



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

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.culture.gouv.fr/culture/infos-pratiques/droits/protection.htm>



UNIVERSITÉ DE LORRAINE



哈爾濱工業大學
Harbin Institute of Technology

INSTITUT DE TECHNOLOGIE HARBIN

THÈSE

À présenter à

l'Université de Lorraine et au Harbin Institute of Technology

Hailong SHI 施海龙

Pour obtenir le doctorat de

Université de Lorraine et Institut de technologie de Harbin

DOMAINE SPÉCIAL: Sciences de l'ingénieur

OPTION: La science des matériaux

Recristallisation de feuilles de cuivre (Cu) dimensionnées en 2D et de composites stratifiés à matrice de cuivre renforcée par nanofeuilles de graphène (GNS)

A défendre le 6 mai 2021 devant le jury:

Li Jin	Professeur	Shanghai Jiao Tong University, China	Rapporteur & Membre du jury
Leo Kestens	Professeur	Universiteit Gent, Belgium	Rapporteur & Membre du jury
Daniel Chateigner	Professeur	Université de Caen Normandie, France	Membre du jury
Weimin Gan	Docteur HDR	Helmholtz-Zentrum Geesthacht, Germany	Co-Directeur
Lidong Wang	Professeur	Harbin Institute of Technology, China	Directeur
Yunchang Xin	Professeur	Nanjing Tech University, China	Membre du jury
Yudong Zhang	Docteur HDR	Université de Lorraine, France	Directeur
Claude Esling	Professeur	Université de Lorraine, France	Invité
Michael Hofmann	Docteur	Technische Universität München, Germany	Invité

Laboratoire d'Étude des Microstructures et de Mécanique des Matériaux, LEM3
7 rue Félix Savart, 57070 Metz, France

Résumé

1. Introduction

Pendant la fabrication du composite à matrice métallique stratifié, la recristallisation des feuilles métalliques minces se produira et aura une grande influence sur la microstructure finale et les propriétés des composites. Ainsi, il est d'une grande importance de comprendre le mécanisme de recristallisation des feuilles métalliques minces en particulier dans le composite. D'une part, les facteurs géométriques 2D des feuilles métalliques minces pourraient induire une déformation thermique et une énergie de surface importantes dans les feuilles métalliques minces. D'autre part, le comportement de dilatation thermique incompatible entre le métal de la matrice et les renforts non métalliques produira une forte contrainte thermique dans les feuilles métalliques pendant le processus de chauffage. Les deux facteurs pourraient tous deux contribuer à un comportement de recristallisation différent des feuilles métalliques minces par rapport au métal massif.

Dans cette étude, le comportement et les mécanismes de recristallisation des feuilles de Cu avec et sans GNS ont été étudiés systématiquement. Pour les feuilles de Cu sans GNS, l'auteur a principalement étudié l'effet des facteurs géométriques 2D des feuilles de Cu sur les processus de recristallisation (nucléation et croissance des grains après nucléation) des feuilles de Cu. Lorsque des GNS ont été déposés sur les feuilles de Cu, les effets des GNS sur la recristallisation ont été étudiés plus en détail. Le SEM-EBSD, la diffraction neutronique et le rayonnement synchrotron ont été utilisés pour étudier la microstructure, la texture en volume et l'évolution de la déformation du réseau pour des d'échantillons dans différents états. Combinés à l'analyse cristallographique, les facteurs dominants du processus de recristallisation des feuilles de Cu pur et l'effet des GNS sur la recristallisation des feuilles de Cu ont été révélés. Les données obtenues et les mécanismes révélés dans cette étude ont fourni des informations détaillées sur la recristallisation des feuilles de Cu et permis d'approfondir notre compréhension du comportement de recristallisation des feuilles de métal 2D.

2. Procédures expérimentales

Pour les échantillons de Cu pur et GNS/Cu dans des états tels que laminés à froid, entièrement frittés et chauffés à différentes températures (partiellement frittés). Les caractéristiques microstructurales à échelle moyenne ont été caractérisées par microscopie électronique à balayage - diffraction par rétrodiffusion d'électrons (SEM-EBSD), à l'aide d'un SEM JEOL 6500F équipé d'une caméra d'acquisition EBSD et du logiciel d'acquisition en ligne Aztech (Oxford Instruments). La texture a été mesurée par diffraction neutronique au diffractomètre STRESS-SPEC situé à FRM II (Heinz Maier-Leibnitz Zentrum (MLZ), Garching, Allemagne), et par rayonnement synchrotron sur la ligne de faisceau P07 à Petra III (Deutsches Elektronen-Synchrotron (DESY), Hambourg, Allemagne). L'évolution de la déformation du réseau pendant le processus de chauffage a été caractérisée par les expériences in-situ de diffraction du rayonnement synchrotron réalisées sur la ligne P07-HEMS exploitée par le Helmholtz-Zentrum Geesthacht à PETRA III (Deutsches Elektronen-Synchrotron (DESY), Hambourg, Allemagne) avec un dilatomètre DIL805A/D. La configuration expérimentale est présentée sur la **Fig. 1** et les principaux paramètres expérimentaux sont résumés dans le **Tableau 1**.

