

**Titre:** Caractérisation rhéologique des gelées semi-solides des alliages Al-Si renforcés  
Title: Si renforcés

**Auteur:** Lhoucine Azzi  
Author:

**Date:** 2001

**Type:** Mémoire ou thèse / Dissertation or Thesis

**Référence:** Azzi, L. (2001). Caractérisation rhéologique des gelées semi-solides des alliages Al-Si renforcés [Thèse de doctorat, École Polytechnique de Montréal]. PolyPublie.  
Citation: <https://publications.polymtl.ca/8883/>

## Document en libre accès dans PolyPublie

Open Access document in PolyPublie

**URL de PolyPublie:** <https://publications.polymtl.ca/8883/>  
PolyPublie URL:

**Directeurs de recherche:** Frank Ajersch  
Advisors:

**Programme:** Non spécifié  
Program:

**UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL**

**CARACTÉRISATION RHÉOLOGIQUE  
DES GELEÉES SEMI-SOLIDES DES ALLIAGES AI-SI RENFORCÉS**

**LHOUCINE AZZI**

**DÉPARTEMENT DE GÉNIE PHYSIQUE**

**ET DE GÉNIE DES MATERIAUX**

**ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL**

**THÈSE PRÉSENTÉE EN VUE DE L'OBTENTION**

**DU DIPLÔME DE PHILOSOPHIAE DOCTOR (Ph.D.)**

**(GÉNIE MÉTALLURGIQUE)**

**MARS 2001**



National Library  
of Canada

Acquisitions and  
Bibliographic Services

395 Wellington Street  
Ottawa ON K1A 0N4  
Canada

Bibliothèque nationale  
du Canada

Acquisitions et  
services bibliographiques

395, rue Wellington  
Ottawa ON K1A 0N4  
Canada

Your file Votre référence

Our file Notre référence

The author has granted a non-exclusive licence allowing the National Library of Canada to reproduce, loan, distribute or sell copies of this thesis in microform, paper or electronic formats.

L'auteur a accordé une licence non exclusive permettant à la Bibliothèque nationale du Canada de reproduire, prêter, distribuer ou vendre des copies de cette thèse sous la forme de microfiche/film, de reproduction sur papier ou sur format électronique.

The author retains ownership of the copyright in this thesis. Neither the thesis nor substantial extracts from it may be printed or otherwise reproduced without the author's permission.

L'auteur conserve la propriété du droit d'auteur qui protège cette thèse. Ni la thèse ni des extraits substantiels de celle-ci ne doivent être imprimés ou autrement reproduits sans son autorisation.

0-612-60929-4

Canada

**UNIVERSITÉ DE MONTRÉAL**

**ÉCOLE POLYTECHNIQUE DE MONTRÉAL**

**Cette thèse intitulée :**

**CARACTÉRISATION RHÉOLOGIQUE  
DES GELÉES SEMI-SOLIDES DES ALLIAGES AI-SI RENFORCÉS**

**Présenté par : AZZI Lhoucine**

**en vue de l'obtention du diplôme de: Philosophiae Doctor**

**a été dûment acceptée par le jury d'examen constitué de:**

**M. PELTON Arthur, Ph.D., président**

**M. AJERSCH Frank, Ph.D., membre et directeur de recherche**

**M. TURENNE Sylvain, Ph.D., membre**

**M. SUÉRY Michel, Ph.D., membre**

**Des souliers pour marcher**

**A.DRISSI**

**Ce travail est dédié à ma mère**

## **REMERCIEMENTS**

**Je remercie le département de Génie Physique et Génie des Matériaux de l'École Polytechnique de Montréal pour m'avoir accueilli en son sein.**

**Je veux exprimer ma profonde gratitude à mon directeur de thèse Monsieur le professeur Frank Ajersch pour son aide, son support et ses précieux conseils. Je voudrais le remercier particulièrement de m'avoir laissé une grande liberté dans l'organisation de mon travail.**

**Je veux aussi remercier Messieurs André Désilets et Jacques Desrochers pour leur support technique et surtout pour leur amitié.**

**Je veux remercier particulièrement ma famille qui reste toujours présente malgré la distance qui nous sépare. Une pensée toute spéciale va à ma sœur Myriam pour sa gentillesse et sa patience.**

**Je veux enfin et surtout remercier ma mère pour m'avoir enseigné ce qui ne s'apprend pas dans les livres et qui fait de nous des êtres meilleurs.**

## RÉSUMÉ

La mise en forme à l'état semi-solide est une alternative attrayante pour remplacer les méthodes de mise en forme classiques. Pour être efficace, celle-ci doit se faire sur des alliages avec des microstructures dont la phase primaire est globulaire. De telles structures, communément appelées gelées semi-solides, sont obtenues par brassage de la phase primaire en cours de solidification.

L'optimisation des procédés de mise en forme à l'état semi-solide nécessite la connaissance des propriétés rhéologiques des gelées semi-solides. Différentes approches, certaines présentées dans ce mémoire, ont été proposées pour caractériser le comportement rhéologique des alliages et des composites à l'état semi-solide. Notre travail de recherche se veut une contribution supplémentaire à la compréhension des mécanismes impliqués lors de l'élaboration et de la mise en forme des gelées semi-solides des alliages et des composites. Une attention particulière est portée sur une nouvelle classe de composites hybrides, à base d'aluminium renforcé par des particules de carbures de silicium ( $\text{SiC}$ ) ou d'alumine ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) et de graphite, appelés GrA-Ni<sup>®</sup>.

Les propriétés rhéologiques des gelées semi-solides des matériaux à l'étude ont été évaluées à l'aide de deux techniques simples de viscosimétrie. Un dispositif de type viscosimètre de couette couplé à un système judicieux de brassage a permis de caractériser les propriétés rhéologiques à l'état liquide et à l'état semi-solide dans différentes conditions de solidification et de cisaillement. Des expériences en refroidissement continu, en condition isotherme et stationnaire, en condition isotherme et non stationnaire avec une variation continue ou brutale de la vitesse de cisaillement ont été réalisées. Celles-ci nous ont permis d'établir des relations entre la viscosité, la température et le temps pour différentes vitesses de cisaillement dans l'intervalle

semi-solide. Une étude thermodynamique a permis d'établir les relations entre la température et la fraction solide et par conséquent entre la viscosité et la fraction solide.

Le comportement rhéologique, après refusion partielle des alliages et des composites a été évalué à l'aide d'un viscosimètre à plateaux parallèles. Des éprouvettes à structures dendritiques et globulaires ont été caractérisées à différentes fractions solides et vitesses de cisaillement. Le comportement rhéologique, à faible vitesse de cisaillement a été évalué à l'aide d'un modèle newtonien et à loi de puissance. Une étude microstructurale systématique a permis de mettre en évidence la relation qui existe entre le niveau de déformation des éprouvettes de compression et la ségrégation de la phase liquide.

Les résultats expérimentaux que nous avons obtenus sont présentés sous la forme de relations analytiques simples pouvant être intégrées à des logiciels de modélisation de la mise en forme semi-solide.

## ABSTRACT

Semi-solid processing is an attractive alternative to replace the traditional methods of forming materials. To be effective, processing in the semi-solid state must be carried out on alloys with a microstructure whose primary phase is globular. Such structures, commonly called semi-solid slurries, are obtained by mixing of the primary phase during solidification. The knowledge of the rheological properties of the semi-solid slurries is of primary importance for process modeling. Various approaches, some of them reviewed in this work, have been proposed to describe such properties.

The main goal of our research is to contribute to the better understanding of the mechanisms involved during semi-solid processing of alloys and composites. A close attention is paid to a new class of aluminium based hybrid composites reinforced by graphite and alumina ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) or silicon-carbide (SiC), known as GrA-Ni®.

The rheological properties of the semi-solid slurries under investigation were evaluated using two simple techniques of viscosimetry. A rotating spindle viscometer was used to assess the viscosity of the slurries in the liquid and the semi-solid state under various conditions of solidification and shearing rates. The spindle geometries were chosen in order to assure a good quality of mixing of the silicon-carbide-graphite suspension. Apparent viscosities were measured in continuous cooling conditions, for isothermal conditions with different shear rates, for isothermal conditions with a linear increase and step changes in shear rates in the semi-solid temperature range. These experiments allowed us to establish the relationships between the viscosity and the solid fraction for different shear rates.

The rheological behaviour of partially remelted alloys and composites was also evaluated using a parallel plate viscometer. Specimen with dendritic and globular structures were deformed at different solid fractions and shear rates. The viscosity, at low shear rates, was assessed using Newtonian and power law models. A systematic microstructural study enabled us to highlight the relation between the level of deformation of the compressed specimen and the segregation of the liquid phase.

The experimental results that we obtained are presented in the form of simple analytical relations which can be integrated into semi-solid processing software.

## TABLE DES MATIÈRES

	<u>PAGE</u>
<b>DÉDICACE .....</b>	iv
<b>REMERCIEMENTS.....</b>	v
<b>RÉSUMÉ .....</b>	vi
<b>ABSTRACT .....</b>	viii
<b>TABLE DES MATIÈRES.....</b>	x
<b>LISTE DES FIGURES.....</b>	xvi
<b>LISTE DES TABLEAUX .....</b>	xxv
<b>LISTE DES ANNEXES .....</b>	xxvi
<b>INTRODUCTION.....</b>	1
<b>CHAPITRE I : REVUE DE LA LITTÉRATURE .....</b>	4
<b>    1.1 STRUCTURES ET PROPRIÉTÉS DES ALLIAGES BRASSÉS À L'ÉTAT SEMI-SOLIDE ..</b>	4
<b>        1.1.1 LA SOLIDIFICATION DENDRITIQUE .....</b>	4
<b>        1.1.2 ÉVOLUTION MORPHOLOGIQUE DES DENDRITES DANS L'INTERVALLE SEMI-SOLIDE .....</b>	7
<b>            1.1.2.1 LE MURISSEMENT DES DENDRITES .....</b>	7
<b>            1.1.2.2 LA COALESCENCE DES DENDRITES.....</b>	9
<b>        1.1.3 LA SOLIDIFICATION NON DENDRITIQUE .....</b>	11
<b>            1.1.3.1 PROCÉDÉS POUR RÉALISER DES STRUCTURES NON DENDRITIQUES .....</b>	11
<b>            1.1.3.2 MÉCANISMES PHYSIQUES ASSOCIÉS À LA SOLIDIFICATION NON DENDRITIQUE.</b>	14
<b>        1.1.4 COMPORTEMENT MÉCANIQUE DES ALLIAGES ET COMPOSITES À L'ÉTAT SEMI-SOLIDE.....</b>	17

1.1.4.1 CAS DES ALLIAGES DENDRITIQUES.....	17
1.1.4.2 CAS DES ALLIAGES NON DENDRITIQUES .....	19
<b>1.1.5 DESCRIPTION DES MÉTHODES DE MISE EN FORME DES GELÉES SEMI-SOLIDES .....</b>	<b>22</b>
<b>1.1.6 CHOIX DES CONDITIONS DE FORMAGE.....</b>	<b>23</b>
<b>1.2 LA RHÉOLOGIE DES SUSPENSIONS.....</b>	<b>27</b>
1.2.1 INTERACTIONS DANS LES SUSPENSIONS .....	27
1.2.2 RHÉOLOGIE DES SUSPENSIONS DE PARTICULES RIGIDES .....	29
1.2.2.1 APPROCHE GLOBALE.....	29
1.2.2.2 MODÉLISATION DE LA VISCOSITÉ DES SUSPENSIONS DE PARTICULES RIGIDES DANS LES FLUIDES NEWTONIENS.....	31
1.2.3 CAS DES SUSPENSIONS NON NEWTONIENNES .....	36
1.2.3.1 COMPORTEMENT NON NEWTONIEN INDÉPENDANT DU TEMPS.....	36
1.2.3.1.1 COMPORTEMENT PSEUDOPLASTIQUES (OU FLUIDIFIANT) .....	36
1.2.3.1.2 COMPORTEMENT RHÉOÉPAISSISSANT.....	37
1.2.3.1.3 FLUIDES AVEC LIMITÉ D'ÉCOULEMENT.....	39
1.2.3.2 COMPORTEMENT RHÉOLOGIQUE DES FLUIDES DÉPENDANT DU TEMPS.....	42
<b>1.3 ASPECTS FONDAMENTAUX DE LA DISPERSION DE PARTICULES DANS UN BAIN MÉTALLIQUE .....</b>	<b>44</b>
1.3.1 MOUILLABILITÉ- ANGLE DE CONTACT.....	44
1.3.2 FLOCULATION DANS LES SUSPENSIONS .....	48
<b>1.4 RHÉOLOGIE DES ALLIAGES ET DES COMPOSITES AUX FRACTIONS SOLIDES MOYENNES.....</b>	<b>54</b>

<b>1.4.1 RHÉOLOGIE DES ALLIAGES À L'ÉTAT SEMI-SOLIDE .....</b>	<b>54</b>
1.4.1.1 ÉVOLUTION DE LA VISCOSITÉ DES GELÉES SEMI-SOLIDE D'ALLIAGE EN REFROIDISSEMENT CONTINU.....	54
1.4.1.2 ÉVOLUTION DE LA VISCOSITÉ EN CONDITION ISOTHERME. PSEUDOPLASTICITÉ ET COMPORTEMENT THIXOTROPE.....	57
<b>1.4.2 MODÉLISATION DE LA VISCOSITÉ DES GELÉES SEMI-SOLIDES .....</b>	<b>59</b>
1.4.2.1 MODÉLISATION DE LA VISCOSITÉ D'ÉQUILIBRE .....	59
1.4.2.2 MODÉLISATION DU RÉGIME TRANSITOIRE.....	63
1.4.2.2.1 APPROCHE GLOBALE.....	63
1.4.2.2.2 FORMULATION ANALYTIQUE.....	63
1.4.2.2.2.1 MODÈLE DE QUEMADA [64] .....	63
1.4.2.2.2.2 MODÈLE DE KUMAR ET AL [65] .....	65
1.4.2.2.2.3 MODÈLE DE MADA ET AJERSCH [70] .....	69
<b>1.4.3 RHÉOLOGIE DES GELÉES SEMI-SOLIDES DE MATERIAUX COMPOSITES .....</b>	<b>72</b>
<b>1.5 RHÉOLOGIE DES ALLIAGES AUX HAUTES FRACTIONS SOLIDES .....</b>	<b>74</b>
<b>1.5.1 POSITION DU PROBLÈME.....</b>	<b>74</b>
<b>1.5.2 MODÈLE RHÉOLOGIQUE À UNE PHASE .....</b>	<b>75</b>
<b>CHAPITRE II MÉTHODE EXPÉRIMENTALE.....</b>	<b>78</b>
<b>2.1 MATERIAUX À L'ÉTUDE .....</b>	<b>78</b>
<b>2.1.1 PROPRIÉTÉS, ÉLABORATION ET COMPOSITION DES COMPOSITES GrA-Ni<sup>3</sup> .....</b>	<b>78</b>
<b>2.1.2 CARACTÉRISATION PHYSIQUE ET MICROSTRUCTURALE DES MATERIAUX À L'ÉTUDE .....</b>	<b>81</b>

<b>2.1.3 DIAGRAMMES DE PHASE DES SYSTÈMES AL-SI-NI ET AL-SI-NI-MG DANS LE COIN RICHE EN ALUMINIUM .....</b>	<b>89</b>
<b>2.1.3.1 LES TERNAIRES EXPÉRIMENTAUX DU SYSTÈME AL-SI-NI-MG.....</b>	<b>89</b>
<b>2.1.3.1.1 LE TERNAIRE AL-SI-MG.....</b>	<b>89</b>
<b>2.1.3.1.2 LE TERNAIRE AL-SI-NI .....</b>	<b>91</b>
<b>2.1.3.2 MODÉLISATION DES DIAGRAMMES DE PHASE AL-SI-NI et AL-SI-NI-MG DANS la partie RICHE EN ALUMINIUM .....</b>	<b>95</b>
<b>2.1.3.2.1 FONDEMENTS THERMODYNAMIQUES DE LA CONSTRUCTION DES DIAGRAMMES DE PHASE .....</b>	<b>95</b>
<b>2.1.3.2.1.1 DESCRIPTION DES ÉLÉMENTS.....</b>	<b>95</b>
<b>2.1.3.2.1.2 DESCRIPTION DES COMPOSÉS BINAIRES .....</b>	<b>96</b>
<b>2.1.3.2.1.2 DESCRIPTION DES SOLUTIONS.....</b>	<b>96</b>
<b>2.1.3.2.1 RÉSULTAT DE LA MODÉLISATION .....</b>	<b>98</b>
<b>2.2 APPAREILLAGES ET PROCÉDURES EXPÉRIMENTALES.....</b>	<b>107</b>
<b>2.2.1 LES VISCOSIMÈTRES À AGITATEURS .....</b>	<b>107</b>
<b>2.2.1.1 LE VISCOSIMÈTRE .....</b>	<b>107</b>
<b>2.2.1.2 CHOIX DES CREUSETS ET DES AGITATEURS.....</b>	<b>108</b>
<b>2.2.1.3 MÉTHODES D'EXPLOITATION DES RÉSULTATS.....</b>	<b>113</b>
<b>2.2.1.3 MÉTHODES D'EXPLOITATION DES RÉSULTATS.....</b>	<b>113</b>
<b>2.2.1.3.1 MÉTHODE DE CALIBRATION .....</b>	<b>113</b>
<b>2.2.1.3.2 DÉTERMINATION DE LA VITESSE DE CISAILLEMENT DANS L'ESPACE ANNULAIRE DES VISCOSIMÈTRES.....</b>	<b>117</b>
<b>2.2.1.3.2.1 CAS DE L'AGITATEUR CYLINDRIQUE .....</b>	<b>117</b>
<b>2.2.1.3.2.1 CAS DE L'AGITATEUR À RUBAN HÉLICOÏDAL .....</b>	<b>119</b>
<b>2.2.1.4 MODE OPÉRATOIRE.....</b>	<b>122</b>

<b>2.2.2 LE VISCOSIMÈTRE À PLATEAUX PARALLÈLES.....</b>	<b>126</b>
2.2.2.1 DESCRIPTION DU VISCOSIMÈTRE .....	126
2.2.2.2 CONDITIONS EXPÉIMENTALES .....	127
2.2.2.3 MÉTHODE D'EXPLOITATION DES RÉSULTATS .....	127
2.2.2.3.1 HYPOTHÈSE DE CALCUL ET CONDITIONS AUX LIMITES .....	129
II.2.3.2 RÉSOLUTION .....	130
<b>CHAPITRE III RÉSULTATS ET DISCUSSION .....</b>	<b>134</b>
<b>3.1 COMPORTEMENT DES COMPOSITES À L'ÉTAT LIQUIDE.....</b>	<b>134</b>
<b>3.2 COMPORTEMENT DES COMPOSITES ET ALLIAGES À L'ÉTAT SEMI-SOLIDE.....</b>	<b>144</b>
<b>3.2.1 COMPORTEMENT EN REFROIDISSEMENT CONTINU.....</b>	<b>144</b>
<b>3.2.2 COMPORTEMENT EN CONDITION ISOTHERME.....</b>	<b>154</b>
3.2.2.1 VISCOSITÉ EN CONDITION ISOTHERME ET STATIONNAIRE .....	154
3.2.2.2 MICROSTRUCTURE DES COMPOSITES RHÉOCOULÉS EN CONDITION ISOTHERME ET STATIONNAIRE .....	172
3.2.2.2.2 COMPORTEMENT RHÉOLOGIQUE EN CONDITION ISOTHERME ET TRANSITOIRE .....	178
3.2.2.2.2.1 COMPORTEMENT LORS D'UN SAUT BRUTAL DE VITESSE DE CISAILLEMENT	178
3.2.2.2.2.2 COMPORTEMENT LORS D'UNE VARIATION CONTINU DE VITESSE DE CISAILLEMENT .....	181
3.2.2.2.2.2.1 COMPORTEMENT EXPÉIMENTAL.....	181
3.2.2.2.2.2.2 MODÉLISATION DES BOUCLES DHYSTÉRÉSIS EXPÉIMENTALES .....	185
<b>3.3 RÉSULTATS DES ESSAIS DE COMPRESSION ENTRE PLATEAUX PARALLÈLES....</b>	<b>204</b>
<b>3.3.1 RÉSULTATS BRUTS .....</b>	<b>204</b>

<b>3.3.2 COMPORTEMENT RHÉOLOGIQUE .....</b>	<b>217</b>
<b>3.3.3 MICROSTRUCTURE DES ÉPROUVETTES DE COMPRESSION.....</b>	<b>228</b>
<b>CONCLUSION GÉNÉRALE ET RECOMMANDATIONS.....</b>	<b>237</b>
<b>BIBLIOGRAPHIE .....</b>	<b>242</b>

**LISTE DES FIGURES**

	<b>PAGE</b>
FIGURE 1.1 : REPRÉSENTATION DE LA SURFUSION STRUCTURALE.....	6
FIGURE 1.2 : SOLIDIFICATION DENDRITIQUE LORS D'UNE SOLIDIFICATION CONVENTIONNELLE .....	6
FIGURE 1.3 : LES PROCESSUS DE GROSSISSEMENT DES DENDRITES. ....	10
FIGURE 1.4 : DISPOSITIF D'ÉLABORATION DES GELÉES.....	13
FIGURE 1.5 : MÉCANISME DE FRAGMENTATION DES DENDRITES. ....	16
FIGURE 1.6 : MÉCANISMES DE GLOBULARISATION. ....	16
FIGURE 1.7 : COURBE CONTRAINE DÉPLACEMENT DES ALLIAGES DENDRITIQUES.....	20
FIGURE 1. 8 : PROFIL DE SÉGRÉGATION LORS D'UN ESSAI DE COMPRESSION.....	20
FIGURE 1.9 : DIFFÉRENCE DE COMPORTEMENT LORS D'UN ESSAI DE COMPRESSION ENTRE UN ALLIAGE DENDRITIQUE ET NON DENDRITIQUE. ....	21
FIGURE 1.10 : PROCÉDÉS DE MISE EN FORME DES GELÉES SEMI- SOLIDES.....	26
FIGURE 1.11 : EFFET DE LA VITESSE DE CISAILLEMENT SUR LA VISCOSITÉ DES SUSPENSIONS CONCENTRÉES .....	40
FIGURE 1. 12 : COMPORTEMENT RHÉOLOGIQUE DES PRINCIPAUX TYPES DE FLUIDES INDÉPENDANTS DU TEMPS .....	41
FIGURE 1. 13 : COMPORTEMENT D'UN FLUIDE THIXOTROPE AU COURS D'UN ESSAI DE "STEP CHANGE".....	43
FIGURE1.14 : INTÉGRATION D'UNE PARTICULE DANS UN BAIN LIQUIDE.....	49

FIGURE1.15 : VARIATION DE L'ÉNERGIE D'IMMERSION EN FONCTION DE L'ANGLE D'IMMERSION D'UNE PARTICULE SPHÉRIQUE DE GRAPHITE (250 $\mu$ M) DANS UN BAIN LIQUIDE D'ALUMINIUM.....	50
FIGURE1. 16 : ÉVOLUTION DE LA VISCOSITÉ LORS D'ESSAIS DE BRASSAGE EN REFROIDISSEMENT CONTINU.....	56
FIGURE1. 17 : ÉVOLUTION DE LA VISCOSITÉ ET DE LA MICROSTRUCTURE DES GELÉES SEMI- SOLIDES EN FONCTION DE LA VITESSE DE CISAILLEMENT.....	58
FIGURE1. 18: MODÈLE DE MCLELLAND POUR EXPLIQUER LE COMPORTEMENT ANORMALE DES VISCOSITÉS D'ÉQUILIBRE AUX FAIBLES VITESSES DE CISAILLEMENT.....	61
FIGURE1. 19: COMPARAISON DES VISCOSITÉS D'ÉQUILIBRE OBTENUES EN VISCOSIMÉTRIE ET IDENTIFIÉES PAR LA LOI DE PUISSANCE.....	62
FIGURE 1. 20: EFFET DE LA PRÉSENCE DE PARTICULES DE RENFORT SUR LA VISCOSITÉ DES GELÉES SEMI-SOLIDES.....	73
FIGURE 1. 21: INFLUENCE DE LA FRACTION SOLIDE SUR LA CONTRAINTE D'ÉCOULEMENT D'UN ALLIAGE AL-SI DÉFORMÉ ENTRE PLATEAUX PARALLÈLES.....	77
.....	
FIGURE 2.1 : MICROSTRUCTURE DU COMPOSITE 10S4G.....	84
FIGURE 2.2 : RÉSULTATS DE DSC (A) ET DE COURBE DE REFROIDISSEMENT (B) OBTENUS SUR LE COMPOSITE 10S4G.....	85
FIGURE 2.3 : RÉSULTATS DE DSC SUR LE COMPOSITE OBTENUS SUR LE COMPOSITE 6S3G..	86
FIGURE 2. 4 : MICROSTRUCTURE DU COMPOSITE 5A3G.....	87
FIGURE 2.5: RÉSULTATS DE DSC (A) ET DE COURBE DE REFROIDISSEMENT (B) OBTENUS SUR LE COMPOSITE 5A3G ..	88
FIGURE 2.6 : A : PROJECTION DU LIQUIDUS DAS LA ZONE RICHE EN ALUMINIUM (A) ET COUPE VÉTRICALE À 1% (MASSIQUE) DE MG DU SYSTÈME AL-SI-MG.....	90

FIGURE 2.7 : LA ZONE RICHE EN ALUMINIUM DU DIAGRAMME DE PHASE AL-SI-NI.....	92
FIGURE 2.8 : COUPE VERTICALE À 2%SI (A) ET 2%NI (B) (% MASSIQUE).....	93
FIGURE 2.9 : COUPE VERTICALE À 2%NI (A) ET 4%NI (B) (% MASSIQUE) .....	94
FIGURE 2.10 : COMPARAISON DES DIAGRAMMES DE PHASES CALCULÉS AVEC F*A*C*T ET DES DONNÉES EXPÉRIMENTALES (FIGURES 2.8.A ET 2.9.A). ....	102
FIGURE 2.11: ESSAI DE DSC :ALLIAGE AL-6%SI-2%NI.....	103
FIGURE 2.12 : MODÉLISATION DU DIAGRAMME EXPÉRIMENTAL AL-SI-2%NI À PARTIR DIAGRAMME CALCULÉ AVEC 1%NI .....	104
FIGURE 2.13 : DIAGRAMME DE PHASE AL-SI-NI-MG CALCULÉ POUR 1%NI ET 0.4%MG .....	105
FIGURE 2.14 : DÉTERMINATION DE LA FRACTION SOLIDE DE PHASE PRIMAIRE DANS LA ZONE SEMI-SOLIDE.....	106
FIGURE 2.15 : REPRÉSENTATION SCHÉMATIQUE DES VISCOSIMÈTRES .....	111
FIGURE 2. 16 : AGITATEUR CYLINDRIQUE .....	112
FIGURE 2.17 : AGITATEUR À RUBAN HÉLICOÏDAL .....	112
FIGURE 2.18 : COURBE DE CALIBRATION DU VISCOSIMÈTRE À AGITATEUR CYLINDRIQUE .	115
FIGURE 2.19 : COURBE DE CALIBRATION DU VISCOSIMÈTRE À AGITATEUR À RUBAN HÉLICOÏDAL .....	116
FIGURE 2.20 : REPRÉSENTATION SCHÉMATIQUE DU PRINCIPE DE CALCUL DE LA VITESSE DE CISAILLEMENT DANS L'ESPACE ANNULAIRE DES VISCOSIMÈTRES I ET II .....	117
FIGURE 2.21 : DÉTERMINATION DE $K_s$ .....	121
FIGURE 2.22 : REPRÉSENTATION SCHÉMATIQUE DU MODE OPÉRATOIRE.....	125
FIGURE 2.23 : SCHÉMA DU VISCOSIMÈTRE À PLATEAUX PARALLÈLES.....	128
FIGURE 2.24 : REPRÉSENTATION SCHÉMATIQUE DU TEST DE COMPRESSION .....	129

FIGURE 3.1: ÉVOLUTION DE LA VISCOSITÉ EN FONCTION DE LA VITESSE DE CISAILLEMENT (VISCOSETÈRE III, T=635°C) .....	140
FIGURE 3.2 : EFFET DE LA TEMPÉRATURE SUR LA VISCOSITÉ (COMPOSITE 10S4G, VISCOSETÈRE III) .....	140
FIGURE 3. 3: EFFET DE LA FORME DE L'AGITATEUR SUR LA VISCOSITÉ À L'ÉTAT LIQUIDE (COMPOSITE 10S4G, T=635°C). .....	141
FIGURE 3. 4: EFFET DE LA FORME DE L'AGITATEUR SUR LA VISCOSITÉ À L'ÉTAT LIQUIDE (COMPOSITE 5A3G, T=635°C). .....	141
FIGURE 3. 5: MICROSTRUCTURE TYPIQUE OBTENUE APRÈS BRASSAGE À L'ÉTAT LIQUIDE SUIVIE D'UNE TREMPE À L'EAU .....	143
FIGURE 3.6 : ESSAI DE REFROIDISSEMENT CONTINU ( $\gamma=135^{-1}$ , $\varepsilon=1^{\circ}\text{C}/\text{MIN}$ ) : VISCOSITÉ EN FONCTION DE LA TEMPÉRATURE .....	148
FIGURE 3.7 : ESSAI DE REFROIDISSEMENT CONTINU ( $\gamma=135^{-1}$ , $\varepsilon=1^{\circ}\text{C}/\text{MIN}$ ) : VISCOSITÉ EN FONCTION DE LA FRACTION SOLIDE.....	148
FIGURE 3.8 : ESSAI DE REFROIDISSEMENT CONTINU ( $\gamma=265^{-1}$ , $\varepsilon=1^{\circ}\text{C}/\text{MIN}$ ) .....	149
FIGURE 3.9: ESSAI DE REFROIDISSEMENT CONTINU ( $\gamma=525^{-1}$ , $\varepsilon=1^{\circ}\text{C}/\text{MIN}$ ) .....	149
FIGURE 3.10 : ESSAI DE REFROIDISSEMENT CONTINU ( $\gamma=1045^{-1}$ , $\varepsilon=1^{\circ}\text{C}/\text{MIN}$ ).....	150
FIGURE 3. 11: COMPARAISON DU COMPORTEMENT EN REFROIDISSEMENT CONTINU .....	151
FIGURE 3. 12: COMPARAISON DU COMPORTEMENT EN REFROIDISSEMENT CONTINU .....	151
FIGURE 3. 13: COMPARAISON DE LA VISCOSITÉ DES COMPOSITES ET DE L'ALLIAGE DE BASE ( $\gamma=265^{-1}$ - $\varepsilon=1^{\circ}\text{C}/\text{MIN}$ ) .....	152
FIGURE 3.14 : INFLUENCE DE LA VITESSE DE REFROIDISSEMENT ( $\gamma=135^{-1}$ ) .....	153
FIGURE 3.15: INFLUENCE DE LA VITESSE DE REFROIDISSEMENT ( $\gamma=1045^{-1}$ ) .....	153
FIGURE 3.16 : ESSAI EN CONDITION ISOTHERME ET STATIONNAIRE (COMPOSITE 10S4G) ( $F_s=16\%$ , $\dot{\gamma}=135^{-1}$ ).....	157

FIGURE 3.17 : ESSAI EN CONDITION ISOTHERME ET STATIONNAIRE (COMPOSITE 10S4G) ( $F_s=16\%$ , $\dot{\gamma}=26\text{s}^{-1}$ ).....	158
FIGURE 3.18 : ESSAI EN CONDITION ISOTHERME ET STATIONNAIRE (COMPOSITE 10S4G) ( $F_s=16\%$ , $\dot{\gamma}=52\text{s}^{-1}$ ).....	159
FIGURE 3.19 : ESSAI EN CONDITION ISOTHERME ET STATIONNAIRE (COMPOSITE 10S4G) ( $F_s=16\%$ , $\dot{\gamma}=104\text{s}^{-1}$ ).....	160
FIGURE 3.20 : ESSAI EN CONDITION ISOTHERME ET STATIONNAIRE (COMPOSITE 10S4G) ( $F_s=22\%$ , $\dot{\gamma}=13\text{s}^{-1}$ ).....	161
FIGURE 3.21 : ESSAI EN CONDITION ISOTHERME ET STATIONNAIRE (COMPOSITE 10S4G) ( $F_s=22\%$ , $\dot{\gamma}=26\text{s}^{-1}$ ).....	162
FIGURE 3.22 : ESSAI EN CONDITION ISOTHERME ET STATIONNAIRE (COMPOSITE 10S4G) ( $F_s=22\%$ , $\dot{\gamma}=52\text{s}^{-1}$ ).....	163
FIGURE 3.23 : ESSAI EN CONDITION ISOTHERME ET STATIONNAIRE (COMPOSITE 10S4G) ( $F_s=22\%$ , $\dot{\gamma}=104\text{s}^{-1}$ ).....	164
FIGURE 3.24 : ESSAI EN CONDITION ISOTHERME ET STATIONNAIRE (COMPOSITE 10S4G) ( $F_s=30\%$ , $\dot{\gamma}=13\text{s}^{-1}$ ).....	165
FIGURE 3.25 : ESSAI EN CONDITION ISOTHERME ET STATIONNAIRE (COMPOSITE 10S4G) ( $F_s=30\%$ , $\dot{\gamma}=26\text{s}^{-1}$ ).....	166
FIGURE 3.26 : ESSAI EN CONDITION ISOTHERME ET STATIONNAIRE (COMPOSITE 10S4G) ( $F_s=30\%$ , $\dot{\gamma}=52\text{s}^{-1}$ ).....	167
FIGURE 3.27 : ESSAI EN CONDITION ISOTHERME ET STATIONNAIRE (COMPOSITE 10S4G) ( $F_s=30\%$ , $\dot{\gamma}=104\text{s}^{-1}$ ).....	168

FIGURE 3.28 : ÉVOLUTION DES CONSTANTES DE DISSOCIATION EN FONCTION DE LA VITESSE DE CISAILLEMENT .....	169
FIGURE 3.29 : ÉVOLUTION DES VISCOSITÉS D'ÉQUILIBRE EN FONCTION DE LA VITESSE DE CISAILLEMENT.....	169
FIGURE 3.30 : EFFET D'UN TEMPS DE REPOS SUR LA VISCOSITÉ EN CONDITION STATIONNAIRE.....	170
FIGURE 3.31 : EFFET DE LA PRÉSENCE DE PARTICULES DE RENFORT SUR LA CINÉTIQUE DE DÉGRADATION .....	171
FIGURE 3.32 : STRUCTURE DENDRITIQUE INITIALE .....	174
FIGURE 3.33 : STRUCTURE RHÉOCOULÉE .....	174
FIGURE 3.34 : MICROSTRUCTURE RHÉOCOULÉE : VUE D'ENSEMBLE AU MEB .....	175
FIGURE 3.35 : PROFIL DE CONCENTRATION LE LONG D'UNE PARTICULE DE SIC À L'INTÉRIEUR DE LA PHASE PRIMAIRE .....	176
FIGURE 3.36 : MICROSTRUCTURES RHÉOCOULÉES CARTOGRAPHIÉES. ....	177
FIGURE 3.37 : COURBE TYPIQUE DE "STEP CHANGE" ALLIAGE A356 ( $F_s=30\%$ ).....	180
FIGURE 3.38 : VISCOSITÉS INSTANTANÉE VERSUS VITESSE DE CISAILLEMENT .....	180
FIGURE 3.39 : EFFET DE LA VITESSE INITIALE DE CISAILLEMENT SUR LA FORME DES BOUCLES D'HYSTÉRÉSIS ( $F_s=30\%$ ) .....	193
FIGURE 3.40 : EFFET DU TEMPS DE MONTÉE SUR LES BOUCLES D'HYSTÉRÉSIS ( $F_s=30\%$ )..	194
FIGURE 3.41: EFFET D'UN TEMPS DE REPOS SUR LES BOUCLES D'HYSTÉRÉSIS ( $F_s=30\%$ )... ..	195
FIGURE 3.42 : EFFET D'UN TEMPS DE REPOS SUR LES BOUCLES D'HYSTÉRÉSIS .....	196
FIGURE 3.43 : EFFET COMBINÉ À UN TEMPS DE MAINTIEN ET UN TEMPS DE REPOS ( $F_s=30\%, 6S3G$ ) .....	197
FIGURE 3.44 : EFFET COMBINÉ À UN TEMPS DE MAINTIEN ET UN TEMPS DE REPOS ( $F_s=30\%, 6S3G$ ) .....	198

FIGURE 3.45 : ÉVOLUTION DU PRODUIT $K_D\lambda_E$ EN FONCTION DE LA VITESSE DE CISAILLEMENT ( $F_S=30\%, 10S4G$ ) .....	199
FIGURE 3.46 : MODÉLISATION DES BOUCLES D'HYSTÉRÉSIS (EFFET DE LA VITESSE INITIALE DE CISAILLEMENT, $F_S=30\%$ ).....	200
FIGURE 3.47 : MODÉLISATION DES BOUCLES D'HYSTÉRÉSIS (EFFET DU TEMPS DE MONTÉE, $F_S=30\%$ ) .....	201
FIGURE 3.48 : MODÉLISATION DES BOUCLES D'HYSTÉRÉSIS (EFFET DE LA VITESSE DE CISAILLEMENT MAXIMUM, $F_S=30\%$ ).....	202
FIGURE 3.49 : PRÉDICTION DE L'ÉVOLUTION DE LA STRUCTURE DES GELÉES SEMI-SOLIDES LORS D'UN CYCLE DE MONTÉE À HAUTE VITESSE DE CISAILLEMENT, $F_S=30\%$ ).....	203
FIGURE 3.50 : PROFIL DE TEMPÉRATURE AU COURS DE LA REFUSION PARTIELLE DU COMPOSITE 6S3G .....	207
FIGURE 3.51 : LES DIFFÉRENTES MICROSTRUCTURES DU COMPOSITE 6S3G ÉTUDIÉES EN COMPRESSION .....	208
FIGURE 3.52 : COMPARAISON DES COURBES DE COMPRESSION POUR LES DIFFÉRENTES MICROSTRUCTURES ÉTUDIÉES. .....	209
FIGURE 3.53: COURBES DE COMPRESSION DES ÉPROUVENTES DENDRITIQUES ( $T=575^\circ C, \varphi$ (TOTALE)=0.42, COMPOSITE 6S3G). .....	210
FIGURE 3.54: COURBES DE COMPRESSION DES ÉPROUVENTES DENDRITIQUES ( $T=580^\circ C, \varphi=0.37$ (TOTALE), COMPOSITE 6S3G). .....	211
FIGURE 3.55 : COURBES DE COMPRESSION DES ÉPROUVENTES DENDRITIQUES ( $T=585^\circ C, \varphi=0.32$ (TOTALE), COMPOSITE 6S3G). ....	212
FIGURE 3.56 : COURBES DE COMPRESSION DES ÉPROUVENTES DENDRITIQUES ( $T=590^\circ C, \varphi=0.26$ (TOTALE), COMPOSITE 6S3G). ....	213

FIGURE 3.57 : COURBES DE COMPRESSION DES ÉPROUVETTES DENDRITIQUES (T=595°C, $\phi_{TOTALE}=0.17$ , $P_0=20\text{KPA}$ , COMPOSITE 6S3G) .....	214
FIGURE 3.58: COURBES DE COMPRESSION DES ÉPROUVETTES RHÉOCOULÉES (T=575°C, $\phi_{TOTALE}=0.42$ , COMPOSITE 6S3G).....	215
FIGURE 3.59 : COMPARAISON DES COURBES DE COMPRESSION DES ÉPROUVETTES RHÉOCOULÉES DE L'ALLIAGE A356 ET DU COMPOSITE 6S3G .....	216
FIGURE 3.60 : DÉPOUILLEMENT DES RÉSULTATS À L'AIDE DU MODÈLE NEWTONIEN (6S3G DENDRITIQUE, T=575°C, $\phi_{TOTALE}=0.42$ ) .....	220
FIGURE 3.61 : EXEMPLE DE PROFIL DE VITESSE DE CISAILLEMENT AU COURS D'UN ESSAI DE COMPRESSION ( $P_0=60\text{KPA}$ , T=575°C, $\phi_{TOTALE}=0.42$ ).....	221
FIGURE 3.62 : ÉVOLUTION DE LA VISCOSITÉ EN FONCTION DE LA VITESSE DE CISAILLEMENT (MODÈLE NEWTONIEN).....	222
FIGURE 3. 63 : EXEMPLE DE DÉPOUILLEMENT DES RÉSULTATS À L'AIDE DU MODÈLE À LOI DE PUISSEANCE ( $P_0=20\text{KPA}$ , T=585°C, $\phi_{TOTALE}=0.32$ ).....	223
FIGURE 3.64 : ÉVOLUTION DU COEFFICIENT N EN FONCTION DE LA FRACTION SOLIDE....	224
FIGURE 3.65 : ÉVOLUTION DU COEFFICIENT M EN FONCTION DE LA FRACTION SOLIDE ....	225
FIGURE 3.66 : ÉVOLUTION DE LA VISCOSITÉ EN FONCTION DE LA VITESSE DE CISAILLEMENT (MODÈLE À LOI DE PUISSEANCE : $\eta = m\dot{\gamma}^{n-1}$ ) .....	226
FIGURE 3. 67 : COMPARAISON ENTRE LES VISCOSITÉS D'ÉQUILIBRE OBTENUES AVEC LE VISCOSIMÈTRE À AGITATEUR ET LES VISCOSITÉS OBTENUES AVEC LE VISCOSIMÈTRE À PLATEAUX PARALLÈLES PAR LE MODÈLE À LOI DE PUISSEANCE .....	227
FIGURE 3.68 : ÉVOLUTION DES ÉPROUVETTES DENDRITIQUES AU COURS D'UN ESSAI DE COMPRESSION .....	230
FIGURE 3.69 : MICROSTRUCTURE DES ÉPROUVETTES 6S3G DENDRITIQUES EN DÉBUT DE COMPRESSION .....	231

- FIGURE 3.70 : MICROSTRUCTURE DES ÉPROUVETTES 6S3G DENDRITIQUES ( $E=0.37$ )..... 232
- FIGURE 3.71 : MICROSTRUCTURE DES ÉPROUVETTES 6S3G DENDRITIQUES ( $E=0.5$ )..... 233
- FIGURE 3.72 : MICROSTRUCTURE DES ÉPROUVETTES 6S3G DENDRITIQUES ( $E=0.62$ )..... 234
- FIGURE 3.73 : MICROSTRUCTURE DES ÉPROUVETTES 6S3G RHÉOCOULÉES ( $E=0.5$ )..... 235
- FIGURE 3.74 : MICROSTRUCTURE DES ÉPROUVETTES A356 RHÉOCOULÉES ( $E=0.5$ )..... 236

**LISTE DES TABLEAUX**

TABLEAU 2.1 : COMPOSITION CHIMIQUE DES COMPOSITES 10S4G, 6S4G ET 5A3G. ND=NON DÉTERMINÉ.....	80
TABLEAU 2.2 : COMPARAISON DES TEMPÉRATURES DES LIQUIDUS MESURÉS ET CALCULÉS 105	
TABLEAU 2.3 : CARACTÉRISTIQUES DES HUILES DE CALIBRATION.....	114
TABLEAU 2.4 : CORRÉLATION ENTRE LES NOMBRES DE PUISSANCE ET LE NOMBRES DE REYNOLDS.....	116
TABLEAU 3.1 : PARAMÈTRES DE LA LOI DE PUISANCE ET PLATEAUX NEWTONIENS (T=635°C).....	142
TABLEAU 3.2 : PARAMÈTRES STÉRÉOLOGIQUES DES PARTICULES DE CARBURES DE SILICIUM .....	142
TABLEAU 3.3 : COMPILATION DES PARAMÈTRES CORRESPONDANT À LA RELATION 3.4.....	150

**LISTE DES ANNEXES**

ANNEXE A : LES DIAGRAMMES BINAIRES OPTIMISÉS DU SYSTÈME AI-SI-NI.....	256
ANNEXE B : DÉTAIL DE LA RÉSOLUTION DE LA RELATION 3.13.....	263

## INTRODUCTION

Les procédés de mise en forme à l'état semi-solide à partir de structures non dendritiques des alliages et des composites à matrice métallique sont de plus en plus l'alternative choisie par les industriels pour remplacer la mise en forme à partir d'un état complètement liquide ou complètement solide. Les objectifs recherchés étant : d'un côté s'affranchir des problèmes de turbulence rencontrés lors de la mise en forme à l'état liquide, d'un autre côté éviter l'usure sévère des outils (tels que : matrices, pistons...) suite à une mise en forme à l'état solide.

Le précurseur de ces procédés est Spencer [1], qui dans les années 70 est le premier à avoir découvert que le brassage mécanique d'un alliage en cours de solidification contrarie la solidification dendritique et confère à l'alliage des propriétés thixotropiques qui rendent la mise en forme à l'état semi-solide très attrayante. En effet, après refusion dans la zone semi-solide, ces alliages (que l'on appelle communément gelées semi-solides) peuvent atteindre facilement des viscosités qui permettent de les manipuler comme des solides mais sont mis en forme comme des liquides du fait que leur viscosité a tendance à baisser considérablement lors de l'application d'un cisaillement.

Les procédés de mise en forme à l'état semi-solide ont connu un essor important depuis Spencer. Particulièrement ces dix dernières années où l'on a assisté à une prolifération des études théoriques portant sur le comportement rhéologique des gelées semi-solides des alliages. Malgré tout, de nombreux mécanismes impliqués lors de la mise en forme à l'état semi-solide restent encore obscurs à ce jour et la recherche dans ce secteur d'activité est donc toujours d'actualité.

L'optimisation des procédés de mise en forme à l'état semi-solide nécessite une modélisation complète qui englobe : l'écoulement du fluide, les transferts de chaleur et la solidification et passe donc obligatoirement par la connaissance des propriétés rhéologiques, et en particulier de la viscosité, du mélange semi-solide. Celles-ci dépendent très fortement de la microstructure de la gelée semi-solide qui elle-même dépend des conditions d'élaboration, à savoir : la fraction solide et la vitesse de cisaillement. L'intégration de ces paramètres dans les modèles de mise en forme à l'état semi-solide s'avère donc indispensable. Des efforts importants ont été déployés pour mieux comprendre l'effet de ces variables et de nombreux modèles ont été proposés avec plus ou moins de succès.

Notre travail de recherche se veut une contribution à la meilleure compréhension de l'état semi-solide. Il s'inscrit dans le cadre d'un partenariat entre la société INCO LTD, L'IMI (Institut des Matériaux Industriels de Boucherville) et l'École Polytechnique. Il vise à optimiser la mise en forme à l'état semi-solide d'une nouvelle classe de composites hybrides à base d'aluminium renforcés par des particules de carbures de silicium ( $\text{SiC}$ ) ou d'alumine ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) et de graphite, appelés GrA-Ni<sup>®</sup> et développés par la société INCO.

Ces matériaux sont destinés à remplacer la fonte grise lamellaire dans des applications qui requièrent de bonnes propriétés de résistance à l'usure. En effet, des études menées par Inco [2] ont montré que ces derniers ont de bonnes propriétés de résistance à l'usure et maintiennent leurs propriétés physiques et mécaniques malgré la présence de grosses particules de graphite dans leur microstructure. Ce potentiel a permis de proposer le composite GrA-Ni<sup>®</sup> comme "candidat" au remplacement de la fonte grise lamellaire dans des applications telles que les chemises de protection des cylindres ou des systèmes de freinage. Des essais de moulage à partir de l'état liquide ont été réalisés sur ces matériaux et des pièces de plus ou moins bonnes

qualités ont été fabriquées [3]. L'obstacle majeur rencontré étant des problèmes de sédimentation inhérents à la présence de phase de différentes densités.

Dans un soucis de développement, les partenaires de ce projet sont intéressés à produire des pièces de ces composites via des procédés de mise en forme semi-solide. Les buts recherchés étant de profiter de tous les avantages de la mise en forme à l'état semi-solide des alliages en plus de minimiser les problèmes de séparation des phases de renfort [4].

Concrètement, les objectifs poursuivis dans le cadre de ce travail sont :

- 1) Étendre l'étude de l'état semi-solide à une classe de matériaux (composites avec un renfort bimodal) non étudiée à ce jour.
- 2) Vérifier la validité des modèles précédemment cités sur les composites et apporter une contribution originale.
- 3) Comparer le comportement rhéologique de ces gelées à celui des gelées semi-solides des alliages.
- 4) Caractériser les propriétés rhéologiques des composites GrA-Ni<sup>3</sup> à l'état semi-solide afin de dégager les équations rhéologiques qui décrivent au mieux le matériau à l'étude.
- 5) Intégrer ces relations aux modèles de mise en forme à l'état semi-solide afin de contribuer à l'optimisation du procédé.

## CHAPITRE I

### REVUE DE LA LITTERATURE

#### **1.1 STRUCTURES ET PROPRIÉTÉS DES ALLIAGES BRASSÉS À L'ÉTAT SEMI-SOLIDE**

Dans cette partie, on se propose de décrire les principales caractéristiques des alliages brassés à l'état semi-solide. Nous commencerons par décrire les structures qui se développent lors d'une solidification conventionnelle (sans brassage) ce qui nous permettra, dans un deuxième temps, de comparer le comportement de ces structures à celui des alliages brassés à l'état semi-solide. Nous pourrons ainsi faire ressortir les avantages de la mise en forme à l'état semi-solide des structures non dendritiques.

##### **1.1.1 LA SOLIDIFICATION DENDRITIQUE**

Les structures qui se développent lors de la solidification conventionnelle des métaux et des alliages dépendent des conditions de croissance et particulièrement de la surfusion. On ne peut donner naissance à une surfusion dans les métaux purs que par des moyens thermiques, par contre, dans les alliages, une surfusion peut être produite indirectement par des changements de température et de composition (surfusion structurale).

Dans le premier cas, il y a surfusion lorsque la croissance cristalline se fait avec un gradient de température négatif dans le liquide. Dans ce cas, si une protubérance est présente sur l'interface, son extrémité est dans une région où la surfusion est plus importante que sur le reste de l'interface et elle aura tendance à croître encore plus vite dans le liquide. Cette dernière donne naissance à une structure ramifiée que l'on appelle une dendrite et qui a la forme d'une pointe sur laquelle des branches (ou des bras) se développent.

Dans le deuxième cas, le liquide est dans un état de surfusion lorsque la combinaison des répartitions du soluté et de la température en avant de l'interface solide-liquide donne naissance à une zone où le liquide est en dessous de sa température normale de solidification. Cette condition est satisfaite lorsque la relation (voir figure 1.1):

$$\frac{G_L}{R} < mC_0D\left(\frac{1-K_0}{K_0}\right) \quad (1.1)$$

est vérifiée [5].

Où

$G_L$  : est le gradient de température dans le liquide

$R$  : est la vitesse de solidification

$C_0$  : est la composition de l'alliage

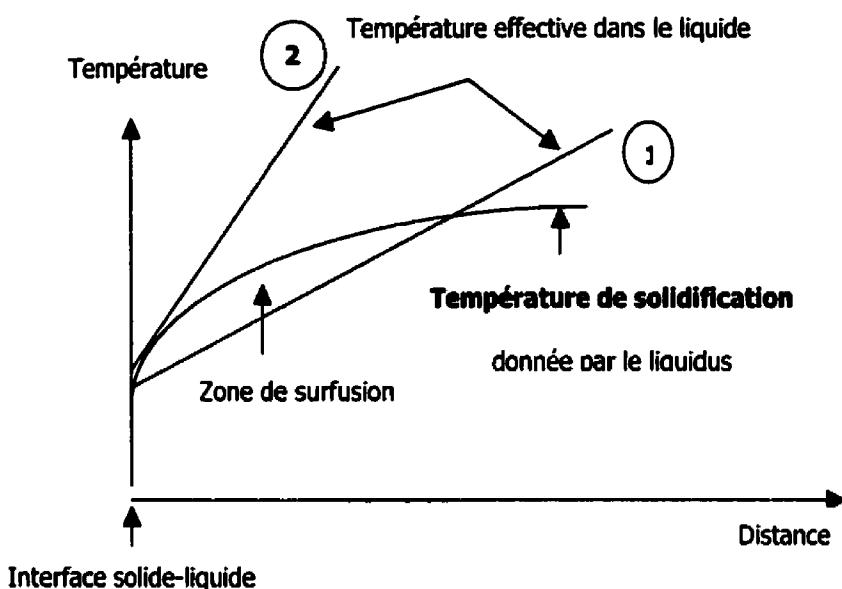
$D$  : est le coefficient de diffusion

$K_0$  : est le coefficient de partage

$m$  : est la pente du liquidus

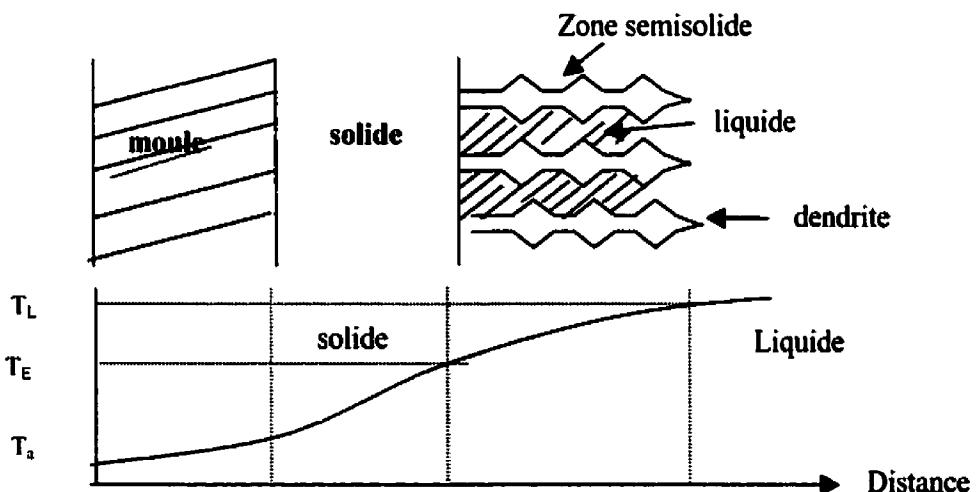
Dans ce cas le liquide en état de surfusion (surfusion de constitution) donne lieu à une solidification dendritique pour les mêmes raisons que celles citées précédemment.

Dans les deux cas, la solidification donne naissance à des dendrites dont les branches et ramifications se développent dans des directions cristallographiques bien déterminées et dont la morphologie est caractéristique. Généralement, on observe que celle-ci est du type colonnaire ou équiaxe (figure 1.2).



**Figure 1.1 : Représentation de la surfusion structurale.**

Surfusion à condition :  $\frac{G_L}{R} < mC_0 D \left( \frac{1 - K_0}{K_0} \right)$  Cas (1)  
 Élimination de la surfusion par augmentation de  $G_L$  Cas (2)



**Figure 1.2 : Solidification dendritique lors d'une solidification conventionnelle.**

- a): structure dendritique colonnaire
- b): profil de température : L=Liquidus, E=Eutectique, a=ambiante

### **1.1.2 ÉVOLUTION MORPHOLOGIQUE DES DENDRITES DANS L'INTERVALLE SEMI-SOLIDE**

Sur tout l'intervalle de solidification, la morphologie des dendrites évolue de manière significative. Ces changements peuvent affecter grandement le comportement des structures de coulée et il est donc important d'identifier les mécanismes à l'origine de ceux-ci.

À basse vitesse de refroidissement, la solidification se fait généralement avec une interface à structure cellulaire. La direction de croissance est alors perpendiculaire à l'interface liquide-solide et aucune orientation préférentielle n'est observée. Lorsque la vitesse de solidification augmente, on observe un passage d'une structure cellulaire à une structure dendritique et simultanément à une croissance selon des directions cristallographiques préférentielles. Même à ce jour, ce mécanisme reste mal connu. Le seul point bien établi est que les dendrites évoluent, avec une tendance au grossissement, tout au long du processus de solidification.

Il est bien connu à ce jour, que le grossissement des dendrites est un processus physico-chimique dont la force motrice est la diminution de l'énergie interfaciale liquide-solide. Il peut se faire selon deux mécanismes : un mécanisme de mûrissement ou de coalescence [6] (figure 1.3). Dans ce qui suit, on se propose d'expliquer ces deux mécanismes.

#### **1.1.2.1 LE MURISSEMENT DES DENDRITES**

Le mûrissement des dendrites correspond à une diminution du nombre de bras de dendrites et simultanément à une augmentation de l'espacement entre les branches secondaires de celles-ci suite à la refusion des bras des dendrites les plus petites au profit des plus grosses [7]. Ce phénomène a été traité par Ostwald [8] dans le cas limite de particules sphériques

infiniment séparées dans une matrice homogène. Dans ce cas, le mûrissement se produit car la concentration en soluté est plus importante autour des particules de plus petits rayons où le potentiel chimique est plus élevé. Wagner [9], Lifshitz et Slyozov [10] ont proposé une relation capable de décrire le phénomène de mûrissement en fonction du temps, lorsque celui-ci se fait via une diffusion du soluté :

$$r^3 - r_0^3 = K(0)t \quad (1.2)$$

Où  $r$  et  $r_0$  sont respectivement les rayons des particules aux instants  $t$  et  $t_0$  et  $K(0)$  est une constante qui à la forme suivante :

$$K(0) = \frac{8T\Gamma D}{9m(C_s - C_l)} \quad (1.3)$$

Où : T est la température

D est le coefficient de diffusion du liquide

$\Gamma$  est une longueur caractéristique

m est la pente du liquidus

$C_s$  est la composition du solide

$C_l$  est la composition du liquide

Pour une concentration finie de particules solides, la relation (1.2) reste valable mais la constante  $K(0)$  dépend de la fraction solide  $f_s$  (cette constante est alors notée :  $K(f_s)$ ).

Comme on le verra, d'un point de vue rhéologique, la surface spécifique volumique  $S_v$  (Surface de solide par unité de volume de particules) est un paramètre intéressant pour caractériser le mûrissement. Marsh et al [11] ont proposé un modèle statistique pour décrire l'évolution de  $S_v$  en fonction du temps et ont dérivé la relation suivante :

$$\frac{S_{v0}}{S_v} = 1 + \frac{K(f_s)}{d_0^3} t \quad (1.4)$$

Où  $S_{v0}$  et  $d_0$  sont respectivement les valeurs de la surface spécifique et du diamètre des particules au temps  $t$  égal à zéro.

Notons que dans le cas des structures dendritiques, c'est très souvent l'espace entre les branches secondaires des dendrites,  $\lambda$ , qui est le paramètre choisi pour caractériser le phénomène de mûrissement. Kurz et Fisher [12], parmi d'autres, rapportent que celui-ci suit une loi du type :

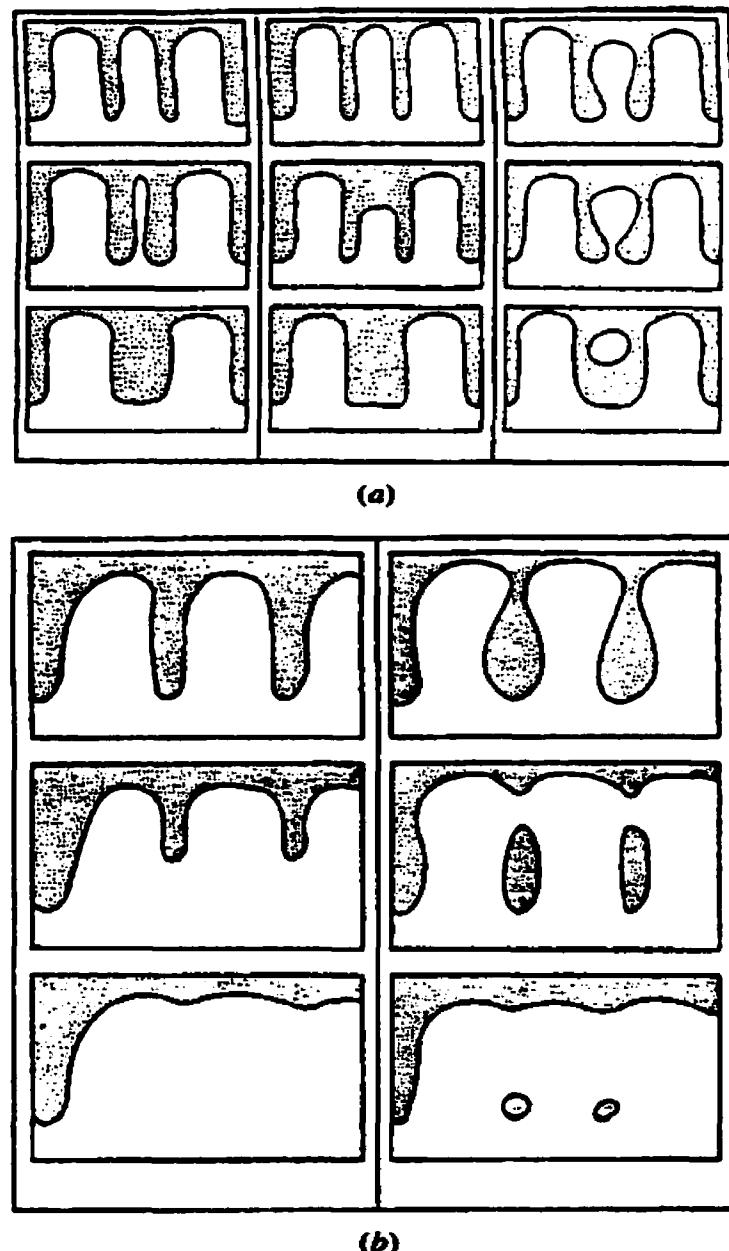
$$\lambda = at_r^n \quad (1.5)$$

Où  $t_r$  est le temps local de solidification (temps nécessaire à la solidification du liquide qui se trouve dans la zone semi-solide (voir figure 1.2),  $a$  est une constante qui dépend du matériau et  $n$  une constante qui varie généralement dans l'intervalle [1/3, 1/2]

### 1.1.2.2 LA COALESCENCE DES DENDRITES

La coalescence des dendrites correspond à une agglomération entre les branches secondaires des dendrites due à une déposition préférentielle dans les régions de courbure fortement négative le long de l'interface solide-liquide [6,13,14]. Ce phénomène est fondamentalement identique au phénomène de mûrissement. La seule différence réside dans le fait que la matière se dépose dans des régions de courbure positive lors du mûrissement alors que la matière se dépose dans des régions de courbure négative lors de la coalescence.

