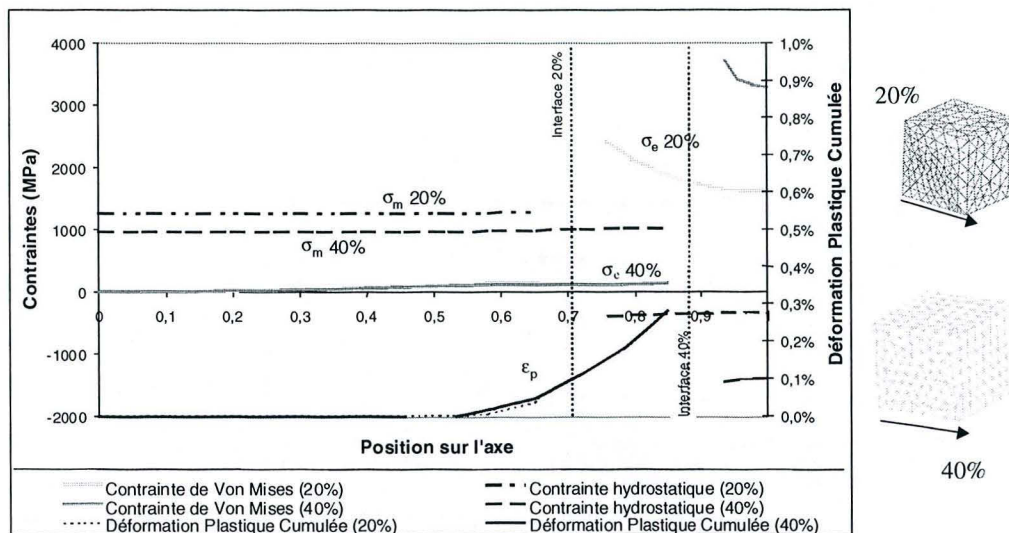


Figure II-11 : Effet de la fraction volumique, particules sphériques

La comparaison des différents résultats montre que l'augmentation de la fraction métallique (de 20 à 40%), donc l'amplification de l'interaction entre particules conduit à une augmentation de la contrainte de Von Mises à l'interface. L'augmentation de la contrainte de Von Mises est également visible au bord de la cellule en raison de la présence des particules voisines. La compression, dans l'alumine, augmente passant de -350 à -1500 MPa. Dans la particule métallique, la contrainte hydrostatique diminue (de 1250 à 950 MPa). La déformation plastique atteint 0,3%, celle-ci restant localisée à l'interface. Toutefois, la fraction de particule déformée plastiquement augmente avec l'interaction entre les particules.

Pour une fraction volumique faible (1%), les niveaux de contraintes sont comparable à ceux du modèle de Scherer [Sche86] correspondant au cas d'une particule de métal sphérique incluse dans une sphère d'alumine comme le montrent les valeurs du tableau II-1 (dans ce cas, il n'y a pas de déformation plastique des particules qui sont dans un état de contrainte hydrostatique)

	Modèle périodique 3D	Modèle de Scherer
$\sigma_{hydrostatique}$ – particule	1497 MPa	1479 MPa
$\sigma_{Von Mises}$ – interface	1870 MPa (extrapolé)	1778 MPa

Tableau II-1 : comparaison entre le modèle périodique 3D et le modèle de Scherer

c – Effet du comportement mécanique du chrome

Afin d'étudier l'effet de l'accommodation plastique du chrome sur les niveaux de contraintes, des calculs ont été réalisés en considérant un comportement élastique pour le chrome. Avec l'augmentation de l'interaction entre particules, des contraintes déviatoriques apparaissent dans les particules, comme le montrent les profils le long d'un axe de la figure II-12 pour une microstructure correspondant à une fraction volumique de 40% (pour exacerber les effets).

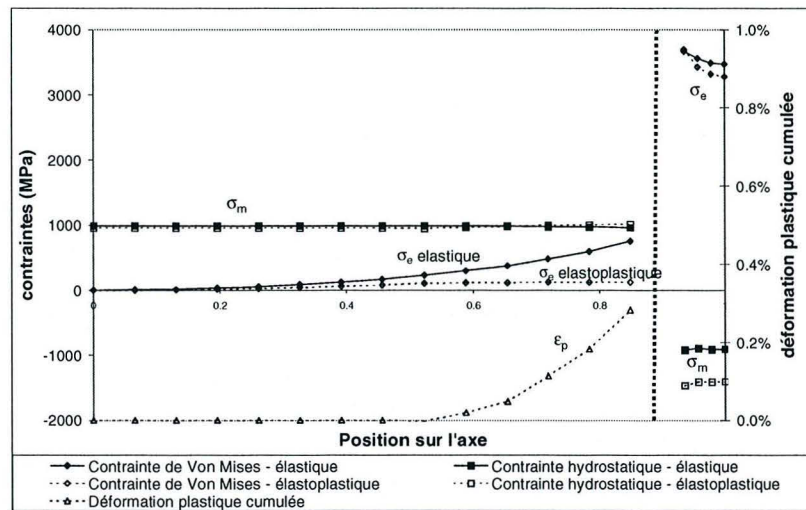


Figure II-12 : profils de contraintes pour un comportement élastique et élastoplastique du chrome (particule sphérique 40% volumique)

Ces contraintes conduisent à l'apparition de déformation à l'interface métal-céramique. Cette déformation plastique atteint 0,3% à 20°C dans le cas de la fraction volumique de 40% de métal. L'accommodation plastique du chrome conduit à une augmentation de la compression dans l'alumine et une faible diminution de la contrainte de Von Mises par rapport au cas où les deux phases sont élastiques. Comme attendu, les contraintes dans le chrome sont relaxées et la contrainte de Von Mises diminue pour atteindre un niveau en accord avec la limite d'élasticité dans la zone plastifiée. L'utilisation d'autres variations de la limite d'élasticité avec la température, comme étudié dans l'annexe 2, change peu les niveaux de déformation plastique calculés. De même, la variation du coefficient d'écroutissage, du chrome ne modifie pas de façon sensible le niveau de déformation plastique dans le chrome.

A-3.2 Comparaison entre modèles 2D et 3D

Jusqu'à présent, seules les microstructures modèles en trois dimensions ont été étudiées. Par la suite, l'analyse de la microstructure réelle sera aussi faite en 2D. Etant donné les différences de conditions aux limites en 2D et 3D, cela implique des modifications des champs de contraintes. Les différences entre modèles 2D et 3D sont discutées dans la littérature pour les matériaux composites, mais le plus souvent par rapport à la prévision du comportement macroscopique du composite (par exemple en traction [Lung95, Lipp97]). L'incidence de l'hypothèse 2D sur les champs locaux est peu explicitée [Bohm00]. Pour la quantifier, nous avons effectué des

calculs sur des microstructures 2D correspondant à différentes fractions surfaciques de chrome, comprise entre 1 et 40%.

Pour analyser l'évolution des contraintes en comparaison avec les microstructures idéales 3D, un maillage en 2D a été réalisé en conservant le même rapport taille de cellule/rayon de particule (le maillage 2D correspond à une coupe équatoriale du maillage 3D). Pour une fraction volumique de 20%, ce maillage correspond à une fraction surfacique de 41%. Les profils de contraintes résiduelles montrent que la particule n'est plus dans un état quasi-hydrostatique et dans le cas d'un comportement élastoplastique du chrome, cela implique une déformation plastique non négligeable de l'ensemble de la particule (0,22%) (figure II-13). Cette déformation plastique existe dans l'ensemble de la particule et n'est plus, comme dans le cas 3D, uniquement localisée à l'interface. Un faible gradient de déformation plastique est observé près de l'interface. Il faut souligner que même pour une fraction surfacique faible (1%), il existe une déformation plastique non négligeable du chrome (0,2%) due à la condition limite.

Dans l'alumine, les profils de contrainte sont semblables, mais leurs niveaux sont plus élevés en 2D : la contrainte de Von Mises augmente et la compression dans l'alumine augmente également. Des différences de niveaux de contrainte hydrostatatique sont aussi observés dans le chrome.

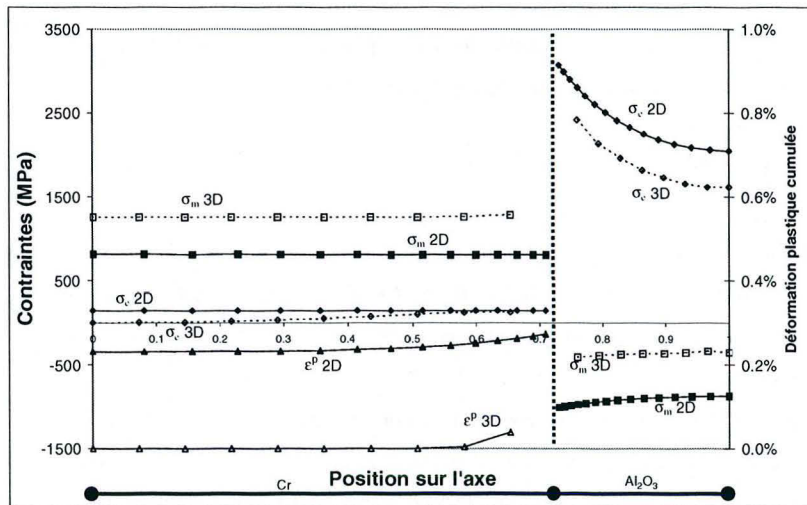


Figure II-13 : profil de contraintes résiduelles et déformation plastique pour des microstructures idéales 2D et 3D

Nous avons aussi montré que l'augmentation de la fraction surfacique en 2D produit les mêmes effets que l'augmentation de la fraction volumique en 3D, c'est-à-dire une augmentation des niveaux de contraintes dans l'alumine et une augmentation de la déformation plastique dans le chrome. (figure II-14)

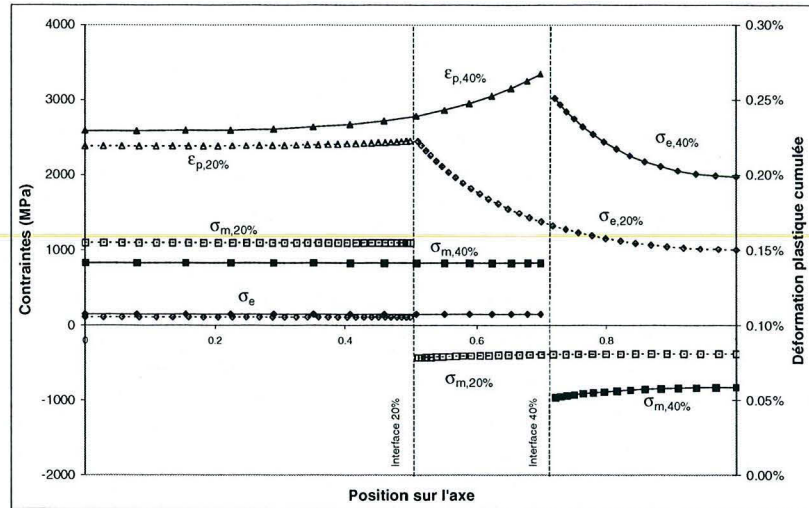


Figure II-14 : effet de la fraction surfacique pour des microstructures idéales 2D

Nos résultats ont montré que les analyses 2D peuvent donner des indications quant aux évolutions de champs locaux avec différents paramètres comme la fraction volumique ou le comportement mécanique du chrome, mais conduisent à surestimer la taille des zones plastifiées et les amplitudes de déformation plastique dans le chrome ainsi que les niveaux de contraintes dans l'alumine.

### A-3.3 Microstructures réelles 2D

Les calculs ont été effectués sur différentes microstructures correspondant à des échantillons contenant 9, 21 et 36% volumique de chrome. Les figures II-15 et II-16 donnent les états de contraintes (hydrostatique et de Von Mises) et de déformation plastique cumulée à 20°C pour des microstructure contenant 21% et 36% de chrome respectivement.

L'observation des isovaleurs de contraintes et de déformation sur les microstructure réelles montrent des hétérogénéités de la contrainte hydrostatique dans la matrice avec des zones en compression et d'autres en traction. Des niveaux élevés pour la contrainte de Von Mises sont visibles dans les zones où les particules ont une forte interaction. Des gradients de déformation plastique sont également visibles dans les particules de chrome, en particulier aux endroits où les particules présentent des concavités.

Pour analyser plus finement ces champs locaux de contraintes, nous avons choisi trois situations particulières de la microstructure à 21%.

- une particule isolée ayant une forme globalement circulaire, comme la particule A
- des particules proches les unes des autres, augmentant ainsi la fraction locale de métal (particule B et C)
- des particules présentant des concavités (particule C)

Des profils de contraintes ont été tracés à travers ces particules.



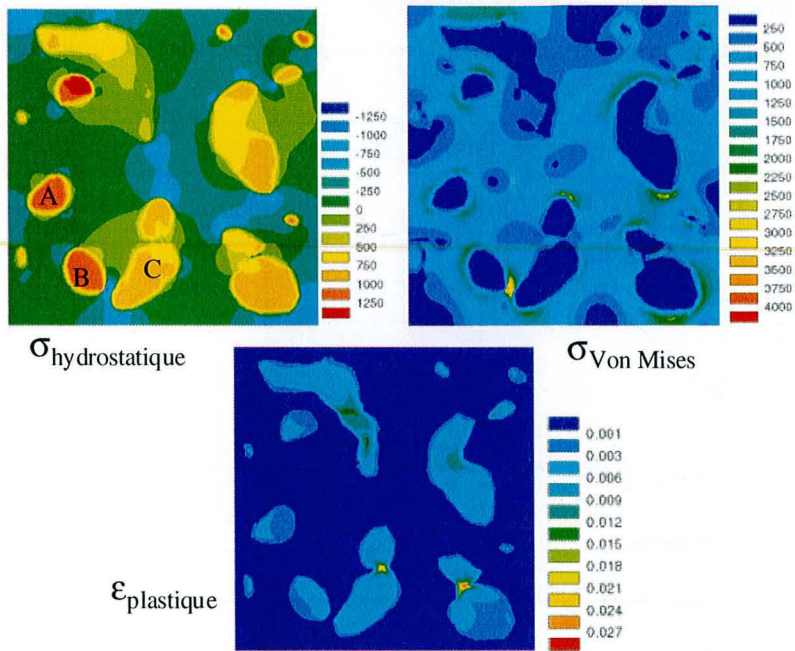


Figure II-15 : isovaleurs des contraintes (en MPa) et de la déformation plastique pour une microstructure réelle contenant 21% de chrome

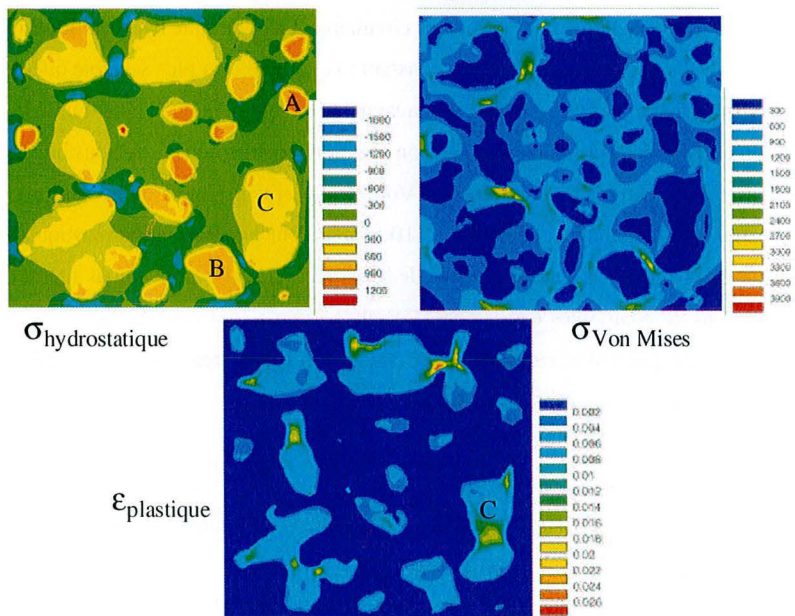


Figure II-16 isovaleurs des contraintes (en MPa) et de la déformation plastique pour une microstructure réelle contenant 36% de chrome

Cas d'une particule ayant une forme globalement circulaire

La figure II-17 montre l'évolution des contraintes à travers une particule globalement circulaire.

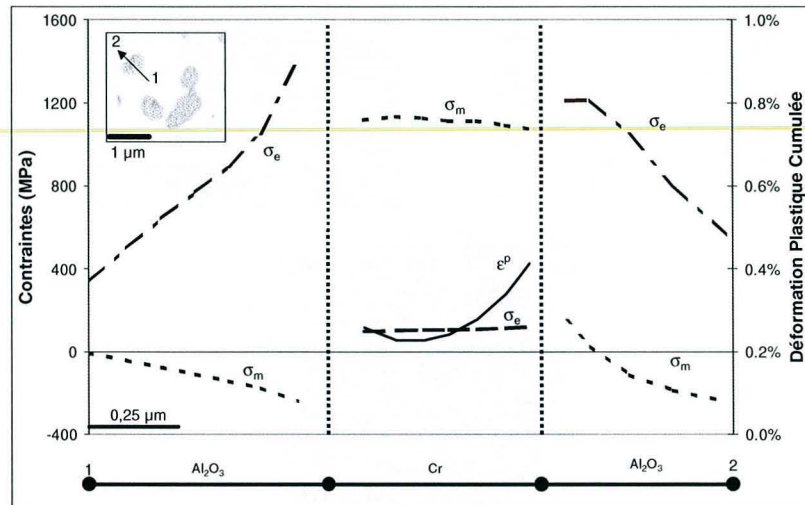


Figure II-17 : profil de contraintes & déformation plastique pour une particule quasi circulaire (issue de la microstructure réelle 21%) (particule A)

Dans l'alumine, la contrainte de Von Mises augmente lorsqu'on se rapproche de l'interface, comme pour la microstructure idéale contenant des particules circulaires. La contrainte hydrostatique, du côté 1, est en compression mais le niveau de contrainte n'est pas constant ; la variation est plus sensible que dans le cas idéal. De plus, du côté 2, la particule présente une légère concavité ce qui entraîne que la contrainte hydrostatique est en traction proche de l'interface puis passe en compression, comme nous le verrons ultérieurement.

Dans la particule de chrome, la contrainte de Von Mises est constante à un niveau proche de 150 MPa, la contrainte hydrostatique est également constante à 1100 MPa. Pour la déformation plastique, un gradient plus élevé est observé que nous attribuons aussi à la forme de la particule. Le niveau maximal atteint 0,4%.

Les distributions de contraintes dans le cas de cette particule sont proches de celles obtenues pour un arrangement périodique de particules circulaires 2D étudiés précédemment avec des différences liées à la géométrie locale de la particule non parfaitement circulaire.

Cas de deux particules en forte interaction

Ce cas, illustré sur la figure II-18, concerne des particules métalliques, ayant des formes globalement convexes, proches l'une de l'autre.

Du côté 2, l'évolution des contraintes est proche de celle précédemment étudiée (particule circulaire isolée). Du côté 1, le niveau de la contrainte de Von Mises reste constant, probablement en raison des effets de bords, qui dans ce cas sont libres de se déformer. Entre les deux particules, l'augmentation des contraintes est très sensible, la contrainte de Von Mises atteint 3000 MPa et la compression augmente fortement avec la contrainte hydrostatique qui atteint -1250 MPa. Les effets de l'interaction entre particules sont donc similaires à ceux observés pour des microstructures idéales.

Pour la particule de chrome B (ayant une forme quasi circulaire), les niveaux et les évolutions de contraintes sont similaires au cas précédent ; la présence du gradient de déformation plastique est due à l'interaction entre les particules, comme dans le cas de microstructures idéales 2D et 3D. Pour la particule C, la contrainte hydrostatique est à un niveau moins élevé, mais surtout la déformation plastique présente des évolutions complexes qui sont une conséquence de l'interaction entre les particules mais également de la forme de la particule.

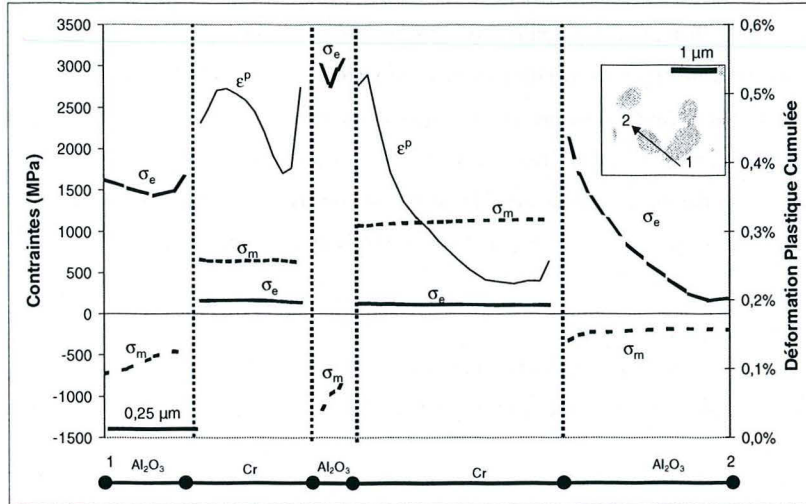


Figure II-18 : profil de contraintes & déformation plastique pour deux particules proches (issue de la microstructure réelle 21%) (particules B et C)

#### Cas de particules présentant des concavités

Cette configuration donne des champs de contraintes locales caractéristiques (figure II-19). La contrainte hydrostatique passe en traction dans l'alumine et ceci d'autant plus que l'on se rapproche de l'interface.

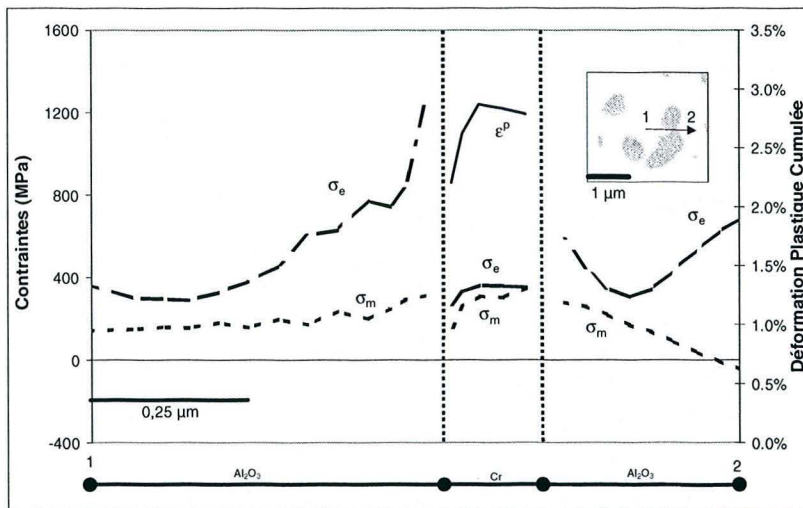


Figure II-19 : profil de contraintes & déformation plastique pour une particule concave (issue de la microstructure réelle 21%) (particule C)

Le niveau de déformation plastique atteint un maximum de 3% et ce maximum n'est pas localisé à l'interface. Nous reviendrons plus tard sur les gradients de déformation plastique observés. La contrainte de Von Mises a un niveau élevé près de l'interface. Dans la matrice et plus loin de la particule, son évolution est perturbée par les particules voisines (côté 2).

#### A-3.4 Microstructures idéales 3D avec des morphologies complexes

L'examen des champs de contraintes locales des microstructures réelles 2D, montre clairement que la morphologie concave des particules métalliques modifie les contraintes internes en faisant passer la contrainte hydrostatique en traction dans l'alumine et en augmentant les niveaux de déformation plastique dans les particules. Pour s'assurer qu'il s'agit effectivement d'effets liés à la morphologie des particules et non au caractère 2D de la simulation, des particules 3D de forme concave ont été spécialement modélisées. Pour les trois types de particules envisagées ci après, une fraction volumique proche de 20% a été respectée.

##### a- Maillages éléments finis

Nous avons "dessiné" des particules métalliques présentant différentes concavités (figure II-20), les différences étant principalement marquées par le signe de celles-ci.

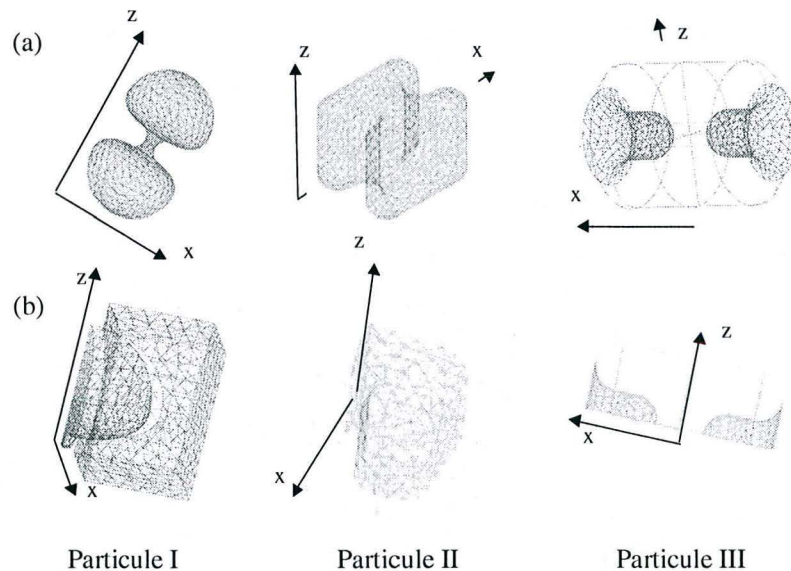


Figure II-20 : particules concaves pour des microstructures idéales 3D  
(a) particules entières (b) cellules pour le calcul

Certains paramètres caractéristiques de leur morphologie sont résumés dans le tableau II-2, ce sont :

- le signe du rayon de courbure dans le plan  $xOz$
- le signe du rayon de courbure dans le plan  $yOz$
- l'ouverture de la particule (distance par rapport à l'axe) le long de l'axe  $Ox$
- les axes de symétries, s'il en existe.

	Particule I	Particule II	Particule III
R (plan xOz)	< 0	< 0	< 0
R plan (yOz)	> 0	$\infty$	< 0
Ouverture	Croissante	Constante	Constante
Axe de symétrie	Oz	Aucun	Ox

Tableau II-2 : paramètres géométriques des particules concaves

Pour ces microstructures, un arrangement périodique de particules est pris en compte.

b- Résultats

Les évolutions des contraintes et de la déformation plastique sont données sur la figure II-21 pour la particule I, figure II-22 pour la particule II et figure II-23 pour la particule III. Les profils sont donnés le long de l'axe Ox où se trouve la concavité, sur les autres axes le comportement des contraintes est similaire à celui de particules convexes précédemment étudiées, à cause de la forme des particules sur ces axes.

Dans le chrome, l'évolution des contraintes de Von Mises est la même dans les trois types de particules : la contrainte est constante dans la particule, mais n'est pas nulle au centre comme dans le cas d'une particule convexe (sphérique). De plus, la déformation plastique affecte l'ensemble de la zone concave de la particule et n'est plus uniquement localisée à l'interface. Le niveau de la contrainte de Von Mises est plus faible dans le cas de la particule I ( $\approx 80$  MPa) que pour les deux autres ( $\approx 150$  MPa), avec également des évolutions différentes de la déformation plastique. Dans la particule I, le maximum de la déformation plastique se situe au centre de la particule alors que dans les particule II & III, la déformation plastique maximale se situe à l'interface, comme dans le cas d'une particule convexe. On peut noter qu'un gradient similaire à celui de la particule I a été observé dans le cas de la particule C de la microstructure réelle 2D (figure II-22). La contrainte hydrostatique est en traction dans les trois particules et son niveau est constant, de l'ordre de 1000 MPa, avec une tendance à une légère décroissance près de l'interface.

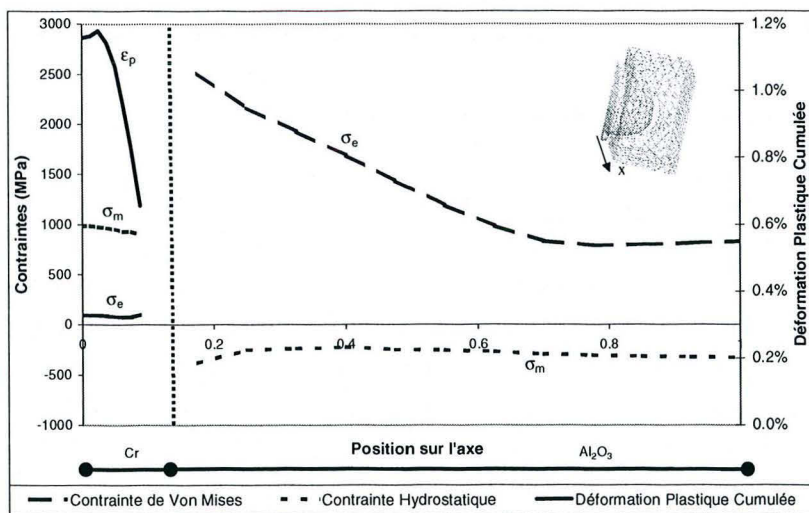


Figure II-21 : profils de contraintes et déformation plastique pour la particule concave I

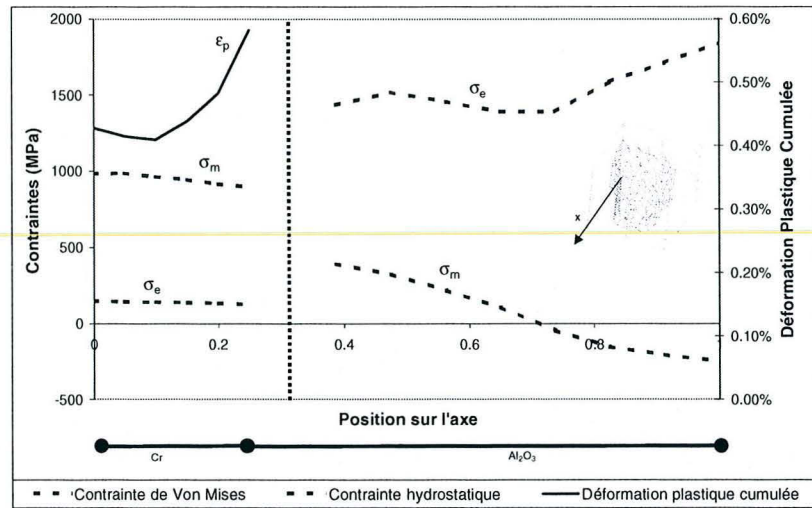


Figure II-22 : profils de contraintes et déformation plastique pour la particule concave II

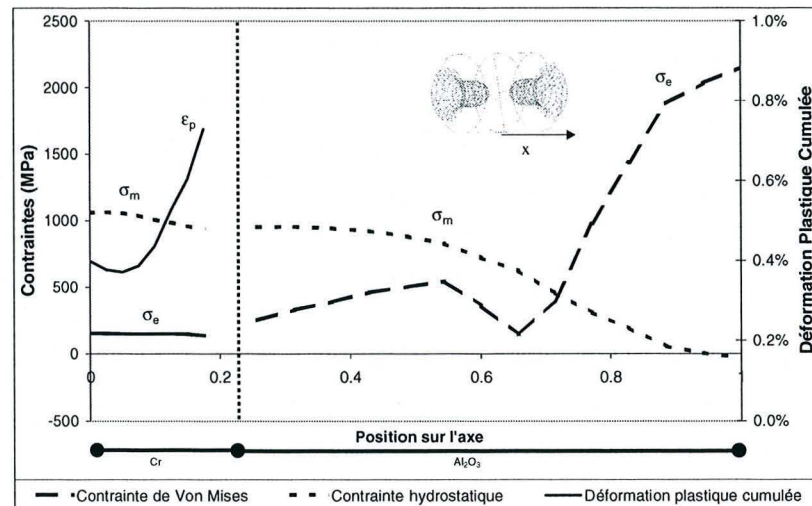


Figure II-23 : profils de contraintes et déformation plastique pour la particule concave III

Dans l'alumine, l'évolution de la contrainte de Von Mises diffère selon les types de particules. Dans le cas de la particule I, le comportement de la contrainte de Von Mises est similaire à celui observé pour les particules convexes (fort niveau de contrainte à l'interface et une décroissance de la contrainte au fur et à mesure de l'éloignement de l'interface.)

Pour la particule II, le comportement de la contrainte de Von Mises diffère fortement du précédent. Il est plus faible et varie relativement peu tant que l'alumine est partiellement enveloppée de chrome ( $x < 0,6$ ). Lorsque  $x$  est supérieur à 0,6, le niveau de la contrainte de Von Mises augmente jusqu'à une valeur de 1840 MPa. Cette augmentation est le résultat de l'interaction avec les particules voisines.

Dans le cas de la particule III, l'évolution de la contrainte de Von Mises est similaire à celui de la particule II. La contrainte adopte un profil moins constant à l'intérieur de la particule avec une augmentation du niveau à partir de l'interface jusqu'à un maximum à 500 MPa puis une décroissance lorsque l'ouverture de la

particule augmente. Pour  $x > 0,6$ , en dehors de la particule, le niveau de la contrainte de Von Mises augmente de nouveau jusqu'à 2150 MPa au bord de la cellule. Il existe également une forte interaction entre les particules.

Pour la contrainte hydrostatique, dans le cas de la particule I, le comportement est similaire à celui des particules convexes. La contrainte est en compression et elle reste constante le long de l'axe à un niveau proche de -310 MPa, valeur proche de celle obtenue dans le cas d'une particule convexe contenant également 20% volumique de chrome. Pour la particule II, la contrainte hydrostatique est en traction près de l'interface, son niveau diminue pour atteindre un état de compression lorsque l'influence de la particule est moins sensible. Pour la particule III, comme dans le cas précédent, la contrainte hydrostatique est en traction. Le niveau de la contrainte, près de l'interface, est proche de celui observé dans le chrome ( $\approx 850$  MPa) et reste globalement constant. Lorsque la position sur l'axe correspond à une augmentation de l'ouverture de la particule, le niveau de la contrainte hydrostatique diminue. En raison de l'influence forte des particules voisines, le niveau atteint par la contrainte hydrostatique au bord de la cellule est très faible (-30MPa).

La présence de concavité, associée a une évolution non croissante de l'ouverture de la particule, entraîne le passage de la contrainte hydrostatique en traction près de cette concavité. Mais ce phénomène nécessite également un comportement élastoplastique du chrome. En effet, lorsque le chrome a un comportement élastique, la contrainte hydrostatique reste en compression comme l'illustre la figure II-24. Le niveau de compression est faible dans la zone englobée par la particule et augmente lorsque l'influence de la particule diminue. Dans l' alumine, l'évolution de la contrainte de von Mises est similaire au cas élastoplastique, seuls les niveaux diffèrent. Dans les particules de chrome, les gradients de contraintes de von Mises élevés dans le cas élastique (qui conduisent d' ailleurs au gradient de déformation plastique dans le cas élastoplastique) sont bien visibles. Le même type de comportement est observé pour la particule II.

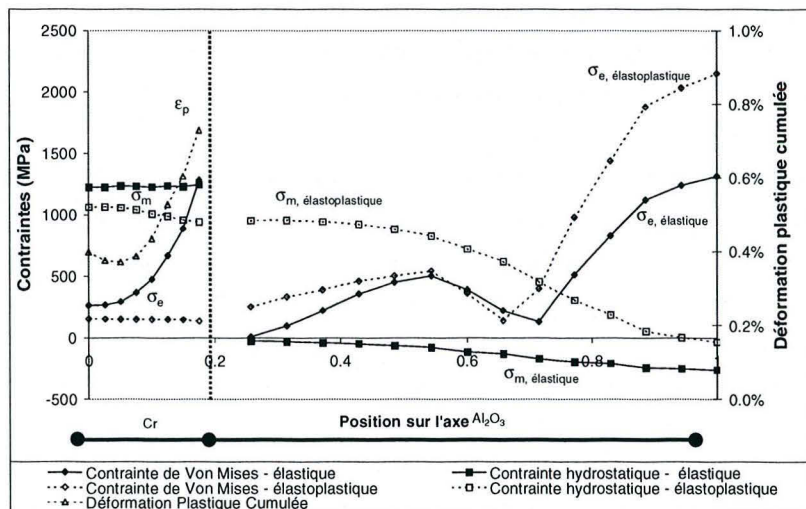


Figure II-24 : Profils de contraintes et déformation plastique pour la particule concave III avec un comportement élastique et élastoplastique du chrome

Pour mieux comprendre ce qui se passe dans la zone concave des particules, il est nécessaire d'analyser l'évolution des composantes du tenseur des contraintes. La figure II-25 présente l'évolution des différents composantes le long de l'axe Ox pour un comportement élastique et élastoplastique du chrome dans la particule III.

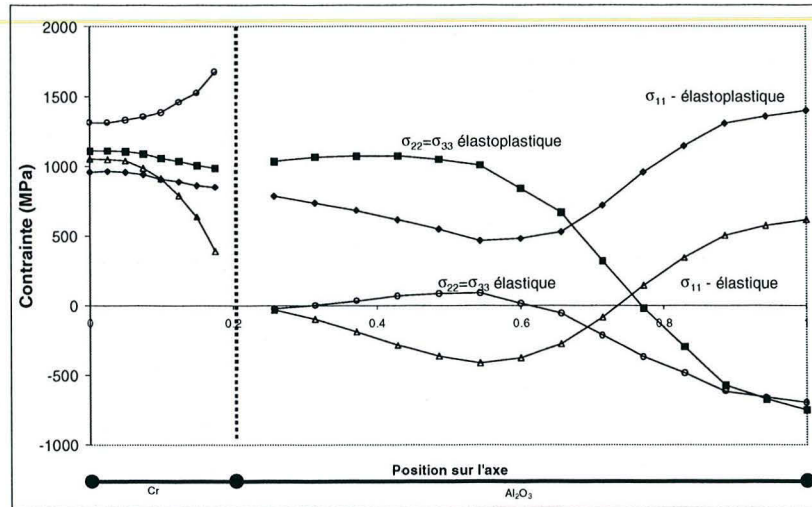


Figure II-25 :  $\sigma_{ii}$  le long de l'axe Ox pour la particule III.

Dans la particule, pour un comportement élastique, les trois composantes sont en traction mais l'état est loin d'être hydrostatique, même au centre de la particule. Avec un comportement élastoplastique pour le chrome, l'ensemble de la particule est déformée plastiquement et les contraintes sont relaxées permettant d'obtenir un état hydrostatique plus uniforme dans la particule. Dans l'alumine  $\sigma_{11}$  passe en traction et  $\sigma_{22}$  augmente permettant le passage de l'alumine en traction, près de la concavité. En dehors de la particule et avec l'influence du bord de la cellule, la contrainte hydrostatique diminue. Pour la particule II, des évolutions similaires des composantes des contraintes sont observées dans la particule et près de la concavité.

Remarque : On peut se demander si le comportement observé dans la concavité est lié au fait que dans cette zone, l'alumine est partiellement englobée dans le chrome. En fait, même dans le cas extrême où l'alumine serait complètement incluse dans le chrome, elle serait toujours soumise à des contraintes de compression, comme nous l'illustrons en annexe 3. C'est la géométrie locale qui joue un rôle prépondérant sur le champ de contrainte.

### A-3.5 Microstructure réelle 3D

A partir des analyses tomographiques, il a été possible de mener le même type de calcul sur des zones de la microstructure réelle 3D maillées par éléments finis comme nous l'avons décrit précédemment. La figure II-26 représente les iso-surfaces et des coupes de la microstructure permettant de visualiser les évolutions de contraintes et de déformations plastique respectivement pour une zone contenant essentiellement une grosse particule et son environnement et une zone contenant une répartition de petites particules. Les coupes présentées sont perpendiculaires à l'axe z et correspondent à différentes hauteurs par rapport au plan de base.



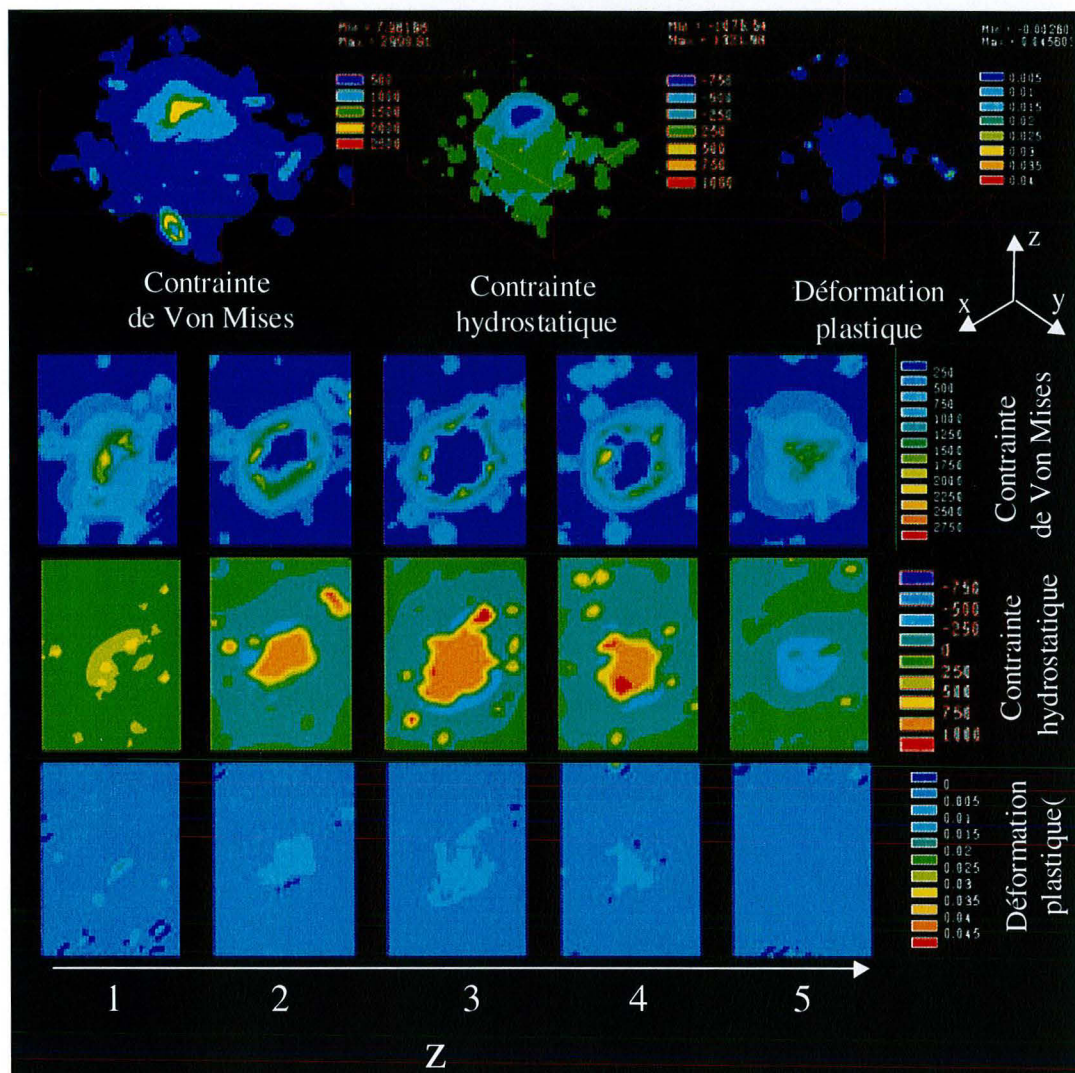


Figure II-26 : isocontraintes et isodéformation pour des coupes faites dans une microstructure réelle 3D – Plan de coupe à 1, 4, 7, 10 et 13 $\mu\text{m}$  - Volume autour d'une particule de chrome - taille de la zone : 39 $\times$ 42 $\times$ 14 $\mu\text{m}^3$

La distribution des contraintes montre que le chrome est soumis à un état de contrainte hydrostatique en traction tandis que l'alumine est globalement en compression. Il est très intéressant de noter que localement, à proximité des particules, lorsque celles-ci présentent des concavités, on retrouve un état de traction dans l'alumine qui diminue quand on s'éloigne de la particule, comme dans le cas de microstructures idéales présentant des concavités. Le niveau de contrainte de traction peut atteindre localement 500 MPa, comme pour les particules concaves idéales. Les niveaux de contraintes de traction dans les particules ( $\approx 1000\text{MPa}$ ) sont aussi proches de ceux obtenus dans les particules idéales concaves (et inférieurs à ceux calculés pour des particules sphériques). Il faut aussi souligner que pour ces calculs, il n'y a pas de conditions de périodicité ce qui modifie également les états de contraintes en particulier près des bords.

Concernant la contrainte de Von Mises, elle est sensiblement constante dans les particules de chrome et son niveau est en accord avec l'évolution de la limite d'élasticité et de la faible déformation plastique présente dans le chrome entre 0,02% et 0,60%. La déformation plastique du chrome n'est pas uniforme et des gradients peuvent apparaître comme dans le cas des microstructures idéales. Dans l'alumine, notons que le maximum de la contrainte de Von Mises n'est pas situé à l'interface. Du fait de la morphologie des particules, la distribution de la contrainte de Von Mises est complexe et son évolution est similaire à celle observée pour les microstructures idéales concaves.

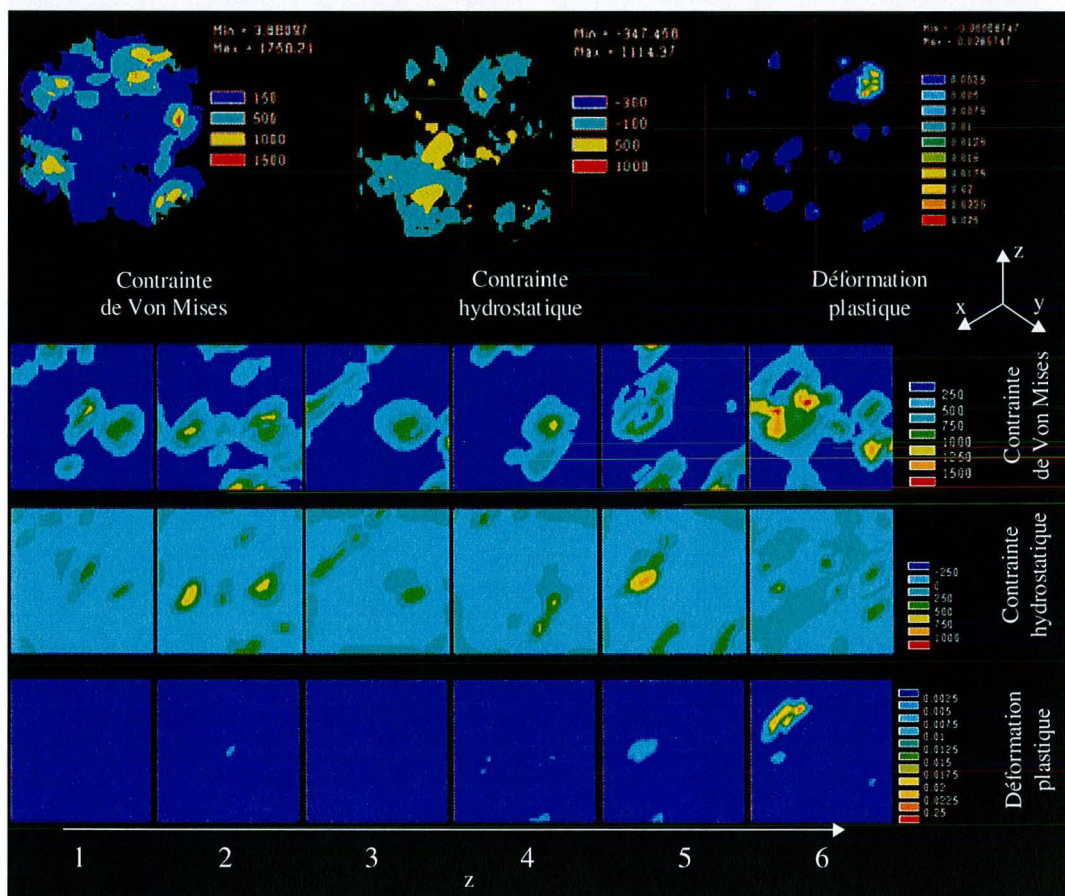


Figure II-27 : isocontraintes et isodéformation pour une coupe faite dans une microstructure réelle 3D – Plan de coupe à 1, 4, 7, 10, 13 et 16 $\mu\text{m}$ - Répartition de petites particules de chrome - taille de la zone : 20 $\times$ 20 $\times$ 20 $\mu\text{m}^3$

Ces résultats permettent donc de confirmer les principales caractéristiques des champs de contraintes déjà mise en évidence par les simulations sur les microstructures réelles 2D et sur les microstructures idéales 3D. Mais étant donné que la microstructure réelle a une taille bien inférieure à celle de la résolution de la microtomographie, voir le chapitre I, d'une part et que d'autre part la taille du volume analysé est relativement faible, les résultats sont à prendre avec précautions pour l'aspect quantitatif.

### A-4 Contraintes moyennes dans les phases

Les calculs micromécaniques ont permis d'analyser les champs locaux et leurs hétérogénéités dans les deux phases. Dans la deuxième partie de ce chapitre, les contraintes moyennes dans chacune des phases sont déterminées expérimentalement par diffraction des rayons X. Il est donc nécessaire de connaître les contraintes moyennes calculées, afin de pouvoir les comparer à l'expérience.

Les contraintes moyennes dans chacune des phases sont calculées à partir des contraintes sur chacun des éléments du maillage et de son volume (ou sa surface pour les cas 2D). La contrainte hydrostatique moyenne calculée pour les différentes microstructures est reportée sur les figures II-28 et II-29 en fonction de la fraction volumique de chrome.

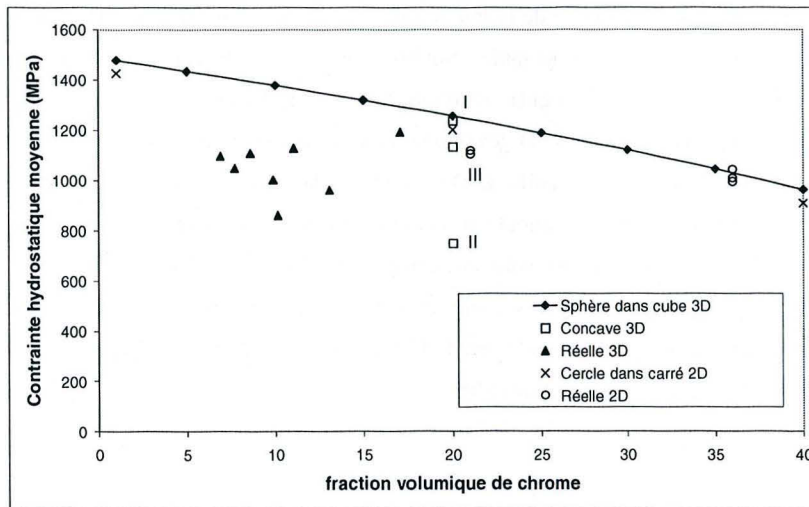


Figure II-28 : contraintes moyennes dans le chrome

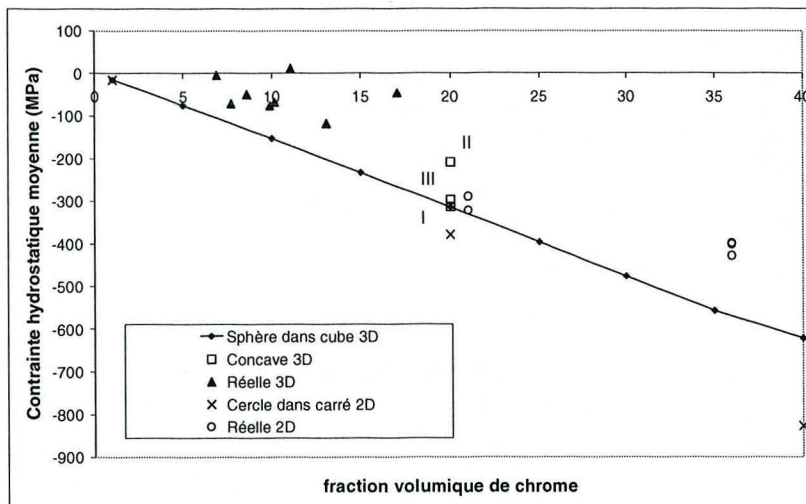


Figure II-29 : contraintes moyennes dans l'alumine

Pour les microstructures idéales 3D (particules sphériques), on note une décroissance de la contrainte hydrostatique de traction dans le chrome et une augmentation de la contrainte hydrostatique de compression dans l'alumine, toutes deux sensiblement linéaires. Les évolutions sont similaires pour les microstructures idéales 2D avec des niveaux en traction plus faibles dans le chrome et plus élevés en compression dans l'alumine conformément à nos analyses antérieures (figure II-13. De plus, pour le chrome et l'alumine, cette évolution est proche de celles données par le modèle de Mori-Tanaka pour les contraintes moyennes dans les phases [Mori73, Taya90].