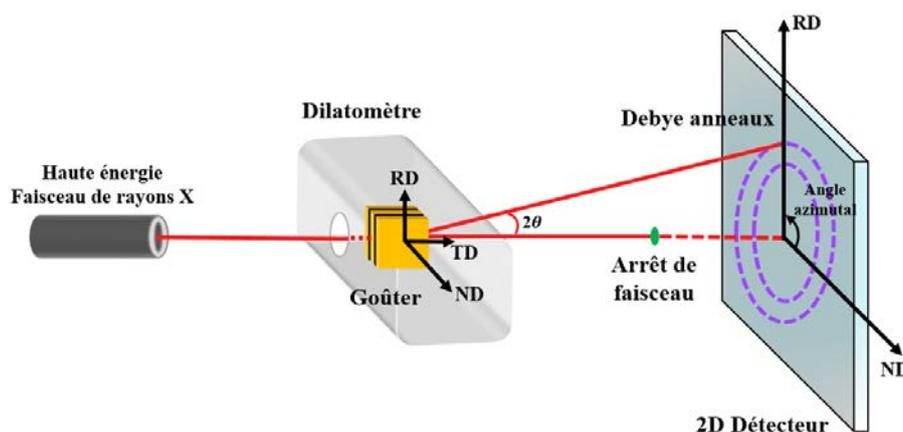


Fig. 1. Configuration expérimentale de la mesure de diffraction du rayonnement synchrotron in situ.

Tableau 1. Paramètres expérimentaux et dispositifs de mesure in situ de diffraction du rayonnement synchrotron.

Énergie keV	Longueur d'onde [Å]	Taille du faisceau [mm ²]	Distance échantillon-détecteur [mm]	Temps d'acquisition [s]	Détecteur	Dilatomètre

103.3	0.12	0.8×0.8	1306.5	8	Perkin Elmer XRD 1621	DIL 805A/D
-------	------	---------	--------	---	--------------------------	---------------

3. Résultats et conclusions

Pour les feuilles de Cu d'une épaisseur de 10 μm , les sites de nucléation et les caractéristiques d'orientation des grains de recristallisation au cours du processus de nucléation et l'évolution de la microstructure au cours de la croissance ultérieure des grains ont été étudiés statistiquement. Les résultats expérimentaux ont révélé que les orientations des zones recristallisées évoluaient constamment par une croissance sélective par quatre critères de sélection majeurs, comme illustré sur la **Fig. 2**.

1. A l'état de nucléation, les orientations des germes étaient principalement héritées des composants de la texture de déformation et regroupées en deux orientations. L'une est du Cube au Cube tourné RD et le long de la ligne de squelette α de Goss à Brass (Laiton). L'autre est le long de la fibre β recouvrant les orientations cuivre, S et cuivre tourné en φ_2 . Le premier cluster a démontré une préférence de taille, en particulier l'orientation cube. Dans cet état, le critère de sélection est l'énergie stockée par déformation. Les grains avec de faibles facteurs de Taylor entourés de matrices de déformation à facteur de Taylor élevé avaient la préférence pour la nucléation et la croissance.

2. Lorsque les germes recristallisés ont atteint certaines tailles (à travers l'épaisseur de la feuille) pendant le chauffage, les caractéristiques géométriques 2D des feuilles ont induit une contrainte thermique biaxiale dépendante de l'orientation et imposé une contrainte de surface dépendante de l'orientation aux grains développés. Les germes avec à la fois des modules biaxiaux modérés dans le plan de la feuille et des densités d'énergie de surface modérées ont été favorisés pour une croissance ultérieure. Sous de telles contraintes, les orientations du cube tourné RD et du laiton dans le premier cluster et les orientations proche cuivre, celles proche S et φ_2 ont survécu en fin de recristallisation.

3. Pendant la croissance des grains après recristallisation, les relations de macles entre le cube tourné RD et les grains de cuivre tournés φ_2 ont produit des interfaces $\{111\}$ cohérentes lorsque les deux grains en croissance sont arrivés en contact. De tels joints

de grains non mobiles stabilisaient les deux orientations. Les clusters des deux blocs orientés ont en outre bénéficié des modules biaxiaux anisotropes complémentaires. Les modules relativement plus élevés des cristaux orientés Cuivre tourné φ_2 ont été compensés par les modules relativement faibles des cristaux orientés Cube tourné RD. Une telle combinaison permettait une croissance préférentielle des cristaux de cuivre tournés φ_2 au détriment des autres orientations survivantes qui n'avaient pas de relations d'orientation spécifiques et étaient délimitées par des joints de grains à grand angle.