En général, le phénomène de mûrissement prédomine dans les premiers stades de la solidification (jusqu'à des fractions solides de l'ordre de 0.5). Au-delà, c'est le phénomène de coalescence qui est le plus important. Ce dernier se manifeste généralement sous la forme d'un remplissage de l'espace entre les branches secondaires des dendrites.



**Figure 1.3 : Les processus de grossissement des dendrites.**

D'après [6].

- a) phénomène de mûrissement
- b) phénomène de coalescence

### **1.1.3 LA SOLIDIFICATION NON DENDRITIQUE**

Lorsqu'on brasse un alliage depuis une température supérieure à celle du liquidus jusqu'à une température choisie dans la zone semi-solide et que l'on procède à une trempe, les structures qui se forment sont constituées de particules primaires (issues de la solidification qui a lieu avant la trempe) quasi-sphériques dans une matrice dendritique fine produite par la solidification secondaire rapide du liquide existant au moment de la tempe. De telles structures sont qualifiées de structures rhéocoulées. Comme on le verra dans ce qui suit, ces dernières ont un comportement très différent de celui des structures de coulée conventionnelles.

En premier lieu, commençons par expliciter les mécanismes à l'origine de la formation de ces structures.

#### **1.1.3.1 PROCÉDÉS POUR RÉALISER DES STRUCTURES NON DENDRITIQUES**

Le point essentiel pour obtenir des structures non dendritiques est d'induire un cisaillement dans l'alliage en cours de solidification. Le cisaillement est généré essentiellement de deux façons :

- Par brassage électromagnétique
- Par brassage mécanique

Les deux procédés sont schématisés sur la figure 1.4.

Dans le cas du brassage mécanique, l'élaboration des gelées se fait dans des dispositifs appelés gyrocouleurs. Il en existe deux types :

- Les gyrocouleurs continus
- Les gyrocouleurs monocharges

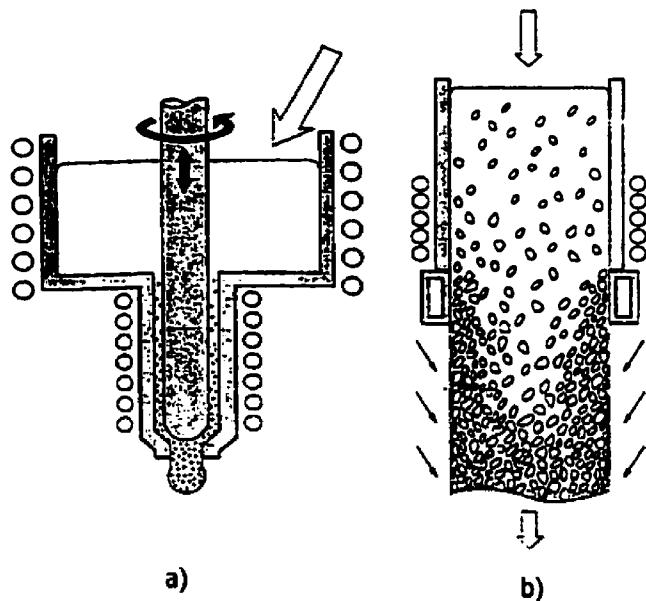
Dans les premiers, on induit un cisaillement dans le liquide que l'on refroidit en continu. Ces dispositifs sont facilement adaptables à différents systèmes de mise en forme comme le rhéomoulage. Ils permettent également de produire des structures rhéocoulées qui peuvent être par la suite thixomoulées ou thixoforges [15] (figure 1.10).

Dans les seconds, l'alliage en cours de solidification est brassé mécaniquement dans des conditions isothermes. En général, ces gyrocouleurs sont du type viscosimètre de couette et sont adaptés à l'étude rhéologique des alliages semi-solides plutôt qu'à leur mise en forme.

Un cisaillement peut également être généré à l'aide de champs électromagnétiques. En effet, ceux-ci induisent des champs convectifs au sein de l'alliage en cours de solidification. Le principal avantage de cette méthode est qu'elle évite tout problème d'usure ou d'érosion des outils du fait qu'elle ne nécessite aucun agitateur. De plus, le brassage s'avère meilleur car il agit efficacement sur l'ensemble de la gelée semi-solide contrairement au cas du brassage mécanique avec un agitateur. Cette technique est notamment utilisée pour produire des gelées semi-solides d'alliage ferreux [16]. En effet pour de telles structures, le brassage mécanique s'avère inefficace voir impossible du fait des contraintes de cisaillement trop forte qu'il faut générer et de l'usure importante qu'il en résulte.

D'autres procédures permettent également de produire des structures non dendritiques. Robert et Kirkwood [17] ont montré qu'il est possible d'obtenir des structures non dendritiques via un traitement thermique adéquat de structures dendritiques préalablement déformées au-dessous du solidus. Par ce biais, qu'on appelle procédé SIMA, des gelées semi-solides des alliages Al-Cu, Al-Si, Cu-Zn ont été produites avec succès [18].

La génération d'onde ultrasonore au sein d'un alliage en cours de solidification a également été utilisée pour produire des alliages non dendritiques [19]. Cette procédure reste néanmoins marginale à ce jour. En fait, la quasi-totalité de la production actuelle des gelées semi-solides se fait par brassage électromagnétique.



**Figure 1.4 : Dispositif d'élaboration des gelées.**

- a) brassage mécanique
- b) brassage électromagnétique

### 1.1.3.2 MÉCANISMES PHYSIQUES ASSOCIÉS À LA SOLIDIFICATION NON DENDRITIQUE

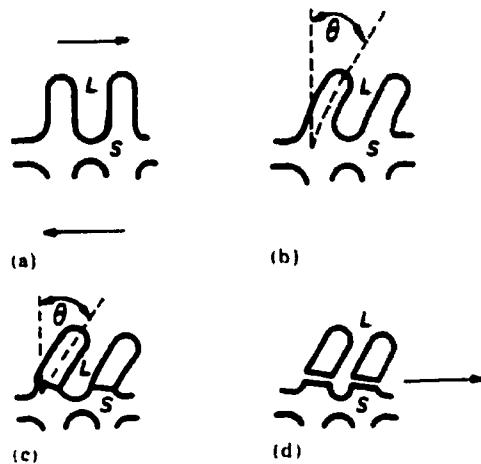
Plusieurs hypothèses ont été avancées pour expliquer la formation de particules sphériques dans les structures rhéocoulées. Vogel et al [20] ont expliqué la transformation de la structure dendritique en une structure non dendritique par un mécanisme de fragmentation des dendrites. Doherty et al [21] ont étudié plus précisément la microstructure d'une grande variété d'alliages semi-solides brassés mécaniquement et ont proposé un modèle pour décrire cette fragmentation.

Dans ce modèle, on considère que le brassage induit de large déformation plastique par flexion sur les bras des dendrites. La flexion plastique désoriente les bras des dendrites et génère des dislocations. Afin de minimiser l'énergie élastique importante introduite par la formation de ces dislocations, celles-ci vont se réarranger pour former des joints de grains dont l'angle de désorientation est égal à l'angle de flexion initial. Dans le cas où l'énergie de ces joints de grains  $\gamma_{gb}$  est supérieure à deux fois l'énergie interfaciale  $\gamma_{sl}$  (ce qui est le cas pour une désorientation supérieure à 20°), le joint de grains est remplacé par un film liquide et la dendrite se brise le long de celui-ci (voir figure 1.5).

Partant de ce point, Doherty explique la formation de structure globulaire en supposant que les fragments de dendrite formés lors du cisaillement se transforment en rosette suite au mûrissement d'Ostwald, au cisaillement et à l'abrasion avec les autres grains. Le mûrissement va se produire tout au long du refroidissement et dans le cas où l'on refroidit suffisamment lentement avec des vitesses de cisaillement suffisamment importantes, les rosettes se transforment en particules sphériques (figure 1.6.I). Habituellement, une certaine quantité de

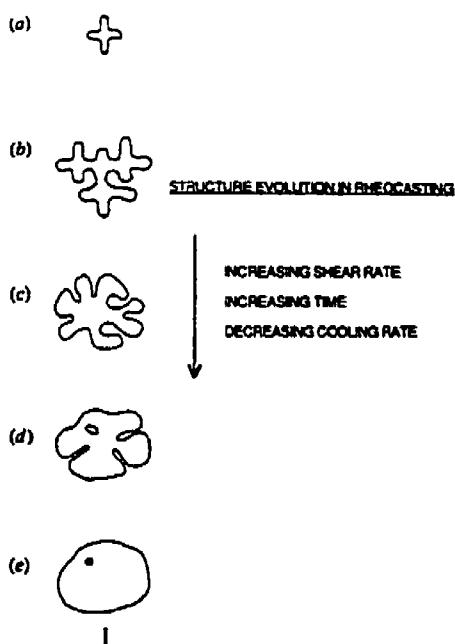
liquide est piégée à l'intérieur des particules. Notons que les relations 1.2 et 1.4 données en 1.1.2.1 restent valable pour décrire le mûrissement des structures rhéocoulées.

Une autre explication a été apportée par Molenaar et al [22] qui ont étudié les alliages Al-6%Cu. D'après ces auteurs la présence de particules en forme de rosette que l'on observe dans les structures rhéocoulées serait le résultat d'une croissance cristalline cellulaire. Ces auteurs ont essayé d'expliquer ce mécanisme en étudiant l'effet de la convection sur les couches limites thermiques et hydrodynamiques. Ils ont montré que la croissance dendritique est supprimée du fait que la convection réduit l'épaisseur des couches limites thermiques et hydrodynamiques. Cette diminution a comme effet d'augmenter les gradients de soluté et de température en avant de l'interface de solidification et donc de supprimer la croissance cristalline sur les parois du gyrocouleur. Ce faisant et pourvu que la convection soit suffisamment importante, la germination de la phase solide va se faire dans la masse liquide, favorisant ainsi la formation de grains équiaxes au sein de celui-ci (figure 1.6.II).



**Figure 1.5 : Mécanisme de fragmentation des dendrites.**

D'après [20]



**Figure 1.6 : Mécanismes de globularisation.**

- I : D'après [21]  
 a) fragment de dendrite  
 b) croissance dendritique  
 c) mûrissement  
 d) formation de rosette  
 e) particule globulaire

- II : D'après [22]  
 a) croissance dendritique  
 b) diminution de la surfusion  
 c) élimination de la surfusion et croissance cellulaire dans la masse

### **1.1.4 COMPORTEMENT MÉCANIQUE DES ALLIAGES ET COMPOSITES À L'ÉTAT SEMI-SOLIDE**

Dans les sections précédentes, nous avons décrit succinctement les caractéristiques générales des structures dendritiques ainsi que des structures rhéocoulées. A présent, montrons comment celles-ci affectent le comportement mécanique des alliages et des composites dans l'état semi-solide.

#### **1.1.4.1 CAS DES ALLIAGES DENDRITIQUES**

Comme on l'a vu, tous les métaux et alliages présentent une structure dendritique lorsqu'ils se solidifient de manière conventionnelle. Dans la zone semi-solide, les dendrites commencent à former un squelette résistant, conférant ainsi à l'alliage une certaine viscosité, lorsque les fractions solides atteignent des valeurs de l'ordre de 0.2 à 0.3. Pour des fractions solides supérieures, l'alliage ne peut plus être coulé de manière conventionnelle du fait de sa viscosité trop élevée. De même, celui-ci ne peut être déformé sans ségrégation de la phase liquide et formation de fissures.

Les phénomènes de ségrégation de la phase liquide et de formation de fissures dans les alliages dendritiques soumis à une déformation, ont été étudiés essentiellement via deux types d'expériences. Le premier type d'expérience consiste à soumettre l'alliage dendritique, préalablement porté dans la zone semi-solide, à un cisaillement entre deux cylindres coaxiaux. Le deuxième type d'expérience, quant à lui, consiste à soumettre le même alliage à une compression simple entre deux plateaux parallèles, simulant ainsi une opération de forgeage.

La figure 1.7.a montre les courbes typiques contrainte-déformation obtenues dans le cas d'un alliage dendritique Sn-15%Pb cisaillé, en condition isotherme dans la zone semi-solide, entre deux cylindres rainurés. On peut observer que la contrainte augmente avec le déplacement jusqu'à un maximum et puis diminue. Spencer et al [23] ont montré que cette chute de contrainte est associée à la formation de fissures continues dans la structure. À faibles fractions solides, ces fissures peuvent être comblées par un écoulement du liquide mais elles génèrent néanmoins des zones de macroségrégation dans la structure et altèrent par conséquent les propriétés mécaniques du matériau. La situation est encore plus néfaste aux hautes fractions solides où le liquide n'est plus en mesure de remplir les cavités et où par conséquent des fissures permanentes se forment dans la structure. La sensibilité à ce type de fissuration dépend fortement du type d'alliage [24], les alliages les plus sensibles étant ceux qui possèdent un intervalle de solidification important et une faible quantité de liquide eutectique [25].

Suéry et Flemming [26] ont étudié le comportement du même type d'alliage dendritique dans l'état semi-solide, lorsqu'ils sont soumis à une compression simple entre plateaux parallèles. Les résultats ont montré que pour des vitesses de déformation  $\dot{\varepsilon} < 400\text{s}^{-1}$ , la déformation s'accompagne d'une ségrégation de la phase liquide sur les bords des échantillons ainsi que d'une fissuration interdendritique importante. Les figures 1.7.b et 1.8 présentent les courbes typiques contrainte-déplacement obtenues ainsi que les profils de ségrégation.

Il a été trouvé que la ségrégation de la phase liquide dépend fortement des conditions de friction entre les plateaux de compression et l'échantillon. Les échantillons déformés sous des conditions de friction importantes montrent une macroségrégation plus prononcée que ceux déformés sous des conditions de friction plus faibles. Pinski et al [27] ont expliqué ce résultat en

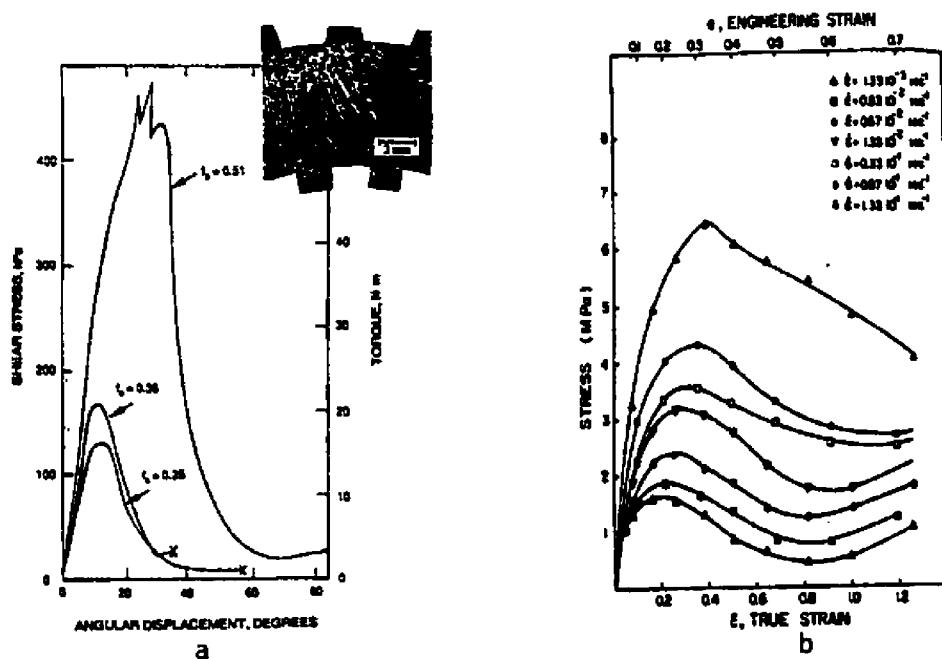
émettant l'hypothèse qu'une friction importante empêche le squelette dendritique de s'écouler radialement et provoque donc une expulsion du liquide vers les bords de l'échantillon quand celui-ci est comprimé.

En conclusion, il ressort de ces observations que malgré le caractère attrayant de la mise en forme à partir de l'état semi-solide, celle-ci semble limitée lorsque la solidification se fait de manière dendritique

#### **1.1.4.2 CAS DES ALLIAGES NON DENDRITIQUES**

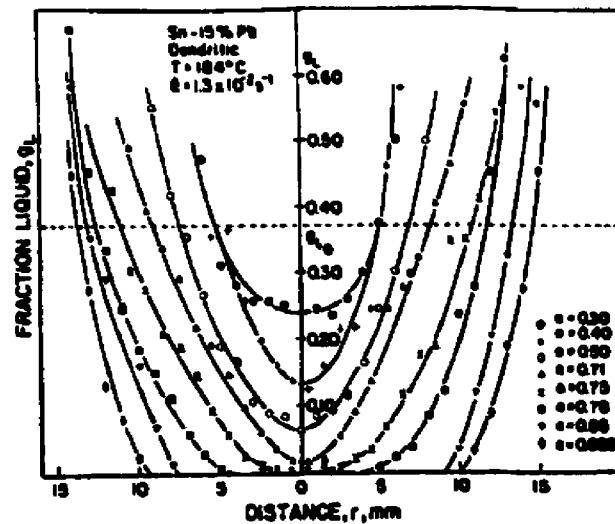
Les essais de compression et de cisaillement précédemment décrits ont montré que les structures rhéocoulées peuvent être déformées de manière très homogène et sous des pressions ou des contraintes de cisaillement très faibles, comparées à celles obtenues avec des structures dendritiques.

La figure 1.9 illustre la différence de comportement entre une structure dendritique et non dendritique dans le cas d'essais de compression sur des échantillons de l'alliage Sn-15%Pb. On peut observer clairement que la force de compression est beaucoup plus faible pour l'alliage non dendritique que pour le même alliage dendritique dans les mêmes conditions de déformation. En fait, tout se passe comme si l'alliage semi-solide non dendritique se comportait tel un liquide auquel on peut assigner une viscosité. On peut donc comprendre qu'un tel avantage a été exploité pour remplacer certains procédés de mise en forme à partir d'un état complètement liquide ou complètement solide, par des procédés de mise en forme à partir d'un état semi-solide et de structures non dendritiques. Ces procédés ont reçu l'appellation de "SSM forming".



**Figure 1.7 : Courbe contrainte déplacement des alliages dendritiques.**

a) essai de cisaillement : D'après [23], b) essai de compression : D'après [26]



**Figure 1.8 : Profil de ségrégation lors d'un essai de compression.**

D'après [26]

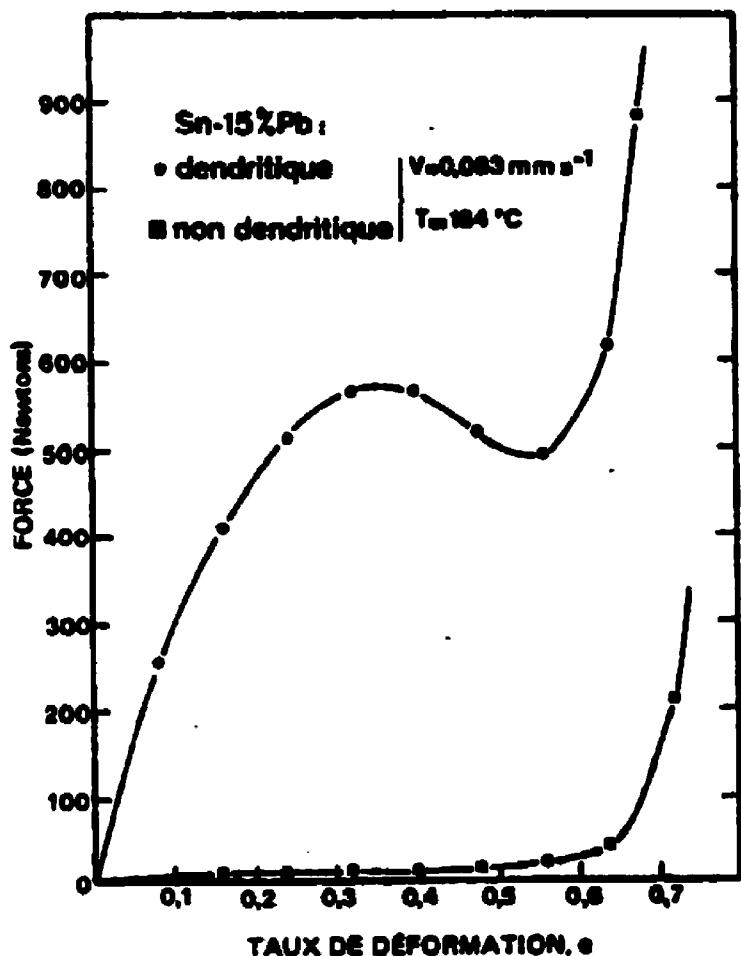


Figure 1.9 : Différence de comportement lors d'un essai de compression entre un alliage dendritique et non dendritique.

D'après [26]

### 1.1.5 DESCRIPTION DES MÉTHODES DE MISE EN FORME DES GELÉES SEMI-SOLIDES

Quasiment tous les procédés de mise en forme à l'état semi-solide dérive des procédés de mise en forme à l'état liquide ou à l'état solide.

Les principaux procédés de mise en forme à l'état semi-solide dérivant de la mise en forme à l'état liquide sont : le rhéomoulage par gravité, par injection ou centrifuge, le thixomoulage par injection et le moulage-forgeage.

L'obtention de pièce de forme compliquée est quasiment impossible par rhéomoulage par gravité du fait que les gelées semi-solides devant être coulées à relativement haute fraction solide ( $>0.3$ ), afin de bénéficier pleinement de leurs avantages, s'écoulent difficilement dans un moule.

Par contre, le thixomoulage ou le moulage forgeage (figure 1.10) ne sont pas confrontés à ce problème et un "formage" près des côtés dans des moules de formes relativement complexes est donc possible. Le thixomoulage exploite les propriétés thixotropiques des gelées semi-solides qui font que celles-ci sont mises en forme comme des liquides mais génèrent des produits finis de meilleure qualité du fait que la viscosité des 'thixobillettes' est plus importante. Dans le moulage-formage, les avantages proviennent du fait que la solidification a lieu sous pression ce qui diminue considérablement la présence de porosités dans le produit fini.

Les principaux procédés de mise en forme à l'état semi-solide dérivant de la mise en forme à l'état solide sont: le thixoforgeage, le laminage et l'extrusion. Le thixoforgeage exploite à la fois les avantages résultant des matériaux rhéomoulés et les avantages d'une solidification

sous pression. Cette méthode est utilisée fréquemment car les produits obtenus sont généralement exempts de porosité et de fissure.

Matsumiya et Flemings [28] ont montré, en étudiant l'alliage Sn-15%Pb, qu'il est possible d'exploiter les propriétés thixotropiques des gelées semi-solides pour élaborer des feuilles laminées saines et homogènes. La gelée est coulée directement sur une courroie transporteuse puis laminée entre un cylindre et cette courroie. A partir de cette méthode, Tanaka et al [29] ont laminé de l'acier et ont démontré qu'il était possible d'obtenir de bons résultats malgré le fait que l'acier a plutôt tendance à fissurer facilement lors du laminage à l'état solide.

De nombreuses études dans la littérature ont également montré que les pressions d'extrusion sont considérablement réduites (de l'ordre de 25%) dans le cas des alliages rhéomoulés et que l'extrudat obtenu en sortie de filière, présente un fini de surface largement supérieur au cas des alliages solidifiés conventionnellement. Laplante et al [30] ont montré que les meilleurs résultats sont obtenus pour les hauts taux de réduction. Kiuchi et al [31] ont montré, de leur côté, que la fraction solide résiduelle de l'extrudat doit être supérieure à 90% pour que le régime d'extrusion soit stable. Dans ce cas, il semblerait que l'effet de la friction entre la billette et la matrice sur la pression d'extrusion soit négligeable.

### **1.1.6 CHOIX DES CONDITIONS DE FORMAGE**

Dans la plupart des procédés de mise en forme à l'état semi-solide, les alliages rhéomoulés doivent être réchauffés avant leur mise en forme. La viscosité des charges semi-solides ainsi obtenue dépend à la fois de la température et de la vitesse de cisaillement lors du

formage. Les paramètres de formage doivent être les plus proches possibles des paramètres d'élaboration en amont du procédé de mise en forme si l'on veut prédire le comportement de la gelée semi-solide. L'optimisation du formage semi-solide passe donc par la maîtrise des paramètres du réchauffage ainsi que par le contrôle précis de la vitesse de cisaillement. Ceci est très délicat à réaliser du fait que : 1) la plupart du temps, le formage semi-solide se fait de manière dynamique et 2) l'influence des paramètres de réchauffage sur le degré de refusion de la phase secondaire de solidification et sur l'évolution morphologique de la phase primaire est très difficile à évaluer.

Le réchauffage des billettes rhéomoulées peut également poser un problème lors des opérations de transfert du fait que celles-ci tendent à se déformer sous leur propre poids. Zavaliangos et al [32] ont montré, en étudiant les alliages Sn-15%Pb, que pour des fractions solides inférieures à 0.5, la résistance à l'écoulement lors du réchauffage est minimale. Ils ont conclu que les billettes ont une résistance significative à l'écoulement dû à la gravité, lorsqu'un squelette solide se forme sur l'ensemble de celles-ci.

La technique de brassage, la méthode de dégazage et l'atmosphère de travail sont également des paramètres qui conditionnent la qualité des alliages rhéomoulés et par conséquent la qualité du produit fini lors des opérations subséquentes.

Une globularisation complète des structures rhéomoulées n'est pas toujours évidente par un simple brassage mécanique et on s'oriente de plus en plus vers un brassage électromagnétique (voir paragraphe 1.1.3.1). Cependant, on doit en contre partie développer des modèles afin de décrire l'écoulement, parfois complexe, des gelées semi-solides dans un champ électromagnétique convectif [33].

Le contrôle de l'atmosphère, notamment du taux d'oxygène et d'hydrogène, est un paramètre critique lors des opérations de fonderie des alliages légers tel que l'aluminium. En effet, l'aluminium a une affinité importante pour l'oxygène et contribue donc à la formation d'hydrogène dans la vapeur d'eau environnante. L'hydrogène ainsi formé se dissout facilement dans l'aluminium et génère des porosités lors de la solidification à cause de la diminution brutale de solubilité de l'hydrogène dans l'aluminium. La présence de ces porosités altère grandement les propriétés mécaniques de l'alliage et le dégazage de l'aluminium liquide s'avère donc une étape nécessaire lors de l'élaboration des gelées semi-solides. Girot et al [34] ont montré que l'injection d'azote (ou d'un mélange N<sub>2</sub>-Cl<sub>2</sub>) dans l'aluminium liquide combinée à un système de pompage peut être efficace pour dégazer l'aluminium. Ce traitement peut également s'avérer efficace lors du "compocasting" (mise en forme des composites à l'état semi-solide) où l'introduction des particules de renfort augmente la formation des porosités. Dans ce cas, les particules sont introduites avec le jet d'azote. Ceci peut néanmoins s'avérer inefficace si les particules ne sont pas mouillées par l'aluminium fondu. Le revêtement des particules d'addition que l'on peut par exemple retrouver dans les composites graphitique à base d'aluminium [35] peut non seulement améliorer la situation mais aussi assurer une bonne répartition des particules de renfort. L'introduction de particules non recouvertes sous un vortex, comme par exemple dans le procédé UPAL ("uncoated Particulate above liquidus"), semble également donner des bons résultats [36].

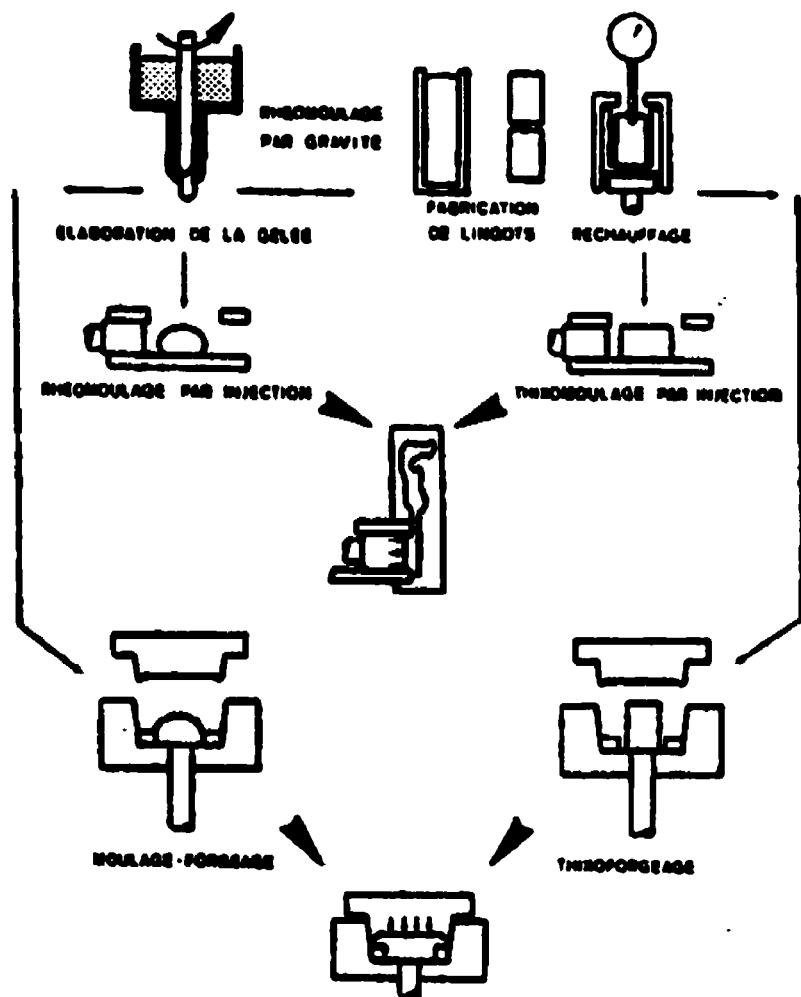


Figure 1.10 : Procédés de mise en forme des gelées semi-solides.

D'après [15]

## 1.2 LA RHÉOLOGIE DES SUSPENSIONS

Les gelées semi-solides sont des mélanges formés de liquide métallique et de particules solides de formes variables. Ils répondent donc à la définition d'une suspension et doivent par conséquent être traités comme tel. Dans la prochaine section, on se propose de présenter brièvement quelques notions relatives à la rhéologie des suspensions dans les liquides newtoniens et non newtoniens. On exposera en particulier les principales lois d'écoulement associées à ces fluides, ce qui devrait nous permettre de formuler les équations rhéologiques associées aux gelées semi-solides.

### 1.2.1 INTERACTIONS DANS LES SUSPENSIONS

Le comportement rhéologique des suspensions dépend essentiellement de la nature des interactions au sein de celles-ci. Ces dernières sont généralement très complexes car elles dépendent à la fois : des particules en présence dans la suspension, de la nature du fluide suspensif ainsi que des relations entre les particules et leur environnement.

Il est donc important, pour une suspension donnée, d'identifier quelles sont les interactions prédominantes si l'on veut modéliser le comportement rhéologique de celle-ci. En toute généralité, on peut subdiviser les forces qui agissent sur les suspensions de particules solides en deux catégories : les forces internes et les forces externes.

Parmi les forces externes, on compte principalement les forces de poussée et les forces induites par les champs convectifs forcés. Les premières sont inhérentes à la différence de densité entre les particules et le milieu suspensif alors que les secondes peuvent apparaître suite à l'application d'un brassage mécanique ou de champs électromagnétiques. Dans le cas des

gelées semi-solides, ces forces sont responsables du transport convectif de matière et des phénomènes de mûrissement qui peuvent en découler. Comme on le verra, ces dernières contribuent aux changements de forme des particules primaires et par conséquent au comportement particulier de la viscosité des mélanges semi-solides.

Les forces internes sont composées des forces hydrodynamiques et des forces non hydrodynamiques. Ces forces ont un rôle important sur le comportement rhéologique des suspensions car elles déterminent la nature des interactions au sein de celles-ci. Dans le cas des gelées semi-solides, la prédominance des forces hydrodynamiques sur les forces non hydrodynamiques et vice versa dépend en grande partie de la fraction solide.

Aux faibles fractions solides ( $fs < 0.2$ ), les interactions entre les grains solides sont minimes alors que les forces visqueuses du milieu suspensif sont prédominantes. En toute généralité, une particule est soumise à deux types de forces hydrodynamiques : la force de trainée de stokes et une force centrale qui agit le long de la ligne qui joint le centre de deux particules quelconques. Bien que cette dernière puisse favoriser la formation d'agrégats de particules, si la fraction solide est suffisamment faible, les forces hydrodynamiques ont pour seul effet de perturber l'écoulement du fluide au voisinage d'une particule. Les équations développées pour décrire le comportement rhéologique des suspensions de particules dures dans les liquides newtoniens s'avèrent alors suffisantes pour rendre compte de la rhéologie des gelées semi-solides.

Pour des fractions solides intermédiaires ( $0.2 < fs < 0.60$ ), les forces non hydrodynamiques s'additionnent aux effets hydrodynamiques et le comportement rhéologique devient plus complexe. En général les effets non hydrodynamiques sont à l'origine de forces

attractives de courtes portées entre particules et favorisent la formation d'agrégats de particules. On peut citer par exemple les forces browiennes dans le cas des suspensions colloïdales. Dans le cas des gelées semi-solides d'alliages où les particules solides ont une taille supérieure à 50µm, les forces browiennes sont inopérantes. Ce sont les interactions physico-chimiques combinées aux effets convectifs induits par le brassage qui sont responsables de la formation des agrégats. Ces mêmes agrégats sont responsables du comportement thixotropique qu'exhibent généralement les gelées semi-solides. En effet, sous l'effet d'un cisaillement, il est possible de briser ces agrégats de particules ce qui a pour effet de faire chuter la viscosité. Notons que dans certaines suspensions des forces peuvent s'opposer à la formation des agrégats. C'est le cas notamment des suspensions de particules superficiellement chargées dans lesquelles des forces électrostatiques de répulsion peuvent être générées. Dans tous les cas, lorsque les interactions entre particules sont importantes, les analyses newtoniennes des suspensions ne sont plus suffisantes pour décrire la rhéologie des gelées semi-solides et il devient nécessaire d'introduire des modèles tenant compte des phénomènes d'agrégation.

Lorsque la fraction solide est suffisamment importante ( $f_s > 0.6$ ) la phase solide forme un squelette continu et la rhéologie des gelées semi-solides s'apparente à celle des matériaux poreux saturés de liquide.

### **1.2.2 RHÉOLOGIE DES SUSPENSIONS DE PARTICULES RIGIDES**

#### **1.2.2.1 APPROCHE GLOBALE**

La viscosité  $\eta$  d'un fluide peut être déterminée à partir du profil de vitesse de celui-ci, en évaluant la relation :

$$\tau_{ij} = -\eta \left( \frac{\partial U_i}{\partial X_j} + \frac{\partial U_j}{\partial X_i} \right) \quad (1.6)$$

Ou en considérant l'énergie de dissipation visqueuse :

$$E_V = -\eta \int_V \frac{\partial U_i}{\partial X_j} \left( \frac{\partial U_j}{\partial X_k} + \frac{\partial U_k}{\partial X_j} \right) dV \quad (1.7)$$

Où i et j sont deux variables muettes,  $\tau$  est la contrainte de cisaillement,  $U_i$ ,  $U_j$  et  $U_k$  sont les composantes de la vitesse du fluide sur les axes  $X_i$ ,  $X_j$ ,  $X_k$  et V est le volume.

Dans le cas simple où l'on considère un fluide newtonien soumis à un cisaillement pur, la relation 1.6 se réduit à la loi de Newton :

$$\tau = \eta \dot{\gamma} \quad (1.8)$$

Où  $\dot{\gamma}$  est la vitesse de cisaillement.

La viscosité  $\eta$  est alors une propriété intrinsèque du fluide. Celle-ci est une mesure des forces de friction produites par le glissement des couches de fluides les unes sur les autres.

Malheureusement, une large gamme de fluides ne suit pas la loi de Newton et en général il n'y a pas d'équations constitutives complètement satisfaisantes pour les décrire. Cependant, dans de nombreux cas, on traite les fluides non newtoniens comme des fluides newtoniens en définissant une viscosité apparente qui dépend de la vitesse de cisaillement et que l'on calcule à partir de la relation suivante :

$$\eta_a = \frac{\tau}{\dot{\gamma}} \quad (1.9)$$

Notons que la donnée des relations 1.6 et 1.7 et de la loi d'écoulement n'est pas suffisante pour décrire la viscosité d'une suspension même diluée. En toute généralité, pour déterminer la viscosité, on doit également inclure dans la résolution : la taille, la distribution en taille ainsi que la fraction solide des particules.

### **1.2.2.2 MODÉLISATION DE LA VISCOSITÉ DES SUSPENSIONS DE PARTICULES RIGIDES DANS LES FLUIDES NEWTONIENS**

La présence d'un ensemble de sphères rigides dans un liquide newtonien fait augmenter la viscosité  $\eta_0$  de celui-ci à une valeur  $\eta$ . Le rapport adimensionnel  $\eta_r = \eta/\eta_0$ , que l'on appelle viscosité relative est, en toute généralité, fonction de la fraction volumique  $\varphi$  occupée par les sphères dans la suspension ainsi que de la forme et la taille de celles-ci

Dans le cas des suspensions extrêmement diluées de particules uniformes, Einstein [37] a proposé une expression reliant  $\eta_r$  à  $\varphi$  sous la forme bien connue :

$$\eta_r = 1 + 2.5\varphi \quad (1.10)$$

Cette expression a été établie en supposant qu'aucune interférence hydrodynamique ne se produit au sein de la suspension. Cela suppose donc que l'écoulement du fluide au voisinage d'une sphère ne soit pas influencé par les sphères voisines. Par conséquent la relation 1.10 n'est valable que pour des fractions solides très faibles, typiquement en dessous de 10%.

Ce développement a néanmoins constitué le point de départ de nombreuses études théoriques portant sur le comportement des suspensions newtoniennes et tenant compte de paramètres tels que : la forme, la taille, la distribution en taille ainsi que la densité de charge à la surface des particules

Bringkman et Rosco [38] ont par exemple proposé la relation :

$$\eta_r = (1 - \varphi)^{-2.5} \quad (1.11)$$

Pour tenir compte de la distribution en taille au sein d'une suspension extrêmement diluée.

Dans le cas des suspensions concentrées, Shima [39] a montré que la relation existant entre  $\eta_r$  et  $\varphi$  dépend de l'arrangement spatial des sphères dans le liquide. Il a montré, en particulier, que les viscosités relatives obtenues en supposant un arrangement cubique sont plus élevées que celles obtenues en supposant un arrangement hexagonal compact. Le problème majeur de l'approche de Shima est que les viscosités prédictes deviennent infinies lorsqu'on atteint la densité maximale de compactage. C'est à dire pour une fraction volumique de 52.4% pour un arrangement cubique et de 74% dans le cas d'un arrangement hexagonal compact.

En considérant des particules non interactives mais susceptibles d'entrer en collision, Vand [40] a montré qu'on peut contourner ce problème. En effet, celles-ci peuvent donner naissance à des agrégats dans lesquels un certain volume de liquide peut se retrouver piégé. Le liquide ainsi piégé augmente la concentration effective de solide et du même coup la viscosité. En considérant l'existence de doublets de collision, Vand a montré que le temps de collision entre deux particules est de  $4\varphi$  et a dérivé l'expression suivante :

$$\ln \eta_r = (K_1 \varphi + r_2 (K_2 - K_1) \varphi^2 + \dots) / (1 - Q\varphi) \quad (1.12)$$

Où  $K_1$  et  $K_2$  sont des constantes qui tiennent compte de l'interaction entre les particules isolées et les doublets de collision et valent respectivement 2.5 et 3.175,  $R_2$  est le temps de contact entre deux particules dans un doublet et  $Q$  est une constante hydrodynamique qui vaut 0.609. Notons que plus la fraction solide augmente, plus le temps de contact entre les particules

augmente, les collisions d'ordre 3 ou 4 deviennent donc de plus en plus importantes et l'expression de Vand devient de moins en moins valable. Typiquement, pour des fractions solides supérieures à 50%, une particule est en collision 100% du temps.

Il est à noter que Rutgers [41] a proposé une expression similaire dans le cas de suspension faiblement concentrée :

$$\eta_r = \left( K_1 \varphi + K_2 \varphi^2 + K_3 \varphi^3 \dots \right) \quad (1.13)$$

Frankel et Acrivos [42] ont proposé des modèles théoriques pour des suspensions encore plus concentrées que celles décrites par Vand. Ils ont considéré que dans les suspensions très concentrées, la dissipation visqueuse se fait majoritairement par un écoulement du liquide dans l'espace laissé par l'empilement compact de sphères rigides et ont dérivé l'expression suivante :

$$\eta_r = C' \frac{\left(\frac{\varphi}{\varphi_m}\right)^{\frac{1}{3}}}{1 - \left(\frac{\varphi}{\varphi_m}\right)^{\frac{1}{3}}} \quad (1.14)$$

Où  $C'$  est une constante qui dépend de l'arrangement spatial des particules ( $C'$  vaut 9/8 dans le cas d'un arrangement cubique) et  $\varphi_m$  est la densité maximale de compactage des sphères rigides.  $\varphi_m$  dépend de l'arrangement des particules, de la distribution en taille des particules ainsi que de la vitesse de cisaillement.  $\varphi_m$  vaut 0.525 dans le cas d'un empilement cubique, 0.625 dans le cas d'un empilement compact désordonné et 0.74 dans le cas d'un empilement hexagonal compact. Dans le cas des suspensions multimodales,  $\varphi_m$  peut augmenter du fait que les petites particules peuvent s'insérer dans les espaces laissés par les plus grosses particules.

On trouve dans la littérature, d'autres modèles qui font également appel à la densité maximale de compactage. On peut citer :

- Le modèle de Krieger et Dougherty [43] :

$$\eta_r = \left( 1 - \frac{\varphi}{\varphi_m} \right)^{-p} \quad (1.15)$$

Où  $p$  est une variable déterminée expérimentalement de façon à accorder les résultats.

- Le modèle de Mooney [44] :

$$\eta_r = \exp \left( \frac{2.5\varphi}{1 - \frac{\varphi}{\varphi_m}} \right) \quad (1.16)$$

- Le modèle de Mori-Ototake [45] :

$$\eta_r = \left( 1 + \frac{d_{moy} S_v}{2 \left( \frac{1}{\varphi} - \frac{1}{\varphi_m} \right)} \right) \quad (1.17)$$

Où  $d_{moy}$  et  $S_v$  sont respectivement le diamètre moyen des particules et la surface totale des particules par unité de volume. Ce dernier modèle est intéressant car il intègre des paramètres capables de tenir compte d'une distribution en taille et en forme des particules, ce qui n'est pas le cas du modèle d'Acrivos.

Thomas [46] a passé en revue un grand nombre d'analyses relatives à la viscosité des suspensions concentrées. Il a réalisé une régression sur ces données et a dérivé l'expression suivante :

$$\eta_r = 1 + 2.5\phi + 10.05\phi^2 + A \exp(B\phi) \quad (1.18)$$

Où A et B sont deux constantes qui ont été estimées expérimentalement à 0.00273 et 16.6.

La relation de Thomas est intéressante car chacun de ces termes permet de mettre en évidence les mécanismes qui opèrent dans la suspension en fonction de la fraction solide. Le premier terme, prédomine jusqu'à des fractions solides de l'ordre de 0.1 et représente la perturbation de l'écoulement du liquide par des sphères isolées tel que décrit par Einstein. Le second terme correspond à la contribution des doublets décrit par Vand et se fait ressentir pour des fractions solides entre 0.1 et 0.3. Le troisième terme (terme exponentiel) correspond à la dissipation visqueuse due à l'écoulement du liquide entre les sphères empilées décrit par Acrivos et se fait ressentir aux hautes fractions solides. Ce dernier a été employé avec succès pour décrire l'influence de la fraction solide sur la viscosité des gelées semi-solides aux fractions solides moyennes (voir plus loin). Dans le cas des polymères, Metzner [47] rapporte que c'est plutôt la relation de Maron et Pierce [48] qui décrit le mieux les résultats expérimentaux :

$$\eta_r = \left[ 1 - \left( \frac{\phi}{A} \right) \right]^{-2} \quad (1.19)$$

Où A est une constante qui dépend de la forme des particules.

En général, il est très difficile de privilégier une expression par rapport à une autre et c'est souvent les expériences pratiques qui permettent de déterminer quelles relations sont adaptées pour une application donnée.

### **1.2.3 CAS DES SUSPENSIONS NON NEWTONIENNES**

Comme on l'a déjà souligné, lorsque les interactions entre particules sont du même ordre ou supérieures aux forces visqueuses, ce qui est le cas de certaines suspensions concentrées ou bien des suspensions où le médium à une faible viscosité, le comportement rhéologique des suspensions dévie du comportement newtonien et devient dépendant de la vitesse de cisaillement imposée et même parfois du temps. Dans la partie qui suit, on se propose d'exposer les principaux comportements non newtoniens.

#### **1.2.3.1 COMPORTEMENT NON NEWTONIEN INDÉPENDANT DU TEMPS**

##### **1.2.3.1.1 COMPORTEMENT PSEUDOPLASTIQUES (OU FLUIDIFIANT)**

La viscosité apparente des suspensions pseudoplastiques diminue lorsque la vitesse de cisaillement augmente. Ceci est généralement attribué au fait que la structure interne de la suspension est détruite sous l'action du cisaillement. Ce phénomène se produit de manière très rapide et réversible, ce qui le rend indépendant du temps.

Les solutions de hauts polymères ou les suspensions de particules asymétriques sont deux exemples parmi la vaste variété des produits pseudoplastiques. Dans le cas des suspensions de particules asymétriques, le comportement pseudoplastique serait dû à une orientation progressive des particules dans le sens de l'écoulement. Dans le cas des solutions de macromolécules, le comportement pseudoplastique serait lié à la destruction progressive de la solvatation des molécules dans la dispersion.

Il est important de noter que la plupart des fluides pseudoplastiques exhibent aussi d'autres caractéristiques des fluides non newtoniens comme par exemple la viscoélasticité. La pseudoplastique est donc une caractéristique importante de ces fluides mais ne décrit pas forcément toutes leurs caractéristiques non newtoniennes. La loi de puissance (loi Ostwald de Waele), à cause de sa simplicité, est l'équation la plus largement utilisée pour décrire les fluides pseudoplastiques :

$$\tau = m\dot{\gamma}^n \quad (1.20)$$

$$\eta_a = m\dot{\gamma}^{n-1} \quad \dot{\gamma} > 0$$

Où les paramètres  $m$  et  $n$  caractérisent respectivement la consistance et l'écoulement du fluide et  $\eta_a$  est la viscosité apparente.

D'autres équations, plus complexes, impliquant trois paramètres ou plus, existent aussi pour décrire les fluides pseudoplastiques. Ces équations ont été introduites pour tenir compte du fait qu'à basse et haute vitesses de cisaillement, ces fluides exhibent un comportement newtonien [49,50].

#### **1.2.3.1.2 COMPORTEMENT RHÉOÉPAISSISSANT**

La viscosité apparente des fluides rhéoépaississants augmente lorsque la vitesse de cisaillement augmente. Les équations développées pour les fluides pseudoplastiques restent néanmoins valables pour décrire ces fluides à condition de choisir des paramètres appropriés (on aura par exemple  $n>1$  dans la loi de puissance).

En général ce comportement est inexistant dans les suspensions où les particules interagissent entre elles. Dans le cas des suspensions concentrées de particules non interactives

(voir Figure 1.11), le comportement dilatant est observé sur une certaine plage de vitesse de cisaillement. En général, à très basse vitesse et à très haute vitesse de cisaillement, le comportement de la suspension est respectivement newtonien et pseudoplastique (portion a-b et c-d de la figure 1.11). Le comportement dilatant est observé sur une petite gamme de vitesse de cisaillement et à partir d'une certaine vitesse de cisaillement critique  $\dot{\gamma}_c$ . D'après Barnes [51] ce comportement serait dû à une transition d'un arrangement bidimensionnel des couches de particules à un arrangement tridimensionnel aléatoire. Toujours d'après cet auteur,  $\dot{\gamma}_c$  dépend des caractéristiques des particules de renforts : concentration, taille, forme et est assez bien décrit par la relation :

$$\dot{\gamma}_c = \frac{10}{D^2} \quad (1.21)$$

Où D est le diamètre des particules

La viscosité du milieu suspensif a également une influence sur la vitesse de cisaillement critique et en général on définit un nombre adimensionnel relié au nombre de Reynolds pour décrire celle-ci :

$$\dot{\gamma}_{R_e} = \frac{\dot{\gamma} D^2 \rho}{\eta} \quad (1.22)$$

Dans le cas des gelées semi-solides des alliages d'aluminium brassés mécaniquement, les particules primaires ont une taille de l'ordre de  $100\mu\text{m}$  et  $\eta_0$  est de l'ordre  $0.001 \text{ Pa.s.}$  D'après la relation 1.22, le comportement dilatant apparaît pour  $\dot{\gamma}_{R_e} = 10^{-5}$  donc pour  $\dot{\gamma}_c = 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ . Dans les applications industrielles, cette vitesse est dépassée des milliers de fois et l'effet épaississant n'est donc pas un problème dans la mise en forme des gelées semi-solides.

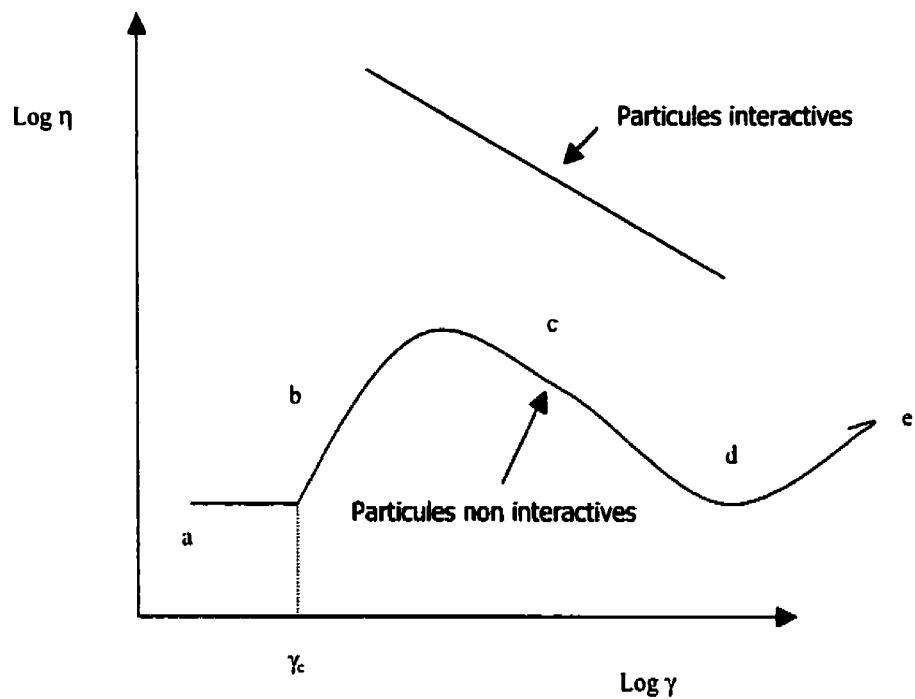
### 1.2.3.1.3 FLUIDES AVEC LIMITÉ D'ÉCOULEMENT

Certains fluides se déforment à condition qu'une contrainte limite leurs soit appliquée. On les appelle : fluides plastiques. Ce comportement serait dû au fait qu'au repos, ces fluides présentent une structure tridimensionnelle rigide capable de résister à des contraintes inférieures à un certain seuil critique.

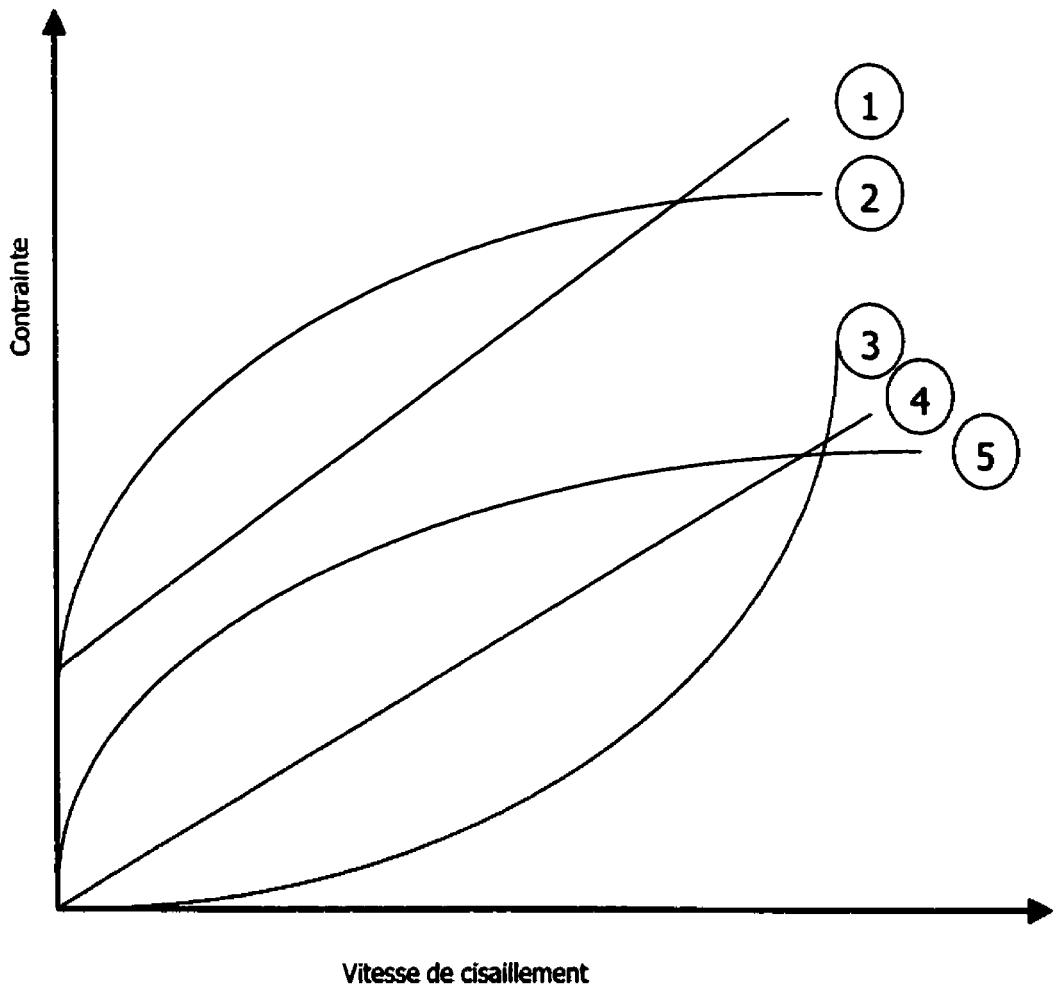
En général, Le comportement des fluides plastiques est similaire à celui des fluides pseudoplastiques, à la seule différence qu'ils possèdent une courbe d'écoulement translatée par rapport à ces derniers. Par exemple, Les fluides de Bingham se comportent comme des fluides newtoniens au-dessus de la limite d'écoulement et peuvent être modélisés par les relations suivantes :

$$\begin{aligned}\tau &= \tau_y + \eta \dot{\gamma} \quad \text{pour } \tau \geq \tau_y, \\ \eta_a &= \eta + \tau_y \dot{\gamma}^{-1}\end{aligned}\tag{1.23}$$

Le comportement rhéologique des principaux types de fluides indépendants du temps est résumé sur la figure 1.12.



**Figure 1.11 : Effet de la vitesse de cisaillement sur la viscosité des suspensions concentrées**



**Figure 1. 12 : Comportement rhéologique des principaux types de fluides indépendants du temps**

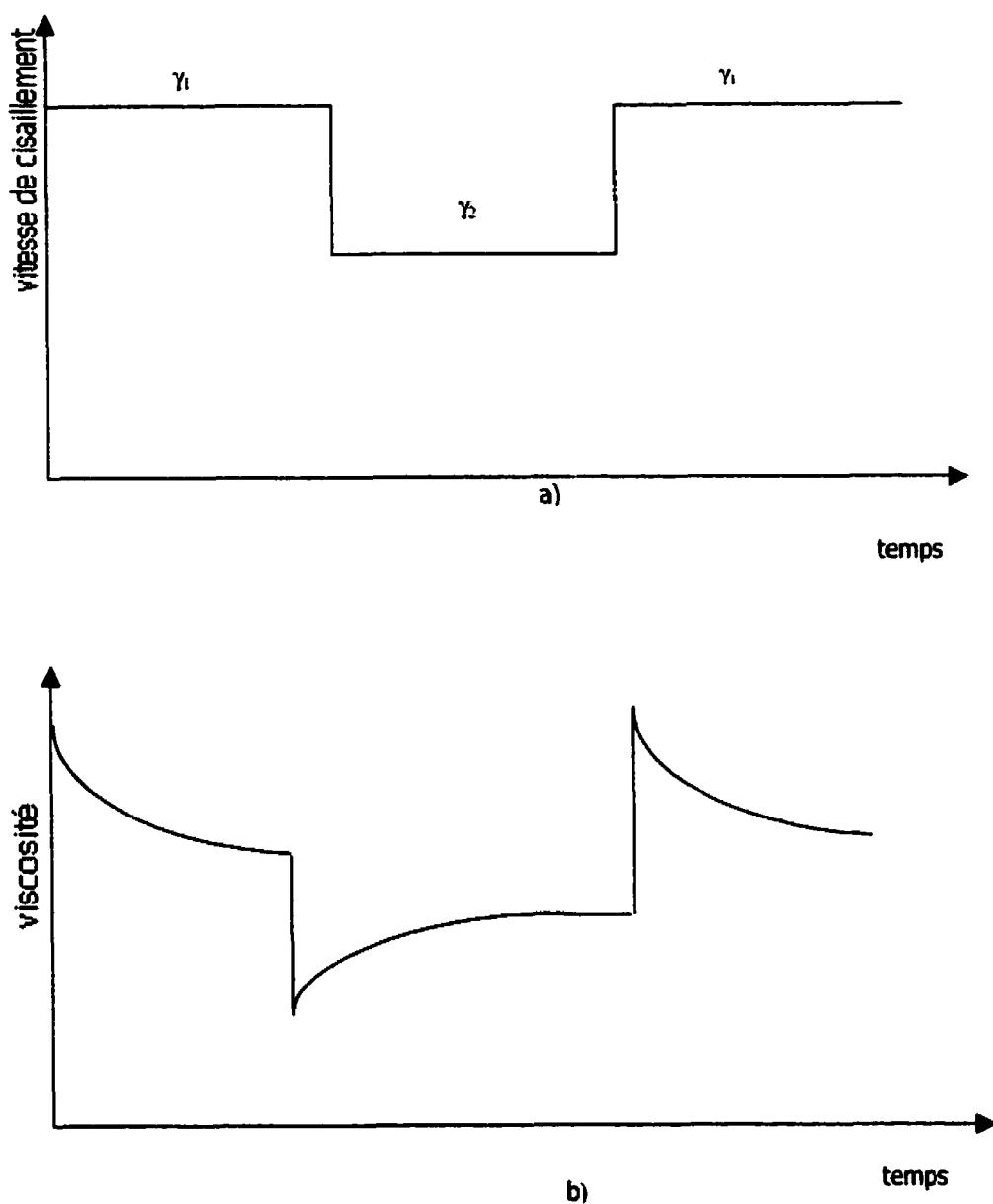
- 1 Fluide de Bingham
- 2 Fluide Pseudoplastique avec limite d'écoulement
- 3 Fluide Rhéoépaisissant
- 4 Fluide Newtonien
- 5 Pseudoplastique

### 1.2.3.2 COMPORTEMENT RHÉOLOGIQUE DES FLUIDES DÉPENDANT DU TEMPS

Les fluides newtoniens ainsi que les fluides pseudoplastiques ont la propriété de répondre instantanément à un brusque changement de vitesse de cisaillement. Mais pour certains fluides, le temps de réponse peut être appréciable. C'est par exemple le cas des fluides thixotropes ou des fluides viscoélastiques.

Ce comportement particulier peut être évalué de deux façons différentes : l'effet de la structure sur la viscosité peut être évalué en établissant un état d'équilibre sous une certaine vitesse de cisaillement et en opérant un brusque changement de vitesse de cisaillement. La thixotropie est alors caractérisée par l'étendue du régime transitoire dont a besoin la structure pour s'adapter à la nouvelle vitesse de cisaillement (figure 1.13). Cette procédure a reçu l'appellation de "Step change". Celle-ci permet d'évaluer le comportement isostructural du fluide en fonction de la vitesse de cisaillement. En effet, le pic que l'on enregistre juste après le "Step change" est caractéristique de la structure d'équilibre établie avant celui-ci mais pour la nouvelle vitesse de cisaillement.