Pour les microstructures idéales 3D avec des particules concaves, la contrainte hydrostatique de compression dans l'alumine est d'autant plus faible que les zones soumises à des contraintes de traction sont étendues. En effet, dans le cas de la particule II, la fraction volumique d'alumine soumise à une contrainte de traction est de 18% alors qu'elle n'est que de 3% pour la particule III, comme il ressort de la figure II-30. Simultanément, on note une diminution de la traction dans le chrome. La même tendance est observée sur les simulations réelles issues de la tomographie. Notons que la microstructure composée d'un arrangement périodique de particules concaves n'est guère représentative de la microstructure réelle en moyenne.

Pour les microstructures réelles 3D, les résultats sont dispersés essentiellement en raison du fait que les volumes analysés ne sont pas représentatifs de l'ensemble de la microstructure. Si on considère les volumes contenant essentiellement une grosse particule et son environnement, on note une contrainte hydrostatique en compression dans l'alumine assez faible, voire une contrainte en traction, ceci à cause de la fraction d'alumine en traction qui peut atteindre 60%. Dans le cas d'une répartition de petites particules (représentant une fraction de 17%), la contrainte hydrostatique est également faible, mais en compression. Pour le chrome, la contrainte hydrostatique reste en traction autour de 1000 MPa.

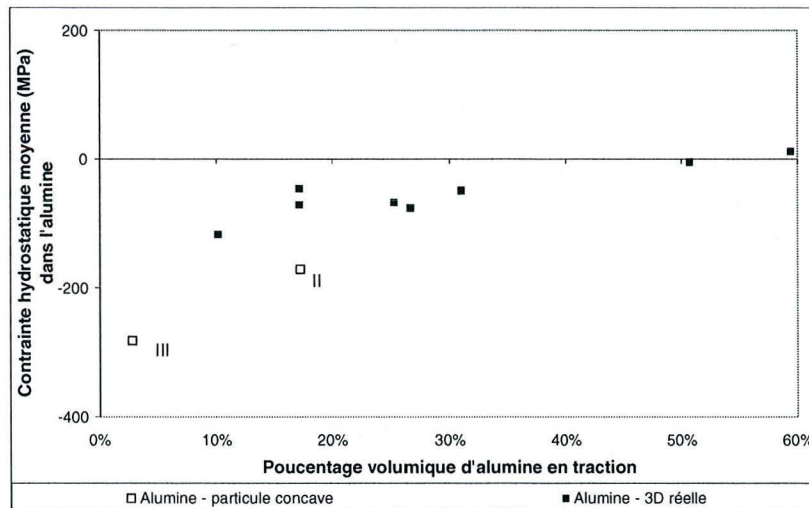


Figure II-30 : influence de la fraction volumique d'alumine en traction sur les contraintes moyennes

## B - Détermination expérimentale de contraintes par diffraction des Rayons X dans des cermet alumine chrome

### B-1 - Théorie – Méthode

La détermination des contraintes par la diffraction des rayons X ou des neutrons sont des techniques largement utilisées pour divers types de matériaux [Reim99]. En fonction des matériaux, ces deux techniques complémentaires [Watt96, Wern00] permettent de déterminer les contraintes en surface pour des matériaux absorbants aux rayons X, ou plus en profondeur pour le cas des neutrons [Fior00, Maju88, Pyza96, Choo99] ou des matériaux peu absorbants vis-à-vis du rayonnement X [Rupp89, Levi94, Hehm95]. D'autres techniques existent pour la détermination des contraintes en surface, comme l'indentation de type Sharp [Carl01, Sure98] ou l'indentation de Hertz [Robe99].

La détermination de contrainte par diffraction des rayons X repose sur la modification des paramètres de mailles des phases en fonction des contraintes appliquées ou résiduelles. Ainsi à partir des diffractogrammes, en mesurant le changement de position des pics par rapport à un état non contraint ou de référence, il est possible d'en déduire les contraintes appliquées ou résiduelles [Noya87, Mach61].

Généralités sur la méthode des  $\sin^2\psi$  [Noya87, Mach61, With95]

Pour expliciter les relations entre contraintes et déformations, on considère 2 repères, tels que celui décrit sur la figure II-31, le repère de la pièce est  $X_1^p, X_2^p, X_3^p$  et le repère  $X_1, X_2, X_3, X_i^\phi$  est un repère lié à la direction de détermination des contraintes obtenu par une rotation d'angle  $\phi$  autre de l'axe  $X_3^p$ .  $n$  est la direction de mesure de la déformation (normale au plan hkl),  $\psi$  étant entre l'angle la direction  $n$  et l'axe  $X_3^p$ . Une fois les distances réticulaires déterminées à partir de la position des pics de diffraction, la déformation dans la direction

$$\vec{n}, \text{ est obtenue par } \varepsilon_{\phi\psi} = \frac{d_{\phi\psi} - d_0}{d_0}$$

où  $d_{\phi\psi}$  est la distance réticulaire du plan (hkl) dans un état déformé et  $d_0$  la distance réticulaire du plan pour un état non déformé. Cette distance est déterminée à partir de la position des pics de diffraction par la loi de Bragg

$$2d_{\phi\psi} \sin \theta = \lambda$$

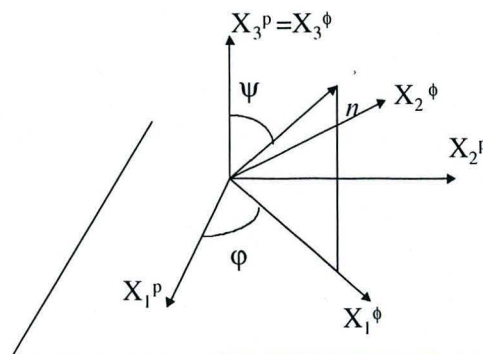


Figure II-31 : repère  $X_i^p$  lié à pièce,  $X_i^\phi$  lié à la direction de mesure

Dans le repère lié à la pièce ( $X_1^p, X_2^p, X_3^p$ ), si le matériau est isotrope et homogène, dans le domaine élastique, la déformation dans une direction  $\varphi \psi$  est donnée par la relation :

$$\varepsilon_{\varphi\psi} = \frac{1}{2} S_2 [(\sigma_\varphi - \sigma_{33}) \sin^2 \psi + \sigma_{33} + (\sigma_{13} \cos \varphi + \sigma_{23} \sin \varphi) \sin 2\psi] + S_1 [\sigma_{11} + \sigma_{22} + \sigma_{33}]$$

$$\sigma_\varphi = \sigma_{11} \cos^2 \varphi + \sigma_{22} \sin^2 \varphi + 2\sigma_{12} \sin \varphi \cos \varphi$$

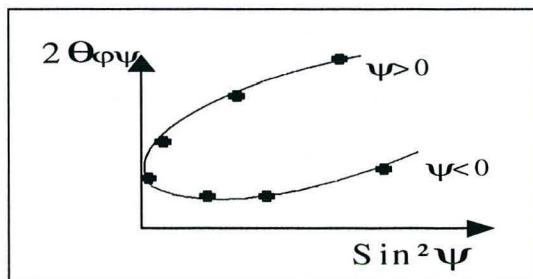
$$\varepsilon_{\varphi\psi} = \ln \left( \frac{d_{\varphi\psi}}{d_0} \right) \approx 1 - \frac{\sin \theta_{\varphi\psi}}{\sin \theta_0}$$

$S_1$  et  $S_2$  sont les constantes élastiques radiocristallographiques.

#### Etat triaxial de contraintes

Dans un état triaxial de contrainte, le tracé de  $\varepsilon_{\varphi\psi}$  en fonction de  $\sin^2 \psi$ , pour un angle  $\varphi$  donné, donne une ellipse, la pente de l'axe de l'ellipse permet de calculer la valeur de  $\sigma_\varphi - \sigma_{33}$ . L'ouverture de l'ellipse est proportionnelle au cisaillement  $(\sigma_{13} \cos \varphi + \sigma_{23} \sin \varphi)$  et permet d'accéder aux contraintes de cisaillement. Les différences de contraintes  $\sigma_\varphi - \sigma_{33}$  sont des valeurs moyennes dans la phase considérée.

à	$\varphi = 0$	les contraintes accessibles sont	$\sigma_{11} - \sigma_{33}$	$\sigma_{13}$
	$\varphi = 90$	les contraintes accessibles sont	$\sigma_{22} - \sigma_{33}$	$\sigma_{23}$



$$\begin{pmatrix} \sigma_{11} & \sigma_{12} & \sigma_{13} \\ \sigma_{12} & \sigma_{22} & \sigma_{23} \\ \sigma_{13} & \sigma_{23} & \sigma_{33} \end{pmatrix}$$

Pour déterminer toutes les composantes du tenseur des contraintes (en particulier  $\sigma_{33}$ ) il est nécessaire de connaître l'angle  $\theta_0$ .

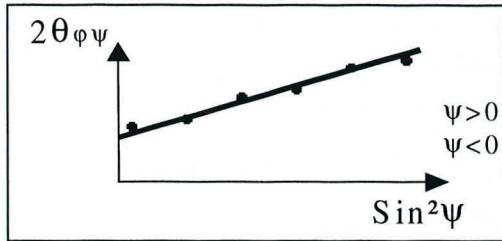
#### Cas particulier :

En surface, pour un matériau monophasé, la contrainte normale est nulle, ce qui implique  $\sigma_{33} = 0$

La pente de l'axe de l'ellipse donne la contrainte  $\sigma_\varphi$  :

à	$\varphi = 0$	les contraintes accessibles sont	$\sigma_{11}$	$\sigma_{13}$
	$\varphi = 90$	les contraintes accessibles sont	$\sigma_{22}$	$\sigma_{23}$

Si de plus l'état de contrainte est biaxial ( $\sigma_{13} = \sigma_{23} = 0$ ), on obtient une relations linéaire entre  $2\theta$  et  $\sin^2 \psi$ . La pente de la droite pour  $\varphi=0$  donne  $\sigma_{11}$  et pour  $\varphi=90$   $\sigma_{22}$



$$\begin{pmatrix} \sigma_{11} & \sigma_{12} & 0 \\ \sigma_{12} & \sigma_{22} & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}$$

La méthode des  $\text{sin}^2\psi$  pour un état triaxial de contraintes a été utilisée pour déterminer le tenseur des contraintes dans chacune des phases des cermet alumine chrome.

## B-2 Paramètres expérimentaux

### B-2.1 Préparation des échantillons

La détermination des contraintes moyennes dans les phases des composites alumine chrome a été réalisée en utilisant le rayonnement synchrotron du L.U.R.E., sur la ligne DW22. Le schéma de la ligne est présenté sur la figure II-32. Le rayonnement synchrotron permet d'obtenir un flux important et de travailler avec des longueurs d'ondes faibles. Dans notre cas, les conditions expérimentales ont été choisies de façon à obtenir une information en volume sur les contraintes.

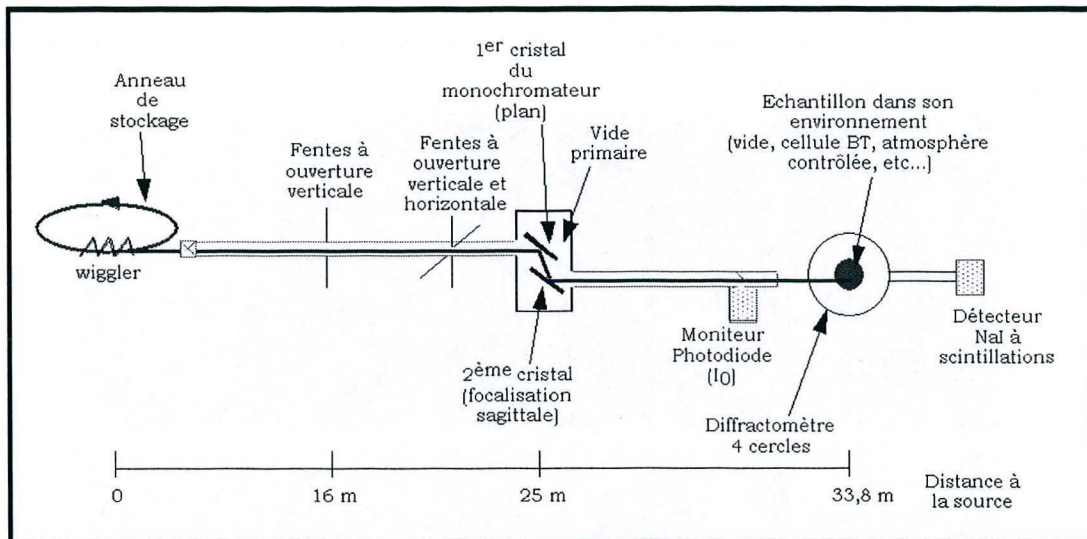


Figure II-32 : schéma de principe de l'expérience DW22.

Les mesures ont concerné différents échantillons contenant des fractions volumiques de chrome comprise entre 9% et 36%. Des montages en réflexion ou en transmission ont été utilisés avec des longueurs d'onde faibles (0,1 nm). L'utilisation de la réflexion ou de la transmission pour la détermination des contraintes dépend de la teneur en chrome des échantillons. En effet, le chrome est un élément très absorbant vis-à-vis du rayonnement X alors que l'alumine est un composé peu absorbant [Klug74]

Ainsi en réflexion, la profondeur de pénétration du rayonnement est supérieure à une centaine de microns pour les échantillons contenant 5 ou 9% de chrome mais celle-ci chute fortement (jusqu'à 50µm) pour les échantillons à forte teneur en chrome, (tableau II-3). La contribution des 10 premiers microns est également reportée pour voir l' influence de la surface sur les mesures.

Fraction volumique de chrome	Profondeur de pénétration	Contribution des 10 premiers microns
9%	136 µm	16%
21%	77 µm	30%
36% (I) & 36% (II)	49 µm	40%

Tableau II-3 : liste des échantillons, profondeur de pénétration des rayons X (en réflexion et pour 95% du rayonnement absorbés)

Les mesures en réflexion ont été faites sur les échantillons polis mécaniquement avec diverses solutions diamantées (taille minimum 1µm). Les mesures en transmission ont été réalisées sur des échantillons amincis mécaniquement jusqu'à une épaisseur voisine de 100µm, ce qui correspond à environ dix fois la taille des plus grosses particules de chrome et permet de considérer que l'information obtenue concerne bien le volume des phases [Rupp96, Hana83]. L'amincissement mécanique, pour la transmission, a été obtenu avec des disques diamants (taille des cristaux : 20µm et 6µm).

Les images de microscopie électronique à balayage présentées sur la figure II-33 montrent les microstructures des différents échantillons utilisés.

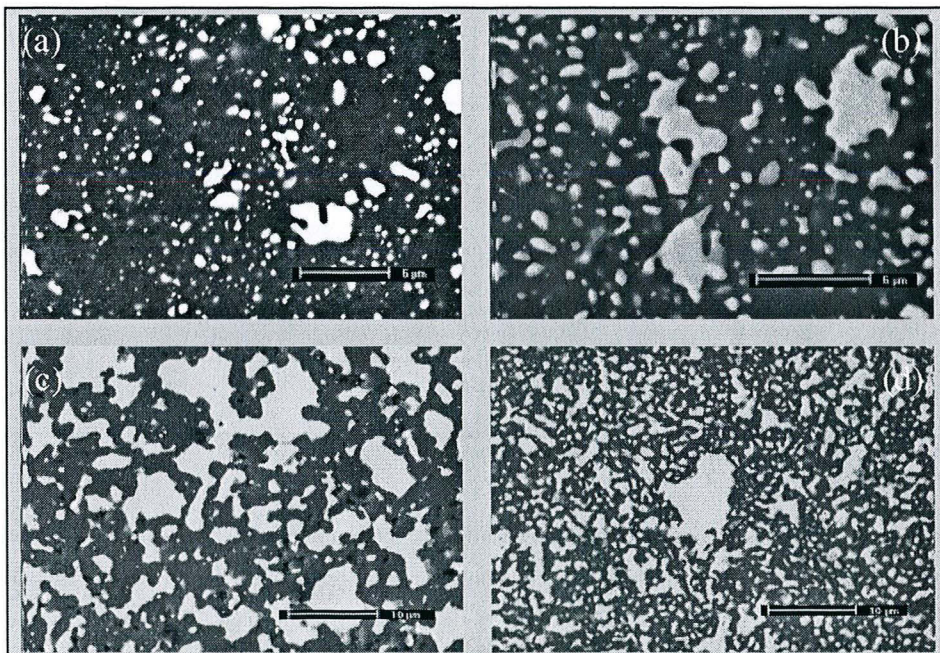


Figure II-33 : microstructure des échantillons utilisés pour la détermination des contraintes (a) 9% (b) 21% (c) 36% (I) (d) 36% (II)

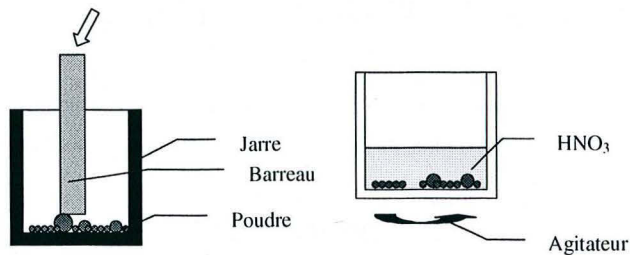


B-2.2 Détermination du paramètre  $2\theta_0$

Comme nous l'avons décrit précédemment, la méthode des  $\sin^2 \psi$  permet de déterminer les différences de contraintes dans les phases. Pour déterminer le tenseur complet des contraintes, il faut connaître les paramètres de maille des différents constituants dans le cas où le matériau n'est pas contraint. Si de nombreuses données existent dans le cas de matériaux purs [IC-Cr, IC- $\text{Al}_2\text{O}_3$ ], elle ne sont pas suffisantes dans notre cas où les constituants des cermets ont des compositions chimiques complexes pas forcément identiques d'un échantillon à l'autre, comme cela a été montré dans le chapitre I.

Diverses techniques ont été testées pour déterminer les paramètres de mailles du chrome et de l'alumine tels qu'ils existent dans les cermets alumine-chrome (recuits de poudres, attaques par des acides, érosion mécanique) [Roga00]. La méthode que nous avons trouvée la plus fiable et reproductible, est une combinaison entre des attaques à l'acide et de pilonnage d'un échantillon massif pour obtenir des poudres dont la granulométrie est suffisamment fine pour pouvoir considérer que les contraintes sont relaxées en raison de la proximité d'une surface libre.

Pour obtenir des poudres à partir d'un échantillon massif de cermet, celui-ci est pilonné dans une des jarres de broyage (en acier Z155CVD12) au moyen d'un pilon ayant une grande surface de contact avec la poudre (barreau en acier). Après pilonnage des plus gros morceaux, la poudre est placée dans un bain d'acide nitrique pur pour une durée de 20 minutes. Le mélange acide/poudre est brassé en permanence. Le passage des poudres dans l'acide permet d'affaiblir l'ensemble de la structure du composite en dissolvant le chrome en surface. Les poudres sont ensuite filtrées et nettoyées à l'éthanol. Cette série d'opérations est renouvelée une seconde fois. Enfin la granulométrie des poudres est affinée pour obtenir les différentes classes de taille, en broyant les poudres sèches dans un mortier. Cette technique permet d'obtenir des poudres dont la granulométrie est inférieure à  $25\mu\text{m}$ . L'inconvénient majeur de cette technique de préparation est l'introduction de pollution dans les poudres lors du dernier pilonnage. En effet, l'alumine est très abrasive, et les cermets accentuant cet effet, la conséquence est que des constituants du mortier se retrouvent dans les poudres finales, principalement dans les lots de poudres dont les granulométries sont les plus faibles.



## B-3 - Contraintes dans les cermets alumine chrome

### B-3.1 Vérification de la longueur d'onde

Le monochromateur est réglé pour obtenir  $\lambda=0,1\text{nm}$ . Pour connaître exactement la valeur de la longueur d'onde dont dépendent toutes les valeurs de paramètres de mailles, une poudre d'oxyde de cérium ( $\text{CeO}_2$ ) dont le paramètre de maille est connu<sup>4</sup> [IC-CeO<sub>2</sub>] est utilisée. Un diffractogramme est réalisé sur la poudre (figure II-34). Les pics les plus significatifs sont repérés par leur maximum et la longueur d'onde est ajustée pour correspondre au mieux au diffractogramme

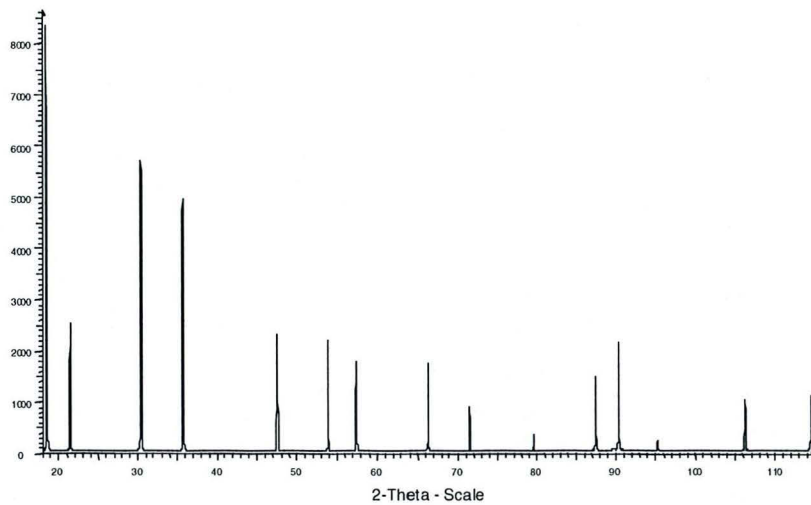


Figure II-34 : diffractogramme de la poudre  $\text{CeO}_2$ , utilisée pour la vérification de la longueur d'onde.

Pics utilisés pour la détermination de  $\lambda$  :

(hkl)	(111)	(200)	(220)	(311)	(331)	(422)	(511)	(531)	(620)
$2\theta$	18,41°	21,28°	30,28°	35,67°	47,47°	53,79°	57,34°	66,22°	71,46°

Ainsi la longueur d'onde exacte utilisée pour la détermination des contraintes dans les cermets est :

$$\lambda = 0,099935 \text{ nm}$$

Cette longueur d'onde, déterminée au début de la série d'expériences, a été vérifiée au cours des autres expériences en ajoutant à certains lots de poudres du silicium dont le paramètre de maille est également connu<sup>5</sup>.

### B-3.2 Diffractogrammes – détermination des paramètres de mailles des échantillons massifs et des poudres

Afin de connaître le paramètre  $2\theta_0$  des échantillons, des poudres ont été préparées suivant la procédure précédemment exposée. Pour déterminer les paramètres de maille du chrome et de l'alumine pour les différentes granulométries de ces poudres, un diffractogramme est réalisé pour des angles de diffraction compris entre  $2\theta = [15^\circ - 61^\circ]$  et  $[94^\circ - 97^\circ]$  pour le pic (411) du chrome et  $2\theta = [103,8^\circ - 105,2^\circ]$ , pour le pic (526) de l'alumine

<sup>4</sup> Paramètre de maille du  $\text{CeO}_2$   $a = 0,54111 \text{ nm}$  [IC-CeO<sub>2</sub>]

<sup>5</sup> Paramètre de maille Silicium  $a = 0,543094 \text{ nm}$  [IC-Si] :

Pour déterminer les paramètres de maille du chrome et de l'alumine des échantillons massifs, des diffractogrammes en réflexion ont été obtenus pour des angles de diffraction équivalents à ceux des poudres. Ainsi, 4 pics du chrome et 8 pics de l'alumine ont été utilisés, les indices (hkl) des plans sont résumés dans le tableau II-4.

Chrome	h	k	l	Alumine	h	k	l
	1	1	0		0	1	2
	2	0	0		1	0	4
	2	1	1		1	1	0
	2	2	0		1	1	3
Silicium	h	k	l		0	2	4
	1	1	1		1	1	6
	2	2	0		2	1	4
	3	1	1		0	3	0
	4	0	0				
	4	2	2				

Tableau II-4 : indices (hkl) des pics utilisés pour la détermination des paramètres de mailles du chrome et de l'alumine

Pour chaque échantillon massif et chaque poudre étudiés, les paramètres de maille du chrome et de l'alumine sont déterminés par ajustement des pics, sur les différents pics associés aux phases en ne prenant pas en compte les pics superposés ou ceux dont l'asymétrie est trop importante (due aux hétérogénéités de concentration ou bien aux contraintes). Les diffractogrammes, présentés sur la figure II-35, montrent que les pics sont très fins et que le bruit de fond est faible et régulier. Un déplacement des pics est observé pour le massif et un bruit de fond plus important dans le cas de la poudre.

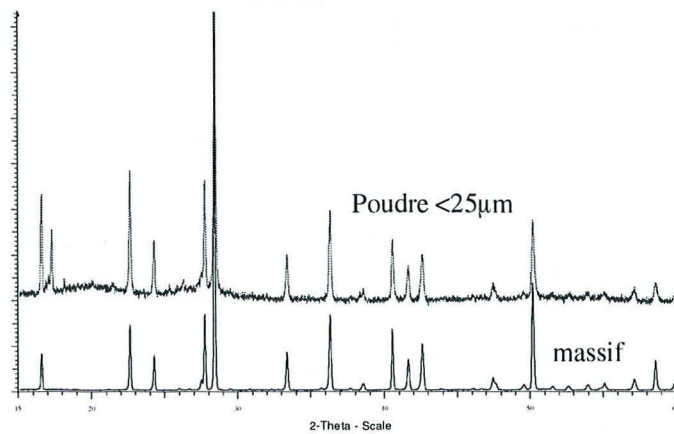


Figure II-35 : diffractogramme des poudres de granulométries inférieures à 25µm et de l'échantillon massif pour un composite contenant 21% volumique de chrome

Les figures II-36 et II-37 donnent l'évolution des paramètres de mailles, du chrome et de l'alumine, pour les différentes tailles de poudres ainsi que pour les échantillons massifs (les résultats pour l'échantillon massif ont été placés arbitrairement à une granulométrie de 100 à titre de comparaison).

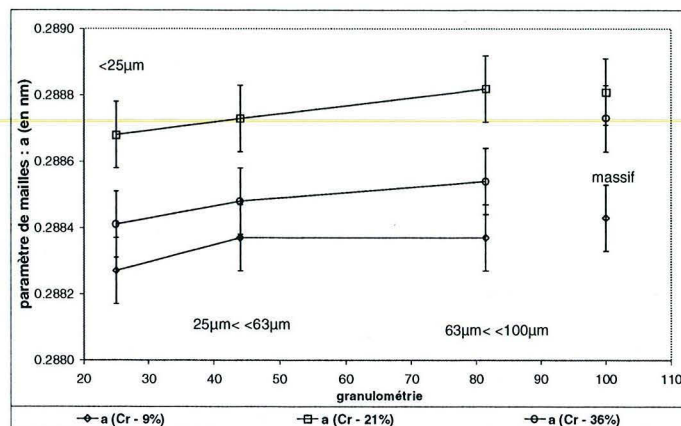


Figure II-36 : évolution du paramètre de maille du chrome en fonction de la granulométrie

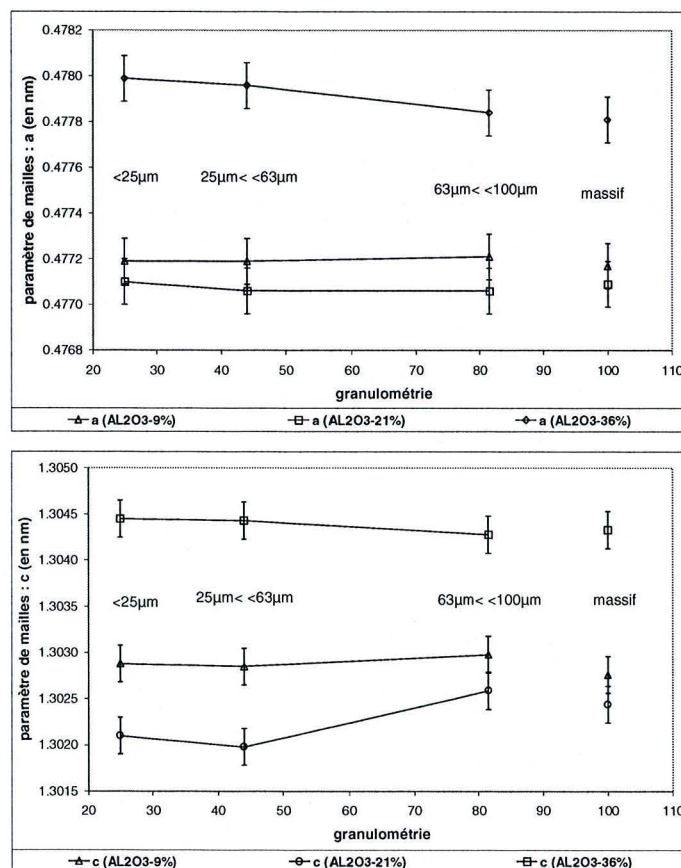


Figure II-37 : évolution des paramètres de mailles de l'alumine en fonction de la granulométrie

Les résultats obtenus permettent de voir que les différences entre les échantillons massifs et les poudres de faibles granulométries sont très nettes, signe qu'il existe des contraintes non négligeables dans les cermet alumine chrome. On peut également remarquer que dans le cas du chrome, un paramètre de maille inférieur au

paramètre de maille donné par les fiches ICDD est mesuré<sup>6</sup>, pour l'échantillon à 9% de chrome. Ceci est dû à la présence de fer dans la phase chrome, qui ayant un paramètre de maille inférieur ( $a = 0,28664 \text{ nm}$ ) peut faire diminuer le paramètre du chrome. Pour l'ensemble des échantillons, le paramètre de maille diminue en même temps que la granulométrie des poudres, les granulométries les plus importantes donnant des paramètres voisins, mais néanmoins en dessous du paramètre du matériau massif.

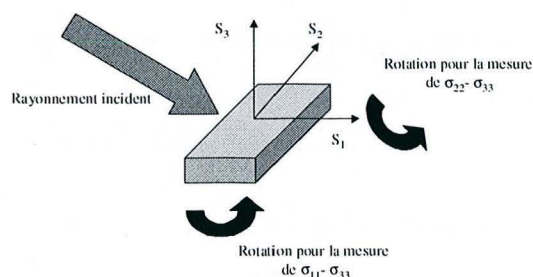
Pour l'alumine, comme pour le chrome, une variation sensible des paramètres de maille en fonction de la granulométrie est observée. Mais l'analyse des variations de paramètres est complexe dans ce cas. La sensibilité des résultats au pic dont le troisième indice ( $l$ ) possède des valeurs élevées, est très importante, ce qui correspond à une très grande sensibilité sur le paramètre  $c$  de l'alumine. De plus, les paramètres de l'alumine restent supérieurs à ceux de l'alumine pure à cause de la présence de l'oxyde de chrome en solution (voir le chapitre I).

### B-3.3 Application de la méthode des $\sin^2 \psi$ aux cermets

Pour l'application de la méthode des  $\sin^2 \psi$ , une rotation des échantillons est nécessaire (pour fixer les axes de rotation en fonction des variations de l'angle  $\psi$ ), dépendant de la différence de contraintes que l'on souhaite mesurer.

Pour les diffractogrammes en réflexion, les différences de contraintes mesurées sont :

$$\sigma_{11} - \sigma_{33} \text{ avec } \varphi = 0^\circ \text{ et } \sigma_{22} - \sigma_{33} \text{ avec } \varphi = 90^\circ$$



Les angles  $\psi$  choisis pour les analyses sont :

$\psi$	0	12,92°	18,43°	22,75°	26,56°	30°	33,21°	36,27°	39,23°	42,13°	45°
$\sin^2 \psi$	0	0,05	0,1	0,15	0,2	0,25	0,3	0,35	0,4	0,45	0,5

Tableau II-5 : angles  $\psi$  pour la détermination des différences de contraintes, montage en réflexion

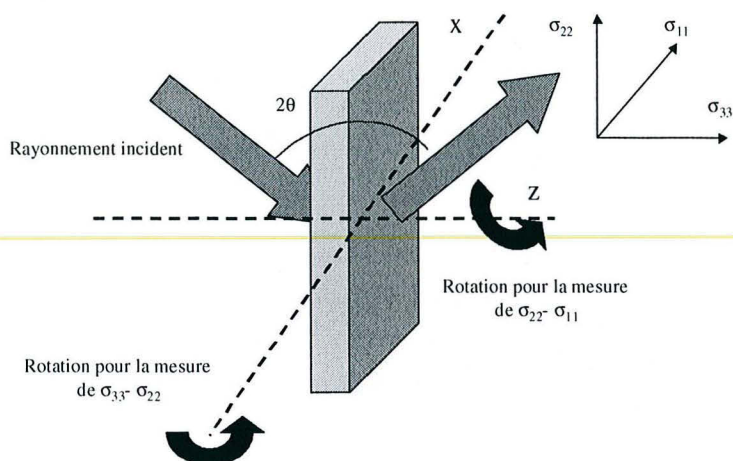
Les pics utilisés pour appliquer la méthode des  $\sin^2 \psi$  en réflexion pour l'échantillon  $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-Cr 9\%}$  sont

**Alumine (5 2 6) 102,5° <  $2\theta$  < 103,5°**      **Chrome(4 1 1) 94,1° <  $2\theta$  < 97,0°**

En transmission, pour des raisons d'accessibilité et de limites liées au goniomètre, les différences de contraintes mesurées sont

$$\sigma_{33} - \sigma_{22} \text{ par rotation autour de l'axe } O_y \text{ et } \sigma_{22} - \sigma_{11} \text{ par rotation autour de l'axe } O_z$$

<sup>6</sup> Chrome  $a = 0,28840 \text{ nm}$  – Alumine  $a = 0,4758 \text{ nm}$   $c = 1,2991 \text{ nm}$



Les angles  $\psi$  choisis pour les analyses sont :

Pour mesurer  $\sigma_{22} - \sigma_{11}$

$\psi$	0	18,43°	26,56°	33,21°	39,23°	45°	50,76°	56,78°	63,43°	71,56°	90°
$\text{Sin}^2 \psi$	0	0,1	0,2	0,3	0,4	0,5	0,6	0,7	0,8	0,9	1

Pour mesurer  $\sigma_{33} - \sigma_{22}$

$\psi$	-45°	-39,23°	-33,21°	-26,56°	-18,43°	0°	18,43°	26,56°	33,21°	39,21°	45°
$\text{Sin}^2 \psi$	-0,5	-0,4	-0,3	-0,2	-0,1	0	0,1	0,2	0,3	0,4	0,5

Tableau II-6 : angles  $\psi$  pour la détermination des différences de contraintes, montage en transmission

Les pics utilisés pour appliquer la méthode des  $\text{sin}^2 \psi$  en transmission pour les échantillons  $\text{Al}_2\text{O}_3$ -Cr 21% - 36% (I) - 36% (II) sont

Alumine (1 3 10)       $2\theta = 71,0^\circ \pm 1^\circ$       Chrome (1 2 3)       $2\theta = 80,6^\circ \pm 1^\circ$

Une fois les pics enregistrés, la méthode des  $\text{sin}^2 \psi$  impose de connaître la position du pic. Pour cela deux méthodes ont été appliquées : la méthode du barycentre centré (Bc) et une méthode par ajustement du pic.

Une fois les positions des pics déterminées pour chaque angle  $\psi$ , la méthode des  $\text{sin}^2 \psi$  est appliquée pour connaître les différences de contraintes et les contraintes de cisaillement correspondantes. Ces valeurs sont calculées en prenant en compte tous les pics répondant aux restrictions de la norme XP A 09-285 (mai 1999) [XP99]. Deux exemples d'ellipses obtenus en traçant la déformation, liée au déplacement du pic, en fonction de  $\text{sin}^2 \psi$  pour le chrome et l'alumine sont présentés sur la figure II-38.

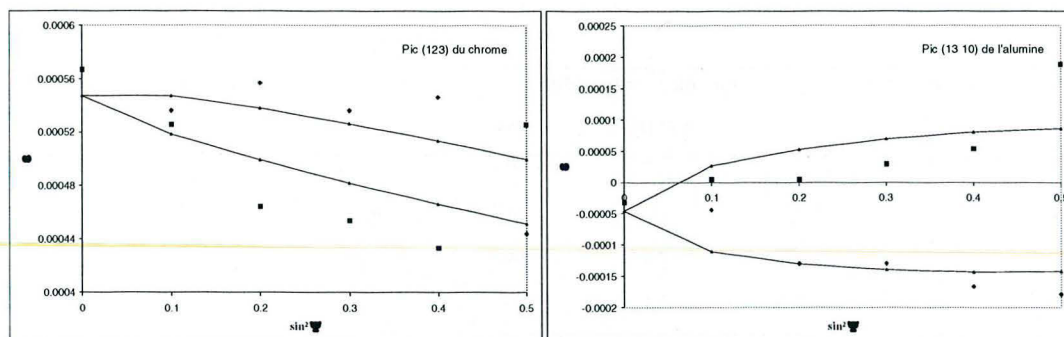


Figure II-38 : exemple d'ellipse pour l'application de la méthode des  $\sin^2\psi$

Les résultats concernant les différents échantillons sont regroupés dans le tableau II-7 et 8.

Echantillon	Barycentre centré (Bc)		ajustement du pic			
		$\sigma$ (MPa)	$\Delta\sigma$	Différence	$\sigma$ (MPa)	$\Delta\sigma$
$\text{Al}_2\text{O}_3\text{-Cr 9\%}$	$\sigma_{11}\text{-}\sigma_{33}$	92	135	$\sigma_{11}\text{-}\sigma_{33}$	-23	131
	$\sigma_{13}$	-44	69	$\sigma_{13}$	16	67
	$\sigma_{22}\text{-}\sigma_{33}$	90	203	$\sigma_{22}\text{-}\sigma_{33}$	9	226
	$\sigma_{23}$	-32	103	$\sigma_{23}$	-30	120
$\text{Al}_2\text{O}_3\text{-Cr 21\%}$	$\sigma_{11}\text{-}\sigma_{22}$	-15	11	$\sigma_{11}\text{-}\sigma_{22}$	-16	13
	$\sigma_{12}$	-7	10	$\sigma_{12}$	-6	11
	$\sigma_{33}\text{-}\sigma_{22}$	32	36	$\sigma_{33}\text{-}\sigma_{22}$	-35	24
	$\sigma_{23}$	-5	7	$\sigma_{23}$	-10	5
$\text{Al}_2\text{O}_3\text{-Cr 36\%}$ (I)	$\sigma_{11}\text{-}\sigma_{22}$	-30	51	$\sigma_{11}\text{-}\sigma_{22}$	-43	53
	$\sigma_{12}$	-7	46	$\sigma_{12}$	0	48
	$\sigma_{22}\text{-}\sigma_{33}$	-226	122	$\sigma_{33}\text{-}\sigma_{22}$	-160	186
	$\sigma_{23}$	-12	23	$\sigma_{23}$	-28	36
$\text{Al}_2\text{O}_3\text{-Cr 36\%}$ (II)	$\sigma_{11}\text{-}\sigma_{22}$	-115	90	$\sigma_{11}\text{-}\sigma_{22}$	-11	3
	$\sigma_{12}$	68	73	$\sigma_{12}$	-13	3
	$\sigma_{33}\text{-}\sigma_{22}$	-67	59	$\sigma_{33}\text{-}\sigma_{22}$	41	45
	$\sigma_{23}$	7	11	$\sigma_{23}$	1	8

Tableau II-7 : différences de contraintes, contraintes de cisaillement et incertitudes  $\Delta\sigma$  pour le chrome. Valeurs obtenues par les deux méthodes de détermination de la position du pic

Echantillon	Barycentre centré (Bc)			ajustement du pic		
		$\sigma$ (MPa)	$\Delta\sigma$		$\sigma$ (MPa)	$\Delta\sigma$
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Cr 9%	$\sigma_{11}-\sigma_{33}$	37	175	$\sigma_{11}-\sigma_{33}$	-21	46
	$\sigma_{13}$	-24	90	$\sigma_{13}$	-6	23
	$\sigma_{22}-\sigma_{33}$	55	154	$\sigma_{22}-\sigma_{33}$	125	106
	$\sigma_{23}$	23	78	$\sigma_{23}$	-31	54
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Cr 21%	$\sigma_{11}-\sigma_{22}$	15	10	$\sigma_{11}-\sigma_{22}$	-9	10
	$\sigma_{12}$	-11	9	$\sigma_{12}$	-5	9
	$\sigma_{33}-\sigma_{22}$	-4	55	$\sigma_{33}-\sigma_{22}$	4	62
	$\sigma_{23}$	20	11	$\sigma_{23}$	14	6
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Cr 36% (I)	$\sigma_{11}-\sigma_{22}$	9	34	$\sigma_{11}-\sigma_{22}$	24	16
	$\sigma_{12}$	-10	31	$\sigma_{12}$	-13	15
	$\sigma_{33}-\sigma_{22}$	-12	58	$\sigma_{33}-\sigma_{22}$	11	70
	$\sigma_{23}$	31	11	$\sigma_{23}$	38	14
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Cr 36% (II)	$\sigma_{11}-\sigma_{22}$	54	95	$\sigma_{11}-\sigma_{22}$	25	21
	$\sigma_{12}$	30	76	$\sigma_{12}$	-7	17
	$\sigma_{33}-\sigma_{22}$	295	325	$\sigma_{33}-\sigma_{22}$	98	112
	$\sigma_{23}$	17	48	$\sigma_{23}$	3	21

Tableau II-8 : différences de contraintes, contraintes de cisaillement et incertitudes  $\Delta\sigma$  pour l'alumine. Valeurs obtenues par deux méthodes de détermination de la position du pic

Les résultats montrent que sauf dans quelques cas particuliers, les différences de contraintes sont relativement faibles ainsi que les contraintes de cisaillement. De plus, les incertitudes peuvent être élevées. Il existe aussi des différences sur les niveaux de contraintes en fonction de la méthode utilisée pour la détermination de la position des pics. La cause principale est la forme des pics qui sont asymétriques pour le chrome et présentent de fortes variations d'intensité pour l'alumine. En ce qui concerne les incertitudes, elles résultent des variations d'intensité des pics, en raison du temps de comptage faible par rapport à l'absorption de l'échantillon, l'absorption variant en fonction de l'inclinaison des échantillons lors de l'évolution des angles  $\psi$ . D'autres sources d'incertitude tiennent à la forme des pics influencée par l'écroutissage.

#### B-4 Tenseur des contraintes dans les phases

A partir des différences de contraintes et des contraintes de cisaillement, il est possible de calculer chacune des composantes du tenseur des contraintes. Pour cela, la formule de détermination des contraintes pour un angle  $\psi$  égal à 0 est utilisée. Ainsi, connaissant les différences  $\sigma_{33}-\sigma_{22}$  et  $\sigma_{22}-\sigma_{11}$ , on obtient, dans le cas de la transmission :

$$\sigma_{11} = \frac{\varepsilon_{\psi=0,(\sigma_{22}-\sigma_{11})} - S_1 [(\sigma_{33} - \sigma_{22}) + 2(\sigma_{22} - \sigma_{11})]}{\frac{1}{2} S_2 + 3S_1} \quad (\text{eq1})$$



$$\sigma_{22} = \frac{\varepsilon_{\psi=0,(\sigma_{33}-\sigma_{11})} - S_1[(\sigma_{33} - \sigma_{22}) - (\sigma_{22} - \sigma_{11})]}{\frac{1}{2}S_2 + 3S_1} \quad (\text{eq2})$$

Pour le cas de la réflexion, les différences de contraintes mesurées sont  $\sigma_{11}-\sigma_{33}$  et  $\sigma_{22}-\sigma_{33}$ , il est donc possible de calculer  $\sigma_{33}$  de deux manières différentes :

$$\sigma_{33} = \frac{\varepsilon_{\psi=0,(\sigma_{22}-\sigma_{33})} - S_1[(\sigma_{11} - \sigma_{33}) + 2(\sigma_{22} - \sigma_{33})]}{\frac{1}{2}S_2 + 3S_1} \quad (\text{eq3})$$

$$\sigma_{33} = \frac{\varepsilon_{\psi=0,(\sigma_{11}-\sigma_{33})} - S_1[(\sigma_{22} - \sigma_{33}) + 2(\sigma_{11} - \sigma_{33})]}{\frac{1}{2}S_2 + 3S_1} \quad (\text{eq4})$$

La détermination des constantes  $S_1(\text{hkl})$  et  $\frac{1}{2}S_2(\text{hkl})$  est décrite en annexe 4 pour l'alumine et le chrome. Pour chaque échantillon, on prend le  $\theta_0$  correspondant, déterminé pour des poudres de granulométrie inférieure à 25 $\mu\text{m}$ . Le calcul des contraintes et de la contrainte hydrostatique dans le chrome et l'alumine pour les échantillons de cermets sont données dans le tableau II-9. Lorsque plusieurs méthodes sont employées pour la détermination d'une contrainte, la valeur utilisée pour le calcul de la contrainte hydrostatique est la moyenne.

<b>Echantillon Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Cr 9%</b>						
Méthode		$\sigma_{33}$ (eq3)	$\sigma_{33}$ (eq4)	$\sigma_{22}$ ( $\sigma_{22}-\sigma_{33}$ )	$\sigma_{11}$ ( $\sigma_{11}-\sigma_{33}$ )	$\sigma_m$
Bc	Cr	240	279	349	351	302
	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	-121	-142	-77	-95	-101
ajustement	Cr	180	197	197	165	186
	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	25	20	148	2	57
<b>Echantillon Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Cr 21%</b>						
Bc	Cr	265	254	250	238	252
	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	-138	-141	-123	-145	-139
ajustement	Cr	263	253	231	218	241
	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	-12	-24	-21	-20	-17
<b>Echantillon Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Cr 36% (I)</b>						
Bc	Cr	494	503	464	460	479
	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	-207	-169	-198	-181	-193
ajustement	Cr	676	619	450	459	557
	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	-48	-30	-24	-19	-34
<b>Echantillon Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Cr 36% (II)</b>						
Bc	Cr	182	270	67	259	203
	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	59	-185	113	107	54
ajustement	Cr	405	304	338	345	357
	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	49	-52	74	46	39

Tableau II-9 : contraintes  $\sigma_{ii}$  et contrainte hydrostatique dans le chrome et l'alumine calculées à partir des deux différences de contraintes mesurées.

Les deux méthodes de détermination des positions des pics donnent des valeurs de contraintes sensiblement différentes. Pour l'alumine, l'utilisation de l'une ou l'autre des méthodes peut changer le signe de la contrainte. Pour les échantillons  $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-Cr}$  21% et 36% (I), le chrome est en traction et l'alumine en compression. Pour l'échantillon  $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-Cr}$  36% (II), le chrome et l'alumine sont en traction. Pour l'échantillon  $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-Cr}$  9%, le chrome est en traction, mais il est difficile de conclure sur le signe de la contrainte moyenne dans l'alumine, puisque l'une des méthodes donne une contrainte de traction et l'autre une contrainte de compression. La figure II-39 donne les variations des contraintes hydrostatiques dans le chrome et dans l'alumine en fonction de la fraction volumique de chrome. Quelle que soit la fraction volumique, le chrome est en traction, ceci étant confirmé par les deux méthodes. On note une augmentation de la contrainte avec la fraction volumique. Pour l'alumine, pour les fractions volumiques faibles, les contraintes sont faibles, les deux méthodes ne permettant pas de conclure sur le signe. Pour les échantillons élaborés selon la méthode standard (hors type (II)), l'alumine est en compression avec une tendance à une augmentation de la compression avec la fraction volumique, mais les niveaux de contraintes restent faibles. Enfin pour l'échantillon 36% (II), dont la microstructure est différente, une contrainte de traction pour l'alumine est donnée par les deux méthodes.

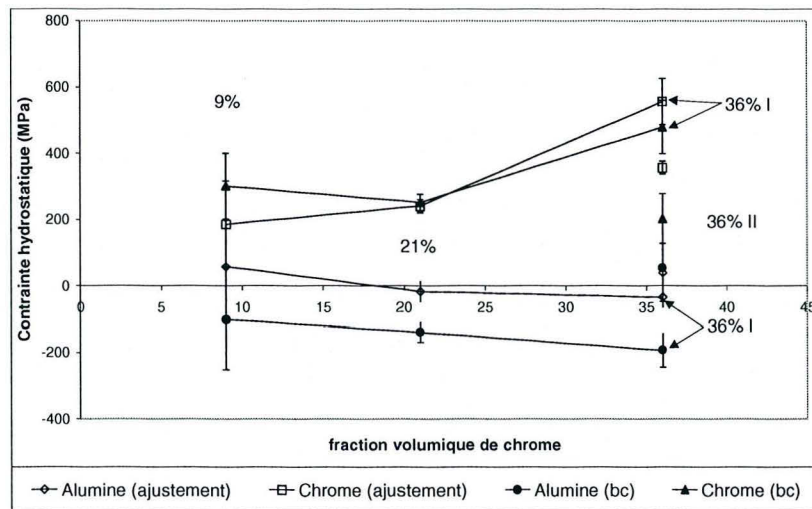


Figure II-39 : contraintes hydrostatiques déterminées par rayonnement synchrotron

C - Synthèse - discussion

Nous avons reporté sur la figure II-40 les évolutions de la contrainte hydrostatique en fonction de la fraction volumique de chrome, mesurées respectivement dans le chrome et dans l'alumine, et déterminées par les deux méthodes (barycentre centré et ajustement). Sont également reportées les évolutions de contraintes obtenues par le calcul, pour l'ensemble des configurations idéales et réelles. Il ressort essentiellement des écarts importants entre les niveaux de contraintes mesurés et calculés dans le chrome.

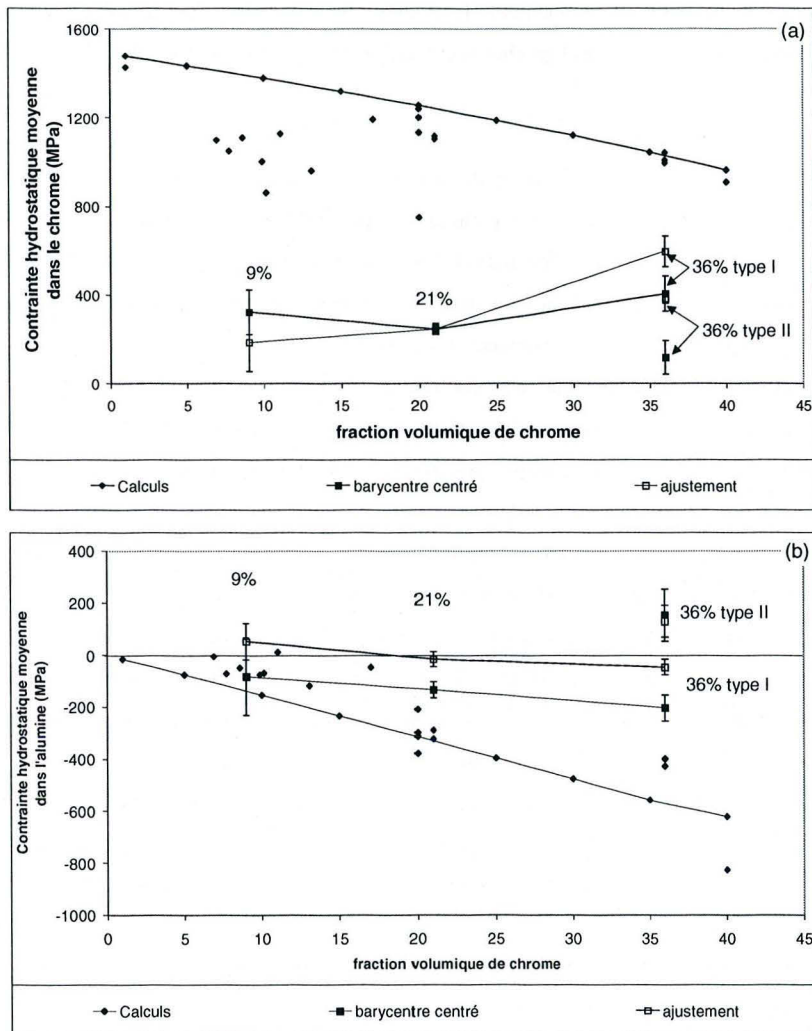


Figure II-40 : comparaison entre les contraintes calculées et les contraintes déterminées par diffraction des rayons X (a) chrome (b) alumine

L'évolution de la contrainte hydrostatique dans le chrome déterminée expérimentalement ne correspond pas à celle déterminée par les calculs. Par les calculs micromécaniques, l'augmentation de la fraction volumique de métal entraîne une diminution de la contrainte hydrostatique moyenne alors qu'expérimentalement, une tendance à l'augmentation des valeurs des contraintes hydrostatiques est observée. De plus, les niveaux de

contraintes présentent des différences importantes, ceux-ci étant beaucoup plus élevés pour les contraintes calculées que pour les contraintes estimées par la mesure.