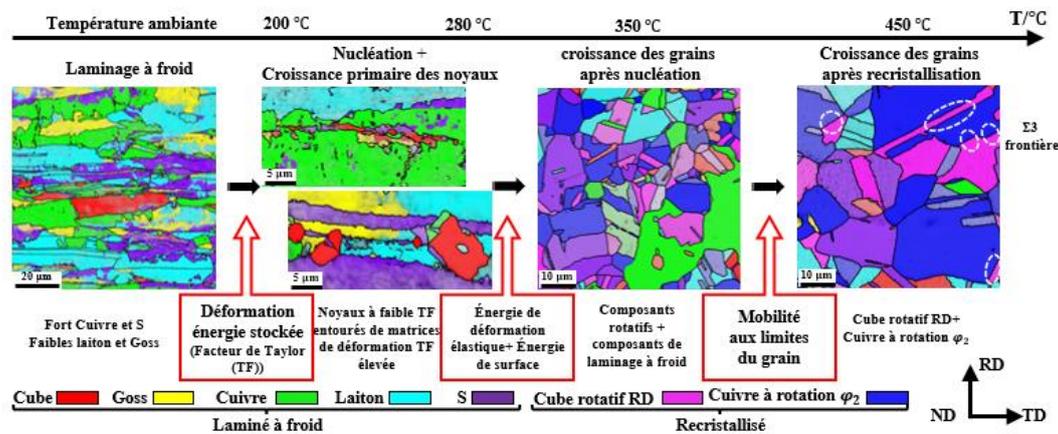


Fig. 2. Caractéristiques de la microstructure et de la texture et facteurs dominants à chaque étape de recristallisation.

Pour la recristallisation des feuilles de Cu avec des GNS déposés, l'état de déformation élastique complexe de la matrice de Cu induit par les contraintes thermiques des renforts GNS dans le composite Cu/GNS métal/non-métal a été étudié expérimentalement par caractérisation ex-situ et in situ de la microstructure, de l'orientation et de la déformation du réseau au moyen de SEM-EBSD à méso-échelle, et diffraction neutronique et rayonnement synchrotron à l'échelle macroscopique. Son effet de simulation sélective sur les grains spécifiquement orientés a été analysé quantitativement par des théories intégrées de cristallographie et d'élasticité. Son potentiel, lié à l'orientation, sur la sélectivité d'orientation a été cartographié dans l'espace d'orientation.

Comme illustré sur la **Fig. 3**, les résultats ont révélé que pendant le processus de chauffage du frittage, l'expansion anisotrope et incompatible du GNS imposait de multiples contraintes élastiques aux feuilles de Cu. Dans les couches de surface, les

feuilles de Cu ont subi principalement une compression biaxiale isostatique parallèle au plan de feuille et, dans la couche centrale, elles ont été soumises à une contrainte de compression uniaxiale perpendiculaire au plan de feuille. L'élasticité anisotrope du Cu a favorisé la poursuite de la croissance des grains orientés Cube. La croissance de tels grains a permis aux plans de faible module biaxial (plan {200} Cu) d'être situés dans les plans isostatiques biaxiaux et à la direction du plus petit module d'Young (direction $\langle 200 \rangle$ Cu) d'être dans la direction de compression uniaxiale, minimisant ainsi le énergie de déformation totale.

Le mécanisme de la croissance des grains induite par la déformation élastique d'orientations sélectionnées révélé dans le présent travail fournit de nouvelles informations sur la recristallisation et la croissance des grains de matériaux métalliques et utiles pour analyser la croissance anormale des grains dans des matériaux sollicités élastiquement, tels que les cas de la fabrication additive. Le stimulus de croissance des grains lié à l'orientation peut être appliqué au processus de fabrication pour réaliser la texturation ou même la monocristallisation de matériaux métalliques.

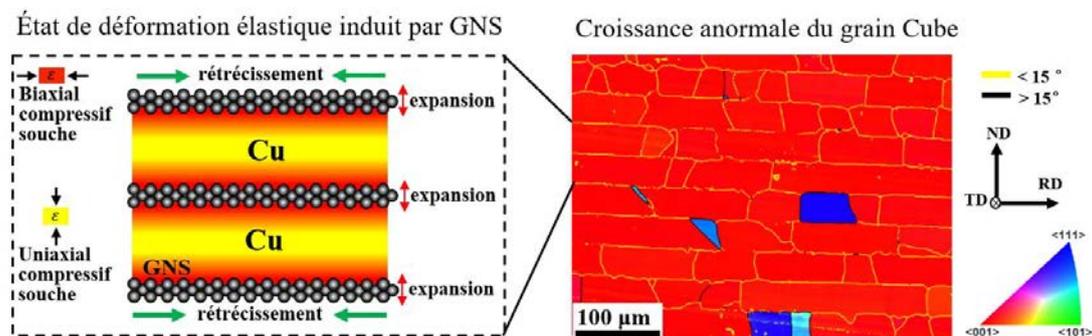


Fig. 3. Le GNS a induit un état de contrainte hybride dans les feuilles de Cu et a contribué à une croissance anormale des grains orientés Cube.