En pratique, un changement instantané de vitesse de cisaillement ne peut être réalisé à cause de l'inertie des appareillages. Une façon plus pratique d'étudier la thixotropie est de soumettre le fluide à un cycle de vitesse de cisaillement, partant de zéro et revenant à zéro. Si le fluide est thixotrope un tel cycle produira une boucle d'hystérésis. Le degré de thixotropie sera alors évalué par l'aire comprise à l'intérieur de la courbe d'hystérésis. En toute généralité, celle-ci dépend de la vitesse de cisaillement maximum lors d'un cycle et du temps pour atteindre celle-ci. Il est important de noter que si l'on fait varier très lentement la vitesse de cisaillement, même un fluide thixotrope ne produira pas ou peu d'hystérésis.



**Figure 1. 13 : Comportement d'un fluide thixotrope au cours d'un essai de "step change".**

- a) Profil de vitesse de cisaillement
- b) Évolution de la viscosité

### **1.3 ASPECT FONDAMENTAL DE LA DISPERSION DE PARTICULES DANS UN BAIN MÉTALLIQUE**

Nous venons de voir que dans les suspensions concentrées, les effets non newtoniens sont importants. Ces effets sont généralement attribués à la structure même de la suspension. Cependant d'autres facteurs tels que : le degré d'homogénéité de la suspension, le régime d'écoulement ou bien les problèmes de sédimentation peuvent également être à l'origine du comportement apparemment non newtonien des suspensions. Par exemple dans les mélanges où une sédimentation est possible, on peut enregistrer un comportement qui est apparemment thixotropique. Très souvent, ce comportement n'est pas lié à la suspension elle-même mais est dû au fait que des particules au fond ou au-dessus des réservoirs font augmenter la contrainte de cisaillement qui par la suite diminue au fur et à mesure que les particules se mettent en suspension.

Une bonne dispersion des particules au sein des suspensions est donc un préalable nécessaire à toute mesure rhéologique significative. Dans le cas des gelées semi-solides de composites, les problèmes de dispersion des particules au sein du métal semi-liquide et surtout liquide sont une des principales sources qui conduisent à une mauvaise interprétation des résultats expérimentaux. Avant d'aborder les modèles rhéologiques associés aux gelées semi-solides, il nous apparaît donc important de consacrer une partie de l'exposé à ce problème.

#### **1.3.1 MOUILLABILITÉ- ANGLE DE CONTACT**

L'intégration et la rétention de particules au sein d'un métal liquide implique le mouillage des surfaces externes et des surfaces internes de celles-ci (dans le cas où elles se retrouvent

dans des agrégats). La qualité du mouillage dépend de la nature des surfaces, de celle du liquide ainsi que de la dimension des interstices dans les agrégats.

Dans le cas simple où l'on ne considère que le mouillage des surfaces externes des particules, le problème de l'intégration d'une particule dans un métal liquide se résume à remplacer une interface solide - air par une interface solide - liquide (figure 1.14.a). L'énergie totale échangée au cours de cette opération (énergie de dispersion) détermine la qualité de la rétention des particules par le bain liquide.

Le processus d'incorporation peut se diviser en 3 différentes étapes correspondant à 3 différents types de mouillage. Chaque étape est possible si elle est énergétiquement favorable :

1) Le mouillage d'adhésion (chemin a→b sur la figure 1.14.a) : Dans cette étape, 1 cm<sup>2</sup> d'une surface solide et un 1 cm<sup>2</sup> d'une surface liquide disparaissent, suite à leur mise en contact, et sont remplacées par une interface solide - liquide. Le travail nécessaire pour amener les deux surfaces en contact,  $W_a$ , est :

$$W_a = \gamma_{SL} - (\gamma_s + \gamma_{LV}) \quad (1.24)$$

Où  $\gamma_{SL}$  est l'énergie de surface solide - liquide

$\gamma_s$  est l'énergie de surface solide - vapeur

$\gamma_{LV}$  est l'énergie de surface liquide - vapeur

- $W_a$  est le travail d'adhésion, c'est à dire le travail nécessaire pour séparer de nouveau les surfaces.

2) Le mouillage d'immersion (chemin b→c sur la figure 1.14.a) : Cette étape correspond à l'immersion totale, sans changer l'étendue de surface liquide, d'une surface solide de 1 cm<sup>2</sup>. Le travail nécessaire à ce processus est donc :

$$W_f = \gamma_{SL} - \gamma_{SV} \quad (1.25)$$

Où  $\gamma_{SV}$  est l'énergie de surface en équilibre avec la vapeur liquide

3) Le mouillage ' extension' ( chemin c→d sur la figure 1.14.a) : Dans cette étape une unité d'aire de surface solide disparaît et l'équivalent de surface liquide et d'interface solide – liquide est formé. Le travail impliqué est alors :

$$W_s = (\gamma_{SL} - \gamma_{LV}) - \gamma_{SV} \quad (1.26)$$

À l'équilibre (figure 1.14.b) la relation de Young Dupré permet de relier la tension de surface des 3 interfaces impliquées dans le processus d'incorporation :

$$\sigma = \gamma_{SV} - \gamma_{SL} = \gamma_{LV} \cos\theta \quad (1.27)$$

Où  $\theta$  est l'angle de contact entre le liquide et les particules solides. La quantité  $\sigma$  peut être vue comme une tension de mouillage du solide par le liquide car celle-ci tend à faire s'écouler le liquide sur toute la surface de solide (voir figure 1.14.b)

En substituant la relation 1.27 dans les relations 1.24, 1.25 et 1.26, l'énergie de dispersion peut être évaluée en fonction de l'angle de contact. Dans le cas de particules de forme cubique, il vient :

$$W_a = -\gamma_{LV}$$

$$W_i = -4\gamma_{LV} \cos\theta$$

$$W_s = -\gamma_{LV} (\cos\theta - 1)$$

$$W_{dispersion} = W_a + W_i + W_s = -6\gamma_{LV} \cos\theta$$

$$\cos\theta = \frac{\gamma_{SV} - \gamma_{SL}}{\gamma_{LV}}$$

**Conclusions :**

- 1) le mouillage d'adhésion est toujours spontané car  $W_a$  est négatif pour tous les angles  $\theta$  inférieurs à  $180^\circ$
- 2) le mouillage d'immersion est spontané quand  $\theta < 90^\circ$
- 3) le travail impliqué dans le mouillage d'extension est toujours positif (sauf pour  $\theta=0$ ). De ce fait, un travail mécanique doit être fourni quelque soit l'angle de contact entre le liquide et une particule

Une autre conclusion importante découle de ces conclusions : lorsque  $\theta < 90^\circ$ , une diminution de  $\gamma_{LV}$  ou de  $\gamma_{SV}$  réduit l'angle de contact entre les particules et le bain liquide et améliore donc le mouillage de celles-ci. Toutes les techniques utilisées pour améliorer le mouillage de particules par un bain liquide sont d'ailleurs basées sur ce principe.

Dans le cas des matériaux composites à matrice métallique renforcés par des particules céramiques (cas qui nous intéresse particulièrement), Rohatgi et al [52] ont passé en revue les principales méthodes pour arriver à ce résultat. Ils rapportent par exemple que l'addition d'agents actifs tels que Mg, Ca, Ti, Zr et P diminue habituellement  $\gamma_{LV}$  et dans certains cas  $\gamma_{SV}$  et

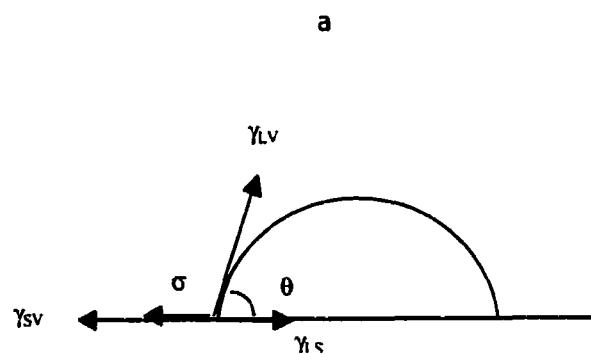
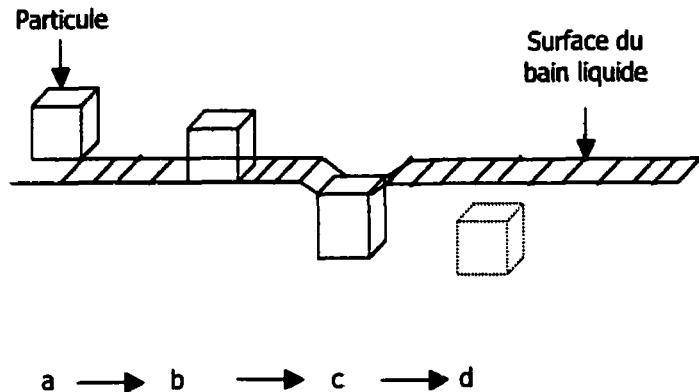
améliore donc le mouillage des particules. L'utilisation de revêtements métalliques tels que Ni ou Cu améliore également la mouillabilité car ils permettent d'établir un contact métal – métal entre les particules et le bain liquide. Cette méthode a été employée avec succès pour disperser des grosses particules de graphite dans de l'aluminium liquide (voir figure 1.15).

Un traitement thermique des particules de renfort, avant leur incorporation, peut également améliorer le mouillage. Krishnan et al [53] ont par exemple démontré qu'on peut obtenir une bonne dispersion de particules de graphite non recouvertes par le procédé dit UPAL ("Uncoated Particulate Above Liquidus"). Dans ce procédé, les particules de graphite sont préchauffées à l'air libre à 400°C pendant 1 heure et sont ensuite introduites dans le mélange fondu. Il semblerait que ce traitement combiné à l'ajout de 0.5% de Mg assure une bonne répartition des particules de graphite dans le mélange. Ceci est attribué au fait que le chauffage des particules provoque une désorption des gaz à la surface des particules.

Citons enfin que Mehrabian et al [54] ont montré qu'il est également possible d'introduire des particules céramiques dans un mélange semi-solide d'aluminium à l'aide d'un brassage vigoureux.

### **1.3.2 FLOCULATION DANS LES SUSPENSIONS**

Une fois les particules mouillées, la qualité de la suspension dépend du taux de dispersion des particules dans le liquide et de la possibilité de maintenir cette dispersion grâce, par exemple, à une agitation mécanique.



**Figure 1.14 : Intégration d'une particule dans un bain liquide**

- a ) Les trois étapes d'intégration
- b) Relations entre les énergies d'interface à l'équilibre

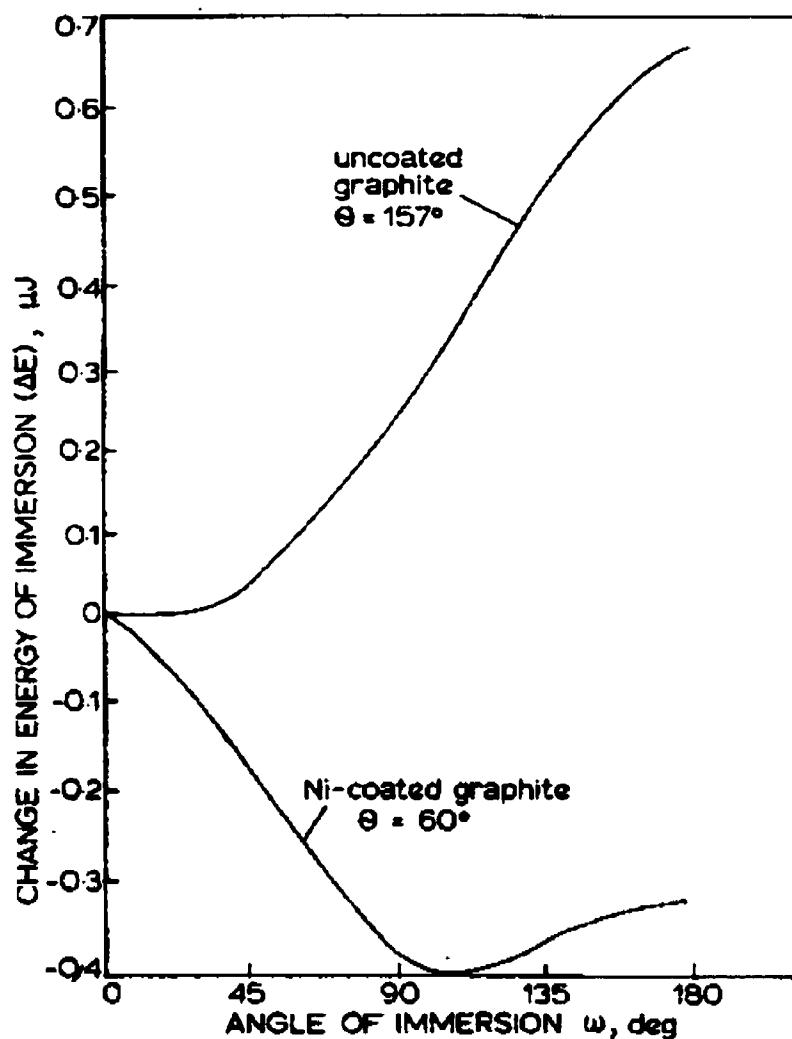


Figure 1.15 : Variation de l'énergie d'immersion en fonction de l'angle d'immersion d'une particule sphérique de graphite (250 $\mu\text{m}$ ) dans un bain liquide d'aluminium.

D'après [52]

Dans le cas des suspensions colloïdales, le maintien de la dispersion est difficile à réaliser du fait que les particules ont une tendance naturelle à réduire en nombre avec le temps à cause des collisions provoquées par les mouvements browniens. Le paramètre choisi pour décrire la qualité de la dispersion est le temps moyen entre deux collisions. Dans le cas des suspensions de particules sphériques où seules les forces browniennes sont considérées, Mysels [55] a montré que celui-ci vaut :

$$t = \frac{5.2\eta a^3}{kT\phi^{4/3}} \quad (1.28)$$

Où  $k$ ,  $T$ ,  $\phi$  et  $a$  sont respectivement la constante de Boltzman, la température, la fraction solide et le rayon des particules. D'après la relation 1.28, la flocculation dans les suspensions colloïdales est d'autant plus importante que la température et la fraction solide sont élevées et que le rayon des particules est faible.

Dans le cas des gelées semi-solides, les forces browniennes ont une influence limitée et les problèmes de dispersion sont principalement liés à la sédimentation ou à la flottaison des particules due à la gravité. Le paramètre choisi pour décrire la qualité de la dispersion est la vitesse de déposition ou de flottaison des particules dans la suspension. Dans le cas limite d'une particule sphérique contenue dans un fluide infini de densité plus faible, la vitesse de déposition,  $V_0$ , peut être évaluée par la loi de Stokes :

$$V_0 = \frac{d^2(\rho_s - \rho_f)g}{18\eta_f} \quad (1.29)$$

Où  $d$ ,  $\rho_s$ ,  $\rho_f$  et  $\eta_f$  sont respectivement le diamètre, la densité de la particule sphérique, la densité du fluide et la viscosité du fluide. En théorie, cette relation n'est valable que pour des nombres de Reynolds (Re) inférieurs à 1 (régime de Stokes), en pratique elle reste valable pour des nombres de Reynolds compris entre 1 et 10.

Dans les suspensions concentrées, la vitesse de déposition d'une particule est diminuée à cause des interactions entre particules et des effets de "backflow" (c'est à dire du déplacement d'un certain volume de fluide lors de la descente d'une particule). De nombreux modèles théoriques et empiriques tenant compte de ces facteurs ont été proposés dans la littérature, on pourra se reporter aux travaux de Darkovitch et al [56] pour une revue complète de ce problème.

Dans le cadre de cet exposé, on se limitera à citer le modèle de Batchelor [57], applicable au cas des suspensions diluées de particules identiques :

$$V = V_0 \left( 1 + \chi \phi + O(\phi^2) \right) \quad (1.30)$$

Où  $V_0$ ,  $\chi$  et  $O(\phi^2)$  sont respectivement la vitesse de déposition d'une particule dans un fluide infini, un coefficient de sédimentation et un terme négligeable dépendant de la fraction solide.

La présence d'agrégats de particules dans les suspensions a également un effet important sur la sédimentation. En effet ceux-ci peuvent provoquer des fluctuations locales du taux de sédimentation à cause de leur différence de densité par rapport à une particule isolée.

Le régime d'écoulement a un effet important sur la formation de ces agrégats. En général, celle-ci est favorisée pour des nombres de Reynolds intermédiaires (1-100) où les forces inertielles commencent à jouer un rôle important dans la suspension. En effet lorsque deux particules tombent en ligne droite, celle du dessus vient au contact de celle d'en dessous du fait qu'elle est accélérée par les effets de sillage de cette dernière. Pour des nombres de Reynolds supérieures à 100, les collisions des particules produisent des impacts assez forts pour "casser" les agrégats dès qu'ils se forment. Notons que lorsque les effets hydrodynamiques

prédominent dans la suspension, les effets de sillage ont une influence limitée sur la formation des agrégats.

Comme on l'a déjà souligné, une des façons d'assurer une bonne dispersion de particules dans une suspension est d'utiliser un système de brassage efficace. Dans le cas des suspensions de particules plus denses que le liquide, on peut trouver de nombreux travaux dans la littérature qui proposent des configurations géométriques, "Réacteur+Agitateur", supposées assurer et maintenir une bonne qualité de dispersion. On pourra se reporter aux travaux de Zwietering [58] pour une revue complète de ce problème.

## **1.4 RHÉOLOGIE DES ALLIAGES ET DES COMPOSITES AUX FRACTIONS SOLIDES MOYENNES**

### **1.4.1 RHÉOLOGIE DES ALLIAGES À L'ÉTAT SEMI-SOLIDE**

Les appareils les plus couramment utilisés pour caractériser la rhéologie des gelées semi-solides d'alliages et de composites sont les rhéomètres de type Couette ou du type « plateaux parallèles ». Les premiers ont été le plus souvent utilisés pour caractériser les gelées semi-solides aux fractions solides moyennes et permettent une étude en refroidissement continu et en condition isotherme. Les seconds ont généralement été utilisés pour caractériser les gelées semi-solides aux hautes fractions solides et ne permettent que des études en condition isotherme.

L'objectif de cette partie est de présenter les principales conclusions que l'on peut retirer des études disponibles dans la littérature qui ont fait appel aux méthodes de mesures précédemment décrites.

#### **1.4.1.1 ÉVOLUTION DE LA VISCOSITÉ DES GELÉES SEMI-SOLIDES D'ALLIAGES EN REFROIDISSEMENT CONTINU**

La viscosité des gelées semi-solides brassées mécaniquement en refroidissement continu dépend fortement de la fraction solide, de la vitesse de cisaillement et de la vitesse de refroidissement. Les résultats obtenus par Joly et Mehrabian [59] sur des gelées semi-solides Sn-Pb illustre bien ce fait (figure 1.16).

L'effet de la fraction solide sur la viscosité a été décrit au paragraphe 1.2.2.2. Comme on l'a déjà souligné, celui-ci est en général bien décrit par le troisième terme de la relation de Thomas (relation 1.18).

Pour comprendre l'effet de la vitesse de cisaillement et de refroidissement, il faut se reporter au paragraphe 1.1.3.2 où l'on a vu que le fait d'augmenter la vitesse de cisaillement et de diminuer la vitesse de refroidissement lorsqu'on brasse un alliage qui se solidifie, a pour conséquence de générer des particules primaires de plus en plus denses (contenant moins de liquide piégé) et de plus en plus sphériques. En effet, d'un côté une grande vitesse de cisaillement favorise le transport convectif et d'un autre côté une faible vitesse de refroidissement augmente le temps de résidence de la gelée dans la zone semi-solide, ces deux phénomènes favorisant la sphéroïdisation de la structure par maturation. La faible quantité de liquide piégé réduit la concentration effective de solide et la sphéricité des particules permet un glissement plus facile de celles-ci les unes sur les autres ce qui a pour conséquence de faire chuter la viscosité (comme le montre la figure 1.16).

Il y a un autre facteur important qui explique la variation de la viscosité avec la vitesse de cisaillement, à savoir : la formation d'agglomérats de particules. On a déjà fait mention de ce phénomène au paragraphe 1.2.2.2 où l'on décrit la viscosité des suspensions de particules dures. On a vu que ces agglomérats se forment par collision et peuvent faire augmenter de manière significative la viscosité. Ceci reste vrai dans le cas des gelées semi-solides, à la seule différence qu'un phénomène de coalescence entre particules favorablement orientées peut être aussi possible. Le cisaillement a tendance à détruire ces agglomérats et donc à faire chuter la viscosité.

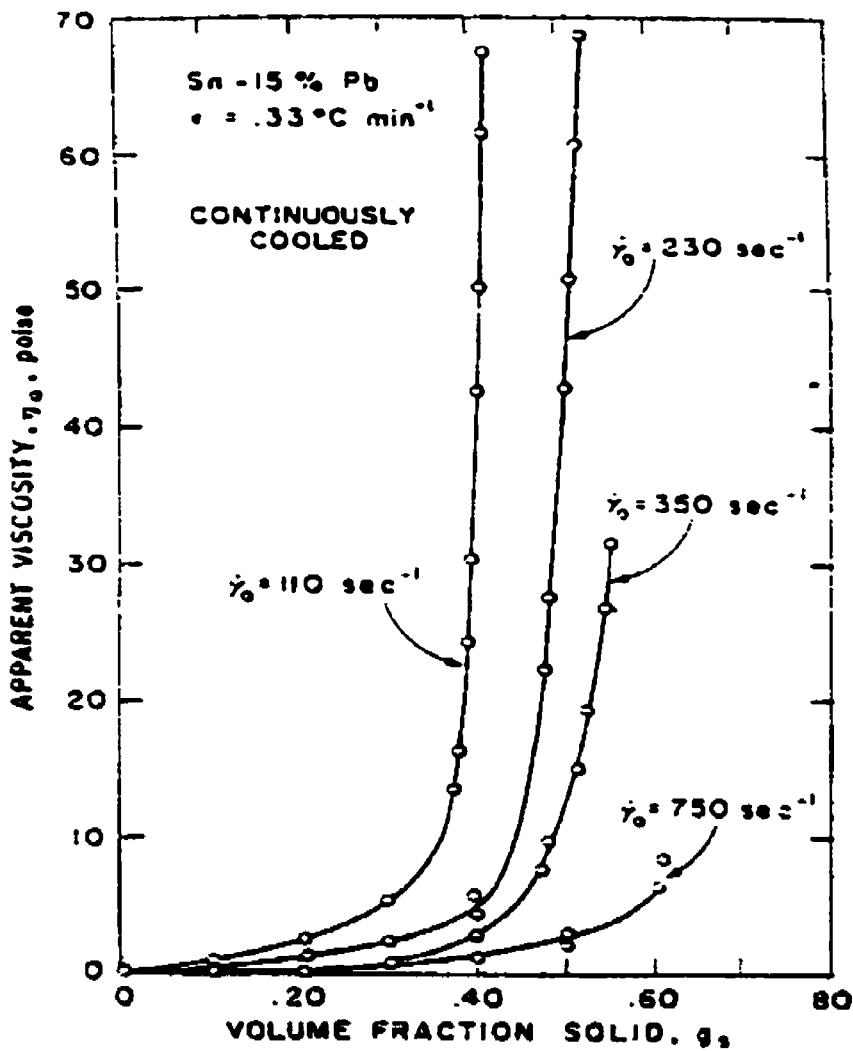


Figure 1. 16 : Évolution de la viscosité lors d'essais de brassage en refroidissement continu.

D'après [59]

### **1.4.1.2 ÉVOLUTION DE LA VISCOSITÉ EN CONDITION ISOTHERME. PSEUDOPLASTICITÉ ET COMPORTEMENT THIXOTROPE**

En général, la viscosité des gelées semi-solides des alliages brassés en condition isotherme diminue en fonction du temps avant d'atteindre un plateau d'équilibre. Comme on l'a déjà souligné ce phénomène est caractéristique des fluides thixotropes et peut être évalué en condition stationnaire ou dynamique.

La figure 1.17 illustre ce comportement. Celle-ci présente des résultats obtenus suite à des expériences de brassage mécanique en refroidissement continu, en condition isotherme et après "step change" sur des gelées semi-solides d'alliages Al-6.5%Si [60].

On peut voir clairement, sur la courbe b de la figure 1.17, que les viscosités d'équilibre des alliages semi-solides sont typiques d'un comportement pseudoplastique et réversible. Il faut noter cependant que la décroissance des viscosités d'équilibre avec la vitesse de cisaillement est beaucoup moins abrupte que celle enregistrée en refroidissement continu. Ceci tient au fait que dans le régime permanent, la phase primaire est déjà dense et globulaire. La diminution de la viscosité d'équilibre est seulement due au fait qu'à basse vitesse de cisaillement le degré d'agglomération est plus important (voir dessin, au-dessus de la courbe b, illustrant l'évolution de la microstructure).

La courbe c montre que si après avoir atteint l'équilibre, on opère un changement brutal de vitesse de cisaillement, la viscosité enregistrée (viscosité instantanée) est plus faible que dans le régime régulier. Ce phénomène est typique d'un comportement thixotropique et est dû au fait que la structure n'est pas capable de s'ajuster immédiatement à la nouvelle vitesse de

cisaillement. En effet, les agglomérats doivent se reformer à basse vitesse de cisaillement pour redonner à la viscosité sa valeur d'équilibre, cette reconstitution se fait à vitesse finie et ne peut donc suivre un saut trop brutal ou trop important ( voir microstructure au-dessous de la courbe c).

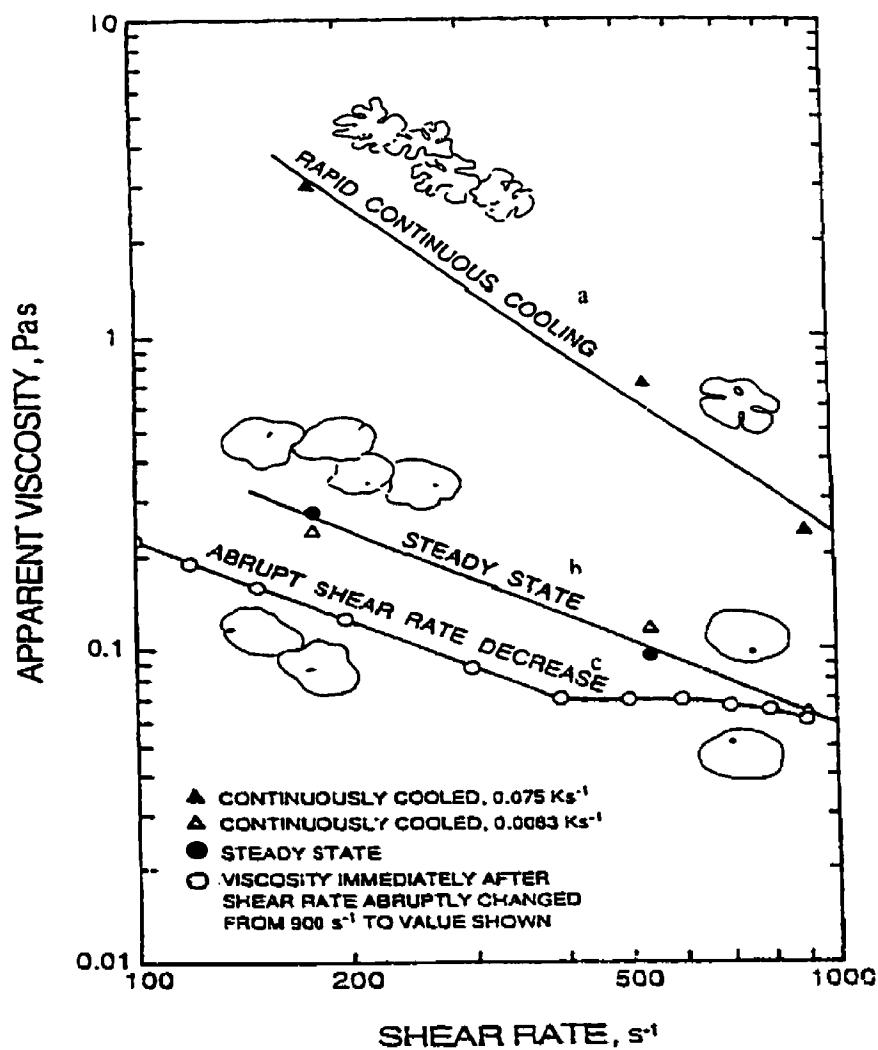


Figure 1. 17 : Évolution de la viscosité et de la microstructure des gelées semi-solides en fonction de la vitesse de cisaillement.

D'après [60]

## 1.4.2 MODÉLISATION DE LA VISCOSITÉ DES GELÉES SEMI-SOLIDES

### 1.4.2.1 MODÉLISATION DE LA VISCOSITÉ D'ÉQUILIBRE

Comme on l'a vu, la viscosité apparente en régime permanent est typique d'un comportement pseudoplastique. Celle-ci peut donc être décrite par une loi de puissance :

$$\eta_e = m \dot{\gamma}^{n-1} \quad (1.31)$$

Où  $m$ , la consistance du fluide dépend de la fraction solide, suivant une loi du type de celle proposée par Thomas (relation 1.18) :

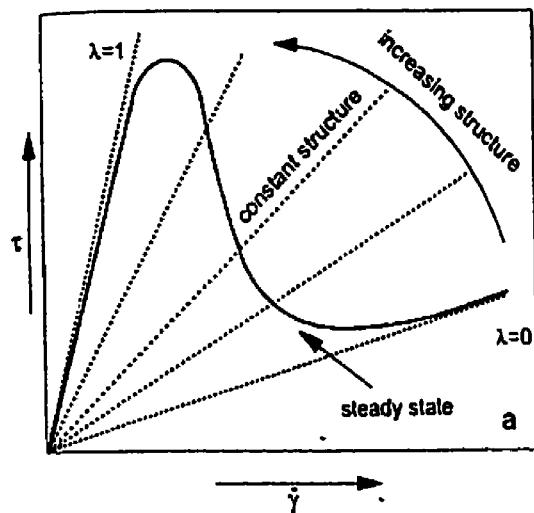
$$m = A \exp(B\varphi) \quad (1.32)$$

$B$  et  $A$  sont des constantes qui dépendent respectivement de la quantité de liquide piégé dans les agrégats et du matériau. Pour les matériaux pseudoplastiques,  $n-1$  est compris entre -1 et 0, la valeur 0 correspondant à un fluide parfaitement newtonien et la valeur -1 correspond à un fluide parfaitement pseudoplastique.

McLelland et al [61] ont rassemblé un grand nombre de valeurs de viscosité d'équilibre de différentes études auxquelles ils ont appliqué la relation 1.31. Ils ont trouvé qu'une valeur de  $n-1$  de l'ordre de -1.2 à -1.4 décrit assez bien la viscosité à l'équilibre des gelées des alliages Sn-15%Pb et des gelées d'alliages Al-Si évaluées à basse vitesse de cisaillement. Ce résultat est apparemment en contradiction avec un comportement pseudoplastique. En effet une valeur de  $n-1$  plus petite que -1 correspond à une décroissance de la contrainte de cisaillement lorsque la vitesse de cisaillement augmente. McLelland et al [61] ont suggéré que ce résultat provenait de l'effet de glissement sur les parois des gyrocouleurs. En effet, celui-ci diminue la concentration en particule près des parois et du même coup la contrainte de cisaillement qui est généralement mesurée sur celle-ci. Dans une étude plus récente, McLelland [62] a attribué le même

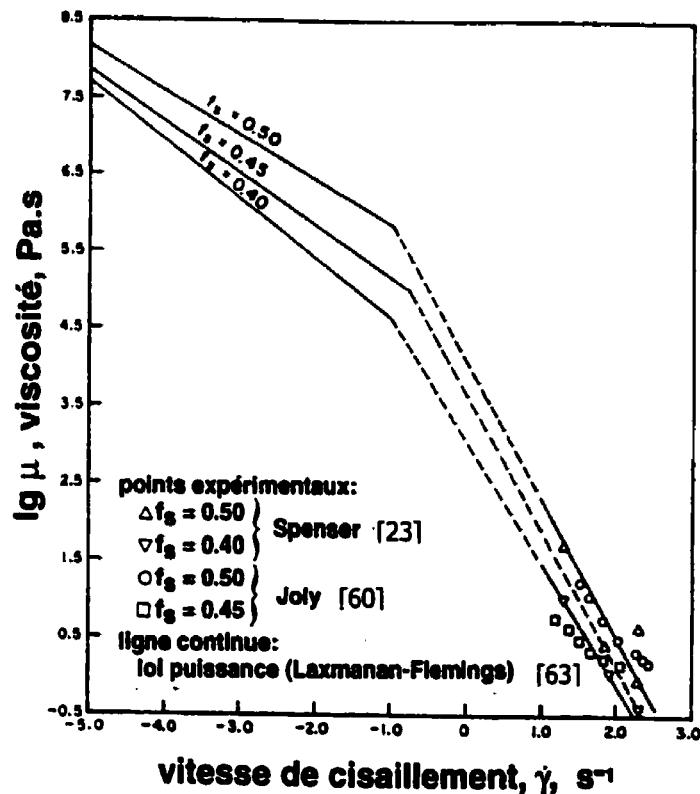
phénomène a un effet de structure et a proposé un modèle pour expliquer la décroissance de la contrainte de cisaillement aux faibles vitesses de cisaillement (figure 1.18). Dans ce modèle, McLellan considère qu'aux basses vitesses de cisaillement la structure des gelées semi-solides se dégrade très rapidement sous l'effet du cisaillement, ce qui provoque une chute de la contrainte de cisaillement. Lorsque la vitesse de cisaillement est suffisamment élevée la structure est dégradée au point où l'on peut considérer que le cisaillement se fait dans des conditions isostructurales. La contrainte de cisaillement augmente alors avec la vitesse de cisaillement.

Laxmanan et Flemings [63] ont montré qu'il existe une discontinuité entre la viscosité d'équilibre mesurée par viscosimétrie de Couette et celle calculée selon la loi de puissance dont les paramètres sont identifiés par l'essai de compression entre plateaux parallèles (figure 1.19). Ceci peut s'expliquer par le fait que le régime de vitesse de cisaillement n'est pas le même dans les deux cas, le viscosimètre de Couette produisant de grande vitesse de déformation par rapport à l'essai de compression. De plus dans l'essai de compression, la déformation s'accompagne d'une ségrégation de la phase liquide et il est peu probable que l'on atteigne un régime stationnaire comme c'est le cas dans les essais de viscosimétrie. L'équation constitutive qui décrit la viscosité de la gelée est donc différente selon les deux procédures.



**Figure 1. 18: Modèle de McLellan pour expliquer le comportement anormal des viscosités d'équilibre aux faibles vitesses de cisaillement**

D'après [62]



**Figure 1.19: Comparaison des viscosités d'équilibre obtenues en viscosimétrie et identifiées par la loi de puissance.**

D'après [63]

### **1.4.2.2 MODÉLISATION DU RÉGIME TRANSITOIRE**

#### **1.4.2.2.1 APPROCHE GLOBALE**

Comme on l'a vu dans les sections précédentes, un certain nombre de variables gouvernent le comportement rhéologique des gelées semi-solides. On peut diviser ces variables en deux parties :

- Les variables internes (ou variables de structure) qui incluent : la mesure du degré d'agglomération entre les particules, la viscosité de la phase fluide, la taille des particules primaires, la morphologie des particules, la distribution granulométrique des particules.
- Les variables externes qui incluent : la température (ou la fraction solide) et la vitesse de cisaillement.

Les variables externes peuvent être imposées par l'expérimentateur tandis que les variables internes ne peuvent être imposées directement et évoluent selon une certaine cinétique. Cependant, si l'on veut modéliser le comportement rhéologique des gelées semi-solides, il faut intégrer aux lois d'écoulement des lois capables de décrire l'évolution de ces variables internes.

En général, la modélisation consiste en une série d'équations différentielles non linéaires qui peuvent être associées à l'histoire thermomécanique du matériau. Dans ce qui suit, on se propose de présenter quelques modèles basés sur ce concept.

#### **1.4.2.2.2 FORMULATION ANALYTIQUE**

##### **1.4.2.2.2.1 MODÈLE DE QUEMADA [64]**

Dans le cas des suspensions de particules sphériques et inertes, Quemada [64] a proposé un modèle capable de décrire le régime transitoire ainsi que le régime permanent. La structure de la suspension est vue par Quemada comme un ensemble uniforme de n "clusters" (ou d'agrégats de particules) par unité de volume, contenant chacun en moyenne p particules. Pour une suspension contenant N particules par unité de volume, cette approche permet de déterminer la fraction de particules,  $\Lambda$ , qui est contenu dans les agrégats :

$$\Lambda = \frac{np}{N} \quad (1.33)$$

Quemada définit alors une fraction effective de solide par

$$\varphi_{\text{eff}} = S\varphi \quad (1.34)$$

Où  $\varphi$  est la fraction solide et  $S$  est une constante inférieure ou égale à 1 qui décrit la structure interne de la suspension et qui dépend de la fraction solide et de la vitesse de cisaillement.

Partant de ce point Quemada caractérise l'évolution de la structure avec le temps par les relations suivantes :

$$\varphi_{\text{eff}} = \varphi \left( 1 + \Lambda \left[ \frac{1}{\varphi_c} - 1 \right] \right) \quad (1.35)$$

Où  $\varphi_c$  est la fraction solide à l'intérieur des agrégats.

$$\frac{d\Lambda}{dt} = \frac{1 - \Lambda}{t_f} - \frac{\Lambda}{t_r} \quad (1.36)$$

Où  $t_f$  et  $t_r$  sont respectivement les temps caractéristiques pour la formation et la destruction des agrégats.

Ces deux relations permettent de déterminer la taille des agrégats à l'équilibre:

$$\frac{d\Lambda}{dt} = 0$$

$$\Lambda_e = \frac{1}{1 + \frac{t_f}{t_r}} = \frac{1}{1 + \theta} \quad (1.37)$$

Ainsi que la réponse de la suspension à un "step change" :

$$\frac{1 - (1 + \theta)\Lambda}{1 - (1 + \theta)\Lambda_e^0} = \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) \quad (1.38)$$

Où  $\Lambda^0$  est l'état de la structure avant le " step change " et  $\tau$  est le temps de réponse de la suspension.

Le comportement rhéologique de la suspension est alors complètement déterminé par les relations 1.37 et 1.38.

L'approche de Quemada, même si elle est intéressante, ne peut être appliquée aux gelées semi-solides. En effet, Quemada considère des " clusters " de particules sphériques. Or on a vu qu'en grande partie, le régime transitoire dans les gelées semi-solides est dû à la sphéroïdisation des particules au cours du cisaillement. Le régime transitoire décrit par Quemada est seulement associé à la libération du liquide piégé entre les particules solides et ne tient pas compte de l'évolution de  $S_v$  en fonction du temps. Ce modèle peut néanmoins être utile lorsqu'on étudie la rhéologie des composites avec une matrice complètement à l'état liquide. En effet, dans ce cas on se retrouve avec des particules de renforts, la plupart du temps non déformables, dans une matrice liquide.

#### **1.4.2.2.2 MODÈLE DE KUMAR ET AL [65]**

Un modèle plus sophistiqué, dont on se propose de donner seulement les grandes lignes, a été proposé par Kumar et al [65]. D'après ces auteurs, la résistance à l'écoulement dans les

gelées semi-solides provient de deux mécanismes différents. Le premier mécanisme est associé à la dissipation d'énergie dû à la destruction des liaisons (par déformation plastique) interparticulaires dans les agrégats tandis que le second est associé à la perturbation de l'écoulement des agrégats causée par le mouvement relatif des particules au sein de ceux-ci.

L'énergie dissipée par déformation plastique des liaisons vaut par définition :

$$E_d = \left[ \int_{V_b} \tau \dot{\gamma} dV_b \right] C_b \quad (1.39)$$

Où  $C_b$  et  $V_b$  et  $\tau$  sont respectivement la concentration volumique des liaisons interparticulaires le volume du solide soumis à la déformation et la contrainte de cisaillement. Dans le cas des gelées semi-solides, cette dernière a été évaluée à partir des travaux d'Alber et Overbeek [66] qui ont développé une expression pour la force transmise au travers d'une paire de particules soumise à un cisaillement :

$$E_d = \left[ \frac{\alpha_1 \lambda_1}{\lambda_2(T)} \eta_f \dot{\gamma} \right] \left[ A(T) \left( \frac{\alpha_1 \lambda_1}{\lambda_2(T)} \right)^n \eta_f^n \dot{\gamma}^n \right] (\alpha_1 S f_s) \quad (1.40)$$

qui peut s'écrire :

$$E_d = C[T] S f_s \eta_f^{n+1} \dot{\gamma}^{n+1} \quad (1.41)$$

Avec  $C[T] = \alpha_1 \left[ \frac{\alpha_1 \lambda_1}{\lambda_2(T)} \right]^{n+1} A(T)$

Et  $A(T) = A_0 \exp \left( - \frac{Q}{RT} \right)$

Où  $\eta_f$  est la viscosité du fluide

$n$  est une constante

$\alpha_1$  est un facteur géométrique

$\alpha_2$  est une constante algébrique

$\lambda_1$  est un paramètre géométrique qui dépend de la forme des agrégats

$\lambda_2(T)$  est un paramètre géométrique qui relie la surface des agrégats à la

surface des joints interparticulaires.

$S$  est la variable interne de structure

$f_s$  est la fraction solide

$T$  est la température

L'énergie associée au deuxième mécanisme a été évaluée en utilisant l'expression dérivée par Frankel et Acrivos (relation 1.14) à laquelle a été incorporé un facteur,  $A(S)$ , tenant compte du phénomène d'agglomération:

$$E_m = A(S) \left[ \frac{\left( f_s / f_{s,m} \right)^{1/3}}{1 - \left( f_s / f_{s,m} \right)^{1/3}} \right] \frac{1}{2} \eta_r \dot{\gamma}^2 \quad (1.42)$$

Où  $A(s)$  est un coefficient hydrodynamique qui dépend de la taille des particules, de leur morphologie et de leur arrangement géométrique et  $f_{s,m}$  est la densité maximale de compactage.

En dérivant l'énergie totale de dissipation  $E = E_d + E_m$ , l'évolution de la contrainte de cisaillement avec le temps a été trouvée :

$$\tau = A(S) \frac{\left( f_s / f_{s,m} \right)^{1/3}}{1 - \left( f_s / f_{s,m} \right)^{1/3}} \eta_r \dot{\gamma} + (n+1) C[T] S f_s \eta_r^{n+1} \dot{\gamma} \quad (1.43)$$

La variable de structure  $S$  qui apparaît dans la relation 1.43 a été décrite par l'équation différentielle suivante :

$$\frac{dS}{dt} = H(T, f_s)(1-S) - R(T, f_s)S\dot{\gamma} \quad (1.44)$$

Où  $H(T, f_s)$  est la fonction d'agglomération et  $R(T, f_s)$  est la fonction de destruction des agrégats.

Le modèle de Kumar, même s'il est intéressant, est difficile à utiliser car il fait appel à de nombreuses variables. Brown et al [67] ont dérivé une expression pour la viscosité des gelées semi-solides en se basant sur la même formulation que Kumar mais en ne considérant que des paires de particules, ce qui allège fortement l'expression 1.43:

$$\eta_r = S \left[ \frac{\left( f_{s,\text{eff}} / f_{s,\text{effm}} \right)}{1 - \left( f_{s,\text{eff}} / f_{s,\text{effm}} \right)} \right] + D f_s \dot{\gamma}^{1-n} S \quad (1.45)$$

$$\frac{dS}{dt} = K_F (1 - S) - K_D S \dot{\gamma}^n$$

Où  $f_{s,\text{eff}}$ ,  $D$ ,  $K_F$  et  $K_D$  sont respectivement la fraction solide effective (tenant compte du liquide immobilisé dans les agrégats), un coefficient dépendant de la température et les fonctions d'agglomération et de destruction.

Kattamis et Piccone [68] ont également dérivé un modèle dont la formulation s'apparente à celle des modèles de Kumar et al [65] et de Brown et al [67]. Ces derniers ont proposé de décrire la viscosité relative des gelées semi-solides par la relation suivante :

$$\eta_r = 1 + \frac{f_{s,m} f_s S_V d_m}{2(f_{s,m} - f_s)} + D f_s \dot{\gamma}^n \quad (1.46)$$

Où  $S_V$  et  $d_m$  sont respectivement la surface spécifique volumique et le diamètre moyen des particules solides.

Comme le montre la relation 1.46, contrairement aux modèles de Kumar et al [65] et Brown et al [67], le modèle de Kattamis et Piccone [68] permet de tenir compte de l'évolution de la forme et de la taille des particules au cours du cisaillement. Notons que ce modèle a permis d'évaluer la viscosité de gelées semi-solides de l'alliage Al-4.5%Cu-1.5%Mg [68] :

$$\eta_r = 1 + \frac{0.5016 f_s \left( S_V / S_{V0} \right) \left( d_m / d_{m0} \right)}{0.5016 - f_s} + 2.033 10^4 f_s \dot{\gamma}^{-0.727} \quad (1.47)$$

Où  $S_{v0}$ ,  $d_{m0}$  et  $S_v$ ,  $d_m$  sont respectivement la surface spécifique et le diamètre moyen avant le cisaillement isotherme et à un instant  $t$  au cours du cisaillement.

Il faut noter que le modèle de Kattamis et Piccone [68] permet de modéliser non seulement le régime transitoire via  $S_v$  et  $d$  mais aussi le régime permanent, avec l'avantage sur la loi de puissance de tenir compte en plus de la fraction solide et de la vitesse de cisaillement, du facteur de forme et de la taille des particules.

#### 1.4.2.2.3 MODÈLE DE MADA ET AJERSCH [70]

En se basant sur les travaux de Lapasin [69], Mada et Ajersch [70] ont proposé de décrire la dégradation des gelées semi-solides brassées en condition isotherme par un modèle cinétique ayant la forme suivante :

$$\begin{aligned}\tau &= \eta(\lambda, \dot{\gamma})\dot{\gamma} \\ -\frac{d\lambda}{dt} &= K_D(\dot{\gamma})(\lambda - \lambda_e)^p - K_A(\dot{\gamma})(1 - \lambda)^q\end{aligned}\quad (1.48)$$

Où  $K_D$  et  $K_A$  sont les constantes cinétiques décrivant la destruction et la formation des agrégats,  $p$  et  $q$  sont les ordres respectifs de ces deux processus et  $\lambda$  est un paramètre structural qui décrit l'état de la structure au cours du cisaillement. La valeur de celui-ci est fixée arbitrairement à 1 avant le cisaillement et à 0 pour un cisaillement infini.

Il a été démontré que la cinétique de dégradation des gelées semi-solides est d'ordre 1 et que la cinétique de reconstitution au repos est négligeable devant la cinétique de dégradation qui se fait lors de cisaillement. Autrement dit la constante  $K_A$  du modèle est négligeable devant  $K_D$  et la valeur de  $p$  est égale à 1. Avec ces considérations, l'intégration de la relation 1.48 donne :

$$\lambda = \lambda_e + (1 - \lambda_e) \exp(-K_D(\dot{\gamma})t) \quad (1.49)$$

Où  $\lambda_e$  est la valeur du paramètre structural dans le régime d'équilibre dynamique. Celle-ci varie avec la vitesse de cisaillement.

Cette approche permet donc de relier le paramètre structural au temps tout au long du cisaillement. Le paramètre structural n'étant pas une grandeur mesurable expérimentalement, celui-ci a été relié à la contrainte de cisaillement (et donc à la viscosité, voir relation 1.48) en suivant l'approche proposée par Lapasin :

$$\eta = \lambda \eta_0 = \eta_e + (\eta_0 - \eta_e) \exp(-K_D(\dot{\gamma})t) \quad (1.50)$$

Où  $\eta_e$  et  $\eta_0$  sont respectivement la viscosité en début de cisaillement et à l'équilibre.

Afin de tenir compte de l'évolution morphologique des particules, Mada et Ajersch [70] ont intégré l'approche de Mori-Ototake [45] aux relations précédentes et ont dérivé les expressions suivantes :

- Dans le cas d'un alliage sans renfort :

$$\begin{aligned} \lambda &= \frac{\eta}{\eta_0} = \frac{\alpha}{\alpha_0} \\ \frac{\lambda - \lambda_e}{1 - \lambda_e} &= \exp(-K_D t) \\ \text{Avec } \frac{\alpha}{\alpha_0} &= \frac{S_v}{S_{v0}} \frac{d_m}{d_{m0}} \frac{\beta_o}{\beta} \\ \text{Et } \beta &= \left( \frac{1}{f_s} - \frac{1}{f_{s,m}} \right) \end{aligned} \quad (1.51)$$

$S_v$  et  $d_m$  sont respectivement la surface spécifique et le diamètre moyen à un instant  $t$  au cours du cisaillement. L'indice 0 réfère à l'instant juste avant le cisaillement.

- Dans le cas d'un alliage avec renforts :

$$\lambda = \frac{\eta}{\eta_0} = \frac{\eta^*}{\eta_0} + \left(1 - \frac{\eta^*}{\eta_0}\right) \alpha_0 \quad (1.52)$$

$\eta^*$  étant la viscosité de la suspension composée des particules de renforts et du métal liquide (sans les particules primaires).

Le modèle de Mada et Ajersch s'apparente, dans une certaine mesure, au modèle de Quemada mais à l'avantage de tenir compte de l'évolution de la morphologie des particules solides lors du cisaillement, ce qui est primordial lorsqu'on étudie la rhéologie des gelées semi-solides. Ce modèle est également intéressant car il permet de décrire le comportement des gelées semi-solides sans nécessiter de caractérisation excessive comme c'est le cas du modèle de Kumar et al [65].

### 1.4.3 RHÉOLOGIE DES GELÉES SEMI-SOLIDES DE MATERIAUX COMPOSITES

Moon et al [71], Quaak et al [72], Mada et Ajerschl [73] ont étudié séparément la rhéologie des gelées semi-solides de composites à base d'aluminium renforcés par des particules de SiC. Ces auteurs rapportent que le comportement rhéologique de ces gelées est similaire à celui des gelées semi-solides de l'alliage de base sans renfort, à savoir : un régime transitoire thixotropique et un régime permanent pseudoplastique.

La figure 1.20 présente les résultats de viscosité de Moon et al [71]. Ceux-ci montrent que pour une même fraction solide, la viscosité des gelées semi-solides des composites à base SiC est plus faible que celle des alliages. D'après Quaak et al [72], ce phénomène est dû au fait que la présence des particules de renfort diminue les interactions entre les particules primaires et donc défavorise la formation des agrégats et du même coup fait baisser la viscosité. Dans les alliages Al-Si hypoeuctectiques (alliages étudiés par les auteurs cités plus haut) renforcés de particules céramiques, ce phénomène peut être attribué au fait qu'au cours de la solidification, les particules de renfort sont repoussées par le front de solidification et se retrouvent donc entre les particules primaires [74]. Moon et al [71] rapportent également que la présence de particules céramiques accélère la globularisation des particules primaires et contribue donc à la baisse de la viscosité par rapport à l'alliage sans renfort.

Quaak et al [72] ont montré que la présence de particules SiC n'a pas d'effet significatif sur la cinétique de dégradation. Mada et Ajersch [73], de leur côté, ont montré que celle-ci tend à augmenter le temps de reconstitution des agglomérats. Ce résultat est similaire à celui qui a été trouvé pour les gelées semi-solides d'alliages sans renfort et semble indiquer que la cinétique d'agglomération est contrôlée par un processus de diffusion tandis que la cinétique de dégradation est contrôlée par les forces de cisaillement.

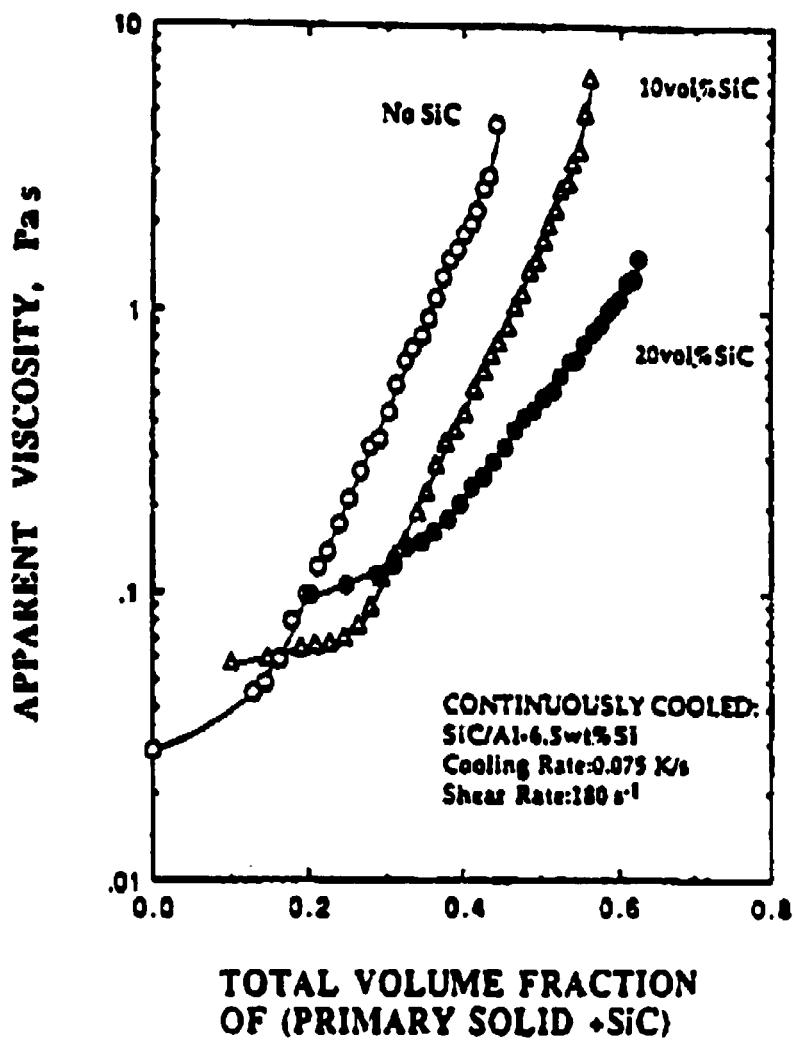


Figure 1. 20: Effet de la présence de particules de renfort sur la viscosité des gelées semi-solides.

D'après [71]

## 1.5 RHÉOLOGIE DES ALLIAGES AUX HAUTES FRACTIONS SOLIDES

### 1.5.1 PROBLÉMATIQUE

Comme on l'a vu dans les sections précédentes, à basses et moyennes fractions solides ( $fs < 0.6$ ), le comportement d'un alliage semi-solide soumis à un état de contrainte purement déviatoire peut être évalué à l'aide d'essais simples de type viscosimétrie de Couette. L'écoulement de la gelée semi-solide est alors caractérisé par sa viscosité et est modélisé en considérant celle-ci comme un mélange homogène. En général, en combinant les modèles rhéologiques qui décrivent les suspensions newtoniennes à des approches qui tiennent compte des phénomènes d'agrégation, la viscosité peut être prédite avec relativement de succès.

Ce type d'approche est important pour comprendre les mécanismes physiques qui opèrent (à l'échelle des agrégats) dans les gelées semi-solides mais reste néanmoins insuffisant au niveau des applications industrielles. En effet, dans des applications telles que le thixoforgeage ou le thixomoulage, les mélanges semi-solides sont soumis à un état de contrainte dont la partie hydrostatique a un effet non nul. Comme on l'a déjà souligné, ceci se traduit par un comportement fortement hétérogène caractérisé par une ségrégation importante de la phase liquide. En laboratoire, ce problème peut être simulé en réalisant des essais de compression uniaxiale (ou même biaxiale). Dans le cas des gelées semi-solides moyennement concentrées, l'application d'une pression génère une hétérogénéité de déformation entre le liquide et le solide et provoque ainsi une densification de la phase solide avec formation d'un squelette solide de plus en plus connecté. Aux hautes fractions solides ( $fs > 0.6$ ), la phase solide forme déjà un squelette continu et l'application d'une pression extérieure génère une densification de celui-ci et l'apparition d'une pression dans le liquide. Il en résulte une

combinaison entre un écoulement de la phase liquide et une déformation de la phase solide. Il devient alors possible de regarder la gelée semi-solide comme un matériau poreux saturé de liquide. Les modèles de la mécanique des milieux poreux (ou des sols) ou les modèles viscoplastiques de la mécanique des milieux continus peuvent alors constituer une piste intéressante pour rendre compte de la rhéologie des gelées semi-solides.

Il existe deux types d'approche pour modéliser l'écoulement des gelées semi-solides aux hautes fractions solides. La première consiste à considérer la gelée semi-solide comme un mélange homogène (en tenant compte cependant d'un effet viscoplastique) tandis que la seconde considère celle-ci comme un mélange biphasé. Dans les deux cas l'écoulement de la gelée semi-solide est caractérisé par une contrainte d'écoulement.

### **1.5.2 MODÈLE RHÉOLOGIQUE À UNE PHASE**

En dépouillant les résultats de compression obtenus par Loué [75] sur des gelées semi-solides d'alliages Al-6%Si (figure 1.21), Sigworth [76] a montré que pour des fractions solides inférieures à 60%, la contrainte d'écoulement proposée par Dabak et Yucel [77], pour les fluides à limite d'écoulement, rend compte du seuil d'écoulement de la majorité des gelées semi-solides :

$$\tau_0 = 6C[(\rho_s - \rho_0)gD] \frac{\phi^3}{\phi_m - \phi} = K \frac{\phi^3}{\phi_m - \phi} \quad (1.53)$$

Où C,  $\rho_s$ ,  $\rho_0$ , g et  $\phi$  sont respectivement une constante ajustable, la densité des particules, la densité du fluide, l'accélération de la pesanteur et la fraction solide.

Comme souligné, dans l'article original de Sigworth [76], ce résultat est important car pour des vitesses de déformation élevées (ce qui peut être le cas dans de nombreux procédés de mise en forme), la contrainte d'écoulement peut représenter plus de 90% de la contrainte de cisaillement appliquée. Une autre conclusion intéressante de l'étude précédemment citée est que : les limites d'écoulement mesurées lors des essais de compression sont beaucoup plus importantes (environ 300 fois) que celles enregistrées lors d'essais de viscosimétrie. Ceci tient au fait que l'histoire thermomécanique des gelées semi-solides est différente selon les deux procédures. En effet, lors des essais de compression, les gelées sont complètement solidifiées puis sont partiellement refondues tandis que dans les essais de viscosimétrie les gelées ne passent jamais complètement par un état solide. Les contraintes d'écoulements prédites lors des essais de compression sont donc plus représentatives des opérations de mise en forme commerciale que celles mesurées en viscosimétrie.

Il est important de souligner que l'approche de Sigworth, malgré son caractère intéressant, devient inefficace lorsque la fraction solide dépasse 60%. Au-delà de cette valeur, la contrainte d'écoulement doit être modélisée par analogie avec celle proposée par la mécanique des milieux poreux. Un modèle à deux phases est alors nécessaire pour décrire de manière complète le comportement rhéologique d'un mélange semi-solide. On peut trouver dans la littérature un certain nombre de travaux utilisant ce type d'approche pour caractériser l'écoulement des gelées semi-solides aux hautes fractions solides. On pourra se référer aux travaux de Charreyron [78] et Gunasekera [79] pour les structures semi-solides dendritiques et à ceux de Nguyen [80] et Zavaliangos [81] pour les structures non dendritiques.

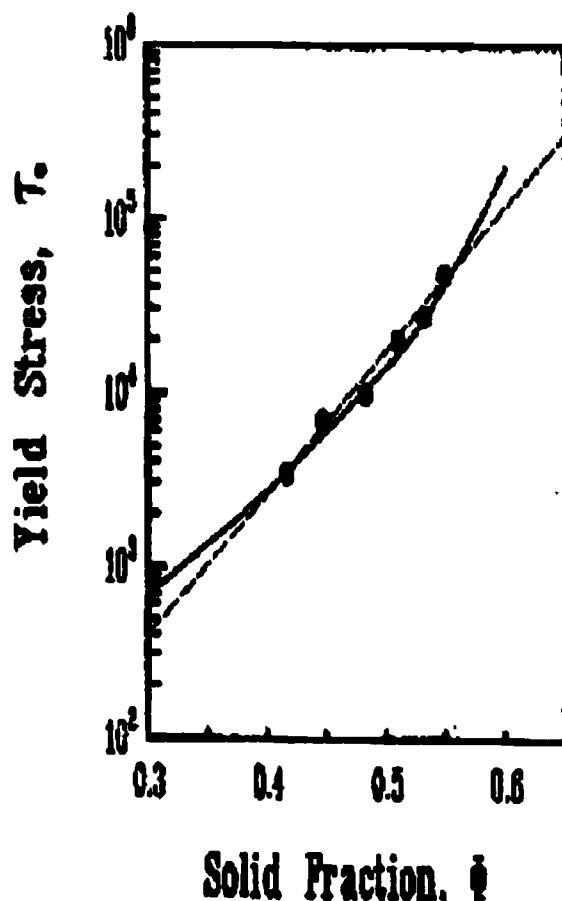


Figure 1. 21: Influence de la fraction solide sur la contrainte d'écoulement d'un alliage Al-Si déformé entre plateaux parallèles

D'après [76]

- Relation 1.53 ( $K=9615, \phi_m=0.6$ )
- Points expérimentaux

## CHAPITRE II

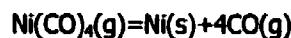
### MÉTHODE EXPÉRIMENTALE

#### 2.1 MATÉRIAUX À L'ÉTUDE

##### 2.1.1 PROPRIÉTÉS, ÉLABORATION ET COMPOSITION DES COMPOSITES GrA-Ni®

GrA-Ni® est un composite hybride à base d'aluminium renforcé par des particules de carbure de silicium (SiC) ou d'alumine ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ) et de graphite. Ces types de matériaux sont appelés matériaux "autolubrifiants" car le solide lubrifiant est inséré à l'intérieur même du matériau et non déposé sur la surface. Les propriétés lubrifiantes de tels composites sont dues à la formation d'une couche d'un troisième corps (souvent appelé tribocouche) de lubrifiant solide [82] : le graphite dans le cas du GrA-Ni®.