Dans l'alumine, les calculs ont montré que la contrainte hydrostatique est en compression, même pour les faibles fractions volumiques de chrome et le niveau de contrainte augmente, en compression avec la fraction volumique de chrome. Concernant les contraintes déterminées expérimentalement, une même tendance du point de vue de l'évolution est observée. Les différences sur les niveaux de contraintes sont moins importantes que dans le cas du chrome.

Dans le chrome, ces écarts calculs expériences semblent diminuer quand la fraction volumique augmente et dans l'alumine, ils augmentent. L'analyse de ces écarts doit prendre en compte à la fois les difficultés d'ordre expérimental et les hypothèses et simplifications de la modélisation.

Du point de vue expérimental

La diffraction des rayons X permet de déterminer les contraintes moyennes dans les phases. Les niveaux de contraintes sont sensibles à divers paramètres : **gradients de composition, pureté des phases**, taille de grains, textures, etc. De plus, la détermination des contraintes dans les cermets n'est pas aisée, comme le montrent les résultats le montrent avec des **incertitudes élevées** et des **différences sensibles** en fonction de la méthode utilisée (barycentre centré ou ajustement des pics)

La détermination expérimentale des contraintes dans les cermets alumine chrome a montré que l'obtention de mesures fiables et reproductibles est une chose difficile en raison des différences de comportement des deux phases vis à vis du rayonnement synchrotron, l'alumine étant peu absorbante et le chrome très absorbant. De plus, du fait de l'élaboration des composites, d'autres caractéristiques perturbent la détermination de ces contraintes comme la présence du **fer**, l'enrichissement de **l'alumine en oxyde de chrome** ou l'apparition de textures dans le chrome pour les échantillons avec une forte fraction volumique de métal. Toutes ces difficultés conduisent à des valeurs de contraintes présentant de fortes incertitudes.

De plus, la **réaction de réduction** de l'oxyde de chrome par l'aluminium **n'est pas complète** dans les poudres à l'issue du broyage, cette réaction se terminant lors du frittage. Mais ne connaissant pas l'évolution de la réaction au cours du frittage et de la densification du composite, un réarrangement des grains d'alumine lors de la montée en température et avec l'évolution de la réaction, un enrichissement de celle-ci en chrome sont tout à fait envisageables. Comme une partie de l'oxyde de chrome n'a pas réagi, en fonction de la granulométrie des poudres, à la fin du frittage, des gradients de composition en chrome, en alumine et autres phases minoritaires sont possibles.

Un autre facteur qui influence énormément le niveau de contrainte déterminée par diffraction des rayons X est le **paramètre  $2\theta_0$** , correspondant au matériau non contraint. Les niveaux de contraintes dépendent de ce paramètre, par exemple une variation de  $0,01^\circ$  sur le paramètre  $2\theta_0$  peut entraîner une variation de 50MPa sur les contraintes. Dans le cas des cermets alumine-chrome, les paramètres  $2\theta_0$  ont été déterminés sur des poudres dont la granulométrie est inférieure à  $25\mu\text{m}$ . Or les observations de la microstructure en 2D (par microscopie électronique à balayage) ou en 3D (par microtomographie X) ont montré que l'échelle caractéristique de la microstructure est de l'ordre de quelques microns. Dans les poudres utilisées pour la détermination des paramètres  $2\theta_0$ , il est possible qu'il existe encore des **contraintes résiduelles** qui induisent **des erreurs sur les paramètres du matériau non contraint** et donc sur les niveaux de contrainte déterminés par diffraction des

rayons X. Pour illustrer l'influence du paramètre  $2\theta_0$ , le tableau II-10 donne les valeurs de  $2\theta_0$  déterminées à partir des poudres et celles déterminées à partir des calculs de moyennes des contraintes, en effectuant le calcul à l'inverse pour des microstructures idéales 3D proches du pourcentage volumique réel.

Alumine – chrome 9% volumique					
	$2\theta_0$ (exp)	$2\theta_0$ (10% vol)		$2\theta_0$ (exp)	$2\theta_0$ (10% vol)
Chrome	94.676°	94.886°	Alumine	104.246°	104.234°
Alumine – chrome 21% volumique					
	$2\theta_0$ (exp)	$2\theta_0$ (20% vol)		$2\theta_0$ (exp)	$2\theta_0$ (20% vol)
Chrome	80.723°	80.830°	Alumine	71.017°	70.986°
Alumine – chrome 36% volumique (I)					
	$2\theta_0$ (exp)	$2\theta_0$ (35% vol)		$2\theta_0$ (exp)	$2\theta_0$ (35% vol)
Chrome	80.814°	80.802°	Alumine	70.866°	70.962°
Alumine – chrome 36% volumique (II)					
	$2\theta_0$ (exp)	$2\theta_0$ (35% vol)		$2\theta_0$ (exp)	$2\theta_0$ (35% vol)
Chrome	80.757°	80.802°	Alumine	70.615°	70.962°

Tableau II-10 : comparaison entre les paramètres  $2\theta_0$  expérimentaux et ceux calculé à partir des contraintes moyennes du calcul aux éléments finis.

La différence entre le paramètre  $2\theta_0$  expérimental et celui qui est calculé, est importante pour l'échantillon comprenant une faible fraction de chrome, c'est-à-dire une taille de particule très faible par rapport à la granulométrie des poudres. La différence entre les paramètres  $2\theta_0$  expérimentaux et calculés diminue avec l'augmentation de la fraction volumique donc avec l'augmentation de la taille des particules de chrome. Pour l'alumine, pour les échantillons élaborés selon le procédé "standard", la différence maximale est de l'ordre d'un dixième de degré. Une augmentation de la différence avec l'augmentation de la fraction volumique de chrome est observée, ce qui est compatible avec une dégradation de la pureté de l'alumine due notamment à l'enrichissement en chrome.

Les analyses chimiques réalisées sur les poudres et sur les échantillons massifs présentées dans le chapitre I, ont montré la présence de fer dans le chrome. Celui-ci est réparti en solution solide dans les plus grosses particules. En faisant l'hypothèse que l'ensemble du fer est mis en solution dans le chrome, il est possible d'en déduire un paramètre  $\theta_0$  qui conduit à des contraintes beaucoup plus élevées que celles indiquées précédemment. Ainsi, pour le composite contenant 21% de chrome, la contrainte hydrostatique ainsi calculée est de 1100 MPa au lieu de 250MPa. On obtient également des contraintes plus élevées pour les autres types de composite (1000 MPa pour le 9% et 920 MPa pour le 36%). Ces valeurs peuvent être considérées comme limites supérieures des contraintes dans le chrome.

Dans les composites alumine-chrome, les différences de contraintes mesurées étant faibles, le niveau des contraintes dans les phases est déterminé par les paramètres de l'état non contraint. Les incertitudes sur ces paramètres entraînent apparemment un déséquilibre des contraintes dans les composites. En effet, la somme des

contraintes pondérée par la fraction volumique des phases ne donne pas une contrainte globale nulle mais celle-ci est en traction. Ceci est principalement dû à une sous-estimation du paramètre de l'état non contraint dans l'alumine en raison de difficultés expérimentales pour déterminer les paramètres de mailles. En effet, comme le montre la figure II-37, le paramètre de maille de la phase cubique du chrome diminue avec la granulométrie ce qui va dans le sens de contrainte de traction dans le chrome. Logiquement, l'alumine doit être en compression pour compenser la traction dans le chrome, par conséquent ses paramètres (a et c de la maille hexagonale) doivent augmenter avec la diminution de la taille des poudres. Si cette tendance est visible pour le paramètre a, elle est moins nette pour le paramètre c, en raison des difficultés expérimentales pour la détermination de ce paramètre. En effet, pour avoir une bonne estimation (et une bonne précision) de ce paramètre il faut avoir accès à des pics de haut indice de Miller "l", or lors de nos expérimentations, nous étions confrontés d'une part à des limitations matérielles pour atteindre les pics correspondants et d'autre part la superposition de certains de ces pics avec ceux du chrome empêchait leur utilisation pour la détermination des paramètres de maille. Ces problèmes de précision sur les paramètres de la maille hexagonale de d'alumine, non contrainte, conduisent à une sous-estimation des contraintes de compression et donc à un non équilibre apparent des contraintes globales dans les composites.

Malgré ces difficultés expérimentales, une tendance peut être dégagée, avec des contraintes hydrostatiques en traction dans le chrome, des contraintes faibles ou en compression dans l'alumine pour les échantillons élaborés par la voie standard. La contrainte déterminée dans l'échantillon contenant 36% de chrome de type (II), met en évidence l'influence de la microstructure et donc de la morphologie des particules sur les niveaux de contraintes résiduelles dans le matériau final. Par rapport à un échantillon élaboré par une voie standard, les contraintes dans le chrome et l'alumine de cet échantillon sont beaucoup plus faibles. Cette diminution des contraintes avec l'introduction de concavité est un phénomène qui se retrouve, à un degré plus faible, dans le cas des microstructures idéales concaves. La modification de la microstructure entraîne une modification des contraintes résiduelles, puisque les contraintes sont en traction dans l'alumine pour l'échantillon 36% (II).

Du point de vue du calcul

L'étude micromécanique a permis une analyse détaillée du développement des contraintes internes au cours du refroidissement dans les composites alumine chrome. Il a été montré que pour des particules sphériques de chrome, distribuées périodiquement dans une matrice d'alumine, les caractéristiques principales du champ de contrainte sont, dans le chrome, une **contrainte hydrostatique quasiment constante et en traction** et une faible déformation plastique localisée près de l'interface ; pour l'alumine, une contrainte de Von Mises maximale à l'interface et une **contrainte hydrostatique uniforme et en compression**.

Avec l'augmentation de la fraction volumique, les interactions entre les particules conduisent à une diminution du gradient de la contrainte de Von Mises dans l'alumine et à une augmentation du niveau de la contrainte à l'interface. Parallèlement la contrainte hydrostatique augmente en compression dans l'alumine.

La comparaison entre les modèles 3D et 2D (sous une condition de déformation plane généralisée) ont montré que les analyses en 2D introduisent une anisotropie qui induit une déformation plastique non négligeable

que l'on considérera comme non réaliste, dans les particules de chrome. Malgré cela, les distributions de contraintes dans la matrice et dans les particules sont comparables dans les cas 2D et 3D.

Les calculs sur les microstructures réelles 2D, issues d'images de microscopie électronique, ont mis en évidence l'influence de la morphologie des particules et notamment de la présence de concavités qui modifient fortement le champ de contraintes locales avec la présence d'une contrainte hydrostatique en traction dans l'alumine, près des particules et l'augmentation de la déformation plastique. Ces résultats ont été confirmés par des calculs sur des microstructures en 3D présentant des concavités. L'utilisation des images de la tomographie X a permis de confirmer l'influence de la morphologie des particules, notamment des concavités, sur le champ de contraintes locales.

Concernant ces résultats calculés, il faut souligner tout d'abord que du fait de nos capacités de calcul limitées, les maillages ne sont pas aussi fins que souhaités, en particulier à proximité des interfaces, et peuvent conduire à des incertitudes sur les niveaux des contraintes moyennes calculées. Nous avons estimé les conséquences de la non prise en compte des mailles contenant les nœuds de l'interface sur nos résultats. Comme attendu, les écarts restent faibles dans le cas où les gradients de contraintes sont faibles. C'est le cas pour les contraintes hydrostatiques dans le chrome où la suppression des éléments d'interface engendre des variations de quelques MPa pour les microstructures 3D et 2D idéales et inférieures à 20MPa pour les particules concaves et microstructures réelles. Dans l'alumine, la variation est aussi de quelques MPa sauf dans le cas de la microstructure idéale à 40% de chrome où on atteint 25 MPa et dans la particule concave III où l'écart s'élève à 40 MPa (à cause de la zone de traction à proximité de l'interface).

Les différences entre les calculs et les expériences peuvent avoir différentes origines. Tout d'abord les calculs portent principalement sur des microstructures idéales (arrangement périodiques de particules sphériques dans une matrice cubique) et les images de microscopie électronique à balayage montrent que la microstructure des cermets est loin des microstructures idéales utilisées ci-dessus. Le plus souvent la distance entre particules est de l'ordre de la taille de la particule voire supérieure et les interactions sont probablement plus limitées que celles prises en compte dans les calculs, sauf lorsque des particules de grandes tailles sont présentes ce qui n'est pas la majorité des cas.

D'autre part, les données d'entrée nécessaires aux calculs (propriétés mécaniques, coefficients de dilatation thermique) correspondent à des phases, alumine et chrome, pures. Les diverses études, menées sur les poudres et les échantillons, ont bien montré que ces deux phases ne sont pas pures. La présence d'oxyde de chrome dans l'alumine et celle du fer ou encore du carbone, du vanadium ou du molybdène qui sont présents principalement dans la phase métallique peut changer les propriétés élastiques des deux phases et leur comportement en fonction de la température. Néanmoins, il semble que la prise en compte du rôle des impuretés sur les propriétés mécaniques conduit à des variations qui ne dépassent pas 10% (voir annexe 2).

Nous pouvons aussi noter que les valeurs des contraintes moyennes dans le chrome calculées et expérimentales sont plus proches dans les cermets contenant une fraction volumique de 36% de chrome. Le mode d'obtention de ces cermets implique que la composition chimique des phases céramique et métallique est probablement la plus homogène puisqu'il s'agit de la réaction stœchiométrique (il n'y a pas d'ajout d'alumine lors de la réaction), alors que pour les cermets contenant une fraction volumique de chrome de 9% qui présente des hétérogénéités chimiques plus importantes, les niveaux de contraintes sont plus éloignés de ceux obtenus par le calcul.

Une des hypothèses de nos calculs est une relaxation complète des contraintes à 1450°C, et leur génération dès le début et tout au long du refroidissement en dessous de cette température. Dans l'alumine, l'état relaxé, selon la littérature [Munr97, Wach61], pourrait être prolongé jusqu'à 1200°C. Or, à cause des glissements aux joints de grains dans l'alumine à haute température, mais la modification de la température de relaxation des contraintes dans nos calculs change les niveaux des contraintes moyennes dans les phases. Par exemple pour un modèle sphère dans cube à 20% de chrome, si la température de relaxation est 1200°C au lieu de 1450°C, les contraintes moyennes dans le chrome sont 770 MPa (par rapport à 1260 MPa) et on obtient une contrainte hydrostatique compressive de 275 MPa dans l'alumine (contre 314 MPa). Les niveaux obtenus sont certes plus faibles mais pas assez pour rejoindre les niveaux des contraintes expérimentales.

Des effets de relaxation peuvent aussi se produire dans le chrome dû à un comportement visqueux à hautes température. Néanmoins, des simulations effectuées en supposant des valeurs de limite d'élasticité plus faibles à haute température (voir annexe 2) ne montrent pas de fortes variations des niveaux de contraintes résiduelles.

La nature des interfaces peut également jouer un rôle important sur les contraintes locales dans les phases. Dans tous nos calculs, celles-ci ont été considérées comme parfaites. Or un comportement différent de ces interfaces est possible et également la présence de gradients de concentration en oxyde de chrome dans l'alumine, près des particules peut influencer les contraintes dans la matrice et dans les particules.

Toutefois de par la nature du procédé d'élaboration, la mécanosynthèse, qui implique une forte interaction entre les phases et le fait que la réaction de réduction de l'oxyde de chrome se termine lors du pressage à chaud, on peut penser que l'interface entre le métal et la céramique est une interface relativement forte. Les observations en microscopie électronique à balayage viennent conforter cette idée. En effet, l'observation des images, quel que soit le type de composite, ne montre pas de particule ayant subi un début de décohésion, du seul fait du refroidissement, comme on pourrait s'y attendre si l'interface était faible, au vu des niveaux de contraintes déterminées expérimentalement, ainsi que de la grande variété des tailles de particules présentes dans ces matériaux.

En résumé, nous considérons que les valeurs des contraintes moyennes dans les phases déterminées expérimentalement représenteraient plutôt une borne inférieure et les valeurs du calcul micromécanique sur les microstructures idéales 3D (sphère dans cube) une borne supérieure pour les niveaux de contraintes existants dans les cermets.

Les champs de contraintes locaux tels qu'ils ont été calculés par la méthode des éléments finis pour les différentes microstructures réelles donnent les principales caractéristiques des champs de contraintes effectifs. Leur influence sur les chemins de fissuration pourra donc être analysée en référence aux paramètres géométriques de la phase métallique.



## *Chapitre III : fissuration des composites alumine chrome*

### Introduction

L'indentation d'une surface plane par une sphère est un problème de contact élastique qui fait l'objet d'études depuis plus d'un siècle depuis que Hertz [Hert82, Hert96] et Huber [Hube04] ont établi la solution analytique de ce problème mécanique. Les développements autour du contact Hertzien [Lawn68] permettent désormais de connaître le champ de contraintes à l'intérieur du matériau indenté.

L'utilisation d'indenteur sphérique sur des matériaux fragiles, comme les composites alumine-chrome, permet d'obtenir des chemins de fissuration qui se développent de façon prévisible et reproductible au niveau macroscopique. Il est donc possible d'analyser l'évolution de la propagation des fissures dans le volume du composite. La propagation des fissures est influencée par la microstructure du composite, du fait de la présence de la phase métallique [Song98, Wulf96] et des contraintes résiduelles [Kim96]. La caractérisation microstructurale et les calculs de détermination de contraintes dans le composite, permettant de connaître l'état mécanique du composite sous sa forme dense, vont permettre de mieux comprendre le chemin de fissuration des composites alumine-chrome.

Dans ce chapitre, les principes de la théorie d'indentation de Hertz sont rappelés et appliqués au cas d'un matériau connu : le verre. Ensuite le contact Hertzien est utilisé sur les composites avec une analyse en deux temps : tout d'abord au niveau macroscopique avec l'observation des différents stades de la fissuration et la détermination de la ténacité des différents composites. Puis l'analyse est menée au niveau microscopique pour évaluer l'influence de la phase métallique sur la propagation des fissures. Enfin le chemin de fissuration dans les composites est analysé en relation avec la morphologie de la phase métallique et les contraintes résiduelles. Au cours de l'analyse, des comparaisons entre les résultats expérimentaux et les résultats issus des calculs basés sur la théorie de Hertz sont effectuées.

### A – Théorie de Hertz – contact élastique

Quand un indenteur sphérique dur est pressé contre la surface plane d'un matériau fragile, il n'y a initialement contact qu'en un seul point. Lorsque la charge augmente, le point de contact se transforme en un disque. Ceci est un cas particulier d'un problème de contact élastique qui a été originellement résolu par Hertz [Hert96, Hert82] : dans un contact hertzien, un champ de contraintes purement élastique est créé sous l'indenteur. Ce champ de contact élastique est usuellement calculé à partir de la solution proposée par Huber [Hube04]. Si la charge est augmentée au-delà d'une valeur critique, un cercle de fissure est initié à partir d'un défaut de la surface de l'échantillon juste à l'extérieur de la zone de contact. Avec l'augmentation de la charge, un cône de fracture se développe sous la surface. La figure III-1 schématise l'évolution des fissures dans les matériaux.

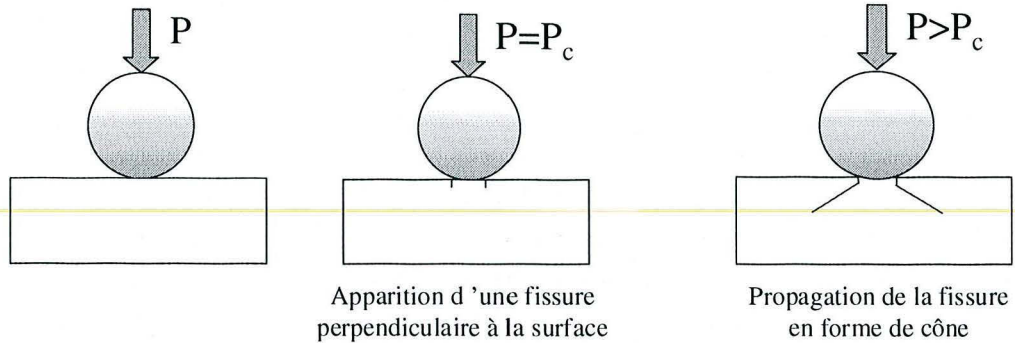


Figure III-1 : cas général d'une indentation hertzienne

Zeng & al [Zeng92a, Zeng92b], Lawn [Lawn68, Fran67] et Warren R. [Warr78] ont montré qu'il était possible de déduire du calcul du champ de contraintes lors d'une indentation de type Hertz, les valeurs de la ténacité du matériau indenté. Ce calcul est fait par une intégration numérique et ne présente pas de forme analytique simple. Warren [Warr95] propose une autre méthode de détermination de la ténacité à partir de la mesure de la charge critique d'apparition du cercle de fissure. D'autres auteurs utilisent diverses formulations dérivées de ces deux méthodes [Till55, Matz83, Nade73, Laug84]

### A-1 Détermination du champ de contraintes

Pour l'établissement de la solution analytique du champ de contraintes généré lors de l'indentation, les hypothèses, formulées par Hertz, sont les suivantes : la zone de contact a une forme elliptique, les deux solides sont élastiques et semi-infinis, le rayon de la zone de contact est faible devant les rayons de courbure des deux surfaces et les solides forment un contact sans frottement.

Pour le cas particulier où la zone de contact est un disque, le champ de contrainte a été exprimé dans les systèmes de coordonnées cartésiennes et cylindriques [Zeng92a, Zeng92b, Fisc97, Lawn74].

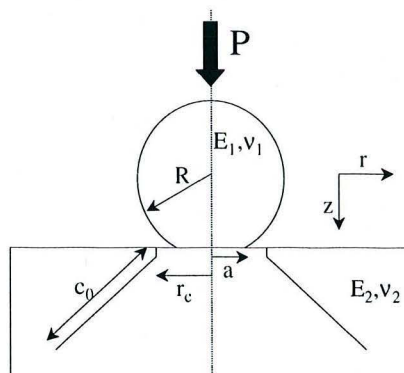


Figure III-2 : schéma de l' indentation sphérique, avec les principales notations

Dans le système cylindrique, le champ de contraintes est donné par :

$$\frac{\sigma_r}{P_0} = \frac{3}{2} \left\{ \frac{1-2\nu_2}{3} \frac{a^2}{r^2} \left[ 1 - \left( \frac{z}{u^{1/2}} \right)^3 \right] + \left( \frac{z}{u^{1/2}} \right)^3 \frac{a^2 u}{u^2 + a^2 z^2} + \left( \frac{z}{u^{1/2}} \right) \left[ u \frac{1-\nu_2}{a^2 + u} + (1+\nu_2) \frac{u^{1/2}}{a} \tan^{-1} \left( \frac{a}{u^{1/2}} \right) - 2 \right] \right\}$$

$$\frac{\sigma_\theta}{P_0} = -\frac{3}{2} \left\{ \frac{1-2\nu_2}{3} \frac{a^2}{r^2} \left[ 1 - \left( \frac{z}{u^{1/2}} \right)^3 \right] + \left( \frac{z}{u^{1/2}} \right) \left[ u \frac{1-\nu_2}{a^2 + u} - (1+\nu_2) \frac{u^{1/2}}{a} \tan^{-1} \left( \frac{a}{u^{1/2}} \right) + 2\nu_2 \right] \right\}$$

$$\frac{\sigma_z}{P_0} = -\frac{3}{2} \left( \frac{z}{u^{1/2}} \right)^3 \left( \frac{a^2 u}{u^2 + a^2 z^2} \right)$$

$$\frac{\tau_{rz}}{P_0} = -\frac{3}{2} \left( \frac{rz^2}{u^2 + a^2 z^2} \right) \left( \frac{a^2 u^{1/2}}{a^2 + u} \right) \quad \frac{\tau_{r\theta}}{P_0} = \frac{\tau_{\theta z}}{P_0} = 0$$

Avec  $P_0 = \frac{P}{\pi a^2}$

u est défini par une équation quadratique

$$u = \frac{1}{2} \left[ \left( r^2 + z^2 - a^2 \right) + \left[ \left( r^2 + z^2 - a^2 \right)^2 + 4a^2 z^2 \right]^{1/2} \right]$$

avec r et z les coordonnées dans le système cylindrique (voir la figure III-2 pour les notations) et a est le rayon de la zone de contact qui est déduit de la relation :

$$a^3 = \frac{4kPR^*}{3E_2}$$

- Avec P : charge d'indentation
- R\* : rayon de l'indenteur
- E<sub>2</sub> module d'Young de l'échantillon

et  $k = \frac{9}{16} \left[ \left( 1-\nu_1^2 \right) + \left( 1-\nu_2^2 \right) \frac{E_2}{E_1} \right]$

E<sub>1</sub> module d'Young de l'indenteur

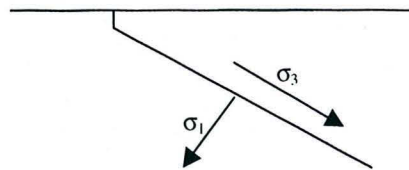
ν<sub>1</sub> et ν<sub>2</sub> coefficients de Poisson de l'indenteur et de l'échantillon

Les contraintes principales peuvent être déterminées à partir des contraintes précédemment définies et s'expriment par :

$$\sigma_1 = \frac{\sigma_r + \sigma_z}{2} + \sqrt{\left( \frac{\sigma_r - \sigma_z}{2} \right)^2 + \tau_{rz}^2}$$

$$\sigma_2 = \sigma_\theta$$

$$\sigma_3 = \frac{\sigma_r + \sigma_z}{2} - \sqrt{\left( \frac{\sigma_r - \sigma_z}{2} \right)^2 + \tau_{rz}^2}$$



Grâce à ces équations, le champ de contraintes peut être connu en tout point du solide élastique.

Les équations des cas particuliers permettant de déterminer les contraintes à la surface et le long de l'axe de symétrie sont présentées en annexe 6.

## A-2 Modèles pour la détermination de la ténacité

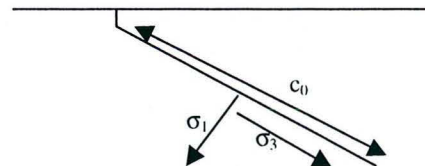
A partir des mesures de la longueur des fissures et des rayons des fissures superficielles, il est possible de déterminer la ténacité du solide indenté. Deux modèles sont disponibles : celui donné par Franck & Lawn. [Lawn68, Fran67] et celui de Warren [Warr95]. Ces deux modèles pour la détermination de la ténacité en mode I utilisent deux approches différentes. Le modèle de Franck & Lawn [Frank67] s'appuie sur la fissure qui se développe en cône donc sur la propagation de la fissure dans le volume alors que l'approche de Warren est fondée sur la fissure à la surface à partir d'un défaut.

### Description du modèle de Franck & Lawn

Le mécanisme de formation du cône de fracture est complexe. Le traitement proposé par Frank & Lawn [lawn68, fran67] permet de l'expliquer en deux étapes :

- 1 - Le cône débute à la surface de l'échantillon et au niveau du cercle de contact (ou juste en dehors) où les contraintes sont concentrées. Le cône de fracture circonscrit la zone de contact puis croît en profondeur, vers l'extérieur et suit la trajectoire de la contrainte  $\sigma_3$  (de façon à être en tout point dans une configuration normale par rapport à la contrainte  $\sigma_1$ ).
- 2 - le facteur d'intensité de contrainte pour la croissance de la fracture en profondeur peut s'exprimer uniquement en fonction de la contrainte principale  $\sigma_1(c)$ , où c est une coordonnée le long de la trajectoire de la contrainte  $\sigma_3$ . Le facteur d'intensité est de la forme :

$$K_I = 2 \left( \frac{c_0}{\pi} \right)^{1/2} \int_0^{c_0} \frac{\sigma_1(c)}{(c_0^2 - c^2)^{1/2}} dc$$



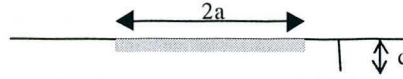
$\sigma_1(c)$  étant défini par le système d'équations présenté précédemment,  $c_0$  est la longueur totale de la fissure

Cette équation est valable sous les hypothèses suivantes :

- i – la présence de la fissure ne perturbe pas le champ de contraintes.
- ii – le cône de fracture hertzien se développe avec une contrainte principale  $\sigma_1$  maximale et toujours normale à la trajectoire de la fissure.
- iii – la fissure initiale peut être négligée en raison de sa faible taille par rapport au cône.

### Méthode définie par Warren [Warr95]

Warren utilise la théorie de Hertz pour déterminer la ténacité de matériau fragile sans toutefois mesurer la longueur du cône de fracture, la technique utilise uniquement la mesure de la charge minimale pour la formation du cône de fracture.



Pour déterminer la ténacité, supposons qu'il existe une fissure perpendiculaire à la surface de longueur  $c$  (en fait un défaut), proche de la zone de contact. L'état de contrainte en dehors de la présence de la fissure est connu et donné par le système précédemment explicité. La présence de la fissure conduit à l'apparition de contraintes en traction le long de la fissure conduisant à un état hors équilibre. L'équilibre est restauré en appliquant des contraintes de même amplitude mais de sens opposé en considérant une distribution de dislocations (au sens mathématique). L'état de contrainte ainsi généré est connu et a été explicité par Novell & Hills [Nowe87]. L'absence de contrainte de traction sur les surfaces libres de la fissure par l'application d'une « densité » de dislocations  $B_r(z)$  est assurée par :

$$0 = \sigma_{ij}(r, z) + \frac{G}{\pi(\kappa + 1)} \int_0^c B_r(z) K(z, r) dz$$

$G$  est le module de cisaillement du matériau,  $\kappa$  est la constante de Kolosov ( $= 3-4\nu$  en déformation plane),  $\sigma_{ij}$  représente l'état de contrainte en l'absence de fissure, c'est-à-dire celui décrit par le système d'équations précédemment défini.

L'intégrale précédente conduit à un système de 20 équations, le résultat est un nombre noté  $\mu$  qui est en relation avec le facteur d'intensité de contrainte du mode I :

$$\mu = \frac{K_I}{\rho_0 \sqrt{\pi c}} \quad \text{avec} \quad \mu = f\left(\frac{r}{a}, \frac{c}{a}, \nu\right)$$

La normalisation par rapport à  $a$  (rayon de la zone de contact) donne :

$$\frac{K_I}{\rho_0 \sqrt{\pi a}} = \mu \sqrt{\frac{c}{a}}$$

L'équation précédente peut être réécrite en terme de charge. Lorsque  $K_I$ , pour une fissure à la surface, atteint la valeur  $K_{IC}$  (pour la charge  $P=P_F$ ), celle ci commence à s'étendre pour former le cercle de fissure, d'où :

$$\frac{E^* P_F}{R K_{IC}^2} = \frac{\pi}{3\mu^2 (c/a)}$$

$R$  : rayon de l'indenteur

$$\frac{1}{E^*} = \frac{1-\nu_2^2}{E_2} + \frac{1-\nu_1^2}{E_1}$$

$E_2$ ,  $\nu_2$  et  $E_1$ ,  $\nu_1$  : module d'Young et coefficient de Poisson pour le matériau indenté et l'indenteur.

ce qui permet de définir la charge de rupture normalisée :

$$P_{FN} = \frac{E^* P_F}{R K_{IC}^2}$$

Si la distribution de défauts est suffisante pour toujours avoir un défaut (de taille  $c/a$ ) proche de la zone où le coefficient d'intensité de contrainte est maximum,  $P_{FN}$  devient :

$$P_{FN} = \frac{\pi}{3\mu^2 (c/a)}$$

### Chapitre III : fissuration des composites alumine chrome

Cette expression donne la valeur minimale de charge normalisée nécessaire pour propager une fissure de longueur  $c$ .

La détermination de la ténacité se fait grâce à la relation :

$$K_{Ic} = \left( \frac{E^* P_{\min}}{P_{FN}^{\min} R} \right)^{1/2}$$

$P_{\min}$  est la charge minimale pour obtenir une fissure circulaire complète (déterminée après une série de 25 essais minimum, nombre recommandé par les auteurs).  $P_{FN}^{\min}$  est calculée théoriquement pour un indenteur et un substrat identique qui dépend du coefficient de Poisson de l'échantillon [Warr95]. Warren a testé cette méthode sur des échantillons d'alumine et de verre, indentés par des billes de verre et d'alumine.

Par la suite, nous appliquerons ces deux modèles de détermination de la ténacité d' une part au matériau verre et d' autre part aux cermets.

B – Principe de l'indentation – Application à un matériau connu : le verre

Avant d' utiliser l' indentation de Hertz sur les cermets, l' ensemble du protocole expérimental et d' analyse des résultats a été mis en place pour le verre, matériau pour lequel il existe de nombreuses références vis à vis de l' indentation de Hertz [Warr95, Zeng92a, Fish97] ou d' autres formes d' indentation permettant la détermination de sa ténacité [Wied69, Ansti81, Luca95, Eaga78, Segh95, Lebo00]

Les indentations sont réalisées sur une machine de traction / compression de type Instron 1185. La machine est placée en configuration de compression avec une cellule de force de 5kN. Les indentations sont réalisées avec un déplacement constant de la traverse fixé à  $5\mu\text{m}$  par seconde jusqu'à une charge maximale inférieure à 2000N. Une fois cette charge maximale atteinte, elle est maintenue pendant un temps allant de 1 à 50 secondes. Puis le déplacement de la traverse est inversé pour relâcher la contrainte. Ceci a été fait rapidement ou lentement (vitesse correspondant à  $-100\text{ N/s}$  ou  $5\mu\text{m/s}$ ). Ces paramètres correspondent à ceux généralement rencontrés dans la littérature [Zeng92a, Warr78]

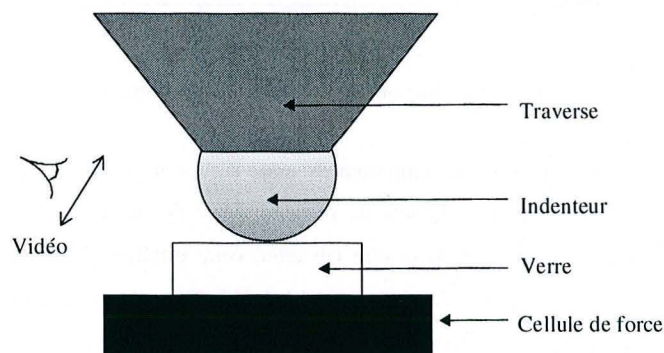


Figure III-3 : Schéma du montage

Les données issues de l'indentation sont la charge en fonction du déplacement, une courbe de ce type est donnée sur la figure III-3. Le déplacement mesuré est celui de la traverse et la charge est mesurée par la cellule de force placée sous l'échantillon.

Le verre utilisé a été fourni par Saint-Gobain Recherche (Aubervilliers). Il s'agit de plaques de verre élaborées par le procédé float, les plaques ont pour dimensions  $5 \times 5 \times 1,01\text{ cm}^3$ . Lors des essais les faces dites atmosphère et étain ont été distinguées. La face étain correspond à celle en contact avec le bain d'étain à la sortie du four d' élaboration.

Pour les indentations réalisées sur le verre, deux indenteurs en acier 100C6 de rayon 5 et 8 mm ont été utilisés. Leurs caractéristiques mécaniques sont :  $E = 203\text{ GPa}$  et  $\nu = 0,3$ .

Les indentations ont été réalisées sur les deux faces et également sur la tranche des échantillons. Pour rester dans les hypothèses de la théorie de contact de Hertz, une distance relativement importante a été respectée

entre les indentations. A chaque fois la courbe charge-déplacement a été enregistrée, un exemple est donnée sur la figure III-4.

Etant donné la précision de la mesure de force ( $\pm 50$  N), il n'est pas possible de distinguer, sur la courbe de charge, les accidents correspondant à l'apparition et la propagation des fissures dans l'échantillon comme certains auteurs l'ont remarqué [Nade73].

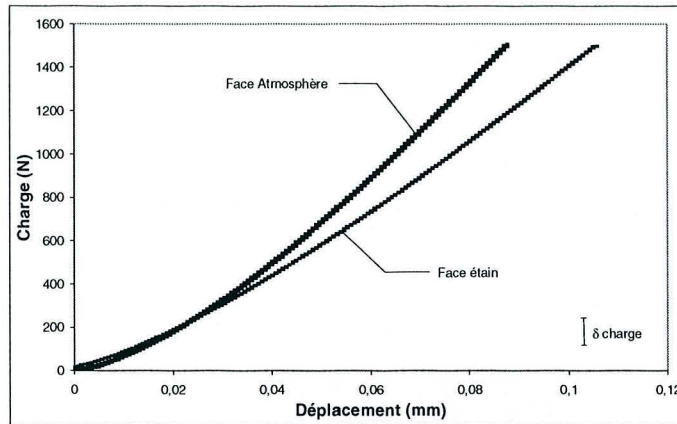


Figure III-4 : courbe charge-déplacement pour des échantillons de verre

Sur ces courbes, des différences de comportement entre la face atmosphère et la face étain sont visibles. Ceci peut être mis en relation avec des défauts de planéité. Mais des essais sur des morceaux plus petits ( $1 \times 1 \times 1 \text{ cm}^3$ ) n'ayant pas permis de faire disparaître cet effet, cette différence de comportement est plutôt à attribuer à des différences de propriétés mécaniques entre les deux faces du verre. Les travaux de Le Bourhis [Lebo00] ont montré que les modules d'Young d'un verre ne contenant pas d'étain et un verre contenant une proportion d'étain proche de celle introduite par le passage du verre sur le bain peuvent différer de 10% avec une tendance à l'augmentation du module pour le verre ayant été au contact de l'étain.

De plus, contrairement au comportement attendu (celui décrit sur la figure III-1), la fissuration en cône intervient souvent au déchargement et non au chargement. Parfois aucune fissure n'est détectée, même lorsque les indentations sont réalisées à des charges relativement élevées (environ 2000N). Par exemple, pour l'indenteur de 8mm de rayon, la fissuration au déchargement se produit dans 70% des cas et 53% pour l'indenteur de 5mm.

Lorsque la fissuration a eu lieu, plusieurs mesures sont possibles : rayon du cercle de fissure et longueur de la fissure en cône. Les échantillons sont observés en microscopie optique et la mesure du rayon du cercle est faite directement (figure III-5). Pour mesurer la longueur de la fissure en cône, deux moyens sont possibles : soit une mesure directe qui nécessite la découpe de l'échantillon, soit une mesure indirecte réalisée par projection du cône sur la surface qui implique la connaissance de l'angle du cône. Ces deux méthodes ont été mises en œuvre sur les échantillons de verre. La découpe des échantillons donne des résultats peu fiables car elle peut entraîner une propagation de la fissure. En effet, la longueur de la fissure a été mesurée et est beaucoup plus importante que dans le cas où les échantillons n'ont pas été découpés ( $600 \mu\text{m}$  contre  $200$  à  $400 \mu\text{m}$ ). En revanche les échantillons découpés ont été utilisés pour mesurer l'angle du cône, par microscopie électronique à balayage (figure III-6). L'angle pris en compte est celui que forme la fissure au début de son changement de trajectoire.



Notons qu'une variation de l'angle  $\alpha$  a été constatée sur l'ensemble de la longueur de la fissure laissant aussi supposer une propagation de celle-ci lors de la découpe.

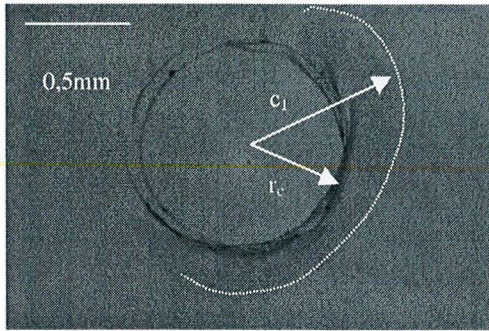


Figure III-5 : cercle de fissure et tracé du cône (---)

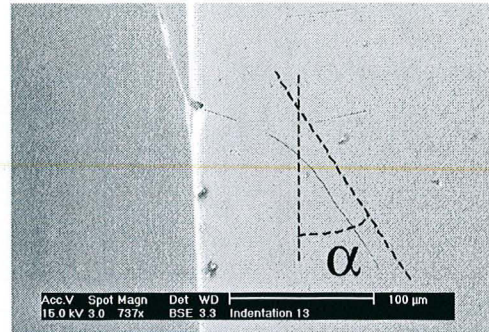


Figure III-6 : image MEB du départ du cône de fissure

L'angle mesuré est de  $24^\circ$ , ce qui représente une moyenne sur l'ensemble des échantillons observés, les valeurs extrêmes de l'angle étant  $22^\circ$  et  $25^\circ$ . Une fois l'angle du cône connu, il est alors possible d'en déterminer la longueur. Ces mesures sont faites en utilisant la projection la fissure sur la surface du verre. Du méthanol est introduit, après indentation, dans la fissure et l'ensemble est observé en microscopie optique (figure 5). Le méthanol permet d' optimiser le contraste lors des observations en microscopie optique. La longueur de la projection du cône sur la surface du verre permet de déduire la longueur du cône par la relation :

$$c_0 = c_1 \times \cos \alpha$$

$c_0$  longueur totale du cône,  $c_1$  longueur de la projection et  $\alpha$  angle du cône.

A titre d'exemple, la figure III-7 regroupe les valeurs mesurées du rayon de la zone de contact, du rayon du cercle de fissure, de la longueur du cône ainsi que le rayon de la zone de contact théorique pour différentes indentations réalisées sur la face "étain" du verre. Le rayon de contact expérimental est mesuré à partir des films des séquences d' indentation,

Le rayon de la zone de contact théorique est calculé selon la relation suivante [Zeng92a, Warr78, John73, Wils71, Hertz96, Hube04, Auer91, Lawn68, Fran67]

$$a = \sqrt[3]{\frac{4kPR}{3E_2}} \quad k = \frac{9}{16} \left[ (1-\nu_1^2) + (1-\nu_2^2) \frac{E_2}{E_1} \right]$$

indenteur acier  $E_1=203 \text{ GPa}$   $\nu_1 = 0,3$

substrat verre  $E_2 = 70 \text{ GPa}$   $\nu_2 = 0,22$

P est la charge d'indentation et R le rayon de l'indenteur

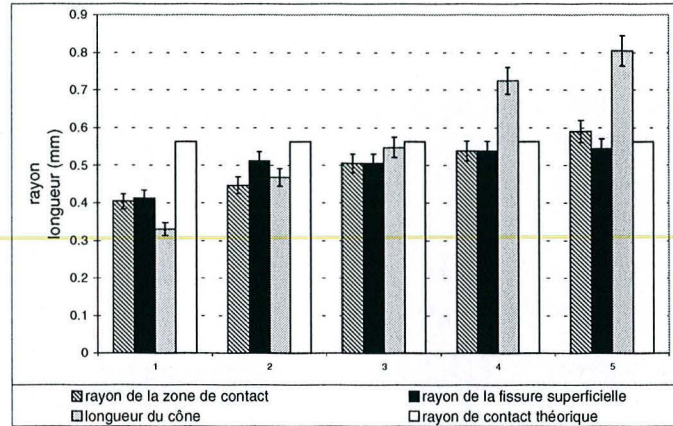


Figure III-7 : rayon de contact expérimental et théorique, rayon de fissure et longueur de fissure conique dans les échantillons de verre.

Notons que pour la plupart de nos essais, la fissuration à la décharge est observée. Les résultats présentés sur la figure III-7 correspondent à 5 essais où la fissuration s’est produite à la décharge après avoir atteint une charge maximale de 1800N.

Les mesures des zones de contact sont en assez bon accord avec les valeurs théoriques. Pour l’ensemble des essais réalisés, les rayons mesurés sont généralement supérieurs aux rayons calculés d’environ 11%, comme l’ont constaté aussi certains auteurs [Zeng92a, Warr78, Auer91]. Lorsque l’écart est plus élevé, ceci correspond, en général, à des essais réalisés avec l’indenteur de plus grand rayon. Pour les rayons de fissure, dans la plupart des cas, ils sont supérieurs au rayon de la zone de contact avec un rapport entre 1,1 et 1,4 en conformité avec la littérature [Zeng92a, Warr78, Franc67]. Il existe quelques cas où le rayon de fissure est inférieur au rayon de contact. Ceci peut s’expliquer par l’initiation de la fissure circulaire sans propagation de celle-ci au cours du chargement ultérieur en raison de la mise en compression de la zone d’initiation sous l’effet de l’augmentation de la charge. Ce phénomène peut aussi être à l’origine de plusieurs cercles de fissures. Dans ce cas, le rayon du cercle intérieur est pris en compte. Les longueurs du cône de fissure varient fortement d’un essai à l’autre, cela dépend de la charge critique d’apparition de la fissure.

#### Modèle de Warren

Cette méthode utilise la charge de rupture minimale pour déterminer la ténacité. Comme la charge correspondant à l’initiation de la fissuration ( $P_{min}$ ) ne peut être détectée pendant l’indentation, à partir des courbes charge/déplacement, elle est calculée par la relation :

$$P_{min} = \frac{3E_{verre}a^3}{4kR}; \quad \text{avec} \quad a = \frac{r_c}{\beta} \quad \beta=1.1 \text{ ou } 1.4$$

Ce calcul est effectué pour des valeurs extrêmes du rapport  $r_c/a$ ,  $r_c$  étant le rayon du cercle de fissure.

Pour la constante  $P_{FN}^{min}$ , la valeur utilisée est celle proposée par Roberts & al [Robe99] dans le cas d’une bille en acier sur un substrat en verre, soit  $P_{FN}^{min} = 4153$ .

Dans ces conditions, les valeurs de ténacité sont :

Fissuration lors du chargement

Indenteur 8mm

$r_c/a$	$P_{min}$	$K_{Ic}$ (MPa.m <sup>1/2</sup> )
1,1	517 N	<b><math>K_{Ic} = 0,93 \pm 0,05</math></b>
1,4	251 N	<b><math>K_{Ic} = 0,65 \pm 0,04</math></b>

Indenteur 5mm

$r_c/a$	$P_{min}$	$K_{Ic}$ (MPa.m <sup>1/2</sup> )
1,1	368 N	<b><math>K_{Ic} = 0,99 \pm 0,05</math></b>
1,4	179 N	<b><math>K_{Ic} = 0,69 \pm 0,04</math></b>

Fissuration lors du déchargement

Indenteur 8mm

$r_c/a$	$P_{min}$	$K_{Ic}$ (MPa.m <sup>1/2</sup> )
1,1	538 N	<b><math>K_{Ic} = 0,95 \pm 0,05</math></b>
1,4	261 N	<b><math>K_{Ic} = 0,66 \pm 0,04</math></b>

Indenteur 5mm

$r_c/a$	$P_{min}$	$K_{Ic}$ (MPa.m <sup>1/2</sup> )
1,1	426 N	<b><math>K_{Ic} = 1,07 \pm 0,06</math></b>
1,4	207 N	<b><math>K_{Ic} = 0,75 \pm 0,04</math></b>

Tableau III-1 : ténacité du verre par le modèle de Warren.

L'incertitude indiquée tient compte des incertitudes de mesures sur  $r_c$ .

Modèle de Franck & Lawn

Pour appliquer ce modèle, les données expérimentales sont la charge d'indentation nécessaire à l'apparition de la fissure en cône et la longueur du cône. Le calcul de l'intégrale de la contrainte  $\sigma_I$  le long de la trajectoire de la fissure, a été effectué en supposant un angle de la fissure de 24°, également donné par l'expérience. Grâce aux équations précédemment explicitées, le champ de contraintes peut être connu en tout point du solide élastique, notamment la contrainte  $\sigma_I$  nécessaire pour la détermination de la ténacité comme l'illustre la figure III-8 pour un substrat de verre flotté indenté par une bille d'acier de 8mm de rayon sous une charge de 1800N

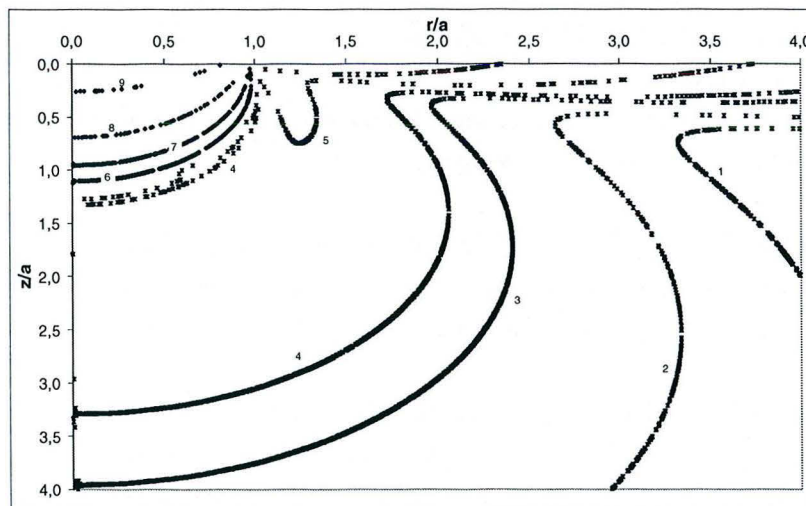


Figure III-8 : iso-contraintes  $\sigma_I/P_0$  dans le cas de l'indentation d'une plaque de verre par une bille en acier de rayon 8mm (le champ de contrainte est symétrique par rapport à l'axe z)

- (1)  $\sigma_I/P_0 = 0,0025$  ; (2)  $\sigma_I/P_0 = 0,004$  ; (3)  $\sigma_I/P_0 = 0,0075$  ; (4)  $\sigma_I/P_0 = 0,01$  ; (5)  $\sigma_I/P_0 = 0,02$  ;  
 (6)  $\sigma_I/P_0 = -0,005$  ; (7)  $\sigma_I/P_0 = -0,025$  ; (8)  $\sigma_I/P_0 = -0,1$  ; (9)  $\sigma_I/P_0 = -0,5$

Les valeurs de la ténacité du verre flotté calculées par le modèle de Franck & Lawn sont données ci dessous

Fissuration lors du chargement

**Indenteur 8mm**

P	Longueur du cône (mm)	$K_{Ic}$ (MPa.m <sup>1/2</sup> )
1800 N	0,725	<b><math>K_{Ic} = 1,29 \pm 0,07</math></b>

**Indenteur 5mm**

P	Longueur du cône (mm)	$K_{Ic}$ (MPa.m <sup>1/2</sup> )
<b>1000 N</b>	0,416	<b><math>K_{Ic} = 1,61 \pm 0,08</math></b>

Fissuration lors du déchargement

**Indenteur 8mm**

P	Longueur du cône (mm)	$K_{Ic}$ (MPa.m <sup>1/2</sup> )
1800 N	0,769	<b><math>K_{Ic} = 1,54 \pm 0,07</math></b>

**Indenteur 5mm**

P	Longueur du cône (mm)	$K_{Ic}$ (MPa.m <sup>1/2</sup> )
<b>1000 N</b>	0,405	<b><math>K_{Ic} = 1,67 \pm 0,08</math></b>

Tableau III-2: ténacité du verre par le modèle de Franck & Lawn

Discussion sur les résultats du verre

Les résultats expérimentaux conduisent généralement à une surestimation de la ténacité du verre par rapport aux valeurs de la littérature, cette surestimation étant plus importante dans le cas de l'application de la méthode de Franck & Lawn.

En effet, la ténacité du verre obtenue, dans la littérature, pour des indentations de type Hertz est  $0,7 < K_{Ic} < 0,8 \text{ MPa.m}^{1/2}$  [Warr95, Fish97, Warr94]

La détermination de la ténacité par indentation de Hertz telle que nous l'avons mise en œuvre est délicate, d'une part du fait des incertitudes expérimentales liées aux essais et d'autre part du fait des hypothèses pour la détermination du champ de contraintes de Hertz.

Du point de vue expérimental, les résultats de ténacité présentés ci-dessus ne concernent que des indentations pour lesquelles la séquence de fissuration s'est déroulée selon le schéma décrit par Hertz-Huber [Hertz96, Hertz82, Huber04]. Mais ce déroulement idéal ne correspond pas à la plupart de nos essais. En effet, pour une même procédure d'indentation, sur la même face d'une plaque, l'apparition des fissures se fait lors du déchargement, ou dans certains cas aucune fissure n'apparaît, même pour des charges élevées. Le phénomène de fissuration du verre au déchargement a déjà été observé par différents auteurs [John73, Wils71] et peut être mis

en relation avec les différences de coefficient de Poisson entre indenteur et substrat, point qui est développé ci-après.

De plus, comme mentionné précédemment, plusieurs cercles de fissures superficielles (figure III-5) sont observés contrairement au cas idéal où un seul cercle de fissure apparaît, celui-ci se développant ensuite sous la surface pour former un cône. Ces différents cercles correspondent à différentes charges critiques. Généralement, c'est le cercle le plus grand qui se développe en cône.