Le renforcement graphitique est obtenu à partir d'une poudre de graphite lamellaire (diamètre moyen des particules 85µm) recouvert par du nickel. Le revêtement de nickel est la solution que la société INCO a adoptée pour remédier à la non mouillabilité du graphite par l'aluminium. En effet, il a été démontré (voir figure 1.15) qu'un revêtement continu de nickel sur les particules de graphite abaisse la valeur de l'angle de contact entre le graphite et l'aluminium près de son point de fusion d'une valeur de 157° à une valeur de 57° et rend donc possible la rétention du graphite par l'aluminium fondu. Le revêtement de nickel est réalisé dans les raffineries d'INCO à Clydach, par décomposition thermique selon la réaction :



L'ajout de nickel seul, ne garantie cependant pas la stabilité de la suspension. En effet, après l'injection des particules de graphite, le nickel tend à se dissoudre dans le bain liquide et les particules de graphite qui sont moins denses que l'aluminium ont tendance à remonter à la surface du bain.

Dans le cas des composites à base de carbure de silicium, ce phénomène a été minimisé du fait que ceux-ci contiennent deux catégories de particules : des particules de graphite de densité plus faible que l'aluminium et des particules de SiC de densité plus importante. Ainsi, en ajustant la composition du composite de manière à obtenir des particules de densité moyenne égale à la densité du métal liquide, la suspension peut être stabilisée [83]. En se basant sur ce principe, le composite peut être fabriqué à des fractions volumiques variables, à partir du moment où la relation suivante est satisfaite :

$$\rho_f = \frac{m_{SiC} + m_{Gr}}{V_{SiC} + V_{Gr}} \quad (2.1)$$

Où  $m_{SiC}$ ,  $V_{SiC}$ ,  $m_{Gr}$ ,  $V_{Gr}$  sont respectivement les masses et les volumes des particules de carbure de silicium et de graphite et  $\rho_f$  est la densité du métal liquide.

En remplaçant par les valeurs appropriées de densité de l'aluminium, du SiC et du graphite on peut montrer que la configuration la plus favorable correspond à :

$$\begin{aligned} V_{SiC} &= 1.8 V_{Gr} \\ m_{SiC} &= 3.2 m_{Gr} \end{aligned} \quad (2.2)$$

D'après INCO, les compositions qui offrent le plus d'avantages (prix de revient, performances..) sont les compositions dites 10S4G et 6S3G (10 et 6% Vol SiC + 4 et 3% Vol

Graphite). Un composite à base de particules d'alumine, le composite dit 5A3G (5%vol Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, 3%vol Gr), a également été développé du fait que dans certaines applications, Le caractère très abrasif des particules de carbures de silicium peut être néfaste.

La composition des alliages de base de tous les composites (sans renforcement graphitique) est obtenue par dilution du Duralcan F3S.20S, produit par la société Alcan, et de l'alliage A356. Les compositions des différents composites ainsi que de l'alliage A356 sont données dans le tableau 2.1. Les analyses relatives aux composites ont été réalisées par dissolution et ont été fournies par la société INCO. Celle-ci indique également la présence probable dans la matrice d'approximativement 0.2% de Cu et 0.2% de Ti. Notons que le pourcentage d'aluminium ayant été déterminé par balance et que le silicium étant sensible au pH lors de la dissolution, les valeurs de composition de ces éléments données dans le tableau 1 peuvent être sujettes à caution.

%POIDS	Al	Si (soluble)	Si (insoluble)	Ni	Mg	Fe	C	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>
<b>10S40G</b>	72.4	7.2	7.66	2.83	0.48	ND	6.36	-
<b>6S3G</b>	76.6	6.63	4.76	2.07	0.35	0.075	4.27	-
<b>5A3G</b>	79.0	8.59	-	2.20	0.49	0.42	2.61	6.46
<b>A356</b>	92.5	6.98	-	-	0.37	0.1	-	-

Tableau 2.1 : Composition chimique des composites 10S4G, 6S4G et 5A3G. ND=non déterminé

## 2.1.2 CARACTÉRISATION PHYSIQUE ET MICROSTRUCTURALE DES MATERIAUX À L'ÉTUDE

Les microstructures des composites 10S4G et 5A3G sont données aux figures 2.1 et 2.4. Elles ont été obtenues par solidification, à partir de l'état liquide ( $750^{\circ}\text{C}$ ), dans des moules en graphite. Le polissage des composites se fait selon une procédure spéciale mise au point par INCO. Cette procédure est essentiellement destinée à éviter l'arrachement des particules de graphite lors du polissage.

Le composite 10S4G consiste en une matrice Al-Si dans laquelle on retrouve une dispersion de particules de SiC (taille moyenne  $10\mu\text{m}$ ) et de particules de graphite de tailles supérieures ( $100\mu\text{m}$ ). Les différentes phases dans le composite sont identifiées sur la figure 2.1, la composition chimique de la matrice est donnée dans le tableau 2.1 et le comportement à la fusion et à la solidification du composite est décrit sur la figure 2.2. On peut voir sur la figure 2.1, que la phase aluminium est dendritique et que l'eutectique est localisé dans les zones interdendritiques où on retrouve également les particules de graphite et de SiC. Le composite 6S3G possède les mêmes caractéristiques que le 10S4G, à la seule différence que le pourcentage volumique de renfort de celui-ci est plus faible.

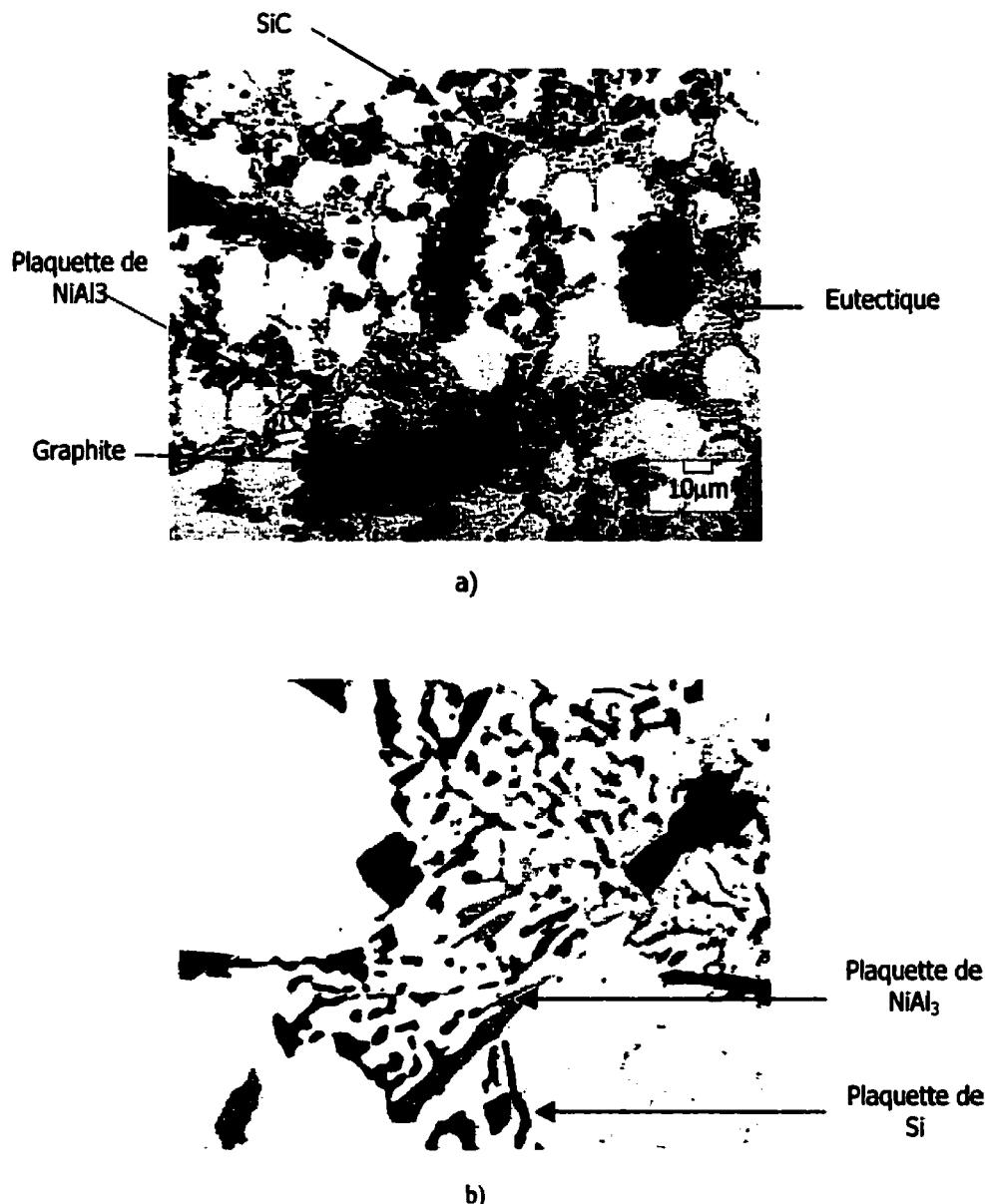
Compte tenu de la présence non négligeable de nickel et de magnésium, la matrice de ces composites constitue un système quaternaire: Al-Si-Ni-Mg. En théorie (étant donné les valeurs de composition reportées dans le tableau 2.1) lorsqu'on refroidit un tel système depuis l'état liquide, on devrait, d'abord avoir, dépôt d'une solution solide d'aluminium Al-Si, puis d'un eutectique binaire de composition variable le long de la vallée associée à l'eutectique binaire Al-Si (ou  $\text{Al-NiAl}_3$ , voir figure 2.8), ensuite d'un eutectique ternaire de composition variable le long

de la vallée associée à l'un des eutectiques ternaires Al-Si-NiAl<sub>3</sub> ou Al-Si-Mg<sub>2</sub>Si et enfin d'un eutectique quaternaire Al-Si-NiAl<sub>3</sub>-Mg<sub>2</sub>Si à température constante (voir les diagrammes de phases des systèmes Al-Si-Ni et Al-Si-Mg : figures 2.6 et 2.8). Il est difficile de déterminer la nature de l'eutectique ternaire à se former du fait que les systèmes Al-Si-Ni et Al-Si-Mg possèdent des températures de transformations eutectiques très proches, entre 560°C et 565°C pour le premier et environ 559°C pour le second (voir plus loin). Cependant, à cause de la faible quantité de magnésium dans la matrice, on peut supposer que l'eutectique ternaire qui se forme est l'eutectique Al-Si-NiAl<sub>3</sub>. Les observations microstructurales de l'eutectique (figures 2.1 et 2.4) confirment cette hypothèse.

Des essais de DSC ("Differential Scanning Calorimeter") et de refroidissement sur le composite 10S4G ont montré que la présence de 3.4% de Ni et de 0.5% de Mg dans la matrice abaisse la valeur du liquidus d'une valeur de 610°C (alliage Al-8.6%Si [84]) à une valeur de 592°C. Lors du chauffage, La fusion de l'eutectique binaire débute environ à 555°C (au lieu de 577°C pour le système Al-Si) et s'achève à 568°C. La fusion de l'eutectique ternaire Al-Si-NiAl<sub>3</sub> débute autour 550°C (au lieu de 560°C pour le système Al-Si-Ni) et s'achève autour de 552°C. Il est difficile de détecter en DSC l'eutectique quaternaire du fait de la faible quantité de magnésium dans la matrice. On a cependant détecté un pic dans le pic de fusion de l'eutectique ternaire (figure 2.2). Il est probable que ce pic soit associé à l'eutectique quaternaire Al-Si-NiAl<sub>3</sub>-Mg<sub>2</sub>Si. Les enthalpies des différentes transformations ont été évaluées en mesurant l'aire sous la courbe de DSC et sont données sur la figure 2.2. Le comportement au refroidissement est identique, mais les températures de transformations eutectiques sont environ 10°C inférieures à celles enregistrées en réchauffement (voir figure 2.2). Cette surfusion est associée au fait que les eutectiques Al-Si sont des eutectiques irréguliers. Le composite 6S3G a un comportement semblable mais possède une valeur de liquidus plus élevée (600°C au lieu de 592°C) que celle

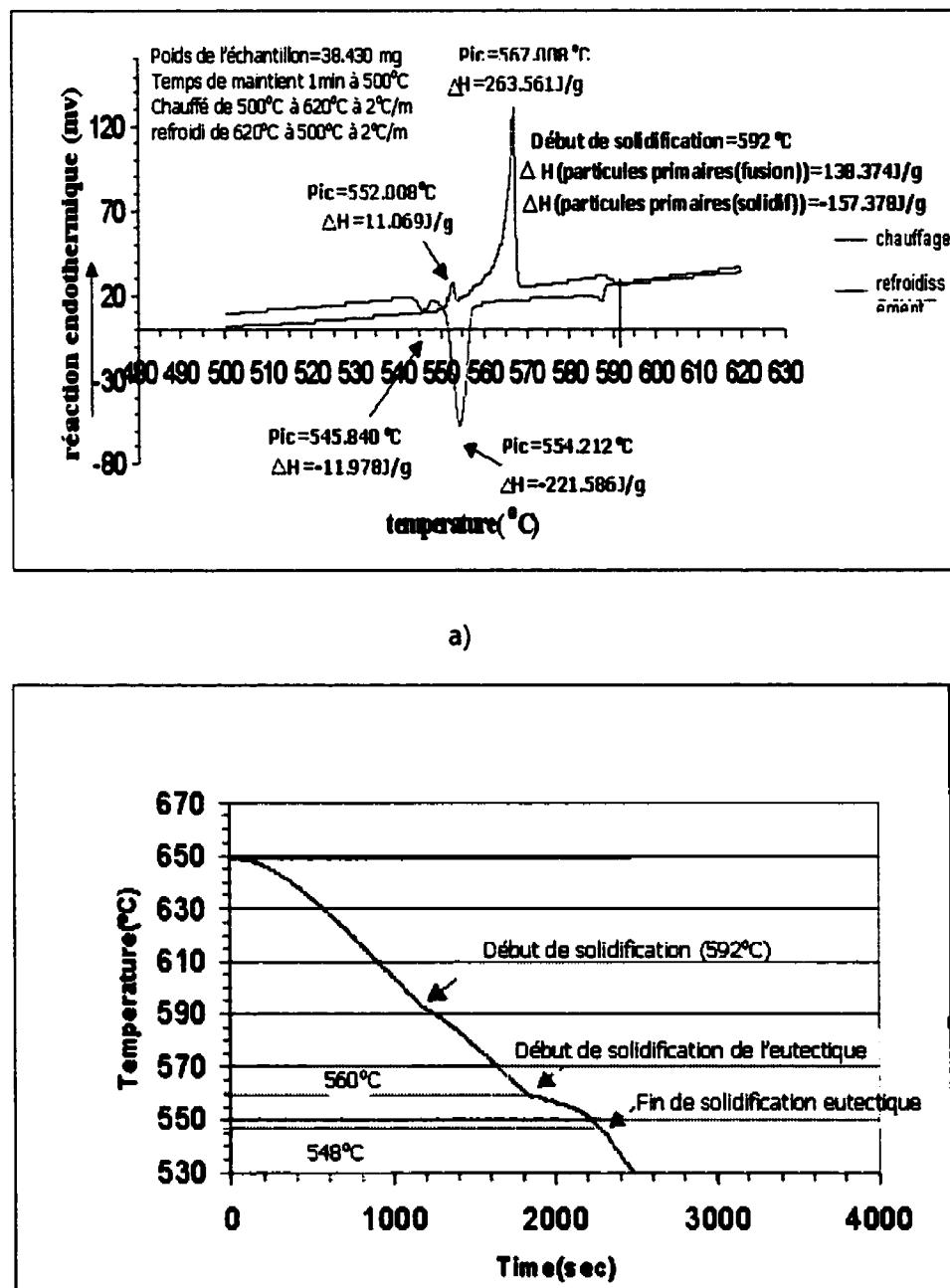
du composite 10S4G à cause de la plus faible quantité d'éléments d'additions dans la matrice (figure 2.3).

Le composite 5A3G consiste, quant à lui, en une matrice d'aluminium dans laquelle on retrouve une dispersion de particules d'alumine (taille moyenne 10 à 15 $\mu\text{m}$ ) et de particules de graphite de taille supérieure (100 $\mu\text{m}$ ) (voir figure 2.4). Les essais de DSC (figure 2.5) indiquent que le comportement à la fusion et au refroidissement du composite 5A3G est un peu différent de celui des composites 10S4G et 6S3G (la valeur du liquidus étant cependant très proche de celle du 10S4G). En effet, on peut remarquer que le degré de surfusion est moins important : le début de formation de l'eutectique binaire, au refroidissement, est de 565°C au lieu de 560°C pour le 10S4G. De plus, le pic associé à la formation de l'eutectique ternaire semble avoir disparu. Les analyses microstructurales du composite 5A3G semblent indiquer néanmoins la présence d'un eutectique ternaire Al-Si-NiAl<sub>3</sub>. Sur les courbes de DSC, on a associé celui-ci à la présence d'un épaulement (de 560°C à 548°C) dans le pic de l'eutectique binaire. Notons enfin que, compte tenu du faible pourcentage de nickel et de la quantité relativement importante de silicium dans la matrice (respectivement 2.4 et 9.5%), l'eutectique binaire qui se forme dans le cas du composite 5A3G est l'eutectique Al-Si (voir figure 2.8)A Dans le cas du composite 10S4G, c'est probablement l'eutectique binaire Al-NiAl<sub>3</sub> qui se forme. Ce dernier point explique probablement la différence d'allure des courbes de DSC des composites 5A3G et 10S4G. Le composite 6S3G contient à peu près le même pourcentage de nickel que le composite 5A3G, mais renferme moins de silicium (environ 7.5%), ce qui explique qu'il cristallise de la même façon que le composite 10S4G.

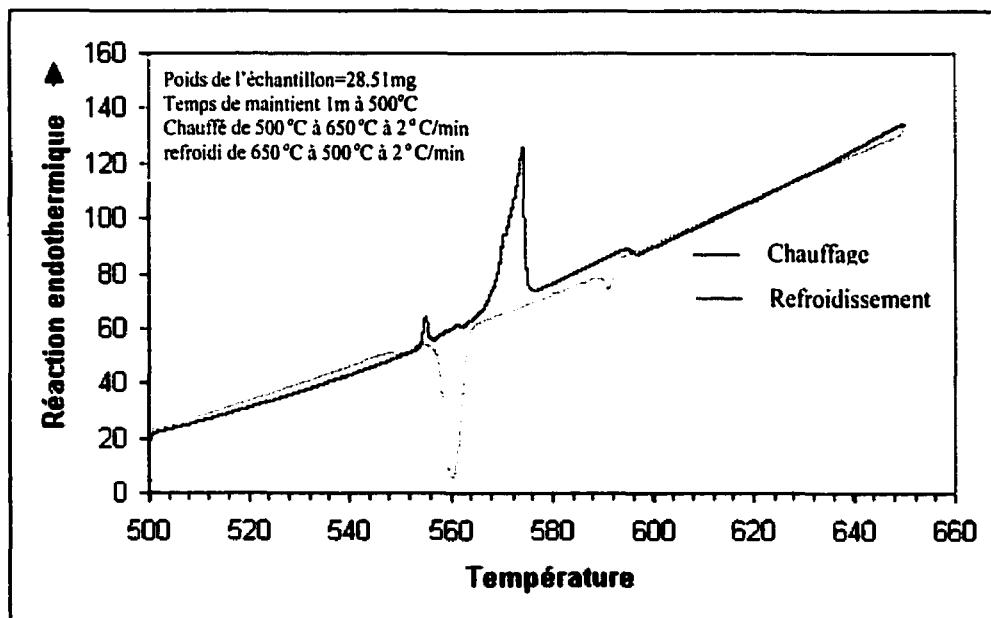


**Figure 2.1 : Microstructure du composite 10S4G.**

a) Vue d'ensemble (G=X 200), b) Aspect de l'eutectique (G= X 1000)

**b)**

**Figure 2.2 : Résultats de DSC (a) et de courbe de refroidissement (b) obtenus sur le composite 10S4G**



**Figure 2.3 : Résultats de DSC sur le Composite obtenus sur le composite 6S3G**

Remarque : la courbe de DSC est donnée sans soustraction de la ligne de base

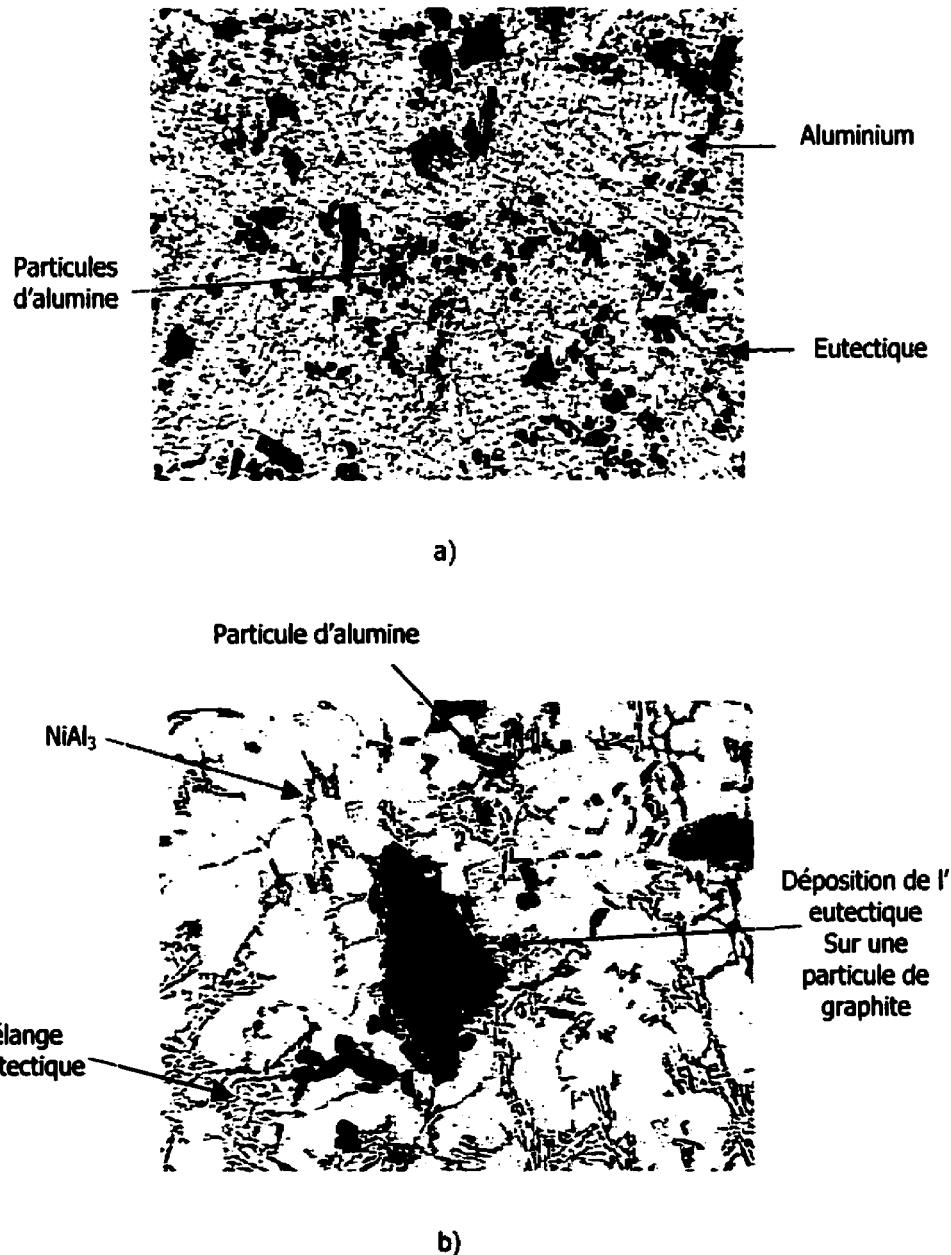
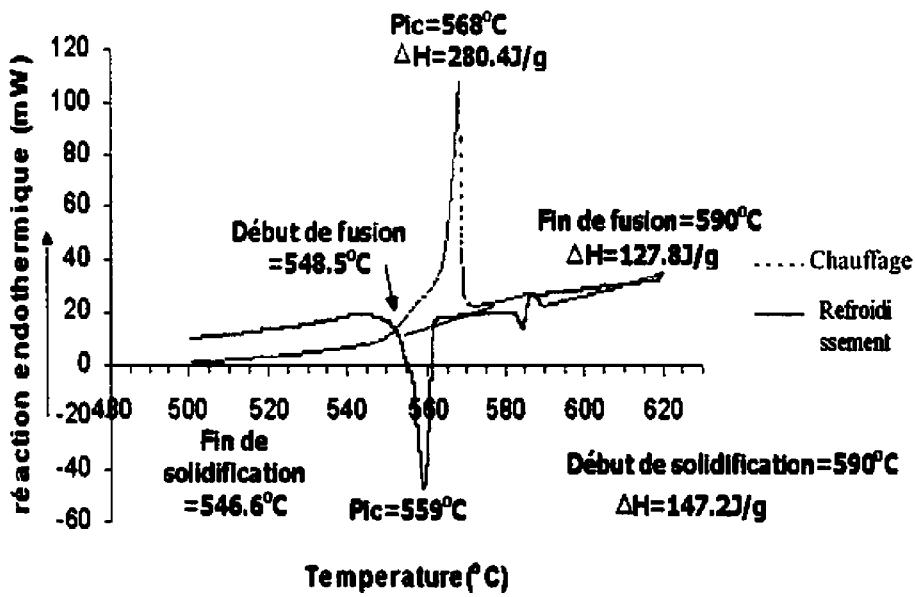
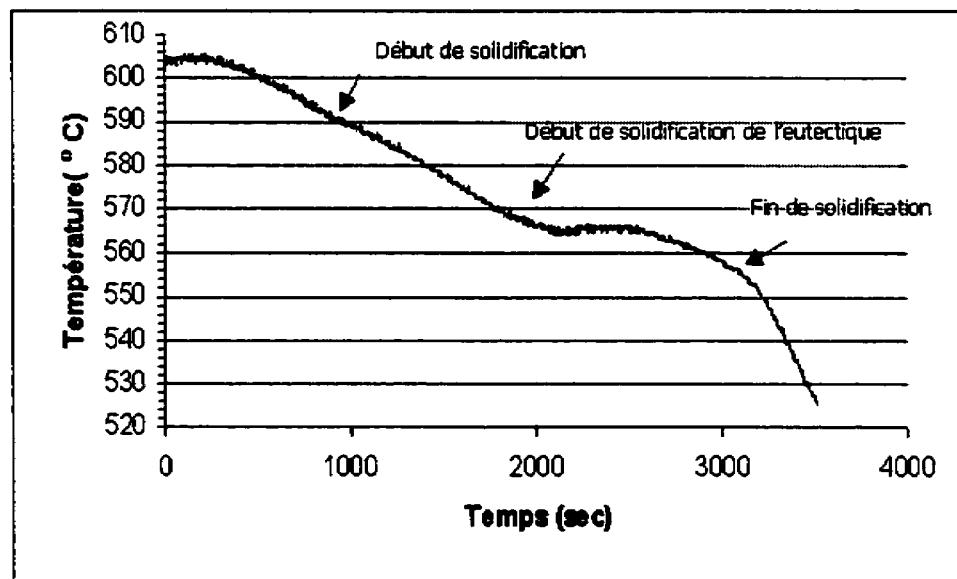


Figure 2. 4 : Microstructure du composite 5A3G.

a) G=X 50, b) G=X 200



a)



b)

**Figure 2.5:** Résultats de DSC (a) et de courbe de refroidissement (b) obtenus sur le composite 5A3G

## **2.1.3 DIAGRAMMES DE PHASE DES SYSTÈMES AI-SI-NI ET AI-SI-NI-Mg DANS LE COIN RICHE EN ALUMINIUM**

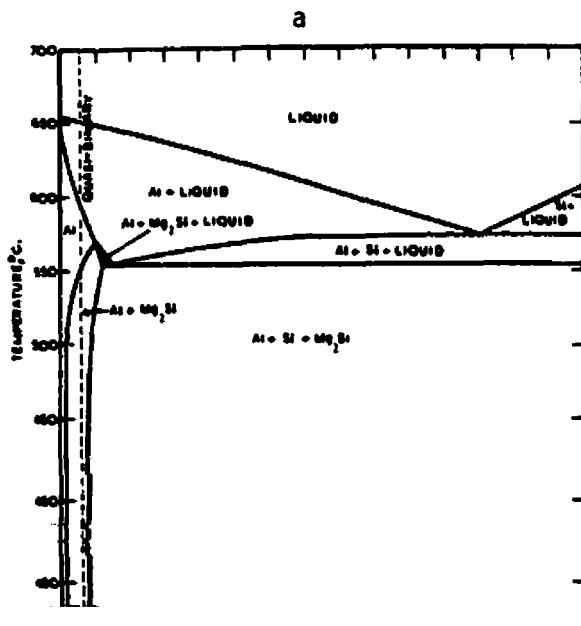
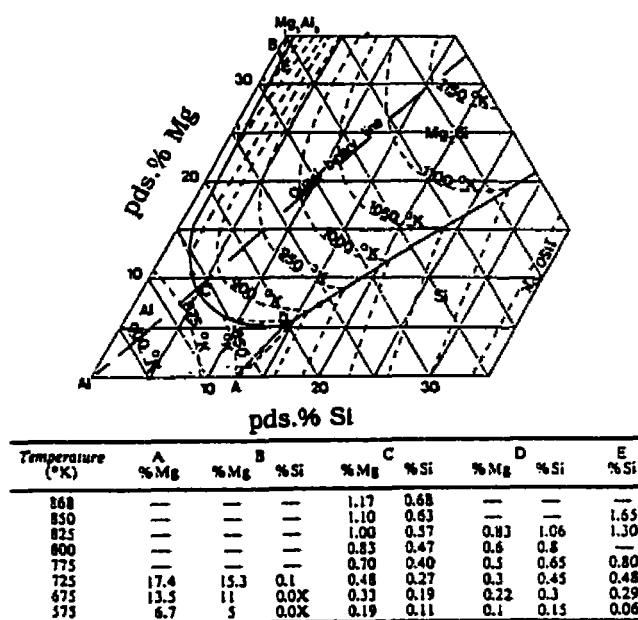
Dans cette partie, on se propose de présenter un travail de modélisation portant sur les diagrammes de phase de la matrice des composites à l'étude. Comme on l'a déjà souligné, la matrice de ces derniers correspond au système quaternaire Al-Si-Ni-Mg dans la partie riche en aluminium. Nous commencerons par présenter les diagrammes expérimentaux pertinents à notre étude, ce qui nous donnera une base de comparaison lors de la modélisation. Les diagrammes calculés nous permettront d'évaluer la fraction solide dans la zone semi-solide.

### **2.1.3.1 LES TERNAIRES EXPÉRIMENTAUX DU SYSTÈME AI-SI-Ni-Mg**

#### **2.1.3.1.1 LE TERNaire AI-Si-Mg**

Le diagramme de phase expérimental du système ternaire Al-Si-Mg est assez bien établi. Les températures du liquidus de la zone riche en aluminium du diagramme de phase Al-Si-Mg [85] ainsi que les réactions eutectiques et leurs températures de transformation sont données sur la figure 2.6(a). Une coupe verticale à 1% de Mg [86], domaine d'intérêt de la présente étude, est également reportée sur la figure 2.6(b).

Lors de la solidification d'un alliage de ce type, on a d'abord dépôt d'une solution solide d'aluminium puis d'un eutectique binaire le long de la vallée associée au binaire Al-Si et enfin d'un eutectique ternaire, à 555°C, composé d'aluminium, de silicium et du composé Mg<sub>2</sub>Si. Cet eutectique contient environ 4.97% de Mg et 12.95% de Si. Notons enfin que l'aluminium et le composé binaire Mg<sub>2</sub>Si forme un système quasi-binaire.



b

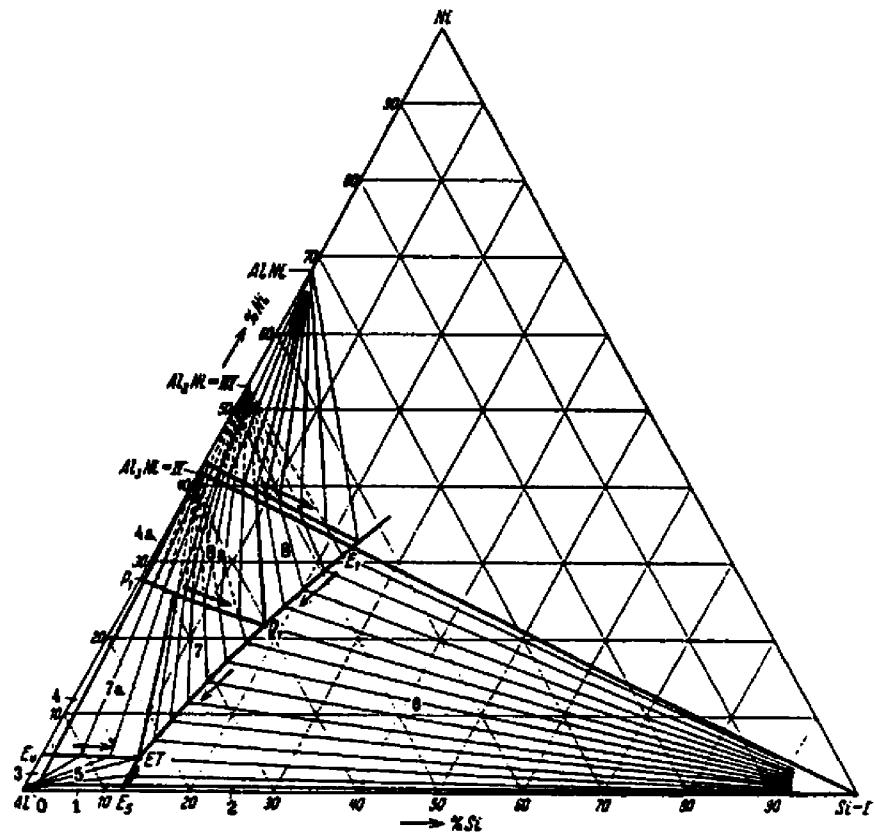
**Figure 2.6 : a) Projection du liquidus dans la zone riche en aluminium, b) Coupe verticale à 1% (massique) de Mg du système Al-Si-Mg**

a : D'après [85], b : D'après [86]

### 2.1.3.1.2 LE TERNaire Al-Si-Ni

La partie riche en aluminium du système Al-Si-Ni a été étudiée par plusieurs auteurs. D'après Fuss [87], un eutectique ternaire entre la phase aluminium, la phase silicium et le composé  $\text{NiAl}_3$  contenant 84.3% d'Al, 3.9% de nickel et 11.8% de silicium se forme à 568°C. D'après ce même auteur, la phase  $\text{NiAl}_3$  et la phase Si forment un système quasi-binaire. Pratt et Raynor [88] indiquent une solubilité maximale du silicium dans la phase  $\text{NiAl}_3$  de 0.6% atomique. Phillips [89] donne, à partir d'essais de calorimétrie, une température eutectique à 567 °C et une composition eutectique de 4.9%Ni et 10.98%Si. Des coupes verticales à 2% massique de Si et 2% massique de Ni sont également données par ce même auteur (figure 2.8). Weiss [90] rapporte des résultats similaires à ceux de Phillips et donne des coupes à 2% et 4% massique de Ni (figure 2.9). Dans une étude plus récente Trespaillé et Suéry [91] rapportent une température eutectique de 565°C. Martynova et al [92] ont mesuré, par des essais calorimétriques, l'enthalpie de fusion de la réaction eutectique et rapporte une valeur de 12.22 kJ/mol. Des isothermes à 1100, 900 et 600°C sont donnés par Guard et Smith [93]. Notons enfin que toutes ces études rapportent que dans la partie riche en aluminium, aucune phase ternaire ne se forme. Par contre, dans la partie riche en Ni, Les phases solides ternaires  $\text{Ni}_3\text{Al}_{1-x}\text{Si}_x$ ,  $\text{Ni}_{1+x}\text{Al}_{1-y}\text{Si}_{2y}$ ,  $\text{Ni}_2\text{Si}_{1-x}\text{Al}_x$ ,  $\text{NiAl}_x\text{Si}_{2-2x}$ ,  $\text{Ni}_2(\text{Al}_{1-x}\text{Si}_x)_3$ ,  $\text{Ni}_{66}\text{Al}_{17}\text{Si}_{17}$ ,  $\text{Ni}_2\text{AlSi}$ ,  $\text{Ni}_3(\text{Al}_{1-x}\text{Si}_x)_7$  sont rapportées. Leurs caractéristiques sont résumées en [94].

Dans le cadre de la présente étude, les pourcentages de nickel étant faibles, on ne prendra pas en compte la présence de ces phases. Les alliages à l'étude se situent dans le champ 5 de la figure 2.7. Le chemin de cristallisation de ceux-ci débute par le dépôt d'une solution solide d'aluminium puis d'un eutectique binaire Al-Si (ou  $\text{NiAl}_3$ ) et enfin de l'eutectique ternaire Al-Ni-Si.



**Figure 2.7 : La zone riche en aluminium du diagramme de phase Al-Si-Ni.**  
D'après [87]

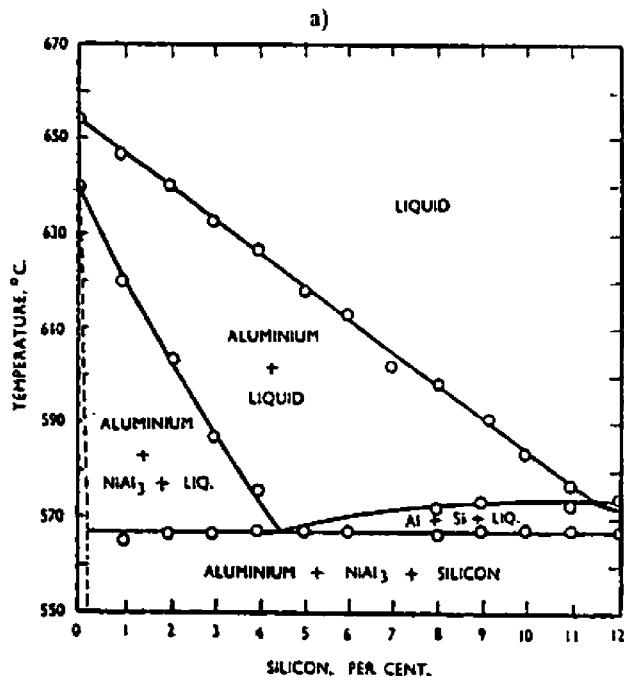
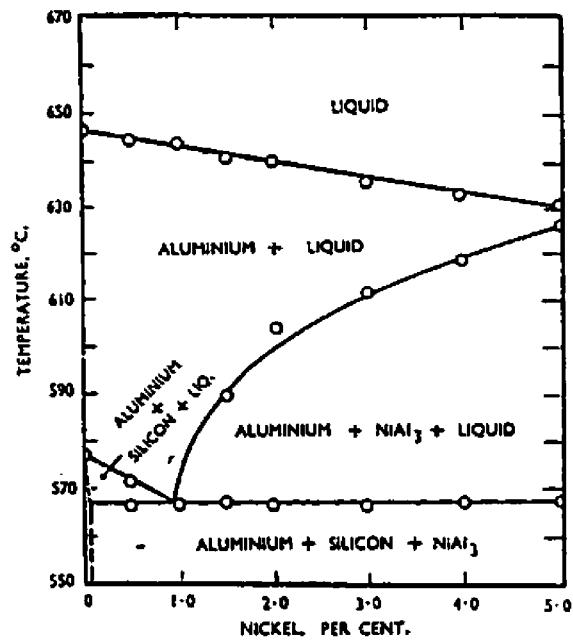
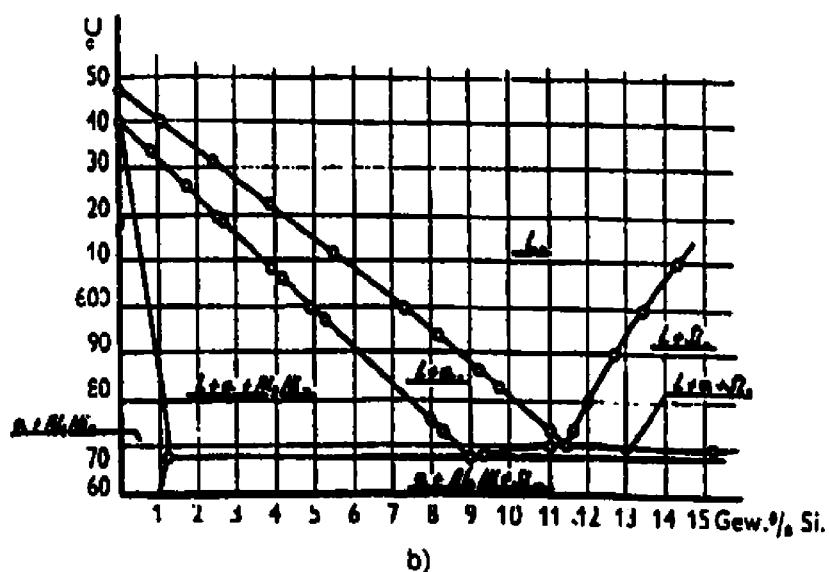
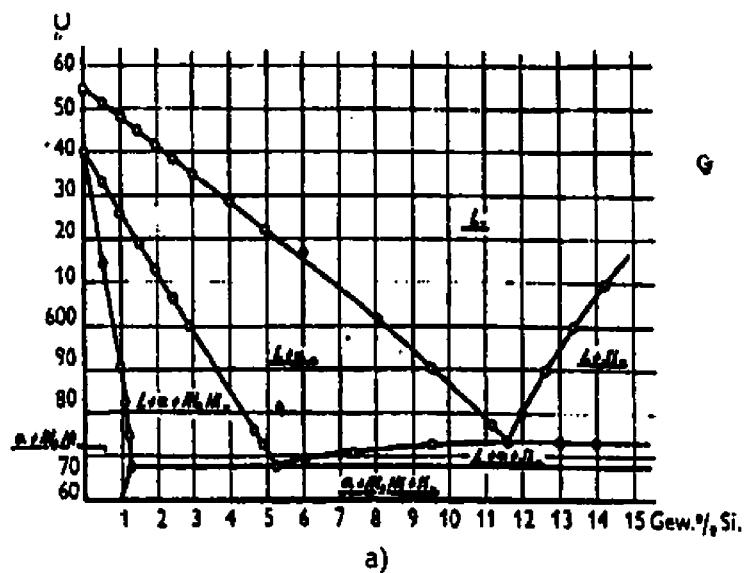


Figure 2.8 : Coupe verticale à 2%Si (a) et 2%Ni (b) (% massique)  
Système : Al-Si-Ni.

D'après [89]



**Figure 2.9 : Coupe verticale à 2%Ni (a) et 4%Ni (b) (% massique)**  
**Système : Al-Si-Ni**

D'après [90]

## **2.1.3.2 MODÉLISATION DES DIAGRAMMES DE PHASE AI-SI-Ni et AI-Si-Ni-Mg DANS la PARTIE RICHE EN ALUMINIUM**

### **2.1.3.2.1 FONDEMENTS THERMODYNAMIQUES DE LA CONSTRUCTION DES DIAGRAMMES DE PHASE**

Le but de cette partie est de présenter brièvement la modélisation des fonctions thermodynamiques nécessaires à la construction des diagrammes de phase. La nomenclature utilisée est celle proposée par Dinsdale [95]. Celle-ci est compatible avec le logiciel F\*A\*C\*T [96] développé par le groupe CRCT de l'Université de Montréal.

#### **2.1.3.2.1.1 DESCRIPTION DES ÉLÉMENTS**

L'énergie libre de Gibbs d'un élément pur  $i$ ,  $G_i(T)$ , est calculée par rapport à l'enthalpie de l'élément dans son état standard ( $T=298.15^\circ\text{C}$ ,  $P=1\text{atm}$ ),  ${}^0H_i(298.15^\circ\text{C})$ . Cette quantité est dénotée  $GHSE_{i,i}$ . Elle dépend de la température et peut être décrite par une fonction ayant la forme suivante :

$$GHSE_{i,i} = G_i(T) - {}^0H_i = a + b*T + c*T*\ln{T} + d*T^2 + e*T^3 + f*T^4 + g*T^5 + h*T^{10} \quad (2.3)$$

Dans le cas où l'élément entre en solution avec un élément de structure cristalline différente, l'énergie libre de celui-ci doit être calculée en définissant un élément hypothétique ayant la structure cristalline du solvant. Ce point est décrit en détail par Pelton [97].

Pour les éléments qui présentent un ordre magnétique, un terme additionnel doit être ajouté à la relation 2.3 :

$$G^{\text{mag}} = RT \ln(\beta+1) f(t=T/T_c) \quad (2.4)$$

Où  $T_c$  est température de Curie et  $\beta$  est le moment magnétique moyen par atome.

### **2.1.3.2.1.2 DESCRIPTION DES COMPOSÉS BINAIRES**

L'énergie libre de formation d'un composé binaire  $A_aB_b$  est donnée par :

$$G_{A_aB_b} = a \cdot H_a + b \cdot H_b + f(T) \quad (2.5)$$

Où  $f(T)$  est une fonction de la température ayant la même forme que celle donnée par la relation 2.3.

### **2.1.3.2.1.2 DESCRIPTION DES SOLUTIONS**

Le but de ce paragraphe n'est pas de passer en revue tous les modèles associés aux solutions. On se contentera de décrire brièvement les modèles adaptés à la description des solutions solides et liquides des alliages.

Pour simplifier l'exposé, on considérera des alliages binaires A-B. Lorsqu'on mélange  $X_A$  moles de A et  $X_B$  de B, l'énergie libre du système passe d'une valeur  $G_1$ , correspondant aux

composants non mélangés à une valeur  $G_1$  correspondant au mélange. La différence entre ces deux valeurs est appelée « énergie libre de mélange » :

$$\Delta G_m = G_2 - G_1 = \Delta H_m - T\Delta S_m \quad (2.6)$$

Où  $\Delta H_m$  et  $\Delta S_m$  sont l'enthalpie et l'entropie de mélange. Quand l'énergie libre de mélange est négative, il y a possibilité de mélange.

Dans le cas des solutions idéales,  $\Delta H_m$  est nulle et l'entropie de mélange est équivalente à l'entropie de configuration. Celle-ci est déterminée en supposant que les atomes A et B sont distribués au hasard sur l'ensemble des sites disponibles (A + B) :

$$\Delta S_{mid} = -R (X_A \ln(X_A) + X_B \ln(X_B)) \quad (2.7)$$

$$X_A + X_B = 1$$

À l'exception des solutions substitutionnelles d'atomes ayant des dimensions très proches, le comportement de la majorité des solutions est non idéal. L'énergie libre d'excès donne la différence entre l'énergie libre de mélange de la solution et celle d'une solution idéale,  $\Delta G_{mid}$  :

$$\Delta G_E = \Delta G_m - \Delta G_{mid} = \Delta G_m - T\Delta S_{mid} \quad (2.8)$$

Dans le cas des solutions substitutionnelles ne s'écartant pas trop de l'idéalité (cas d'une bonne partie des alliages métalliques binaires peu concentrés) l'enthalpie d'excès peut être décrite par le développement de Redlich-Kister [98] :

$$\Delta G^E = X_A X_B \sum_{r=0}^n (X_A - X_B) L_{AB}^r (T) \quad (2.9)$$

avec

$$L_{AB}^r (T) = A_{AB}^r + B_{AB}^r$$

Où  $A_{AB}^v$  et  $B_{AB}^v$  sont deux coefficients dépendant de la température

Si on ne considère que le premier terme, cette relation peut être vue comme une extension de la théorie des solutions régulières.

#### **2.1.3.2.1 RÉSULTAT DE LA MODÉLISATION**

Dans la partie riche en aluminium, la modélisation des phases Al liquide, Al cfc et Si diamant ainsi que des composés  $Mg_2Si$  et  $NiAl_3$  est nécessaire à la modélisation des diagrammes de phase des systèmes Al-Si-Ni et Al-Si-Ni-Mg. Les énergies libres des composés  $Mg_2Si$  et  $NiAl_3$  ont été modélisées en utilisant la relation 2.5 trouvée dans la banque de donnée "Themochemical Database for Light Metals" [99]. Les phases solides et liquides ont été modélisées à partir des données binaires. Les binaires Al-Si, Al-Mg, Mg-Si et Mg-Ni ont également été pris d'après la banque de données citée précédemment. L'optimisation de ces diagrammes est assez bien établie et est en bon accord avec les diagrammes de phases expérimentaux [100]. Les diagrammes de phases optimisés Al-Ni et Ni-Si ont été pris respectivement d'après les travaux de Ansara et Dupin [101] et de Mey [102]. Notons que, le diagramme Ni-Si de Mey [102] ne tenant pas compte des phénomènes magnétiques associés au nickel, les coefficients thermodynamiques donnés par cet auteur ne sont valables qu'entre 298.15 et 450K et entre 800 et 3200K. Dans le cadre de notre étude, l'objectif étant de modéliser le système Al-Ni-Si-Mg pour des quantités relativement faibles de nickel, ceci n'est pas très problématique. Des données plus récentes [103] tenant compte des phénomènes magnétiques dans le système Ni-Si, sont également disponibles. Cependant les données relatives aux phases Ni liquide et Ni (cfc), seules phases d'intérêt dans la présente étude, ne sont pas concluantes.

Pour nous assurer de l'exactitude des données thermodynamiques utilisées, nous avons reproduit les diagrammes binaires associés au système ternaire Al-Si-Ni (voir annexe A) en insérant les données optimisées, trouvées dans la littérature, dans les programmes Solution.Dos et Compound du logiciel F\*A\*C\*T. Tous les diagrammes ont été reproduits fidèlement, à l'exception du diagramme Al-Ni, où nous avons considéré tous les composés comme stoechiométriques. Le liquidus ainsi que la phase cfc de ce système, phase d'intérêt pour notre étude, ont été néanmoins reproduits fidèlement (voir annexe A).

Nous avons également utilisé le programme Solution pour décrire le liquidus et la phase cfc du système ternaire Al-Si-Ni. Les résultats obtenus pour 2% de Ni et 2% de Si sont donnés sur la figure 2.10 a et b. Le liquidus est en bon accord avec les résultats expérimentaux. La température et la composition de l'eutectique prédites sont respectivement de 569.7°C et 86%Al, 11.869%Si et 2.1244%Ni, ce qui est également en bon accord avec les valeurs expérimentales (voir 2.2.3.1.2). On peut noter cependant une déviation de la surface de précipitation secondaire associée à la phase  $\text{NiAl}_3$ .

Afin de vérifier la partie du diagramme expérimental en désaccord avec la modélisation, nous avons élaboré des alliages Al-6%Si-2%Ni (%massique) sur lesquels nous avons réalisé des essais de DSC. Un résultat représentatif des essais réalisés est donné sur la figure 2.11. Les courbes de DSC obtenues au chauffage indiquent la présence d'un eutectique ternaire autour de 575°C, d'un eutectique binaire à 582°C et d'un liquidus à 616°C. Ce dernier est en très bon accord avec le liquidus du diagramme expérimental (voir figure 2.8.b). La température de l'eutectique binaire mesurée est supérieure à la température de l'eutectique du binaire Al-Si (577°C). Ce résultat semble indiquer que l'eutectique binaire qui se forme est l'eutectique associé à la phase  $\text{NiAl}_3$ , ce qui est aussi en accord avec le diagramme modélisé. En effet, celui-

ci indique la présence d'un eutectique binaire Al-NiAl<sub>3</sub> à 586°C (voir figure 2.11). Il est cependant difficile de conclure car le comportement enregistré au refroidissement est très différent de celui enregistré au chauffage.

Plusieurs sources d'erreurs peuvent expliquer la déviation enregistrée. Celle-ci peut être due au fait que nous n'avons pas intégré de termes ternaires dans les termes d'enthalpies d'excès. Une autre source d'erreur peut être liée au fait que nous avons utilisé des données relatives au système Ni-Si dans la partie riche en nickel pour modéliser le système Al-Ni-Si dans la partie riche en aluminium. Il est évident qu'au vu de ces remarques, une optimisation plus poussée des données utilisées est nécessaire. Notons néanmoins que l'écart que nous avons enregistré est de l'ordre des incertitudes expérimentales. Notons également, que nous avons été en mesure de reproduire les valeurs expérimentales correspondant à 2% de nickel (figure 2.12), à partir des résultats de modélisation obtenus pour 1% de nickel.

Nous avons également utilisé le programme Solution pour décrire le système Al-Ni-Si-Mg. Les valeurs de liquidus prédites, correspondant aux compositions des composites, sont en très bon accord avec les valeurs mesurées en DSC. Par contre les valeurs correspondant à la précipitation binaire et ternaire diffèrent légèrement. Aucun diagramme expérimental n'est disponible pour comparer de manière significative les résultats de la modélisation. Nous avons cependant reporté, à titre d'exemple, sur la figure 2.13 les résultats de modélisation à 1%Ni et 0.4%Mg. On peut retrouver sur celle-ci, les séquences de cristallisation décrites en 2.1.2. La température de l'eutectique quaternaire est d'environ 560°C.

La modélisation du diagramme de phase de la matrice des composites à l'étude nous a permis de déterminer la relation entre la fraction solide et la température dans la zone semi-

solide. Les résultats sont reportés sur la figure 2.14. Pour fin de comparaison, nous avons également reporté la fraction solide calculée à partir de l'équation de Scheil [104] :

$$f_s = 1 - \left( \frac{T_f - T}{T_f - T_l} \right)^{\frac{1}{K-1}} \quad (2.10)$$

Où  $T_f$  est la température du métal pur (l'aluminium dans notre cas)

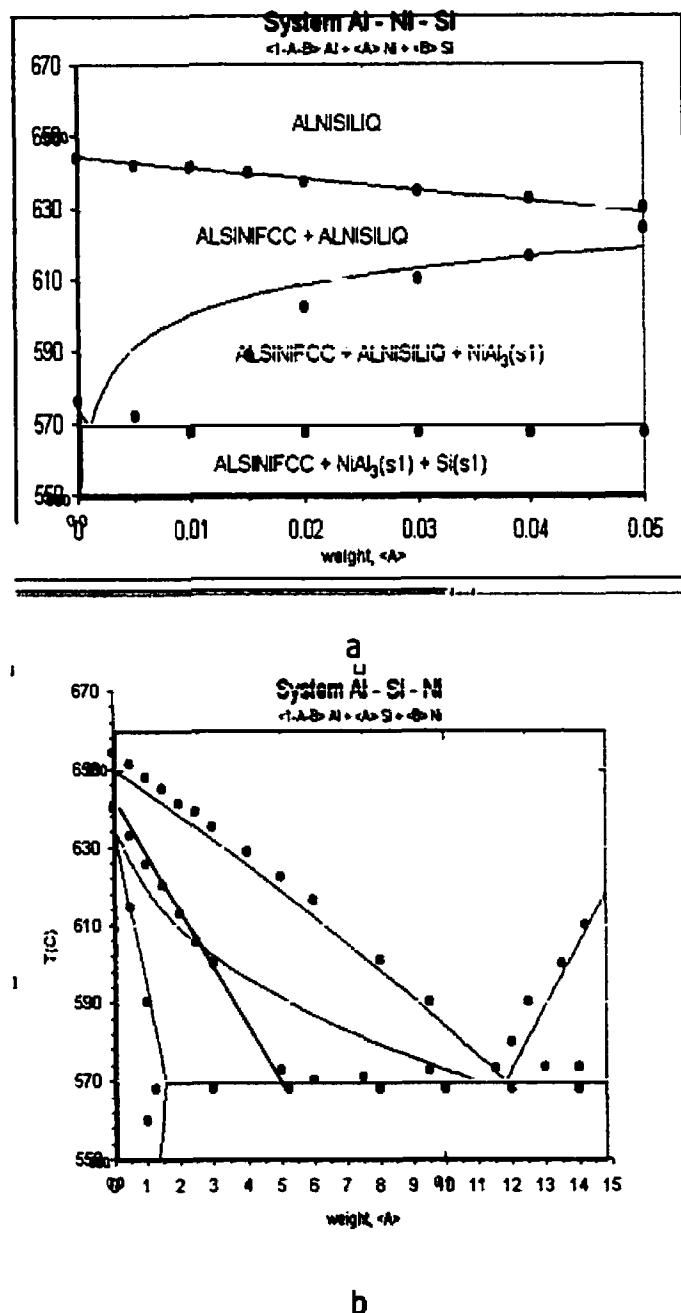
$T_l$  est la température du liquidus

$K$  est le coefficient de partage ( $K=C_s / C_l$ )

$C_s$  est la composition du solide

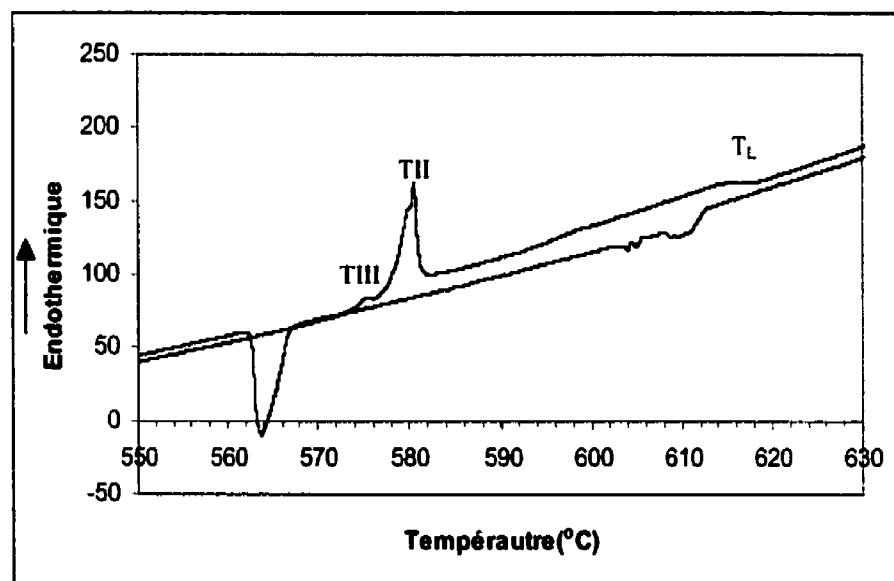
$C_l$  est la composition du liquide

Il est bien connu que cette équation, qui considère le cas limite d'une diffusion négligeable à l'état solide et complète à l'état liquide, fournit une approximation raisonnable de la fraction solide à l'intérieur de la zone semi-solide. Dans le cas présent, la fraction solide selon l'équation de Scheil a été calculée en considérant le coefficient de partage du diagramme binaire Al-Si ( $K=0.14$ ) et les températures des liquidus expérimentaux (tableau 2.2).