Ce phénomène s'explique par la mise en compression de la zone d'initiation du premier cercle de fissure avec l'augmentation de la charge. Le calcul du champ de contrainte permet de voir que la zone en dehors du cercle de contact est en traction, donc si un défaut se trouvant à la limite de la zone de contact, sert de site d'initiation à la fissure, avec une faible augmentation de la charge, ce défaut est mis en compression par l'indentation et la fissure cesse de se développer, permettant l'initiation d'une autre fissure à partir d'un autre défaut. Lors du déchargement, après la propagation de la fissure la plus éloignée, le premier défaut initiateur est placé de nouveau en traction, permettant à la fissure de se propager. Comme le champ de contrainte est perturbé par la présence de la fissure en cône, et avec la diminution de la charge, il n'y a pas propagation d'un autre cône, seul le cercle superficiel demeure. Ce phénomène peut également être mis en relation avec la vitesse de mise en charge de l'échantillon, celle-ci pouvant être trop importante par rapport à la vitesse de propagation des fissures dans le verre. La figure III-9 schématise le processus.

Cette multifissuration conduit à une surestimation de la charge critique puisque la fissure principale (celle qui se développe en cône) apparaît à une charge plus élevée.

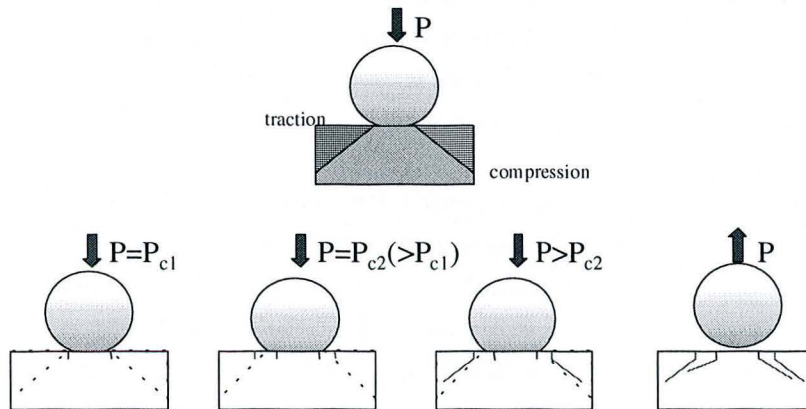


Figure III-9 : schématisation de la multifissuration lors des indentations

Pour le modèle de Warren, la prise en compte du cercle de fissure externe au lieu du cercle de fissure interne peut conduire à une surestimation de la charge critique de l'ordre de 10% et donc à une augmentation de  $K_{Ic}$  de 15%.

Une autre source d'erreur expérimentale est l'angle du cône de fissure. Les mesures ont conduit à une valeur moyenne de l'angle de  $24^\circ$ , avec des variations entre  $22^\circ$  et  $25^\circ$  d'un échantillon à l'autre ; dans la littérature, pour les verres, la valeur se situe aux alentours de  $22^\circ$  [Lawn68, Koce98]. Nos calculs ont montré

qu'une variation de 4° de l'angle de la fissure pouvait entraîner une variation de 25% de la ténacité calculée pour une même longueur de fissure, une augmentation de l'angle entraînant une diminution de la ténacité.

La présence de contraintes résiduelles liées à la fabrication du verre peut également influencer la ténacité [Robe99, Bistr00, Wu01] car c'est la superposition du champ de contraintes de Hertz et du champ de contraintes résiduelles qui va être responsable de la fissuration. Le profil de contraintes résiduelles dans l'épaisseur du verre est connu [StGo99]. Les mesures ont donné une contrainte de compression de -4,53 MPa à la surface et une contrainte en traction de 2,29 MPa au cœur des plaques.

L'application du modèle de Franck & Lawn en tenant compte de ce champ de contraintes résiduelles ne change pas de façon significative la valeur de la ténacité : une diminution de l'ordre de 5% est observée. En revanche, l'hypothèse de la présence de contraintes résiduelles très localisées près de la surface (par exemple d'origine thermique) qui pourrait influencer la ténacité de façon plus importante n'est pas totalement à exclure.

Les hypothèses de Hertz impliquent que la propagation de la fissure ne s'effectue qu'en mode I, le long de la contrainte principale  $\sigma_3$ , perpendiculairement à la contrainte principale  $\sigma_1$ . La contribution des autres modes, le long de la fissure peut être estimée. Pour le mode III, en raison de la géométrie conique, celui-ci est nul. En revanche une contribution du mode II existe mais celle-ci est faible, inférieure à 3,5% ( $K_{II}/K_I$ ) dans le cas d'indentation avec une sphère de rayon 8mm et 5% pour une sphère de 5mm.

Comme le soulignent certains auteurs, d'autres hypothèses pour le calcul du champ de contrainte de Hertz ne sont pas forcément vérifiées : d'une part l'hypothèse d'isotropie du verre peut être remise en cause du fait que sous charge le verre peut subir une modification de sa structure et devenir orthotrope [Lawn74], ce phénomène pouvant induire une modification du coefficient de Poisson et donc du champ de contraintes calculé. D'autre part, Zeng & al [Zeng92a, Zeng92b] remarquent que le champ de contraintes est modifié par le développement de la fissure ce qui n'est pas pris en compte dans le calcul.

Concernant le calcul du champ de contraintes de Hertz, rappelé ci-dessus, il repose sur l'hypothèse d'un contact sans frottement entre l'indenteur et le substrat. Si cette hypothèse est vérifiée dans le cas où l'indenteur et le substrat sont constitués du même matériau, elle doit être reconsidérée lorsque l'indenteur et le substrat ont des propriétés différentes. En effet, plusieurs auteurs ont montré que les forces de frottement qui entrent en jeu à l'interface modifient la distribution de contraintes ce qui conduit à une modification de la ténacité [Moug85, Barq82, Hamil66, Hamil83]. En superposant au champ de contrainte normal, un champ de contrainte tangentiel, il est possible de prendre en compte l'effet du frottement sur le champ de contrainte généré lors de l'indentation. Les équations du champ de contrainte normal et tangentiel sont présentées en annexe 7.

Ainsi le champ de contraintes peut être calculé en tenant compte d'un coefficient de frottement de 0,1, valeur couramment admise pour le cas d'un indenteur en acier sur un substrat de verre [Nowe87, Moug85, Barq82]. La figure III-10 donne les nouvelles isovaleurs de la contrainte normalisée  $\sigma_1/P_0$ .

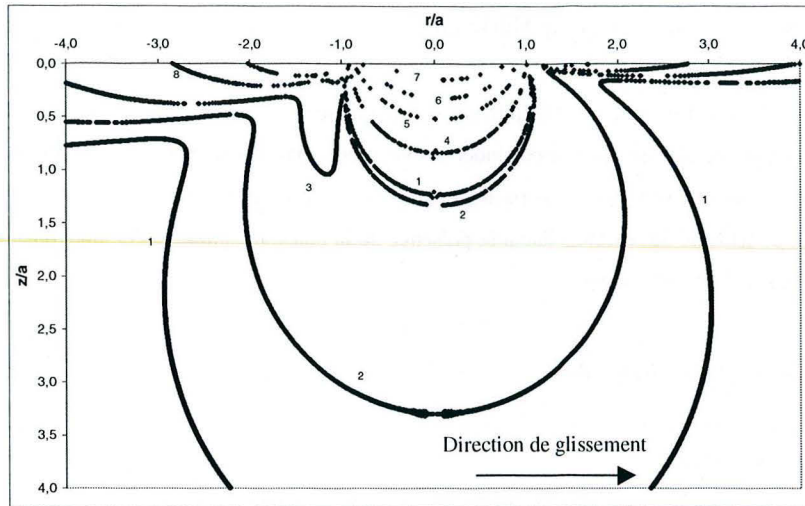


Figure III-10 : iso-contraignes  $\sigma_r/P_0$  dans le cas de l'indentation d'une plaque de verre par une bille en acier de rayon 8mm avec un coefficient de frottement de 0,1

$\sigma_r/P_0 = 0,005$  ; (2)  $\sigma_r/P_0 = 0,01$  ; (3)  $\sigma_r/P_0 = 0,02$  ; (4)  $\sigma_r/P_0 = -0,05$  ; (5)  $\sigma_r/P_0 = -0,2$  ;  
 (6)  $\sigma_r/P_0 = -0,4$  ; (7)  $\sigma_r/P_0 = -0,7$  ; (8)  $\sigma_r/P_0 = 0,05$

Par comparaison avec la figure III-8, le champ de contraintes n'est plus symétrique et les niveaux de contrainte en traction à l'extérieur de la zone de contact sont plus faibles que dans le cas où il n'y a pas de frottement ce qui diminue la ténacité. La valeur de la ténacité calculée avec le modèle de Franck & Lawn, en tenant compte du frottement est  $0,70 \text{ MPa.m}^{1/2}$  au lieu de  $1,29 \text{ MPa.m}^{1/2}$ . Cette forte sensibilité de la ténacité aux différences de propriétés entre indenteur et substrat intervient aussi dans le modèle de Warren au travers du paramètre  $P_{FN}^{\min}$  qui, comme nous l'avons déjà mentionné, dépend des propriétés élastiques et du coefficient de frottement. Dans le cas d'un indenteur en acier sur un substrat en verre, cette constante est plus élevée d'environ 40% par rapport au cas d'un indenteur en verre sur un substrat en verre [Warr95, Robe99].

#### Conclusions de la détermination de ténacité du Verre float.

Cette étude montre que la détermination de la ténacité du verre par des indentations de Hertz est relativement délicate. Le comportement du verre lors des indentations diffère fortement de celui attendu avec l'apparition de fissures au déchargement et des valeurs de charges critiques élevées. De nombreux paramètres sont susceptibles d'influencer les résultats : ceux liés aux échantillons comme la distribution de défauts sur la surface, les propriétés mécaniques et leur évolution sous charge, les contraintes résiduelles générées lors de l'élaboration et ceux liés à l'indenteur avec des effets de leur rayon, et des phénomènes liés aux propriétés mécaniques différentes de celles du substrat.

De notre analyse il ressort que le frottement introduit par la différence de propriétés élastiques entre indenteur et substrat semble être un facteur prépondérant pour expliquer les écarts entre la ténacité obtenue dans cette étude et celle couramment admise pour le verre mais la contribution d'autres effets ne peut pour autant pas être négligée.

## C – Application de l’indentation de Hertz aux cermets

Des procédures d’indentation similaires à celles utilisées sur les plaques de verre ont été employées pour les cermets alumine chrome. Le but des indentations n’était pas d’obtenir une valeur absolue de la ténacité des composites mais de produire des fissures avec une propagation lente et reproductible, d’estimer l’augmentation de ténacité des cermets due à la présence de la phase métallique et de pouvoir mieux comprendre les mécanismes de renfort sous-jacents.

### C-1 – Protocole expérimental

#### Préparation des échantillons

Les échantillons utilisés pour les indentations correspondent à différentes fractions volumiques de chrome comprises entre 9 et 36% ; ils sont élaborés selon la voie standard (avec un cycle de broyage pour les poudres de 4 heures) . Pour la fraction volumique de 36%, les deux modes d’élaboration ont été testés.

Après le frittage, les échantillons ont été usinés de façon à obtenir leurs deux faces parallèles. Les échantillons ont ensuite été polis mécaniquement (disques diamantés puis solution diamantée 6 $\mu$ m, 3 $\mu$ m et 1 $\mu$ m) tout en conservant leurs faces parallèles.

#### *Types d’indenteurs*

Différents types d’indenteurs, de natures variées, ont été employés sur les cermets alumine chrome : acier, alumine et carbure de tungstène-cobalt. Les indenteurs en acier sont de même nature (100C6) que ceux employés lors des indentations sur les plaques de verre. Les propriétés mécaniques de ces indenteurs sont résumées dans le tableau III-3

matériau	Acier	Alumine	Carbure de tungstène
Module d’Young (MPa)	203000	402000	628000
Coefficient de Poisson	0,3	0,25	0,212
Rayon (mm)	5 & 8	6,125	4

*Tableau III-3: propriétés mécaniques des indenteurs*

Tous ces indenteurs ont été collés sur les mors servant à la compression de façon à minimiser les frottements entre le mors et les billes.

### **Procédures d’indentation**

#### Cycle d’indentation

La figure III-11 présente un cycle d’indentation (charge en fonction du temps) réalisé sur un composite contenant 21% volumique de chrome. Il se décompose en trois phases :

- Un déplacement de la traverse avec une vitesse de la traverse fixée à 1 ou 2 microns par seconde pour atteindre la charge maximale.



- Le déplacement de la traverse est stoppé et sa position est maintenue pendant un temps variant entre 10 et 100 secondes. Pendant cette phase, la charge diminue légèrement, cette diminution est due à la relaxation de l'ensemble du dispositif expérimental et non à la propagation de fissure. Cette relaxation étant observable même lorsqu'aucune fissure n'est détectable.
- Une décharge de l'échantillon, celle-ci étant réalisée avec une vitesse élevée de la traverse.

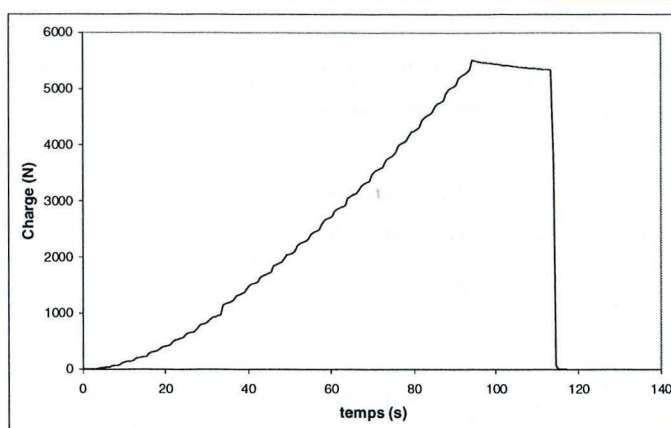


Figure III-11 : cycle de chargement / déchargement des cermets alumine chrome.

Les valeurs de la charge maximale sont déterminées à partir des observations de la surface des échantillons après indentation. La présence d'une fissure superficielle complète étant le premier signe de la présence d'une fissure en cône, la charge maximale est augmentée pour assurer la présence d'un cône dans la profondeur de l'échantillon, donc un cercle de fissure complet à la surface. Si plusieurs fissures superficielles apparaissent, la charge maximale est alors légèrement diminuée et le temps de maintien est augmenté pour assurer la propagation de la fissure en cône.

### Amélioration de l'observation des fissures en cône

Pour certains essais, de la résine a été introduite dans les fissures, pendant l'indentation ou juste après. La résine ayant un temps de polymérisation faible (de l'ordre d'une dizaine de minutes), celle ci permet d'une part de garder les fissures légèrement ouvertes et d'autre part de mieux les localiser lors des observations en microscopie optique ou électronique.

### Découpe des échantillons pour l'observation des fissures.

Contrairement au verre, les cermets alumine-chrome ne sont pas transparents, l'observation des fissures en cône ne peut donc se faire qu'après une découpe des échantillons. Ceux-ci sont donc découpés avec une meule diamantée, la vitesse de la meule est réglée pour être au minimum, pour éviter au maximum les chocs sur les échantillons qui conduisent à l'endommagement et à la propagation des fissures en cône. Une fois les échantillons découpés au plus près des centres d'indentation, ceux-ci sont polis mécaniquement avec des solutions diamantées (6, 3 et 1  $\mu\text{m}$ ) de façon à révéler les fissures en cône.

## C-2 Echelle macroscopique : applications des modèles de détermination de la ténacité aux cermets

Le comportement des cermets lors des fissurations peut être observé à différentes échelles :

- à l'échelle macroscopique où le cheminement de la fissure semble être régulier et peu influencé par la microstructure
- à l'échelle microscopique où les particules de chrome perturbent la trajectoire de la fissure et peuvent se trouver partiellement déchaussées de la matrice ou déformées.

Nous mettons ici l' accent sur l' échelle macroscopique. Les modèles utilisés pour la détermination de la ténacité des cermets sont les mêmes que ceux utilisés pour le verre. Pour les appliquer, les composites doivent être considérés macroscopiquement homogènes.

### Observations des fissures superficielles

La figure III-12 présente quelques unes des fissures superficielles observables sur des échantillons de cermets, pour différentes fractions volumiques de chrome. Des fissures superficielles obtenues avec des indenteurs en alumine et en carbure de tungstène, sont présentées. Il existe une détérioration de la surface avec des indenteurs en alumine en raison de la structure très poreuse des billes qui sont composées d' alumine frittée. Ce type d' indenteur a donc été rapidement abandonné.

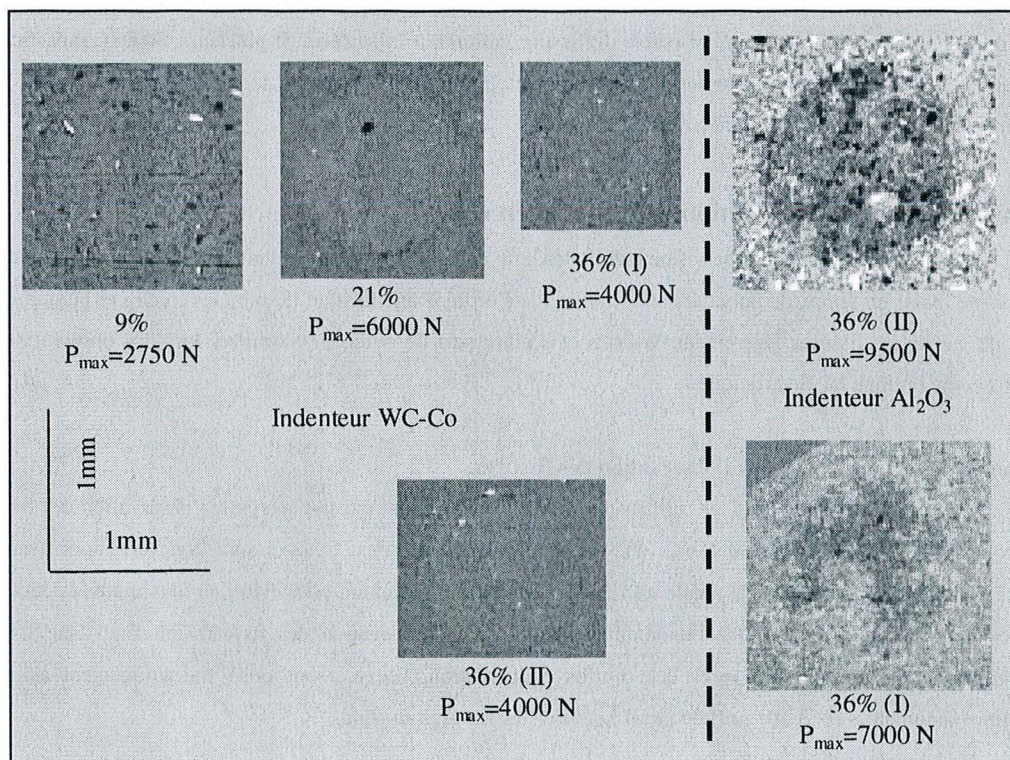


Figure III-12 : fissures superficielles observables après indentations pour les différents types de cermets.

Remarque : contrairement au verre, il existe peu de cas de multi-fissuration. Lorsque ceux-ci apparaissent, cela peut être mis en relation avec une valeur de charge d'indentation supérieure à la charge nécessaire pour l'obtention d'une fissure en cercle. En réduisant les valeurs de charge maximale, la multi-fissuration disparaît.

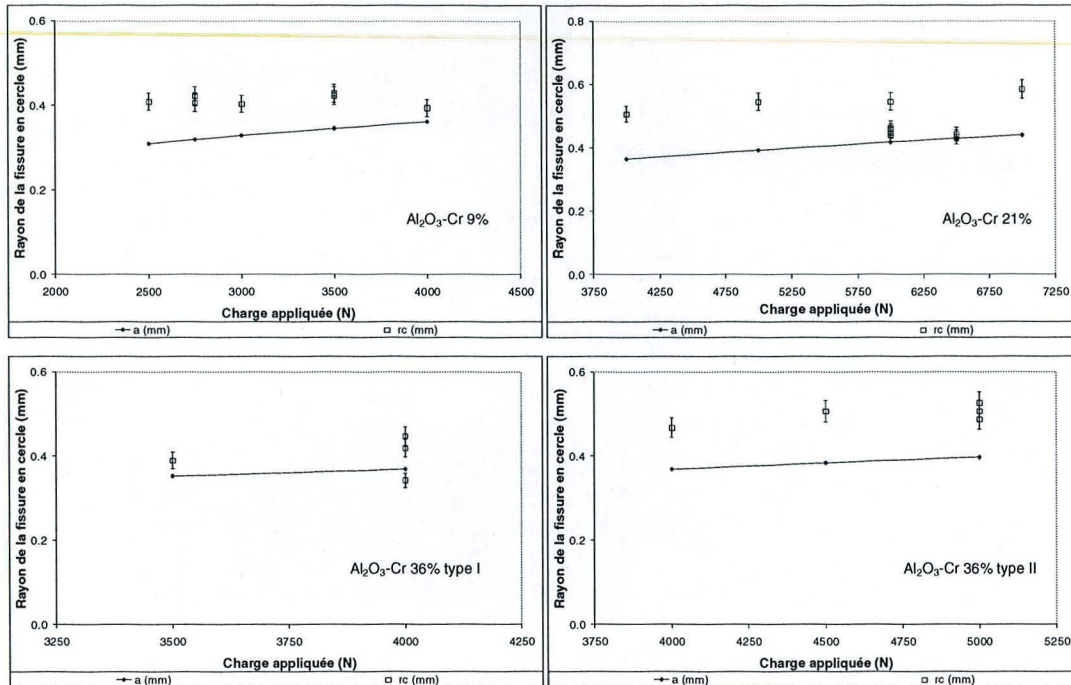


Figure III-13 : charge d'indentation maximale et rayon de contact et rayon du cercle de fissure dans les cermet alumine chrome

La figure III-13 présente la comparaison entre les rayons mesurés des fissures superficielles ( $r_c$ ) et les rayons de la zone de contact ( $a$ ) calculés à partir de la théorie de Hertz, pour les charges maximales d'indentation. Dans le cas général, le rayon de la fissure est supérieur au rayon de la zone de contact, ce phénomène est en accord avec les observations faites dans la littérature [Zeng92a, Warr78, Fran67] et conforte le fait que l'initiation de la fissure circulaire intervient à des valeurs de charge proches de la charge maximale appliquée et non lors de l'augmentation de la charge. Les mesures de ténacité des composites sont donc peu perturbées par l'initiation de fissures avant que la charge maximale ne soit atteinte.

#### Observation des fissures en cône

La figure III-14 présente des fissures en cône observées dans les différents types de cermet étudiés en microscopie optique.

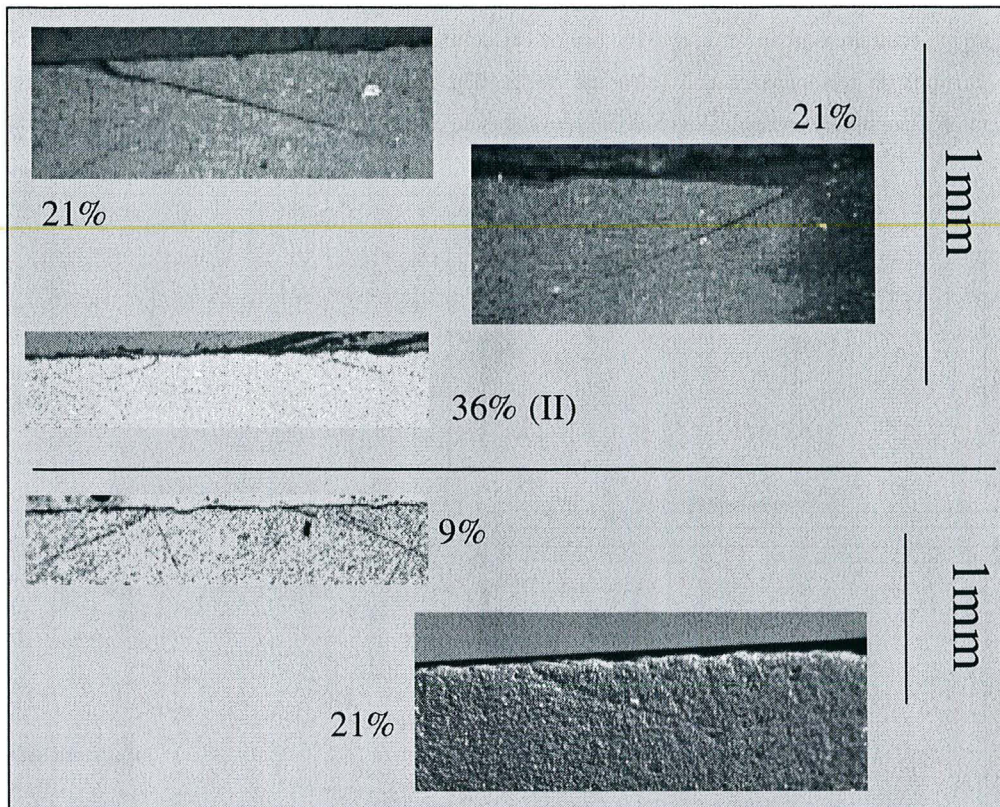


Figure III-14 : cône de hertz pour des cermets alumine chrome contenant différentes fractions volumiques de chrome (observations faites en microscopie optique)

Dans les cermets, la fissure en cône, du point de vue macroscopique ne semble pas être perturbée par la microstructure. Elle suit un cheminement proche de celui attendu, avec un départ perpendiculaire à la surface de l'échantillon, puis une déviation pour suivre une trajectoire globalement rectiligne. Le cône de fissure suit une trajectoire macroscopique stable et proche de celle prévisible par la théorie de Hertz, les modèles de détermination de la ténacité peuvent donc être appliqués

#### Modèle de Warren

Comme pour le verre, la charge d'indentation correspondant à l'apparition de la fissure superficielle ne peut être déterminée à partir des courbes charge-déplacement enregistrées lors des indentations. Cette charge est calculée pour les valeurs de position de départ des fissures en cône de  $r_c/a=1,1$  et  $1,4$ . Les valeurs extrêmes du rapport ont été déduites de la figure III-13.

Les indentations prises en compte pour la détermination de la ténacité sont celles réalisées avec un indenteur en WC-Co. Ces indenteurs ont été choisis car le WC-Co a un module d'Young supérieur à celui des cermets ou de l'alumine et le coefficient de Poisson est plus faible que celui des cermets, ce qui réduit les problèmes liés au frottement, par rapport à un indenteur en acier qui a un coefficient de Poisson plus élevé que les cermets. Pour prendre en compte les différences de propriétés mécaniques entre l'indenteur et les échantillons, la constante  $P_{FN}^{\min}$  a été calculée pour chaque échantillon de cermets en fonction de son coefficient

de Poisson par rapport à celui de l'indenteur. La constante  $P_{FN}^{\min}$  est calculée en faisant la moyenne des constantes données par Warren [Warr95] pour le coefficient de Poisson de l'indenteur et celui du cermet. Le tableau III-4 résume les valeurs choisies par rapport au cas de l'indentation d'une plaque de WC-Co par une bille en WC-Co.

Echantillon	Coefficient de Poisson	$P_{FN}^{\min}$
WC-Co	0,21	2069
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Cr 9%	0,25	2539
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Cr 21%	0,24	2457
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Cr 36% - tous types	0,24	2367

Tableau III-4: valeurs de la constante  $P_{FN}^{\min}$  pour les cermets alumine-chrome

**Ténacité des cermets par le modèle de Warren :**

L'application du modèle de Warren aux composites alumine chrome permet de déterminer les valeurs de ténacité, celles-ci sont résumées dans le tableau III-5.

$r_c$ (mm)	$P_{\min}$ (N) $r_c/a = 1.1$	$K_{Ic}$ (MPa.m <sup>1/2</sup> )	$P_{\min}$ (N) $r_c/a = 1.4$	$K_{Ic}$ (MPa.m <sup>1/2</sup> )
0,395	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Cr 9%		1890	6,9 ± 0,7
	3896	9,9 ± 1,0		
0,433	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Cr 21%		2436	7,8 ± 0,8
	5022	11,2 ± 1,1		
0,419	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Cr 36% type I		2134	7,3 ± 0,7
	4399	10,6 ± 1,1		
0,468	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Cr 36% type II		2978	8,7 ± 0,9
	6140	12,5 ± 1,2		

Tableau III-5: valeurs de ténacité des différents composites alumine chrome déterminées par le modèle de Warren

**Modèle de Franck & Lawn**

Pour utiliser ce modèle, il faut connaître la longueur de la fissure. Or celle-ci n'est accessible qu'après découpe des échantillons et cette longueur peut être supérieure à celle due à l'indentation seule, comme dans le cas du verre, à cause de la propagation de la fissure lors de la découpe et du polissage.

L'application du modèle nécessite également la connaissance du champ de contrainte en tout point du cheminement de la fissure. Pour le calcul du champ de contrainte, les données utilisées sont les caractéristiques macroscopiques des cermets, c'est-à-dire en moyennant les propriétés des deux phases. Le champ de contraintes généré lors de l'indentation dans les cermets est détaillé en annexe 8.

### Chapitre III : fissuration des composites alumine chrome

#### Longueurs des fissures en cône :

Le tableau III-6 regroupe des valeurs de longueurs des fissures en cônes pour les différents cermets testés, dans les cas où les fissures ont pu être clairement observées sur l'ensemble de leur trajectoire et que la découpe et le polissage ne semblent pas avoir fortement influencé la trajectoire de fissure (longueur anormalement grande, départ d' autres fissures sur la trajectoire).

Diverses tailles de fissures ont été observées sur des cermets contenant la même fraction volumique de chrome. Des directions de fissure différentes sont possibles dans les cermets à cause de l' interaction avec la microstructure.

Fraction volumique de chrome	Charge maximale appliquée (N)	Angle de la fissure	Longueur de la fissure (mm)	Nombre de tests
9%	2750	20 ± 2	0,69 ± 0,20	8
21%	3500	17 ± 4	0,38 ± 0,15	14
36% (I)	4000	17 ± 3	0,29 ± 0,10	7
36% (II)	5000	20 ± 4	0,15 ± 0,07	7

Tableau III-6: charge, angle des fissures et longueurs des cônes dans les différents types de cermets.

#### Angles des fissures en cône

Les valeurs d' angle données dans le tableau représentent des valeurs moyennes de l' ensemble des angles mesurés dans les composites, les écarts sont déterminés par rapport aux valeurs extrêmes de l' angle pour les différents échantillons. Notons que d' après la théorie de Hertz, l' angle de la trajectoire de la fissure est corrélé au coefficient de Poisson de l' échantillon. Pour l' ensemble des composites, les valeurs de coefficient de Poisson diminuent avec l' augmentation de la fraction volumique de chrome ce qui devrait conduire à une augmentation de l' angle entre le cône et la surface. D' après nos résultats expérimentaux, il ne ressort pas un sens de variation net de l' angle du cône pour les différents types de composites.

#### Ténacité des cermets alumine chrome par le modèle de Franck & Lawn

La détermination de la ténacité par ce modèle est sensible d' une part aux paramètres expérimentaux, comme cela a été montré dans l' étude sur le verre et d' autre part aux paramètres intrinsèques du matériau, comme ses propriétés mécaniques (module d' Young et coefficient de Poisson). Celles-ci ont été déterminées par ultrasons dans les travaux de J.L. Guichard [Guic98b] et sont rappelées dans le tableau III-7

Echantillon	Module d' Young (MPa)	Coefficient de Poisson
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	402000	0,25
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Cr 9%	389000	0,25
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Cr 21%	374000	0,24
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -Cr 36% (I et II)	356000	0,24

Tableau III-7 propriétés mécaniques des cermets considérés comme homogènes

La ténacité a été calculée en utilisant ces valeurs mesurées du module d' Young et du coefficient de Poisson (tableau III-8.)

Longueur de fissure (mm)	Charge d'indentation (N)	$K_{Ic}$ (MPa.m <sup>1/2</sup> )
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> – Cr 9%		
0,880	5000	6,1 ± 0,6
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> – Cr 21%		
0,480	3500	7,2 ± 0,7
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> – Cr 36% type I		
0,293	4000	12,7 ± 1,3
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> – Cr 36% type II		
0,150	5000	13,0 ± 1,3

Tableau III-8: valeurs de ténacité des composites alumine chrome déterminées par le modèle de Franck &amp; Lawn

Le tableau III-8 montre une augmentation de la ténacité avec l'augmentation de la fraction volumique de chrome liée à la diminution de la taille des fissures et l'augmentation de la charge d'indentation.

Discussion sur les valeurs de ténacité des cermets

Fraction volumique de chrome	$K_{Ic}$ (MPa.m <sup>1/2</sup> )	
	Modèle de Warren	Modèle de Franck & Lawn
9%	6,9 ± 0,7 << 9,9 ± 1,0	6,1 ± 0,6
21%	7,8 ± 0,8 << 11,2 ± 1,1	7,2 ± 0,7
36% (I)	7,3 ± 0,7 << 10,6 ± 1,1	12,7 ± 1,3
36% (II)	8,7 ± 0,9 << 12,5 ± 1,2	13,0 ± 1,3

Tableau III-9: ténacité des composites alumine chrome

Le tableau III-9 présente les valeurs de ténacité pour les différents composites déterminées à partir des deux modèles disponibles. Nous retrouvons bien le fait couramment admis que la présence de métal ductile au sein d'une matrice fragile conduit à une augmentation de la ténacité du matériau (la ténacité de l'alumine est de l'ordre de 4 MPa.m<sup>1/2</sup>). Si avec le modèle de Franck & Lawn, on montre que l'augmentation de la fraction volumique de chrome permet d'accroître nettement la ténacité, cet effet ressort moins nettement pour le modèle de Warren. Notons que le nombre d'essais réalisés sur chaque type de cermets est inférieur à 25, nombre d'essais recommandé par Warren [Warr95].

En conservant une fraction volumique constante, le mode de fabrication des composites peut également permettre d'augmenter les valeurs de ténacité.

L'augmentation de la ténacité avec la fraction volumique a également été observée pour des composites similaires alumine chrome ou pour des composites alumine fer par J.L. Guichard [Guic98b]. Les mesures de ténacité sur ces composites ayant été faites par indentations Vickers. Pour certains composites alumine fer, à cause de leur mode d'élaboration, l'augmentation de la fraction de fer au delà de 30% massique peut conduire à une diminution de la ténacité [Kono01]. D'autres métaux peuvent conduire à une augmentation de la ténacité de l'alumine, comme l'aluminium [Trav01] ou le molybdène [Sbai00].

Comme dans le cas du verre, il existe des incertitudes expérimentales et nous utilisons certaines hypothèses pour la détermination de la ténacité.

Du point de vue expérimental, lors des indentations de Hertz, peu de multifissurations ont été observées. Elles ne sont apparues que lorsque la charge d'indentation a été exagérément augmentée au-delà de la valeur de charge critique nécessaire à l'apparition de la fissure circulaire. Pour l'exploitation des résultats, les indentations présentant des multifissurations n'ont pas été prises en compte.

Une source d'erreur expérimentale est certainement la mesure de l'angle du cône qui intervient dans l'application du modèle de Franck & Lawn. Celui-ci est beaucoup plus dispersé dans le cas des cermets que dans le cas du verre conduisant à des variations sensibles de la ténacité d'un essai à l'autre. L'augmentation de l'angle du cône conduit à une diminution de la ténacité et inversement.

Concernant le problème du frottement, nous n'avons à ce jour pas d'indication pour le système WC-Co / cermet. Néanmoins on peut signaler que dans le modèle de Warren, où les différences de propriétés mécaniques entre les indenteurs et les échantillons sont prises en compte par la modification de la constante  $P_{FN}^{\min}$ , les valeurs de  $P_{FN}^{\min}$  sont beaucoup plus proches du cas sans frottement (WC-Co sur WC-Co) que dans le cas du verre, ce qui indique a priori un frottement plus faible. D'autre part, lors de l'indentation des cermets par une bille en WC-Co, comme le coefficient de Poisson de l'indenteur est plus faible que le coefficient de Poisson des cermets, le frottement a pour effet de minimiser la charge critique [John73], ce qui va dans le sens de diminuer la ténacité. Dans ce cas, on obtient un effet inverse à celui observé dans le cas de l'indentation du verre par une bille en acier. Dans le cas des cermets, un coefficient de frottement de 0,05 est suffisant pour faire diminuer la ténacité calculée par le modèle de Franck & Lawn de 50%. Ne connaissant pas le coefficient de frottement pour cette configuration d'indentation, le frottement n'a pas été pris en compte pour l'application du modèle de Franck & Lawn.

L'analyse du frottement est délicate car on a deux phénomènes, l'un dû aux différences de coefficients de Poisson qui tend à sous-estimer la charge critique et l'autre dû au frottement entre l'indenteur et l'échantillon qui a tendance à surestimer cette charge. Ces deux phénomènes ont une amplitude inconnue dans le cas des cermets, mais on peut penser que la charge critique de fissuration est sous-estimée, donc que la ténacité des cermets est probablement supérieure à celle présentée dans le tableau III-9.

Il nous a aussi paru intéressant de quantifier l'influence des propriétés mécaniques des cermets sur les valeurs de ténacité obtenues. Pour ce faire, nous avons calculé la ténacité en considérant que les propriétés mécaniques macroscopiques des cermets sont celles de l'alumine pure. De plus, les fissures se propageant principalement dans la matrice, du point de vue de la fissure, les propriétés mécaniques sont plus proches de celles de l'alumine que de celles des cermets. Les modules d'Young et les coefficients de Poisson des cermets étant proches de ceux de l'alumine (voir la tableau III-7), les valeurs de ténacité sont peu affectées pour les composites ayant de faibles fractions volumiques (3% de variation de  $K_{Ic}$  pour une fraction de 9%), l'effet est plus marqué lorsque la fraction volumique augmente (9% pour les composites 36% (I) et jusqu'à 15% pour les composites 36% (II)).

Comme dans le cas du verre, il existe une légère influence du mode II de fissuration, inférieure à 5%, qui s'ajoute au mode I.

Compte tenu de ces éléments, les valeurs de ténacité que nous avons obtenues paraissent réalistes.



### C-3 Analyse des fissures en cône : du macroscopique au microscopique

Nous proposerons d'abord une analyse macroscopique de l'angle du cône puis nous examinerons le rôle de la microstructure.

#### angle du cône

Le premier paramètre à pouvoir être analysé sur les fissures en cône dans les composites est l'angle de la fissure par rapport à la surface de l'échantillon. Comme nous l'avons vu précédemment, dans l'ensemble des composites analysés, cet angle se situe en moyenne autour de  $20^\circ$  avec des valeurs extrêmes allant de  $15^\circ$  à  $25^\circ$ .

Il nous a paru intéressant de situer ces valeurs expérimentales d'angle par rapport à celui que l'on peut calculer à partir du champ de contrainte de Hertz. Dans la littérature, deux approches ont été utilisées pour calculer l'angle du cône. En particulier Lawn et al. [Lawn74] déterminent l'angle du cône à partir du champ de contrainte calculé par la théorie de Hertz, en utilisant comme critère, la contrainte principale maximale  $\sigma_1$  et Kocer [Koce98] calcule la trajectoire de fissure à l'aide d'un critère de taux de restitution d'énergie maximal, en tenant compte d'un champ de contrainte évolutif en fonction de l'avancement de la fissure. Pour notre part, nous avons simulé une trajectoire théorique à partir du champ de contrainte de Hertz préexistant et d'un critère de taux de restitution d'énergie maximale, comme explicité en annexe 9. Pour le calcul, nous avons utilisé les propriétés macroscopiques (module d'Young, coefficient de Poisson) des cermets (tableau III-7)

Les figures III-15 présentent les trajectoires simulées et les trajectoires réelles de quelques cônes observés dans les cermets.

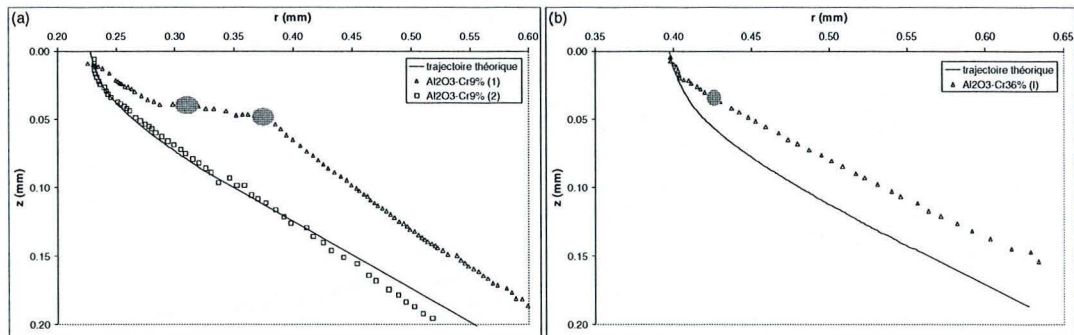


Figure III-15 : comparaison entre la trajectoire réelle des fissures et la trajectoire simulée  
fraction volumique de chrome : (a) 9% (b) 36% (Les positions de départ des fissures (en r) sont arbitraires)

Les ellipses représentent des particules de chrome de grandes tailles

Du point de vue expérimental, nous avons essentiellement deux types de situations :

soit des particules de grandes tailles sont présentes sur la trajectoire et leur orientation est telle que la fissure ne peut pas les contourner. La trajectoire est alors plus ou moins fortement perturbée, comme l'illustre la figure III-15 pour les fissures 9% (1) et 36%, puis redevient ensuite sensiblement rectiligne.

Soit des particules de grandes tailles sont présentes, mais elles peuvent être facilement contournées, comme pour la fissure 9% (2) et la trajectoire reste sensiblement rectiligne.

Nous reviendrons sur l'aspect orientation ultérieurement.

Du point de vue de la simulation, de manière générale, nous nous attendons à des écarts par rapport à l'expérience. D'une part, parce que même pour un matériau homogène, le type de modèle utilisé conduit à une surestimation de l'angle de la fissure comme cela a déjà été explicité dans la littérature [Lawn74, Koce98] et comme nous le discutons en annexe 9. D'autre part, le modèle ne prend pas en compte la présence de particules. Néanmoins, il est intéressant de noter que la trajectoire simulée est sensiblement parallèle à la trajectoire réelle hormis localement dans les zones où cette dernière est perturbée par les particules (Nous avons même obtenu une bonne coïncidence entre la trajectoire simulée et expérimentale dans le cas de la trajectoire 9% (2)).

Cet effet est dû au niveau de contraintes imposé par l'indentation. En effet, si on calcule le niveau de la contrainte principale  $\sigma_1$  le long de la trajectoire réelle et de la trajectoire simulée, les écarts importants se situent au niveau des grosses particules qui sont responsables de la déviation de la fissure et lorsque l'influence des particules est moindre, les niveaux de  $\sigma_1$  se rapprochent pour les deux trajectoires. Ainsi pour la trajectoire 9% (2), les écarts de contraintes sont inférieurs à 40 MPa, alors que pour la trajectoire 9% (1), dans la zone perturbée par les grosses particules, l'écart peut aller jusqu'à 350 MPa et cet écart se réduit à moins de 50 MPa dans la zone linéaire, comme l'illustre la figure III-16. Ces écarts représentent jusqu'à 50% du niveau de la contrainte  $\sigma_1$  sur la fissure dans la zone proche des particules et 20% dans la zone linéaire. On retrouve le même effet pour le composite à 36%, avec toutefois un écart un peu plus important (400 MPa autour de la grosse particule et 100 MPa dans la partie linéaire (soit un écart de 20% par rapport au niveau de  $\sigma_1$ ) du fait du niveau plus élevé du champ de contrainte de Hertz (la charge d'indentation étant de 4000N pour le composite à 36% et 2500N pour le composite à 9%).

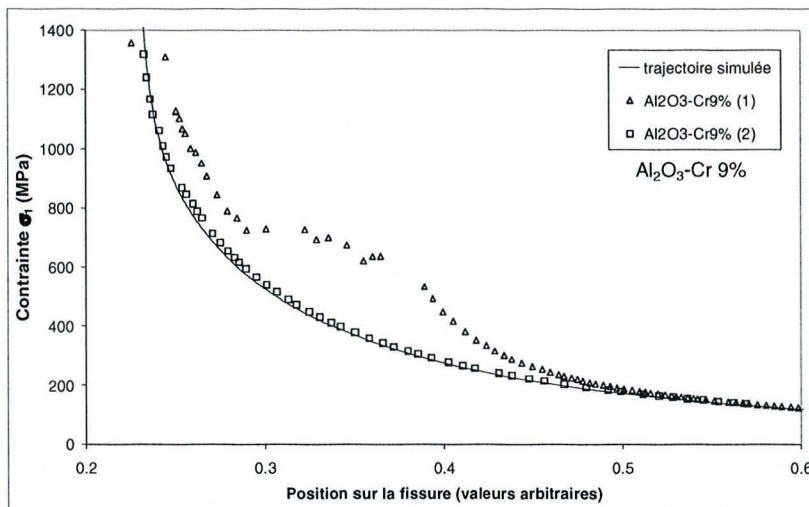


Figure III-16 : évolution de la contrainte  $\sigma_1$  le long d'une fissure

Il est à noter aussi que pour la trajectoire simulée, on considère la trace du cône de fissure selon des diamètres de la fissure superficielle, mais que la fissure observée peut ne pas être exactement localisée selon un diamètre, à cause des diverses opérations de découpe et polissage.

D'après ces résultats, on peut penser que les fissures en cônes dans les cermets se propagent selon un critère de taux de restitution d'énergie maximale, tant qu'aucune particule ne vient perturber la propagation. Il

serait bien sûr nécessaire de le confirmer par des simulations décrivant effectivement la propagation de la fissure. Si une particule est présente sur la trajectoire, la fissure peut être déviée plus ou moins fortement à cause de l'énergie dépensée pour la contourner ou la déformer et de la modification locale du champ de contraintes, mais le plus souvent elle reprend ensuite une trajectoire dictée par le champ de contrainte macroscopique.

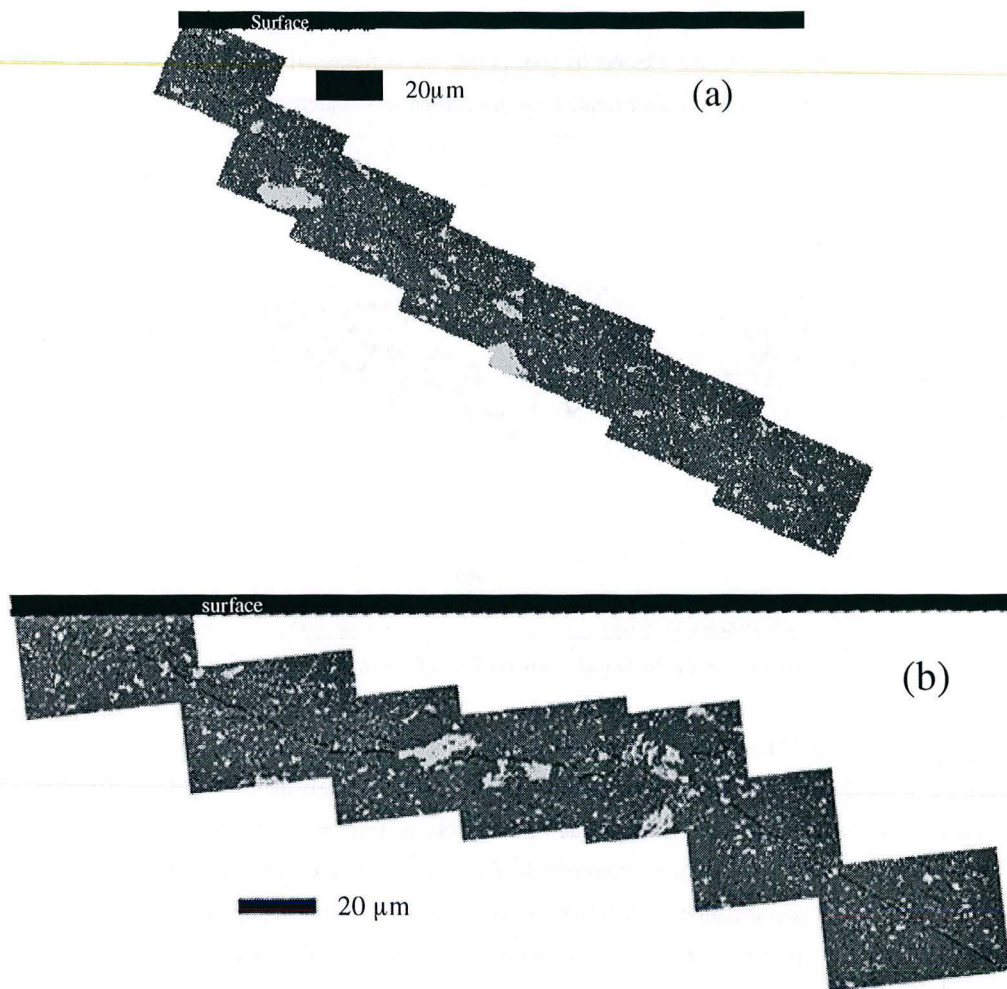


Figure III-17 : suivi de la trajectoire d'une fissure sur un composite contenant 9% de chrome  
 (a) trajectoire peu perturbée par les particules (b) trajectoire perturbée par les particules

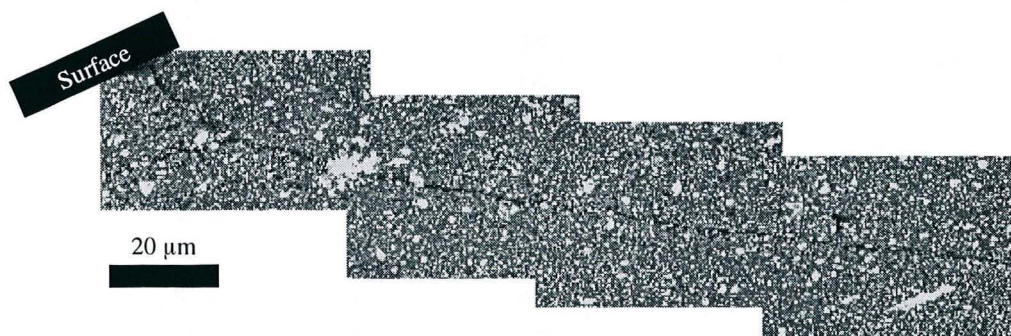


Figure III-18 : suivi de la trajectoire d'une fissure pour un composite contenant 36% de chrome

Rôle de la microstructure

Du fait de la microstructure, et plus particulièrement de la présence de grosses particules métalliques, des fluctuations locales de trajectoire apparaissent. Dans un premier temps, nous avons cherché à quantifier expérimentalement ces fluctuations, en révélant les écarts entre la trajectoire réelle de la fissure et une trajectoire moyenne définie le long de la fissure. Ces écarts sont portés sur la figure III-19 en fonction de la longueur de fissure normalisée par rapport à la longueur totale pour des composites contenant 21 et 36% (I) de chrome.

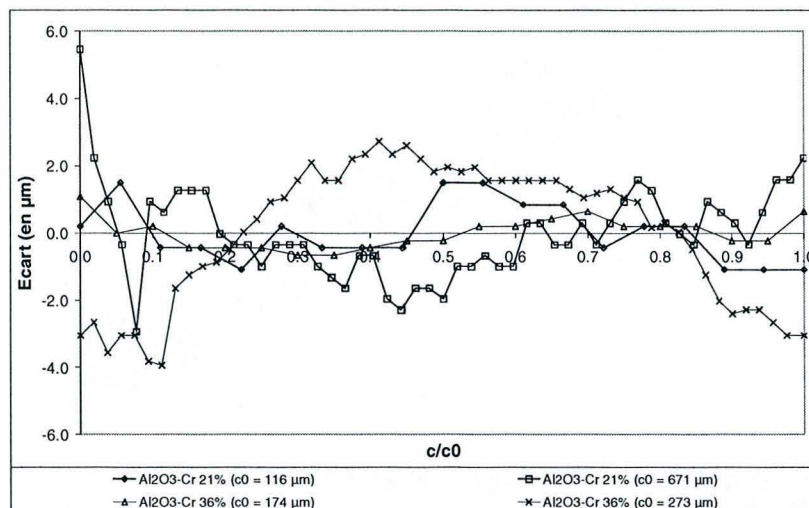


Figure III-19 : écart entre la trajectoire réelle des fissures et la trajectoire moyenne

Les résultats de la figure III-19 montrent qu'il n'y a pas corrélation directe entre la fraction volumique de chrome et les écarts notés sur les trajectoires de fissure. A partir des écarts mesurés (positifs et négatifs), nous avons estimé une "largeur de bande" pour chaque fissure. Nous n'avons pas trouvé non plus de relation directe entre les largeurs de bande et la fraction volumique de chrome. Néanmoins, nous avons noté, pour une fraction volumique donnée, une augmentation de la largeur de la bande avec l'augmentation de la longueur des fissures (tableau II-10). Cet effet peut s'expliquer par les niveaux relatifs du champ de contrainte dû à l'indentation et du champ de contrainte résiduel, le premier étant plus faible en bout de fissure, alors que le second devient prépondérant.

fraction volumique de chrome	longueur de fissure (µm)	Largeur de bande (µm)
9%	80	4.00
	288	6.40
	354	8.57
	463	8.18
21%	174	1.74
	243	3.48
	558	12.56
36% (I)	116	2.58
	671	8.39

Tableau III-10: amplitude de variation des trajectoires de fissure.

Cette analyse des écarts et des largeurs de bande repose sur une analyse globale de la fissure. Par analyse d'image, il est possible d'analyser plus localement les variations du chemin de fissuration. A partir des images faites en M.E.B., il est possible de déterminer le chemin réel de fissuration et de le comparer au chemin optimal, c'est à dire rectiligne. La figure III-20 présente une image M.E.B. et les chemins de fissure réelle (en jaune) et optimale (en rouge)

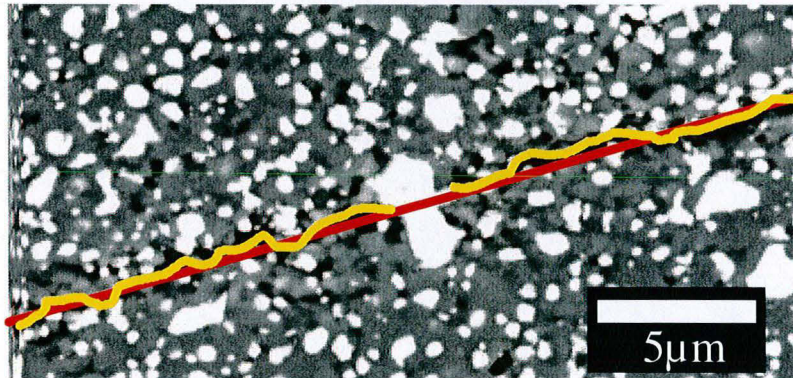


Figure III-20 : mesure la tortuosité de la fissure

Pour connaître la tortuosité de la fissure, il suffit de faire le rapport entre la longueur du chemin réel et la longueur du chemin direct. Pour nos différents échantillons et sur l'ensemble des fissures analysées, la tortuosité reste proche de 1,3 quelle que soit la position le long de la fissure. Etant donné que le niveau de contrainte appliquée (champ de Hertz) décroît le long de la trajectoire de la fissure (voir l'annexe 8), nous nous attendons à des variations de tortuosité le long de cette trajectoire. En effet, au début de la fissure, le niveau de contrainte généré par l'indenteur étant élevé, la fissure se propage sans être perturbée par la microstructure. Mais en fin de la fissure, le niveau de contraintes appliqué étant beaucoup plus faible, les contraintes résiduelles pourraient influencer plus la trajectoire des fissures et entraîner des variations de tortuosité. Dans les différents types de composites, nous n'avons pas pu mettre en évidence ce phénomène de façon certaine, peut être à cause d'une statistique insuffisante.

#### C-4 Echelle microscopique : interaction fissure - particules

Si macroscopiquement, la trajectoire globale de la fissure ne semble pas être influencée par la présence de la phase métallique, l'effet de celle-ci sur l'augmentation des propriétés mécaniques a pu être montré par les deux modèles disponibles pour la détermination de la ténacité. De plus, si on observe le chemin de fissuration à l'échelle de la microstructure, l'interaction fissure – particule devient plus évidente. Les figures III-21 et III-22 montrent des exemples de chemins de fissures de Hertz pour les différents cermet. Plusieurs cas de propagation sont possibles : soit la fissure évite les particules et se propage dans la matrice, soit la fissure provoque la décohésion à l'interface et contourne les particules, soit la fissure déforme la particule et continue sa propagation au-delà de la particule.

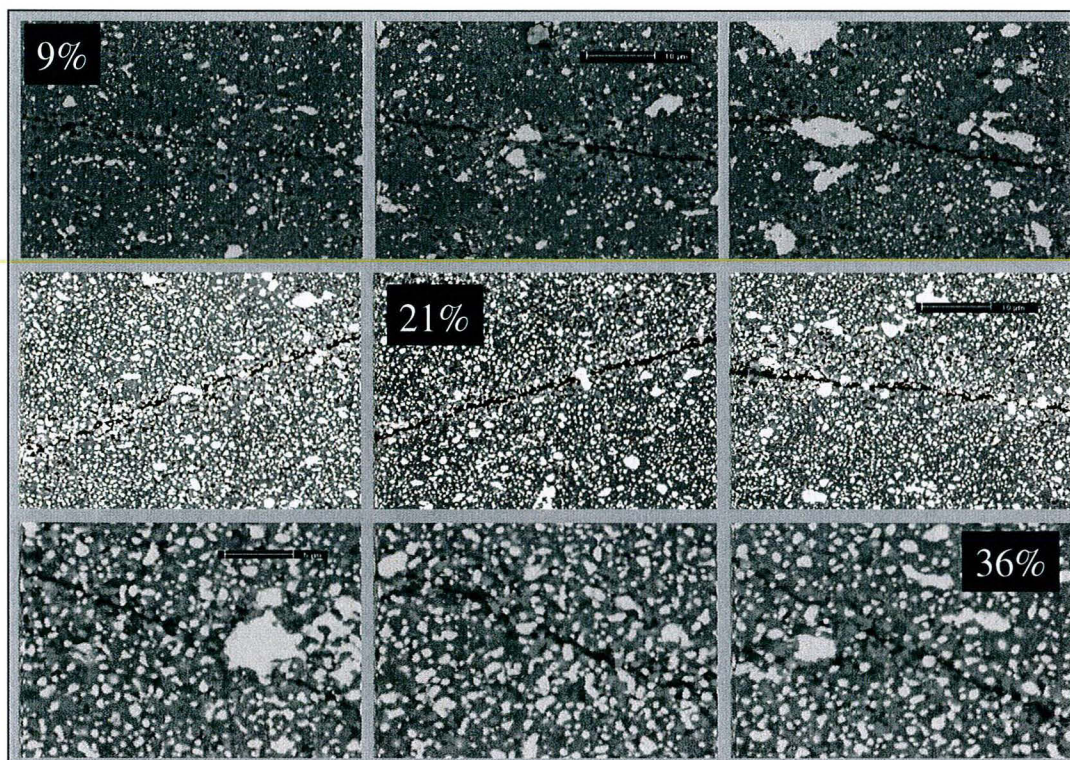


Figure III-21 : influence de la phase métallique sur la propagation des fissures coniques de Hertz.

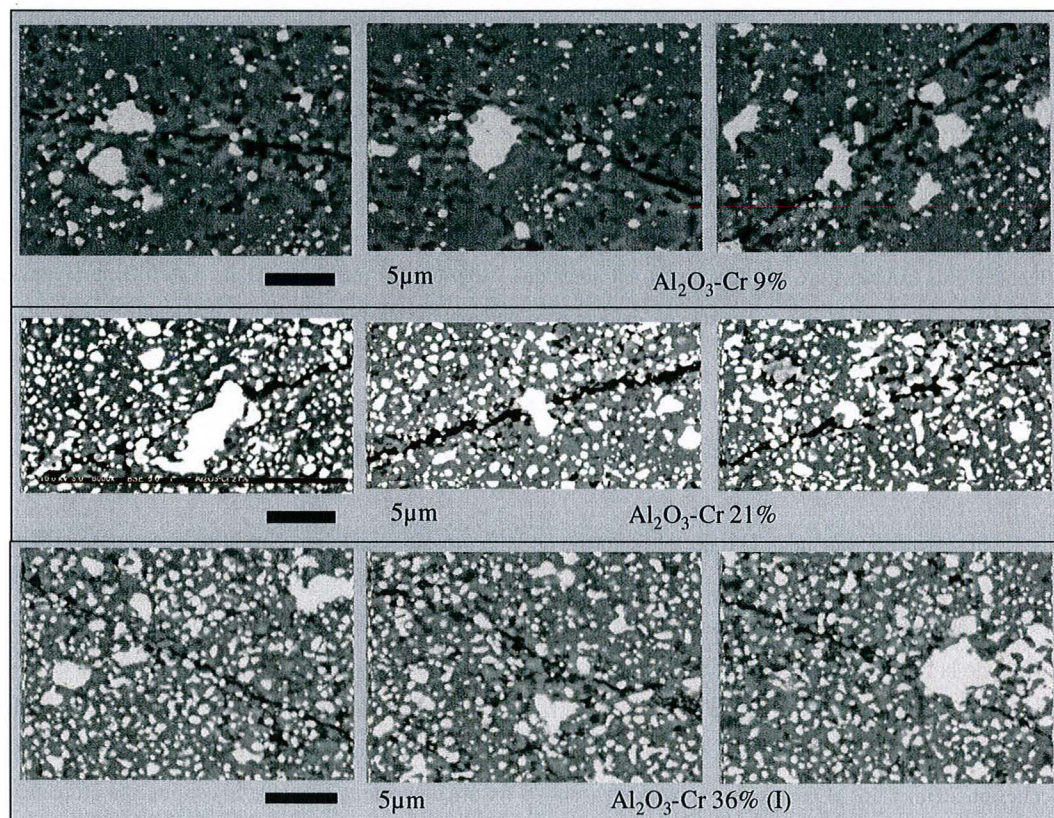


Figure III-22 : influence de la phase métallique sur la propagation des fissures coniques de Hertz.

Par analyse d'images, il est possible de distinguer deux types de particules localisées sur la fissure : celles qui sont simplement contournées par la fissure et qui donnent lieu à une décohésion de l'interface et celles qui sont atteintes (et probablement déformées plastiquement par la propagation de la fissure). Il est alors possible de mesurer la taille des particules appartenant aux deux catégories.

A titre de comparaison, les répartitions en taille des particules dans la zone proche de la fissure, c'est-à-dire à l'intérieur de la bande autour de la trajectoire de la fissure définie précédemment, et sur l'ensemble du composite ont été reportées sur la figure III-23. Ces graphiques montrent que les plus grosses particules ont tendance à être déformées alors que celles de plus faibles tailles sont contournées.

Le composite contenant 9% de chrome n'est pas présenté en raison de la faible statistique, le nombre de particules dans les deux catégories étant peu élevé. Par exemple, dans cet échantillon, il y a décohésion pour 22 particules et 16 particules déformées sont détectables sur l'ensemble d'une fissure, alors que dans les autres échantillons, le nombre de particules pour lesquelles il y a décohésion est compris entre 200 et 360, et le nombre de particules déformées est compris entre 56 et 73.

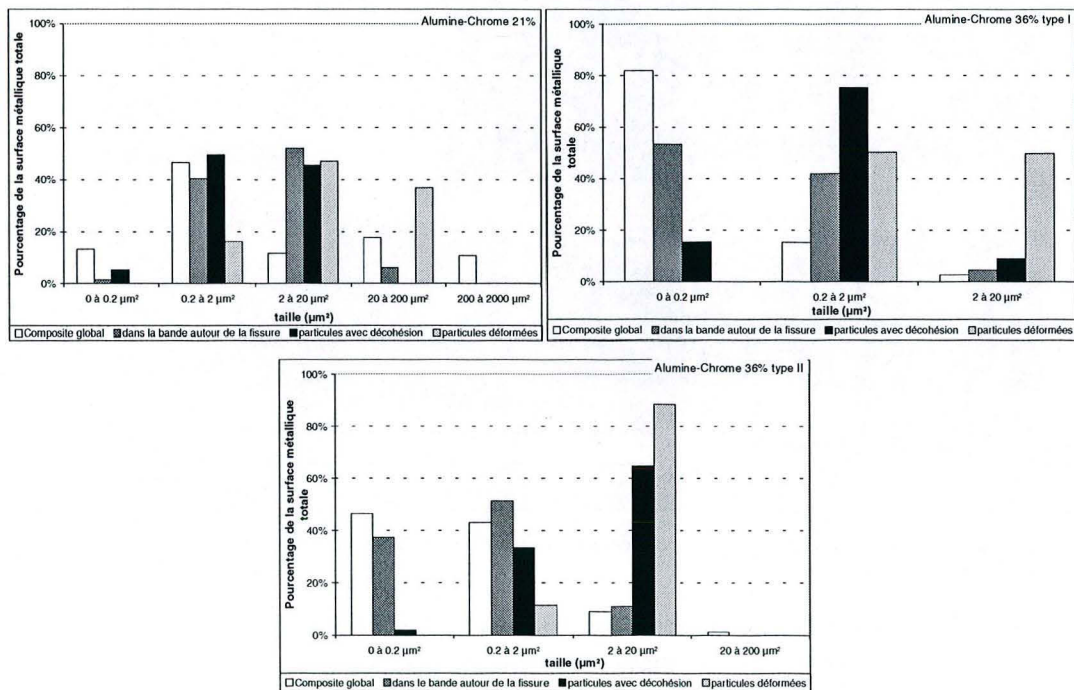


Figure III-23 : répartition par classe de taille des particules de chrome contournées et déformées par la fissure.

D'après l'observation des fissures, en plus d'une influence de la taille des particules, il semble y avoir une influence de l'éclatement des particules dans la direction de la fissure et dans la direction perpendiculaire à la fissure. Malheureusement, l'utilisation de différents critères comme l'éclatement des particules (rapport entre la plus petite projection et la plus grande de chacune des particules), le rapport entre la longueur de la particule parallèle à la fissure et perpendiculaire à la fissure n'ont pas permis de dégager de paramètre pertinent permettant de classer les particules contournées et déformées. La distinction entre les particules contournées et déformées reste qualitative.

La figure III-24 présente des particules de chrome respectivement contournées et déformées par des fissures coniques générées par des indentations de Hertz sur les différents types de composites

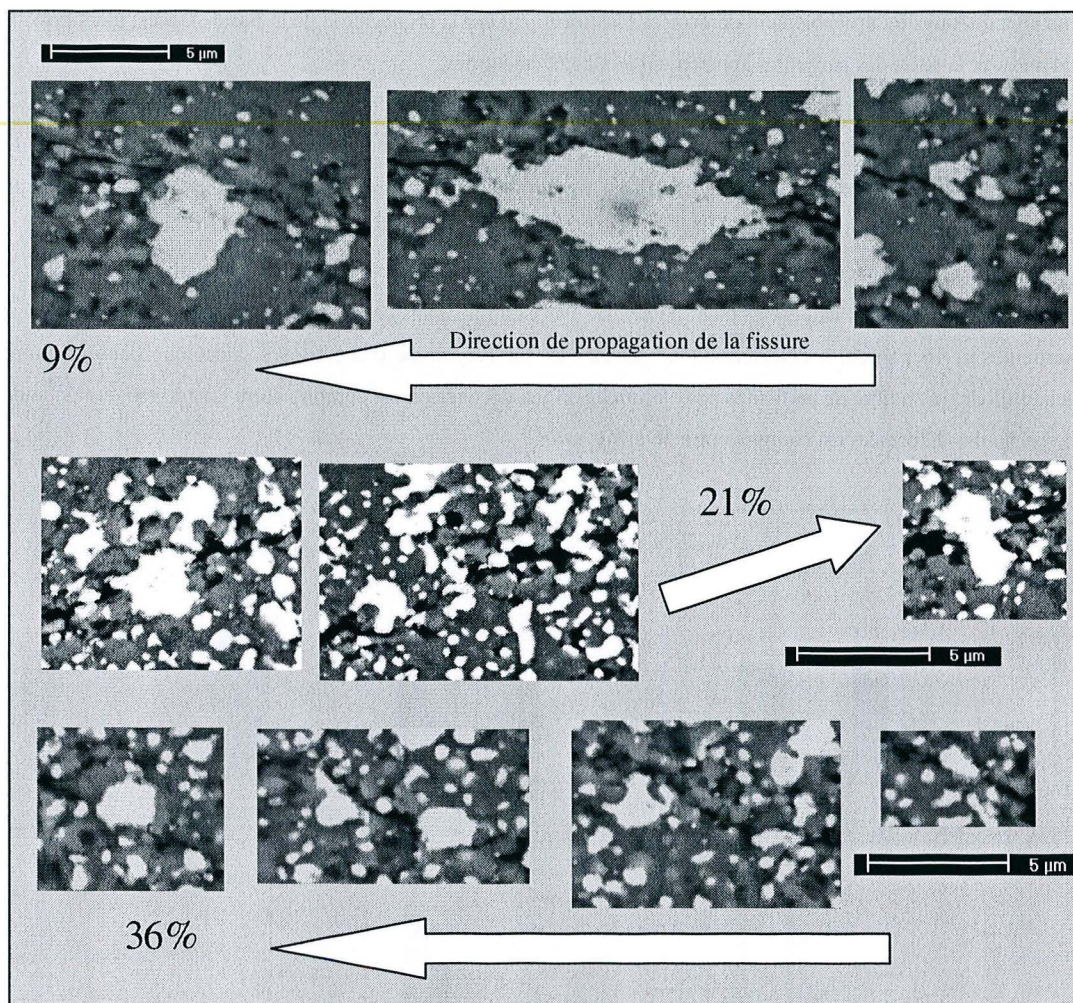


Figure III-24 : sélection de particules rencontrées par la fissure conique dans des composites  $Al_2O_3$ -Cr 9, 21 et 36%

A partir des observations faites sur les fissures coniques (des observations similaires peuvent être faites sur les fissures superficielles), il apparaît différentes configurations imposant à la fissure un mode de propagation vis à vis des particules. Premièrement il existe un effet dû à la taille des particules, pour les plus petites, il y a décohésion à l'interface et les plus grosses ont plutôt tendance à être déformées par la fissure, voir la figure III-25. Ensuite il existe un effet de forme, ou plutôt d'orientation de la particule vis à vis de la fissure où le paramètre important est l'élongation de la fissure.



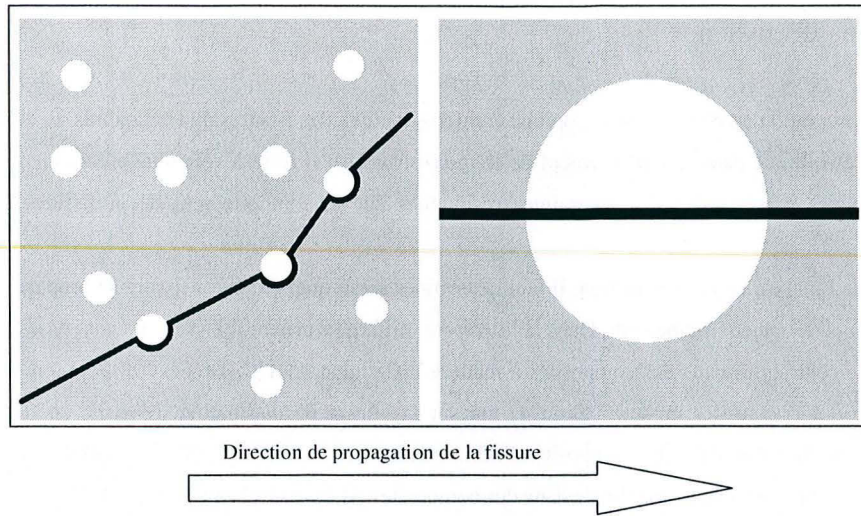


Figure III-25 : schématisation de l'effet de la taille des particules sur la propagation de fissures.

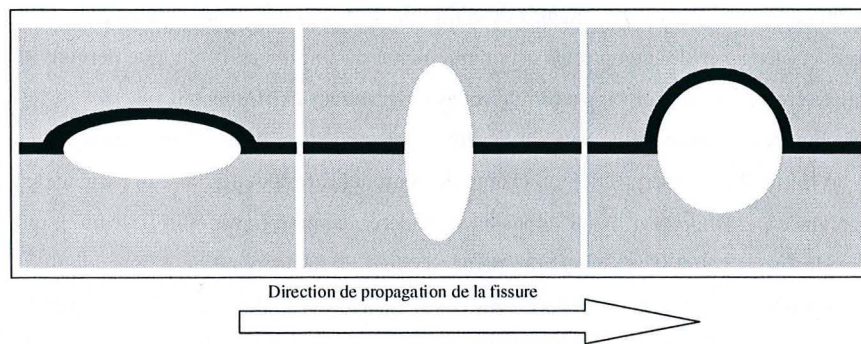


Figure III-26 : différents cas simples d'interactions fissure-particule dans les cermets alumine chrome

Ainsi, dans l'analyse de la relation entre la microstructure, l'état mécanique et la propagation de fissure, nous nous limiterons donc aux configurations de la figure III-26 qui nous paraissent représentatives de notre matériau. Les deux cas extrêmes de configuration de particules vis-à-vis de la fissure sont les ellipsoïdes où la fissure arrive soit parallèlement soit perpendiculairement au grand axe et le cas intermédiaire avec la particule sphérique où il n'existe pas de direction particulière.

## D- Analyse - discussion

L'observation au niveau macroscopique et microscopique des fissures de Hertz a mis en évidence le rôle de la phase métallique dans le renforcement de la microstructure. Il reste à voir plus précisément le rôle de la morphologie des particules et des contraintes résiduelles sur le comportement de la fissure vis à vis des particules.

Pour l'analyse de la propagation, il faut déterminer selon quel critère la fissure se propage sous l'action de la traction et de son environnement. Dans la littérature, différents critères existent. Ils sont basés sur le facteur d'intensité de contraintes dans des composites à matrice métallique Al-TiC [Broeck96],  $ZrO_2(6mol\%Y_2O_3)/SiC$  [Song98] ou des composites modèles [Bine94], ou sur la vitesse de dissipation d'énergie en front de fissure [He89, Legu00, Buyu98] dans des composites WC/Co [Hon198], SiC/SiC et C/SiC [Rosp00] ou sur une valeur seuil de la contrainte principale maximale dans des composites  $Al_2O_3-SiC$  [Kim96], Al-SiC [Wulf96],  $Al_2O_3-SiC$  [Nand99], Al-epoxy [Al-os97], carbone-epoxy [Nath00], Al-SiC [Hadd99] ou encore dans l'alumine pure en prenant en compte les contraintes dues aux différences d'orientations des grains [Fang02]. D'autres modèles existent, ils sont basés sur l'analyse des champs de contrainte dans des matériaux biphasés [Gene92] L'utilisation de ces différents critères sur des composites céramique-métal ou céramique-céramique permet, selon les cas de simuler la trajectoire des fissures en bon accord avec les observations expérimentales.

Pour comprendre l'interaction entre la fissure et les particules, il faut tenir compte du fait que lors de l'indentation de Hertz, il y a superposition du champ de contraintes résiduelles lié à la particule et du champ de contrainte appliquée par l'indenteur. Nous allons ici considérer, comme Lawn et al [Lawn67], que la fissure se propage en mode I sous l'effet d'une contrainte perpendiculaire à la direction de propagation de la fissure. En l'absence de contraintes résiduelles, cette contrainte a été calculée précédemment pour nos cermets, elle est en traction dans la zone superficielle où est initiée la fissure et les niveaux sont de l'ordre de 1000 MPa (voir annexe 8). D'autre part, le long de la trajectoire de la fissure, cette contrainte diminue fortement comme nous l'avons déjà évoqué (voir C-3 et annexe 8), et ceci compte non tenu de la relaxation.

Par suite, nous avons mené des simulations micromécaniques par éléments finis en sollicitant les configurations idéales (particule et matrice) proposées sur la figure III-26 par une contrainte uniaxiale de traction s'échelonnant entre 0 et 1000 MPa pour analyser les évolutions des champs locaux. La contrainte appliquée nulle correspond au champ de contraintes résiduelles telles que nous les avons calculées dans le chapitre II. Comme nous nous intéressons ici à l'interaction entre la fissure et une particule, nous considérons une fraction volumique faible, soit 1% dans le cas de la particule sphérique et 3,5% dans le cas d'une particule ellipsoïdale. Nous ne prenons pas en compte les interactions entre particules.

### D-1 Déviation des fissures / Décohésion des particules

Dans les cermets alumine chrome, le contournement et la décohésion de l'interface intervient souvent pour des ellipsoïdes dont le grand axe est selon la direction de propagation. Pour analyser cette configuration, nous avons simulé une particule ellipsoïdale dans la matrice soumise à une contrainte uniaxiale de traction perpendiculaire au grand axe, en supposant une fissure se propageant dans la direction du grand axe (matérialisée en noir sur la figure III-27. Nous considérons la contrainte  $\sigma_{11}$  (dans la direction de la contrainte appliquée) qui

est ici responsable de la propagation de la fissure (figure III-27) d'après nos hypothèses (les résultats complets pour toutes les composantes de contraintes se trouvent en annexe 10)

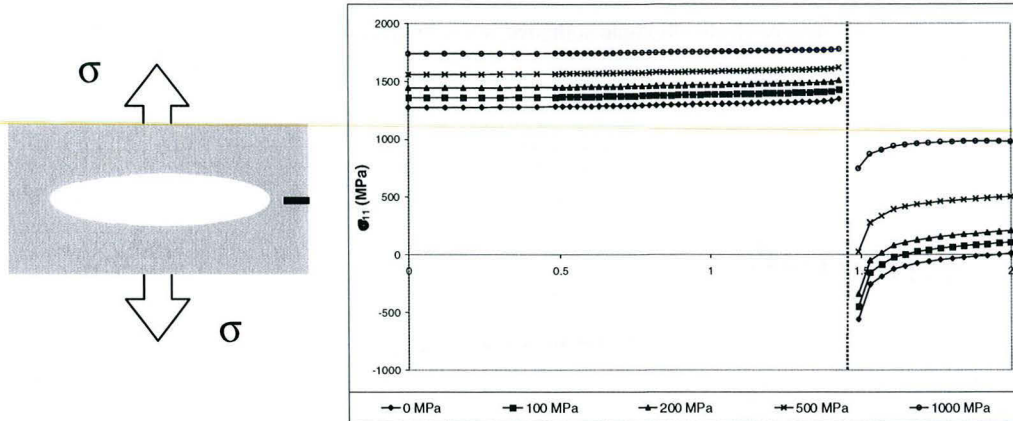


Figure III-27 : profil de la contrainte  $\sigma_{11}$  le long du grand axe de l'ellipsoïde

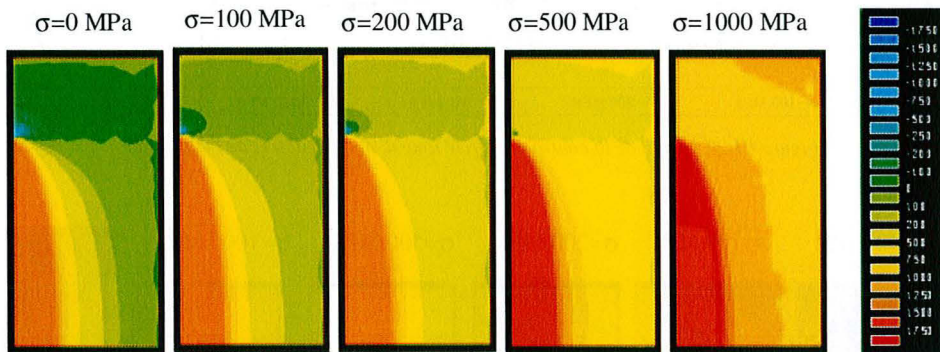


Figure III-28 : isovaleurs de la contrainte  $\sigma_{11}$  (valeurs en MPa)

Dans la matrice, en l'absence de charge, la contrainte  $\sigma_{11}$  est en compression, avec une intensité plus forte près de l'interface. Lorsque la charge augmente, loin de la particule, la matrice est mise en traction, permettant la propagation de la fissure. Mais la zone près de l'interface reste en compression ce qui provoque la déviation de la fissure. Cette déviation peut entraîner la décohésion à l'interface car  $\sigma_{11}$  est en traction le long de l'interface, comme le montre les isovaleurs de la figure III-28. Ce n'est qu'à forte charge (supérieure à 500MPa) que l'ensemble de la matrice est en traction. Mais à cette charge, la fissure peut être déjà fortement déviée et ne peut que contourner la particule.

On peut noter qu'en l'absence de contraintes résiduelles, l'ensemble de la matrice serait en traction dès le début du chargement et la particule aurait tendance à attirer la fissure.

Pour cette configuration le niveau de contrainte dans la particule n'intervient pas, la fissure n'atteignant pas la phase métallique.

### D-2 Déformation des particules

Lorsque la particule a une forme allongée et qu'elle est orientée perpendiculairement à la direction de propagation de la fissure, les observations ont montré une déformation de la particule plutôt qu'une déviation. Nous considérons ici une particule elliptique sollicitée selon son grand axe et nous analysons la contrainte  $\sigma_{33}$  (figure III-29 et figure III-30)

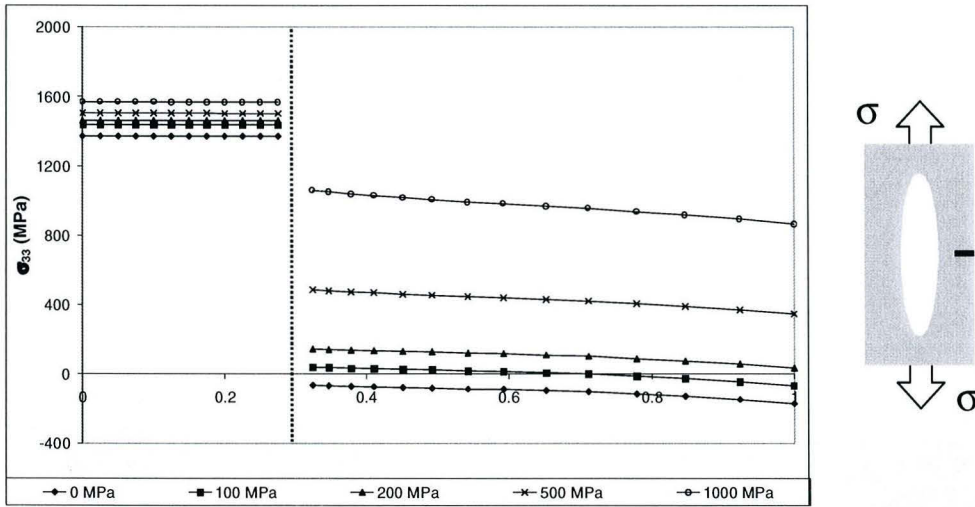


Figure III-29 : profil de la contrainte  $\sigma_{33}$  le long d'un du petit axe de l'ellipsoïde

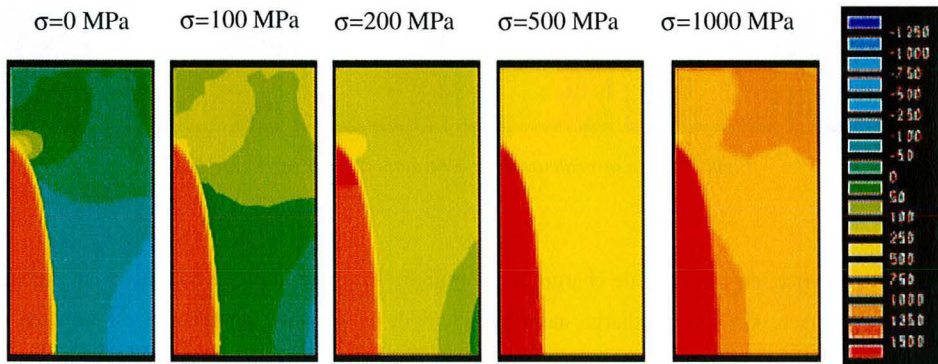


Figure III-30 : isovaleurs de la contrainte  $\sigma_{33}$  pour une particule ellipsoïdale (valeurs en MPa)

En l'absence de traction, la contrainte  $\sigma_{33}$  est en compression. Avec l'augmentation de la traction, la contrainte dans la matrice passe en traction, avec des niveaux plus élevés près de l'interface. Lorsque la fissure se propage, elle rencontre un champ de contrainte en traction qui favorise sa propagation et dans ce cas, la fissure atteint la particule. Comme le niveau de contrainte dans la particule est élevé et en traction, la particule peut être déformée.

Une analyse du même type peut être menée pour des particules présentant une concavité et dont la concavité serait orientée perpendiculairement à la direction de propagation de la fissure. Si la fissure arrive dans

la concavité où les contraintes de traction augmentent, elle est "piégée" et cela va conduire à une déformation de la particule.

### D-3 Cas intermédiaire : la particule sphérique

Un raisonnement équivalent peut être suivi dans le cas d'une particule sphérique, si une fissure se propage selon l'un de ses diamètres. Dans ce cas, la contrainte responsable de la propagation de la fissure est la contrainte  $\sigma_{33}$ . La figure III-32 présente les iso-valeurs de cette contrainte. Pour des raisons de symétrie seul un quart du plan est représenté. Pour analyser le comportement de la fissure, il faut l'imaginer venant de la droite de la cellule. La figure III-31 présente le profil de la contrainte  $\sigma_{33}$ , lors de la sollicitation en traction, les autres profils sont disponibles en annexe 10. Comme dans le cas précédent, en l'absence de traction, la matrice est en compression et avec l'augmentation de la charge, la traction permet à la fissure de se propager dans la matrice. Mais près de l'interface, une zone de compression existe et peut dévier la fissure avant que celle-ci n'atteigne la particule. On peut noter que le niveau de compression est moins important que dans le cas de l'ellipsoïde, ceci indique qu'en fonction du niveau de contrainte due à l'indentation et plus généralement en fonction de la position de la particule sur la fissure (début ou fin), la zone de compression aura une amplitude plus ou importante. Ainsi si la contrainte due à l'indentation est forte (début de la fissure), la zone de compression sera faible et la fissure pourra atteindre et déformer la particule alors que pour une contrainte d'indentation plus faible, la fissure pourra être déviée par la zone de compression et provoquer la décohésion de la particule.

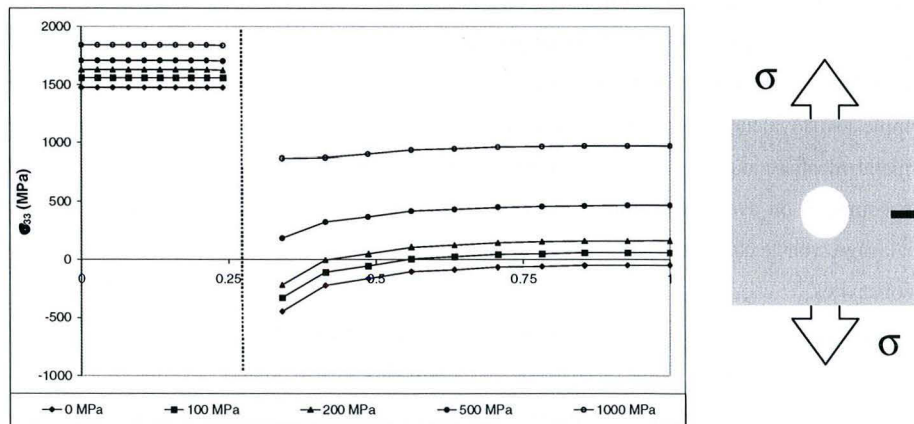


Figure III-31 : profil de la contrainte  $\sigma_{33}$  le long d'un diamètre de la sphère

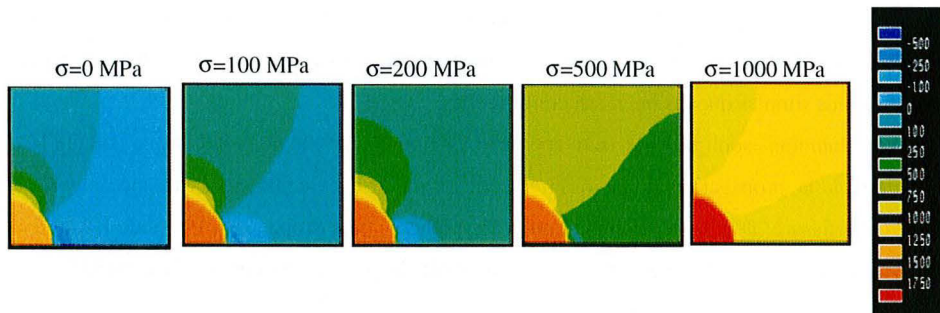


Figure III-32 : isovaleurs de la contrainte  $\sigma_{33}$  pour une particule sphérique (valeurs en MPa)

Le cas de la particule sphérique est un cas idéal plutôt rare dans le cas des cermet alumine chrome, sauf pour les particules de très petites tailles (voir le chapitre I et la caractérisation de la phase métallique).

A ces trois configurations de particules, on peut ajouter celle de la particule concave qui se déduit du cas de la particule allongée dans la direction perpendiculaire à la direction de propagation de la fissure. En effet, nous avons vu dans le chapitre II que pour une particule concave, la contrainte hydrostatique dans la matrice à proximité de la concavité est en traction. Donc lorsqu'une fissure se propage à proximité d'une concavité, les contraintes de traction favorisent la propagation de la fissure vers la particule entraînant ainsi sa déformation. Toutefois cet effet de "piège à fissures" reste limité car la zone d'influence des concavités est relativement faible au vu de leurs amplitudes.

Pour les autres configurations de particules, c'est-à-dire pour les différentes orientations de particules de forme ellipsoïdale, il est possible de se ramener à un des trois cas précédemment décrits par rapport à la position de la fissure vis à vis de la particule. En utilisant uniquement un critère de fissuration en mode I, il est donc possible de décrire les différents cas de propagation des fissures exposées sur la figure III-26.

## Résumé

Par l'analyse des champs de contraintes locaux au voisinage des particules, suivant la taille et la forme (élongation ou concavité), il est possible de **déterminer qualitativement** quel sera le **comportement de la fissure au voisinage de ces particules particulières**. Par extension, comme la microstructure complexe des cermets peut être remplacée par des microstructures plus simples, en caractérisant les particules suivant leurs tailles ou leurs formes par rapport à une direction de propagation de fissure, il est possible aussi d'avoir une première approche du comportement des fissures sur des microstructures plus complexes. La figure III-33 montre par exemple les isovalues des contraintes résiduelles et de la déformation plastique obtenues sur une microstructure réelle idéalisée où les particules ont été remplacées par des ellipses de taille et d'orientation équivalentes. En comparaison avec les résultats obtenus sur la microstructure réelle (issues de la microscopie électronique à balayage, voir le chapitre II), les champs de contraintes présentent les mêmes caractéristiques sauf en présence de concavités.

Une première analyse du chemin de fissure peut alors se faire très facilement en utilisant les critères développés ci-dessus. En analysant la taille et la forme des particules, il est possible de placer les zones du champ de contraintes résiduelles qui seront en compression et celles qui seront en traction en raison de la forme des particules mais également de leurs interactions.

En utilisant des microstructures idéales et les calculs par éléments finis, **il est possible d'expliquer le comportement des fissures** et de tenir compte de certains paramètres microstructuraux tout en manipulant des microstructures plus simples que les microstructures réelles.

Il faut néanmoins souligner que cette approche est limitée car elle ne prend pas en compte la relaxation du système due à la propagation de la fissure, celle-ci modifie évidemment l'état mécanique et donc la propagation de la fissure. D'autre part, elle fait aussi l'hypothèse d'une propagation en mode I. L'utilisation d'un critère de taux de restitution d'énergie maximal permettrait de prendre en compte la contribution des autres modes de fissuration présents dans les indentations de Hertz.

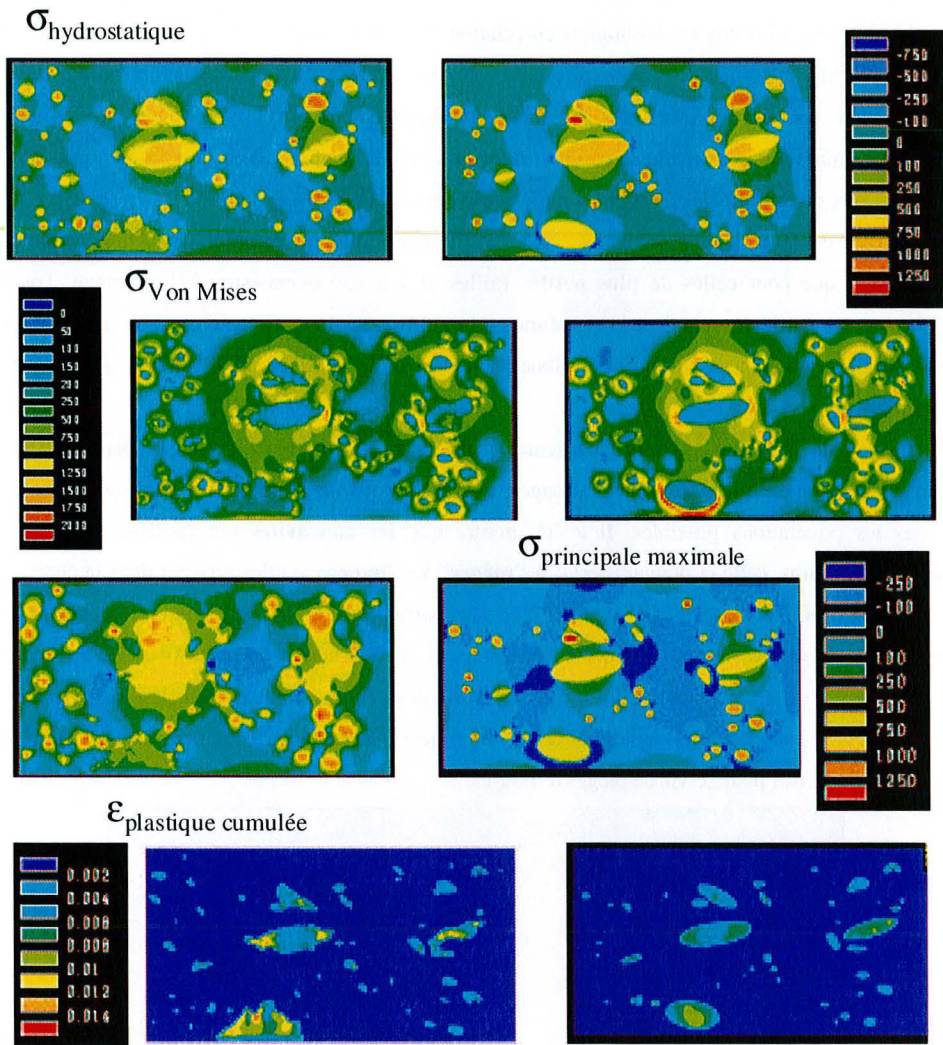


Figure III-33 : comparaison des champs de contraintes résiduelles sur une microstructure réelle (à gauche) et une microstructure idéalisée (à droite)

Optimisation des microstructures des cermets

L'analyse des chemins de fissuration en relation avec la microstructure et l'état mécanique dans les cermets alumine chrome permet de dégager plusieurs voies pour modifier les microstructures afin d'améliorer les propriétés mécaniques de ces composites. La meilleure façon d'optimiser les propriétés des cermets est de favoriser la déformation des particules métalliques. De cette étude, il ressort que la déformation des particules dépend **d'une part de la taille des particules mais également de la forme** de celles-ci.

Du point de vue de la taille des particules, celles ayant **une taille importante** ont plutôt tendance à être **déformées**, alors que pour celles de **plus petites tailles**, il y a une **décohésion à l'interface**. Toutefois, la présence des petites particules améliore la **résistance à la rupture** de la matrice, avec d'une part la déformation de celles-ci et d'autre part, leur présence contribue au renfort de la matrice par dissolution d'oxyde de chrome près des particules.

Du point de vue de la forme, pour des particules isolées, la déformation est plus probable lorsqu'elles se présentent sous la forme d'ellipse fortement allongée, c'est-à-dire proche d'une fibre courte, ces particules devant avoir toutes les orientations possibles. Il a été montré que **les concavités** ont également un effet sur la propagation des fissures, celle-ci pouvant servir à **"piéger" les fissures** si elles arrivent dans la concavité. Une façon d'amplifier le rôle des concavités serait de créer des particules dont les contours présentent des rugosités. Si on essaie de combiner les effets de taille et de forme, la microstructure optimale pour les cermets alumine chrome pourrait être celle de la figure III-34. Elle comporte des petites particules pour la résistance à la rupture et des particules de tailles plus importantes de formes elliptiques. Ces particules n'ont pas de contours réguliers et présentent des concavités pour servir de pièges à fissures.



Figure III-34 : peut être la microstructure idéale ?

Ainsi, lorsqu'une fissure se propage dans une telle microstructure, si elle s'approche d'une particule, à cause de la présence des concavités, elle sera happée par la particule du fait du champ de contrainte. Et du fait de l'orientation et de la forme de celle-ci, la déformation du métal interviendra très probablement, permettant ainsi l'augmentation des propriétés mécaniques des cermets au-delà de leurs niveaux actuels. De plus, si la fissure arrive sur une particule de grande taille, il est possible que la fissure soit stoppée par la particule, l'énergie nécessaire à la déformation de celle-ci étant trop importante du fait de sa taille.



## *Conclusions & perspectives*

Grâce à nos analyses menées sur les composites alumine chrome, nous avons maintenant une meilleure connaissance des principaux paramètres de leur microstructure. Les diverses analyses présentées dans le chapitre I, ont permis de préciser la composition chimique des phases, avec notamment la localisation du fer en solution dans les plus grosses particules et une estimation du pourcentage d'oxyde de chrome dissout dans l'alumine. Des diversités de forme et de taille des particules métalliques ont pu être mise en évidence avec l'augmentation de la fraction volumique. De plus, du fait du mode de fabrication, les caractéristiques des échantillons sont variables. Les analyses font apparaître un certain manque de reproductibilité au niveau des échantillons. Ces variations de caractéristiques ont un effet d'une part sur la microstructure (variation du taux porosités, tailles particules allant de quelques nanomètres à 100 $\mu$ m et formes des particules très diverses, circulaire, sphériques ou encore concaves ) et d'autre part sur les niveaux des contraintes dans les composites. Ceci ne facilite évidemment pas l'analyse du comportement des composites d'une même composition nominale puisque chacun est unique.

L'étude micromécanique a permis d'acquérir une connaissance approfondie des champs de contraintes locaux dans les phases alumine et chrome en relation avec la microstructure. Nous avons en particulier mis en évidence qu'il est possible d'obtenir les principales caractéristiques des champs de contraintes dans les microstructures réelles (signe, gradient et niveaux de contrainte ainsi que la localisation de la déformation plastique) par des simulations sur des microstructures idéales (en particulier des particules sphériques dans la matrice et des particules de géométries plus complexes présentant des concavités). Nous avons aussi montré que même si des simulations numériques en 2D peuvent donner de premières estimations quant aux effets de paramètres microstructuraux (interactions entre particules, formes des particules) sur les champs de contraintes locaux, leurs résultats doivent être considérés avec beaucoup de précautions. Même si pour le moment, en raison de capacité de calculs limitée, la microstructure réelle ne peut être étudiée que sur des volumes relativement faibles ce qui implique de choisir des zones particulières selon des critères qui ne sont peut être pas dépourvus d'arbitraire. De plus, pour les analyses de tomographie, nous avons montré que les techniques actuelles ont des résolutions trop faibles pour nos microstructures.

Nous avons montré que la détermination expérimentale des contraintes dans les composites alumine chrome est possible mais délicate. Le problème majeur vient du matériau analysé qui présente des différences de contraintes faibles dans les phases (en moyenne) qui ne sont pas mesurables avec une bonne précision. Pour surmonter la difficulté d'obtention des paramètres de mailles des phases non contraintes, nous avons proposé une méthodologie qui devrait certes encore être améliorée mais qui nous a conduit à une première estimation de ces paramètres.

D'après les expériences, nous avons pu montrer que le chrome est en moyenne soumis à des contraintes de traction relativement et proche de contrainte hydrostatique. L'alumine par contre est soumise à des contraintes faibles. De l'ensemble de notre discussion des résultats expérimentaux et des résultats calculés, il ressort que les valeurs des contraintes moyennes dans les phases déterminées expérimentalement représenteraient plutôt une

## Conclusions & perspectives

borne inférieure et les valeurs du calcul micromécanique sur les microstructures idéales 3D (sphère dans cube) une borne supérieure pour les niveaux de contraintes existant réellement dans les cermets.

Les résultats de détermination de la ténacité du verre float, par les modèles de Warren et de Franck & Lawn, ont permis de montrer les divers facteurs influençant les mesures, comme le glissement entre l'indenteur et les échantillons, la variation des propriétés mécaniques des indenteurs et des échantillons mais aussi celui des contraintes internes. Les indentations sur les cermets ont été menées de façon à minimiser certains effets qui perturbent l'obtention et l'observation des fissures, en se basant sur les résultats des analyses faites sur le verre. L'utilisation de l'indentation de Hertz sur les composites alumine-chrome a permis de confirmer le rôle de l'introduction d'une phase métallique sur l'amélioration des propriétés mécaniques des céramiques, avec des niveaux de ténacité allant de 6 à 12 MPa.m<sup>1/2</sup>, pour des variations de la fraction volumique de chrome comprise entre 9 et 36%, ce qui correspond à une forte augmentation par rapport à la ténacité de l'alumine pure qui est de 4 MPa.m<sup>1/2</sup> environ. En plus d'un simple effet de la fraction volumique de la phase renforçante, un effet de taille moyenne et de distribution de taille a pu être mis en évidence pour des composites élaborés par des voies spécifiques.

L'indentation de Hertz, grâce aux différents tests réalisés lors de cette étude, a un fort potentiel pour la détermination de la ténacité par rapport notamment à l'indentation Vickers. Les essais ont permis de le montrer à conditions que soient prises certaines précautions vis-à-vis du protocole expérimental, afin de minimiser les différentes sources d'erreurs qui ont aussi pu être identifiées. Ces indentations de Hertz peuvent être analysées à différentes échelles. Macroscopiquement, les fissures apparaissant à la surface des échantillons et les cônes de fissures gardent une forme circulaire et suivent une trajectoire rectiligne, respectivement. A l'échelle de la microstructure, les trajectoires des fissures sont fortement influencées par la présence des particules métalliques, les fissures passant préférentiellement aux interfaces métal-céramique lorsque les particules sont de petites tailles (jusqu'à quelques microns de diamètre). Si la taille des particules augmente, le passage de la fissure déforme la particule pour continuer sa trajectoire au-delà.

Les analyses des fissures superficielles et coniques, dans les cermets, couplées à la connaissance des champs locaux de contraintes, déterminés par des calculs par éléments finis ont permis, en fonction de la microstructure et des caractéristiques des particules métalliques (forme, taille) de rendre compte de la propagation des fissures. Pour le moment, nos analyses sont basées sur des modèles relativement simples de configuration de particules pour expliquer les phénomènes observés. Les observations montrent bien que dans la microstructure réelle du composite (et les images issues de la tomographie le confirment), les particules ont des formes très diverses et relativement complexes et qu'une analyse plus fouillée devrait prendre en compte.

L'utilisation des résultats de calculs pour expliquer l'influence de la forme et de la taille des particules sur la propagation des fissures dans les composites a cependant permis de mettre en évidence les paramètres majeurs de la propagation d'une fissure, qui sont la distribution de taille tout d'abord, mais également la forme des particules et plus particulièrement leur orientation vis-à-vis de la direction de la contrainte appliquée, paramètre qui est en fait l'élongation dans la direction perpendiculaire à la direction de propagation de la fissure. En plus de ces paramètres, dans les cermets il existe des particules qui sont déformées uniquement du fait de leur taille et d'autres uniquement en raison de leur forme, par la présence d'une concavité par exemple. Mais pour les particules présentant des tailles intermédiaires, il peut y avoir combinaison des deux. Dans cette analyse, les

modèles de calculs, utilisables pour la détermination des contraintes, ne sont alors plus suffisants. Il faut en effet inclure explicitement les distributions de taille et de forme des particules, puisque ceux-ci ont un effet sur le champ local et que c'est précisément le champ local qui influence le chemin de la fissure. Un autre effet notable qui n'a pas été abordé dans ce travail, est celui lié à la nature des interfaces. Elles ont été considérées parfaites pour l'ensemble de nos simulations. Or au regard des niveaux de contraintes calculées, une décohésion au niveau des interfaces lorsqu'un certain seuil de contraintes est atteint, lors du refroidissement ou lors de la propagation des fissures pourrait être introduit dans la modélisation. Un autre paramètre pouvant aussi être introduit dans les simulations est le caractère dynamique de la propagation de fissure. La vitesse de chargement des composites joue un rôle sur l'initiation des fissures de Hertz, et la vitesse de propagation des fissures est influencée par les niveaux de contraintes résiduelles et peut donc varier (ralentir ou accélérer) tout au long de la trajectoire.

Pour mieux cerner la propagation des fissures de Hertz dans les cermet et pouvoir prévoir leur trajectoire par éléments finis, par exemple, il faudrait mieux définir le critère de propagation. On sait déjà que celui basé uniquement sur une propagation de la fissure en mode I pur n'est pas suffisant pour toutes les configurations de particules. Il faut également avoir une connaissance plus précise de la microstructure en 3D : les progrès de la tomographie X et l'augmentation de la puissance de calcul des ordinateurs devraient en permettre dans un proche avenir de réduire cette difficulté, pour connaître les champs de contraintes locaux sans éliminer les plus petites particules et en utilisant des structures de dimensions plus importantes. Pour simuler la trajectoire de la fissure dans la microstructure réelle, il faudra ensuite également prendre en compte la relaxation des contraintes due à la présence de la fissure.