**Figure 2.10 : Comparaison des diagrammes de phases calculés avec F\*A\*C\*T et des données expérimentales (figures 2.8.a et 2.9.a).**

a) diagramme Al-Si-Ni pour 2%Si, b) diagramme Al-Si-Ni pour 2%Ni

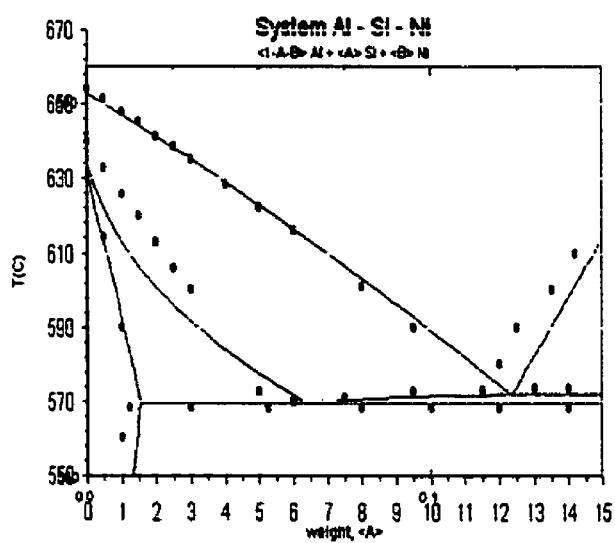


**Figure 2.11: Essai de DSC : Alliage Al-6%Si-2%Ni**

Courbe supérieure : Comportement au chauffage

Courbe inférieure : Comportement au refroidissement

(T<sub>L</sub>=Température du liquide, T<sub>II</sub>=température de l'eutectique binaire, T<sub>III</sub>=Température de l'eutectique ternaire)



**Figure 2.12 : Modélisation du diagramme expérimental Al-Si-2%Ni à partir  
du diagramme calculé avec 1%Ni**

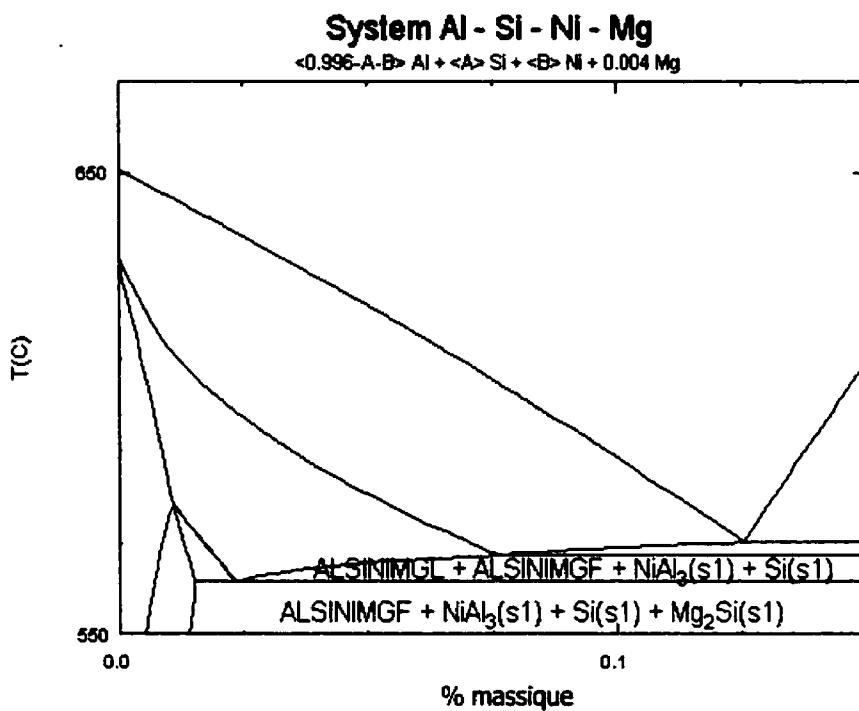
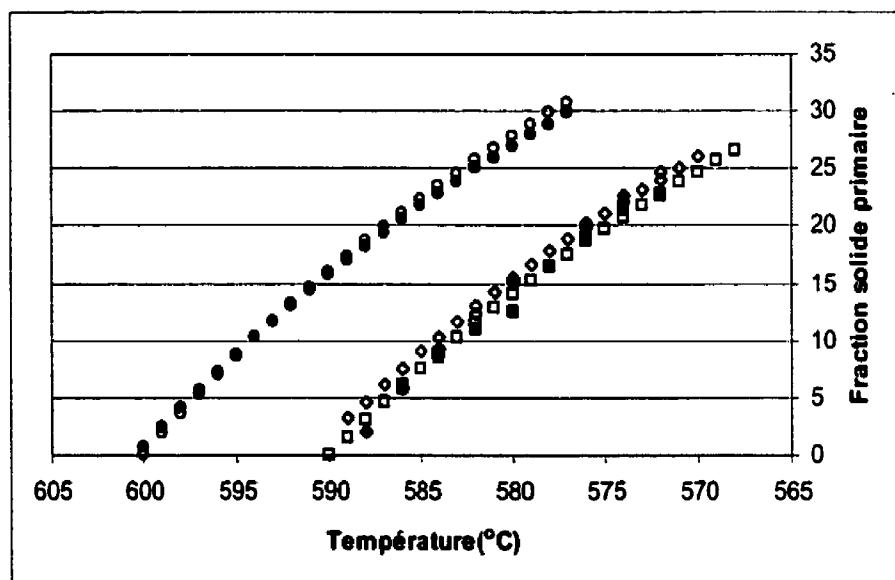


Figure 2.13 : Diagramme de phase Al-Si-Ni-Mg calculé pour 1%Ni et 0.4%Mg

Matériaux	TL (mesurée)	TL (calculée)
10S4G	592	594
6S3G	600	599
5A3G	590	589
A356	614	-----

Tableau 2.2 : Comparaison des températures des liquidus mesurés et calculés



**Figure 2.14 : Détermination de la fraction solide de phase primaire dans la zone semi-solide**

Composite 6S3G : ● Règle des bras de leviers (diagramme modélisé), ○ Équation de Scheil  
Composite 10S4G : ◆ Règle des bras de leviers (diagramme modélisé), ◇ Équation de Scheil  
Composite 5A3G : ■ Règle des bras de leviers (diagramme modélisé), □ Équation de Scheil

## 2.2 APPAREILLAGES ET PROCÉDURES EXPÉRIMENTALES

Comme on l'a déjà souligné, les appareils les plus couramment utilisés pour caractériser la rhéologie des gelées semi-solides des alliages et des composites sont les viscosimètres. Dans la partie qui suit, on se propose de présenter les viscosimètres utilisés dans la présente étude ainsi que le mode d'exploitation des résultats obtenus par ces techniques.

### 2.2.1 LES VISCOSIMÈTRES À AGITATEURS

#### 2.2.1.1 LE VISCOSIMÈTRE

Les mesures de viscosité à l'état liquide ainsi qu'une partie des mesures à l'état semi-solide ont été réalisées par l'intermédiaire d'un viscosimètre de marque Haake RV12 (figure 2.13). Celui-ci est composé essentiellement de deux éléments. Le premier élément est le contrôleur de vitesse qui permet d'atteindre des vitesses de rotation de 0.01 à 512 tours/min. La vitesse peut être maintenue constante ou peut être variée grâce à un programmeur (PG142) associé au contrôleur de vitesse. Le deuxième élément est composé du moteur qui entraîne l'axe de l'agitateur, et du capteur de couple qui permet une mesure de couple allant de 0 à 4.9 N.cm. La mesure du couple se fait par l'intermédiaire d'un ressort de torsion calibré dont l'angle maximum de torsion est de 0.5° lorsqu'il est soumis au couple maximum. L'angle de torsion est directement proportionnel au couple et est transformé par un capteur magnétique en un signal électrique proportionnel variant de 0 à 5 volts. Celui-ci peut être acheminé à l'unité de contrôle du viscosimètre ou à un système extérieur.

Les matériaux dont on veut mesurer la viscosité sont placés à l'intérieur d'un creuset en

graphite et sont chauffés par l'intermédiaire d'un four à résistance composé de trois zones indépendantes. Le contrôle de température se fait grâce à trois thermocouples insérés respectivement au milieu de la zone centrale du four, au bas de la zone supérieure du four et en haut de la zone inférieure du four. La prise de température se fait par l'intermédiaire de deux thermocouples placés dans la paroi du creuset très près du fond et de la surface du bain. Le creuset est logé dans un support contenant une encoche de manière à être maintenu stationnaire lors du cisaillement. La longueur "creuset + support" a été déterminée de façon à ce que l'échantillon se trouve dans la zone centrale du four où la température est homogène. Dans cette configuration, les thermocouples de mesure indiquent un accord en température de l'ordre de 1°C entre le fond et la surface du bain.

Pendant un essai, le mélange liquide ou semi-solide ainsi que les creusets en graphite sont protégés de l'oxydation par un flux d'argon introduit par le bas du four, lequel est fermé à sa surface.

La vitesse de rotation, le couple de torsion ainsi que la température sont enregistrés en continu grâce à un système de contrôle et d'acquisition de données ("Wb-workmate") couplé à un micro-ordinateur. Ce système, couplé au logiciel "Workbench" à également servi à contrôler la température du four trois zones.

### **2.2.1.2 CHOIX DES CREUSETS ET DES AGITATEURS**

Comme on l'a déjà souligné, une bonne dispersion des particules au sein des suspensions est primordiale lorsque l'on réalise des mesures rhéologiques. C'est dans ce schéma de pensée

que nous avons sélectionné les agitateurs dans la présente étude. Deux types d'agitateurs ont retenu notre attention.

Le premier agitateur a une forme cylindrique avec une rainure hélicoïdale (voir figure 2.16). Ce type d'agitateur a déjà été utilisé pour caractériser la rhéologie de composites à matrice d'aluminium renforcés par des particules de carbure de silicium [72,75] et s'est avéré efficace pour minimiser les effets de glissement et de sédimentation des particules de renfort. Les matériaux à l'étude ont été brassés avec cet agitateur dans des creusets en graphite dont les dimensions sont données sur la figure 2.16. La configuration géométrique "Creuset + Agitateur" a été choisie de façon à maximiser la vitesse de cisaillement. Comme on le verra plus loin, celle-ci est d'autant plus élevée que l'espace annulaire entre l'agitateur et le creuset est faible. Dans le cas des composites, un compromis doit être néanmoins réalisé à cause de la présence des particules de renfort. Ceci est d'autant plus vrai que les particules sont grosses. Dans le cas des mesures à l'état liquide, les creusets ont été munis de chicanes (voir figure 2.16) pour éviter la formation de vortex. À l'état semi-solide, les viscosités étant suffisamment élevées, nous avons utilisé des creusets sans chicane.

Un agitateur à ruban hélicoïdal (figure 2.17) a également été utilisé. Cet agitateur a été conçu essentiellement pour élaborer des billettes rhéocoulées. En effet, il permet d'assurer une bonne qualité de suspension, à cause d'un pompage axial, en plus de minimiser les pertes de matières lorsqu'on retire celui-ci. Notons cependant que nous avons été limités à des billettes rhéocoulées à 35% de fraction solide primaire du fait qu'au-delà, nous avons atteint les limites du viscosimètre. Nous avons également utilisé cet agitateur pour mesurer les viscosités à l'état liquide. Cette démarche avait pour but d'évaluer l'influence de la configuration géométrique du viscosimètre sur la viscosité des suspensions à l'étude.

Notons enfin que les deux types d'agitateurs sont en acier inoxydable et ont été oxydés de manière à les protéger de l'attaque par l'aluminium fondu.

Pour alléger les notations, dans tout l'exposé, les configurations "Creuset sans chicane + Agitateur rainuré", "Creuset avec chicane + Agitateur rainuré" et "Creuset sans chicane + Agitateur à ruban hélicoïdal" sont dénotées respectivement Viscosimètre I, II et III.

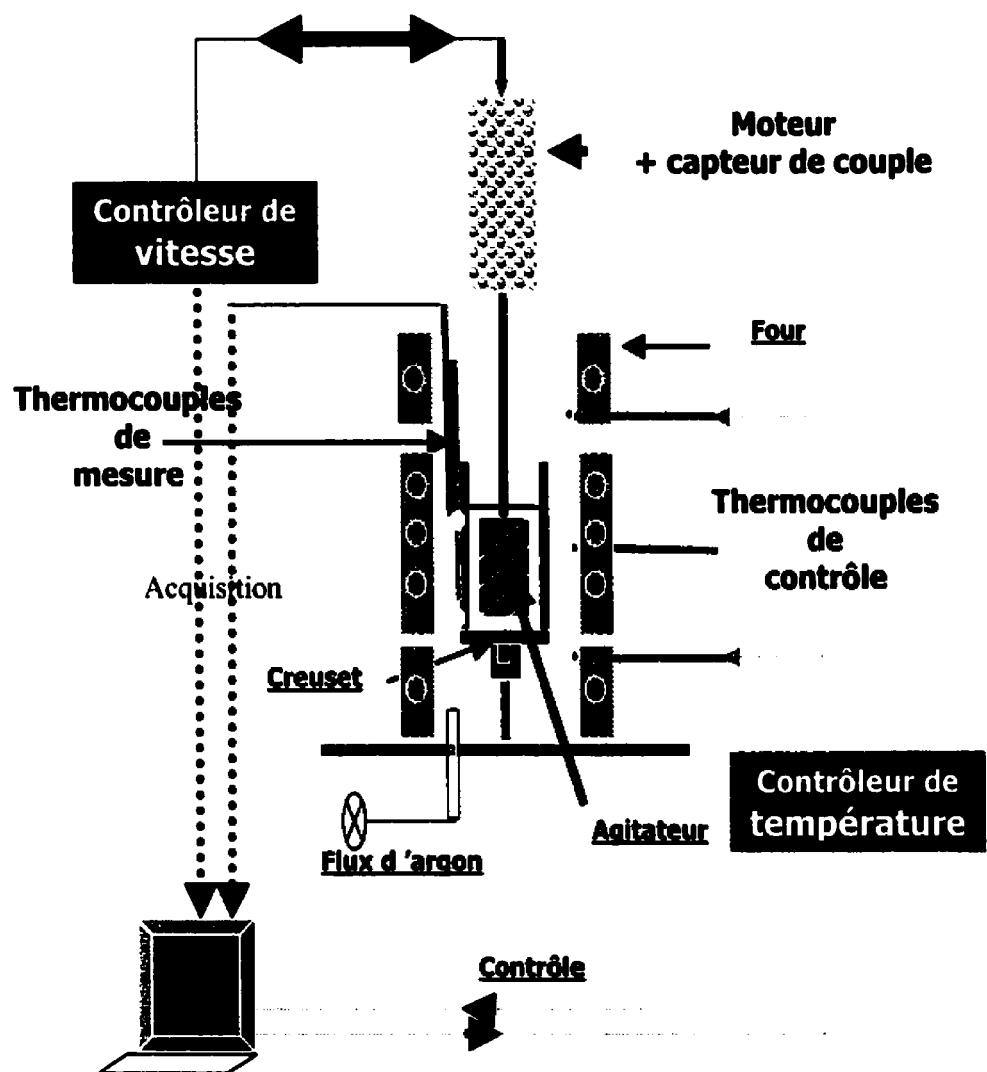
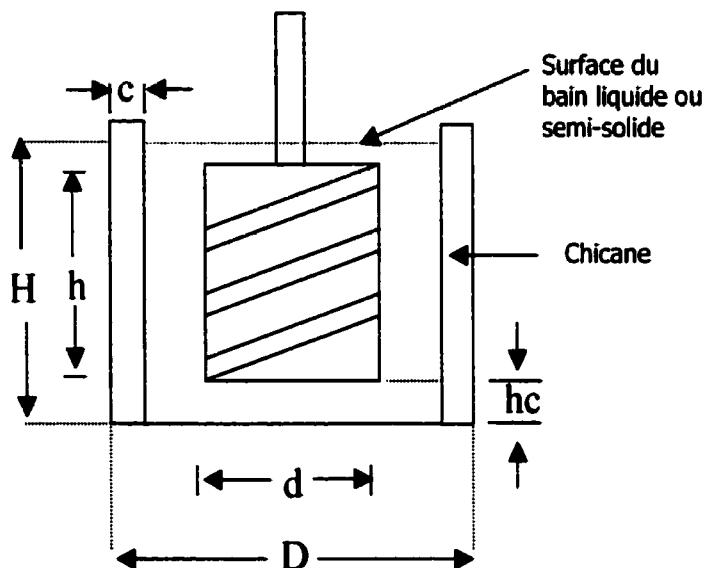
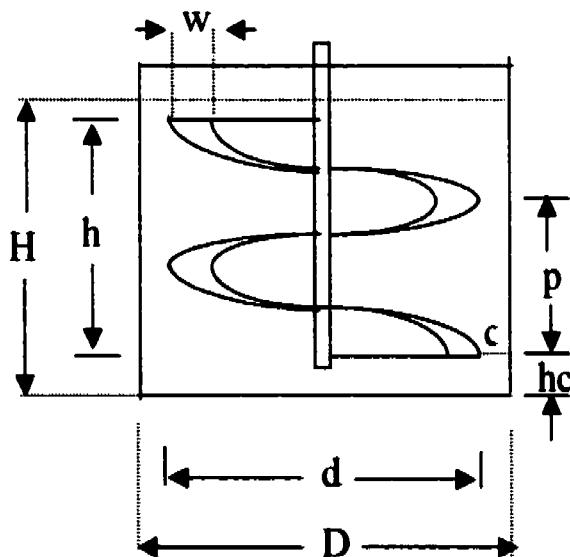


Figure 2.15 : Représentation schématique des viscosimètres



**Figure 2.16 : Agitateur cylindrique**

$d=25\text{mm}$ ,  $D=41\text{mm}$   
 $h_c=8\text{mm}$ ,  $c/D=0.1$   
 $h=50\text{mm}$ ,  $H=58\text{mm}$   
( $c=0$  pour les mesures à l'état semi-solide)



**Figure 2.17 : Agitateur à ruban hélicoïdal**

$d=50\text{mm}$ ,  $D=57\text{mm}$   
 $h_c=6\text{mm}$ ,  $c=3\text{mm}$   
 $h=52\text{mm}$ ,  $H=60\text{mm}$ ,  $P=35\text{mm}$

### 2.2.1.3 MÉTHODES D'EXPLOITATION DES RÉSULTATS

#### 2.2.1.3.1 MÉTHODE DE CALIBRATION

La calibration consiste à mettre en corrélation le couple mesuré par le viscosimètre à la viscosité du matériau à l'étude. Ceci est rendu possible en utilisant les nombres adimensionnels de puissance  $P_0$  et de Reynolds  $Re$ , définis par :

$$P_0 = \frac{P}{\rho \Omega^3 r_a^5} = \frac{C}{\rho \Omega^2 r_a^5} \quad (2.11)$$

$$Re = \frac{\rho \Omega r_a r_c}{\eta} \quad (2.12)$$

Où  $P$ ,  $\Omega$ ,  $r_a$ ,  $r_c$  et  $\rho$  sont respectivement la puissance nécessaire pour cisailler le fluide, la vitesse de rotation de l'agitateur, le rayon de l'agitateur, le rayon du creuset et la densité du fluide.

En effet, il existe une relation entre ces deux nombres :

$$P_0 = K(Re)^a \quad (2.13)$$

Où  $K$  et  $a$  sont des constantes qui dépendent de la géométrie de l'agitateur.

Pratiquement, l'appareillage est calibré à partir de fluides newtoniens de viscosités connues et des relations 2.11 et 2.12. En effet, la relation 2.11 permet de déterminer expérimentalement le nombre de Puissance, la relation 2.12 donne le nombre de Reynolds, ce qui nous permet de déterminer la relation 2.13. Une fois l'appareillage calibré, les valeurs de viscosité sont déterminées grâce aux relations 2.11 et 2.13. En effet la relation 2.11, tout comme précédemment, permet de déterminer expérimentalement le nombre de puissance, la

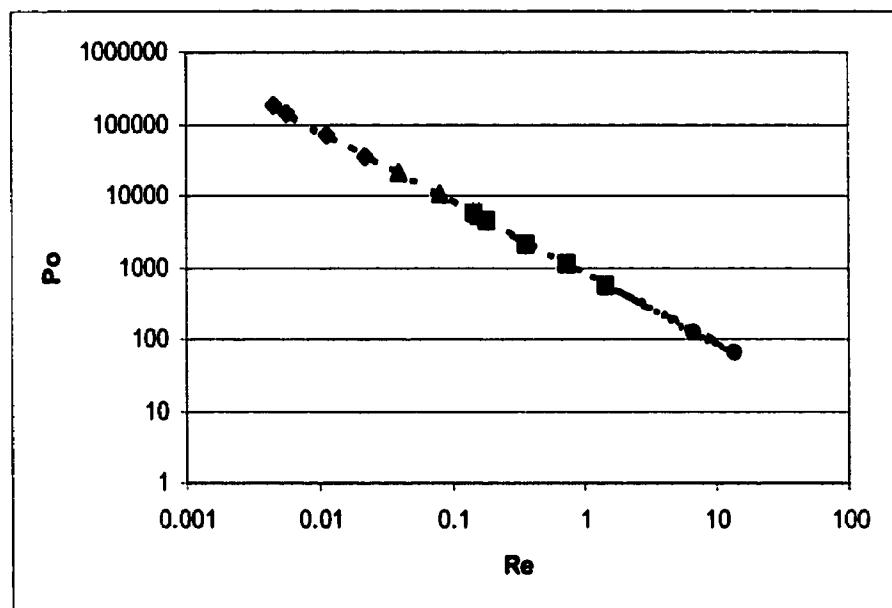
relation 2.13 donne le nombre de Reynolds ce qui permet de calculer la viscosité par la relation 2.12.

L'appareillage a été calibré à partir d'huiles standards de viscosités et de densités connues (voir tableau 2.3). Ces huiles ont été choisies de manière à couvrir l'étendue des viscosités généralement rencontrées quand on étudie la rhéologie des gelées semi-solides de composites à matrice métallique. Les résultats de la calibration sont donnés sur les figures 2.18 et 2.19. Les coefficients K et a de la relation 2.11 sont reportés dans le tableau 2.4.

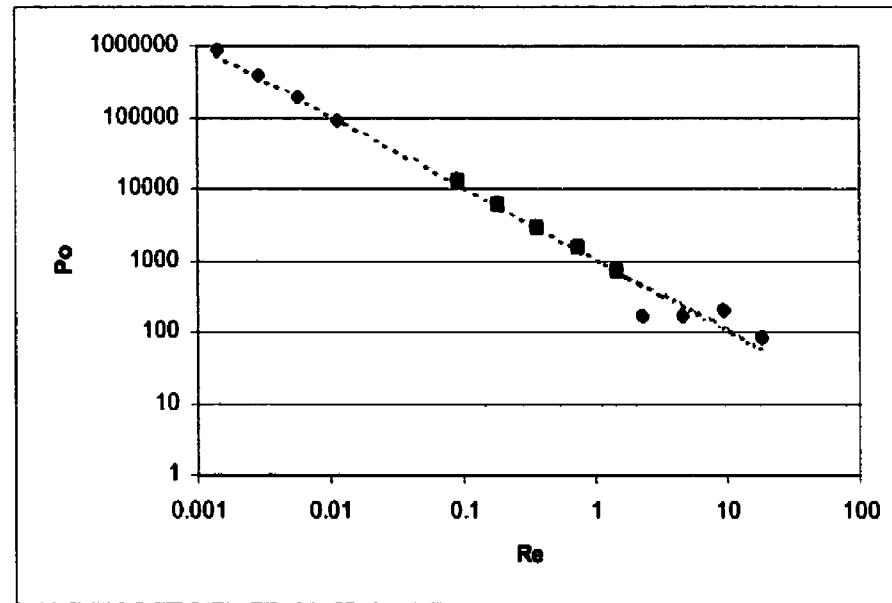
T(°C)	HUILES	SYMBOLES	VISCOSITÉ (mPa.s)	DENSITÉ (g/mL)
25	S60	•	102.1	0.8626
	S600	■	1366	0.8888
	S8000	◆	21300	0.8866
40	S60	-	46.02	0.8532
	S8000	▲	5998	0.8784

**Tableau 2.3 : Caractéristiques des huiles de calibration**

(les symboles correspondent aux symboles donnés sur les graphiques 2.16 et 2.17)



a)



b)

**Figure 2.18 : Courbe de calibration du viscosimètre à agitateur cylindrique**

a) Creuset sans chicane (Viscosimètre I)

b) Creuset avec chicanes (Viscosimètre II)

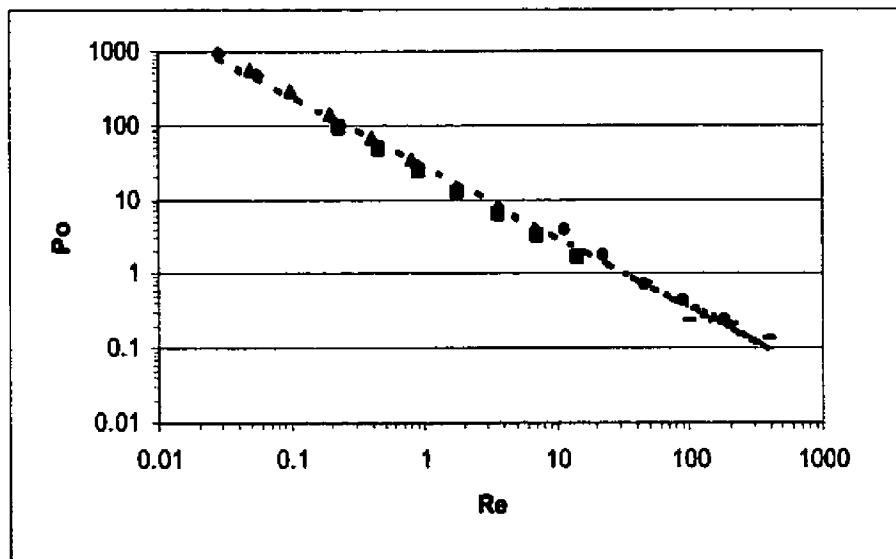


Figure 2.19 : Courbe de calibration du viscosimètre à agitateur à ruban hélicoïdal

(Viscosimètre III)

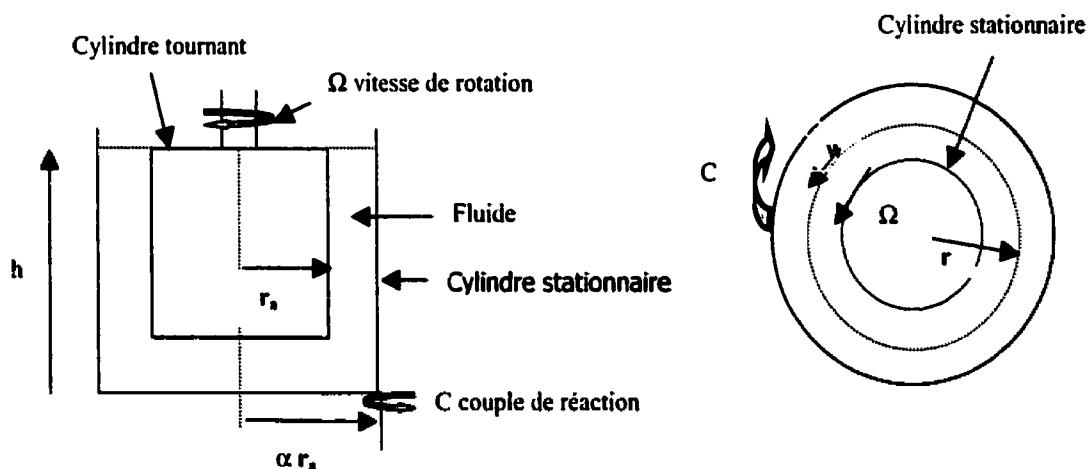
VISCOSIMÈTRE	K	a
I	842.3	-0.995
II	1054.7	-1.008
III	27.6	-0.943

Tableau 2.4 : Corrélation entre les nombres de Puissance et le nombre de Reynolds

### 2.2.1.3.2 DÉTERMINATION DE LA VITESSE DE CISAILLEMENT DANS L'ESPACE ANNULAIRE DES VISCOSIMÈTRES

#### 2.2.1.3.2.1 CAS DE L'AGITATEUR CYLINDRIQUE

Dans le cas des viscosimètres I et II, nous avons déterminé la vitesse de cisaillement en supposant que l'agitateur est cylindrique et lisse:



**Figure 2.20 : Représentation schématique du principe de calcul de la vitesse de cisaillement dans l'espace annulaire des viscosimètres I et II**

Ceci est justifié par le fait que l'exposant de  $Re$  est très proche de  $-1$ . Dans ce cas, pour déterminer l'évolution de la vitesse de cisaillement dans l'espace annulaire, il faut commencer par établir la relation qui existe entre la vitesse de rotation  $\Omega$  et le couple de réaction  $C$ . Pour cela, calculons la force de cisaillement  $F(r)$  qui s'exerce sur une enveloppe cylindrique de rayon  $r$  (voir figure 2.20). La force de cisaillement  $F(r)$  est reliée au couple  $C$  et à la contrainte tangentielle  $T(r)$  par la relation :

$$C = rF(r) = 2\pi r^2 h \tau(r)$$

soit :

$$\tau(r) = \frac{C/h}{2\pi r^2}$$

Au rayon  $r$  la vitesse linéaire est reliée à la vitesse angulaire par la relation  $u=r\omega$  et la vitesse de cisaillement est donc donnée par :

$$\dot{\gamma}(r) = r \frac{dw}{dr} = f \left[ \frac{C/h}{2\pi r^2} \right] \quad (2.14)$$

en supposant un fluide pouvant être décrit par une relation d'écoulement du type.

La relation 2.14 peut être réarrangée de la façon suivante :

$$w = \int_r^{ar_a} f \left( \frac{C/h}{2\pi r^2} \right) dr$$

Et est résolu en supposant une adhérence parfaite aux parois, c'est à dire les conditions aux limites suivantes :

$$r = r_a \quad U = r_a \Omega$$

$$r = \alpha r_a \quad U = 0$$

En supposant un fluide newtonien, c'est à dire une loi d'écoulement du type  $f(\tau) = \tau/\eta$  où  $\eta$  est la viscosité du fluide, on peut montrer que la vitesse de cisaillement apparente au niveau de l'agitateur est donnée par :

$$\dot{\gamma}(r_a) = \frac{2 \alpha^2}{\alpha^2 - 1} \Omega$$

En pratique, on utilise la vitesse de cisaillement moyenne, car La vitesse de cisaillement varie le long de la distance annulaire. On peut montrer que celle-ci est donnée par la relation :

$$\dot{\gamma}_{moy} = \frac{2 r_{arc}}{r_c^2 - r_c^2} \Omega = \frac{4\pi r_{arc}}{60(r_c^2 - r_c^2)} N \quad (2.15)$$

Où N est la vitesse de rotation en tours/min. En remplaçant par les valeurs de  $r_a$  et  $r_c$  données sur la figure 2.15 et avec  $N_{max}=512$  tours/min, la vitesse de cisaillement moyenne maximale est de  $104 \text{ s}^{-1}$  pour le viscosimètre I et de  $191 \text{ s}^{-1}$  pour le viscosimètre II.

### 2.2.1.3.2.1 CAS DE L'AGITATEUR À RUBAN HÉLICOÏDAL

Dans le cas des viscosimètres à agitateurs non cylindriques, Metzner et Otto [105] ont proposé une méthode pour déterminer la vitesse de cisaillement effective. D'après le concept de Metzner et Otto, la vitesse de cisaillement effective est proportionnelle à la vitesse de rotation de l'agitateur en régime d'écoulement laminaire :

$$\dot{\gamma}_{eff} = K_s N \quad (2.16)$$

Nous avons déterminé la constante de proportionnalité  $K_s$  de la relation 2.16 de manière expérimentale. Le principe de détermination consiste à évaluer la loi de comportement d'un fluide pseudoplastique à l'aide d'un viscosimètre coaxial à agitateur cylindrique. Nous avons choisi une solution de Xanthan. La Loi de comportement  $\eta = f(\dot{\gamma})$  de cette substance a été déterminée en évaluant les relations  $\eta = f(N)$  et  $\dot{\gamma} = g(N)$  par les mêmes méthodes que celles décrites en 2.2.1.3.1 et 2.2.1.3.2. La loi de comportement d'une solution de Xanthan (1%massique) obtenue avec un viscosimètre coaxial identique au viscosimètre I est reportée sur

la figure 2.21.a. En déterminant la loi de comportement  $\eta = f(N)$  à l'aide du viscosimètre à ruban hélicoïdal par la même méthode qu'en 2.1.3.1, on peut déterminer la relation :

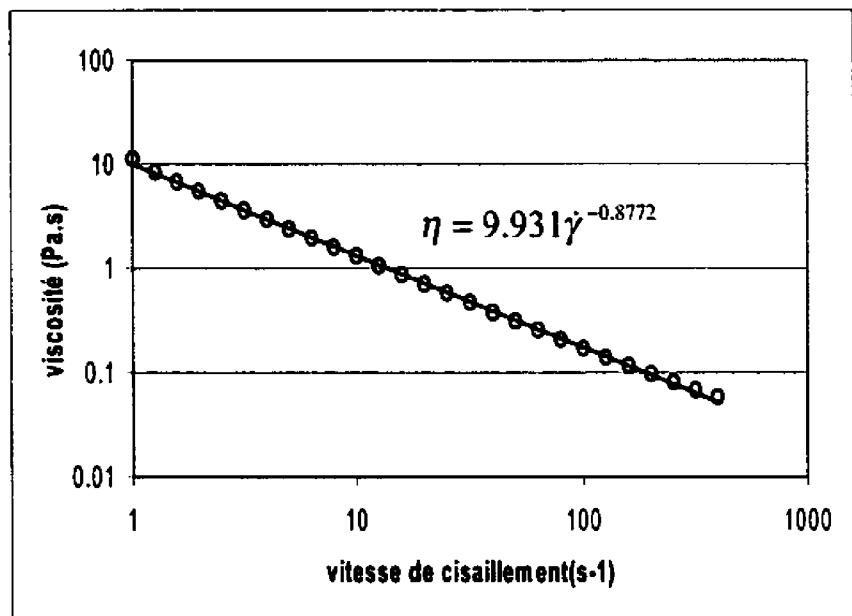
$$\dot{\gamma} = \left( \frac{\eta}{m} \right)^{\frac{1}{n'}}$$

où  $m$  et  $n'$  ( $n'=n-1$ ) sont les indices de la loi de puissance déterminés par le viscosimètre coaxial à agitateur cylindrique. Il suffit alors de tracer la courbe  $\dot{\gamma} = f(N)$  pour déterminer la constante  $K_s$ .

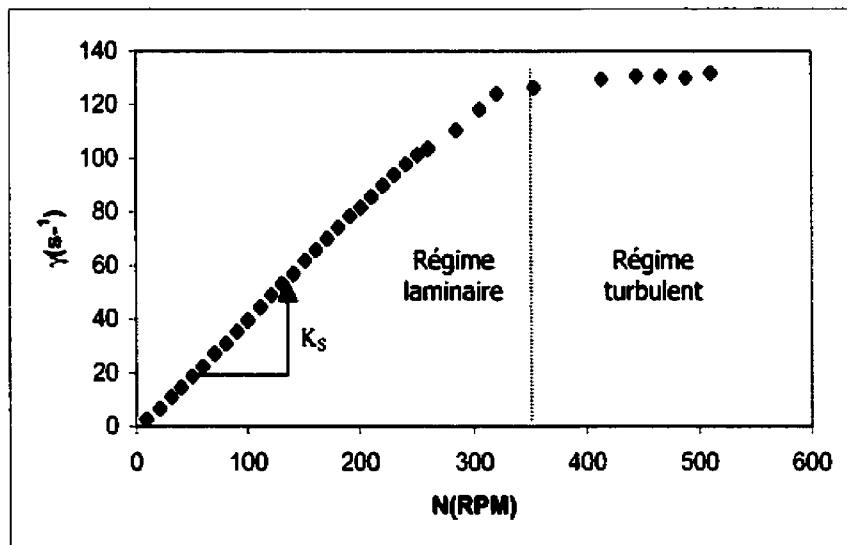
Les résultats sont reportés sur la figure 2.21.b. Nous pouvons remarquer que l'on obtient une droite pour des vitesses de rotation allant jusqu'à 400 RPM. Au-delà de cette valeur le régime n'est plus laminaire. Dans le régime laminaire, La pente de la droite  $\dot{\gamma} = f(N)$  donne  $K_s$ . Une valeur de  $K_s$  égale à 26 ( où 0.42 pour avoir  $\dot{\gamma}$  en s<sup>-1</sup>) a été trouvée. Ceci est en très bon accord avec la relation de Shamlou et Edwards [106] :

$$K_s = 34-114(c/d)$$

qui donne  $K=27.16$  pour  $c=3\text{mm}$  et  $d=50\text{mm}$ .



a)



b)

**Figure 2.21 : Détermination de  $K_s$**

a) Loi de comportement de la gomme Xanthan (donnée sur la figure)

b) Relation 2.16

#### 2.2.1.4 MODE OPÉRATOIRE

La rhéologie du composite GrA-Ni<sup>®</sup> 1054G a été étudiée à l'état liquide et à l'état semi-solide en refroidissement continu et en condition isotherme. Le composite 5A3G n'a été étudié qu'en refroidissement continu et l'alliage de base sans renfort (A356) a servi de référence. Les programmes de température et de vitesse associés à chaque type d'expérience sont schématisés sur la figure 2.22.

Dans le cas de l'expérience à l'état liquide, le composite est porté à une température supérieure à la température du liquidus, puis il est brassé en condition isotherme à vitesse de rotation maximum (512 tours/min) pendant 10 minutes pour s'assurer d'une bonne mise en suspension des particules, l'échantillon est alors laissé au repos pendant 5 minutes et est brassé à différentes vitesses de cisaillement. Quatre vitesses de cisaillement ( $104\text{s}^{-1}$ ,  $52\text{s}^{-1}$ ,  $26\text{s}^{-1}$ ,  $13\text{s}^{-1}$ ) et deux températures ( $650^\circ\text{C}$ ,  $735^\circ\text{C}$ ) ont été sélectionnées. Chaque essai a été réalisé avec un nouvel échantillon et à la fin de chaque essai, l'échantillon a été trempé pour analyse microstructurale.

Dans le cas de l'expérience à l'état semi-solide en refroidissement continu, le composite est porté à une température supérieure à celle du liquidus où il est brassé en condition isotherme à vitesse de rotation maximum pendant 10 minutes pour les mêmes raisons que celles citées précédemment. L'échantillon est alors refroidit à taux constant (fixé à  $1^\circ\text{C}/\text{min}$  pour la majorité des essais) du liquidus jusqu'à la température de l'eutectique et est brassé à vitesse constante. Quatre vitesses de cisaillement ( $104\text{s}^{-1}$ ,  $52\text{s}^{-1}$ ,  $26\text{s}^{-1}$ ,  $13\text{s}^{-1}$ ) ont été sélectionnées, chaque essai a été réalisé avec un nouvel échantillon et certains essais ont été interrompus dans la zone semi-solide de façon à tremper l'échantillon pour analyse microstructurale.

Deux types d'essais en condition isotherme ont été réalisés :

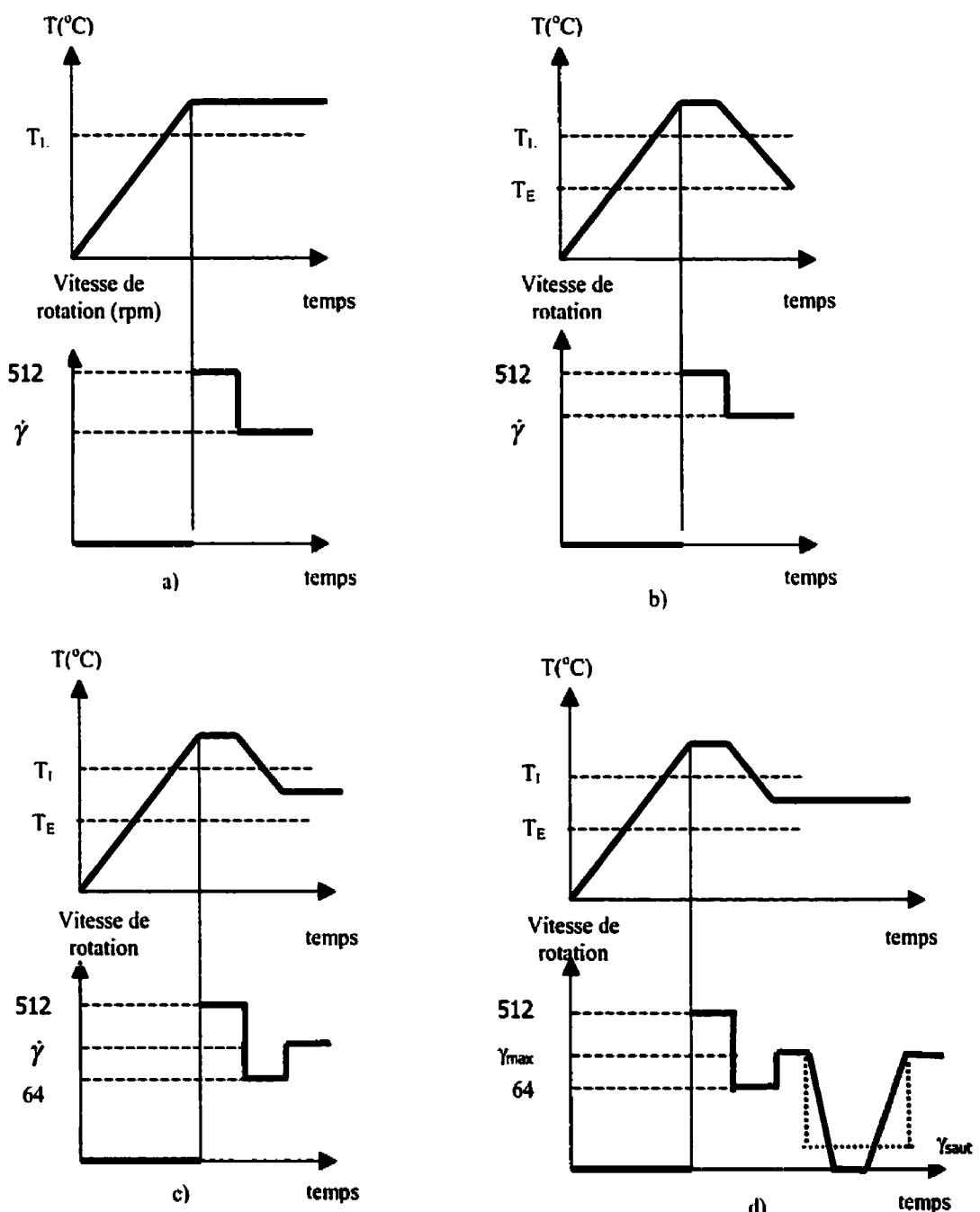
Dans la première série d'essais, dit « essais en condition isotherme et stationnaire », l'échantillon est d'abord brassé en refroidissement continu (taux de refroidissement 2°C/min) et à une vitesse de cisaillement de 64 tours/minute jusqu'à une température choisie dans l'intervalle semi-solide puis il est brassé en condition isotherme et à une vitesse de cisaillement constante. Pour chaque essai le matériau est laissé au repos 10 minutes avant le cisaillement isotherme de façon à fixer un état de référence. Quatre vitesses de cisaillement ( $104\text{s}^{-1}$ ,  $52\text{s}^{-1}$ ,  $26\text{s}^{-1}$ ,  $13\text{s}^{-1}$ ) et trois fractions solides primaires (16%, 22%, 30%) ont été sélectionnées. Chaque essai a été réalisé avec un nouvel échantillon et à la fin de chaque essai l'échantillon a été trempé pour fin d'analyse microstructurale.

Dans la deuxième série d'essais, dit « essais en condition isotherme et transitoire », l'échantillon est d'abord brassé en continu depuis le liquidus à une vitesse de cisaillement constante jusqu'à la température d'essai, où la vitesse de cisaillement varie soit selon un cycle partant de zéro et revenant à zéro en un temps variable (cycles d'hystéresis) soit brutalement par saut ("Step change"). Dans le cas des essais de "Step change", avant le saut brutal de vitesse de cisaillement, les échantillons sont brassés en condition isotherme jusqu'à ce qu'un équilibre soit atteint.

Les variables durant un cycle d'hystéresis sont : la vitesse initiale de cisaillement  $\dot{\gamma}_0$  (vitesse de brassage entre le liquidus et la température d'essais), le temps de montée  $t_1$  pour atteindre la vitesse de cisaillement maximale  $\dot{\gamma}_{\max}$ , la vitesse de cisaillement  $\dot{\gamma}_{\max}$  atteinte lors d'un cycle, le

temps de maintien  $t_m$  à  $\dot{\gamma}_{max}$ , le temps de descente  $t_d$  pour revenir à zéro et le temps de repos  $t_r$  à zéro.

Les variables durant un essai de "Step change" sont la vitesse de cisaillement initiale  $\dot{\gamma}_0$ , la vitesse de cisaillement en condition isotherme et la vitesse de cisaillement après le saut brutal  $\dot{\gamma}_{saut}$ .



**Figure 2.22 : Représentation schématique du mode opératoire**

a) essai à l'état liquide, b) essai en refroidissement continu

c) essai isotherme et stationnaire, d) essai isotherme et transitoire : - cycle d'hystéresis —

- "Step change" ....

## 2.2.2 LE VISCOSIMÈTRE À PLATEAUX PARALLÈLES

### 2.2.2.1 DESCRIPTION DU VISCOSIMÈTRE

Le viscosimètre à plateaux parallèles utilisé dans la présente étude est schématisé sur la figure 2.23. Dans un tel appareillage, les alliages et composites partiellement refondus sont écrasés entre deux plaques. Dans le cas présent, celles-ci sont faites d'un alliage de molybdène possédant de très bonnes propriétés mécaniques et de conductibilité thermique. Nous avons profité de ces caractéristiques pour utiliser les plaques de compression comme système de chauffage. Sur chacune des plaques, le chauffage est assuré par trois résistances chauffantes insérées à même celles-ci. Une bonne isolation des plaques combinée à une bonne disposition des cartouches de chauffage a permis d'assurer une température homogène sur toute la surface occupée par les éprouvettes de compression. La température de chacune des plaques est contrôlée (par l'intermédiaire du système de contrôle précédemment cité) par un thermocouple situé au niveau de la cartouche chauffante centrale. La mesure de la température des éprouvettes de compression est assurée par deux thermocouples situés très près des surfaces de compression et d'un thermocouple inséré à même les éprouvettes de compression. Ce dernier est retiré lorsque la compression débute.

Les essais de compression ont été réalisés à charge constante, en appliquant des poids calibrés sur un plateau relié, par un axe, au plateau de compression supérieur. L'ensemble "plateau + axe + plateau supérieur" est mobile tandis que le plateau de compression inférieur est fixe. L'axe mobile est guidé par huit roulements à billes linéaires assurant un déplacement sans friction. Au cours de l'essai de compression, le déplacement est mesuré par un capteur linéaire de déplacement dont le signal électrique est acheminé au système d'acquisition de

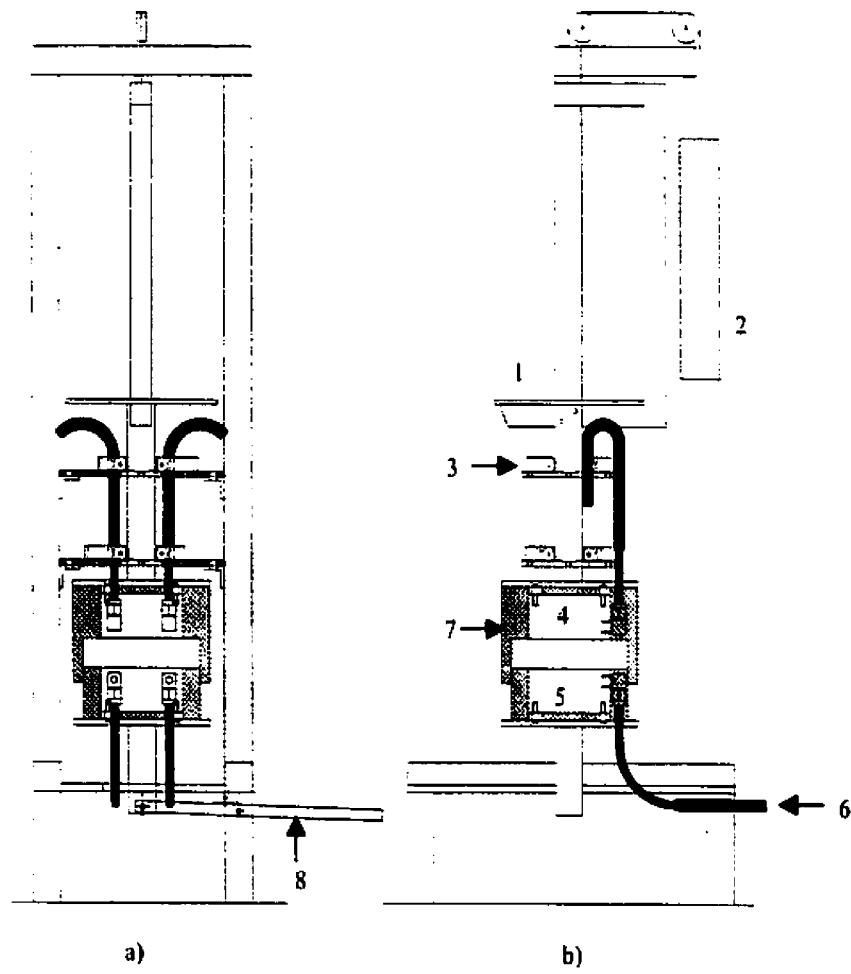
données. À la fin de chaque essai, les plaques sont refroidies par un circuit d'eau usiné à la surface de ces dernières. Le refroidissement est suffisamment rapide pour tremper les échantillons en dessous de l'intervalle de solidification.

### **2.2.2.2 CONDITIONS EXPÉRIMENTALES**

Les essais de compression ont été réalisés sur des éprouvettes cylindriques ( $\phi 25 \times 10\text{mm}$ ) des alliages et composites à l'état dendritique et rhéocoulé. Les éprouvettes dendritiques des composites ont été prélevées sur les billettes fournies ( $\phi 56 \times 60\text{mm}$ ) par la société INCO. Les éprouvettes rhéocoulées des composites ont été prélevées sur des billettes rhéocoulées ( $56 \times 60\text{mm}$ ) dans le réacteur à agitateur hélicoïdal. Des éprouvettes rhéocoulées, par brassage électromagnétique, de l'alliage A356 ont également été caractérisées. Celles-ci ont été fournies par le Laboratoire CNRC (Institut des Matériaux Industriels). Les éprouvettes de compression ont été refondues à cinq températures différentes ( $T= 575, 580, 585, 590, 595^\circ\text{C}$ ) et ont été écrasées sous des charges allant de 1 à 10kg. L'influence de la fraction solide et de la charge sur le comportement rhéologique a pu ainsi être étudiée. Notons enfin qu'au cours d'un essai, les éprouvettes de compression ainsi que les plaques sont revêtues d'une couche fine de graphite.

### **2.2.2.3 MÉTHODE D'EXPLOITATION DES RÉSULTATS**

Dans cette section, nous présenterons la résolution du problème de l'écoulement des fluides pseudoplastiques et newtoniens comprimés entre deux plateaux parallèles, tel que présenté dans la référence [63]. Notons que Mada [107] a également résolu ce problème, en incluant en plus une démarche qui permet de prendre en compte les fluides de Herschel-Bulkeley.



**Figure 2.23 : Schéma du viscosimètre à plateaux parallèles**

a) Vue de face, b) Vue de côté

- 1 : Plateau Poids
- 2 : Contre-Poids
- 3 : Guide (roulements à billes)
- 4 et 5: Plaques chauffantes et plateaux de compression
- 6 : Arrivé d'eau
- 7 : Isolant
- 8 : Système de levier

### 2.2.2.3.1 HYPOTHÈSE DE CALCUL ET CONDITIONS AUX LIMITES

Le problème de l'écoulement d'un échantillon cylindrique de hauteur  $h_0$  et de rayon  $R_0$  en compression entre deux plateaux parallèles (Figure 2.24) est résolu en considérant les hypothèses suivantes :

- 1) La vitesse selon l'axe de compression Z (voir figure 2.24) ainsi que toutes ses dérivées sont négligeables devant la vitesse selon l'axe radiale r ainsi que toutes ses dérivées (conditions de lubrification hydrodynamique)
- 2) L'écoulement est radial ( $V_\theta = 0$ ) et laminaire
- 3) Le fluide est incompressible

Et les conditions aux frontières :

- 1)  $Z = h/2$ :  $v_r(r, h/2) = 0$  (Contact collant)
- 2)  $z = 0$ :  $\frac{\partial v_r}{\partial z}(r, 0) = 0$ ,  $v_z = 0$  (Le problème est symétrique)
- 3)  $r = 0$ :  $v_r(0, z) = 0$
- 4)  $r = R$  :  $P(R) = P_0$  ( $R$  est le rayon de l'échantillon au temps  $t$ )

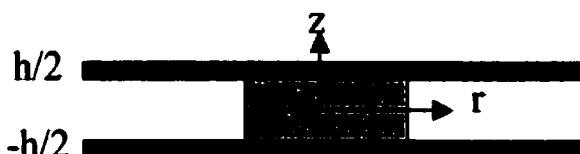


Figure 2.24 : Représentation schématique du test de compression

### II.2.3.2 RÉSOLUTION

Avec les hypothèses ci-dessus, les équations de mouvement et de continuité pour un fluide pseudoplastique, de loi de comportement :

$$\tau_{rz} = m\dot{\gamma}^n = \eta\dot{\gamma} = -m \left| \frac{\partial V_r}{\partial z} \right|^{n-1} \frac{\partial V_r}{\partial z} \quad (2.17)$$

ont la forme suivante :

- Équation de continuité :  $\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} (r V_r) + \frac{\partial V_z}{\partial z} = 0$  (2.18)

- Équation de mouvement :  $\frac{\partial P}{\partial r} = -m \frac{\partial}{\partial z} \left( -\frac{\partial V_r}{\partial z} \right)^n$  (2.19)

$$\frac{\partial P}{\partial z} = 0 \quad (2.20)$$

Ces relations sont valables pour un fluide newtonien, à condition de poser  $n=1$ .

La relation 2.20 montre que la pression est indépendante de  $Z$ . Donc en l'intégrant deux fois par rapport à  $Z$ , il vient :

$$V_r = (-1)^{\frac{1}{n}} \left( \frac{n}{n+1} \right) \left( \frac{1}{m} \frac{dP}{dr} \right)^{\frac{1}{n}} \left[ \left( \frac{h}{2} \right)^{\frac{n+1}{n}} - Z^{\frac{n+1}{n}} \right] \quad (2.21)$$

En intégrant la relation 2.18 par rapport à  $z$ , on a :

$$\frac{dh}{dt} = -\frac{2}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left( r \int_0^h V_r dz \right) \quad (2.22)$$

En intégrant 2.22 par rapport à  $r$ , on obtient :

$$\frac{r}{2} \frac{dh}{dt} = -2 \int_0^{\frac{h}{2}} V_dz \quad (2.23)$$

En substituant 2.21 dans 2.23 et en intégrant, on obtient le gradient de pression :

$$P - P_0 = \left( \frac{m}{n+1} \right) (-1)^{n+1} \left\{ \left( \frac{2n+1}{4n} \left( \frac{h}{2} \right)^{\frac{-(2n+1)}{n}} \frac{dh}{dt} \right)^n \left( R(t)^{n+1} \right) \right\} \quad (2.24)$$

Où  $R(t)$  et  $h$  sont respectivement le rayon et la hauteur de l'échantillon au temps  $t$

En intégrant la relation 2.24 sur la surface de l'échantillon, on en déduit la force qui agit sur l'échantillon :

$$F = (-1)^n \left( \frac{m}{n+3} \right) \pi R^{n+3} \left\{ \left( \frac{2n+1}{4n} \left( \frac{h}{2} \right)^{\frac{-(2n+1)}{n}} \frac{dh}{dt} \right)^n \right\} \quad (2.25)$$

En écrivant la conservation du volume ( $R^2 h = R_o^2 h$ ) et en posant :

$$k = \left\{ \left( \frac{2n}{2n+1} \right)^n \frac{4F}{\pi d_o^{n+3} m} (n+3) \right\}^{\frac{1}{n}}$$

Il vient :

$$-\frac{dh}{dt} = kh_o^{\frac{-(n+3)}{2n}} h^{\frac{5(n+1)}{2n}} \quad (2.26)$$

Pour des essais à charge constante, l'intégration de la relation 2.26 donne :

$$\left( \frac{1}{h} \right)^{\frac{3n+5}{2n}} - \left( \frac{1}{h_o} \right)^{\frac{3n+5}{2n}} = \left( \frac{3n+5}{2n} \right) kh_o^{\frac{-(n+3)}{2n}} t \quad (2.27)$$

la relation 2.27 peut être réécrite de la façon suivante :

$$e = \left(1 - \frac{h}{h_o}\right) = 1 - \left\{1 + \left(\frac{3n+5}{2n}\right) h_o^{\frac{n+1}{n}} kt\right\}^{-\frac{2n}{3n+5}} \quad (2.28)$$

ou encore lorsque t tend vers l'infini :

$$\ln(1-e) = -\left(\frac{2n}{3n+5}\right) \ln t - \left(\frac{2n}{3n+5}\right) \ln \left(\frac{3n+5}{2n} h_o^{\frac{n+1}{n}} k\right) \quad (2.29)$$

Le comportement rhéologique des fluides pseudoplastiques est déterminé à partir de la relation 2.29. En effet celle-ci montre qu'en portant  $\ln(1-e)$  en fonction de  $\ln t$ , il est possible de déterminer les paramètres  $n$  et  $m$  de la loi de puissance. Les indices  $n$  et  $m$  sont obtenus respectivement à partir de la pente et de l'ordonnée à l'origine de la droite  $\ln(1-e)=f(t)$ .

Pour un fluide newtonien ( $m=\eta$  et  $n=1$ ), les relations 2.25 et 2.27 deviennent :

$$F = -\frac{3\eta V^2}{2\pi h^5} \frac{dh}{dt} \quad (2.30)$$

$$\frac{3Vh_o}{8\pi P_o} \left( \frac{1}{h^4} - \frac{1}{h_o^4} \right) = \frac{t}{\eta} \quad (2.31)$$

Où  $V$  et  $P_o$  sont respectivement le volume de l'échantillon et la pression initiale sur l'échantillon.

La viscosité d'un fluide newtonien peut donc être déterminée en portant  $(1/h^4 - 1/h_o^4)$  en fonction du temps. Au cours d'un essai, la vitesse de cisaillement est déterminée à partir de la relation :

$$\dot{\gamma} = -\frac{\partial V_r}{\partial Z} = -\frac{2(dh/dt)}{h^2} \left( \frac{2n+1}{2n} \right) \left( \frac{z}{h/2} \right)^{\frac{1}{n}} r \quad (2.32)$$

qui s'écrit pour un fluide newtonien :

$$\dot{\gamma} = -\frac{6rz}{h^3} \frac{dh}{dt} \quad (2.33)$$

On peut ainsi obtenir la vitesse de cisaillement moyenne, en intégrant la relation 2.33 sur le volume V de l'échantillon. On peut montrer que :

$$\dot{\gamma}_{av} = -\sqrt{\frac{V}{\pi}} \left( \frac{dh/dt}{2h^{2.5}} \right) \quad (2.34)$$

## CHAPITRE III

### RÉSULTATS ET DISCUSSION

#### 3.1 COMPORTEMENT DES COMPOSITES À L'ÉTAT LIQUIDE

Le comportement des composites à l'état liquide a été évalué à 615 et 635°C à l'aide des viscosimètres II et III. Les résultats sont reportés sur les figures 3.1 à 3.4. Ceux-ci montrent que le comportement de tous les composites dépend de la vitesse de cisaillement.

Au-dessous d'une certaine limite, le comportement rhéologique des composites à l'étude est du type pseudoplastique et peut être décrit par une loi de puissance dont les paramètres sont donnés dans le tableau 3.1. Au-dessus de cette limite, qui dépend de la nature des particules de renfort, le comportement rhéologique des composites devient newtonien et la viscosité atteint un plateau. Il semblerait que le plateau newtonien soit atteint d'autant plus vite que le pourcentage de particule SiC est faible et que la température est élevée (voir figures 3.1 et 3.2). Il semblerait également que la valeur du plateau dépende de la nature des particules de renfort. En effet, celui-ci est plus faible pour le composite 5A3G que pour le composite 6S3G alors que le pourcentage de particules de renfort est sensiblement identique.

On peut essayer d'expliquer ce résultat en se reportant à la relation de Mori-Ototake (relation 1.17). En effet, celle-ci montre qu'à fraction solide égale, la viscosité dépend de la viscosité  $\eta_0$  de la matrice et des paramètres stéréologiques des particules de renfort. Compte tenu de la teneur plus élevée en silicium dans la matrice du composite 5A3G, on peut s'attendre à une viscosité  $\eta_0$  plus faible que celle du composite 6S3G. Néanmoins, la viscosité des matrices métalliques à l'état liquide étant très faible ( $\approx 0.01 \text{ Pa.s}$ ), la contribution de cette variable est

négligeable devant la contribution des particules de renfort. C'est donc plutôt une différence de forme, de taille et de répartition des particules qui expliquerait la différence de viscosité entre les composites 5A3G et 6S3G.

Pour un agitateur donné, nous n'avons pas enregistré de différence significative de viscosité dans la gamme de température étudiée, que ce soit dans le domaine pseudoplastique ou newtonien. Par contre, pour un composite donné, dans les mêmes conditions de température et de vitesse de cisaillement, la nature de l'agitateur a une influence marquée sur le régime pseudoplastique (figures 3.3 et 3.4). Le plateau newtonien, quant à lui, est insensible à la forme de l'agitateur. Tel que souligné en 1.2.3.1.1, le caractère pseudoplastique des suspensions est généralement attribué au fait que la structure interne de celle-ci est détruite sous l'action du cisaillement. Les analyses des microstructures (voir figure 3.5) des échantillons trempés après brassage à l'état liquide montrent qu'il y a redistribution des particules de SiC après brassage. En effet, les particules de graphite ne sont plus entourées de particules de SiC, comme c'est le cas dans la microstructure initiale (figure 2.1). On peut donc penser que la diminution initiale de la viscosité est associée à la destruction des agrégats de graphite et de SiC. La nature de l'écoulement étant différente selon l'agitateur, cette destruction se fait à vitesses différentes.

Afin d'évaluer l'influence des particules de graphite sur le comportement rhéologique des composites à l'état liquide, nous avons réalisé des mesures de viscosité sur le composite A356-15%-SiC. En effet, le composite 10S4G correspond au composite A356-15%-SiC auquel on aurait substitué des particules de graphite aux particules de SiC. Sur la figure 3.1, on peut voir que les viscosités obtenues pour le composite 10S4G sont légèrement plus faibles que celles du composite A356-15%-SiC.