Lorsque le chemin de fissuration pourra être simulé, les microstructures optimales pourront alors être déterminées et testées, mais déjà nous savons que la répartition de tailles des particules est un paramètre important, tout comme la géométrie des particules, qui doivent tendre vers une forme de fibre courte pour ponter les fissures et se déformer lors de leur passage, ou une forme concave pour forcer la déformation de la particule lors de la propagation de la fissuration. Tout cela permettra une amélioration plus importante encore des propriétés mécaniques des composites alumine-métal.



## Annexe 1 - Mesure de la connexité d'une microstructure 3D

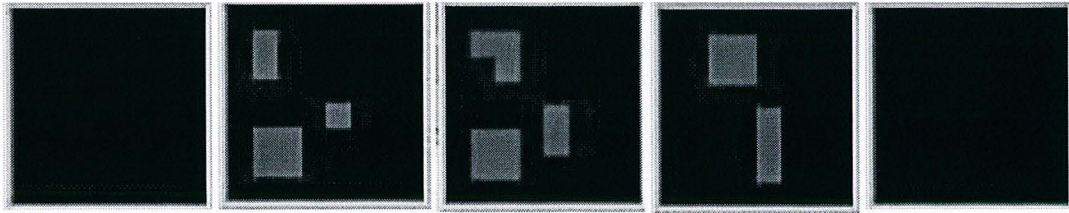
A partir d'images d'une microstructure, il est possible de mesurer la connexité des particules, afin de vérifier quelle phase englobe l'autre. Pour cela, l'approche de Jernot & Al [Jern01] est utilisée.

Le nombre d'objets connexes d'un ensemble X de dimension d, est déterminé par la relation :

$$N_d(X) = \sum_{j=0}^d (-1)^j n_j$$

où  $n_j$  représente le nombre de composantes élémentaires de dimensions j ( $n_0$  : nombre de sommets,  $n_1$  : nombre d'arêtes,  $n_2$  : nombre de faces et  $n_3$  nombre de volumes) entre proches voisins.

Ainsi, les différents volumes sélectionnés dans le volume global analysé en tomographie peuvent être traités. Pour chaque cube élémentaire du volume, le niveau de gris de ces voisins les plus proches, est testé, dans la même tranche et dans la tranche immédiatement supérieure, soit 7 proches voisins. Le test consiste à déterminer si ces plus proches voisins font partie de la même phase ou non. Le nombre de sommets, d'arêtes, de faces et de volumes pour l'ensemble du volume en fonction de l'appartenance des plus proches voisins à une phase identique de celle du sommet examiné, est déterminé.



$N_3(X)$  a été calculé pour un cas simple d'un empilement de cinq couches illustré par les images ci dessus, dans ce cas,  $N_3(X)$  est calculé de la façon suivante :

	$n_0$	$n_1$	$n_2$	$n_3$
	Nombre de sommets	Nombre d'arêtes	Nombre de faces	Nombre de volumes
Image 1	0	0	0	0
Image 1 + image 2	-	0	0	0
Image 2	7	5	1	0
Image 2 + image 3	-	6	4	1
Image 3	9	7	1	0
Image 3 + image 4	-	5	3	
Image 4	7	6	1	0
Image 4 + image 5	-	0	0	0
Image 5	0	0	0	0
Total	23	29	10	1

tableau A-1 : exemple de calcul de connexité

Annexe 1 - Mesure de la connexité d'une microstructure 3D

$$N_3(X) = 23 - 29 + 10 - 1 = 3$$

Ces mesures ont été appliquées à l'ensemble des volumes sélectionnés dans la reconstruction du volume de tomographie.  $N_3(X)$  peut être relié au nombre de particules indépendantes dans le volume.

## Annexe 2- Etude de sensibilité des résultats de calculs

Nous avons d'une part testé la sensibilité des calculs aux données d'entrée et d'autre part au modèle élément fini (maillage, hypothèse de périodicité)

### I- Sensibilité aux données d'entrée

L'ensemble des calculs présentés dans le chapitre II a été réalisé en utilisant des valeurs des propriétés thermo-mécaniques issues de la littérature pour des phases pures. Sachant que les phases alumine et chrome dans les cermets ne sont pas pures et que les variations de compositions chimiques jouent sur les propriétés mécaniques, il est important de quantifier quelle peut être l'influence de variations des propriétés mécaniques des phases sur les champs mécaniques calculés.

#### I-1 influence des propriétés mécaniques du chrome

##### a- limite d'élasticité

Nous avons eu connaissance récemment des travaux de Weaver et Marcinkowski [Weav61, Marc62] qui donnent l'évolution de la limite d'élasticité du chrome en fonction de la teneur en impuretés (oxygène, azote) pour une gamme de température entre 20 et 900°C. Cette limite dépend fortement de la teneur en oxygène et en azote du chrome. Pour quantifier l'effet de la limite d'élasticité sur nos résultats, nous avons effectué des simulations en utilisant les données de Weaver [Weav61] présentées sur la figure A-1 donne l'évolution de la limite d'élasticité du chrome pour deux teneurs en azote du chrome pur. Cette figure montre qu'une faible teneur en azote modifie sensiblement le niveau de la limite d'élasticité. De plus la position des différents pics dépend également de la pureté [Wain57]

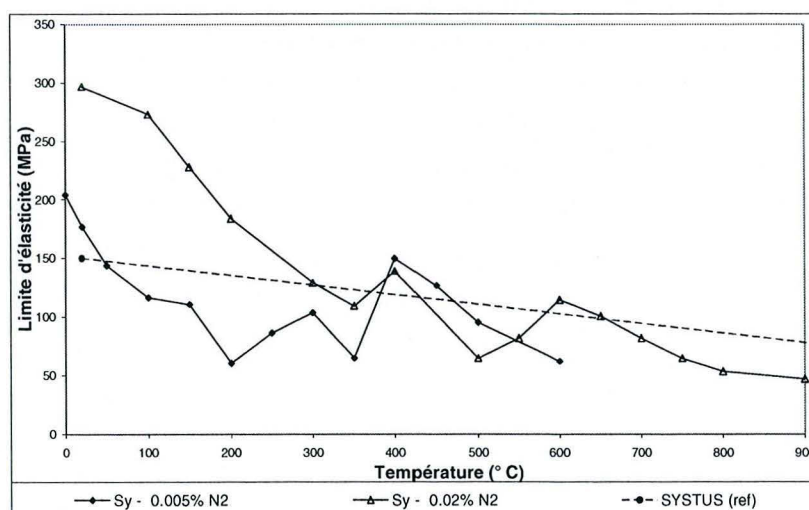


figure A-1 : limite d'élasticité du chrome pour des teneurs en azote de 0.002% et 0.0005%

## Annexe 2- Etude de sensibilité des résultats de calculs

Les données concernant la limite d'élasticité du chrome ne couvrant pas l'ensemble de l'intervalle de température pris en compte dans nos calculs, les données ont été extrapolées linéairement jusqu'à 1450°C. sur la figure, nous avons également porté les données que nous avons utilisées. Les résultats du calcul des contraintes et de la déformation plastique pour les trois jeux de données (les deux teneurs en azote et celle de référence) sont présentées sur la figure A-2.

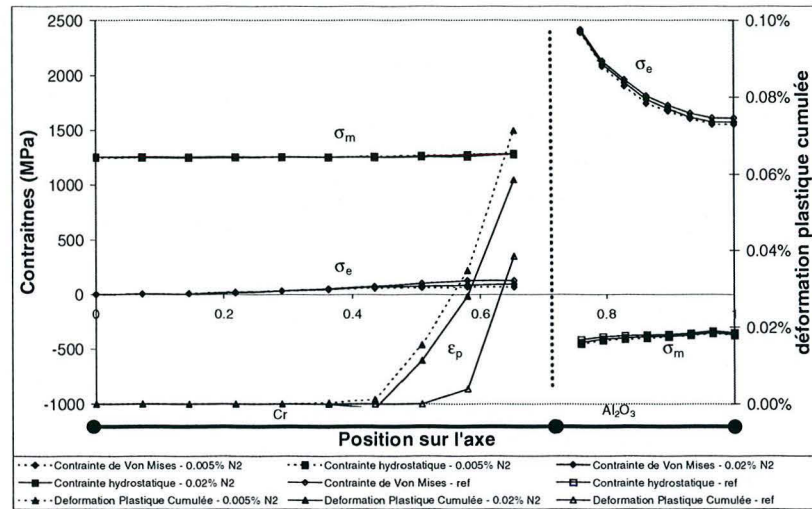


figure A-2 : profils de contraintes pour différentes évolutions de la limite d'élasticité du chrome

Les courbes de la figure A-2 permettent de voir que l'utilisation de la limite d'élasticité linéaire ou les données de Weaver et al. changent peu les niveaux de contraintes, que ce soit dans le chrome ou dans l'alumine. La zone plastifiée est plus étendue et les niveaux de déformation plastique augmentent tout en restant faibles. L'évolution de la déformation plastique en fonction de la température présentée sur la figure A-3 montre comme attendu que dans le cas des données de Weaver [Weav61], le chrome se déforme plastiquement davantage à haute température par rapport au cas de la limite linéaire. Ces variations de limite d'élasticité n'entraînent que de faibles variations de niveaux des contraintes résiduelles. La même conclusion a pu être tirée des simulations faites dans des cas où les déformations plastiques sont plus élevées.

On peut signaler que la présence d'une contrainte hydrostatique dans le chrome peut modifier également la limite d'élasticité. Bullen & al. [Bull64] ont montré qu'une contrainte hydrostatique diminuait la limite d'élasticité du chrome, cette diminution pouvant atteindre 50%, pour une pression hydrostatique de  $10^4$  atmosphère, et également favoriser le caractère ductile du chrome. Nous pouvons donc conclure que nos calculs ont tendance à surestimer la déformation plastique du chrome.



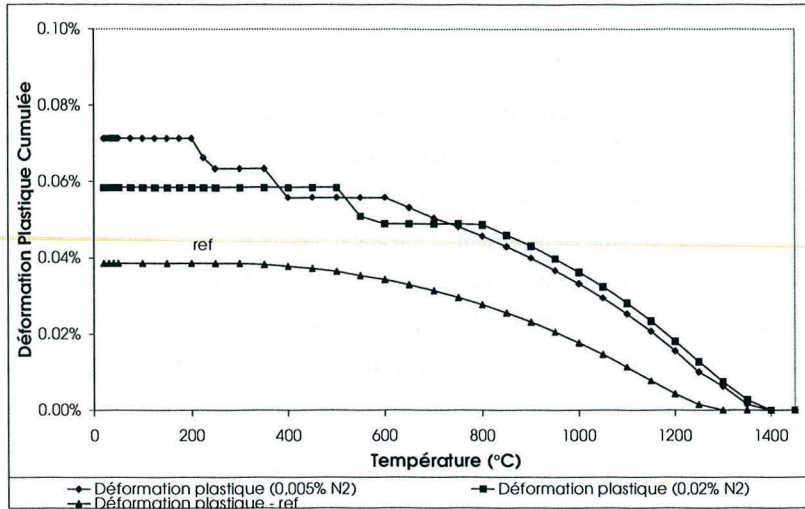


figure A-3 : évolution de la déformation plastique du chrome en fonction de la température

b- module d'érouissage

La loi de comportement du chrome utilisée dans ces calculs est une loi élastoplastique avec un module d'érouissage pour le chrome, fixé à 10000 MPa. Des calculs ont été réalisés pour voir l'effet de la variation de ce coefficient sur la déformation plastique du chrome et les niveaux de contraintes.

La loi de comportement du chrome a été modifiée, au lieu de prendre un modèle élastoplastique, un modèle parfaitement plastique a été utilisé en conservant la même évolution de limité d'élasticité. Les profils de contraintes le long de l'axe sont donnés sur la figure A-4.

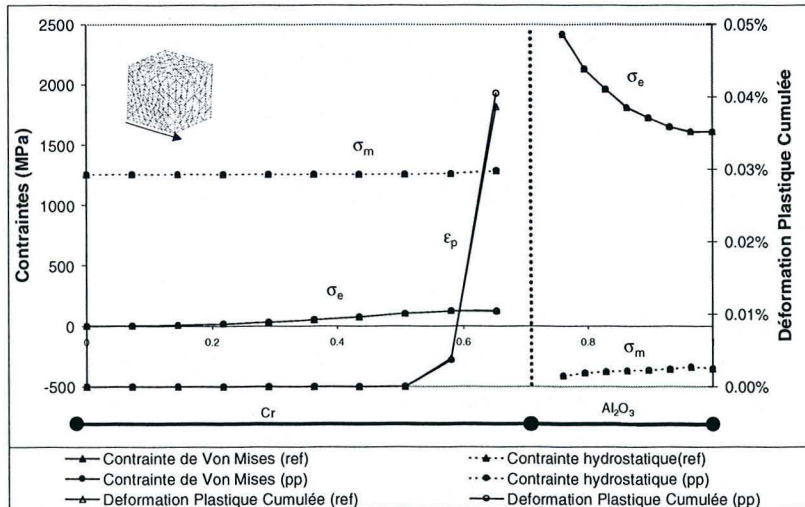


figure A-4 : profils de contraintes pour différentes lois de comportement du chrome (particule sphérique 20% volumique)

Comme dans les cas précédents, pour les contraintes hydrostatiques et de Von Mises, dans le chrome ou dans l'alumine, les variations de niveaux de contraintes sont à peine perceptibles. La déformation plastique varie très peu également.

c- Module d'Young et coefficient de Poisson

Comme cela a été montré dans la partie précédente, le chrome n'est pas pur dans les cermetes alumine chrome. En raison du mode d'élaboration, du fer est introduit en combinaison avec le chrome. Les diverses mesures faites sur les particules ont permis d'estimer la quantité de fer présente dans la phase métallique aux alentours de 3% pour un composite contenant 21% de chrome. La présence du fer peut modifier le comportement mécanique du chrome en modifiant le module d'Young et le coefficient de Poisson. Afin de voir cet effet, des calculs prenant en compte des modifications du module d'Young et du coefficient de Poisson du chrome en supposant une loi de mélange entre les propriétés du chrome et du fer pour une quantité de fer de 10%, pour obtenir une borne supérieure de l'effet de l'addition de fer. Les données du fer sont extraites de [Andr50]

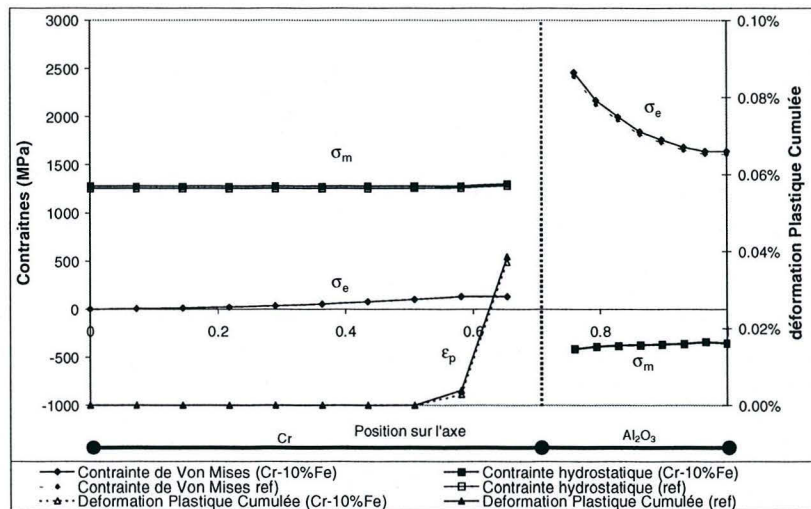


Figure A-5 : profil de contraintes dans un composite alumine-(chrome+10%fer)  
(particule sphérique 20% volumique)

Nous pouvons conclure que la modification du module d'Young et du coefficient de Poisson du chrome a peu d'effet sur les niveaux de contraintes à la fin du refroidissement.

I-2 Influence des propriétés mécaniques de la phase céramique

Tout comme la phase métallique, la phase céramique des composites alumine-chrome n'est pas pure. Les diverses analyses, présentées dans le chapitre I, ont montré la présence d'oxyde de chrome dissout dans l'alumine. Les effets de la présence d'oxyde de chrome en solution dans l'alumine sont connus [Ross71]. L'ajout de chrome dans l'alumine a un effet durcissant pour les faibles pourcentages de chrome avec une augmentation du module d'Young. Mais lorsque le pourcentage de chrome dépasse 5% molaire, l'effet s'inverse avec une diminution des propriétés mécaniques. Afin de quantifier l'effet du chrome dissout dans l'alumine sur les contraintes résiduelles, des calculs ont été menés en utilisant des valeurs de module d'Young et de coefficient de Poisson variant de 5% autour des valeurs utilisées dans les autres calculs, ce qui correspond au renforcement maximal mesuré par [Ross71] et à la diminution du module d'Young pour une proportion de 5% molaire

d'oxyde de chrome dans l'alumine. Les résultats des calculs avec des propriétés mécaniques différentes sont présentés sur la figure A-6

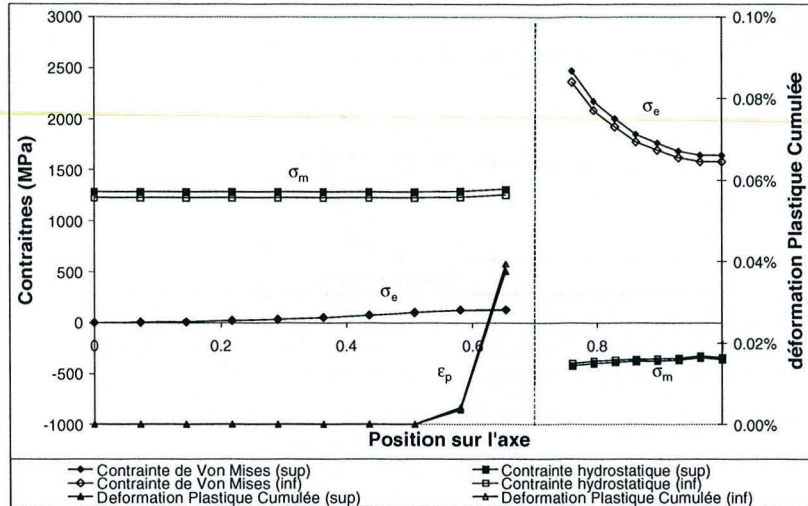


figure A-6 : profils de contraintes pour un module d'Young prenant en compte la présence de chrome dissout dans l'alumine (particule sphérique 20% volumique) (les données notées sup correspondent à des valeurs de module d'Young et de coefficient de Poisson augmenté de 5% et les données notées inf à des propriétés mécaniques diminuées de 5%)

La variation des propriétés mécaniques de l'alumine de  $\pm 5\%$  affecte peu les valeurs de contrainte dans le chrome, la contrainte hydrostatique variant de 50MPa. Pour la contrainte de Von Mises, il n'y a pas de variation de son niveau dans la particule de chrome. Dans l'alumine, la contrainte hydrostatique diminue d'environ 30MPa, lorsque les propriétés passent de leurs valeurs les plus élevées aux plus faibles et la contrainte de Von Mises diminue de 100MPa à l'interface et 60MPa au bord de la cellule. La déformation plastique varie peu.

La présence de porosité modifie également les propriétés mécaniques (module d' Young et coefficient de Poisson) utilisées dans les calculs [Spr161, Spr164, Cob156, Knud62]. La figure A-7 donne le profil de contraintes pour un calcul utilisant les données de Springs & al [Spr161] qui prend en compte un taux de porosité de 2% dans l' alumine ce qui entraîne des variations du module notamment à hautes températures avec une diminution sensible du module d' Young à partir de 1000°C.

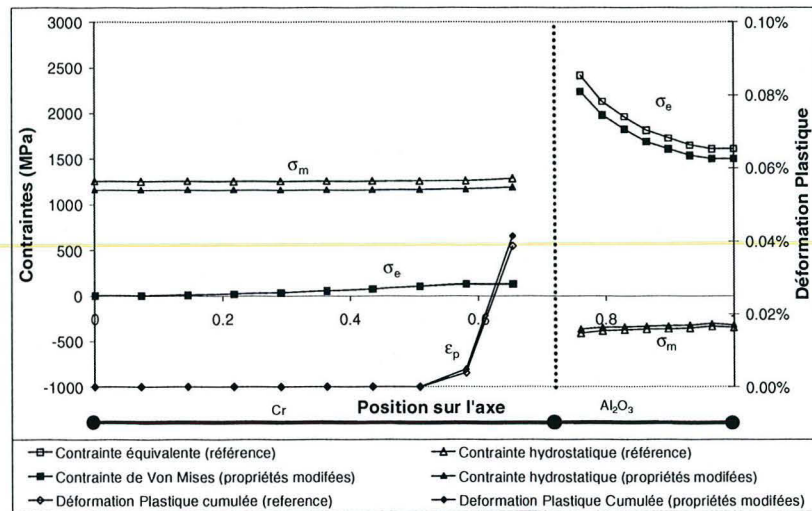


figure A-7 : profils de contraintes pour un module d'Young prenant en compte 3% de porosité dans l'alumine (particule sphérique 20% volumique)

La prise en compte de l'effet des porosités sur les propriétés mécaniques modifie les niveaux de contraintes. Ainsi la contrainte hydrostatique diminue dans le chrome d'une centaine de MPa et dans l'alumine, la compression est également légèrement diminuée d'environ 30 MPa. Pour la contrainte de Von Mises, elle ne change pas pour le chrome, et une diminution du niveau de la contrainte de Von Mises dans l'alumine aussi bien près de l'interface qu'au bord de la cellule est constatée.

Les porosités n'influencent pas seulement les propriétés mécaniques des phases, mais leur présence peut modifier fortement le champ de contraintes locales. Différents maillages ont été réalisés en incluant des porosités, celles-ci ont été placées dans la matrice et ne sont pas en contact avec les particules, ceci en accord avec les observations faites au M.E.B. où les porosités observées sont situées dans la matrice et non directement près des particules ou à l'intérieur.

Afin de simuler une porosité, deux approches ont été envisagées, soit de ne pas mailler ces porosités, en laissant leurs bords libres de se déformer soit de mailler les porosités en leur attribuant des propriétés mécaniques très faibles. Nos calculs ont montré que les deux approches donnent des résultats quasiment identiques. La figure A-8 donne les profils de contraintes pour une porosité sphérique. Comme attendu la présence de la porosité modifie localement le champ de contrainte dans l'alumine. Elle a peu d'influence sur les contraintes dans la particule de chrome.

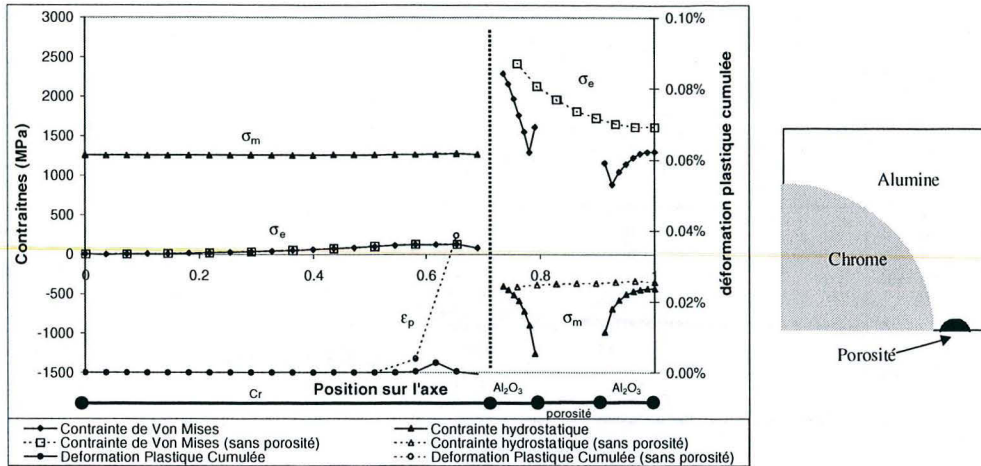


figure A-8 : profil de contraintes autour d'une porosité (particule sphérique 20% volumique)

Dans l'alumine, la contrainte hydrostatique est fortement perturbée avec une augmentation sensible de la compression près de la porosité. On peut noter la déformation plastique du chrome dans le cas où une porosité est présente devient quasiment inexistante à cause de la relaxation due à la porosité. Des effets similaires sur l'évolution des contraintes près des porosités ont été observés par Shan et al ainsi que Lasko et al [Shan01, Lask00]

Peu de données existent sur l'influence des éléments résiduels sur les coefficients de dilatation du chrome (avec le fer) et de l'alumine (avec l'oxyde chrome). Toutefois, pour le chrome, les études de [Whit61] ont montré que l'addition de vanadium (0,5% massique) au chrome pur pouvait éliminer la transition magnétique à 38°C; comme du vanadium peut être introduit dans la phase métallique (du fait de la composition des jarres et de leur usure). Les propriétés thermo-mécaniques du chrome ont été modifiées pour ne pas prendre en compte la transition magnétique à 38°C. Seules des variations très faibles des niveaux des contraintes dans le chrome (inférieur à 3%) et sur la déformation plastique près de l'interface sont détectables.

### I-3 Influence de la température de relaxation

Des processus de relaxation des contraintes peuvent exister aussi bien dans l'alumine, par des glissements aux joints de grains jusqu'à 1200°C que dans le chrome à cause de son comportement visqueux à hautes températures. Nous avons fait des simulations en prenant comme température de relaxation complète des contraintes 1200°C au lieu de 1450°C, 1200°C représentant une borne inférieure pour l'existence des processus de relaxation de l'alumine polycristalline. Lors du refroidissement, l'évolution des contraintes est similaire pour les deux températures de relaxation avec une augmentation jusqu'à 150°C puis une diminution. La figure A-9 présente les profils de contraintes à 20°C pour un modèle sphère dans cube à 20% volumique.

Dans le chrome, l'évolution de la contrainte de Von Mises reste inchangée, mais on note une forte diminution de 40% du niveau de la contrainte hydrostatique la déformation plastique est plus faible également et reste négligeable. Dans l'alumine, le niveau de la contrainte hydrostatique diminue de 100MPa et suit une évolution similaire. La contrainte de Von Mises diminue fortement (40%).

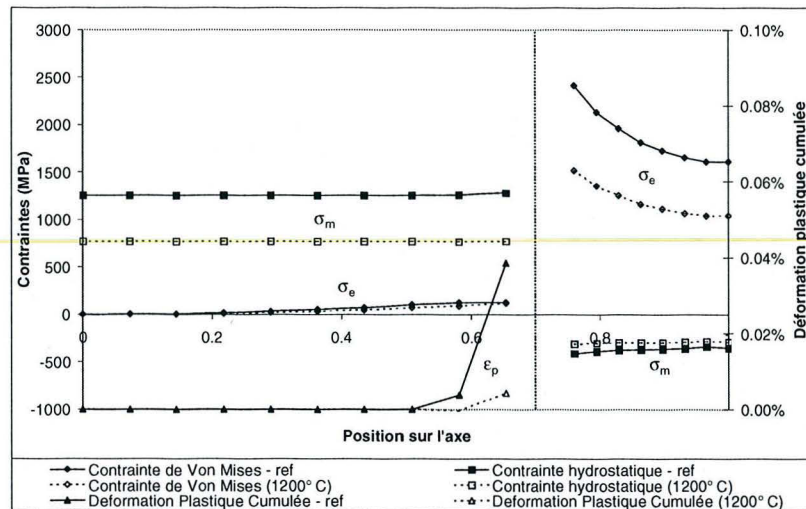


figure A-9 :influence de la température de relaxation complète des contraintes

La diminution de la température de relaxation diminue le niveau des contraintes hydrostatiques dans le chrome et dans l'alumine. La relaxation est plus forte dans le chrome car son coefficient de dilatation thermique est élevé et il varie plus fortement que celui de l'alumine, celui-ci restant globalement constant aux hautes températures.

## II- Sensibilité des résultats au modèle éléments finis

### II-1 Influence de la taille du maillage

L'influence du nombre de mailles sur les niveaux de contraintes dans le chrome et l'alumine a été testé, ceci est sensible au niveau de l'interface, où les gradients de contraintes et de déformation plastique sont importants.

Un maillage correspondant à une fraction volumique de 20% a été réalisé en augmentant le nombre de mailles sur les surfaces servant de support au volume (sphère de métal et cube d'alumine).

Le maillage de référence dont sont issus la plupart des calculs présentés ci-dessus (pour une fraction volumique de 20% de chrome) comporte

808 mailles assignées au chrome et 10 nœuds sur l'axe Ox

1016 mailles assignées à l'alumine et 8 nœuds sur l'axe Ox

le second maillage comporte

669 mailles assignées au chrome et 16 nœuds sur l'axe Ox

2255 mailles assignées à l'alumine et 12 nœuds sur l'axe Ox

L'augmentation du nombre de mailles sur les axes (et donc des surfaces de support) n'entraîne pas une augmentation du nombre de mailles dans le volume assigné au chrome. Cette différence s'explique par l'utilisation d'un mailleur automatique qui génère des mailles de forme tétraédrique mais de tailles très diverses.

Le résultat du calcul des contraintes et de la déformation plastique est donné sur la figure A-10.

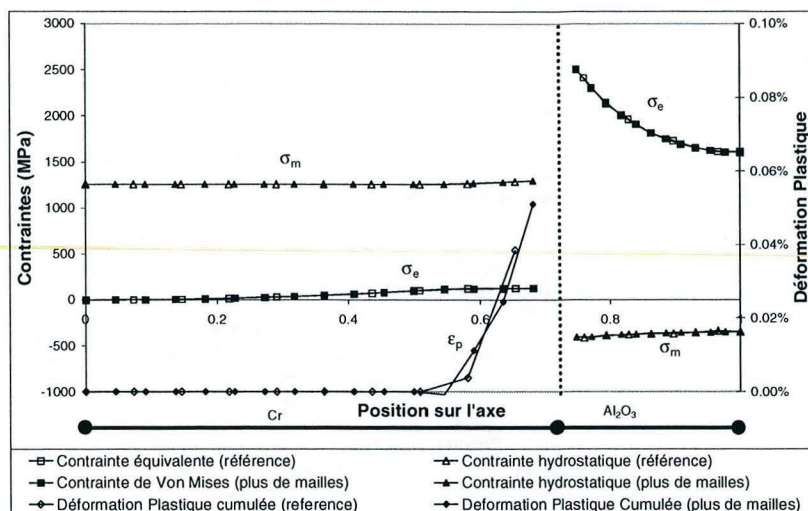


figure A-10 : profil de contraintes & déformation plastique pour deux tailles de maillages différentes (particule sphérique 20% volumique)

Les courbes montrent que dans le chrome et dans l'alumine, l'évolution des contraintes et leurs niveaux sont sensiblement identiques pour les deux maillages si ce n'est que pour le second maillage nous disposons de points plus proches de l'interface. La différence principale concerne la déformation plastique. L'augmentation du nombre de nœuds dans la zone plastifiée permet d'affiner le profil de celle-ci, les deux profils de déformation restant néanmoins très proches. Bien sûr l'affinement du maillage permet une meilleure description des gradient à l'interface.

## II-2 Influence des conditions de périodicité

Pour l'ensemble de nos microstructures idéales, nous avons considéré une hypothèse de périodicité. Pour des raisons de capacités de calcul, les calculs sur la microstructure réelle ont été effectués avec des conditions de bords libres. Pour quantifier le rôle de la périodicité, nous présentons sur la figure A-11, les profils de contraintes pour le modèle sphère dans cube avec une fraction volumique de 20% pour des conditions périodiques et non périodiques

Annexe 2- Etude de sensibilité des résultats de calculs

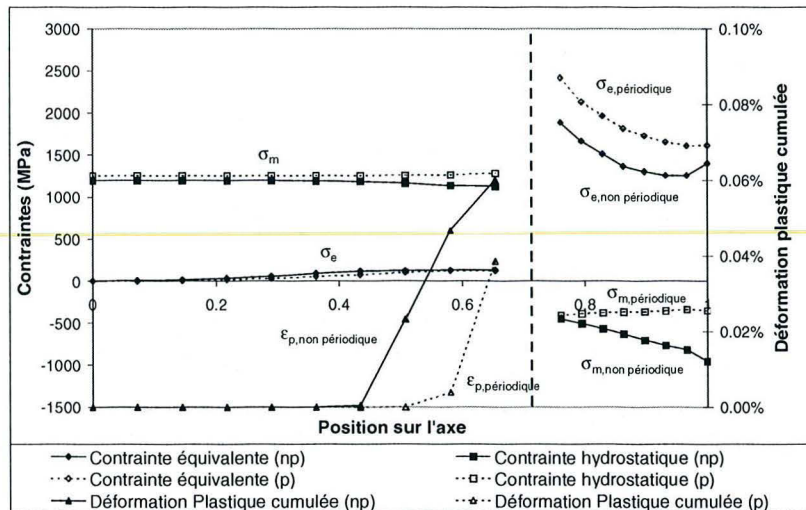


Figure A-11 : profil de contrainte pour des maillages périodiques et non périodiques  
 Fraction volumique de 20% (p : avec périodicité ; np : sans périodicité)

Lorsque la cellule est libre de se déformer, la zone déformée plastiquement est plus étendue et le niveau de déformation plastique est plus élevé. Dans l'alumine, la contrainte hydrostatique n'est plus constante, elle augmente (en compression) depuis l'interface jusqu'au bord de la cellule. La contrainte de Von Mises augmente également. On peut noter le changement de sens de variation près du bord par rapport au cas périodique. Ceci est dû aux variations des composantes du tenseur des contraintes : la contrainte  $\sigma_{11}$  est maximale à l'interface et diminue pour s'annuler en surface. Les composantes  $\sigma_{22}$  et  $\sigma_{33}$ , voient leur évolution inversée dans le cas non périodique, avec une augmentation de leur niveau (en compression) de l'interface vers le bord de la cellule.

Cette analyse de sensibilité des résultats de calculs bien que succincte, permet de montrer que les différents paramètres ne bouleversent pas l'ensemble du comportement du composite. Des compléments seraient certainement nécessaires en particulier sur les microstructures réelles.



### Annexe 3– Connexité de la céramique

Par rapport aux analyses menées sur le cas de particules concaves, il nous a aussi paru intéressant de simuler le cas d'une particule ayant les propriétés de l'alumine dans une matrice ayant les propriétés du chrome. Dans ce cas, la phase alumine est englobée par le chrome. Le chrome reste soumis à des contraintes de traction et l'alumine a des contraintes de compression, comme le montre la figure A-12 correspondant à un modèle sphère dans cube.

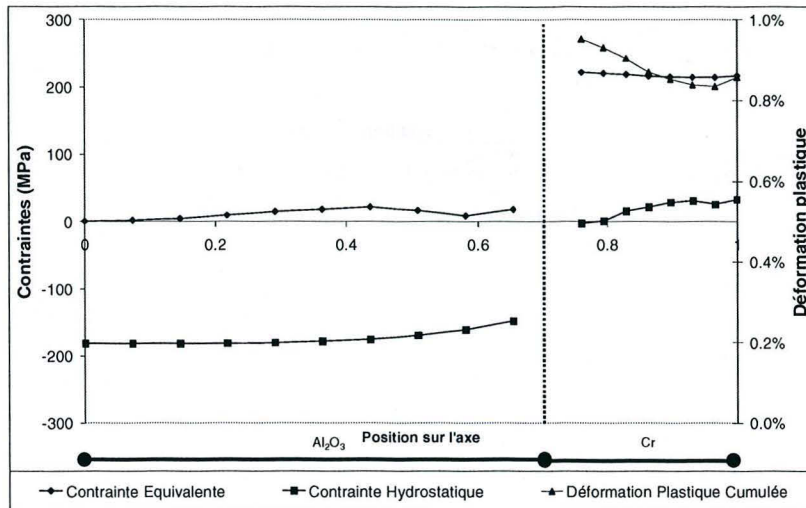


Figure A-12 : sphère de céramique dans un cube de métal

On ne retrouve pas l'effet des concavités car dans le cas de sphère, pour la phase céramique, les composantes du tenseur des contraintes ont des niveaux similaires.

L'utilisation de particules de types ellipsoïdes de céramiques englobées dans une matrice métallique montre, comme l'illustre la figure A-13, conduit à des différents de niveaux des composantes du tenseur. Dans notre exemple, la contrainte  $\sigma_{33}$  diffère des deux autres en raison de l'orientation de l'ellipse selon l'axe 3. On peut noter également une diminution du niveau des contraintes  $\sigma_{11}$  et  $\sigma_{22}$  et une augmentation de celui de  $\sigma_{33}$  par rapport au cas de la sphère.

Dans ces particules, à cause de leur forme, il n'y a plus de contraction hydrostatique du chrome comme dans le cas de la sphère, du fait de la forme de la particule. Ceci conduit à des différences entre les composantes du tenseur qui modifient les niveaux de contraintes dans l'inclusion et dans la matrice environnante, pouvant même permettre aux contraintes dans la matrice proche de changer de signe, comme dans le cas de particules concaves.

Ces particules concaves étant soumises à des hétérogénéités de contraction ou de dilatation de phases, les contraintes pourront localement, à cause de la forme des particules, permettre le changement de signe de la contrainte hydrostatique.

Annexe 3– Connexité de la céramique

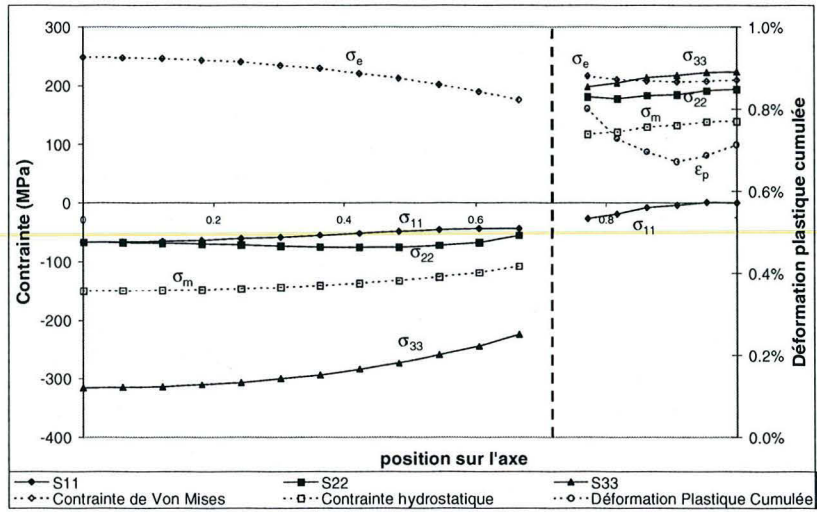


Figure A-13 : Ellipsoïde de céramique dans un cube de métal

## Annexe 4- Constantes radiocristallographiques

Pour la détermination des contraintes, il est nécessaire de connaître les constantes élastiques radiocristallographiques  $S_1$  et  $S_2$  des phases qui dépendent de l'orientation des plans (hkl) Dans le cas d'une structure cubique, les constantes  $S_1$  et  $S_2$  peuvent être déterminées à partir de différents modèles.

A partir des constantes d' élasticité du Chrome qui sont rappelées ci-dessous

Structure Cubique centré - Im3m

$$a = 0,288390 \text{ nm}$$

$$E = 279 \text{ GPa} \quad \nu = 0,215 \text{ à } 20^\circ\text{C}$$

$$S_{11} = 3,0488 \cdot 10^{-6} \text{ MPa}^{-1}$$

$$S_{12} = -0,4948 \cdot 10^{-6} \text{ MPa}^{-1}$$

$$S_{44} = 9,92 \cdot 10^{-6} \text{ MPa}^{-1}$$

Nous avons calculé les  $S_1(hkl)$  et  $S_2(hkl)$  du chrome

Pour le modèle de Voigt, on a [Boll67] :

$$\frac{1}{2} S_2(hkl) = \frac{5(S_{11} - S_{12})S_{44}}{6S_0 + 5S_{44}} \quad S_1(hkl) = \frac{2S_0(S_{11} + 2S_{12}) + 5S_{12}S_{44}}{6S_0 + 5S_{44}}$$

$$\text{avec } S_0 = S_{11} - S_{12} - \frac{1}{2} S_{44}$$

$$\text{donc } \frac{1}{2} S_2(hkl) = 4,276 \cdot 10^{-6} \text{ MPa}^{-1} \quad \text{et} \quad S_1(hkl) = -0,739 \cdot 10^{-6} \text{ MPa}^{-1}$$

Avec le modèle de Reuss [Boll1967]

$$\frac{1}{2} S_2(hkl) = S_{11} - S_{12} - 3\Gamma(hkl)S_0$$

$$S_1(hkl) = S_{12} + \Gamma(hkl)S_0 \quad \text{où } \Gamma(hkl) \text{ est le facteur d'orientation du plan (hkl)}$$

$$\Gamma(hkl) = \frac{h^2k^2 + k^2l^2 + l^2h^2}{(h^2 + k^2 + l^2)^2} \quad \frac{1}{2} S_2(123) = 4,606 \cdot 10^{-6} \text{ MPa}^{-1}$$

$$S_1(123) = -0,849 \cdot 10^{-6} \text{ MPa}^{-1}$$

$$\frac{1}{2} S_2(411) = 3,976 \cdot 10^{-6} \text{ MPa}^{-1} \quad S_1(411) = -0,639 \cdot 10^{-6} \text{ MPa}^{-1}$$

A l' aide du modèle de Kröner [Krön58]

Détermination du module de Coulomb

$$G^3 + \alpha G^2 + \beta G + \gamma = 0 \quad \text{avec} \quad \begin{cases} \alpha = (9A_1 + 4A_3)/8 \\ \beta = -(3A_1 + 12A_3)A_2/8 \\ \gamma = -3A_1A_2A_3/4 \end{cases}$$

Annexe 4- Constantes radiocristallographiques

$$\text{où } A_1 = \frac{1}{3(S_{11} + 2S_{12})} \quad A_2 = \frac{1}{S_{44}} \quad A_3 = \frac{1}{2(S_{11} - S_{12})}$$

$$t_{44} = \frac{(G - A_2)(3A_1 + 6G)}{2G(8G^2 + G(9A_1 + 12A_2) + 6A_1A_2)} \quad \text{et} \quad E = \frac{9A_1G}{(3A_1 + G)}$$

$$\frac{1}{2}S_2(hkl) = \frac{1}{2G} - 3(1 - 5\Gamma(hkl))t_{44} \quad S_1(hkl) = \frac{1}{E} - \frac{1}{2G} + (1 - 5\Gamma(hkl))t_{44}$$

$$\frac{1}{2}S_2(123) = 4.445 \cdot 10^{-6} \text{ MPa}^{-1} \quad S_1(123) = -0.795 \cdot 10^{-6} \text{ MPa}^{-1}$$

$$\frac{1}{2}S_2(411) = 4.123 \cdot 10^{-6} \text{ MPa}^{-1} \quad S_1(411) = -0.688 \cdot 10^{-6} \text{ MPa}^{-1}$$

L'alumine (Corindon) est de structure rhomboédrique R-3C (a = 0,47590 nm et c = 1,299100 nm)

$$E = 400 \text{ GPa} \quad \nu = 0.25$$

Les modules d'élasticité ( $C_{ij}$ ) et constantes d'élasticité ( $S_{ij}$ ) sont respectivement :

$$\begin{array}{lll} C_{11}=497810 \text{ MPa} & C_{12}=162790 \text{ MPa} & C_{13}=117350 \text{ MPa} \\ C_{33}=501920 \text{ MPa} & C_{44}=147520 \text{ MPa} & C_{66}=167510 \text{ MPa} \\ C_{14}=-22880 \text{ MPa} & & \\ S_{11}=2.32 \cdot 10^{-6} \text{ MPa}^{-1} & S_{12}=-0.667 \cdot 10^{-6} \text{ MPa}^{-1} & [\text{Chung68}] \\ S_{13}=-0.386 \cdot 10^{-6} \text{ MPa}^{-1} & S_{33}=2.17 \cdot 10^{-6} \text{ MPa}^{-1} & \\ S_{44}=6.78 \cdot 10^{-6} \text{ MPa}^{-1} & S_{66}=5.97 \cdot 10^{-6} \text{ MPa}^{-1} & \end{array}$$

Pour le modèle de Voigt [Even71,Even72]

$$S_1(hkl) = \frac{3(4C_{44} - C_{11} + C_{33} - 5C_{12} - 8C_{13})}{(2C_{11} + C_{33} + 2C_{12} + 4C_{13})(7C_{11} + 2C_{33} - 5C_{12} - 4C_{13} + 12C_{44})}$$

$$\frac{1}{2}S_2(hkl) = \frac{15}{7C_{11} + 2C_{33} - 5C_{12} - 4C_{13} + 12C_{44}}$$

$$\text{donc } \frac{1}{2}S_2(hkl) = 3.015 \cdot 10^{-6} \text{ MPa}^{-1} \quad \text{et} \quad S_1(hkl) = -0.569 \cdot 10^{-6} \text{ MPa}^{-1}$$

Avec le modèle de Reuss [Even71,Even72]

$$S_1(hkl) = \frac{1}{2}(S_{12} + S_{13}) + \frac{1}{2}\alpha(S_{11} + S_{33} - S_{13} - S_{12} - S_{44}) - \frac{1}{2}\alpha^2(S_{11} + S_{33} - S_{44} - 2S_{13})$$

$$\frac{1}{2}S_2(hkl) = \frac{1}{2}(2S_{11} - S_{12} - S_{13}) - \frac{1}{2}\alpha(5S_{11} + S_{33} - 5S_{13} - S_{12} - 3S_{44}) + \frac{3}{2}\alpha^2(S_{11} + S_{33} - S_{44} - 2S_{13})$$

$$\alpha = \frac{l^2}{\frac{4}{3}\left(\frac{c}{a}\right)^2(h^2 + k^2 + hk) + l^2}$$

$$\frac{1}{2}S_2(526) = 2.999 \cdot 10^{-6} \text{ MPa}^{-1} \quad S_1(526) = -0.573 \cdot 10^{-6} \text{ MPa}^{-1}$$

$$\frac{1}{2}S_2(13\_10)=3.280.10^{-6}MPa^{-1} \quad S_1(1310)=-0.652.10^{-6}MPa^{-1}$$

Les différentes valeurs sont regroupées dans le tableau A-3. Les modèles de Voigt et Reuss représentent des limites inférieures et supérieures des constantes radiocristallographiques. Pour la détermination des contraintes dans le chrome, les valeurs provenant du modèle de Kröner sont utilisées, ce modèle donnant des valeurs intermédiaires.

Pour l'alumine, de structure rhomboédrique, à notre connaissance, seuls les modèles de Voigt et Reuss ont été appliqués, comme décrit ci-dessous.

	(hkl)	$S_1$ (MPa <sup>-1</sup> )	$\frac{1}{2} S_2$ (MPa <sup>-1</sup> )
Chrome			
Modèle de Voigt	-	$-0.739.10^{-6}$	$4.276.10^{-6}$
Modèle de Reuss	(123)	$-0.849.10^{-6}$	$4.606.10^{-6}$
	(411)	$-0.639.10^{-6}$	$3.976.10^{-6}$
Modèle de Kröner	(123)	$-0.795.10^{-6}$	$4.445.10^{-6}$
	(411)	$-0.688.10^{-6}$	$4.123.10^{-6}$
Alumine			
Modèle de Voigt	-	$-0.569.10^{-6}$	$3.015.10^{-6}$
Modèle de Reuss	(526)	$-0.573.10^{-6}$	$2.999.10^{-6}$
	(13_10)	$-0.652.10^{-6}$	$3.280.10^{-6}$

Tableau A-2 : résumé des constantes radiocristallographiques

### Annexe 5- Equations du champ de contraintes Hertzien à la surface et sur l'axe

Il existe deux cas particuliers pour les contraintes dans un champ Hertzien, qui sont les contraintes sur l'axe et les contraintes à la surface du solide. Les équations pour les contraintes le long de l'axe et à la surface, dans un système de coordonnées cylindriques (r,θ,z) sont :

Pour les contraintes à la surface :

A l'intérieur de la zone de contact

$$\frac{\bar{\sigma}_r}{P_0} = \frac{1-2\nu}{3} \left( \frac{a^2}{r^2} \right) \left[ 1 - \left( 1 - \frac{r^2}{a^2} \right)^{3/2} \right] - \left( 1 - \frac{r^2}{a^2} \right)^{1/2}$$

$$\frac{\bar{\sigma}_\theta}{P_0} = -\frac{1-2\nu}{3} \left( \frac{a^2}{r^2} \right) \left[ 1 - \left( 1 - \frac{r^2}{a^2} \right)^{3/2} \right] - 2\nu \left( 1 - \frac{r^2}{a^2} \right)^{1/2}$$

$$\frac{\bar{\sigma}_z}{P_0} = -\left( 1 - \frac{r^2}{a^2} \right)^{1/2}$$

A l'extérieur de la zone de contact :

$$\frac{\bar{\sigma}_r}{P_0} = -\frac{\bar{\sigma}_\theta}{P_0} = \frac{1-2\nu}{3} \left( \frac{a^2}{r^2} \right)$$

Pour les contraintes le long de l'axe :

$$\frac{\sigma_r}{P_0} = \frac{\sigma_\theta}{P_0} = -(1+\nu) \left[ 1 - \left( \frac{z}{a} \right) \tan^{-1} \left( \frac{a}{z} \right) \right] + \frac{1}{2} \left( 1 + \frac{z^2}{a^2} \right)^{-1}$$

$$\frac{\sigma_z}{P_0} = -\left( 1 + \frac{z^2}{a^2} \right)^{-1}$$

La contrainte principale de cisaillement peut être calculée par :

$$\tau_1 = \frac{1}{2} |\sigma_z - \sigma_\theta|$$

avec  $a^3 = \frac{4kPR^*}{3E_2}$  et  $k = \frac{9}{16} \left[ (1-\nu_1^2) + (1-\nu_2^2) \frac{E_2}{E_1} \right]$

P : charge d'indentation  $P_0 = P/(\pi a^2)$

R\* : rayon de l'indenteur

E<sub>2</sub>, E<sub>1</sub> : module d'Young de l'échantillon et de l'indenteur

ν<sub>1</sub> et ν<sub>2</sub> : coefficients de Poisson de l'indenteur et de l'échantillon

## Annexe 6- Champ de contraintes en contact glissant

Pour le calcul du champ de contrainte avec frottement dans le cadre de la théorie de Hertz, le frottement est simulé en superposant au champ de contrainte normal, c'est-à-dire introduit par la distribution de pression de l'indenteur, un champ de contrainte tangentiel, comme le montre la figure A-14.

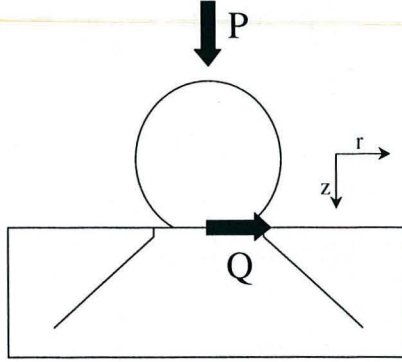


figure A-14 : distribution de pression lors d'un contact glissant

Les équations permettant de calculer le champ de contraintes lors d'un contact avec frottement sont explicitées ci dessous à partir des travaux de Hamilton et des corrections apportées par Mougnot [Hami83, Moug85].