À notre connaissance, il n'y a pas de référence dans les systèmes métalliques qui pourrait nous aider à expliquer ce résultat. Par contre, dans le cas des suspensions bimodales très concentrées de polymère, Chang et Powell[108] rapportent que la viscosité peut être diminuée comparativement à une suspension unimodale avec le même pourcentage volumique de renfort. Leurs résultats ont montré que, dans le cas où le pourcentage de grosses particules est supérieur à celui des petites, la viscosité des suspensions bimodales dépend essentiellement de trois paramètres : la fraction volumique totale des particules  $\varphi$ , le rapport entre la fraction volumique des plus petites et des plus grandes particules  $\lambda$  et enfin du ratio du diamètre des plus grandes particules sur celui des plus petites  $\xi$ . Dans le cas des suspensions bimodales de particules sphériques, il a été montré que pour  $\varphi$  et  $\lambda$  fixés, la viscosité est minimum pour une valeur optimum de  $\xi$ . Cette dernière correspond au maximum que peut atteindre la densité maximale de compactage,  $\varphi_m$ . Les auteurs cités plus haut ont donc conclu que la viscosité des suspensions bimodales est étroitement reliée à ce paramètre. Dans le cas présent, le pourcentage volumique de petites particules est supérieur à celui des grosses, malgré tout la densité maximale de compactage de la suspension bimodale est augmentée par rapport à une suspension unimodale ne contenant que des petites particules. Ce dernier point pourrait expliquer nos résultats expérimentaux. Il faudrait évaluer la densité maximale de compactage pour la suspension 10S4G et l'intégrer dans une des relations faisant appel à celle-ci (voir revue de la littérature) pour vérifier ce point.

Une autre approche a été proposée par Filderis et Whitmore[109] pour évaluer la viscosité des suspensions bimodales. Nous nous sommes appuyés sur celle-ci pour essayer d'expliquer nos résultats expérimentaux. En effet d'après ces auteurs, on peut voir une suspension bimodale, dans laquelle le rapport entre le diamètre des plus grandes particules sur celui des plus petites est supérieur à 10 (ce qui est le cas de la suspension 10S4G), comme une

suspension unimodale composée d'un liquide fictif de viscosité équivalente au liquide renforcé par les particules de plus petites dimensions, et d'un renfort composé des particules de plus grandes dimensions.

On peut donc voir le composite GRA-Ni<sup>®</sup> (10S4G) comme une suspension de particule de graphite (4%vol) dans un liquide de viscosité égale à la viscosité d'une suspension de SiC (10%vol) dans une matrice d'aluminium liquide. Si on combine ce concept à la relation de Thomas, on peut écrire :

$$\eta = \eta_{SiC10\%} \left( 1 + 2.5\varphi + 10.05 \varphi^2 + A \exp(B\varphi) \right)$$

Où  $\eta_{SiC10\%}$  est la viscosité d'un liquide contenant 10% de particules de SiC et  $\varphi$  est la fraction volumique des particules de graphite soit : 4%. Il vient donc pour le composite 10S4G :

$$\eta_{10S4G} = 1.1 \eta_{SiC10\%} \quad (3.1)$$

L'utilisation de la relation de Thomas dans le cas de la suspension de graphite est justifiée par le fait que la taille des particules est importante.

On pourrait à partir de la relation 3.1 déterminer la viscosité de la suspension bimodale en mesurant la viscosité de la suspension unimodale contenant 10% de SiC. Notre démarche étant de relier la viscosité de la suspension bimodale à la viscosité de la suspension unimodale contenant le même pourcentage de renfort, nous avons relié la viscosité du liquide contenant 10% de particule de SiC à celle du liquide en contenant 15%. Les effets de taille étant importants dans les suspensions de petites particules, nous avons utilisé la relation de Mori et Ototake. Il vient :

$$\eta_{\text{SiC}10\%} = \eta_{\text{SiC}15\%} \left( \frac{1 + \frac{\alpha_{\text{SiC}10\%}}{2}}{1 + \frac{\alpha_{\text{SiC}15\%}}{2}} \right) \quad (3.2)$$

avec :

$$\alpha_{\text{SiC}} = \left( \frac{\frac{S_{\text{SiC}} d_{\text{MSiC}}}{1 - \frac{1}{\varphi_{\text{SiC}}}}}{\frac{1}{\varphi_{\text{SiC}}} - \frac{1}{\varphi_{\text{MSiC}}}} \right)$$

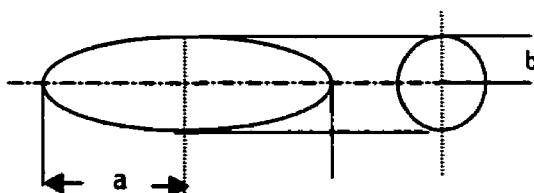
Où  $S_{\text{SiC}}$ ,  $d_{\text{MSiC}}$ ,  $\varphi_{\text{SiC}}$ ,  $\varphi_{\text{MSiC}}$  sont respectivement la surface spécifique (surface par unité de volume), la taille moyenne, le pourcentage volumique et la densité maximale de compactage des particules de SiC.

Pour l'alliage 10S4G, en combinant les relations 3.1 et 3.2, il vient :

$$\eta_{10\text{S}4\text{G}} = 1.1 \eta_{\text{SiC}15\%} \left( \frac{1 + \frac{\alpha_{\text{SiC}10\%}}{2}}{1 + \frac{\alpha_{\text{SiC}15\%}}{2}} \right) \quad (3.3)$$

Finalement on peut relier la viscosité de la suspension bimodale à la viscosité de la suspension unimodale contenant le même pourcentage volumique de particule.

Nous avons déterminé la surface spécifique intervenant dans la relation 3.3, en considérant les particules de carbure de silicium comme des ellipsoïdes de révolution, tel que schématisé ci-dessous :



L'observation des microstructures des composites abonde dans ce sens.

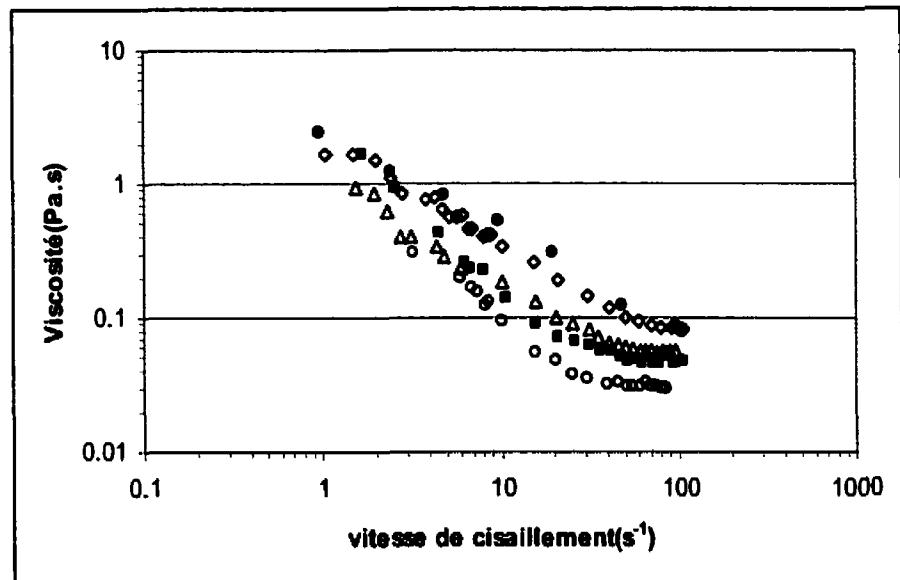
Dans le cas d'un ellipsoïde d'axe majeur  $2a$  et d'axe mineur  $2b$ , on peut montrer que :

$$S_v = \frac{2\pi b^2 + 2\pi ab \arcsin\left(\frac{\sqrt{a^2 - b^2}}{a}\right)}{\frac{4}{3}\pi ab^2} \quad (3.4)$$

Les paramètres  $a$  et  $b$  ont été évalués par analyse d'image (voir tableau 3.2). Le diamètre  $d$  a été pris égal au diamètre équivalent au diamètre de la sphère de volume égal à celui de l'ellipsoïde, soit :  $d=(ab^2)^{0.33}$ . Une valeur de  $S_v=0.55\mu\text{m}^{-1}$  et une valeur de  $S_vd=6.6$  ont été trouvées. Nous avons évalué la densité de compactage en considérant un empilement cubique des particules de carbure de silicium soit :  $\phi_m=0.52$ . Avec ces considérations la relation 2.37 s'écrit :

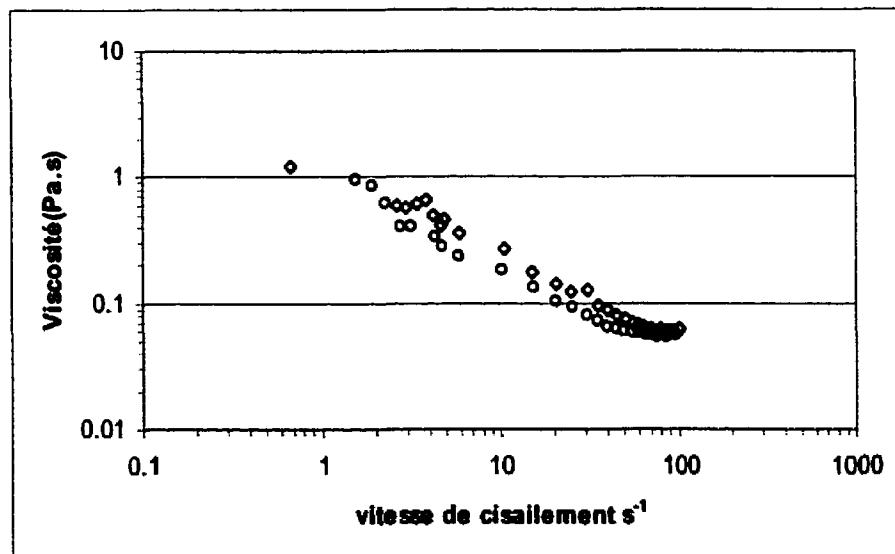
$$\eta_{10S4G} = 0.9\eta_{SiC15\%}$$

Par cette approche, on arrive donc à prédire une diminution de viscosité lorsqu'on substitue à la suspension unimodale contenant 15% de petites particules de SiC des particules au moins dix fois plus grosses. Pour  $\eta_{SiC15\%}=0.08 \text{ Pa.s}$ , il vient  $\eta_{GRAN}=0.072 \text{ Pa.s}$ , ce qui est dans l'ordre de grandeur de la valeur du plateau trouvée pour le composite 10S4G.



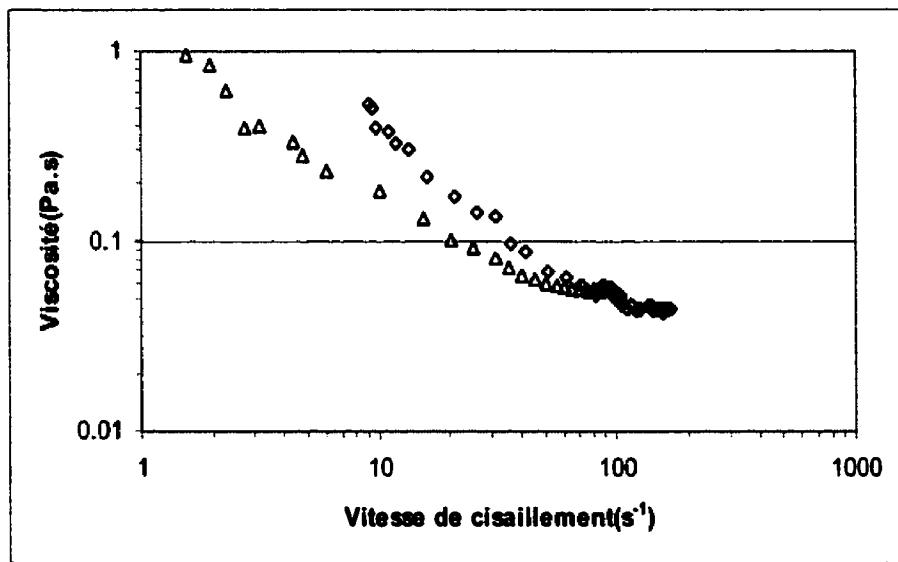
**Figure 3.1: Évolution de la viscosité en fonction de la vitesse de cisaillement  
(Viscosimètre III, T=635°C)**

• A356-15%SiC [105], ◊ A356-15%SiC (présente étude), △ 10S4G, ■ 6S3G, ○ 5A3G



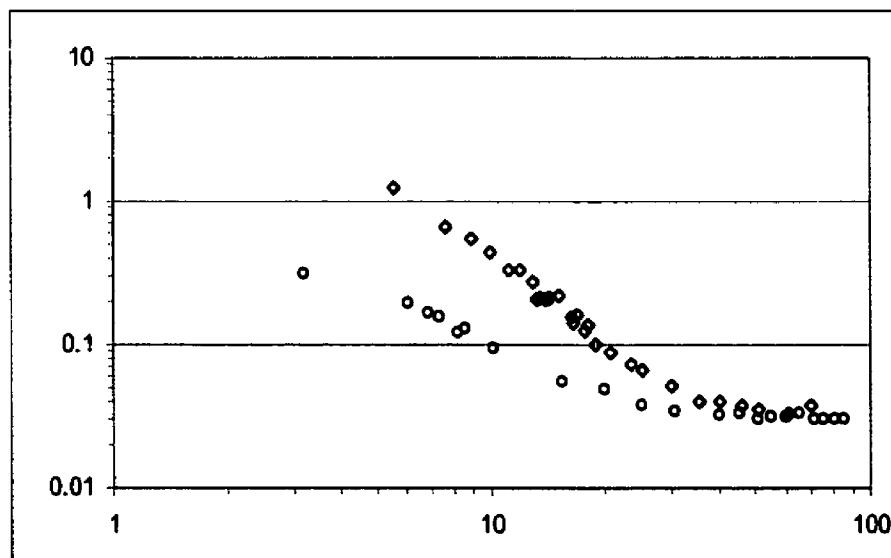
**Figure 3.2 : Effet de la température sur la viscosité (composite  
10S4G, Viscosimètre III)**

◊ : T = 615°C, ○ : T = 635°C



**Figure 3. 3: Effet de la forme de l'agitateur sur la viscosité à l'état liquide (composite 10S4G, T=635°C).**

◊ Viscosimètre II, △ Viscosimètre III



**Figure 3. 4: Effet de la forme de l'agitateur sur la viscosité à l'état liquide (composite 5A3G, T=635°C).**

◊ Viscosimètre II, ◊ Viscosimètre III

COMPOSITES	n' = n-1	m	Viscosité Plateau(Pa.s)
A356+15%SiC	- 0.67	1.486	0.081
10S4G	- 0.69	0.85	0.055
6S3G	- 0.955	1.45	0.047
5A3G	- 0.947	0.93	0.03

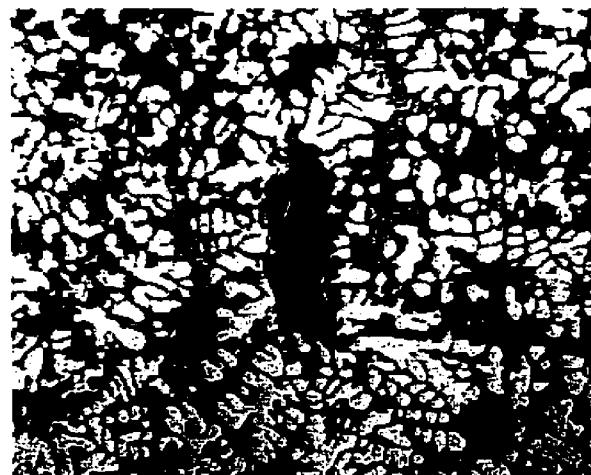
**Tableau 3.1 : Paramètres de la loi de puissance et plateaux newtoniens (T=635°C)**

	Aire(A) ( $\mu\text{m}^2$ )	Périmètre(L) ( $\mu\text{m}$ )	Axe majeur(2a) ( $\mu\text{m}$ )	Axe mineur(2b) ( $\mu\text{m}$ )	Facteur de forme F=(4 $\pi$ A/L*L)	Diamètre équivalent ( $\mu\text{m}$ )
Moyenne	119.17	55.26	17.24	9.4	0.51	11.79
Déviation	69.8	23.75	5.96	3.68	0.15	3.59

**Tableau 3.2 : Paramètres stéréologiques des particules de carbures de silicium**



a)



b)

**Figure 3. 5: Microstructure typique obtenue après brassage à l'état liquide suivie d'une trempe à l'eau**

- a) dispersion des particules de graphite dans une fine matrice dendritique (X 50)
- b) Exemple de redistribution des particules de carbure de silicium (X 200). On peut noter que les particules de graphites ne sont pas entourées par les particules de SiC mais sont plutôt des sites de germination pour la phase d'aluminium

### **3.2 COMPORTEMENT DES COMPOSITES ET ALLIAGES À L'ÉTAT SEMI-SOLIDE**

Les mesures de viscosité présentées dans cette section ont été obtenues à l'aide du viscosimètre I. Les valeurs des variables utilisées lors des expériences en refroidissement continu et en condition isotherme sont données en 2.2.1.4 et sur la figure 2.20.

#### **3.2.1 COMPORTEMENT EN REFROIDISSEMENT CONTINU**

Les résultats expérimentaux montrent que la viscosité des gelées semi-solides des composites 10S4G, 6S3G et 5A3G brassées en refroidissement continu dépend de la fraction solide (et donc de la température), de la vitesse de cisaillement ( $\dot{\gamma}$ ) et du taux de refroidissement ( $\epsilon$ ).

La figure 3.6 montre que l'on peut délimiter différents régimes de viscosité en fonction de la température. Dès que la température passe en dessous de la température du liquidus (environ 592°C pour les composites 5A3G et 10S4G et 600 °C pour le composite 6S3G) et que l'on entre dans la zone semi-solide, la viscosité augmente de manière significative par rapport à l'état liquide. Cette augmentation se fait d'abord à un taux assez faible jusqu'à une température correspondant à une fraction solide de l'ordre de 0.10 puis à un taux plus rapide jusqu'à une température proche de la température de l'eutectique et enfin de manière très brutale lorsqu'on s'approche de la température de l'eutectique. Comme on l'a vu dans le chapitre I en 1.5.1.1, Ce comportement est typique des gelées semi-solides brassées en refroidissement continu. Comme on l'a déjà signalé, « l'expression de Thomas » est toute indiquée pour prendre en compte les différents régimes de viscosité en fonction de la fraction solide. En suivant l'approche proposée par Laxmanan et Flemings [63], nous avons modélisé l'effet de la fraction solide sur la viscosité par une équation d'état similaire au troisième terme de l'expression de Thomas (relation 1.18):

$$\eta = m\dot{\gamma}^{n'} = A \exp(B\phi) \dot{\gamma}^{n'} \quad (3.4)$$

Où  $n'$  est l'exposant de sensibilité à la vitesse de cisaillement,  $B$  est le coefficient de sensibilité à la fraction solide ( $B$  dépend de la vitesse de cisaillement) et  $A$  est une constante qui doit être déterminée expérimentalement de manière à accorder les résultats. Notons que la relation 3.4 est une forme modifiée de l'expression de Thomas afin de tenir compte de la vitesse de cisaillement.

Les valeurs de  $n'$  et  $A$  pour les composites 10S4G et 5A3G ont été déterminées par régression linéaire sur les données expérimentales représentées en terme de fraction solide primaire (figures 3.7 à 3.10). Les résultats sont colligés dans le tableau 3.3. Des valeurs de  $n'$  égales respectivement à -0.8 et -0.7, ce qui est caractéristique d'un comportement pseudoplastique, semblent bien décrire les résultats expérimentaux des deux composites 10S4G et 5A3G. Le coefficient  $B$ , quant à lui, varie selon les deux composites et peut être décrit par une loi de puissance qui a été identifiée par les relations suivantes :

$$B = 27.1\dot{\gamma}^{-0.33} \text{ pour le composite 10S4G}$$

$$B = 23.37\dot{\gamma}^{-0.31} \text{ pour le composite 5A3G}$$

Le fait que le coefficient  $B$  puisse être décrit par une loi de puissance n'est pas surprenant. En effet, comme on l'a déjà signalé, ce coefficient est représentatif de la quantité de liquide piégé dans les agglomérats et diminue donc lorsque la vitesse de cisaillement augmente.

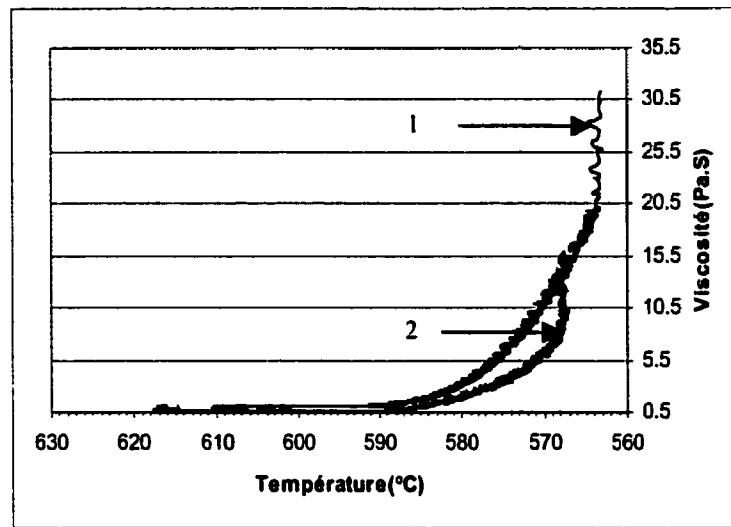
Dans les mêmes conditions expérimentales, le comportement en refroidissement continu des composites 6S3G et 10S4G est identique pour une fraction solide de phase primaire égale (voir figures 3.11 et 3.12). Les valeurs de  $n'$ , A et B trouvées pour le composite 10S4G sont également valable pour le composite 6S3G. Contrairement à l'état liquide, la présence supplémentaire de 4% en volume de particules de carbure de silicium dans le composite 10S4G ne modifie pas la viscosité. Ce résultat indique que, dans l'état semi-solide, la viscosité des gelées semi-solides de composites dépend plus fortement de la nature de la matrice et de la nature des particules de renfort que du pourcentage volumique du renfort.

Si l'on représente les résultats expérimentaux en terme de fraction solide totale (voir Figure 3.13.b), on s'aperçoit que la viscosité des composites est moins importante que celle de l'alliage de base pour une même fraction solide. Comme on l'a déjà indiqué (voir 1.5.3), dans le cas des composites renforcés par des particules de SiC, ce comportement est attribué au fait que les particules de renfort empêche l'agglomération de la phase primaire. Les observations des microstructures rhéocoulées (voir 3.2.2.2) des composites GrA-Ni<sup>®</sup> indiquent que les particules de graphite ont un effet semblable. Ce résultat appui le fait que la phase primaire d'aluminium contrôle la viscosité des gelées semi-solides des composites à l'étude.

Nos résultats montrent que l'effet de La vitesse de cisaillement et du taux de refroidissement va dans le sens des résultats déjà obtenus sur les gelées semi-solides des alliages et composites étudiés à ce jour (voir revue de la littérature), à savoir : une augmentation de la viscosité lorsque le taux de refroidissement augmente et la vitesse de cisaillement diminue.

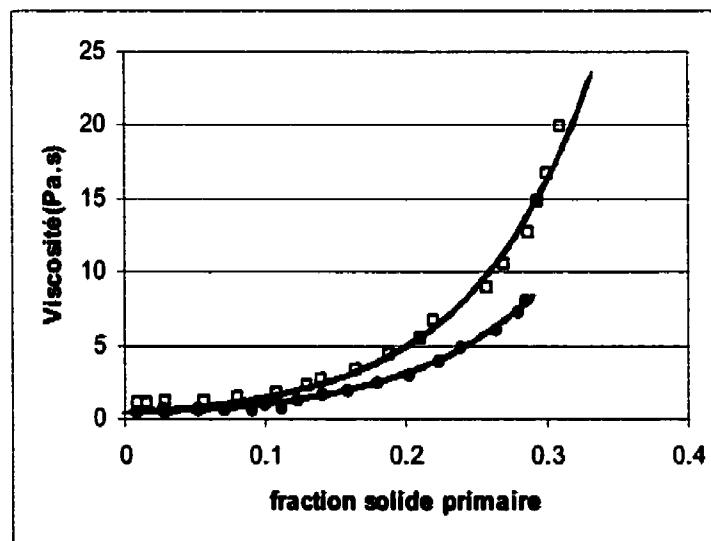
La vitesse de cisaillement a un effet important sur la viscosité mesurée en refroidissement continu comme le montre les figures 3.7 à 3.10. On peut voir par exemple que : dans le cas du composite 10S4G, la viscosité maximale atteinte est de 20Pa.s pour une vitesse de cisaillement de  $13\text{s}^{-1}$  et un taux de refroidissement de  $1^\circ\text{C}$  alors qu'elle n'est que de 0.9Pa.s pour une vitesse de cisaillement de  $104\text{s}^{-1}$  et pour un même taux de refroidissement. Rappelons que bon nombre d'auteurs attribue cet effet fluidifiant au fait que le degré d'agglomération des structures rhéocoulées et la taille des particules primaires sont beaucoup plus faibles pour les grandes vitesses de cisaillement. Dans la gamme de vitesse de cisaillement étudiée, nous n'avons pas observé de différence significative dans la taille des particules. Par contre, la sphéricité des particules primaires est plus prononcée et le degré d'agglomération de ces dernières est plus faible aux hautes vitesses de cisaillement. On peut donc prévoir une diminution supplémentaire de la viscosité liée à une diminution de la taille des particules pour des vitesses de cisaillement plus élevées. Il est très probable néanmoins, qu'à partir d'une vitesse de cisaillement critique, la viscosité atteigne une valeur limite correspondant à un degré d'agglomération et une taille limite des particules primaires.

L'effet de la vitesse de refroidissement est illustré sur les figures 3.14 et 3.15. Il est intéressant de noter que l'augmentation de viscosité suite à une augmentation de la vitesse de refroidissement est plus prononcée pour les grandes vitesses de cisaillement. Nous pensons que résultat est dû au fait qu'aux hautes vitesses de cisaillement, un taux de refroidissement important a tendance à contrebalancer la chute de viscosité due à la convection.



**Figure 3.6 : Essai de refroidissement continu ( $\gamma=13\text{s}^{-1}$ ,  $\varepsilon=1^\circ\text{C}/\text{min}$ ) : viscosité en fonction de la température**

Courbe 1 : composite 10S4G  
 Courbe 2 : composite 5A3G



**Figure 3.7 : Essai de refroidissement continu ( $\gamma=13\text{s}^{-1}$ ,  $\varepsilon=1^\circ\text{C}/\text{min}$ ) : viscosité en fonction de la fraction solide**

Courbe supérieure : composite 10S4G  
 Courbe inférieure : composite 5A3G  
 — : Relation 3.4

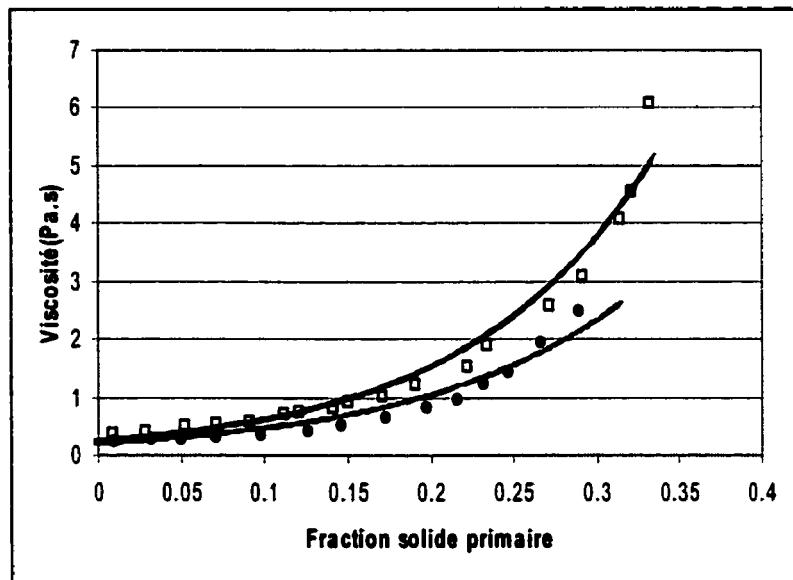


Figure 3.8 : Essai de refroidissement continu ( $\gamma=26\text{s}^{-1}$ ,  $\varepsilon=1^\circ\text{C}/\text{min}$ )

Composite 10S4G  
 • Composite 5A3G  
 — : Relation 3.4

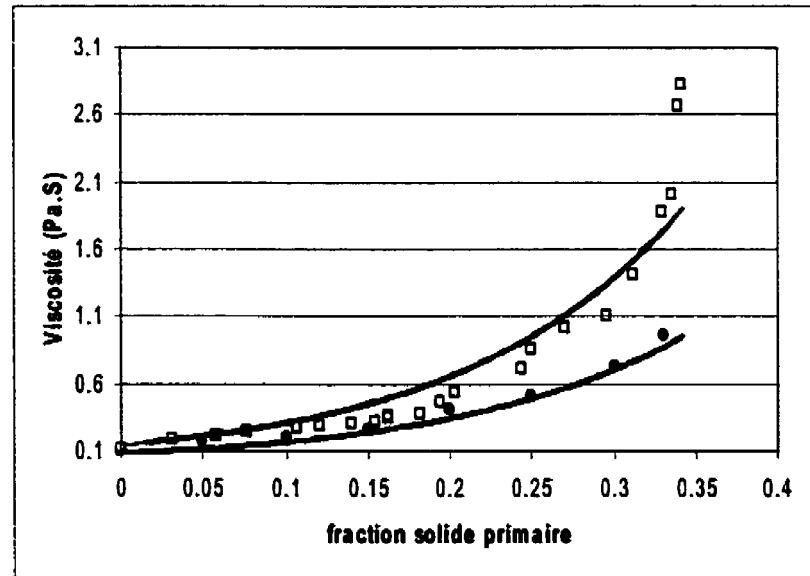


Figure 3.9: Essai de refroidissement continu ( $\gamma=52\text{s}^{-1}$ ,  $\varepsilon=1^\circ\text{C}/\text{min}$ )

Composite 10S4G  
 • Composite 5A3G  
 — : Relation 3.4

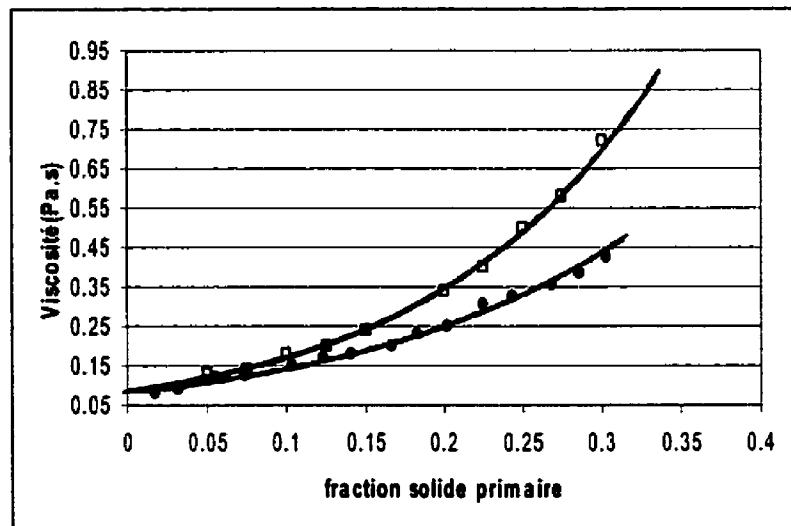


Figure 3.10 : Essai de refroidissement continu ( $\gamma=104\text{s}^{-1}$ ,  $\varepsilon=1^\circ\text{C}/\text{min}$ )

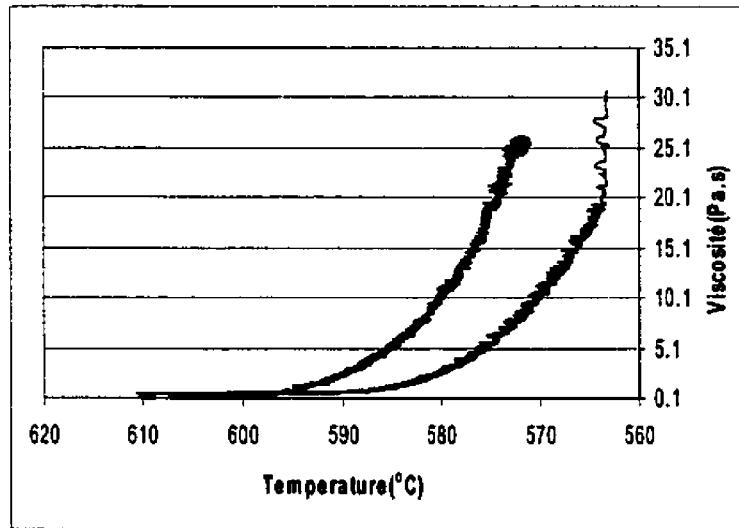
Composite 10S4G

• Composite 5A3G

— : Relation 3.4

Composites	Vitesse de cisaillement (s <sup>-1</sup> )	A	n'	B
5A3G	13	2.1	-0.7	11
	26	2.1	-0.7	9
	52	2.1	-0.7	7.5
	104	2.1	-0.7	6
10S4G	13	3.5	-0.8	12
	26	3.5	-0.8	8
	52	3.5	-0.8	7.2
	104	3.5	-0.8	5.6

Tableau 3.3 : Compilation des paramètres correspondant à la relation 3.4

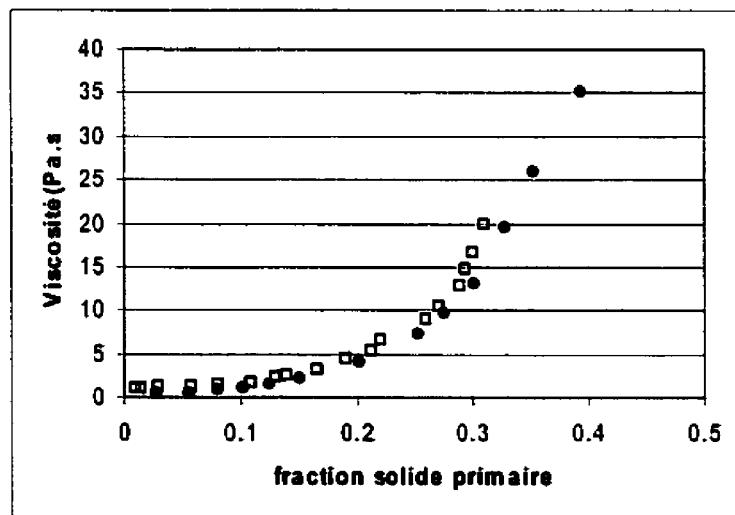


**Figure 3. 11: Comparaison du comportement en refroidissement continu des composites 6S3G et 10S4G ( $\gamma=13\text{s}^{-1}$ ,  $\dot{\epsilon}=1^\circ\text{C}/\text{min}$ )**

**Viscosité en fonction de la température**

Courbe supérieure : composite 6S3G

Courbe inférieure : composite 10S4G

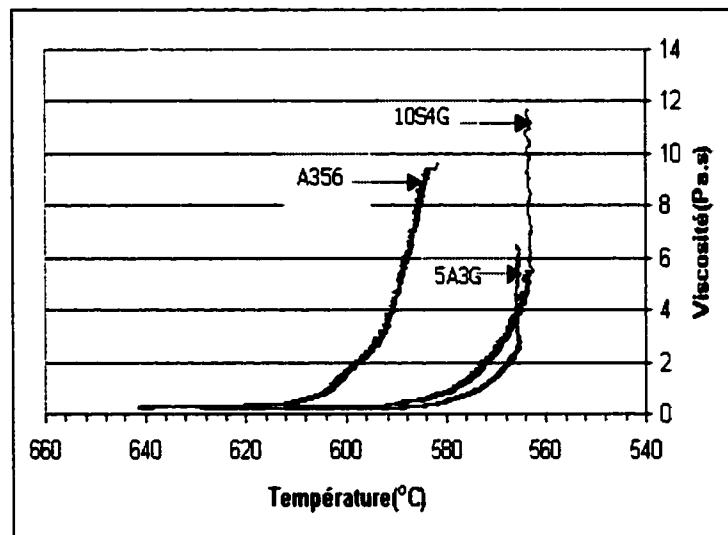


**Figure 3. 12: Comparaison du comportement en refroidissement continu des composites 6S3G et 10S4G ( $\gamma=13\text{s}^{-1}$ ,  $\dot{\epsilon}=1^\circ\text{C}/\text{min}$ )**

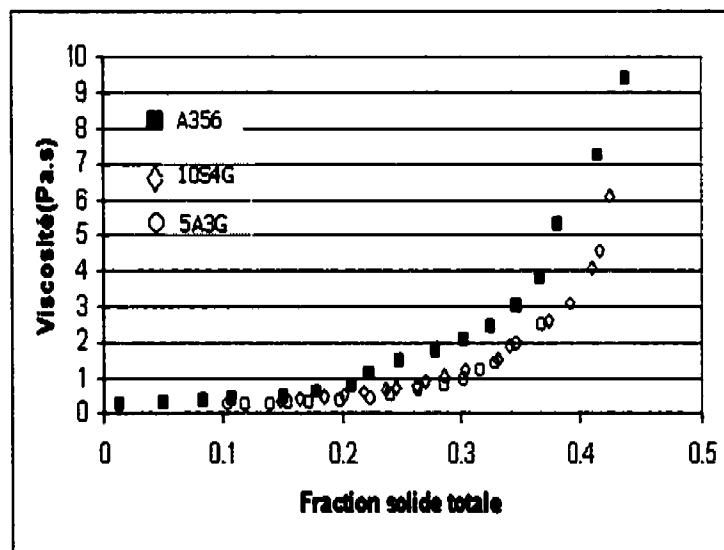
**Viscosité en fonction de la fraction solide**

Composite 10S4G

● Composite 6S3G



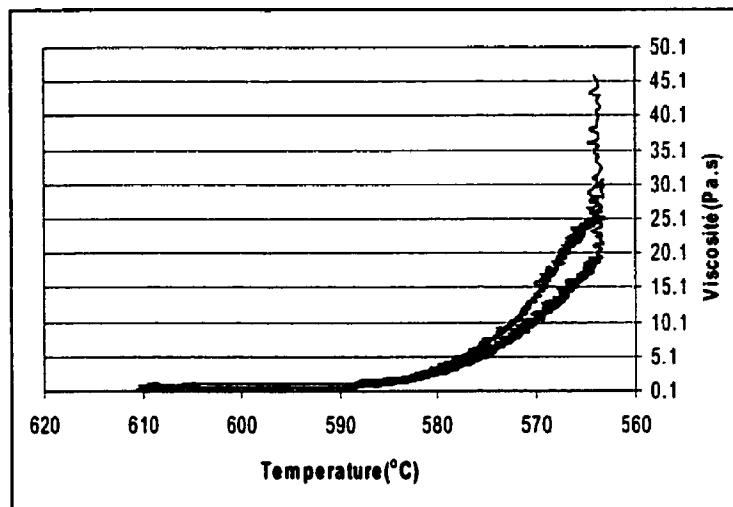
a)



b)

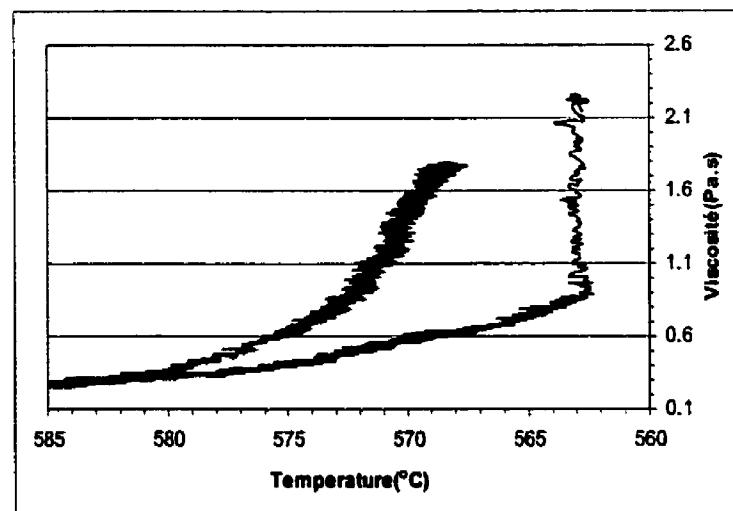
**Figure 3. 13: Comparaison de la viscosité des composites et de l'alliage de base  
( $\gamma=26\text{s}^{-1}$ - $\epsilon=1^\circ\text{C}/\text{min}$ )**

- a) évolution de la viscosité en fonction de la température
- b) évolution de la viscosité en fonction de la fraction solide totale (renforts+particules primaires)



**Figure 3.14 : Influence de la vitesse de refroidissement ( $\gamma=13\text{s}^{-1}$ )**

Courbe supérieure : vitesse de refroidissement  $2^\circ\text{C}/\text{min}$   
 Courbe inférieure : vitesse de refroidissement  $1^\circ\text{C}/\text{min}$



**Figure 3.15: Influence de la vitesse de refroidissement ( $\gamma=104\text{s}^{-1}$ )**

Courbe supérieure : vitesse de refroidissement  $3^\circ\text{C}/\text{min}$   
 Courbe inférieure : vitesse de refroidissement  $1^\circ\text{C}/\text{min}$

### **3.2.2 COMPORTEMENT EN CONDITION ISOTHERME**

Dans cette partie, nous présentons des résultats obtenus sur les composites 6S3G, 10S4G et l'alliage A356.

#### **3.2.2.1 VISCOSITÉ EN CONDITION ISOTHERME ET STATIONNAIRE**

Les résultats expérimentaux (figures 3.16 à 3.31) montrent que la viscosité des gelées semi-solides des composites 10S4G et 6S3G et de l'alliage A356 brassées en condition isotherme et stationnaire diminue en fonction du temps de brassage.

Au cours du brassage isotherme, la viscosité évolue selon trois étapes. Dans la première étape la viscosité diminue assez rapidement, dans la deuxième étape la viscosité diminue de manière plus lente pour atteindre une valeur d'équilibre dans la troisième étape. Ce comportement est typique d'un comportement thixotropique et a été largement décrit dans la revue de la littérature. La première étape est généralement associée à la destruction des liaisons faibles au sein des agglomérats. La deuxième étape quant à elle, est associée à la destruction des liaisons plus fortes dans les agglomérats et entre agglomérats ainsi qu'au changement de morphologie des particules primaires. Le régime stationnaire, quant à lui, est associé à un équilibre dynamique entre la destruction et la formation des agglomérats.

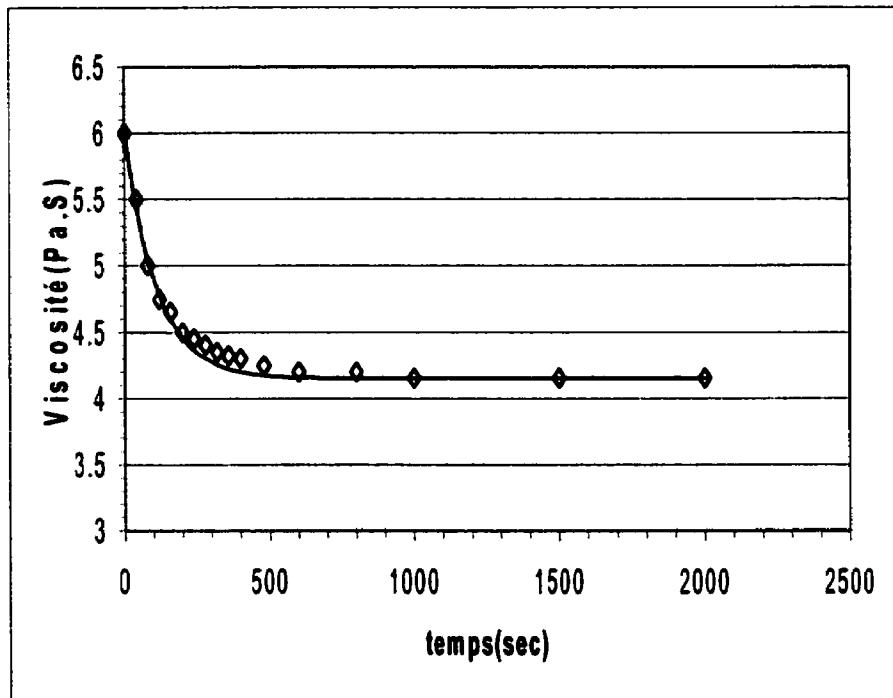
Le modèle cinétique donné par la relation 1.50 décrit assez bien nos résultats expérimentaux. La constante cinétique du modèle dépend de la fraction solide et de la vitesse de cisaillement. On peut voir sur la figure 3.28 que la valeur de la constante de la cinétique de dégradation diminue en fonction de la fraction solide et augmente en fonction de la vitesse de

cisaillement : passant d'environ  $9 \times 10^{-3}$  pour une fraction solide de 16% à  $2 \times 10^{-3}$  pour une fraction solide de 30%. La variation de la constante cinétique de dégradation peut s'expliquer par le fait qu'aux hautes fractions solides ou aux basses vitesses de cisaillement, le degré d'agglomération de la structure est plus important et par conséquent la cinétique est lente. Dans la gamme de vitesse de cisaillement étudiée, la constante cinétique varie linéairement en fonction de la vitesse de cisaillement. Les relations entre  $K_D$  et la vitesse de cisaillement pour les différentes fractions solides étudiées sont reportées sur la figure 3.28. On peut voir sur cette dernière, que pour des fractions solides primaires supérieures à 20%, la pente de la droite  $K_D = f(\dot{\gamma})$  est relativement constante. Pour des fractions solides inférieures, la pente est beaucoup plus importante indiquant une cinétique beaucoup plus rapide. Ce résultat met en relief la relation entre la cinétique de dégradation et le degré d'agglomération des gelées semi-solides.

La viscosité d'équilibre du modèle dépend également de la fraction solide et de la vitesse de cisaillement. La variation de la viscosité d'équilibre en fonction de la fraction solide est identique à celle de la viscosité instantanée obtenue en refroidissement continu. La variation de la viscosité d'équilibre en fonction de la vitesse de cisaillement peut être décrite par une loi de puissance sur toute la gamme des fractions solides étudiée. Les paramètres de la loi de puissance, obtenus par régression sur les points expérimentaux, sont donnés sur la figure 3.29. Les résultats montrent que toutes les fractions solides étudiées sont caractérisées par un coefficient de sensibilité à la vitesse de cisaillement inférieur à -1. Comme indiqué dans la revue de la littérature en 1.5.2.1, ce résultat est contraire à un comportement pseudoplastique et semble être caractéristique des gelées semi-solides évaluées à faible vitesse de cisaillement (cas de la présente étude).

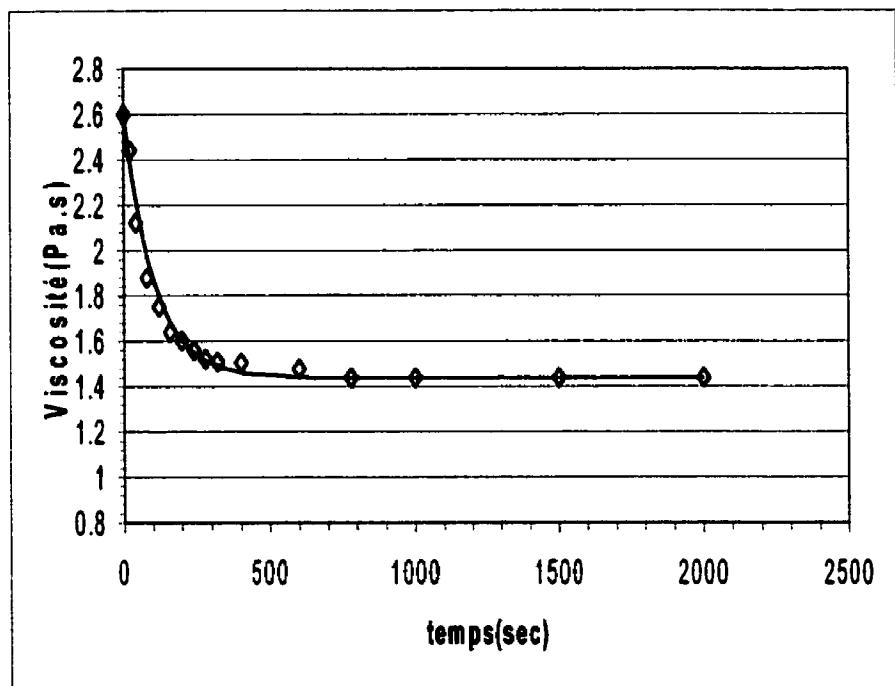
La Figure 3.30 montre que dans les mêmes conditions initiales, le comportement des composites 6S3G et 10S4G est semblable. Par contre, on peut voir sur la Figure 3.31 que la constante cinétique de l'alliage A356 est un peu plus lente que celle du composite mais que les valeurs d'équilibres sont du même ordre de grandeur (figures 3.29 et 3.31). Ce résultat a été également observé par d'autres auteurs [75,106] et est attribué au fait que la présence de particules de renforts empêche la reformation des agrégats lors de la destruction de la structure.

Notons enfin que les conditions initiales ont un effet important sur les viscosités initiales ainsi que sur la cinétique de dissociation mais pas sur la viscosité d'équilibre (figure 3.30). Ce résultat est encore une fois en accord avec les résultats trouvés dans la littérature et s'explique par le fait que les conditions initiales fixent l'état d'agglomération de la structure avant le cisaillement. Une vitesse initiale de cisaillement faible ou un temps de repos ( $t_r$ ) important avant cisaillement (voir mode opératoire en 2.2.1.4) augmente l'état d'agglomération de la structure ce qui augmente les viscosités initiales et le temps nécessaire pour atteindre le plateau d'équilibre. Ce résultat montre l'importance de fixer les mêmes conditions initiales pour tous les essais et valide le mode opératoire utilisé dans la présente étude.



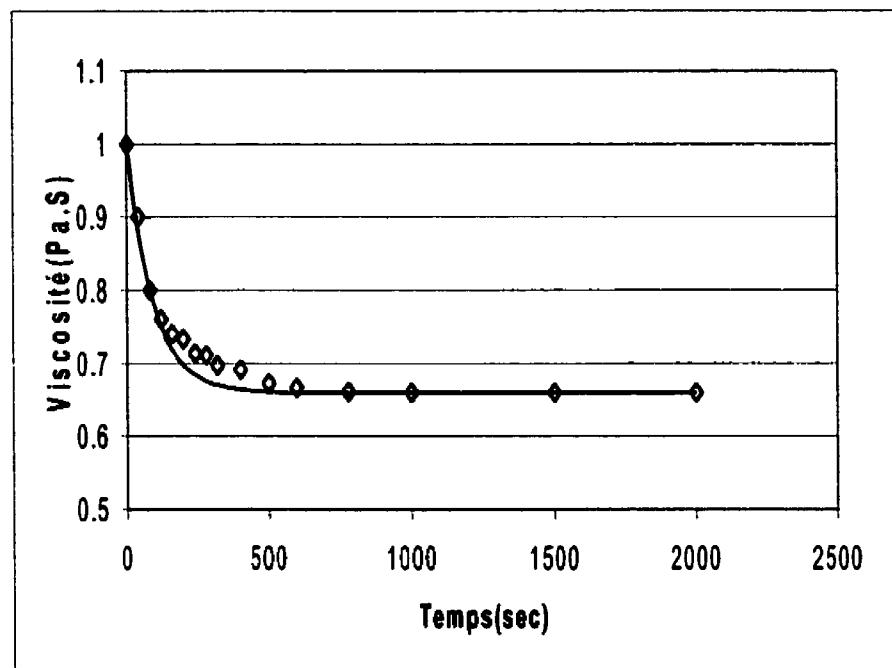
**Figure 3.16 : Essai en condition isotherme et stationnaire (composite 10S4G)**  
 $(f_r=16\%, \dot{\gamma}=13\text{s}^{-1})$

◊ points expérimentaux  
— relation 1.50



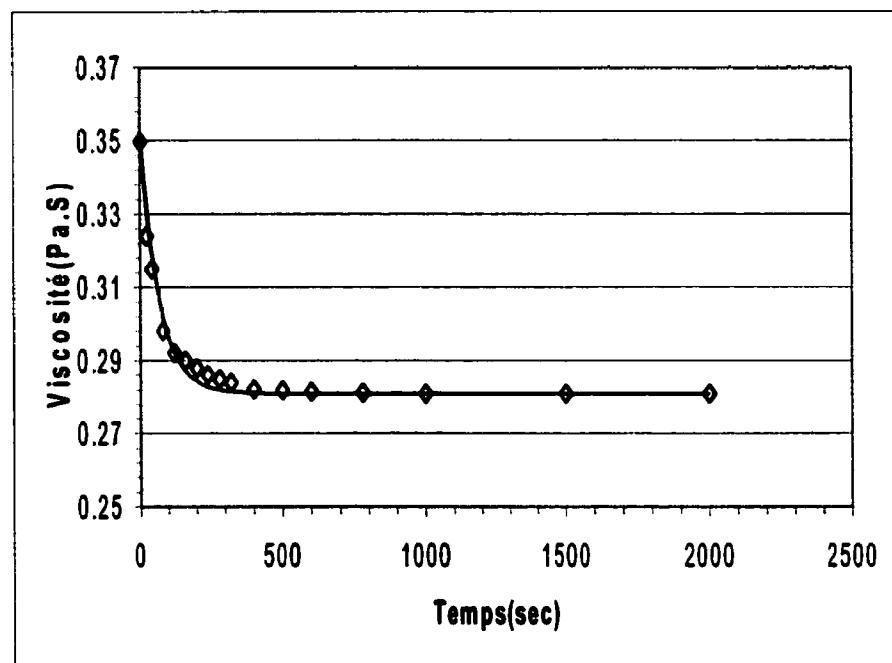
**Figure 3.17 : Essai en condition isotherme et stationnaire (Composite 10S4G)**  
 $(f_s=16\%, \dot{\gamma}=26\text{s}^{-1})$

◊ points expérimentaux  
— relation 1.50



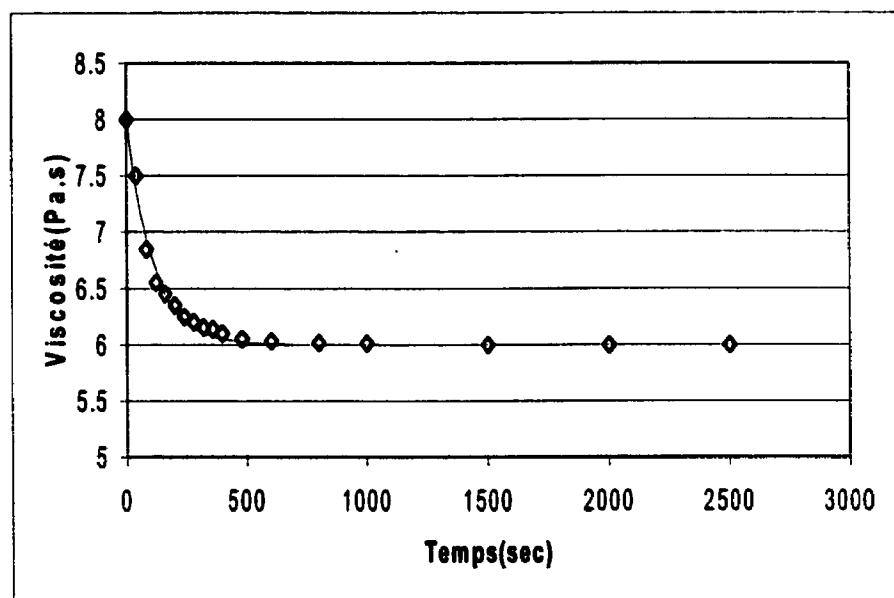
**Figure 3.18 : Essai en condition isotherme et stationnaire (Composite 10S4G)**  
 $(f_s=16\%, \dot{\gamma}=52\text{s}^{-1})$

◊ points expérimentaux  
— relation 1.50



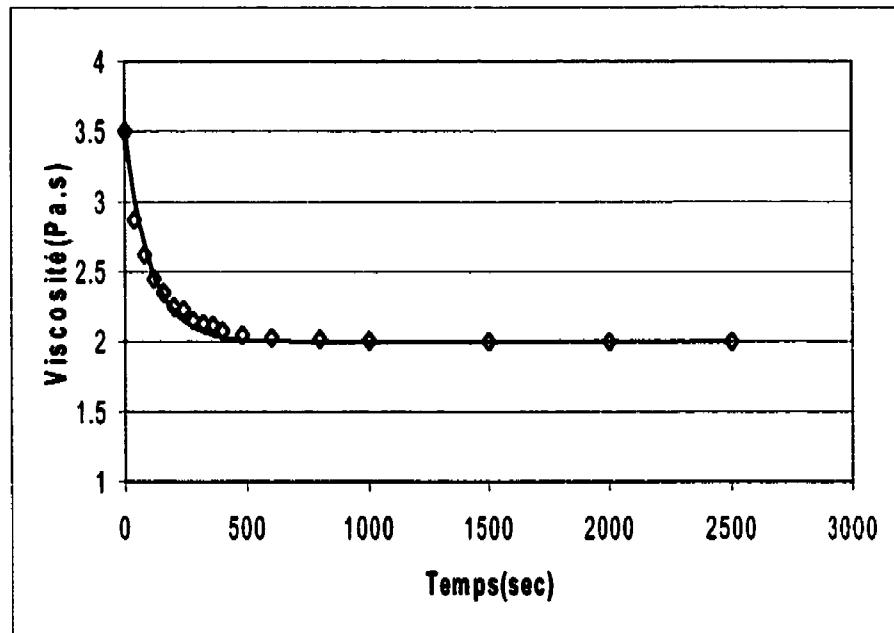
**Figure 3.19 : Essai en condition isotherme et stationnaire (Composite 10S4G)**  
 $(f_s=16\%, \dot{\gamma}=104\text{s}^{-1})$

◊ points expérimentaux  
— relation 1.50



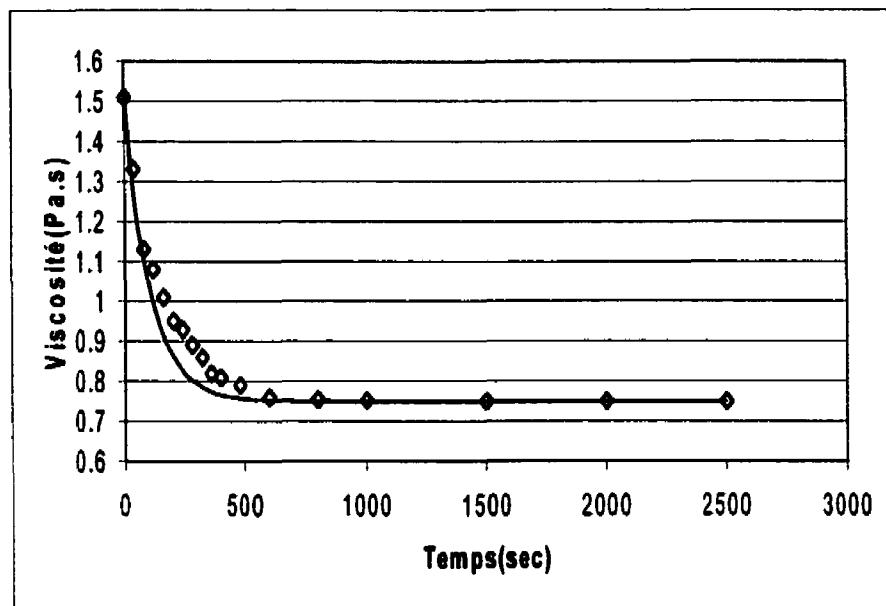
**Figure 3.20 : Essai en condition isotherme et stationnaire (Composite 10S4G)**  
 $(f_s=22\%, \dot{\gamma}=13\text{s}^{-1})$

◊ points expérimentaux  
— relation 1.50



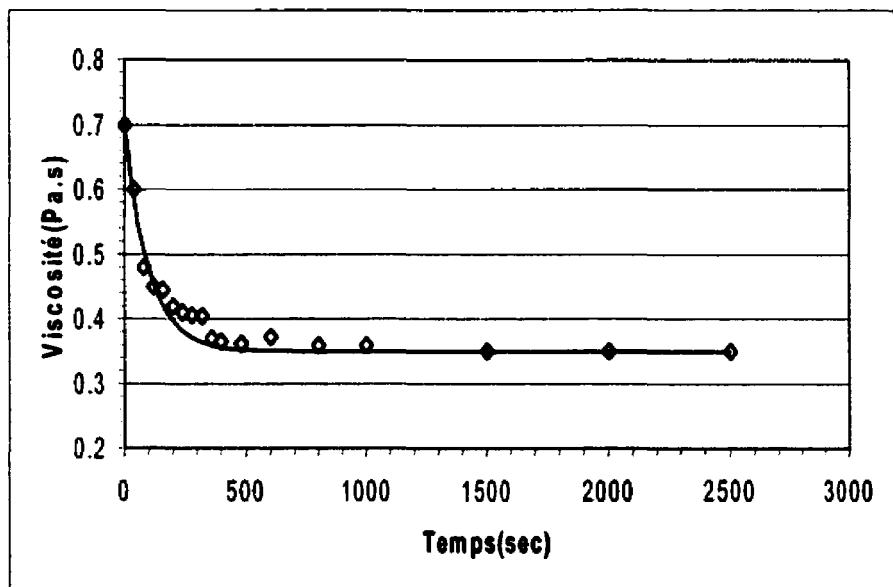
**Figure 3.21 : Essai en condition isotherme et stationnaire (Composite 10S4G)**  
 $(f_s=22\%, \dot{\gamma}=26\text{s}^{-1})$