## chargement normal

$$\sigma_x = \frac{3P}{2\pi a^3} \left[ (1+\nu)z\phi + \frac{1}{r^2} \left\{ \frac{y^2 - x^2}{r^2} \left[ (1-\nu)Nz^2 - \frac{1-2\nu}{3}(NS + 2AN + a^3) - vMza \right] - N(x^2 + 2\nu y^2) - \frac{Mx^2za}{S} \right\} \right]$$

$$\sigma_y = \frac{3P}{2\pi a^3} \left[ (1+\nu)z\phi + \frac{1}{r^2} \left\{ \frac{x^2 - y^2}{r^2} \left[ (1-\nu)Nz^2 - \frac{1-2\nu}{3}(NS + 2AN + a^3) - vMza \right] - N(y^2 + 2\nu x^2) - \frac{My^2za}{S} \right\} \right]$$

$$\sigma_z = \frac{3P}{2\pi a^3} \left[ -N + \frac{azM}{S} \right]$$

$$\tau_{xy} = \frac{3P}{2\pi a^3} \left[ xy \frac{1-2\nu}{r^4} \left\{ -Nr^2 + \frac{2}{3}N(S + 2A) - z(zN + aM) + \frac{2}{3}a^3 \right\} + \frac{xyz}{r^4} \left\{ -\frac{aMr^2}{S} - zN + aM \right\} \right]$$

$$\tau_{yz} = \frac{3P}{2\pi a^3} \left[ -z \left\{ \frac{yN}{S} - \frac{yzH}{G^2 + H^2} \right\} \right]$$

$$\tau_{xz} = \frac{3P}{2\pi a^3} \left[ -z \left\{ \frac{xN}{S} - \frac{xzH}{G^2 + H^2} \right\} \right]$$

## chargement tangentiel

$$\sigma_z = \frac{3Q}{2\pi a^3} \left[ -x \left( \frac{\nu}{4} + 1 \right) \phi + \frac{axM}{r^4} \left[ \left( \frac{3}{2} - \frac{2x^2}{r^2} \right) (S\nu - 2A\nu + z^2) + \frac{x^2 z^2}{S} + \frac{7\nu r^2}{4} - 2\nu x^2 + r^2 \right] \right. \\ \left. + \frac{zxN}{r^4} \left[ \left( \frac{3}{2} - \frac{2x^2}{r^2} \right) - \left( \frac{S}{6} + \frac{A}{3} \right) (1-2\nu) - \frac{1}{2} (z^2 + 3a^2) \right] + \frac{a^2 x^2}{S} - \frac{\nu r^2}{4} - \frac{7r^2}{4} \right] \\ + \frac{4a^2 xz}{3r^4} \left( \frac{3}{2} - \frac{2x^2}{r^2} \right) (1-2\nu)$$

$$\sigma_y = \frac{3Q}{2\pi a^2} \left[ -\frac{3\nu x \phi}{4} + \frac{axM}{r^4} \left\{ \left( \frac{1}{2} - \frac{2y^2}{r^2} \right) \left[ \nu (S - 2A + r^2) + z^2 \right] + \frac{y^2 z^2}{S} + \frac{3}{4} \nu r^2 \right\} \right. \\ \left. + \frac{zxN}{r^4} \left[ \left( \frac{1}{2} - \frac{2y^2}{r^2} \right) - \frac{S}{6} (1-2\nu) - \frac{A}{3} (1-2\nu) - \frac{z^2}{2} - \frac{3}{2} a^2 \right] + \frac{a^2 y^2}{S} - \frac{3}{4} \nu r^2 - \frac{r^2}{4} \right] + \frac{4}{3} \frac{a^3 zx}{r^4} \left( \frac{1}{2} - \frac{2y^2}{r^2} \right) (1-2\nu)$$

$$\sigma_z = \frac{3Q}{2\pi a^2} \left[ \frac{zxN}{2r^2} \left\{ 1 - \frac{r^2 + z^2 + a^2}{S} \right\} \right]$$

$$\tau_{xy} = \frac{3Q}{2\pi a^2} \left[ \frac{y}{2} \left( \frac{\nu}{2} - 1 \right) \phi + \frac{ayM}{r^4} \left\{ \frac{x^2 z^2}{S} + \nu \left[ (S - 2A) \left( \frac{1}{2} - \frac{2x^2}{r^2} \right) - 2x^2 + \frac{r^2}{4} \right] + \frac{r^2}{2} + z^2 \left( \frac{1}{2} - \frac{2x^2}{r^2} \right) \right\} \right. \\ \left. + \frac{yzN}{r^4} \left[ \left( \frac{1}{2} - \frac{2x^2}{r^2} \right) \left[ (2\nu - 1) \left( \frac{S}{6} + \frac{A}{3} \right) - \frac{z^2}{2} - \frac{3a^2}{2} - \frac{r^2}{2} \right] + \frac{r^2 \nu}{4} + \frac{a^2 x^2}{S} - \frac{y^2}{2} - \frac{3x^2}{2} \right] \right. \\ \left. + \frac{4a^3 yz}{3r^4} \left( \frac{1}{2} - \frac{2x^2}{r^2} \right) (1-2\nu) \right]$$

$$\tau_{yz} = \frac{3Q}{2\pi a^2} \frac{xyz}{2r^4} \left[ aM \left\{ \frac{1}{2} + \frac{1}{S} \left( \frac{z^2}{2} - \frac{3a^2}{2} - \frac{r^2}{2} \right) \right\} + \frac{zN}{2} \left\{ -3 + \frac{1}{S} (5a^2 + z^2 + r^2) \right\} \right]$$

$$\tau_{zx} = \frac{3Q}{2\pi a^2} \left[ \frac{3z\phi}{2} + \frac{azM}{r^2} \left\{ 1 + \frac{x^2}{r^2} - \frac{x^2}{S} \right\} + \frac{N}{r^2} \left\{ -\frac{3}{4} (S + 2A) + z^2 - \frac{3}{4} a^2 - \frac{1}{4} r^2 + \frac{z^2}{2} \left( \frac{1}{2} - \frac{2x^2}{r^2} \right) \right\} \right]$$



Avec

$$Q = fP \quad \text{avec } f : \text{coefficient de frottement}$$

$$A = r^2 + z^2 - a^2$$

$$S = (A^2 + 4a^2 z^2)^{1/2}$$

$$r^2 = x^2 + y^2$$

$$M = \left( \frac{S + A}{2} \right)^{1/2}$$

$$N = \left( \frac{S - A}{2} \right)^{1/2}$$

$$\phi = \tan^{-1} \left( \frac{a}{M} \right)$$

$$G = M^2 - N^2 + zM - aN$$

$$H = 2MN + aM + zN$$

**Annexe 7-** Champ de Hertz dans les cermet

La figure A-15 présente le champ de contraintes généré lors de l'indentation dans le cas d'un indenteur en carbure de tungstène sur un cermet contenant une fraction volumique de chrome de 21%. Le contact entre l'indenteur et le cermet est considéré sans frottement. Les propriétés mécaniques utilisées pour le calcul correspondent aux propriétés macroscopiques des composites.

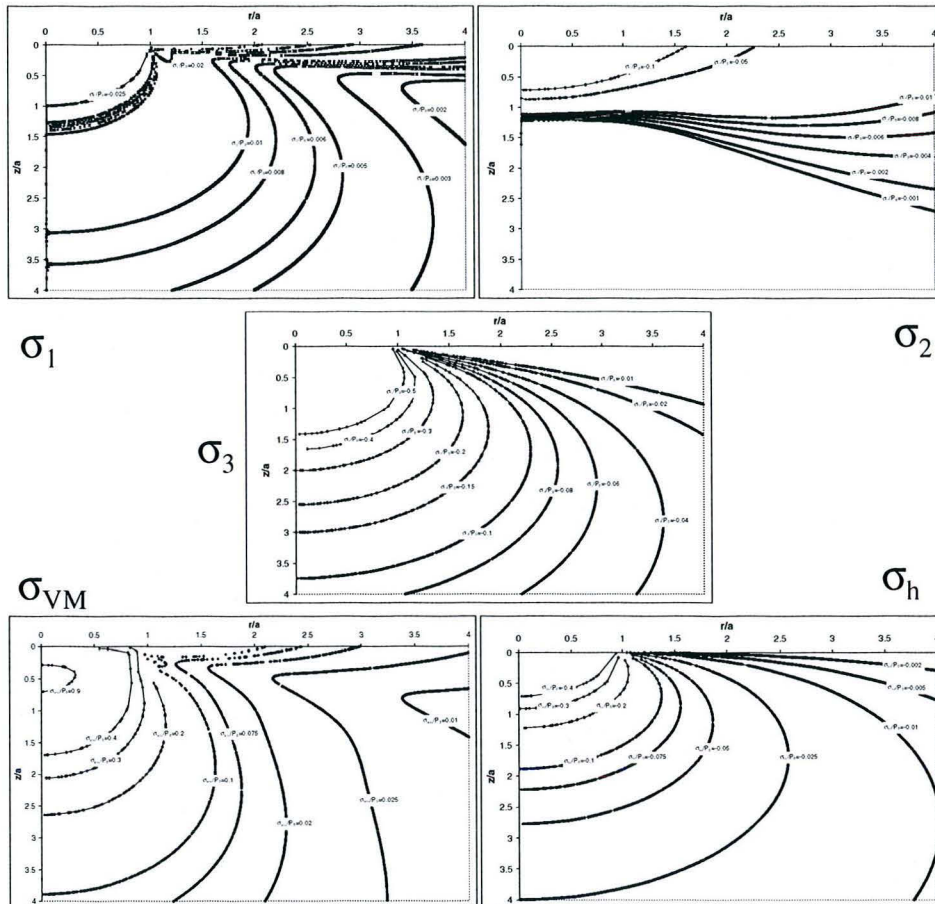


figure A-15 : isovaleurs des contraintes principales, de Von Mises et hydrostatique pour une indentation par une bille de WC-Co ( $R=4mm$ ), et une charge de 4000N. ( $P_0=9140$  MPa)

La contrainte principale, à l'origine de la fissuration des composites est la contrainte  $\sigma_1$ , la fissuration n'intervenant que dans la zone proche de la zone de contact et pour une profondeur relativement faible, la figure A-16 présente la contrainte  $\sigma_1$  à l'extérieur de la zone de contact et pour une profondeur comprise entre 0 et  $0,2x_a$  ( $a$  étant le rayon de la zone de contact), cette profondeur correspond à la zone de propagation des fissures en cône

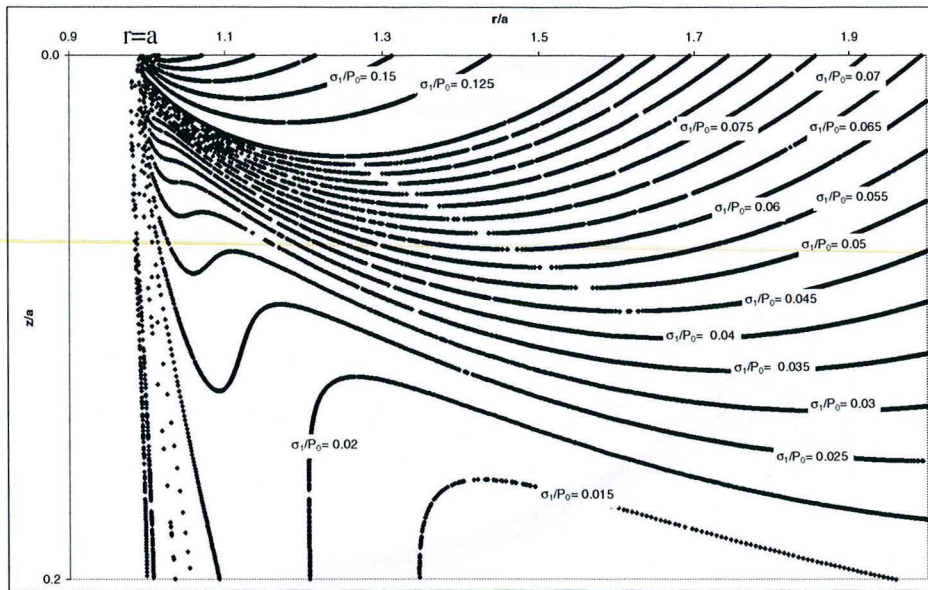


figure A-16 : iso-valeurs de la contrainte  $\sigma_1$  dans la zone de fissuration.

Les niveaux de la contrainte  $\sigma_1$  dans la zone où la fissuration a lieu sont du même ordre de grandeur que les contraintes résiduelles d'origine thermique calculées dans les particules de chrome. Elles sont évidemment très supérieures à celles calculées dans la matrice.

Dans le cas d'une indentation de Hertz, la propagation des fissures débute dans la zone située près de l'indenteur, là où la contrainte principale  $\sigma_1$  est en traction et la fissure est ensuite supposée se propager en mode I sous l'action de  $\sigma_1$ . La figure A-17 donne l'évolution de la contrainte  $\sigma_1$  à la surface pour les divers composites indentés. Les données pour le calcul correspondent aux conditions expérimentales observées lors des indentations (indenteur en WC-Co, charge correspondant à l'apparition des fissures en cercle).

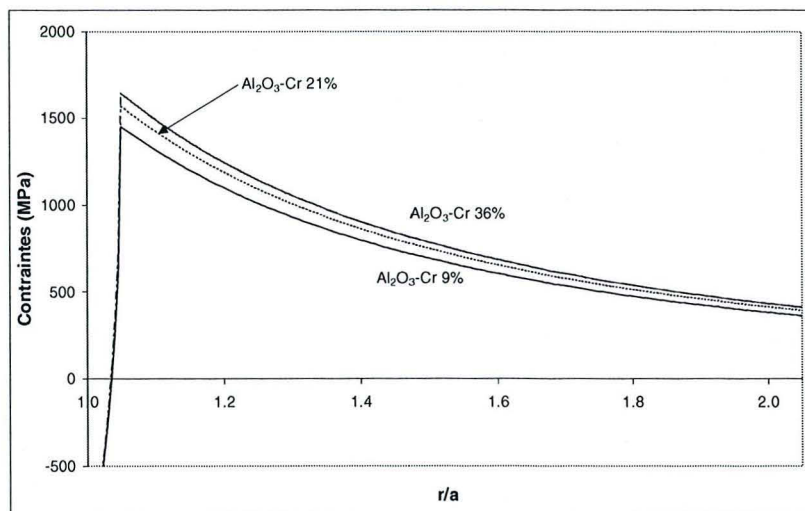


Figure A-17 : contrainte  $\sigma_1$  à la surface des composites alumine chrome.

Dans la zone où la fissuration débute ( $r_0/a=1,1$  à  $1,4$ ), les niveaux de contraintes sont de l'ordre de 1000 MPa pour l'ensemble des composites avec une décroissance relativement importante lorsque la distance par rapport à la zone de contact augmente.

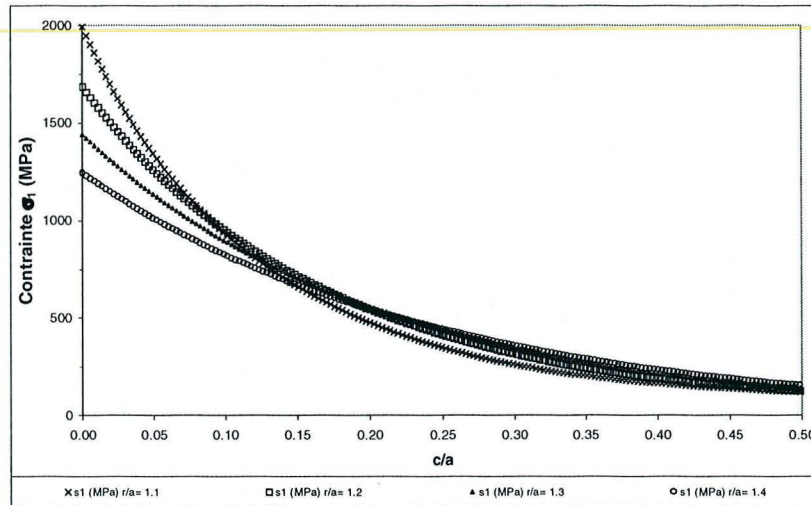


Figure A-18 : évolution de la contrainte principale  $\sigma_1$  le long d'une fissure en cône (dans un composite  $Al_2O_3$ -Cr 21%) pour différentes positions de départ de la fissure

La contrainte principale  $\sigma_1$ , du point de vue macroscopique, le long de la fissure est élevée au départ de la fissure mais décroît rapidement. A l'échelle microscopique, cela signifie que près de la surface, de forts niveaux de contraintes sont appliqués et vers la tête de fissure, les niveaux de contraintes sont plus faibles, voire négligeables par rapport au niveau des contraintes résiduelles.

**Annexe 8-** Simulation des trajectoires de fissure lors d'un contact de Hertz.

Lors du contact de Hertz, dans le modèle de Franck & Lawn [lawn68, fran67], la fissure se propage le long de la trajectoire de la contrainte principale  $\sigma_3$  perpendiculairement à la contrainte principale  $\sigma_1$ . Ce modèle comporte quelques hypothèses qui sont rappelées ci dessous.

- i – la présence de la fissure ne perturbe pas le champ de contraintes.
- ii – le cône de fracture hertzien se développe avec une contrainte principale  $\sigma_1$  maximale et toujours normale à la trajectoire de la fissure.
- iii – la fissure initiale peut être négligée en raison de sa faible taille par rapport au cône.

Si ce modèle est satisfaisant pour la détermination de la ténacité, il n'est pas suffisant pour déterminer la trajectoire exacte de la fissure. En effet à partir du champ de contrainte il est normalement possible de calculer l'angle de la fissure et donc de déterminer sa trajectoire. Mais les résultats sur l'angle et la trajectoire ne sont pas satisfaisants. Il est nécessaire de modifier, pas exemple, le coefficient de Poisson du matériau indenté pour retrouver des valeurs d'angles conformes à celles mesurées expérimentalement [Lawn74]

D'autres auteurs [kocer98] utilisent un autre critère de propagation de la fissure, dans leur modèle éléments finis. La fissure se propage selon le taux de restitution d'énergie maximal, et le champ de contraintes évolue lors de la propagation, c'est-à-dire qu'il y a relaxation des contraintes sur les lèvres de la fissure. Leurs résultats sur le verre sont proches de ceux trouvés expérimentalement.

Dans le cas des cermet alumine chrome, nous avons utilisé un critère de propagation basé sur un taux de restitution d'énergie maximal en combinaison avec le champ de contrainte donné par Franck & Lawn. Pour cela, le taux de restitution d'énergie est calculé à partir de la relation :

$$G = \frac{K_I^2}{E} + \frac{1+\nu}{E} K_{II}^2 + \frac{1+\nu}{E} K_{III}^2$$

où  $K_I$ ,  $K_{II}$  et  $K_{III}$  sont les ténacités en mode I, II et III respectivement et  $E$  et  $\nu$  sont le module d'Young et le coefficient de Poisson du matériau indenté. Dans la théorie de Hertz, les champs de contraintes étant explicités dans les plans de symétrie de la zone de contact, le mode I est calculé à partir de la contrainte principale  $\sigma_1$ , le mode II est déterminé par la contrainte  $\tau_x$  (voir le chapitre III) et le mode III est nul. Dans notre modèle le calcul des ténacités pour les différents modes est fait à partir de la formulation de Franck & Lawn :

$$K_I = 2 \left( \frac{c_0}{\pi} \right)^{1/2} \int_0^{c_0} \frac{\sigma_1(c)}{(c_0^2 - c^2)^{1/2}} dc \quad \text{et} \quad K_{II} = 2 \left( \frac{c_0}{\pi} \right)^{1/2} \int_0^{c_0} \frac{\tau_x(c)}{(c_0^2 - c^2)^{1/2}} dc$$

Le calcul se fait le long de la fissure.

Pour la détermination de la trajectoire de la fissure, pour les points où le taux de restitution d'énergie est maximal, nous procédons de la façon suivante :

on place un défaut perpendiculaire à la surface, près de la zone de contact, dont la taille est très faible par rapport à la taille de la fissure. (figure A-19 (a)). Typiquement, la taille du défaut est la même que celle d'un incrément de fissure (de l'ordre de 1  $\mu\text{m}$ ).

Annexe 8- Simulation des trajectoires de fissure lors d'un contact de Hertz.

Une charge d'indentation fixe est appliquée. Le champ de contrainte dû à cette charge est alors connu.

Le taux de restitution d'énergie le long de ce défaut est calculé pour la charge imposée.

En tête de fissure, dans un angle solide  $\Omega$ , les différentes orientations possibles de la fissure, pour un incrément fixe, sont testées et le taux de restitution d'énergie des diverses configurations est comparé au taux précédent en cherchant le maximum (figure A-19 (b))

La taille de la fissure est incrémentée, le taux de restitution d'énergie est calculé pour la nouvelle configuration de fissure et l'opération est reproduite en tête de la "nouvelle" fissure (figure A-19 (c)).

La charge d'indentation est ensuite augmentée pour continuer la propagation de la fissure.

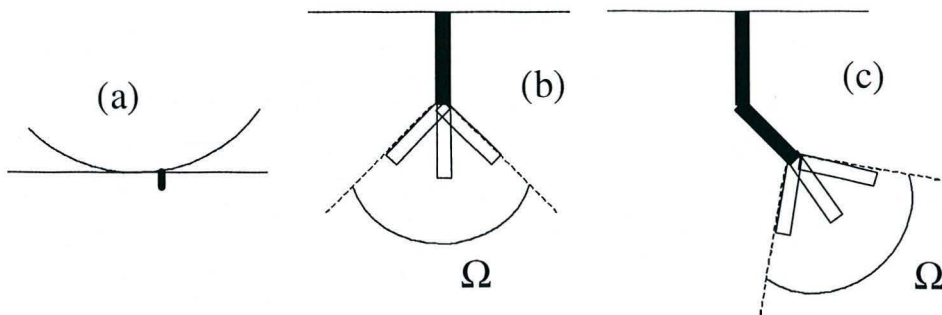


Figure A-19 : modèle de propagation de fissure (a) position de départ (b) premier incrément de fissure (c) second incrément de fissure

Ce modèle permet, pour le moment, de simuler la propagation de la fissure à partir de la surface de l'échantillon, pour le cas d'un matériau isotrope et homogène. La figure A-20 présente les résultats dans le cas de l'indentation d'une plaque de verre par un indenteur en verre, pour différentes positions du défaut. le verre sert ici de matériau modèle puisque les résultats sur l'angle de la fissure sont connus [Lawn74, Kocer98]

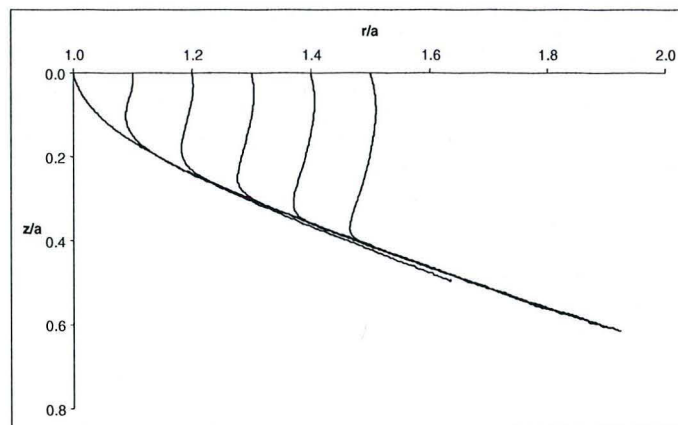


Figure A-20 : simulation de la propagation d'une fissure dans le verre.

Verre & indenteur ( $E=70 \text{ GPa}$ ,  $\nu=0.22$ )  $P=50 \text{ N}$   $R=4 \text{ mm}$ . Position du défaut  $r/a = 1.0, 1.1, 1.2, 1.3, 1.4$  et  $1.5$ ;  $a=0.1598 \text{ mm}$

Les courbes de la figure A-20 montrent que pour des positions de départ éloignées de la zone de contact, la fissure reste approximativement perpendiculaire à la surface tant que la trajectoire est sensiblement différente de celle calculée pour un point de départ près de la zone de contact. Cette trajectoire est en fait la

Annexe 8- Simulation des trajectoires de fissure lors d'un contact de Hertz.

trajectoire optimale à cause des hypothèses du modèle. En effet, une des hypothèses est que la présence de fissure ne perturbe pas le champ de contrainte dans le matériau, ce qui n'est pas le cas dans le matériau réel puisqu'il y a relaxation des contraintes en tête de fissure, la non relaxation des contrainte est compensée par la présence du mode II. C'est pourquoi, expérimentalement, on observe des fissures qui ont des formes très proches des fissures simulées au plus près de la zone de contact. De plus, d'après les équations du champ de contraintes, les contraintes maximales se trouvent au plus près de la zone de contact et décroissent rapidement, donc la trajectoire optimale se trouve au plus près de la zone de contact.

A partir de ces résultats, il est possible de déterminer l'angle de la fissure par rapport à la surface de l'échantillon, avec la pente de la zone rectiligne. Dans le cas du verre, les simulations ont été réalisées pour des positions de défauts allant de 1,0 à 1,5 fois la zone de contact et des charges d'indentation allant de 10 à 100N. pour un indenteur en verre le tableau A-3 résume les résultats des différentes simulations.

P (N)	$r_c/a$	angle (°)	P (N)	$r_c/a$	angle (°)
10	1.0	29.83	10	1.0	29.46
10	1.1	28.15	20	1.0	29.81
10	1.2	26.81	30	1.0	29.49
10	1.3	25.61	40	1.0	28.97
10	1.4	25.55	50	1.0	29.44
10	1.5	25.13	70	1.0	29.67
50	1.0	30.52			
50	1.1	30.50			
50	1.2	27.50			
50	1.3	26.06			
50	1.4	26.29			
50	1.5	24.95			
100	1.0	35.19			
100	1.1	37.07			
100	1.2	31.00			
100	1.3	28.07			
100	1.4	26.35			
100	1.5	25.34			

P (N)	$r_c/a$	angle (°)
10	1.1	27.92
20	1.1	27.83
30	1.1	28.01
40	1.1	28.71
50	1.1	29.07
60	1.1	30.96
70	1.1	31.11
80	1.1	32.47
90	1.1	35.36
100	1.1	37.26

Tableau A-3 : angle des fissures en cône pour des indentations verre sur verre

Pour une charge fixe, avec une position croissante du défaut par rapport à la zone de contact, l'angle entre la surface et la fissure, dans sa partie linéaire, diminue. En revanche, pour une position fixe du défaut et une augmentation de la charge, cet angle augmente. Notons que les angles déterminés pour les différentes charges et les différentes positions du défaut sont supérieures aux angles déterminés expérimentalement lors de notre étude du verre float ( $24^\circ \pm 2^\circ$ ) et ceux généralement admis dans la littérature ( $22^\circ$ ) [Kocer98, Lawn74]

Ces différences peuvent être attribuées aux hypothèses du modèle, notamment le fait que la présence de la fissure ne perturbe pas le champ de contraintes en tête de fissure ce qui a une influence sur l'angle déterminé

#### Annexe 8- Simulation des trajectoires de fissure lors d'un contact de Hertz.

comme l'a montré Kocer [Kocer98]. De plus, dans notre modèle, il existe une forte influence du mode II à cause de la prise en compte du départ de la fissure à partir de la surface. La présence du mode II permet de compenser le fait que les contraintes ne sont pas relaxées lors de la propagation de la fissure. Cette zone de fissure est ignorée dans le cas du modèle de Franck & Lawn pour la détermination de la ténacité et Kocer ne tient pas compte du mode II dans ces simulations. Dans notre cas, la contribution du mode II peut atteindre 50% au départ de la fissure pour les positions de départ situées entre 1,1 et 1,4 et reste très élevées le long de la fissure (de l'ordre de 30%).



Annexe 8- Simulation des trajectoires de fissure lors d'un contact de Hertz.

**Annexe 9-** Profils de contraintes sur des microstructures idéales en traction (avec contraintes résiduelles)

Cas d'un ellipsoïde soumise à une contrainte de traction uniaxiale (de 0 à 1000MPa), le long de son petit axe – analyse selon le grand axe. Fraction volumique de l'ellipsoïde : 3,5% - rapport d'élongement : 0,2

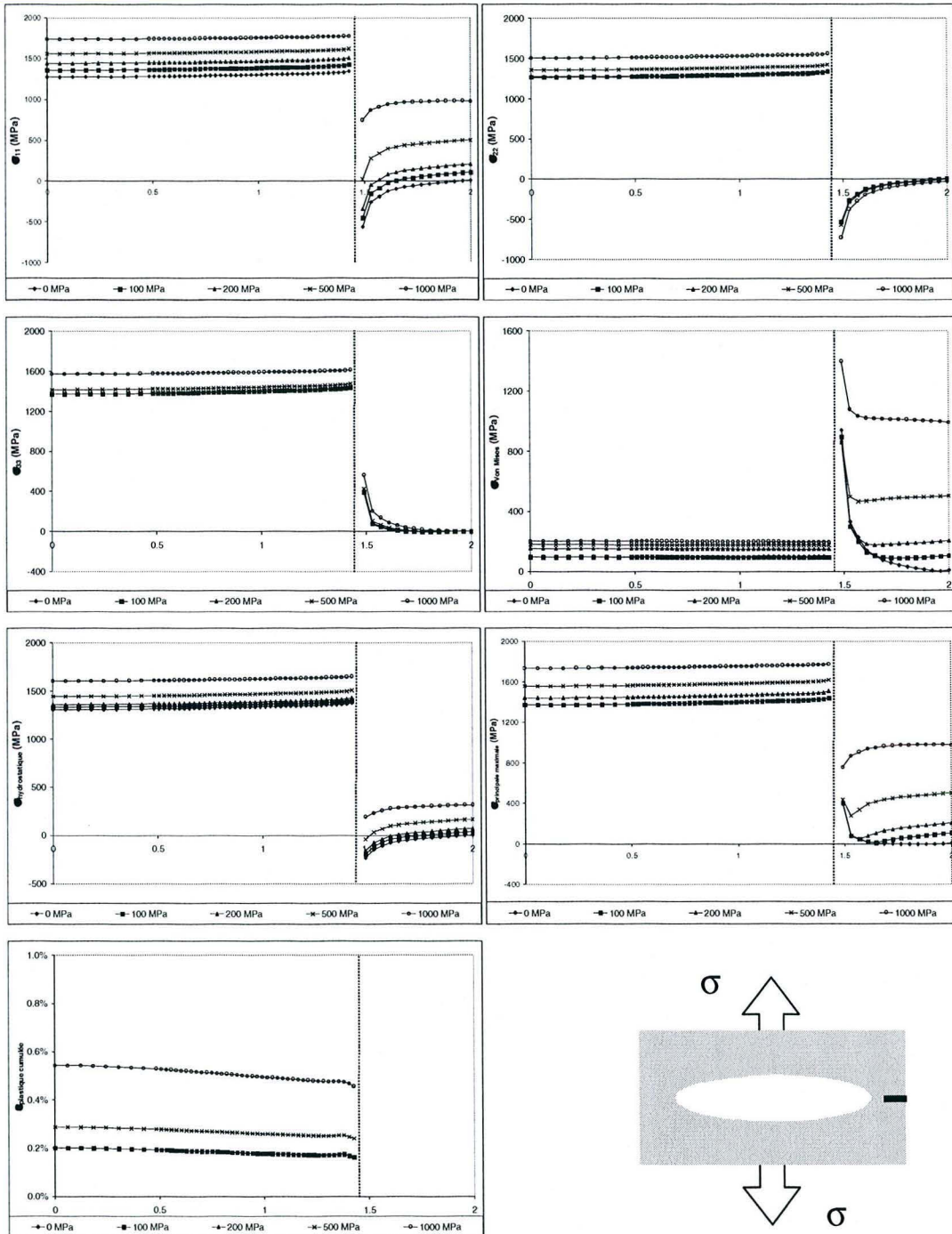


Figure A-21 : profils de contraintes le long du grand axe

Annexe 9- Profils de contraintes sur des microstructures idéales en traction (avec contraintes résiduelles)

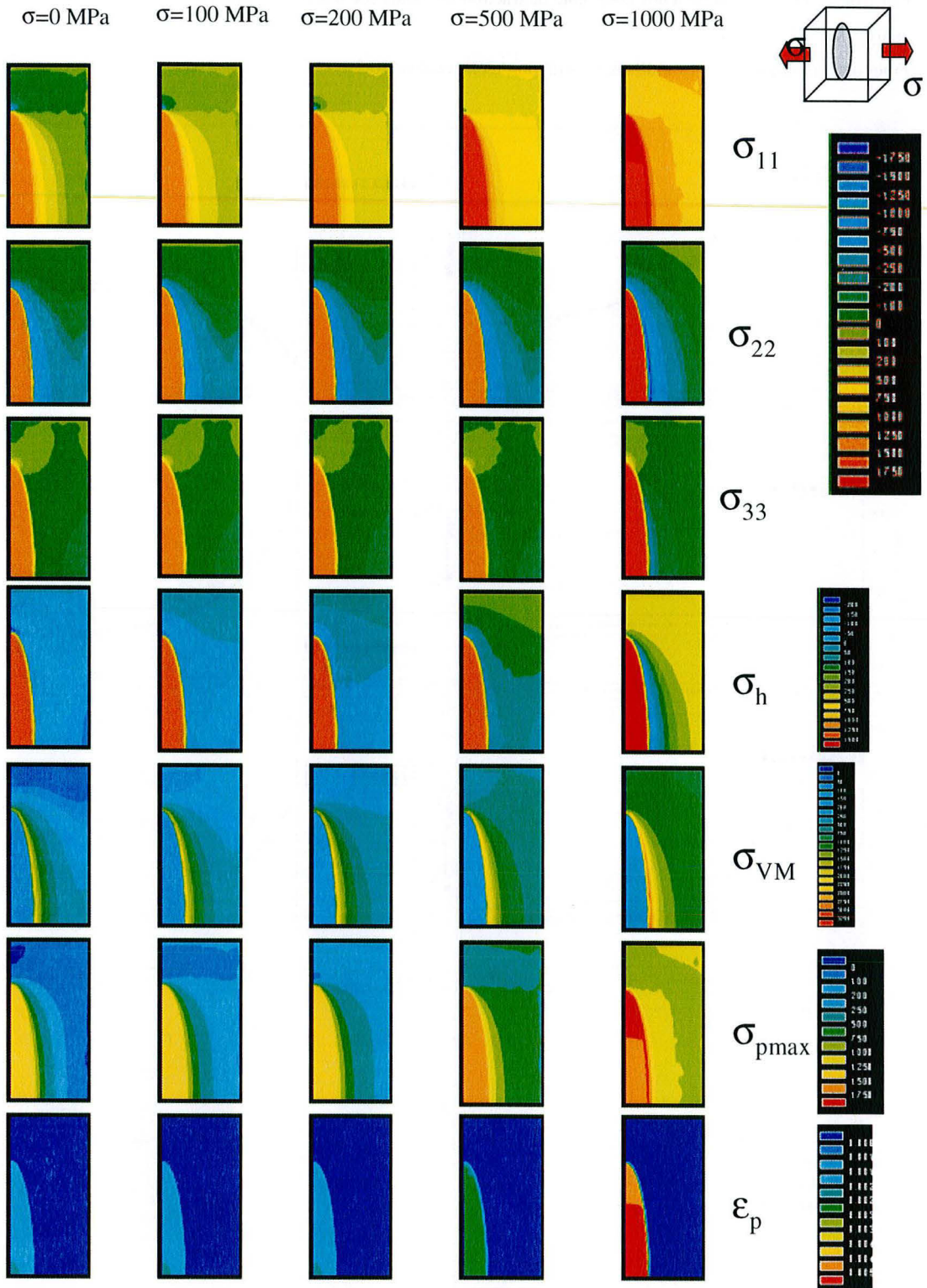


figure A-22 : iso-contraintes et iso-déformation pour une ellipsoïde sollicitée le long de son petit axe

Annexe 9- Profils de contraintes sur des microstructures idéales en traction (avec contraintes résiduelles)

Cas d'un ellipsoïde soumise à une contrainte de traction uniaxiale (de 0 à 1000MPa), le long de son grand axe – analyse selon le petit axe

Fraction volumique de l'ellipsoïde : 3,5% - rapport d'élongement : 0,2

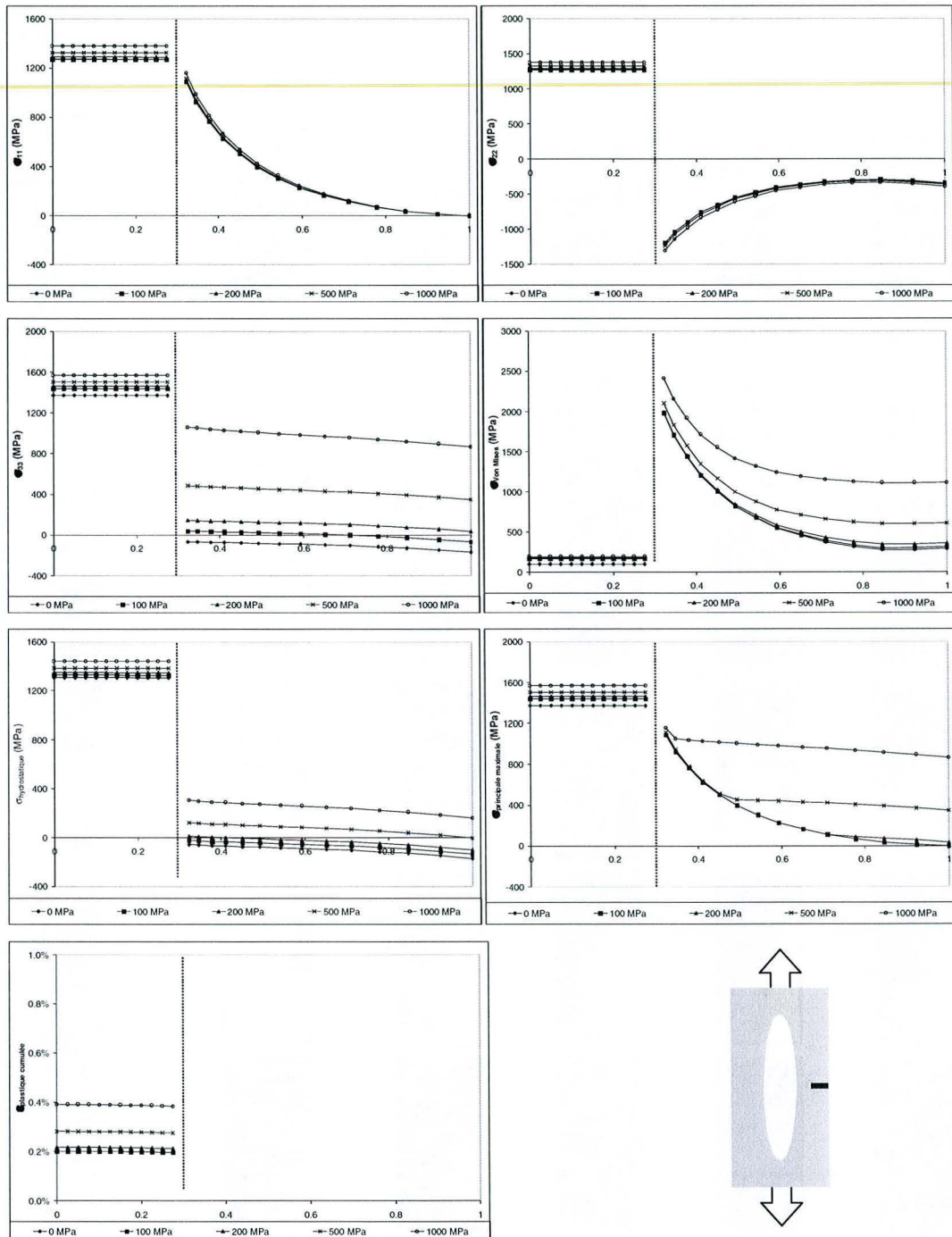


Figure A-23 : profils de contrainte le long du petit axe



Annexe 9- Profils de contraintes sur des microstructures idéales en traction (avec contraintes résiduelles)

Cas d'un ellipsoïde soumise à une contrainte de traction uniaxiale (de 0 à 1000MPa).

analyse selon l'axe perpendiculaire à la direction de traction.

Fraction volumique : 1%

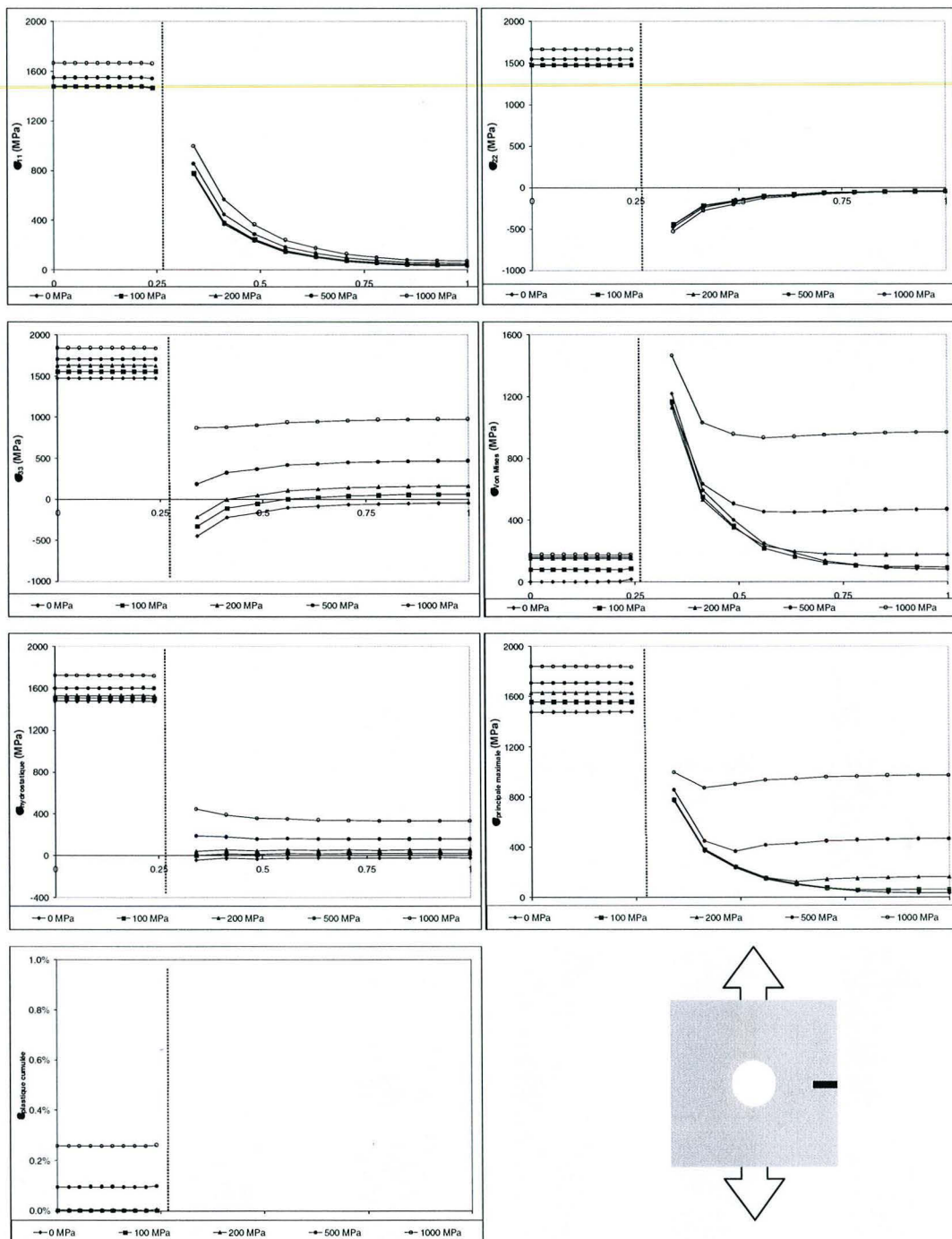


Figure A-25 : profils de contrainte le long d'un diamètre de la sphère

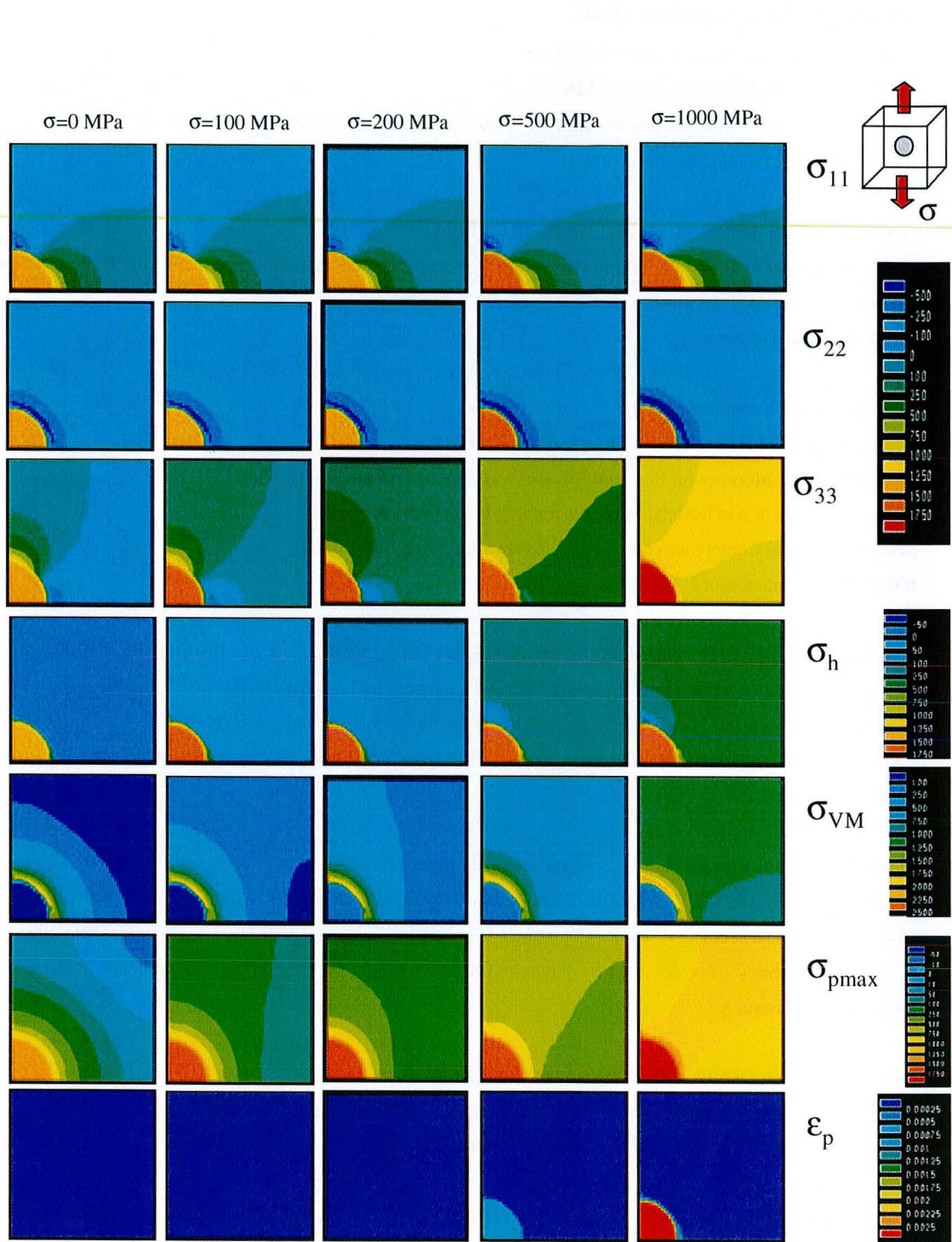


Figure A-26 iso-contraintes et iso-déformation pour une particule sphérique

**Annexe 10– Liste des publications**

Publications dans des revues à comité de lecture

G. GEANDIER, S. DENIS, A. MOCELLIN

"Float glass fracture toughness determination by Hertzian contact : experiments and analysis"

Journal of Non Crystalline Solids (accepté)

---

G. GEANDIER, S. DENIS, A. HAZOTTE, A. MOCELLIN & E. MAIRE

**"Microstructural analysis of alumina chromium composite by X-Ray tomography and 3-D finite element simulation of thermal stresses"**

Scripta Materialia (accepté)

Actes de congrès à comité de lecture

G. GEANDIER, A. HAZOTTE, S. DENIS, A. MOCELLIN,

**International Conference on Residual Stresses 6 (ICRS 6) Oxford (juillet 2000)**

"Internal Stresses in Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Metal Microstructure: A Finite Element Analysis"

Sixth International Conference on Residual Stresses (ICRS 6), Oxford 2000

IOM Communications vol 1, p785-792

G. GEANDIER, P. WEISBECKER, S. DENIS, A. HAZOTTE, A. MOCELLIN J.L. LEBRUN & E. ELKAIM

European Conference on Residual Stresses (ECRS6) – Coïmbra (10-12 juillet 2002)

*Materials Science Forum vol 404-407, Trans. Tech. Publications Switzerland (2002) p547-552*

*"X-Ray Diffraction Analysis of Residual Stresses in Alumina-Chromium Composites and comparison with numerical simulations"*

Publications dans des revues et des actes sans comité de lecture

G. GEANDIER, S. DENIS, P. WEISBECKER, A. HAZOTTE, A. MOCELLIN, J.L. LEBRUN & E. ELKAIM

Colloque SF2M Ouest et GFAC sur les Contraintes Résiduelles - Saint Nazaire (22-23 Mars 2001) - p93-100

"Contraintes internes dans des cermet Alumine-Chrome : Etude micromécanique et première analyse par diffraction des rayons X."