◊ points expérimentaux  
— relation 1.50



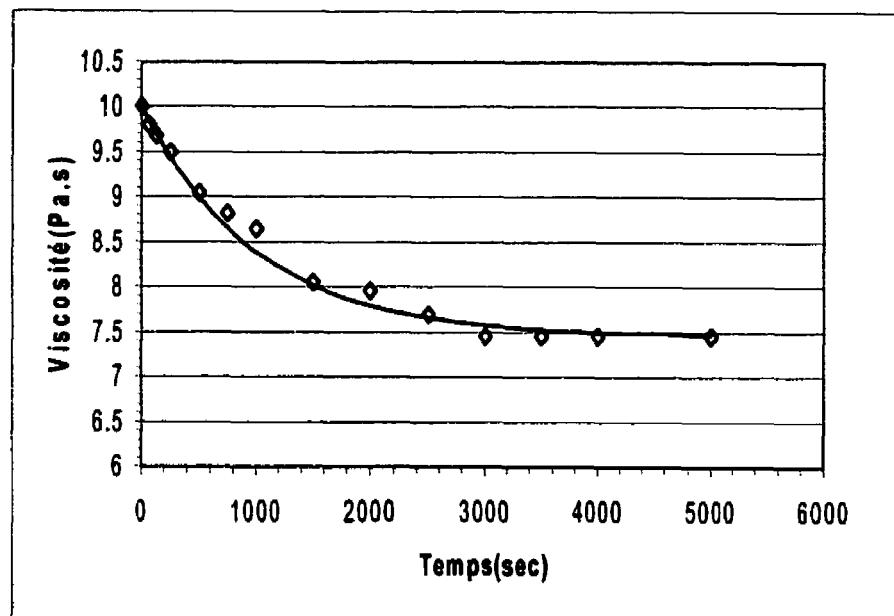
**Figure 3.22 : Essai en condition isotherme et stationnaire (Composite 10S4G)**  
 $(f_s=22\%, \dot{\gamma}=52\text{s}^{-1})$

◊ points expérimentaux  
— relation 1.50



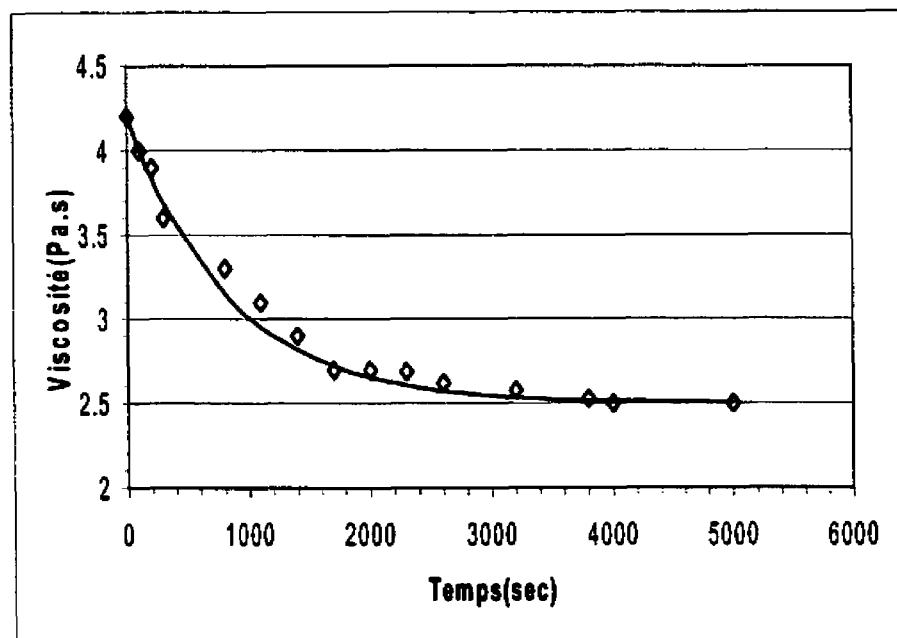
**Figure 3.23 : Essai en condition isotherme et stationnaire (Composite10S4G)  
( $f_s=22\%$ ,  $\dot{\gamma}=104\text{s}^{-1}$ )**

◊ points expérimentaux  
— relation 1.50



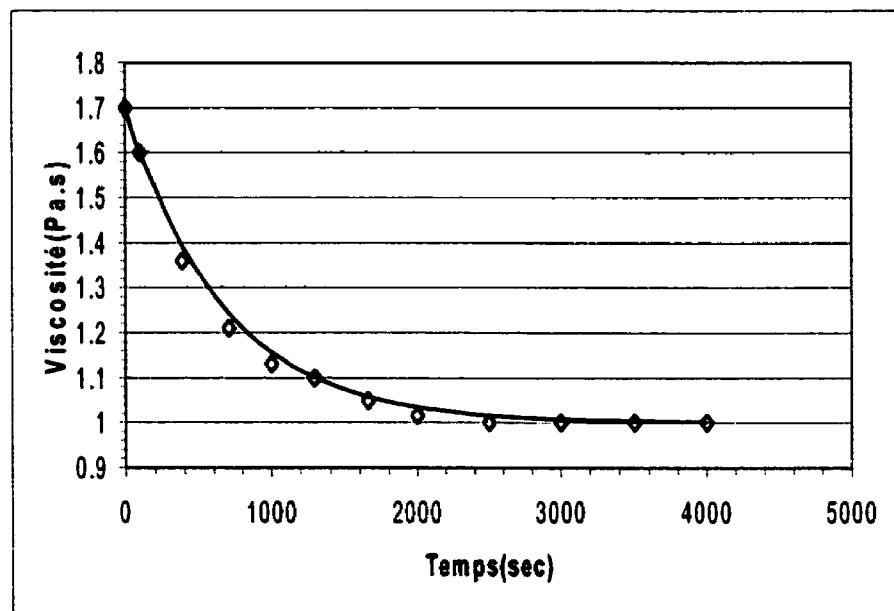
**Figure 3.24 : Essai en condition isotherme et stationnaire (Composite 10S4G)  
( $f_s=30\%$ ,  $\dot{\gamma}=13\text{s}^{-1}$ )**

◊ points expérimentaux  
— relation 1.50



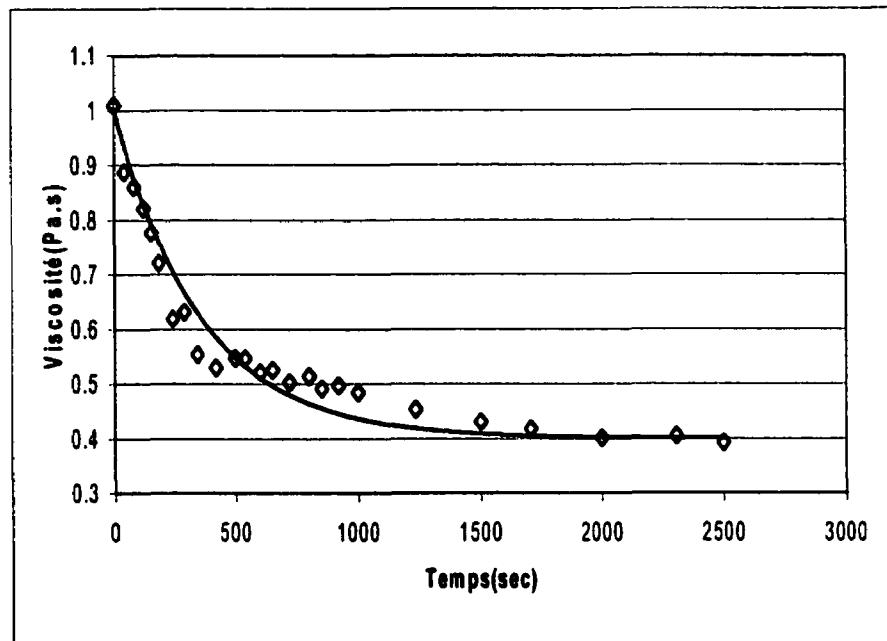
**Figure 3. 25 : Essai en condition isotherme et stationnaire (Composite 10S4G)**  
 $(f_s=30\%, \dot{\gamma}=26\text{s}^{-1})$

◊ points expérimentaux  
— relation 1.50



**Figure 3.26 : Essai en condition isotherme et stationnaire (Composite 10S4G)**  
 $(f_s=30\%, \dot{\gamma}=52\text{s}^{-1})$

◊ points expérimentaux  
— relation 1.50



**Figure 3.27 : Essai en condition isotherme et stationnaire (Composite 10S4G)**  
 $(f_s=30\%, \dot{\gamma}=104\text{s}^{-1})$

◊ points expérimentaux  
— relation 1.50

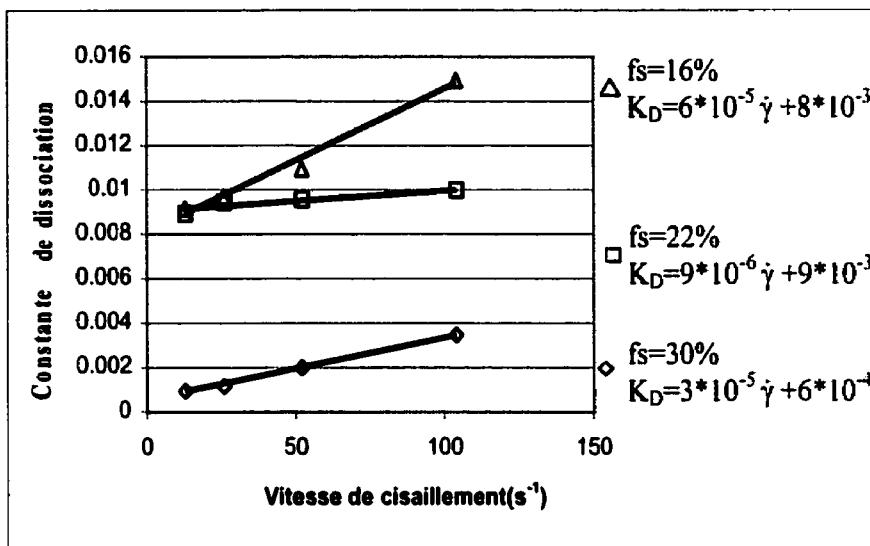


Figure 3.28 : Évolution des constantes de dissociation en fonction de la vitesse de cisaillement

◊, Δ, O Composites 10S4G

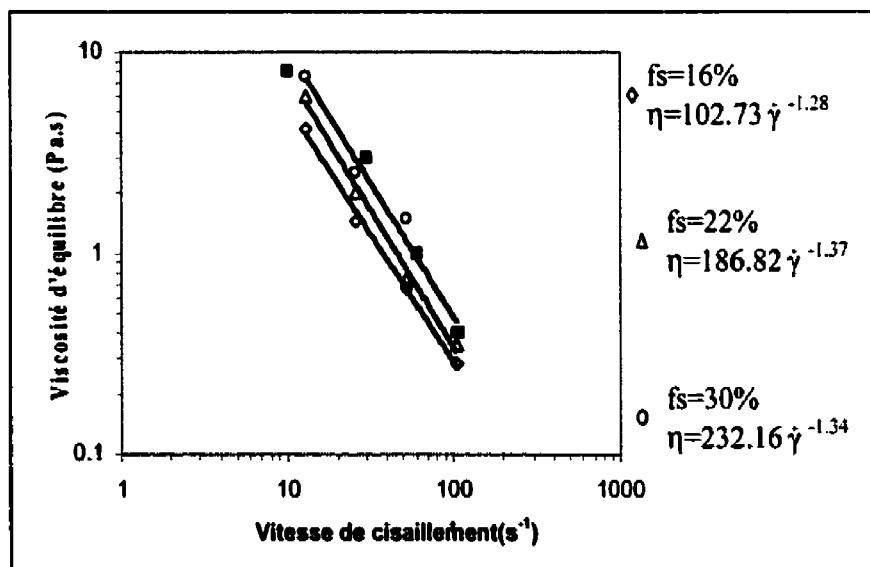
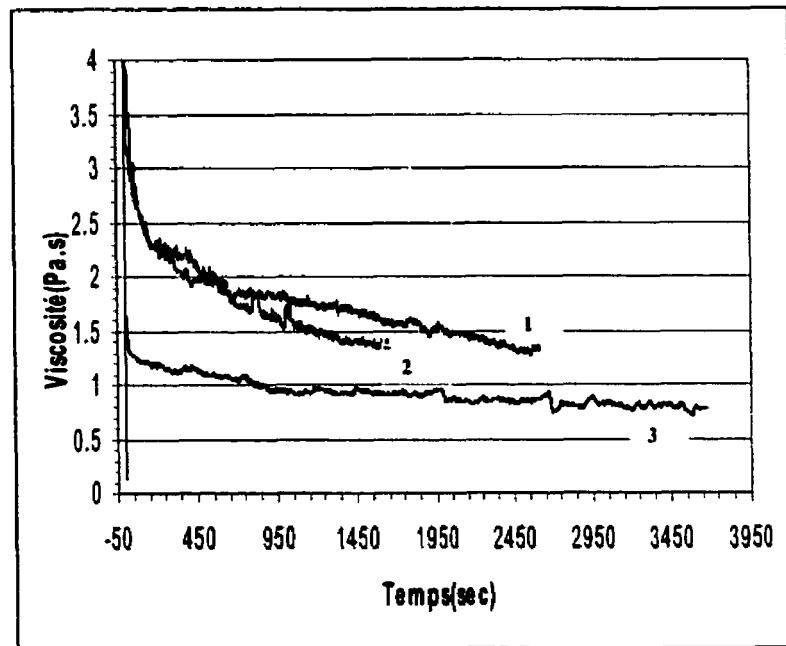


Figure 3.29 : Évolution des viscosités d'équilibre en fonction de la vitesse de cisaillement

◊, Δ, O Composites 10S4G  
■ Alliage A356 d'après [72]



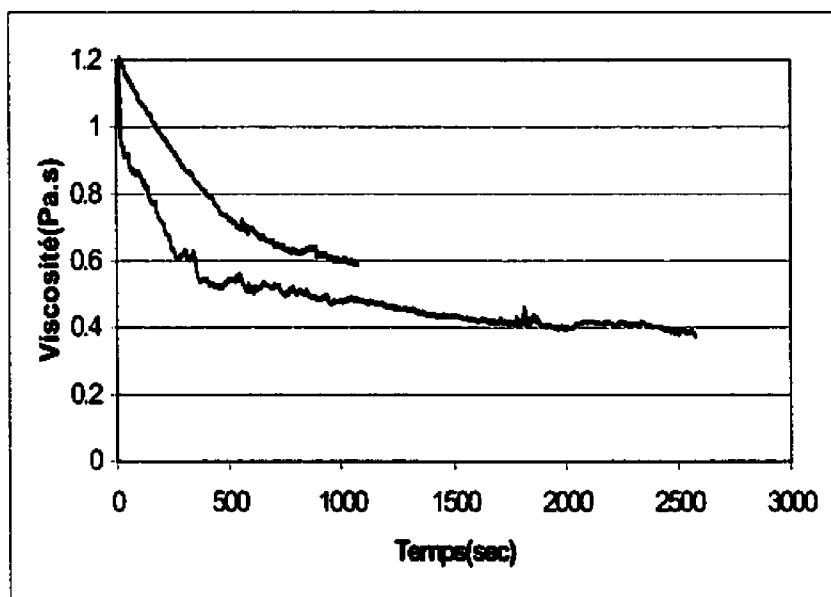
**Figure 3.30 : Effet d'un temps de repos sur la viscosité en condition stationnaire**

( $f_s=30\%$ ,  $\dot{\gamma}=104\text{s}^{-1}$ )

Courbe 1: Composite 10S4G,  $t_r=30\text{minutes}$

Courbe 2: Composite 6S3G,  $t_r=30\text{minutes}$

Courbe 3: Composite 10S4G,  $t_r=10\text{minutes}$



**Figure 3.31 : Effet de la présence de particules de renfort sur la cinétique de dégradation**

$\dot{\gamma} = 104 \text{ s}^{-1}$   
Courbe supérieure: A356 ( $f_s = 30\%$ )  
Courbe inférieure: 10S4G ( $f_s = 30\%$ )

### 3.2.2.2 MICROSTRUCTURE DES COMPOSITES RHÉOCOULÉS EN CONDITION ISOTHERME ET STATIONNAIRE

Certains échantillons, brassés en condition isotherme, ont été trempés après que leur viscosité ait atteint le plateau d'équilibre, et ont été examinés. La figure 3.32 montre une microstructure typique obtenue après brassage à une fraction solide de 30% pour une vitesse de cisaillement de  $104\text{s}^{-1}$ . On peut voir clairement sur cette micrographie, la globularisation de la phase primaire d'aluminium. Le diamètre moyen des particules sphériques a été déterminé à partir de microographies obtenues au microscope optique (telle que sur la figure 3.33) et au microscope électronique à balayage à faible grossissement (figure 3.34). Pour les essais réalisés sous une vitesse de cisaillement de  $104\text{s}^{-1}$ , un diamètre moyen de  $110\mu\text{m}$  a été trouvé. Notons que les microstructures rhéocoulées ont été obtenues à partir de billettes dendritiques caractérisées par une distance interdendritique moyenne de  $45\mu\text{m}$  au centre (voir figure 3.32) et  $30\mu\text{m}$  sur les bords des billettes.

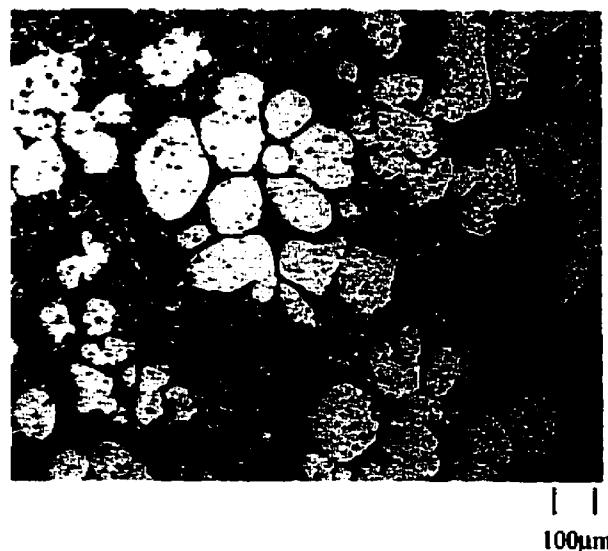
On peut voir sur les microstructures rhéocoulées que les particules de graphite sont repoussées par le front de solidification et se retrouvent dans le liquide existant au moment de la trempe. Par contre, bien que la majorité des particules de SiC se retrouve également dans le liquide, une partie de celles-ci sont "engouffrées" dans la phase primaire. Les interactions entre une particule insoluble et un front de solidification sont toujours mal comprises à ce jour. Nous avons néanmoins identifié, à partir de l'observation des microstructures rhéocoulées, différents mécanismes pouvant expliquer la présence des particules de carbure de silicium à l'intérieur de la phase primaire.

Le premier mécanisme correspond à une agglomération de la phase primaire, accompagnée d'un emprisonnement de liquide contenant des particules de carbure de silicium. Une bonne partie des particules de SiC se retrouve piégées dans la phase primaire suite à ce phénomène. Cependant, des profils de concentration réalisés le long de l'interface des particules de SiC (figure 3.35) ont montré que certaines particules de SiC ne sont pas entourées de liquide. On ne peut donc expliquer leur présence à l'intérieur de la phase primaire par le mécanisme précédent. L'explication la plus probable de la présence de ces particules à l'intérieur de la phase primaire est un engouffrement suite à une action mécanique résultant du brassage. On peut également penser que certaines particules de SiC sont piégées dans la phase primaire à cause d'un grossissement accéléré de cette dernière dû au cisaillement isotherme. En effet, localement, à cause du brassage, la vitesse du front de solidification peut être suffisante pour piéger les particules de SiC. Il semblerait également que certaines particules de SiC soient piégées car elles se retrouvent dans des zones où se produit une ségrégation de magnésium. En effet, comme le montre les cartographies X (Figure 3.36 a et b), dans certaines régions de la microstructure des composites rhéocoulés, une ségrégation de magnésium se produit en avant du front de solidification. Lorsqu'une particule de SiC se retrouve dans ces zones (figure 3.36.b), celle-ci est piégée plus facilement par le front de solidification car le magnésium joue le rôle d'agent mouillant.

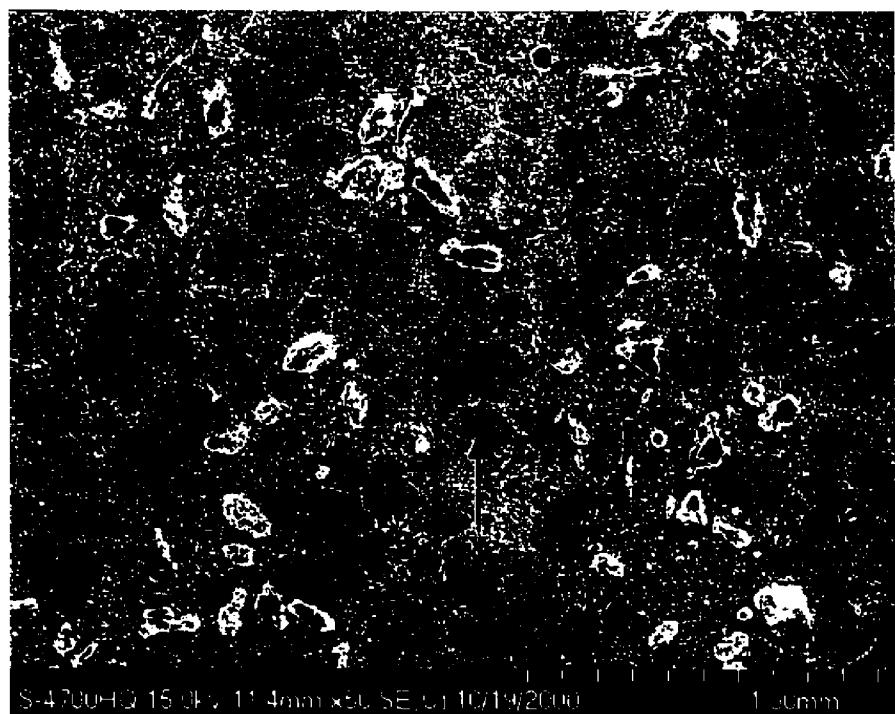
Il est évident que ces observations sont loin d'être suffisantes pour expliquer le comportement des particules de SiC face au front de solidification de la phase primaire d'aluminium. Une étude plus approfondie des microstructures rhéocoulées et en particulier de l'interface entre les particules de SiC et de la phase aluminium est nécessaire. Des techniques telle que la spectrométrie Auger pourraient être utiles à cet égard.



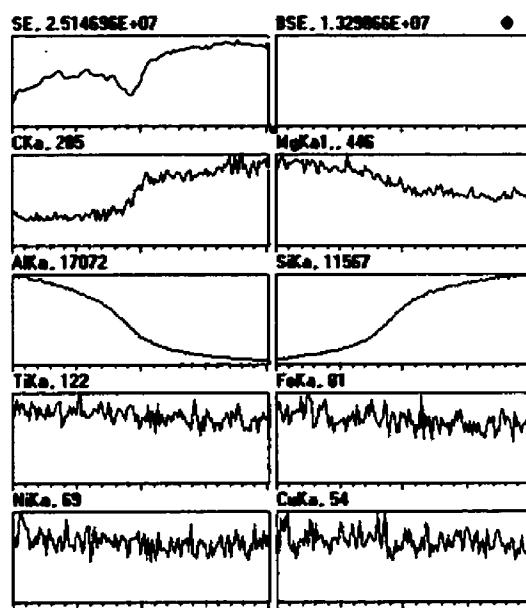
**Figure 3.32 : Structure Dendritique initiale**  
(Centre des billettes telles que reçues)



**Figure 3.33 : Structure rhéocoulée**  
( $f_s=30\%$  Composite 10S4G)

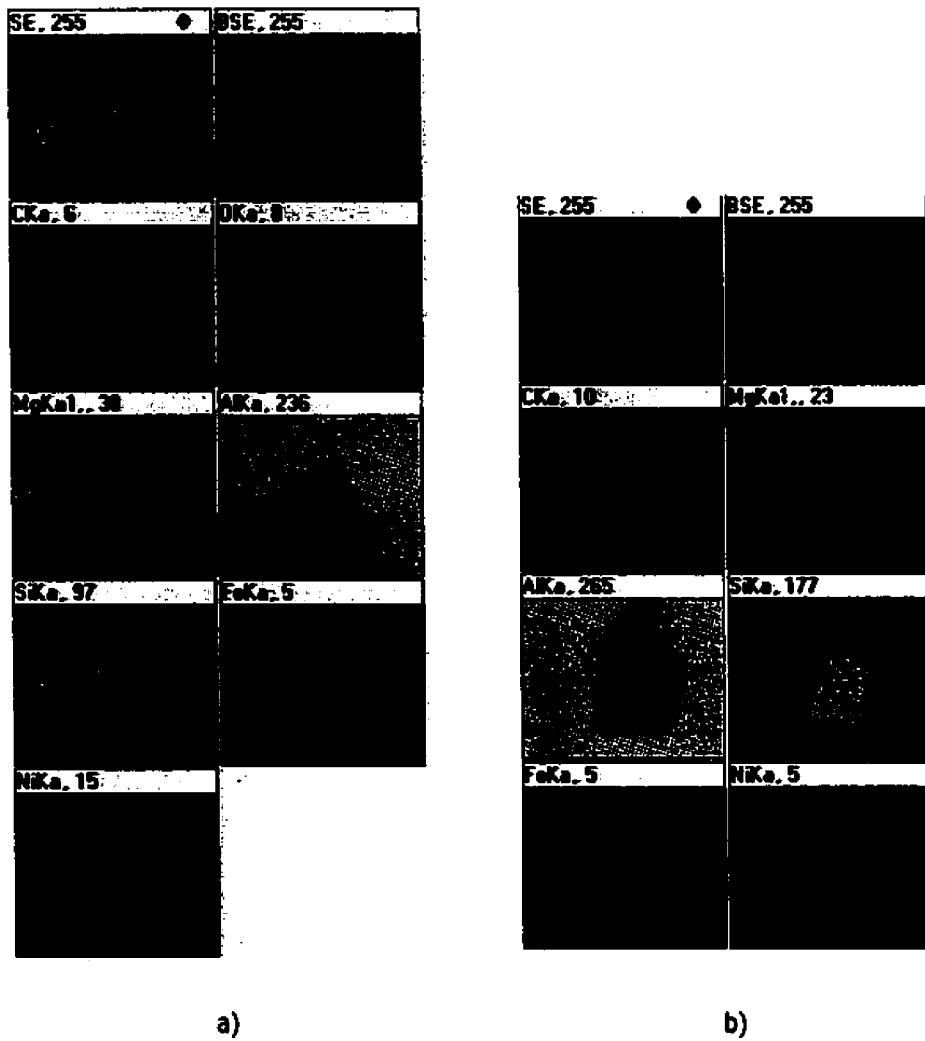


**Figure 3.34 : Microstructure rhéocoulée :Vue d'ensemble au MEB  
(composite 6S3G,  $f_s=30\%$ )**



**Figure 3.35 : Profil de concentration le long d'une particule de SiC à l'intérieur de la phase primaire**

(la zone où le profil a été réalisé est identifiée sur la Figure 3.34 par la lettre X)



**Figure 3.36 : Microstructures rhéocoulées Cartographiées.**

- Exemple de ségrégation du magnésium en avant du front de solidification
- Engouffrement d'une particule SiC se trouvant dans une zone de ségrégation

### **3.2.2.2 COMPORTEMENT RHÉOLOGIQUE EN CONDITION ISOTHERME ET TRANSITOIRE**

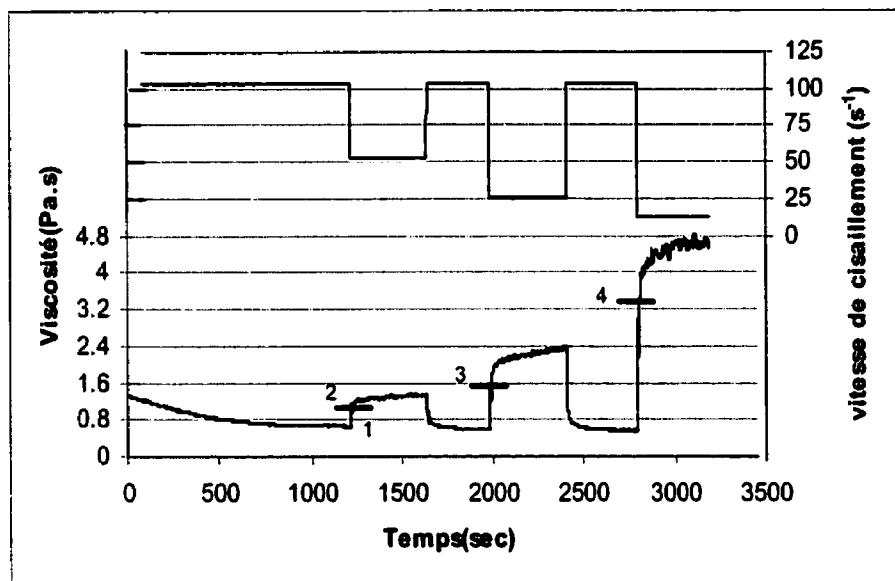
#### **3.2.2.2.1 COMPORTEMENT LORS D'UN SAUT BRUTAL DE VITESSE DE CISAILLEMENT**

La Figure 3.37 montre qu'après avoir atteint un régime régulier, un abaissement de la vitesse de cisaillement provoque une augmentation brutale de la viscosité suivie d'une augmentation graduelle vers un nouvel état d'équilibre correspondant à la nouvelle vitesse de cisaillement. La viscosité instantanée enregistrée juste après le saut est caractéristique de la structure d'équilibre établie sous la vitesse de cisaillement initiale, mais pour la nouvelle vitesse de cisaillement. Il est donc possible par cette méthode de séparer l'effet de la vitesse de cisaillement des effets de structures, ce qui n'est pas le cas des essais en condition isotherme et stationnaire. Ce type d'essais est donc un complément nécessaire aux essais en conditions isothermes et stationnaires.

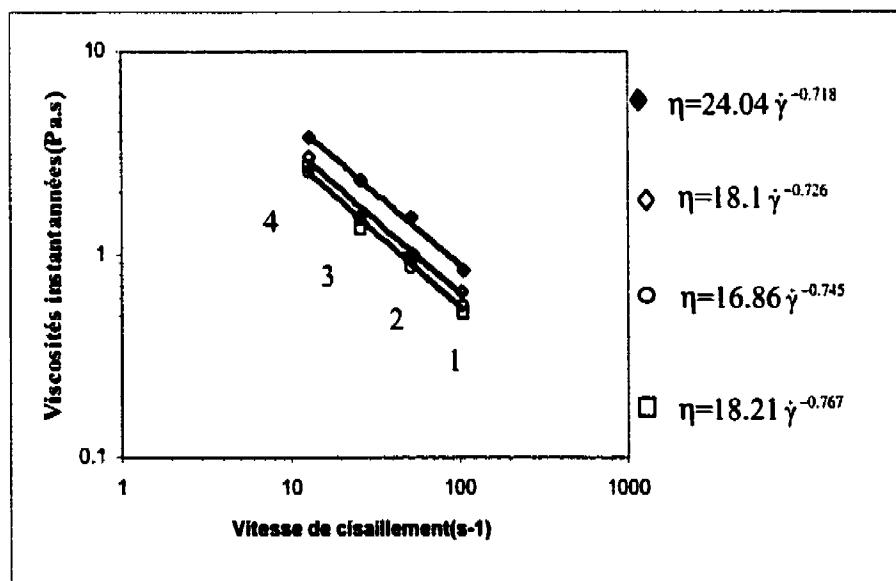
La figure 3.38 résume l'ensemble des essais de "step change" que nous avons réalisé dans la présente étude. L'évolution de la viscosité instantanée en fonction de la vitesse de cisaillement pour les composites 6S3G, 10S4G et l'alliage A356 peut être décrite par une loi de puissance dont l'indice  $n$  est égal à environ -0.7. Le comportement rhéologique en condition isotherme et transitoire est donc caractéristique d'un comportement pseudoplatique. Ce résultat soutient le fait que le comportement rhéologique anormal enregistré en condition isotherme et stationnaire est relié à des effets de structure.

L'ensemble des essais a été réalisé pour une vitesse de cisaillement initiale de  $104\text{s}^{-1}$  et pour une fraction solide primaire de 30%. Bien que ce point n'ait pas été vérifié, on peut penser

qu'à plus hautes vitesses de cisaillement ou à plus faible fraction solide, l'effet pseudoplastique devrait être de moins en moins prononcé du fait du faible état d'agglomération des structures. Pour des vitesses initiales de cisaillement élevées, le comportement rhéologique en condition isostructurale devrait tendre vers un comportement newtonien. Notons qu'un tel comportement a été enregistré par McLelland et al [62].



**Figure 3.37 : Courbe typique de "Step change" Alliage A356 ( $f_s=30\%$ )**



b)

**Figure 3.38 : Viscosités instantanées versus vitesse de cisaillement**

◊ : A356, □ : 10S4G,O 6S3G ( $f_s=30\%$ ), ◆ : A356 ( $f_s=40\%$ )

### **3.2.2.2.2 COMPORTEMENT LORS D'UNE VARIATION CONTINUE DE VITESSE DE CISAILLEMENT**

#### **3.2.2.2.2.1 COMPORTEMENT EXPÉRIMENTAL**

Lorsqu'on cisaille un fluide thixotrope, on a vu qu'on peut générer des boucles d'hystérésis en faisant varier de manière continue et en boucle la vitesse de cisaillement. La forme des boucles d'hystérésis dépend du temps de montée  $t_u$  pour atteindre la vitesse de cisaillement maximum, de la vitesse de cisaillement maximum  $\dot{\gamma}_{max}$ , du temps de maintien  $t_m$  à, du temps de descente  $t_d$  pour revenir à zéro, du temps de repos  $t_r$  avant cisaillement et enfin de la vitesse initiale de cisaillement avant l'essai  $\dot{\gamma}_0$  (voir chapitre II en II.1.4).

Dans la présente étude, nous avons fixé  $\dot{\gamma}_{max}$  à  $104\text{s}^{-1}$  et nous avons considéré des boucles symétriques ( $t_u = t_d$ ). Ce dernier point est imposé par l'appareillage à notre disposition. Nous avons étudié : l'effet de la vitesse de cisaillement initiale avant génération des boucles, l'effet du temps de montée et d'un temps de maintien à  $\dot{\gamma}_{max}$ , l'effet d'un temps de repos et enfin l'effet du nombre de cycles sur la forme des boucles d'hystérésis. Du fait que les temps de montée peuvent être faibles, l'échantillonnage des points expérimentaux s'est fait à une fréquence de 10 points par secondes pour s'assurer de la représentativité des courbes enregistrées.

L'effet de la vitesse initiale de cisaillement est reporté sur la figure 3.39. Ce dernier a été étudié en fixant le temps de repos à zéro et le temps de monté à 18 secondes. On voit clairement sur cette courbe que la vitesse initiale de cisaillement a un effet important sur l'aire

de la boucle d'hystérésis ainsi que sur la valeur de la contrainte maximale obtenue lors d'un cycle. Ces dernières sont d'autant plus importantes que la vitesse initiale de cisaillement est faible. Ce résultat va dans le même sens que les résultats obtenus en condition isotherme et en refroidissement continu et est lié au fait qu'à haute vitesse de cisaillement le degré d'agglomération initial de la structure est faible ce qui limite l'effet thixotropique. Nous n'avons observé d'effet thixotropique significatif que dans le cas de l'essai avec la plus faible vitesse initiale de cisaillement :  $\dot{\gamma}_0 = 13\text{s}^{-1}$ . Pour ce dernier, que ce soit pour le composite 6S3G et l'alliage A356, on enregistre une diminution de contrainte au cours de la partie montante du cycle de vitesse de cisaillement ainsi qu'une aire importante de la boucle d'hystérésis. Par contre, pour les vitesses initiales de cisaillement plus élevées, très peu d'effet thixotropique a été enregistré. Ceci se traduit par un comportement réversible au cours du cycle de vitesse de cisaillement. Notons que dans tous les cas, la contrainte ne revient pas à zéro en fin de cycle. Comme on peut le voir, la contrainte en fin de cycle est d'autant plus élevée que la vitesse initiale de cisaillement est faible. Notons cependant que celle-ci tend à se stabiliser à haute vitesse de cisaillement. Ce résultat a également été observé par Loué [75]. Ce comportement a été attribué à une reconstitution des structures rhéocoulées au cours du cycle de cisaillement.

L'effet du temps de montée sur la forme des boucles d'hystérésis est présenté sur la Figure 3.40. Ce dernier a été étudié, sur le composite 6S3G, en fixant le temps de repos à zéro et la vitesse de cisaillement à  $\dot{\gamma}_0 = 13\text{s}^{-1}$ . On peut voir que cet effet est identique à celui de la vitesse initiale de cisaillement, à savoir : une fermeture des boucles et une diminution de la contrainte maximale atteinte lors du cycle pour les temps longs. La seule différence est que dans le cas où la vitesse de montée est importante, la structure se détruit au cours du cycle et non avant le cycle. Ainsi, cette dernière a le temps de s'adapter à la vitesse de cisaillement et présente donc un comportement réversible. On notera que pour des temps de montée

importants, la contrainte de cisaillement ne dépend pas de la vitesse de cisaillement. Il est aussi intéressant de noter que le plateau de contrainte est égal à la contrainte de fin de cycle.

La Figure 3.41 montre qu'un temps de repos avant cisaillement a un effet important sur la forme des boucles d'hystérésis du composite 6S3G et de l'alliage A356. On peut voir sur cette dernière qu'après un temps de repos, la réponse immédiate à la mise sous cisaillement est une augmentation de contrainte (portion OA des boucles) puis une réponse thixotropique (portion AB des boucles) à partir d'une vitesse de cisaillement critique. La partie thixotropique des boucles est d'autant plus faible que le temps de montée est faible. En effet pour des temps de montée faible, la destruction de la structure sous le cisaillement est moins importante. Notons également que le pic de contrainte enregistré après un temps de repos est d'autant plus important que la fraction solide est importante (figure 3.42). Ce dernier point s'explique par le fait que pour un même temps de repos, l'agglomération est favorisée par la présence d'une plus grande quantité de solide.

Les figures 3.43 et 3.44 montrent qu'un temps de maintien à  $\dot{\gamma}_{\max}$  influence fortement la forme des boucles d'hystérésis. Comme on peut le constater, celui-ci génère une diminution de contrainte similaire à celle que l'on a enregistrée lors des essais en condition stationnaire. Ainsi lorsqu'on fait subir des cycles de cisaillements supplémentaires à la gelée, on observe une diminution de la largeur des boucles à cause de la destruction de la structure dans les cycles précédents. La diminution de contrainte est de plus en plus faible à chaque cycle et on finit par atteindre un régime régulier. Lorsque ce dernier est atteint, les boucles sont complètement fermées et la gelée présente un comportement réversible. Comme on pouvait s'y attendre, en comparant les figures 3.43 et 3.44, on observe que le temps nécessaire pour atteindre le régime régulier est d'autant plus long que le temps de maintien est faible. Afin d'évaluer l'état de la

structure avant chaque cycle, nous avons imposé un temps de repos avant cisaillement. On peut voir sur les figures 3.43 et 3.44 que la contrainte atteinte à la fin de la montée de chaque cycle est plus élevée que la contrainte atteinte lors du maintien au cycle précédent. Ceci prouve que la structure s'est reconstituée lors du temps de repos. Cependant à chaque cycle la différence entre la contrainte maximum et la contrainte minimum diminue (même pour les essais où  $t_m=t_r$ , voir figure 3.44), ce qui montre que la cinétique de destruction sous le cisaillement est plus rapide que la cinétique de reconstitution lors du repos. Notons que ce résultat va dans le même sens que les résultats trouvés lors des essais de "Step change" (voir figure 3.37)

En résumé, il ressort de nos résultats que : lorsqu'on fait subir un cycle de cisaillement aux gelées semi-solides de l'alliage A356 et du composite 6S3G, on enregistre un comportement réversible lorsque la structure de celles-ci est dégradée avant la mise sous cisaillement. La dégradation de la structure peut être le résultat d'un cisaillement initial élevé, d'un cisaillement stationnaire (temps de maintien) ou d'un grand nombre de cycles. D'un autre côté, lorsque la structure est dans un état aggloméré, on enregistre un comportement thixotropique d'autant plus élevé que le degré d'agglomération est important. Ce dernier est favorisé pour un temps de repos élevé ou une faible vitesse initiale de cisaillement. Il semblerait que, dans les mêmes conditions initiales, le degré de thixotropie soit similaire pour le composite 6S3G et l'alliage A356. Notons que, comme on l'a déjà indiqué, les structures agglomérées présentent un comportement réversible lorsque les temps de montée sont longs.

### 3.2.2.2.2 MODÉLISATION DES BOUCLES D'HYSTÉRÉSIS EXPÉRIMENTALES

Dans le cas des essais en conditions stationnaires, nos résultats ont montré que le régime transitoire associé à la dégradation de la structure interne des gelées semi-solides peut être décrit par la relation (voir 3.2.2.1 et 1.4.2.2.2.3):

$$\frac{d\lambda}{dt} = K_D \lambda_e - K_D \lambda \quad (3.5)$$

Nous avons donc décidé de reprendre cette équation d'état et de l'intégrer dans le cas où la vitesse de cisaillement dépend du temps (cas des essais d'hystérésis). Rappelons que dans la relation 3.5,  $\lambda_e$  et  $K_D$  sont respectivement le paramètre structural d'équilibre et la constante cinétique de dissociation. Comme on l'a vu (relation 1.49 et figure 3.28) ces deux variables dépendent de la vitesse de cisaillement. Ainsi, dans le cas où la vitesse de cisaillement dépend du temps, la relation 3.5 doit s'écrire de la façon suivante :

$$\frac{\partial}{\partial t} \lambda(t) = K_D \lambda_e(\dot{\gamma}(t)) - K_D(\dot{\gamma}(t))\lambda(t) \quad (3.6)$$

ou  $\dot{\gamma}(t)$  correspond au profil de la vitesse de cisaillement

Nous avons considéré le cas d'un profil linéaire et symétrique de la vitesse de cisaillement similaire à celui des essais d'hystérésis présentés ci-dessus :

$$\dot{\gamma}(t) = \begin{cases} \frac{\dot{\gamma}_{max}}{t_u} t & \text{pour } 0 < t < t_u \\ 2\dot{\gamma}_{max} - \frac{\dot{\gamma}_{max}}{t_u} t & \text{pour } t_u < t < 2t_u \end{cases} \quad (3.7)$$

Où  $t_u$  est le temps de montée pour atteindre la vitesse de cisaillement maximale  $\dot{\gamma}_{max}$

Nous avons résolu l'équation différentielle donnée par la relation 3.6 en multipliant les deux membres de cette dernière par une fonction intégrative  $F$  :

$$F \frac{d}{dt} \lambda(t) = FK_D \lambda_e(t) - FK_D(t) \lambda(t) \quad (3.8)$$

En posant :

$$\frac{d(F\lambda)}{dt} = F \frac{d\lambda}{dt} + \frac{dF}{dt} \lambda$$

Il vient :

$$\frac{d(F\lambda)}{dt} = FK_D \lambda_e \quad (3.9)$$

Et :

$$\frac{dF}{dt} = FK_D \quad (3.10)$$

L'intégration des relations 3.9 et 3.10 donne :

$$F\lambda = \int FK_D \lambda_e dt + A \quad (3.11)$$

Et :

$$F = \exp \left[ \int_0^t K_D dt \right] \quad (3.12)$$

Où A est une constante d'intégration

En combinant les relations 3.11 et 3.12, il vient

$$\lambda(t) = \left[ \int \left( K_D \lambda_e \exp \left( \int K_D \left[ \gamma(t) \right] dt \right) \right) dt + \lambda_0 \right] \exp \left( - \int K_D \left[ \gamma(t) \right] dt \right) \quad (3.13)$$

Où  $\lambda_0$  est la valeur du paramètre structural au temps t égale à 0.

Notons que la relation 3.13 permet de suivre l'évolution du paramètre structural en fonction du temps quelque soit le profil de vitesse de cisaillement. Cependant, cette dernière n'a pas toujours de solution analytique.

Dans le cas d'un profil de vitesse de cisaillement du même type que celui donné par la relation 3.7, Cheng et Evans [110] ont intégré la relation 1.48 en se basant sur les hypothèses du modèle thixotropique de Moore [111] :

$$K_D = a + b\dot{\gamma}$$

$$K_D \lambda_e = a$$

Où a et b sont deux constantes

La première hypothèse va dans le sens de nos résultats expérimentaux (voir figure 3.28). Afin de vérifier la validité de la seconde hypothèse, nous avons évalué à partir des essais en condition isotherme la variation du produit  $K_D \lambda_e$  en fonction de la vitesse de cisaillement. Comme on l'a déjà mentionné, la grandeur du paramètre structural d'équilibre ne peut pas être évaluée expérimentalement. Néanmoins, la relation 1.50 montre que celle-ci peut être obtenue indirectement par le rapport :  $\lambda_e = \eta_0 / \eta_e$ . La figure 3.45 montre que pour une fraction solide de 30%, l'hypothèse de  $K_D \lambda_e$  indépendant de la vitesse de cisaillement est relativement bien fondée dans le cas de la présente étude. Une valeur moyenne de 0.001 décrit assez bien nos résultats expérimentaux. Notons cependant que cette valeur est différente de la constante « a », déterminée expérimentalement.

Notons que l'hypothèse  $K_D \lambda_e = a$  revient à supposer que la variable interne d'équilibre est inversement proportionnelle à la constante de dissociation et donc est proportionnelle au temps nécessaire pour dégrader la structure. Cette hypothèse revient donc à considérer une cinétique du premier ordre ce qui semble être justifié dans le cas des gelées semi-solides.

Nous avons résolu la relation 3.13 en considérant une valeur du produit  $K_D \lambda_e$  égale à une constante K différente de la constante a. Ceci nous permet d'avoir une constante

indépendante et ajustable. Pour décrire la variable interne de structure lors de la montée et de la descente, nous avons résolu la relation 3.13 à l'aide des parties appropriées de la relation 3.7. La résolution de la relation 3.13 a donné (voir annexe B):

$$t \in [0, t_u] \quad \lambda_{\text{monté}} = K \beta^{-0.5} y(u) + \exp(\xi) \exp(-u^2) [\lambda_0 - K \beta^{-0.5} y(\xi^{0.5})] \quad (3.14)$$

$$t \in [2t_u, t_u] \quad \lambda_{\text{desct}} = -\frac{\sqrt{\pi}}{2} K \beta^{-0.5} \exp(v^2) [\text{erf}(v_u) - \text{erf}(v)] + \lambda_{\text{odsc}} \exp(v^2) \exp(-v_u^2)$$

Avec :

$$\beta = \frac{b}{2} \frac{\dot{\gamma}_{\max}}{t_u}$$

$$\xi = \frac{a^2}{2b} \frac{t_u}{\dot{\gamma}_{\max}} = \beta \theta^2$$

$$\theta = \frac{at_u}{b\dot{\gamma}_{\max}}$$

$$\chi = \theta + 2t_u$$

$$u = \beta^{0.5} (t + \theta)$$

$$v = \beta^{0.5} (t - \chi)$$

$$V_u = V(t_u) = \beta^{0.5} (t_u - \chi)$$

$$y(u) = \exp(-u^2) \int_0^u \exp(t^2) dt = \text{Intégrale de Dawson}$$

$$\text{erf}(v) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^v \exp(-t^2) dt = \text{Fonction erreur}$$

$\lambda_0$  et  $\lambda_{0\text{desc}}$  sont les grandeurs des paramètres de structures en début de cycle lors de la montée et de la descente. Pour des raisons de continuité la constante d'intégration pour la descente doit être fixée de manière à ce que  $\lambda_{\text{montée}}(t_u) = \lambda_{\text{descente}}(t_u)$ .

À chaque cycle, la procédure de calcul est la même mais les constantes d'intégration changent de façon à ce que les relations suivantes soient satisfaites :

$$\lambda_{n \text{ montée}}(t_u) = \lambda_{n \text{ descente}}(t_u)$$

$$\lambda_{n \text{ montée}}(0) = \lambda_{n-1 \text{ descente}}(0)$$

Où n est le nombre de cycles

Tout comme dans les essais en condition isotherme, on n'a pas accès expérimentalement au paramètre structural. Il faut donc relier celui-ci à une grandeur mesurable, par exemple la contrainte de cisaillement. Par analogie avec le modèle de Lapasin [69], nous avons choisi une relation du type :

$$\tau = \lambda f_1(\dot{\gamma}) + f_0(\dot{\gamma}) \quad (3.15)$$

Où  $f_1$  et  $f_2$  sont deux fonctions de la vitesse de cisaillement.

Nos résultats ayant montré que les structures dégradées présentent un comportement du type pseudoplastique et réversible, nous avons choisi  $f_1$  et  $f_2$  de façon à ce que :

$$\tau = \dot{\gamma}^n (A + B\lambda) \quad (3.16)$$

Où A et B sont des constantes qui dépendent de la fraction solide et du degré d'agglomération de la structure et n est le coefficient de sensibilité à la vitesse de cisaillement de la contrainte. Ce dernier peut être relié au coefficient de sensibilité à la vitesse de la viscosité par la relation:  $n=n'+1$ .

Le modèle présenté ci-dessus prend en compte toutes les variables qui influencent la forme des boucles d'hystérésis, c'est à dire : le temps de montée, la vitesse de cisaillement maximale, l'état de référence (au travers de la valeur initiale de la variable interne de structure) et le nombre de cycles. Il reste néanmoins à déterminer dans quelle mesure il est possible de reproduire le comportement expérimental.

Nous avons réalisé des simulations afin d'évaluer la validité du modèle. L'ensemble de ces dernières a été réalisé pour une fraction solide de 30%. Comme le montre les relations 3.14 et 3.16, pour conduire les simulations, un certain nombre de variables doit être fixé dans le modèle. Deux types de variables sont à considérer : les variables fixées par les conditions expérimentales, à savoir :  $t_u$  et  $\dot{\gamma}_{max}$  et les constantes intervenant dans le modèle:  $\lambda_0$ ,  $K_D$ ,  $K_D\lambda_e$ ,  $m$ , A et B. Comme l'ont montré nos résultats expérimentaux, la forme des boucles d'hystérésis dépend en grande partie de l'état initial des gelées semi-solides. Le problème est donc d'évaluer dans quelle mesure on peut reproduire les boucles expérimentales en ne jouant que sur la variable de structure  $\lambda_0$ .

Nous avons donc fixé les constantes du modèle. La grandeur du produit  $K_D\lambda_e$  a été prise égale à la valeur moyenne expérimentale, à savoir : 0.001 (voir Figure 3.45). Les constantes a et b intervenant dans  $K_D$  ont été prises d'après les résultats des essais en condition stationnaire (Figure 3.28). Le coefficient n a été fixé à 0.2, ce qui correspond au coefficient de sensibilité à la vitesse de cisaillement trouvé dans les essais en refroidissement continu et en condition isostructurale ( $n'=-0.8$ ). Les valeurs de A et B ont été fixées de manière à accorder les résultats expérimentaux. Des valeurs de A et B égale respectivement à 110 et 30 représentent assez bien les valeurs des contraintes de cisaillement enregistrées pour une fraction solide de 30%.

Les résultats des simulations montrent qu'avec cet ensemble de constantes, nous avons été en mesure de reproduire les résultats expérimentaux en ne jouant que sur la valeur de  $\lambda_0$ . La valeur de cette dernière a été fixée en fonction du niveau d'agglomération présumé des structures rhéocoulées. Nous avons fixé, de façon arbitraire,  $\lambda_0$  à 1 dans le cas des essais caractérisés par les conditions initiales  $\dot{\gamma}_0 = 13\text{s}^{-1}$  et  $t_r=10$  minutes. On justifie cette démarche par le fait que l'observation des microstructures rhéocoulées a montré que dans la gamme des conditions étudiées, ces dernières correspondent au niveau d'agglomération de la phase primaire le plus élevé.

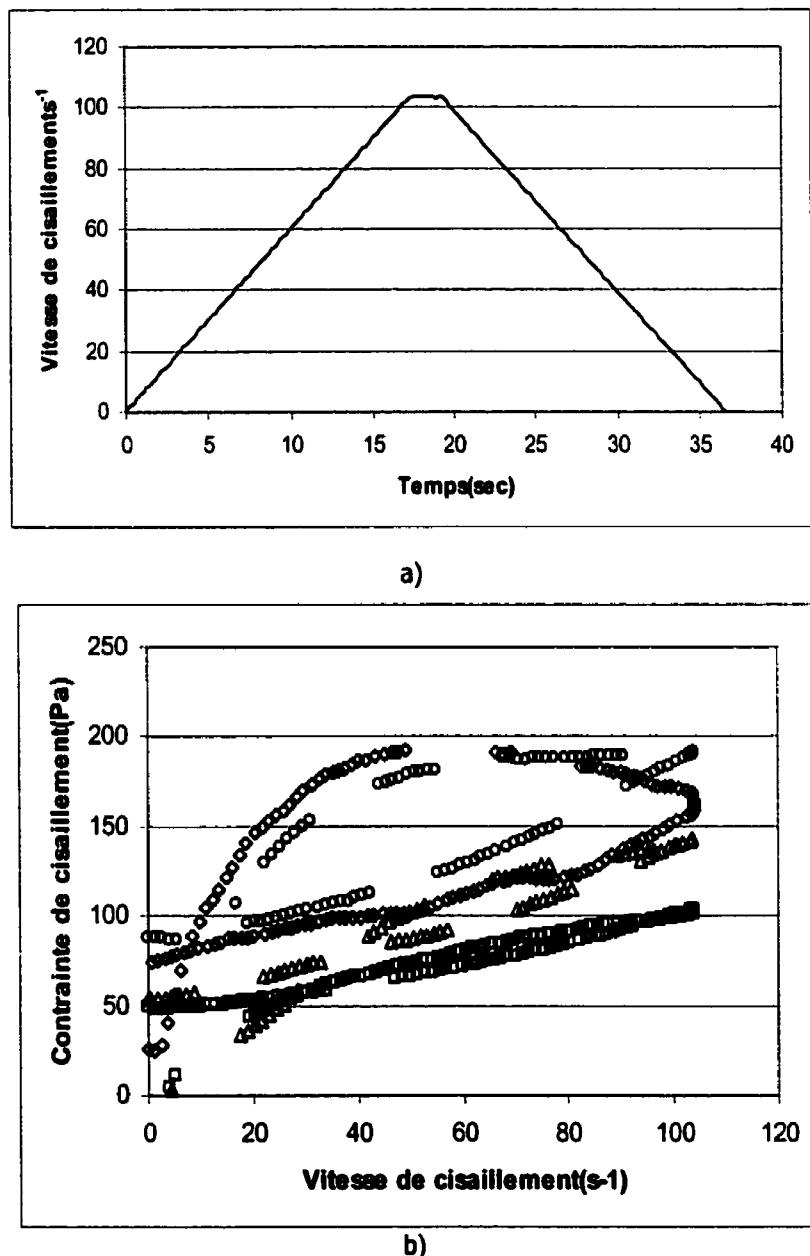
Deux types de simulations ont été réalisés. Les premières, sur des essais pour lesquels les gelées semi-solides sont caractérisées par un état de structures identique donc par la même valeur de  $\lambda_0$ . Ces simulations correspondent à des essais réalisés avec une vitesse initiale de cisaillement et un temps de repos avant cisaillement identiques. Le deuxième type de simulation a été réalisé sur des essais pour lesquels l'état initial de la structure des gelées semi-solides est une variable. Ces essais sont caractérisés par des valeurs de vitesse initiale de cisaillement et de temps de repos variables.

La Figure 3.46 montre que dans le cas des essais caractérisés par  $t_r=18\text{s}$  et  $t_i=0$ , on peut rendre compte de la diminution de la contrainte et de la largeur des boucles que l'on enregistre en augmentant la vitesse de cisaillement de  $13$  à  $104\text{s}^{-1}$  en diminuant la valeur de  $\lambda_0$  de  $0.6$  à  $0.1$ . La figure 3.47 montre, quant à elle, que pour les essais caractérisés par  $\lambda_0=1$  (voir plus haut), on est en mesure de reproduire fidèlement l'effet du temps de montée.

Le problème majeur de cette approche est l'évaluation du paramètre  $\lambda_0$ . Dans le cas présent, celui-ci a été fixé de manière arbitraire (en respectant néanmoins les tendances

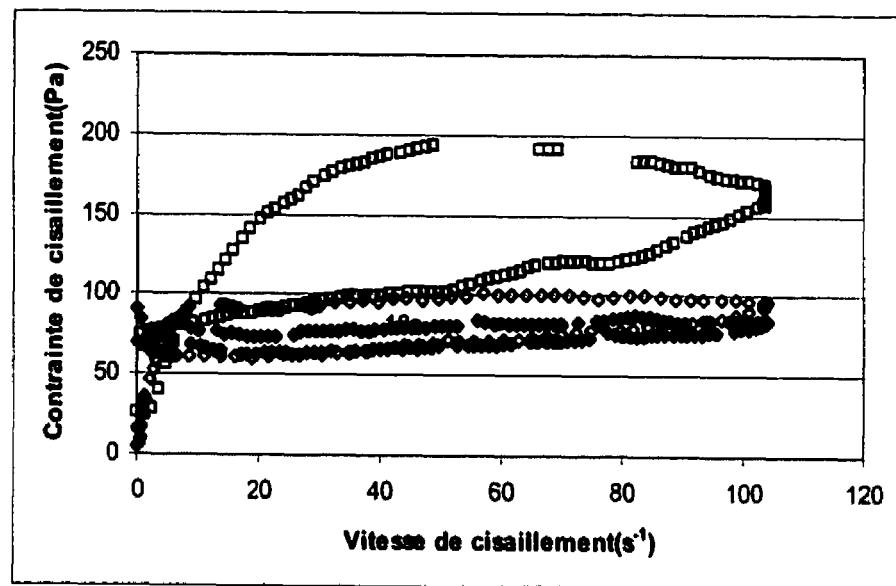
expérimentales) de façon à décrire au mieux les résultats expérimentaux. Il est évident que pour vérifier de manière plus précise la validité du modèle, une approche expérimentale doit être mise au point pour évaluer la variable de structure initiale. Une étude des microstructures rhéocoulées dans différentes conditions expérimentales (vitesse de cisaillement et temps de repos) devrait être réalisée à cet effet.

Les simulations réalisées dans les conditions expérimentales de la présente étude sont assez éloignées des conditions industrielles de mise en forme des gelées semi-solides. En effet celles-ci correspondent typiquement à des temps de montée de l'ordre de 0.1s et des vitesses de cisaillement pouvant atteindre  $1000\text{s}^{-1}$ . Nous avons donc, à titre d'exemple, extrapolé les simulations pour des vitesses de cisaillements maximums plus élevées et des temps de montée plus faible. Comme on pouvait s'y attendre, la figure 3.48 montre que pour des temps de montée correspondant à nos conditions expérimentales, une augmentation de la vitesse de cisaillement maximum augmente le pic de contrainte et le niveau de dégradation de la structure. La figure 3.49, quant à elle, montre qu'avec nos valeurs de  $K_0$ , l'effet de structure est limité dans les conditions de mise en forme des gelées semi-solides. Par contre si on suppose une cinétique 10 fois plus importante que celle qui caractérise les matériaux que nous avons évalués, les effets de structures deviennent importants même dans les conditions extrêmes que nous avons fixé (figure 3.49). Ceci montre qu'une démarche raisonnée est importante quand on choisit les modèles rhéologiques supposés rendre compte de la mise en forme à l'état semi-solide. Nos simulations montrent que les matériaux caractérisés par une cinétique lente, dans les conditions de mise en forme industrielles, sont peu sensibles aux effets de structure. Nous pensons que l'utilisation d'une loi de puissance simple pour rendre compte du comportement rhéologique de ces gelées semi-solides devrait être suffisante. Par contre pour les matériaux à cinétique rapide, les modèles rhéologiques doivent intégrer les effets thixotropiques.