G. GEANDIER, S. DENIS, A. HAZOTTE, A. MOCELLIN

1ère Journée d'Etude sur le Matériau Verre en Lorraine – Nancy (5 Octobre 2001) - 12 pages

"Détermination de la ténacité d'un verre flotté par contact hertzien : expériences et analyses"

P. WEISBECKER, G. GEANDIER, S. DENIS, A. HAZOTTE, A. MOCELLIN J.L. LEBRUN & E. ELKAIM

Actes Colloque GFAC : caractérisation expérimentale des contraintes : techniques avancées et nouveaux matériaux – Troyes (7-8 mars 2002), p59-66

"Détermination des Contraintes Résiduelles dans des Composites Alumine-Chrome par Diffraction des Rayons X Synchrotron"



Communications dans des congrès ou colloques

G. GEANDIER, S. DENIS, A. HAZOTTE, A. MOCELLIN

Junior EuroMat 2000 – Lausanne (28 août – 1<sup>er</sup> septembre 2000)

"Development of microstructure and residual stresses in  $Al_2O_3$ -Cr composites obtained from mechanosynthesis powders"

---

G. GEANDIER, P. WEISBECKER, S. DENIS, A. HAZOTTE, A. MOCELLIN J.L. LEBRUN & E. ELKAIM

**LURE's User meeting 2001 - Orsay (18-19 janvier 2001)**

Colloque de l'Institut Lorrain des Matériaux - Metz (14 mars 2001)

Poster : "Residual stresses determination in  $Al_2O_3$ -Cr composites"

Rapports internes

Rapport bibliographique – juin 1999

Différentes méthodes pour la mesure de ténacité

Analyses microstructurales des cermets alumine métal

Théorie d'indentation de Hertz – novembre 1999

Rapport bibliographique sur l'indentation hertzienne

Calculs dans le cas du verre

Rapport d'avancement de thèse – juin 2000

Calculs micromécaniques sur des composites alumine chrome

Analyses microstructurales des cermets alumine chrome

Détermination des contraintes dans des cermets alumine chrome – décembre 2000

Bilan des expériences menées au LURE en septembre 2000 sur les cermets alumine chrome

Indentations de Hertz : Verre float planilux - juin 2001

Bilan des expériences d'indentation du verre float fourni par Saint Gobain recherche

Détermination des contraintes dans des cermets alumine chrome – novembre 2001

Bilan des expériences menées au LURE en mai 2001 sur les cermets alumine chrome

Indentation de Hertz sur une plaque WC-Co : estimation de la ténacité – avril 2002

Bilan des expériences d'indentation d' un composite WC-Co

## Bibliographie

---

## Bibliographie

- [Abde95] M. Abdellaoui & E. Gaffet, "The physics of mechanical alloying in a planetary ball-mill : mathematical treatment", *Acta Metallurgica and Materialia*, **43** (1995) 1087-1098
- [Agha89] M.K. Aghajanian, N.H. Macmillan, C.R. Kennedy, S.J. Luszcz, R. Roy, "Properties and microstructures of lanxide  $Al_2O_3$ -Al ceramic composite materials", *Journal of Materials Science*, **24** (1989) 658-670
- [Akbu98] H. Akbulut, M. Durman, F. Yilman, "High temperature Young's Modulus of alumina short fibre reinforced Al-Si MMC's produced by liquid infiltration" *Materials science and technology* **14** (1998) 299-305
- [Akse01] E.O. Akser, K.L. Choy, "Finite element analysis of the stress distribution in a thermally and transversely loaded Ti-6Al-4V/SiC fibre Composite" *Composites Part A* **A32** (2001) 241-251
- [Albe92] H.L. Alberts, J.A.J. Lourens, *J. Phys : Condensed Mater* **4** (1992) 3835-3846
- [Aldr01] M. Aldridge, J.A. Yeomans, "Thermal shock behavior of iron particle toughened alumina", *Journal of the American Ceramic Society* **84** [3] (2001) 603-607
- [Allen64] N.P. Allen "Etude comparée des métaux cubiques centrés des groupes IV à VIII" *mémoires scientifiques de la revue de métallurgie* **12** (1964) 827-840
- [Alos96] A. Al-Ostaz, I. Jasiuk "The influence of interface and arrangement of inclusions on local stresses in composite materials" *Acta Materialia* **45** [10] (1996) 4131-4143
- [Al-os97] A. Al-Ostaz, I. Jasiuk, "Crack initiation and propagation in materials with randomly distributed holes", *Engineering Fracture Mechanics* **58** [5-6] (1997) 395-420
- [Al-os98] K. Alzebdeh, A. Al-Ostaz, I. Jasiuk, M. Ostoja-Starzewski, "Fracture of random matrix-inclusion composites scale effects and statistics", *International Journal of Solids Structures* **35** [14] (1998) 2537-2566
- [Andr50] C.W. Andrews "Effects of temperature on the modulus of elasticity" *Metal Progress* (1950) p85-90
- [Ansti81] G.R. Anstis, P. Chantikul, B.R. Lawn & D.B. Marshall, "A critical evaluation of indentation techniques for measuring fracture toughness: I direct crack measurements" *Journal of the American Ceramic Society* **64** [9] (1981) 533-538.
- [Aphe01] Aphelion ADLIS S.A. Caen (France) (2001)
- [Arau93] L.R. de Araujo Pontes, "Mécanosynthèse d'alliages et de composés : mécanismes et cinétiques de formation, caractérisations des matériaux", thèse INPL Nancy (1992)
- [Arse91] R.J. Arsenault, L. Wang & C.R. Feng, "Strengthening of composites due to microstructural changes in the matrix", *Acta Metallurgica and Materialia*, **39** [1], (1991), 47-57
- [Ashb89] M.F. Ashby, F.J. Blunt, M. Bannister, "Flow characteristics of highly constrained metal wires", *Acta Metallurgica*, **37** [7], (1989), 1847-1957
- [Auer91] F. Auerbach "Absolute Härtemessung" *Ann. Phys. Chem.* **43**, (1891), 61.
- [Babo01] L. Babout, E. Maire, J.Y. Buffière, R. Fougères, "Characterisation by X-ray computed tomography of decohesion porosity growth and coalescence in model metal matrix composites" *Acta Materialia* **49** (2001) 2055-2063

## Bibliographie

- [Bao90] G. Bao & C.Y. Hui, "Effects of interface debonding on the toughness of ductile particle reinforced ceramics", *International Journal of Solids and Structures*, **26** [5/6], (1990), 631-642
- [Barq82] M. Barquins & D. Maugis "Adhesive contact of axisymmetric punches in an elastic half-space : the modified Hertz Huber's stress tensor for contacting sphere" *Journal de mécanique théorique et appliquée* **1** [2] (1982) 331-357
- [Bela96] M. Belassel, J.L. Lebrun, H. Ruppertsberg, "Triaxial elastoplastic stresses in the ferrite phase of pearlitic steel and their influence on the results obtained from X, Ray stress analysis", *Actes Fourth European Conference on Residual Stresses ECRS 6*, 1996, **vol 2**, p997, 1002
- [Belm96] M. Belmonte, P. Miranzo, "Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/SiC platelet composites. Effects of sintering conditions", *Journal of the European Ceramic Society* **17** (1997) 1253-1256
- [Belo67] L. Belon, H. Forester, Y. Bigot "The hardness of some solid solutions of alumina Proc 4th symposium on special ceramics" *British Ceramic Research Association* (1967)
- [Benj70] J.S. Benjamin, "Dispersion strengthened superalloys by mechanical alloying", *Metall. Trans.*, **1** (1970) 2943-2951
- [Bine94] S.B. Biner, "A numerical analysis of crack propagation in microcracking ceramics and ceramic composites", *Journal of Non Crystalline Solids*, **177** (1994) 36-45
- [Bisr00] Y. Bisrat S.G. Roberts "Residual Stress measurement by Hertzian indentation" *Materials Science and Engineering* **A288** (2000) 148-153
- [Bobe95] J.L. Bobet R. Naslian A. Guette N. Ji J.L. Lebrun "Thermal residual stresses in ceramic matrix composites II Experimental results for model materials" *Acta Metallurgica & Materialia* **43** [6] (1995) 2255-2268
- [Bole63] D.L. Bolef J. De Klerk "Anomalies in the elastic constants and thermal expansion of chromium single crystals" *Physical Review B* **129** [3] (1963) 1063-1067
- [Boll67] F. Bollenrath, V. Hauk, E.H. Müller "Zur Berechnung der Vielkristallen Elastizitätskonstanten aus den Werten der Einkristalle" *Z. Met.* **58** (1967) 76-82
- [Broe91] J.B. Broeckbrough, S. Suresh, Wienecke H.A. "Deformation of metal-matrix composites with continuous fibers: geometrical effects of fiber distributions and shape" *Acta Metallurgica & Materialia* **39** [5] (1991) 735-752
- [Broe96] C. Broeckmann, A Pyzalla-Schieck, "Microstructural aspects of failure in particle reinforced metal matrix composites", *Computational Material Science* **5** (1996) 32-44
- [Brun97] P. Le Brun, L. Froyen & L. Delaey, "The modelling of the mechanically alloying process in a planetary ball-mill : comparison between theory and in-situ observations", *Materials Science and Engineering*, **A162** (1997) 75-82
- [Budi86] B. Budiansky, Hutchinson J.W., Evans A.G., "Matrix fracture in fiber-reinforced ceramics", *J. Mech. Phys. Solids.*, **34** [2] (1986) 167-189.
- [Buff99] J.Y. Buffière, E. Maire, P Cloetens, G. Lormand, R. Fougères, "Characterisation of internal damage in a MMCP using X-ray synchrotron phase contrast microtomography" *Acta Metallurgica* **47** [5] (1999) 1613-1625
- [Bull64] F.P. Bullen, F. Henderson, H.L. Wain, "The effects of hydrostatic pressure on brittleness in chromium" *Philosophical Magazine* **9** (1964) 803-812

- [Buyu98] O. Buyukozturk, B. Hearing, "Crack propagation in concrete composites influenced by interface fracture parameters", *International Journal of Solids and Structures* **35** [31-32] (1998) 4055-4066
- [Caer90] G. Le Caër, "Mechanically driven synthesis of carbides and silicides", *Journal of Material Science*, 25 (1990) 4726-31
- [Caer94] G. Le Caër, P. Delcroix, M.O. Kientz & B. Malaman, "The study of Fe-based mechanically alloyed materials by Mössbauer spectroscopy", international symposium on metastable mechanically alloyed and nanocrystalline materials, Grenoble, Materials science forum, June (1994)
- [Cama82] P.C. de Camargo F.R. Brotzen "Elastic constants of antiferromagnetic chromium-vanadium alloys" *Journal of Magnetism and Magnetic Materials* **27** (1982) 65-70
- [Carl01] S. Carlsson P.L. Larsson "On the determination of residual stress and strain fields by sharp indentation testing : part II experimental investigation" *Acta Materialia* **49** (2001) 2193-2203
- [Chen92] Y. Chen, R. Le Hazif & G. Martin, "Influence of milling conditions on the formation of metastable phases : the crystal to amorphous transition", *Solid State Phenomena* **23-24** (1992) 271-284
- [Chen95] S.Y. Cheng, T.N. Farris, S. Chandrasekar, "Contact mechanics of Hertzian cone cracking", *International Journal of Solids Structures* **32** [3-4] (1995) 329-340
- [Choo99] H. Choo, M. Bourke, P. Nash, M. Daymond, N. Shi, "Thermal residual in NiAl-ALN- $Al_2O_3$  composites measured by neutron diffraction", *Materials Science and Engineering*, **A264**, 1999, 108-121
- [Chou95] W.B. Chou, W.H. Tuan, "Toughening and strengthening of alumina with silver inclusions", *Journal of the European Ceramic Society* **15** (1995) 291-295
- [Chri89] T. Chrisman A. Needleman S. Suresh "An experimental and numerical study of deformation, I metal ceramic composites" *Acta Metallurgica* **37** [11] (1989) 3029-3050
- [Chun69] D.H. Chung G. Simmons "The Pressure and Temperature Dependence of the Isotropic Elastic Moduli of Polycrystalline Alumina" *Journal of Applied Physics* **39** (1968) 5316
- [Chun68] D.H. Chung W.R. Buessem "The Voight-Reuss-Hill approximation and the elastic moduli of polycrystalline  $ZnO_2$ ,  $TiO_2$  (rutile) and  $Al_2O_3$ " *Journal of Applied Physics* **39** n°6 (1968)
- [Cobl56] R.L. Coble W.D. Kingery "Effect of porosity on physical properties of sintered alumina" *Journal of the American Ceramic Society* **39** [11] (1956) 377-385
- [Cook87] R.F. Cook, "Crack resistance by interfacial bridging : its role in determining strength characteristics", *Journal of Materials Research*, **2** [3] (1987) 345-356
- [Dalli97] M.P. Dallimore, P.G. McCormick, "Distinct element modelling of mechanical alloying in a planetary ball mill", *Materials Science Forum*, **235-238** (1997), mai-14
- [Deve90] H.E. Deve, A.G. Evans, G.R. Odette, R. Mehrabian, "Ductile reinforcement toughening of  $\gamma$ -TiAl effects of debonding and ductility", *Acta Metallurgica & Materialia*, **38** [8] (1990) 1491-1502
- [Digi01] A.A. Digiovanni H.M. Chan M.P. Harmer H.F. Nied "Micromechanics of deformation in porous liquid-phase-sintered alumina under hertzian contact" *Journal of the American Ceramic Society* **84** [8] (2001) 1844-1850

## Bibliographie

- [Dubr97] N.A. Dubrovinskaia L.S. Dubrovinski S.K. Saxena "Thermal expansion of chromium (Cr) to melting temperature" *Calphad* **21** [4] 1997 497-508
- [Dura90] L. Durand C.T. de Montpréville "Etude du comportement mécanique des matériaux biphasés au moyen de la méthode des éléments finis" *Res mechanics* **29** (1990) 257-285
- [Dutt01] A.K. Dutta, N. Narasaiah, A.B. Chattopadhyaya, K.K. Ray, "The load dependence of hardness in alumina silver composites", *Ceramics International*, **27** (2001) 407-413
- [Eaga78] R.J. Eagan, J.C. Swearingen "Effect of composition on the mechanical properties of aluminosilicate and borosilicate glasses" *Journal of the American Ceramic Society* **41** [1-2] (1978) 27-30.
- [Elka96] R. Elkakouli, M. Grosbras, R. Morel & J.F. Dinhut, "Efficacité de la mécanosynthèse dans la réalisation d'un alliage Cu80Co20", SF2M Colloque traitement des poudres, Paris, mars (1996)
- [Enay97] M.H. Enayati, I.T.H. Chang, P. Schumacher, B. Cantor, "Mechanical alloying of Ni-Nb alloys" *Materials Science Forum*, vol **235-238** (1997) 85-90
- [Evan72] A.G. Evans, "The strength of brittle materials containing second phase dispersions" *Philosophical Magazine* **26** (1972) 1327-1344
- [Even71] P.D. Evershore, W. Fröhlich, V. Hauk "Berechnung der röntgenographischen Elastizitätskonstanten aus den Einkristallkoeffizienten hexagonal kristallisierender Metalle" *Z. Met.* **62** (1971) 38-42
- [Even72] P.D. Evershore, V. Hauk "Berechnung der röntgenographischen Elastizitätskonstanten aus den Einkristallkoeffizienten hexagonal kristallisierender Metalle" *Z. Met.* **63** (1972) 798-801
- [Ewsu96] K. Ewsuk, S. J. glass, R.E. Loehman, A.P. Tomsia, W.G. Fahrenholtz, "Microstructure and properties of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Al(Si) and Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Al(Si)-Si composites formed by in situ reaction of Al with aluminosilicate ceramics", *Metallurgical and Materials Transactions*, **27A** (1996) 2122-2129
- [Fabe83] K.T. Faber & A.G. Evans, "Crack deflection processes – I. Theory", *Acta Metallurgica* **31** [4] (1983) 565-576
- [Fabe83b] K.T. Faber & A.G. Evans, "Crack deflection processes – II. Experiment", *Acta Metallurgica* **31** [4] (1983) 577-584
- [Fang02] Y. Fang, K. Ravi-chandar, K.W. White "Influence of surface residual stress state on crack path evolution in polycrystalline alumina" *Journal of the American Ceramic Society* **85** [7] (2002) 1783-87
- [Fior00] F. Fiori E. Girardin A. Giuliani T. Lorentzen A. Pyzalla F. Rustichelli V. Stanic "neutron diffraction measurements for the determination of residual stresses in MMC tensile and fatigue specimens" *Physica B* **276-278** (2000) 923-924
- [Fisc94] A. Fischer A. Pyzalla Schieck "Calculation of thermal micro residual stresses in materials containing coarse hard phases" *Computational Materials Science* **2** (1994) 270-278
- [Fish97] A.C. Fischer-Cripps "Predicting Hertzian fracture" *Journal of Material Sciences* **32** (1997) 1277-1285
- [Fitz97] M.E. Fitzpatrick M.T. Hutchings P.J. Withers "Separation of macroscopic, elastic mismatch and thermal expansion misfit stresses in metal matrix composite quenched plates from neutron diffraction measurements" *Acta Materialia* **45** [12] (1997) 4867-4876
- [Fran67] F.C. Frank & B.R. Lawn, "On the theory of Hertzian fracture" *Proceedings Royal Society*, **A229**

- (1967) 291.
- [Gaff91] E. Gaffet, "Ball milling : an E-v-T parameter phase diagram", *Materials Science and Engineering A* **135** (1991) 291-293
- [Gaff96] E. Gaffet & N. Malhouroux-Gaffet, "Elaboration par recuit activé mécaniquement : cas des systèmes Fe-si, Mo-Si", *SF2M Colloque Traitement des poudres*, Paris, (1996)
- [Gene92] M. Genevrier "Synthèse et propriétés mécaniques de composites de cordierite : un nouveau modèle de déviation de fissure", thèse de l'Institut Polytechnique de Lorraine (1992)
- [Genz97] C. Genzel "X-ray stress gradient analysis in thin layers problems attempts at their solution" *Phys Stat Sol (a)* **159** (1997) 283-296
- [Gian91b] A.E. Ginnakopoulos P. Gudmundson "The stresses around a partly microcracked hole in certain ceramic materials under internal pressure" *International Journal of Solids and Structures* **28** (1) (1991) 329-339
- [Gian91a] A.E. Giannakopoulos, K. Breder, "Synergism of toughening mechanisms in Whiskers reinforced ceramic matrix composites", *Journal of the American Ceramic Society* **74** [1] (1991) 194-202
- [Gilb63] A. Gilbert C.N. Reid G.T. Hahn "Observations on the fracture of chromium" *Journal of the Institute of Metals* **92** (1963-64) 351-356
- [Good97] P.S. Goodwin, C.M. Wand-Close, "Mechanical alloying of titanium based materials" *Materials Science Forum*, vol **235-238** (1997) 53-58
- [Grar94] M. Grardel, "Mécanosynthèse d'acier ferritique ODS : paramètres du procédé et microstructure du matériau", thèse INPG, Grenoble, (1994)
- [Gree99] D.J. Green P.Z. Cai G.L. "Messing Residual stresses in alumina Zirconia Laminates" *Journal of the European Ceramic Society* **19** (1999) 2511-2517
- [Grif20] A.A. Griffith, "The phenomena of rupture and flow in solids", *Philosophical Magazine A*, (1920), 163-199
- [Guic98a] J.L. Guichard, "Elaboration et caractérisation de cermets alumine-métal à partir de poudres obtenues par mécanosynthèse", thèse INPL, Nancy (1998)
- [Guic97] J.L. Guichard, O. Tillement, A. Mocellin, "Preparation and characterization of alumina-iron cermets by hot pressing of nanocomposite powders", *Journal of Materials Science*, **32** (1997) 4513-4521
- [Guic98b] J.L. Guichard, O. Tillement, A. Mocellin, "Alumina chromium cermets by hot pressing of nanocomposites powders", *Journal of the European Ceramic Society* **18** (1998) 1743-1752
- [Hadd99] H. Haddadi, C. Teodosiu, "3D-analysis of the effect of interfacial debonding on the plastic behaviour of two phase composite", *Computational Material Science* **16** (1999) 315-322
- [Hami66] G.M. Hamilton & L.E. Goodman, "The stress field created by a circular sliding contact", *Journal of Applied Mechanics*, (june 1966) 371-376.
- [Hami83] G.M. Hamilton, "Explicit equations for the stresses beneath a sliding spherical contact", *Proc, Instm Mech Engrs*, **197C** (1983) 53-59.
- [Hana83] T. Hanabusa, K. Nishioka, H. Fujiwara, *Z. Metallkde*, **74** (1983) 307-
- [Hand70a] *Thermophysical Properties of Matter*, vol. **12** – Thermal Expansion : Metallic Elements and Alloys, N.Y. Wash (1970) 61-67

## Bibliographie

- [Hand70c] Thermophysical Properties of Matter, vol. **12** – Thermal Expansion : Metallic Elements and Alloys, N.Y. Wash (1970) 176-185
- [Haqu00] S. Haque, K.L. Choy, "Finite element modelling of the effect of a functionally graded protective coating for SiC monofilament on Ti based composite behaviour", *Materials Science & Engineering A* **291** (2000) 97-109
- [He89] M. He, J.W. Hutchinson, "Crack deflection at an interface between dissimilar elastic materials", *Int. J. Solids Structures* **25** (1989) 1053-1067
- [He89-2] M.Y. He & J.W. Hutchinson, *Trans. ASME.*, **56** (1989) 270
- [Hert82] Hertz H. "Über die Berührung fester elastischer Körper" *Journal für Reine und Angewandte Mathematik* **92** (1882) 156-171
- [Hert96] H. Hertz "Hertz's miscellaneous Paper" chap 5 et 6 Macmillan London (1896)
- [Heue70] A.H. Heuer RM. Cannon N.J. Tighe "Plastic Deformation in fine grain ceramics" *Ultra Fine Ceramics* Syracuse Univ Press (1970 )
- [Hoff99] M. Hoffman S.Skirl W. Pompe J. Rödel "Thermal residual strains and stresses in Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Al composites with interpenetrating networks" *Acta Materialia* **47** [2] (1999) 565-577
- [Hom100] M. Holmquist, R. Lundberg, O. Sudre, A.G. Razzell, L. Molliex, J. Benoit, J. Adlerbron "Alumina/alumina composite with a porous zirconia interphase – Processing, properties and component testing" *Journal of the European Ceramic Society* **20** (2000) 599-606
- [Hon198] S. Höhle, S. Schamider, "Micromechanical simulation of crack growth in WC/Co using embedded unit cells", *Computational Materials science* **13** (1998) 56-60
- [Hube04] M.T. Huber, "Zur Theorie der Berührung fester elastischer Körper" *Ann. Physik* **14**, (1904), 153.
- [IC-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>] ICDD pdf 10-173
- [IC-AlCr] ICDD pdf 38-1026
- [IC-CeO<sub>2</sub>] ICDD pdf
- [IC-CR] ICDD pdf 06-694
- [IC-Si] ICDD pdf 27-1402
- [Iung95] T. Lung M. Grange "Mechanical Behaviour of Two-Phase Materials Investigated by the Finite Element Method: Necessity of Three-Dimensional Modelling" *Materials Science and Engineering A201* (1995) L8-L11
- [Jaen72] B. Jaensson B. Sundström "Determination of Young's modulus and Poisson' ratio for WC-Co alloys by the finite element method" *Material Science and Engineering* **9** (1972) 217-222
- [Jeon97] Y.K. Jeong, A. Nakahira, P.E.D. Morgan, K. Niihara, "Effect of milling conditions on the strength of alumina silicon carbide nanocomposites", *Journal of the American Ceramic Society* **80** [5] (1997) 1307-1309
- [Jern01] J.P. Jernot, P. Jouannot-chesney, C. Lantuejoul, "Mesure de la caractéristique d'Euler Poincare sur des images 2D ou 3D" *VIM 2001 Nancy (visualisation images et modélisation)* (2001) 187-194
- [Jiao98] S. Jiao & M.L. Jenkins, "A quantitative analysis of crack-interface interactions in alumina based nanocomposites", *Philosophical Magazine A*, **78** [2] (1998) 507-522
- [John73] K.L. Johnson J.J. O'Connor A.C. Woodward "the effect of the indenter elasticity on the Hertzian



- fracture of brittle material" Proc. R. Soc. Lond. A **334** (1973) 95-117
- [Kata79] K.W. Katahara M. Nimalendran M.H. Manghnani E.S. Fisher "Elastic Moduli Paramagnetic Chromium and Ti V Cr Alloys" J. Phys F. : Metal Phys. **6** (1979) 2167-2176
- [kim96] B.N. Kim, M. Watanabe, M. Enoki, T. Kishi, "Simulation of crack propagation process in particle dispersed composites", Materials Transactions JIM **37** [3] (1996) 404-408
- [Klug74] H.P. Klug L.E. Alexander "X-ray diffraction procedures for polycrystalline and amorphous materials" 2nd edition J. Wiley & sons New York (1974)
- [Knud62] F.P. Knudssen "Effects of porosity on Young's modulus of alumina" Journal of the American Ceramic Society - discussions and notes **45** (1962) 94-95
- [Koce98] C. Kocer, R.E. Collins, "Angle of Hertzian cone cracks", Journal of the American Ceramic Society **81** [7] (1998) 1736-1742
- [Koch83] C.C. Koch, O.B. Calvin, C.G. Ma Kamey & J.O. Scarbrough, "Preparation of amorphous Ni60NB40 by mechanical alloying", Appl. Phys. Letters, **43** (1983) 1017-1019
- [Kolh96] R. Kolhe C.Y. Hui E. Ustundag S.L. Sass "residual thermal stresses and calculation of the critical metal particle size for interfacial crack extension in metal-ceramic matrix composites" Acta Materialia **44** [1] (1996) 279-287
- [Kono01] K. Konopka, A. Ozieblo "Microstructure and the fracture toughness of the Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Fe composites", Materials Characterization **46** (2001) 125-129
- [Kraw85] A.D. Krawitz "the use of X-Ray stress analysis for WC-base Cermets" Materials Science and Engineering **75** (1985) 29-36
- [Kris83] V.D. Kistic, "On the fracture of brittle - matrix / ductile - particle composites", Philosophical Magazine A, **48** [5] (1983) 695-708
- [Kron58] E. Kröner "Berechnung des elastischen Konstanten des Vielkristalls aus den konstanten des einkristalls" Zeitschrift für Physics **151** (1958) 504-518
- [Kuma01] P. Kumar, N.A. Travitzky, P. Beyer, K.H. sandhage, R. Janssen, N. Claussen, "Reactive casting of ceramics composites (R-3C)", Scripta Materialia, **44** (2001) 751-757
- [Laar01] E. Laarz, M. Carlsson, B. Vivien, M. Johnsson, M. Nygren, L. Bergstörn, "Colloidal processing of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>based composites reinforced with TiN and TiC particulated, whiskers and nanoparticles", Journal of the European Ceramic Society **21** (2001) 1027-1035
- [Lamo97] J. Lamon J.L. Bobet "Influence des contraintes résiduelles sur le comportement mécanique des composites à matrice céramique" Revue de métallurgie (1997) 207-218
- [Lang70] F.F. Lange, "The interaction of a crack front with a second phase dispersion" Journal of the American Ceramic Society (1970) 983-992
- [Lask00] G.V. Lasko, Y.Y. Deryugin, S. Schamuder, S. Saraev "Determination of stresses near multiple pores and rigid inclusion by relaxation elements" Theoretical and Applied Fracture Mechanics **34** (2000) 93-100
- [Laug84] M.T. Laugier, "Hertzian indentation of sintered alumina", Journal of Materials Sciences **19** (1984) 254-258
- [Lawn68] B.R. Lawn, "Hertzian fracture in single crystals with the diamond structure", Journal of Applied Physics, **39** [10] (1968) 4828-4836.

## Bibliographie

- [Lawn74] B.R. Lawn T.R. Wilshaw & N.E.W. Hartley "A computer simulation study of Hertzian cone crack growth" *International Journal of fracture* **10** [1] (1974) 1-16
- [Lebo98] E. Le Bourhis, D. Metayer, "Indentation of glass as a function of temperature" *Journal of Non-Crystalline Solids* **272** (2000) 34-38.
- [Legu00] D. Leguillon, C. Lacroix, E. Martin, "Matrix crack deflection at an interface between a stiff matrix and a soft inclusion", *C.R. Acad Sci Paris* **328** série II b (2000) 19-24
- [Leon98] M. Leoni, P. Scardi, V.M. Sgiavo, "Relaxation of indentation residual stress in alumina : Experimental Observation by X-ray diffraction", *Journal of the European Ceramic Society*, **18**, 1998, 1663-1668
- [Levi94] I. Levin W.D. Kaplan D.G. Brandon "Residual stresses in alumina SiC nanocomposites" *Acta Metallurgica & Materialia* **42** [4] (1994) 1147-1154
- [Lieb01] M. Lieberthal, W.D. Kaplan, "Processing and properties of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> nanocomposites reinforced with sub-micro Ni and NiAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>", *Materials Science and Engineering*, **A302** (2001) 83-91
- [Lipp97] N. Lippmann, Th. Steinkopff, S. Schmauder, P. Gumbsch "3D-Finite-Element-Modelling of Microstructures With the Method of Multiphase Elements" *Computational Materials Science* **9** (1997) 28-35
- [Liu96] D.M. Liu, W.H. Tuan "Microstructure and thermal conduction properties of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Al composites" *Acta Materialia* **44** [2] (1996) 813-818
- [Loec96] R.E. Loechman, K. Ewsuk, A.P. Tomsia, "Synthesis of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Al composites by reactive metal penetration", *Journal of the American Ceramic Society* **79** [11] (1996) 27-32
- [Luca95] J.P. Lucas, "Determining fracture toughness of vitreous silica glass", *Scripta Metallurgica & Materialia* **32** [5] (1995) 743-748.
- [Lufo79] M.J. Luton , "Cryomilling of nanophase dispersion strengthened aluminium", *Mat. Res. Soc. Symp. Series*, ed. McCandlish et am., *Mat. Res. Soc., Pittsburg, P.A.*, **132** (1989) 79-86
- [Luo97] J. Luo, R. Stevens, "The role of residual stress on the mechanical properties of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 5 vol% SiC nanocomposites", *Journal of the European Ceramic Society* **17** (1997) 1565-1572
- [Ma93] Q. Ma, D.M. Clarke, *Journal of the American Ceramic Society* **76** (1993) 1433-
- [Mach61] E. Machenbauch, P. Muller "Das sin<sup>2</sup>psi Verfahren der röntgengraphischen Spannungsmessung" *Zeitschrift für angewandte Physik* **7** (1961) 305-312
- [Mai86] Y.W. Mai, B.R. Lawn, "Crack stability and toughness characteristics in brittle materials", *Ann. Rev. Mater. Sci.* **16** (1986), 415-439
- [Mair99] E. Maire, J.Y. Buffière, L. Salvo, J.J. Blandin, W. Ludwig, J.M. Letangone "The application of x-ray microtomography in the field of materials science" *Advanced Engineering Materials* **3-8** (2001) 539-546
- [Maju88] S. Majumdar, D. Kupperman, J. Singh "Determinations of residual thermal stresses in a Sic-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> composite using neutron diffraction" *Journal of the American Ceramic Society* **71** [10] (1988) 858-63
- [Marc62] M.J. Marcinkowski, H.A. Lipsitt "The plastic deformation of chromium at low temperature" *Acta Metallurgica* **10** (1962) 95-111
- [Marg00] S. Margueron, communications ONERA 2001

- [Mart99] A.E. Martinelli R.A.L. Drew E.A. Fancello R. Rogge J.H. Root "Neutron diffraction and finite element analysis of thermal residual stresses on diffusion bonded silicon carbide molybdenum joints" *Journal of the American Ceramic Society* **82** [7] (1999) 1787-92
- [Mata89] P.A. Mataga., "Deformation of crack-bridging ductile reinforcements in toughened brittle materials", *Acta Metallurgica*, **37** [12] (1989) 3349-3359
- [Mats00] Y. Matsumoto S. Ohta N. Aoki M. Morinaga "Microscopic fracture mechanism of sintered high purity chromium" *Materials science and engineering* **A285** (2000) 213-223
- [Mats96] Y. Matsumoto J. Fukumori M. Morinaga M. Furui T. Nambu T. Sakaki "Alloying effect of 3D transition elements on the ductility of chromium" *Scripta Materialia* **34** [11] (1996) 1685-1689
- [Matt97] P. Matteazzi, M. Alcalá, "Mechanomaking of Fe/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> and FeCr/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> nanocomposites powders fabrication", *Materials science and Engineering*, **A230** (1997) 161-170
- [Matz83] H. Matze V. Meyritz J.L. Routbort "Fracture-Surface Energy and Fracture Toughness of (U,Pu)(C,O)" *Journal of the American Ceramic Society* **66** (3) (1983) 183-188
- [Maur90] D.R. Maurice & T.H. Courtney, "The physics of mechanical alloying : a first report", *Metallurgical Transactions A*, **21A**, (1990), 289
- [Mayk55] D.J. Maykuth W.D. Klopp R.I. Jaffe H.B. Goodwin "A metallurgical evaluation of iodide chromium" *Journal of the Electrochemical Society* **102** [6] (1955) 316-331
- [Mayk57] D.J. Maykuth R.I. Jaffe "The Mechanical Properties of Swaged Iodide Base Chromium and Chromium Alloys" *Transaction of the ASM* **49** (1957) 948-958
- [Mish01] R.S. Mishra, A.K. Mukherjee, "Processing of high hardness high toughness alumina matrix nanocomposites", *Materials science and Engineering*, **A301** (2001) 97-101
- [Mori73] T. Mori K. Tanaka "Average stress in matrix and average elastic energy of materials with misfitting inclusions" *Acta Metallurgica* **21** (1973) 571-574
- [Mori97] M. Morinaga Y. Murata M. Furui T. Wada "Large enhancement of yield stress of metals by surface etching in ultra high vacuum" *Scripta Materialia* **37** [5] (1997) 699-705
- [Moug85] R. Mougnot & D. Maugis, "Fracture indentation beneath flat and spherical punches", *Journal of Material Science* **20** (1985), 4354-4376.
- [Muir87] W.C. Muir J.M. Perz E. Fawcett "Elastic constants of antiferromagnetic chromium" *J. phys F : Met Phys* **17** (1987) 2431-2445
- [Mukh93] S.K. Mukherjee, B. Cotterell, Y.W. Mai, "Sintered iron-ceramic composites", *Journal of Materials Science*, **28** (1993) 729-734
- [Mula97] G. Mulas, L. Schiffini, G. Cocco, "Impact energy and reactive milling", *Materials Science Forum* vol **235-238** (1997) 15-22
- [Mund64] B.C. Munday A.R. Pepper R. Street "The Magnetic and Mechanical Properties of Chromium" *Metals and Alloys IV* (1964) 201-207
- [Munr97] R.G. Munro "Evaluated material properties for a sintered alpha-alumina" *J. Am. Cerac. Soc.* **80** [8] (1997) 1919-28
- [Mura87] T. Mura, "Micromechanics of defect in solids", Kluvier Academic Publishers 2nd Edition (1987)
- [Nade73] J.S. Nadeau "Hertzian Fracture of Vitreous Carbon" *Journal of the American Ceramic Society* **56** [9] (1973) 467-472

## Bibliographie

- [Namb95] T. Nambu J. Fukumori M. Morinaga Y. Matsumoto T. Sakaki "Environmental effects on the ductility of pure chromium" *Scripta Materialia* **32** [3] (1995) 407-410
- [Nand99] M.O. Nandy, S. Schmauder, B.N. Kim, M. Watanabe, T. Kishi, "Simulation of crack propagation in alumina particle dispersed SiC composites", *Journal of the European Ceramic Society* **19** (1999) 329-334
- [Nath00] R.N. Nath, D.N. Fenner, C. Galiotis, "The progressional approach to interfacial failure in carbon reinforced composites: elasto-plastic finite element modelling of interface cracks", *Composites A* **31** (2000) 929-943
- [Nawa94] M. Nawa, T. Sekino, K. Niihara, "Fabrication and mechanical behaviour of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Mo nanocomposites", *Journal of Materials Science*, **29** (1994) 1185-1192
- [Nowe87] D. Nowell D.A. Hills "Open cracks at or near free edges" *Journal of strain analysis* **22** [3] (1987) 177-185
- [Noya87] I.C. Noyan J.B. Cohen "Residual Stress : Measurement by diffraction and interpretation" Springer Verlag New York (1987)
- [Osso92] D. Osso « Elaboration de nanocomposites alumine-métal », thèse Institut National Polytechnique de Lorraine, Nancy (1992)
- [Osso95] D. Osso, O. Tillement, A. Mocellin, G. Le Caer, O. Babushkin, T. Lindbäck, "Mechanical thermal synthesis of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Cr composite Powders", *Journal of the European Ceramic Society* **15** (1995) 1207-1212
- [Pade91] Padella., "Mechanical alloying of the Pd-Si system in controlled conditions of energy transfer", *Journal of Less Common Metals*, **175** (1991) 79-90
- [Palm71] S.B. Palmer, E.W. Lee, "The Elastic Constants of Chromium", *Philosophical Magazine* **24** (1971) 311-318
- [Pand02] P.K. Panda, T.S. Kannan, J. Dubois, C. Olagnon, G. Fantozi "Thermal shock and thermal fatigue study of alumina" *Journal of the European Ceramic Society* **22** (2002) 2187-2196
- [Povi92] G.L. Povirk M.G. Stout, M. Bourke, J.A. Goldstone, A.C. Lawson, M. Lovato, S.R. Macewen, S.R. Nutt, A. Needleman "Thermally and mechanically induced residual strain in Al-SiC composites" *Acta Metallurgica & Materialia* **40** [9] (1992) 2391-2412
- [Pyza00] A. Pyzalla "Stress and strain measurements : X-ray and neutrons" *Physica B* **276-278** (2000) 833-836
- [Pyza96] A. Pyzalla C. Genzel W. Reimers "Thermal residual microstresses in steel-NbC particulate composites studied by X-ray and neutron diffraction" *Materials Science and Engineering* **A212** (1996) 130-138
- [Ravi94] K.S. Ravichandran "Elastic properties of two phase composites" *Journal of the American Ceramic Society* **77** [5] (1994) 178-184
- [Reim99] W. Reimers, A. Pyzalla, M. Broda, G. Brush, D. Dantz, T. Schmackers "The use of high energy synchrotron diffraction for residual stress analyses" *Journal of Materials Science Letters* **18** (1999) 581-583
- [Rice90] R.W. Rice, "Mechanics of toughening in ceramic matrix composites", *Ceramic Eng. Sci. Proc.* (1981) 661-701

- [Riet69] H.M. Rietveld, "A profile refinement method for nuclear and magnetic structures" *Journal of Applied Crystallography* **2** (1969) 65
- [Robe00] A.P. Roberts E. J. Garboczi "Elastic properties of model porous ceramics" *Journal of the American Ceramic Society* **80** [12] (2000) 3041-48
- [Robe83] R.B. Roberts G.K. White E. fawcett "Thermal expansion of Cr and Cr-V alloys" *Physica B* **119B** (1983) 63-67
- [Robe99] S.G. Roberts C.W. Lawrence Y. Bisrat P.D. Warren D.A. Hills "Determination of Surface Residual Stresses in Brittle Materials by Hertzian Indentation: Theory and Experiment" *Journal of the American Ceramic Society* **82** [7] (1999) 1809-1816
- [Rode95] J. Rödel, H. Prielipp, M. Sternitzke, K.B. Alexander, P.F. Becher, J.H. Schneibel, "Ni<sub>3</sub>Al/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> composites with interpenetrating network", *Scripta Metallurgica and Materialia*, **33** [5] (1995) 843-848
- [Roed88] Roebuck R., E.A. Almond, "Deformation and fracture processes and the physical metallurgy of WC-Co hardmetals", *International Materials Reviews*, **33** [2] (1988) 90-110
- [Roga00] M. Rogante "The stress-free reference sample : the problem of the determination of the interplanar distance d<sub>0</sub>" *Physica B* **276-278** (2000) 202-203
- [Rosp00] C. Rospars, E. Le Dantec, F. Lecuyer, "A micromechanical model of thermostructural composites", *Composite Science and Technology* **60** (2000) 1095-1102
- [Ross71] L.R. Rossi W.G. Lawrence "Elastic properties of oxide solid solutions : the system Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>" *Journal of the American Ceramic Society* **53** [11] (1971) 604-608
- [Rui00] D.H. Rui Y.M. Kong H.E. Kim "Effect of Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> addition on microstructural evolution and mechanical properties of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>" *Journal of the European Ceramic Society* **20** (2000) 1475-1481
- [Rupp89] H. Rupperberg I. Detemple J. Krier "Evaluation of strongly non linear surface stress fields  $\sigma_{xx}(z)$  and  $\sigma_{yy}(z)$  from diffraction experiments" *Phys stat sol (a)* **116** (1989) 681-687
- [Sbai00] O. Sbaizero, G. Pezzotti, "Influence of the metal particle size on toughness of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Mo composite", *Acta Materialia*, **48** (2000) 985-992
- [Schi97] S. Chicker, D.E. Garcia, J. Bruhn, R. Janssen, N. Claussen, "Reaction processing of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> composites containing iron and iron aluminides", *Journal of the American Ceramic Society* **80** [9] (1997) 2294-2300
- [Schw86] R.B. Schwarz & C.C. Koch, "Formation of amorphous alloys by the mechanical alloying of crystalline powders of pure metals and powders of intermetallics", *Apl. Phys. Lett.*, **g**, (1986) 146-148
- [Segh95] J. Sehgal, Y. Nakao, H. Takahashi, S. Ito "Brittleness of glasses by indentation" *Journal of Material Science Letters* **14** (1995) 167-169.
- [Seki97] T. Sekino, T. Nakajima, S. Ueda, K. Niihara, "Reduction and sintering of a nickel-dispersed-alumina composite and its properties", *Journal of the American Ceramic Society* **80** [5] (1997) 1139-1148
- [Serr82] J. Serra "Image Analysis and Mathematical Morphology" Academic Press (1982)
- [Sgl99] V.M. Sglavo, F. Marino, B.R. Zhang, "The preparation and mechanical properties of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/Ni<sub>3</sub>Al composites", *Composite Science and Technology*, **59** (1999) 1207-1212

## Bibliographie

- [Sglav99] V.M. Sglavo E. Trentini M. Boniecki "Fracture toughness of high purity alumina at room and elevated temperature" *Journal of Materials Science Letters* **18** (1999) 1127-1130
- [Shan01] Z. Shan A. M. Gokhale "Micromechanics of complex three dimensional microstructures" *Acta Materialia* **49** (2001) 2001-2015
- [Sche86] G.W. Scherer "Relaxation of glass and ceramics" J. Wiley & sons (1986)
- [Sigl88] L.S. Sigl, P.A. Mataga, B.J. Dalgleish, R.M. McMeeking & A.G. Evans, "On the toughness of brittle materials reinforced with a ductile phase", *Acta Metallurgica.*, **36** [4] (1988) 945-953
- [Soga66] N. Soga O.L. Anderson "High temperature elastic properties of polycrystalline MgO and Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>" *Journal of the American Ceramic Society* **49** [7] (1966) 355-359
- [Song98] G.M. Song, Y. Zhou, T.C. Lai, "Computer simulation of crack propagation in whisker-reinforced ceramic composites", *Ceramic International* **24** (1998) 455-460
- [Spri61] R.M. Spriggs "Expression for effect of porosity on elastic modulus of polycrystalline refractory materials, particularly aluminium oxide" *Journal of the American Ceramic Society - Discussions and notes* (1961) 628-629
- [Stam02] U. Holzwarth, H. Stamm "Mechanical and thermomechanical properties of commercially pure chromium and chromium alloys" *Journal of Nuclear Materials* **300** (2002) 161-177
- [Stam98] H. Stamm M.R. Bonansinga F. Dos Santos Marques P. Hähner H. Kolbe A. Volcan "Thermomechanical Characteristics of Low Activation Chromium and Chromium Alloys" *J. Nuclear Materials* **258-263** (1998) 1756-1761
- [Stern96] M. Sternitzke, "Review : structural ceramic nanocomposites", *Journal of the European Ceramic Society* **17** (1997) 1061-1082
- [Stgo99] Communications Saint Gobain - nov 1999
- [Sun96a] X. Sun, J.A. Yeomans, "Optimization of a ductile particle toughened ceramic", *Journal of the American Ceramic Society* **79** [10] (1996) 2705-2717
- [Sun96b] X. Sun, J.A. Yeomans, "Influence of particle size distribution on ductile phase toughening in brittle materials", *Journal of the American Ceramic Society* **79** [2] (1996) 562-564
- [Sure98] S. Suresh A.E. Giannakopoulos "A new method for estimating residual stresses by instrumented sharp indentation" *Acta Materialia* **46** [16] (1998) 5755-5767
- [Sury01} Suryanarayana C. "Mechanical alloying and milling", *Progress in Materials Science* **46** (2001) 1-184
- [Swan87] P.L. Swanson, C.J. Fairbanks, B.R. Lawn, Y.W. Mai & B.J. Hockey, "Crack-interface grain bridging as a fracture resistance mechanism in ceramics : I, experimental study on alumina", *Journal of the American Ceramic Society*, **70** [4] (1987) 279-289
- [Syst01] SYSWELD SYSTUS INTERNATIONAL User Manuel (2000)
- [Taka97] L. Takacs, "Metal-metal oxide systems for nanocomposite formation by reaction milling" *Nanostructured Materials* **2** (1993) 241-49
- [Taru97] S. Taruta, Y. Itou, N. Takusagawa, "Influence of alumina titanate formation on sintering of bimodal size-distributed alumina powder mixtures", *Journal of the American Ceramic Society* **80** [3] (1997) 551-556
- [Taya90] M. Taya S. Hayashi A.S. Kobayashi H.S. Yoon "Toughening of a particulate reinforced ceramic

- matrix composite by thermal residual stress" *Journal of the American Ceramic Society* **73** [5] (1990) 1382-1391
- [Teff66] W.E. Tefft "Elastic constants of synthetic single crystal corundum" *Journal of Research of the National Bureau of Standards A physics and Chemistry* **70A** [4] (1966) 277-280
- [Till55] J.P.A. Tillett "Fracture of glass with spherical indenters" *Proc. Phys. Soc. B* **69** (1955) 47-54
- [Trav01] N.A. Travitzky "Effect of metal volume fraction on the mechanical properties of alumina/aluminium composites" *Journal of Material Science* **36** (2001) 4459-4463
- [Trus93] P.A. Trusty & J.A. Yeomans, "Crack particle interactions in alumina iron composites", *Ceramics Engineering and Sciences Proceedings*, **14** [9-10] (1993) 908-913
- [Trus97] P.A. Trusty & J.A. Yeomans, "The toughening of alumina with iron : effects of iron distribution on fracture toughness", *Journal of the European Ceramic Society*, **17** (1997) 495-504
- [Tuan90] W.H. Tuan, R.J. Brook, "The toughening of alumina with nickel inclusions", *Journal of the European Ceramic Society* **6** (1990) 31-37
- [Urre97] G. Urretavizcaya, J.M. Porto Lopez, A.L. Cavalieri, "Pressureless sintering of  $Al_2O_3/SiC_w$  materials effect of the reducing atmosphere", *Journal of the European Ceramic Society* **17** (1997) 1555-1563
- [Wahi80] R.P. Wahi & Ilshner B., "Fracture behaviour of composites based on  $Al_2O_3-TiC$ ", *Journal of Materials Science*, **15** (1980) 875-885
- [Wain57] H.L. Wain F. henderson S.T.M. Johnstone N. Louat "Further observations on the ductility of chromium" *Journal of the Institute of Metals* **86** (1957-58) 281-289
- [Walk94] C.N. Walker, C.E. Borsa, R.I. Todd, R.W. davidge, R.J. Brook, "Fabrication, characterisation and properties of alumina matrix nanocomposites", *Br Ceramics Proc.*, **53** (1994) 249-264
- [Wang01] L. Wang, J.L. Shi, J.H. Gao, D.S. Yan, "Influence of tungsten carbide particles on resistance of alumina matrix ceramics to thermal shocks", *Journal of the European Ceramic Society* **21** (2001) 1213-1217
- [Wang01b] L. Wang, J.L. Shi, Z.L. Hua, J.H. Gao, D.S. Yan, "The influence of addition of WC particles on mechanical properties of alumina matrix composites", *Materials Science letters*, **50** (2001) 179-182
- [Warr78] R. Warren "Measurement of the fracture properties of brittle solids by Hertzian indentation" *Acta Metallurgica* **26** (1978) 1759-1769
- [Warr94] P.D. Warren & D.A. Hills "The influence of elastic Mismatch between indenter and substrate on Hertzian fracture" *Journal of Materials Science* **29** (1994) 2860-2866
- [Warr95] P.D. Warren "Determining the fracture toughness of brittle materials by Hertzian indentation" *Journal of the European Ceramic Society* **15** (1995) 201-207
- [Wach61] J.B. Watchman W.E. Tefft D.G. Lam C.S. Apstein "Exponential temperature dependance of Young's Modulus for several oxides" *Physical Review* **122** [6] (1961) 1754-1759
- [Watt96] M.R. Watts P.J. Withers A.M. Korsunsky M.E. Fitzpatrick "X ray and neutron diffraction measurement of micro and macrostresses in metal matrix composites" *ECRS 4* (1994) 951-959
- [Weav61] C. W. Weaver "Tensile properties of annealed chromium between -196 and +900°C" *The institute of Metals* (1961) 386-390

## Bibliographie

- [Webe89] J.H. Weber, "Effects of processing additives during the M.A. of aluminium", Solid St. Pow. Proc. Indianapolis, Indiana, (1989) 227-239
- [Weis97] E. Weissenbeck, H.E. Petterman, S. Sureh, "Elasto-plastic deformation of compositionnaly graded metal-ceramic composites" Acta Materialia, **45** [8] (1997) 3401-3417
- [Wern00] H. Wern C. Funk numerical "Simulation of the X Ray stress analysis technique in polycrystalline cubic materials" Material Science Forum **347-349** (2000) 199-204
- 
- [Whit61] G.K. White "The anomalous thermal expansion of chromium" Aust. J Phys. **14** (1961) 03-211
- [Whit79] R.L. White, Thesis Stanford University (1979)
- [Whit86] G.K. White R.B. Roberts E. fawcett "Thermal expansion of Cr and CrV alloys : IO experiments" J. phys F : Met Phys **16** (1986) 449-459
- [Whit96] G.K. White C. andrikidis "Thermal expansion of chromium at high temperature" Physical Review B **53** [13] (1996) 8145-8147
- [Wied89] S.M. Wiederhorn, "Fracture Surface Energy of Glass", Journal of the American Ceramic Society **52** [2] (1969) 99-105.
- [Will81] I.S. Willimas R. Street "Magnetic ordering in strained chromium" Philosophical Magazine B **43** [5] (1981) 893-906
- [Wils71] T.R. Wilshaw " The Hertzian fracture test" Journal of Physics D : Applied Physics **4** (1971) 1567-1581
- [With95] P.J. Withers "Neutron strain measurement of internal strain in metal and ceramic matrix composite" Keys Engineering Materials **108-110** (1993) 291-314
- [Wu01] H. Wu S.G. Roberts B. Derby "Residual stress and subsurface damage in machined alumina and alumina/silicon carbide nanocomposite ceramics" Acta Materialia **49** (2001) 507-517
- [Wulf96] J. Wulf, TH Steinkopff, H.F. Fischmeister, "FE-simulation of crack paths in the real microstructure of an Al(6061) SiC composite " Acta Materialia **44** [5] (1996) 1765-1778
- [XP99] XP A-09-285 : Méthodes d'essais pour l'analyse des contraintes résiduelles par diffraction des rayons X – AFNOR 1999
- [Yilm98] S. Yilmaz, A. Aran "Finite element analysis of deformation behaviour in ductile matrix containing hard particles" Material Science and Technology **14** (1998) 1154-1162
- [Zeng92a] K. Zeng K. Breder & D.J. Rowcliffe "The Hertzian stress field and formation of cones cracks - II. Determination of fracture toughness" Acta Metallurgica and Materialia **40** [10] (1992) 2601-2605
- [Zeng92b] K. Zeng K. Breder & D.J. Rowcliffe "The Hertzian stress field and formation of cones cracks - I. Theoretical approach" Acta Metallurgica and Materialia **40** [10] (1992) 2595-2600
- [Zimm01] A. Zimmerman, W.C. Carter, E.R. Fuller "Damage evolution during microcracking of brittle solids" Journal of the American Society **49** (2001) 127-137
- [Zoes00] E. Zoestbergen J.Th.M. De Hosson "Asymmetrical strain distribution in sputteref TiN layers" Thin Solids **371** (2000) 10-16



AUTORISATION DE SOUTENANCE DE THESE  
DU DOCTORAT DE L'INSTITUT NATIONAL  
POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

o0o

VU LES RAPPORTS ETABLIS PAR :

Monsieur Tanguy ROUXEL, Professeur, LARMAUR, Rennes

Monsieur Georges CAILLETAUD, Professeur, Ecoles des Mines, Evry

Le Président de l'Institut National Polytechnique de Lorraine, autorise :

Monsieur GEANDIER Guillaume

à soutenir devant un jury de l'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE,  
une thèse intitulée :

"Relation entre la microstructure, l'état mécanique et la fissuration de cermets alumine  
chrome élaborés à partir de poudres nanocomposites. "

NANCY BRABOIS  
2, AVENUE DE LA  
FORET-DE-HAYE  
BOITE POSTALE 3  
F - 54501  
VANOEUVRE CEDEX

en vue de l'obtention du titre de :

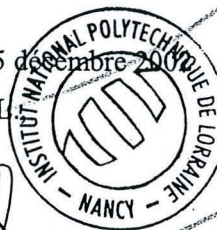
DOCTEUR DE L'INSTITUT NATIONAL POLYTECHNIQUE DE LORRAINE

Spécialité : « Science et Ingénierie des Matériaux »

Fait à Vandoeuvre, le 15 décembre 2000

Le Président de l'INPL

L. SCHUFFENECKER



Service Commun de la Documentation  
INPL  
Nancy-Br



## **Relation entre la microstructure, l'état mécanique et la fissuration dans des cermets alumine chrome élaborés à partir de poudres nanocomposites**

### **Résumé :**

Les composites alumine-chrome sont obtenus par pressage à chaud de poudres provenant du broyage réactif entre des poudres d'aluminium, d'alumine et d'oxydes de chrome. Différents types de composites ont été caractérisés : ils correspondent à des fractions volumiques de chrome comprises entre 5 et 36% et différentes voies d'élaboration. Une étude microstructurale a été menée pour mieux connaître les différents constituants et les différentes phases des poudres mais aussi des échantillons massifs (notamment ceux qui sont minoritaires).

Une approche micromécanique est utilisée pour déterminer le champ de contraintes internes, générées lors du refroidissement après le pressage des poudres, du fait des différences existant entre les coefficients de dilatation thermique et les propriétés thermo-mécaniques des phases. Ces différences et ces contraintes pouvant conduire à la détérioration et à la fissuration du composite pourraient peut-être aussi être utilisées avec avantage et renforcer le composite, du moins localement selon les tailles et dispositions relatives de la phase métallique. Les résultats des calculs par éléments finis ont été confrontés aux résultats expérimentaux de détermination des contraintes moyennes dans les phases, obtenus en utilisant le rayonnement synchrotron.

Pour évaluer le comportement de la microstructure et des contraintes internes vis à vis de la fissuration, une procédure d'indentation de type hertzien (indentation d'un échantillon plan par une sphère) a été mise en place pour analyser le mode de fissuration des échantillons massifs.

Les résultats issus de l'étude de la microstructure, des calculs et de la fissuration sont comparés pour analyser l'influence de la microstructure et des champs locaux de contraintes sur le comportement et les trajectoires des fissures dans des composites biphasés alumine-chrome. Des voies concrètes d'amélioration voire d'optimisation des microstructures au regard de la résistance à la fissuration en sont ainsi dégagées.

---

## **Relation between microstructure, mechanical state and crack propagation in alumina chromium composites processed from nanocomposite powders**

### **Abstract**

Alumina chromium composites are obtained by hot pressing of powders elaborated by reactive milling of aluminium, alumina and chromium oxides powders. Various composites have been characterised, corresponding to different volume fraction of chromium and different processing routes. A microstructural study has been made for a better knowledge of the different phases in the powders and in the dense samples (notably the minority phases).

A micromechanical approach has been used for the determination of the local stress field, generated during cooling, after the hot pressing of powders, coming from the difference between thermal expansion coefficients and thermo-mechanical properties of the phases. These differences and stress states that could conduct to damaging the composite and crack initiation, can be advantageously used to reinforce the composite, locally depending on the size and distribution of the reinforcement phase. Results from calculation have been compared to the experimental result of mean stress determination in the phases, using the synchrotron radiation.

To analyse the behaviour of the microstructure and mechanical state in relation with the crack propagation, an experimental set-up of Hertzian indentation (indentation of a plane sample with a sphere) has been used to analyse the crack mode of the dense samples.

Results from microstructure study, calculations and crack analysis have been compared to analyse the influence of microstructure and mechanical state on the crack behaviour in the two-phases alumina chromium composites. Concrete ways of improvement and optimisation of the microstructure in regard to the crack propagation resistance have been brought out.

---

**Mots-clés :** Composite à matrice céramique, microstructure, contraintes résiduelles, fissure de Hertz

---

**Discipline :** Science et Ingénierie des Matériaux

---

Laboratoire de Science et Génie des Matériaux et de Métallurgie (L.S.G.2M.)  
UMR 7584 CNRS/INPL

Ecole des Mines de Nancy, Parc de Saurupt, 54042 Nancy Cedex