**Figure 3.39 : Effet de la vitesse initiale de cisaillement sur la forme des boucles d'hystérésis ( $f_s=30\%$ )**

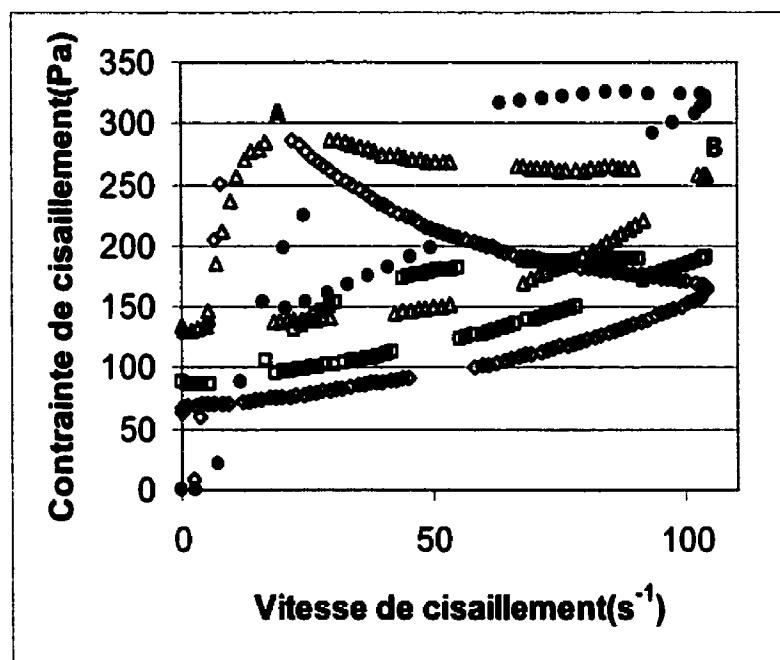
- a) Profil expérimental de vitesse de cisaillement lors du cycle
- b) Boucle d'hystérésis correspondante:  $\diamond : \dot{\gamma}_0 = 13\text{s}^{-1}$ ,  $\Delta : \dot{\gamma}_0 = 52\text{s}^{-1}$ ,  $\square : \dot{\gamma}_0 = 104\text{s}^{-1}$  (6S3G)  
 $\circ : \dot{\gamma}_0 = 13\text{s}^{-1}$  (A356)  
 $(t_u = 18\text{s}, t_r = t_m = 0)$



**Figure 3.40 : Effet du temps de montée sur les boucles d'hystérésis ( $f_s=30\%$ )**

□ :  $t_u=18s$ , ◊ :  $t_u=1 \text{ minute}$ , ● :  $t_u=2 \text{ minutes}$  (6S3G)

$$(\dot{\gamma}_0 = 13 s^{-1}, t_r = t_m = 0)$$



**Figure 3.41: Effet d'un temps de repos sur les boucles d'hystérésis ( $f_s=30\%$ )**

$\Delta$  :  $t_r=10$  minutes (6S3G)  $\square$  :  $t_r=0$  (6S3G)  $\circ$  :  $t_r=10$  minutes(A356)

$(\dot{\gamma}_0=13 S^{-1}, t_u=18s, t_m=0)$

$\bullet$  :  $t_r=10$  minutes (6S3G)  $(\dot{\gamma}_0=13 S^{-1}, t_u=6s, t_m=0)$

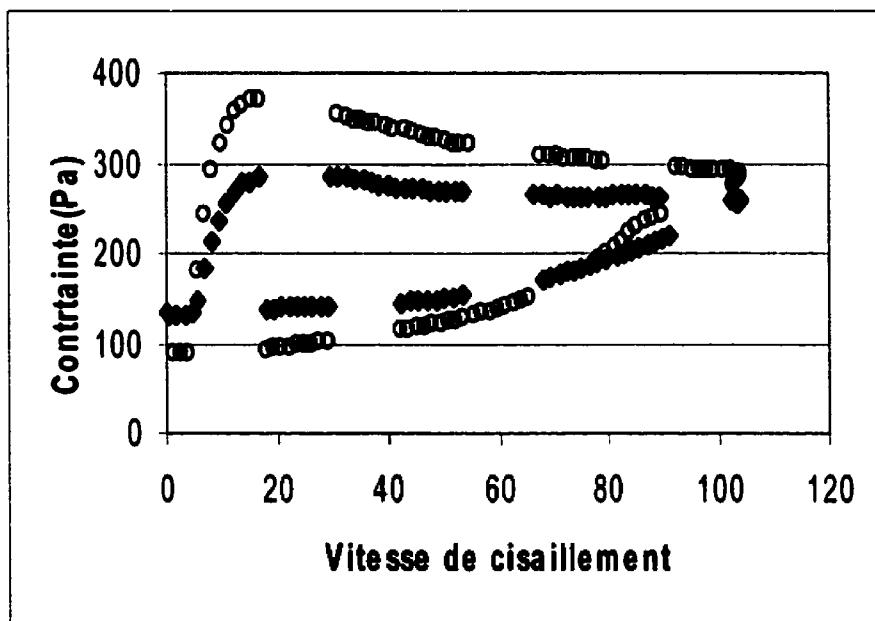
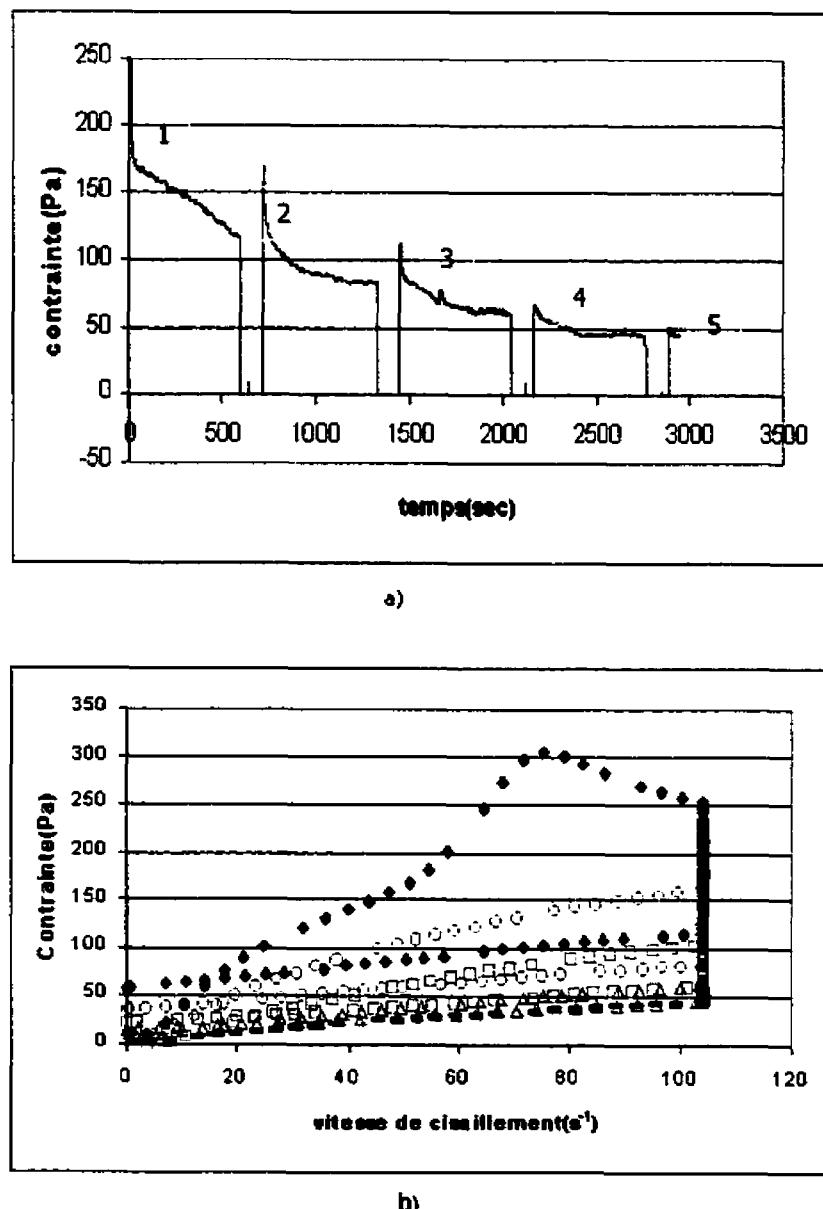


Figure 3.42 : Effet d'un temps de repos sur les boucles d'hystérésis

♦ ( $f_s=30\%$ ) 6S3G

○ ( $f_s=35\%$ ) 6S3G

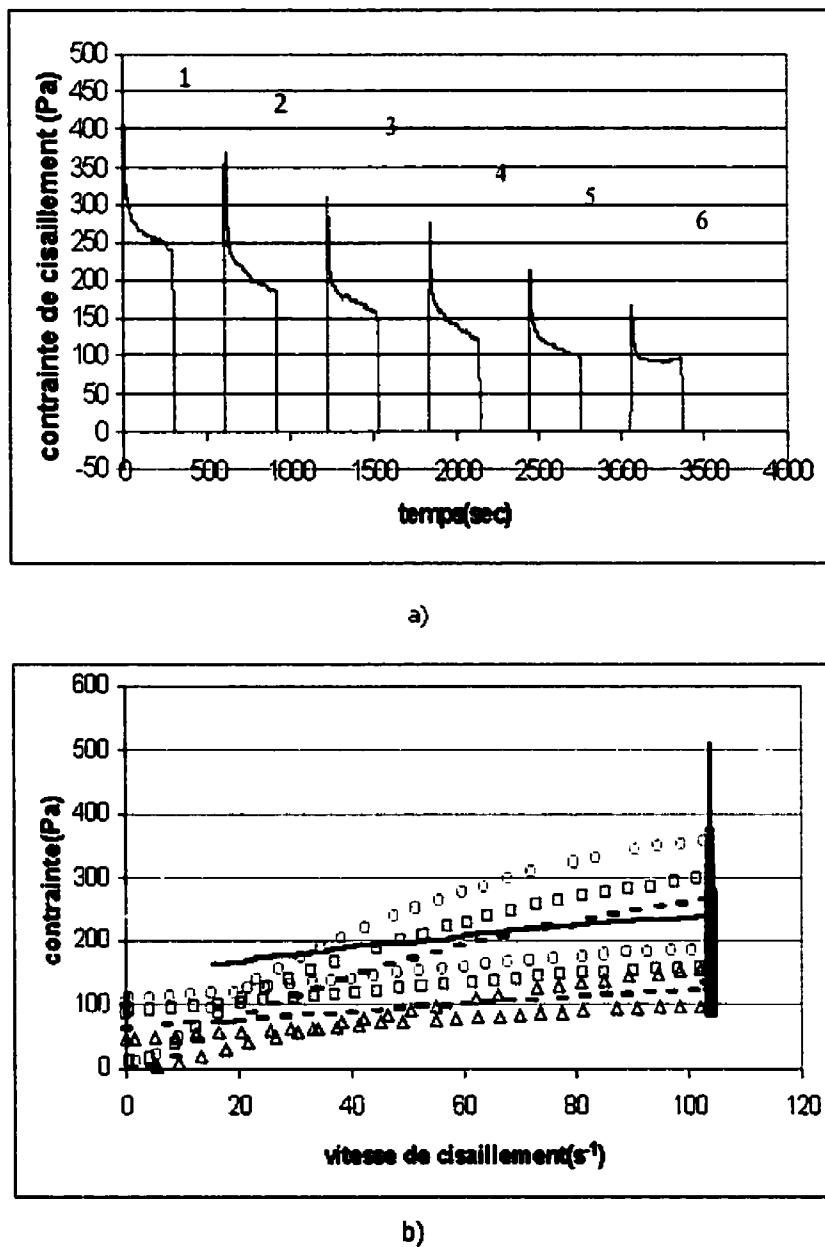
( $\dot{\gamma}_0 = 13 \text{ s}^{-1}$ ,  $t_u = 18 \text{ s}$ ,  $t_m = 0$ ,  $t_r = 10 \text{ minutes}$ )



**Figure 3.43 : Effet combiné à un temps de maintien et un temps de repos ( $f_s=30\%, 6S3G$ )**

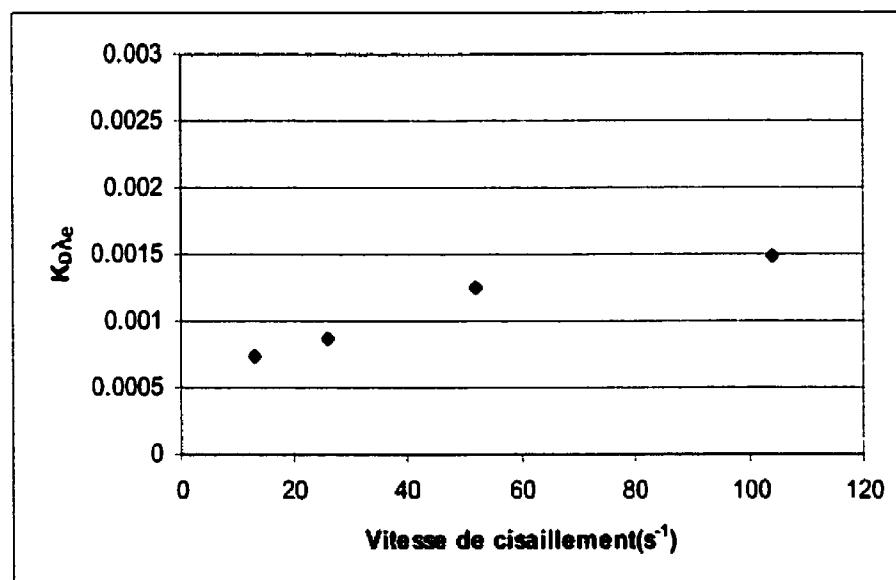
a) contrainte en fonction du temps b) boucle d'hystérésis correspondante

- ◆ Cycle n°1
- Cycle n°2
- Cycle n°3
- △ Cycle n°4
- Cycle n°5

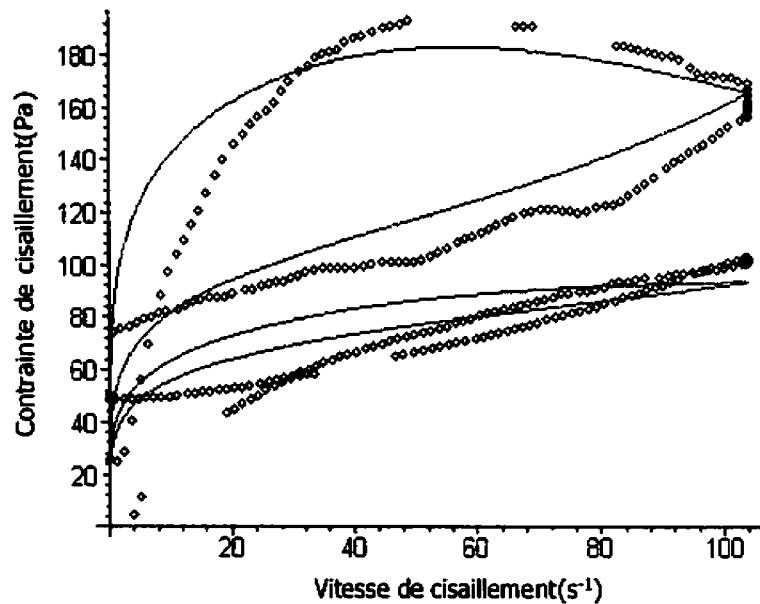


**Figure 3.44 : Effet combiné à un temps de maintien et un temps de repos  
( $f_s=30\%, 6S3G$ )**

- a) contrainte en fonction du temps
  - b) boucle d'hystérosis correspondante
- |       |                         |
|-------|-------------------------|
| —     | Cycle n°1 (non complet) |
| ○     | Cycle n°2               |
| □     | Cycle n°3               |
| - · - | Cycle n°4               |
| △     | Cycle n°6               |



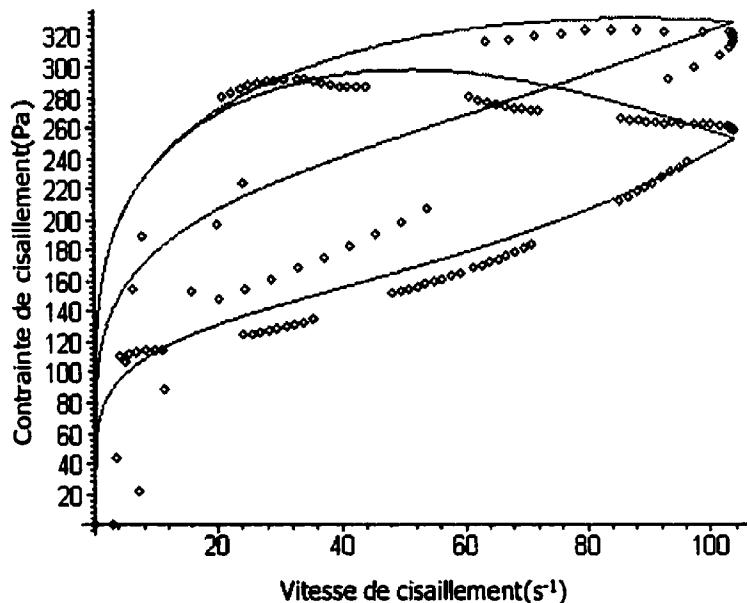
**Figure 3.45 : Évolution du produit  $K_d \lambda_e$  en fonction de la vitesse de cisaillement  
( $f_s=30\%, 10S4G$ )**



**Figure 3. 46 : Modélisation des boucles d'hystérésis (effet de la vitesse initiale de cisaillement,  $f_s=30\%$ )**

◊ : Points expérimentaux correspondants à la courbe 3.39 :  
courbe supérieure :  $\dot{\gamma}_0 = 13 s^{-1}$ , Courbe inférieure :  $\dot{\gamma}_0 = 104 s^{-1}$

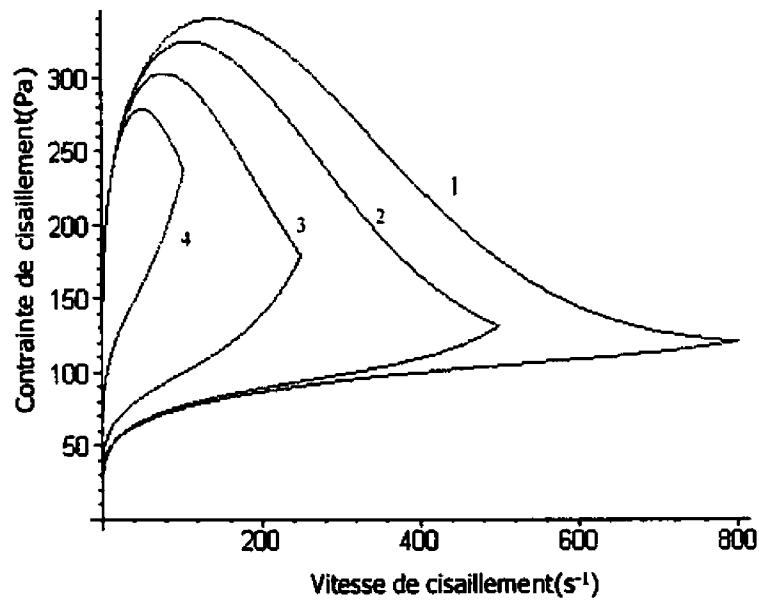
— Relation 3.16 :  $a=0.00003$ ,  $b=0.0006$ ,  $t_u=18$ ,  $K=0.001$ ,  $\dot{\gamma}_{max} = 104 s^{-1}$ ,  $A=110$ ,  $B=30$   
Courbe supérieure :  $\lambda_0=0.6$ , Courbe inférieure :  $\lambda_0=0.1$



**Figure 3.47 : Modélisation des boucles d'hystérésis (effet du temps de montée,  $f_s=30\%$ )**

◊ Points expérimentaux correspondants à la courbe 3.41 :  
 Courbe supérieure :  $t_u=6S$ , Courbe inférieure :  $t_u=18S$

— : Relation 3.16 :  $a=0.00003$ ,  $b=0.0006$ ,  $\lambda_0=1$ ,  $K=0.001$ ,  $\dot{\gamma}_{max}=104s^{-1}$ ,  $A=110$ ,  $B=30$   
 Courbe supérieure :  $t_u=6S$ , Courbe inférieure :  $t_u=18S$



**Figure 3.48 : Modélisation des boucles d'hystérésis (effet de la vitesse de cisaillement maximum,  $f_s=30\%$ )**

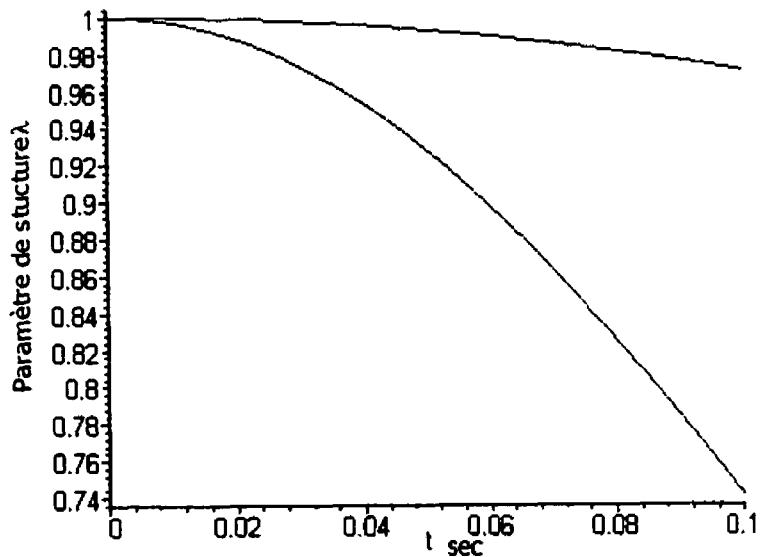
— : Relation 3.16 :  $a=0.00003$ ,  $b=0.0006$ ,  $\lambda_0=1$ ,  $K=0.001$ ,  $t_0=18s$ ,  $A=110$ ,  $B=30$

Courbe 1 :  $\dot{\gamma}_{\max} = 800 \text{ s}^{-1}$

Courbe 2:  $\dot{\gamma}_{\max} = 500 \text{ s}^{-1}$

Courbe 3:  $\dot{\gamma}_{\max} = 250 \text{ s}^{-1}$

Courbe 4:  $\dot{\gamma}_{\max} = 104 \text{ s}^{-1}$



**Figure 3.49 : Prédiction de l'évolution de la structure des gelées semi-solides lors d'un cycle de montée à haute vitesse de cisaillement,  $f_s=30\%$ )**

Courbe supérieure :  $a=0.00003$ ,  $b=0.0006$ ,  $\lambda_0=1$ ,  $K=0.001$ ,  $t_u=0.1s$

Courbe inférieure :  $a=0.0003$ ,  $b=0.006$ ,  $\lambda_0=1$ ,  $K=0.001$ ,  $t_u=0.1s$

### **3.3 RÉSULTATS DES ESSAIS DE COMPRESSION ENTRE PLATEAUX PARALLÈLES**

#### **3.3.1 RÉSULTATS BRUTS**

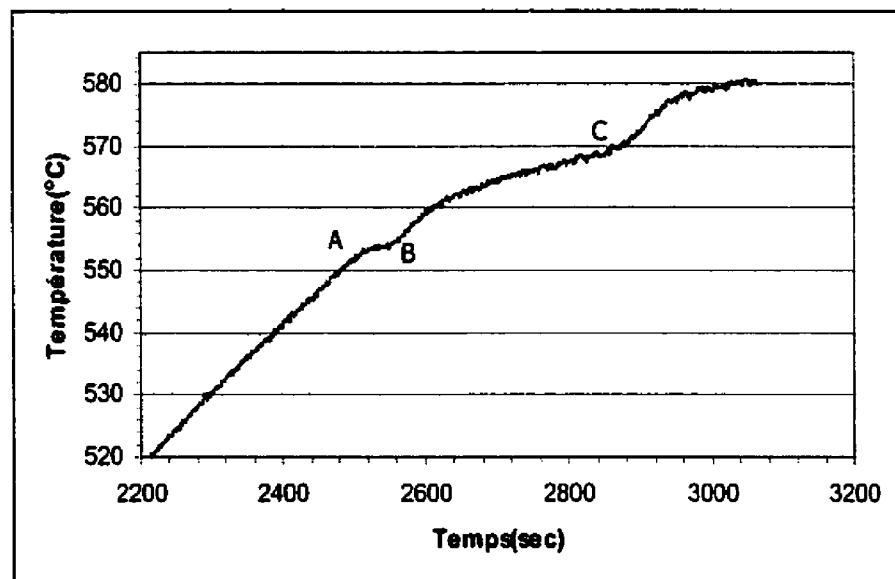
Le comportement rhéologique de l'alliage A356 et du composite 6S3G à l'état dendritique et rhéocoulé a été évalué par compression entre plateaux parallèles. La matrice du composite 6S3G à l'état dendritique a été refondue partiellement à des températures de 575, 580, 585, 590 et 595°C conduisant à des fractions solides totales (phase primaire + particules de renfort) de respectivement : 0.42, 0.37, 0.32, 0.26 et 0.17. L'alliage A356 et le composite 6S3G à l'état rhéocoulé ont servi de référence et ont été évalués respectivement à des températures de 585 et 575°C, correspondant dans les deux cas à une fraction solide de 0.42. Notons que la fraction initiale de phase primaire globulaire dans le composite 6S3G et l'alliage A356 sont respectivement de 30 et 50%.

La figure 3.50 montre le profil typique de température lors de la refusion partielle du composite 6S3G dans l'intervalle semi-solide. On peut observer que le temps nécessaire à la fusion des eutectiques binaires et ternaires est d'environ 6 minutes. Après la fusion des eutectiques, la température rejoint très rapidement le plateau auquel on désire réaliser les tests de compression. Après avoir atteint la température désirée, nous avons fait subir un temps de maintien de 1 minute aux éprouvettes avant de procéder à un essai. Ce temps s'est avéré suffisant pour assurer une homogénéité en température sur l'ensemble des éprouvettes. Afin d'évaluer l'effet du temps de maintien, certains essais ont été réalisés avec des temps de maintien de 10 et 30 minutes.

La figure 3.51 montre l'évolution de la microstructure du composite 6S3G dendritique et globulaire après refusion partielle à la température de 575°C. On peut observer que les échantillons dendritiques maintenus une minute à la température sont toujours caractérisés par une microstructure dendritique. Des analyses d'images ont montré que l'espace inter-dendritique moyen de cette dernière est de 70µm comparativement à 45µm pour la microstructure initiale. Le temps de maintien à la température d'essai étant faible, on peut supposer que la majeure partie du grossissement s'est fait au cours de la fusion de l'eutectique. Par contre après un temps de maintien de 10 minutes, on observe une globularisation accompagnée d'un grossissement suite à la diffusion à haute température. Dans cet état, la microstructure s'apparente à celle des éprouvettes rhéocoulées. Il est à noter que pour des temps de maintien de 30 minutes, nous n'avons pas observé de globularisation supplémentaire de la phase primaire ni de grossissement significatif par rapport au temps de maintien de 10 minutes. On peut observer que la phase primaire des échantillons rhéocoulés maintenus une minute a également subi un léger grossissement. Il est intéressant de noter que c'est la phase dendritique fine qui a subi le grossissement le plus significatif. À toute fin pratique, celle-ci a perdu son caractère dendritique et s'est transformée en une phase globulaire très fine. Toutes les observations faites sur les échantillons rhéocoulés partiellement refondus ont révélé que la refusion de la phase primaire se fait sur la phase qui était liquide au moment de l'élaboration de ces derniers.

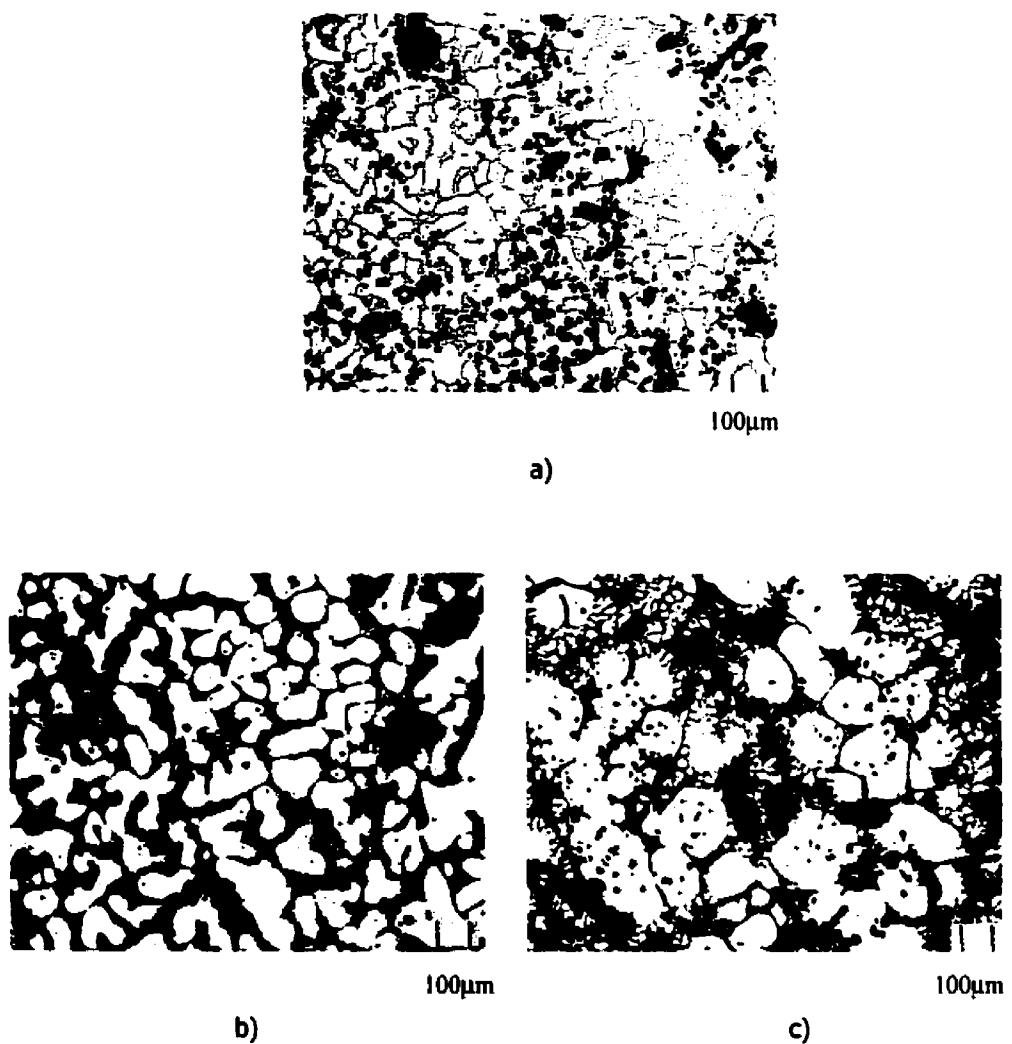
Les figures 3.52 à 3.59 montrent les courbes de déformation en fonction du temps réalisées sur toutes les microstructures étudiées. On peut voir sur ces dernières que pour chaque fraction solide, une augmentation de la pression initiale provoque une augmentation de la déformation. Contrairement aux résultats de Laxmanan et Flemings [64], on peut voir que l'allure des courbes de déformation des éprouvettes dendritiques est similaire à celle des éprouvettes rhéocoulées. Nous n'avons pas observé d'augmentation rapide de déformation liée

à la formation de fissures dans les éprouvettes dendritiques, comme le rapporte les auteurs cités plus haut. L'observation des microstructures des éprouvettes dendritiques (voir 3.3.3) abonde dans ce sens. Cette différence est certainement due au fait que le caractère dendritique de la phase primaire est beaucoup moins prononcé dans les composites que dans les alliages. Néanmoins, comme le montre la Figure 3.52, pour une température et une pression initiale données, les éprouvettes rhéocoulées s'écoulent plus rapidement que les échantillons dendritiques. Il est à noter que les éprouvettes ayant subi un temps de maintien supérieur à 10 minutes ont un comportement en compression proche de celui des éprouvettes rhéocoulées. Comme on l'a déjà indiqué ci-dessus, ce résultat est lié au fait que la microstructure de ces éprouvettes s'apparente à une microstructure rhéocoulée. Notons que même après un temps de maintien, les éprouvettes dendritiques ne s'écoulent pas aussi rapidement que les éprouvettes rhéocoulées. Ce résultat peut s'expliquer par le fait que les microstructures de ces dernières sont constituées d'une quantité non négligeable d'une phase globulaire très fine. Cette dernière résulte du grossissement de la partie de la phase dendritique secondaire non refondue à la température de l'essai. Notons également que dans les mêmes conditions de compression l'alliage A356 rhéocoulé s'écoule plus rapidement que le composite rhéocoulé. Il est très probable que ce résultat soit lié à la différence de taille et de forme des particules primaires de ces deux microstructures. En effet, rappelons que la microstructure du A356 rhéocoulé a été obtenue par brassage électromagnétique. Celle-ci est caractérisée par une taille moyenne de globule de l'ordre de 50 $\mu\text{m}$  comparativement à 110 $\mu\text{m}$  pour le GrA-Ni<sup>9</sup>. Après refusion, la taille de la phase primaire du A356 est de l'ordre de 70 $\mu\text{m}$  et est parfaitement globulaire, alors que des rosettes sont toujours présentes dans la microstructure du composite rhéocoulé par brassage mécanique dans les conditions de la présente étude.



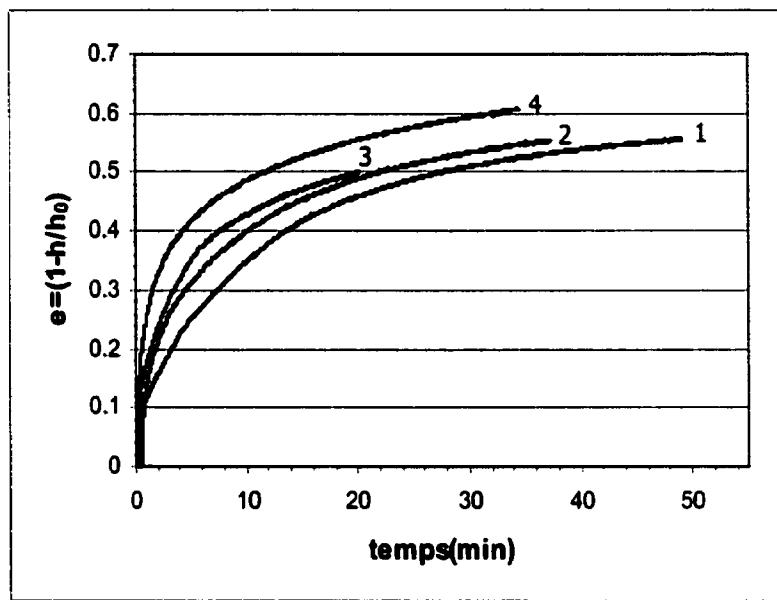
**Figure 3. 50 : Profil de température au cours de la refusion partielle du composite 6S3G**

(A-B : Fusion de l'eutectique ternaire, B-C : Fusion de l'eutectique binaire)



**Figure 3. 51 : les différentes microstructures du composite 6S3G étudiées en compression**

- : Microstructure dendritique après refusion partielle à 575°C et temps de maintien de 1 minute.
- : Microstructure dendritique après refusion partielle à 575°C et temps de maintien de 10 minutes.
- : Microstructure rhéocoulée après refusion partielle à 575°C et temps de maintien de 1 minute.



**Figure 3.52 : Comparaison des courbes de compression pour les différentes microstructures étudiées.**

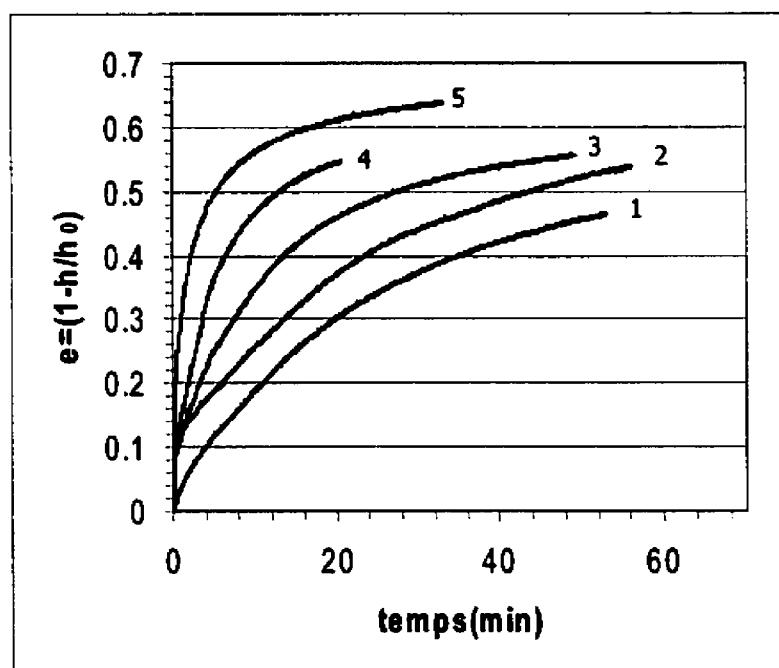
(Pression initiale :  $P_0=60\text{kPa}$ ,  $T=575^\circ\text{C}$ ,  $\varphi(\text{totale})=0.42$ , Composite 6S3G)

Courbe 1 : Éprouvette dendritique maintenue 1 minute à  $575^\circ\text{C}$  avant l'essai

Courbe 2 : Éprouvette dendritique maintenue 10 minutes à  $575^\circ\text{C}$  avant l'essai

Courbe 3 : Éprouvette dendritique maintenue 30 minutes à  $575^\circ\text{C}$  avant l'essai

Courbe 4 : Éprouvette rhéocoulée maintenue 1 minute à  $575^\circ\text{C}$  avant l'essai



**Figure 3.53: Courbes de compression des éprouvettes dendritiques  
( $T=575^{\circ}\text{C}$ ,  $\varphi(\text{totale})=0.42$ , Composite 6S3G).**

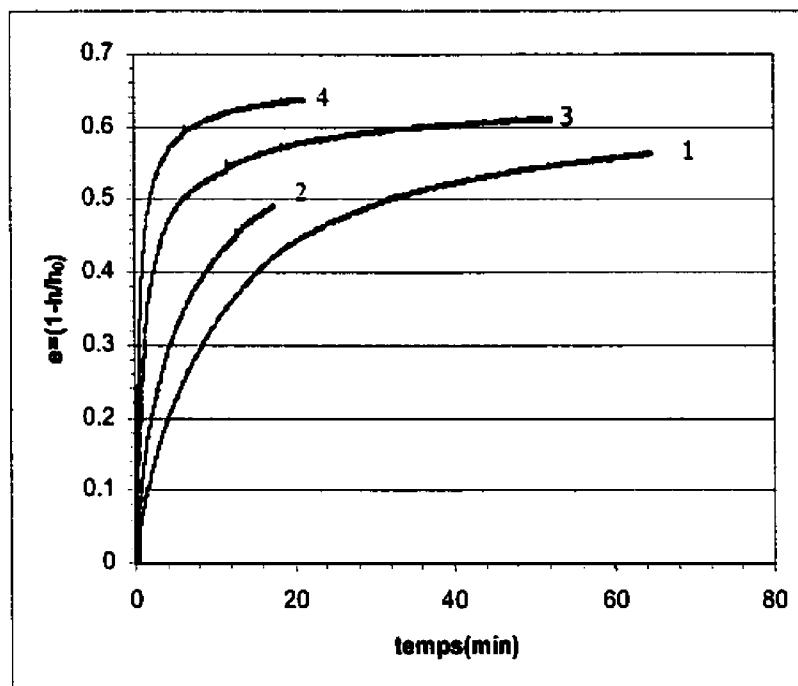
Courbe 1 :  $P_0=20 \text{ kPa}$

Courbe 2 :  $P_0=42 \text{ kPa}$

Courbe 3 :  $P_0=60 \text{ kPa}$

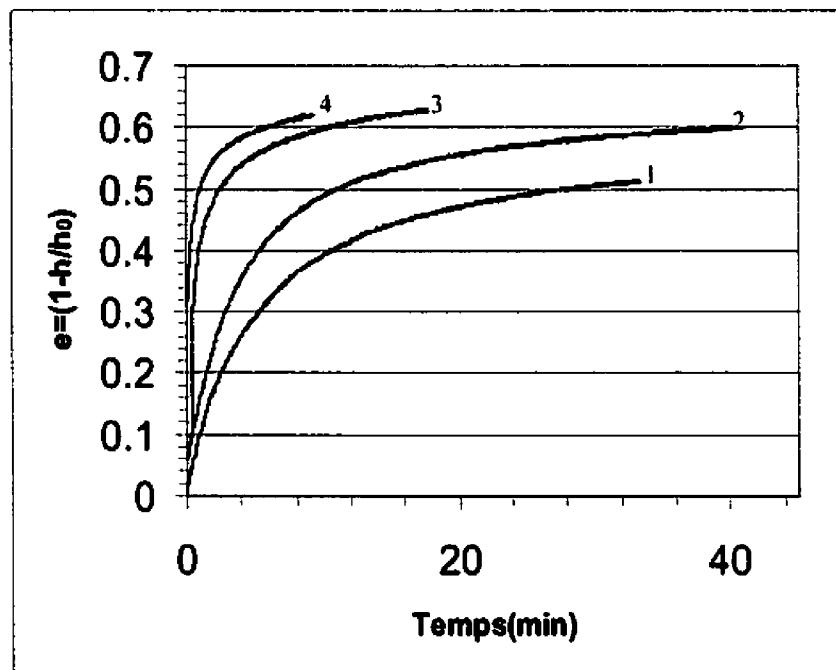
Courbe 4 :  $P_0=120 \text{ kPa}$

Courbe 5 :  $P_0=200 \text{ kPa}$



**Figure 3.54: Courbes de compression des éprouvettes dendritiques  
( $T=580^\circ\text{C}$ ,  $\varphi=0.37$  (totale), Composite 6S3G).**

Courbe 1 :  $P_0=20 \text{ kPa}$   
Courbe 2 :  $P_0=60 \text{ kPa}$   
Courbe 3 :  $P_0=120 \text{ kPa}$   
Courbe 4 :  $P_0=200 \text{ kPa}$



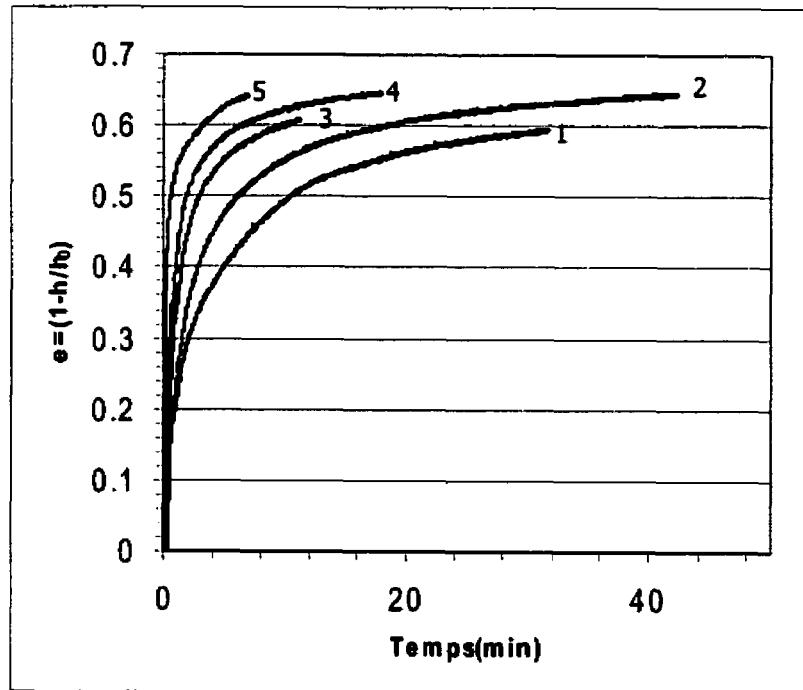
**Figure 3.55 : Courbes de compression des éprouvettes dendritiques  
(T=585°C,  $\varphi=0.32$  (totale), Composite 6S3G).**

Courbe 1 :  $P_0=20$  kPa

Courbe 2 :  $P_0=42$  kPa

Courbe 3 :  $P_0=120$  kPa

Courbe 4 :  $P_0=200$  kPa



**Figure 3. 56 : Courbes de compression des éprouvettes dendritiques  
( $T=590^{\circ}\text{C}$ ,  $\varphi=0.26$  (totale), Composite 6S3G).**

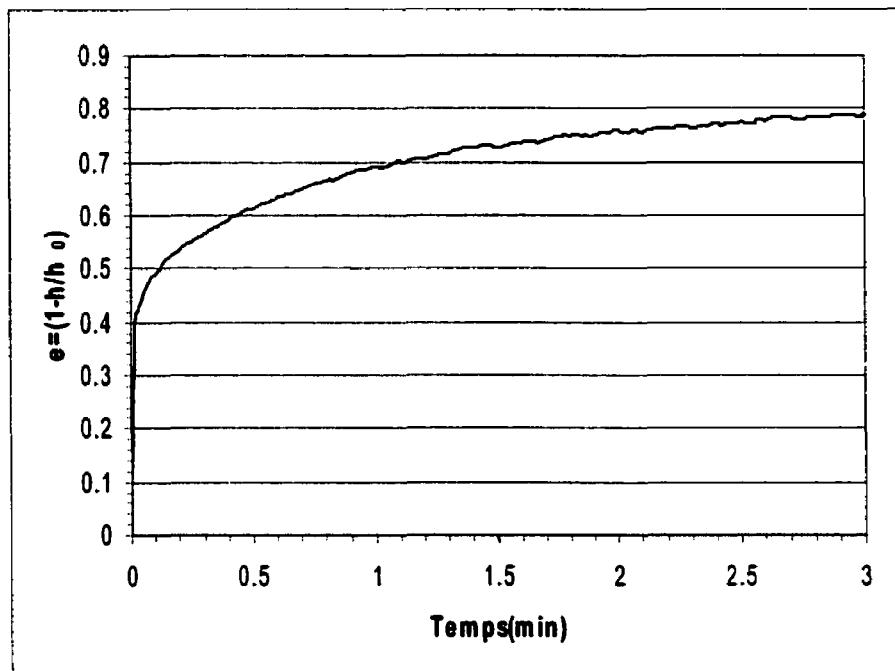
Courbe 1 :  $P_0=20 \text{ kPa}$

Courbe 2 :  $P_0=30 \text{ kPa}$

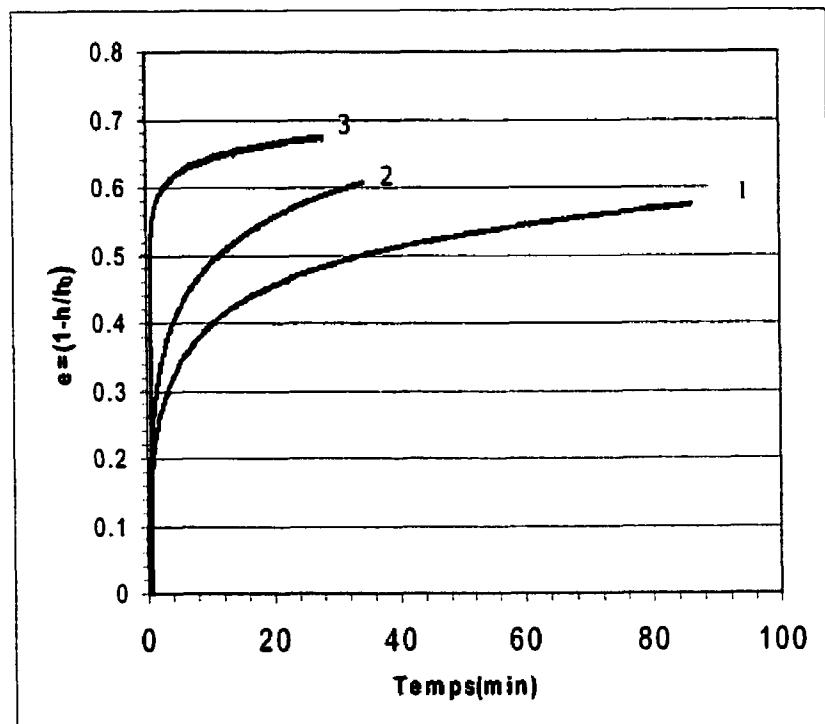
Courbe 3 :  $P_0=42 \text{ kPa}$

Courbe 4 :  $P_0=60 \text{ kPa}$

Courbe 5 :  $P_0=120 \text{ kPa}$



**Figure 3.57 : Courbes de compression des éprouvettes dendritiques  
(T=595°C, φ(totale)=0.17, P<sub>0</sub>=20kPa, Composite 6S3G)**

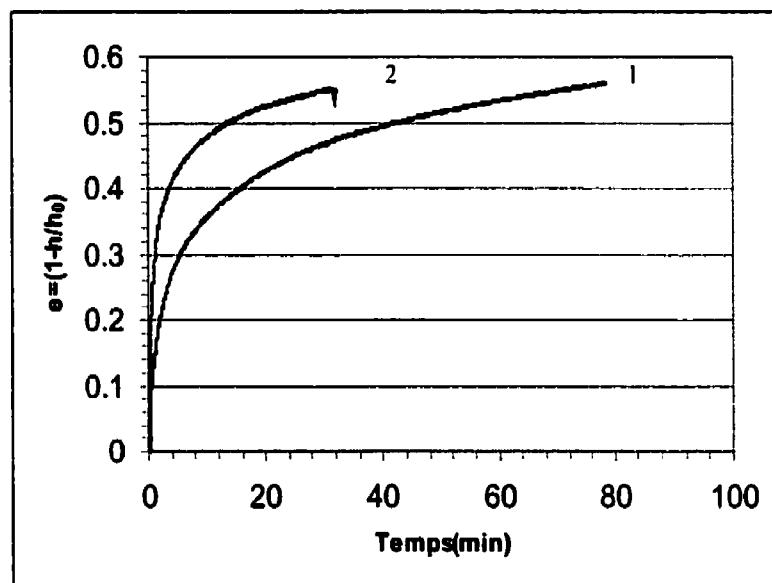


**Figure 3.58: Courbes de compression des éprouvettes rhéocoulées  
( $T=575^{\circ}\text{C}$ ,  $\phi(\text{totale})=0.42$ , Composite 653G).**

Courbe 1 :  $P_0=42$  kPa

Courbe 2 :  $P_0=60$  kPa

Courbe 3 :  $P_0=200$  kPa



**Figure 3.59 : Comparaison des courbes de compression des éprouvettes rhéocoulées de l'alliage A356 et du composite 6S3G**

Courbe 1 : Composite 6S3G,  $P_0=20$  kPa,  $T=575^\circ\text{C}$ ,  $\phi(\text{totale})=0.42$ .

Courbe 2 : Alliage A356,  $P_0=20$  kPa,  $T=585^\circ\text{C}$ ,  $\phi(\text{totale})=0.42$ .

### **3.3.2 COMPORTEMENT RHÉOLOGIQUE**

Le comportement rhéologique des alliages et des composites à l'étude a été évalué par les modèles newtoniens et à loi de puissance présentés dans le chapitre II en 2.2.2.3.1.

La figure 3.60 est un exemple de dépouillement des résultats bruts à l'aide de la relation 2.31. On peut voir que pour un niveau de charge donné, correspondant à une vitesse de cisaillement moyenne donnée, le modèle newtonien rend compte du comportement rhéologique des gelées semi-solides à l'étude. Pour toutes les charges imposées, la vitesse de cisaillement moyenne a été évaluée à partir de la relation 2.33. Les essais étant réalisés à charge constante, la pression appliquée sur l'échantillon diminue ( $P=P_0(1-e)$ ) au cours d'un essai et par conséquent la vitesse de cisaillement moyenne diminue également. La figure 3.61 montre un exemple de profil de vitesse de cisaillement au cours d'un essai. Pour tenir compte de cet effet, la vitesse de cisaillement moyenne a été prise égale à la moyenne du profil de vitesse de cisaillement sur l'intervalle de temps où l'on calcule la viscosité (600s). Les résultats sont reportés sur la figure 3.62. On peut voir que pour toutes les fractions solides étudiées, la viscosité évaluée par le modèle newtonien varie lorsque la vitesse de cisaillement moyenne varie. Ce résultat indique que l'hypothèse selon laquelle les gelées semi-solides ont un comportement newtonien n'est pas fondée. Notons que Laxmanan et Flemings [63] sont arrivés à la même conclusion en étudiant les gelées semi-solides de l'alliage Sn-Pb.

L'observation des courbes de viscosités newtoniennes indique clairement un comportement de type pseudoplastique. Nous avons donc évalué les lois de comportement des gelées semi-solides pour les différentes fractions solides étudiées à l'aide du modèle à loi de puissance.

La figure 3.63 est un exemple de dépouillement des résultats à l'aide de ce modèle. On peut voir que l'hypothèse  $\ln(1-e) \rightarrow \infty$  quand  $t \rightarrow \infty$  est fondée. Notons que par cette méthode nous avons accès aux coefficients  $n$  et  $m$  lorsque l'échantillon a déjà atteint un niveau de déformation important. Il a été montré [75] cependant que le coefficient  $n$  peut varier légèrement avec la déformation. La variation des coefficients  $n$  et  $m$  de la loi de puissance en fonction de la fraction solide pour les différentes microstructures étudiées est résumée sur les figures 3.64 et 3.65. On peut voir sur ces dernières que pour chaque fraction solide, une dispersion importante sur les valeurs de  $m$  et de  $n$  est enregistrée. Un résultat similaire a été trouvé par Laxmanan et Flemings [64]. Nous pouvons néanmoins dégager des tendances à partir des résultats obtenus. Pour les échantillons dendritiques, on peut voir qu'une variation logarithmique du coefficient  $m$  en fonction de la fraction solide décrit assez bien nos résultats expérimentaux. Une régression linéaire sur les points expérimentaux à conduit à la relation suivante :

$$m = 29.5 \exp(30f_s) \quad (3.17)$$

Les valeurs de  $n$ , quant à elles, semblent varier selon deux régimes en fonction de la fraction solide. À basse fraction solide, la valeur de  $n$  varie peu avec la fraction solide, alors que pour des fractions solides supérieures à 25%, cette dernière varie rapidement avec la fraction solide. En réalisant une régression linéaire, la relation suivante a été déterminée :

$$n = 3.6f_s - 0.56 \quad \text{pour } 0.26 \leq f_s \leq 0.42 \quad (3.18)$$

Les auteurs cités plus haut donnent, pour un alliage Sn-Pb rhéocoulé, les relations suivantes :

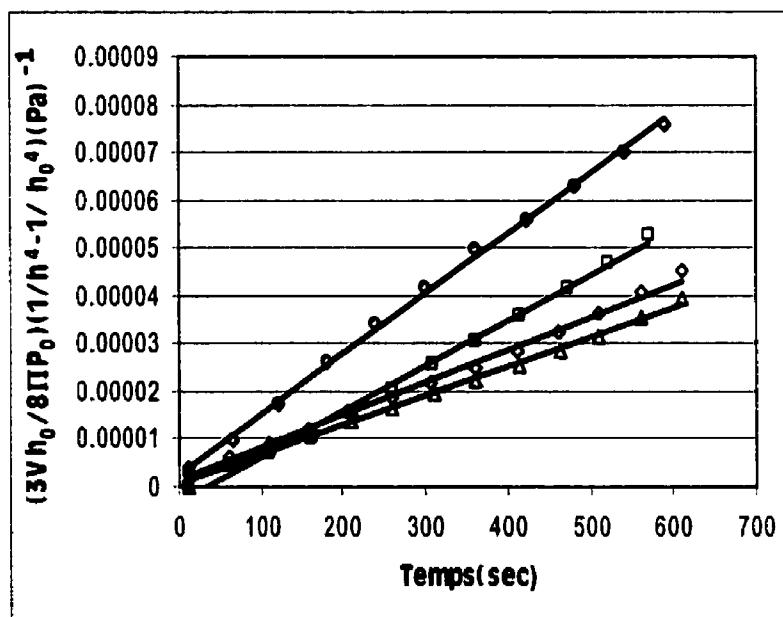
$$\begin{aligned} m &= 10.5 \exp(20.6f_s) \quad \text{pour } 0.15 \leq f_s \leq 0.6 \\ n &= 1.72f_s - 0.39 \quad \text{pour } 0.3 \leq f_s \leq 0.6 \end{aligned} \quad (3.19)$$

Notons que la précision avec laquelle ces relations ont été déterminées est de l'ordre de la précision de la présente étude.

Les relations 3.17, 3.18 et 3.19 illustrent bien la différence de viscosité entre les structures dendritiques et rhéocoulées.

Les valeurs de n et m des alliages rhéocoulés étudiés dans la présente étude sont du même ordre que celles de l'alliage Sn-Pb rhéocoulé. On observe cependant des valeurs importantes pour le GrA-Ni<sup>9</sup> 6S3G. Les valeurs de n et m reportées pour les alliages A356 et Sn-Pb correspondent à des structures dont la taille de la phase primaire est de l'ordre de 50µm alors que, comme on l'a déjà indiqué, la taille des globules dans le composite est de l'ordre de 100µm. Il en résulte une viscosité plus importante et donc des valeurs de n et m plus importantes ( $\eta = m\dot{\gamma}^{n-1}$ ).

L'évolution de la viscosité en fonction de la vitesse de cisaillement, dans la gamme de vitesse de cisaillement étudiée, a été évaluée à partir du modèle à loi de puissance. Un exemple, pour une fraction solide de 42%, est reporté sur la figure 3.66. Pour fin de comparaison, nous avons porté sur la figure 3.67 les viscosités d'équilibre obtenues à l'aide du viscosimètre à agitateur et les viscosités obtenues par compression entre plateaux parallèles. Si on extrapole ces résultats, on peut voir que, tout comme pour l'alliage Sn-Pb (voir revue de la littérature), nous avons enregistré une discontinuité pour une vitesse de cisaillement de l'ordre de 10<sup>-2</sup> s<sup>-1</sup>. Autrement dit les essais réalisés à faible vitesse de cisaillement à l'aide du viscosimètre à plateaux parallèles ne peuvent être extrapolés à un autre régime de cisaillement. Il en est de même pour les essais réalisés à vitesse de cisaillement moyenne à l'aide du viscosimètre de Couette. Comme on l'a déjà indiqué, ce résultat est dû au fait que l'histoire thermomécanique des gelées semi-solides est différente selon les deux techniques utilisées.



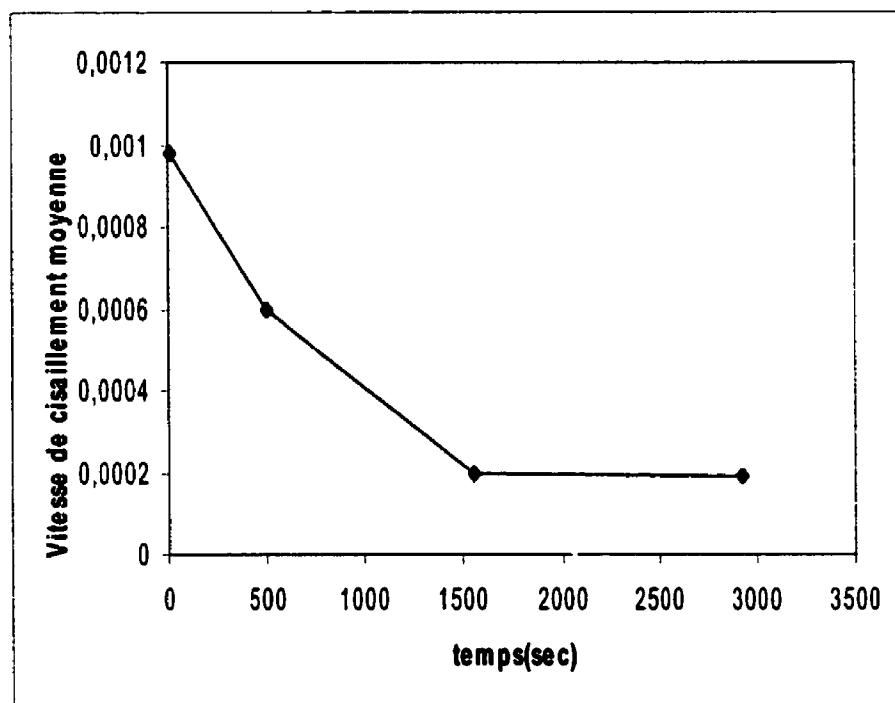
**Figure 3.60 : Dépouillement des résultats à l'aide du modèle newtonien (6S3G dendritique, T=575°C, φ(totale)=0.42)**

O:  $P_0 = 200 \text{ kPa}, \bar{\gamma} = 2.2 * 10^{-3} \text{ s}^{-1}$

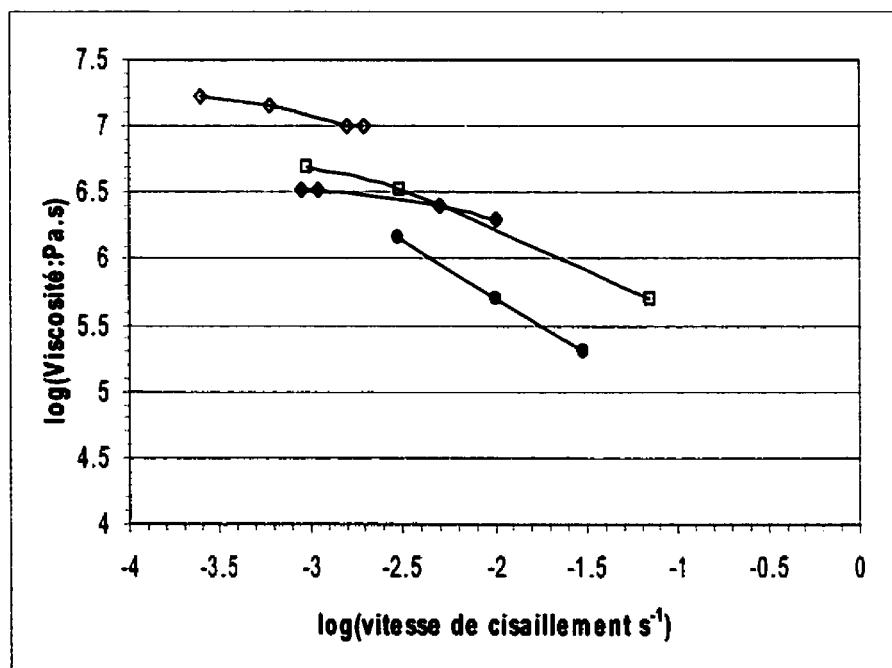
□:  $P_0 = 120 \text{ kPa}, \bar{\gamma} = 1.6 * 10^{-3} \text{ s}^{-1}$

◊:  $P_0 = 60 \text{ kPa}, \bar{\gamma} = 6 * 10^{-4} \text{ s}^{-1}$

△:  $P_0 = 20 \text{ kPa}, \bar{\gamma} = 2.5 * 10^{-4} \text{ s}^{-1}$

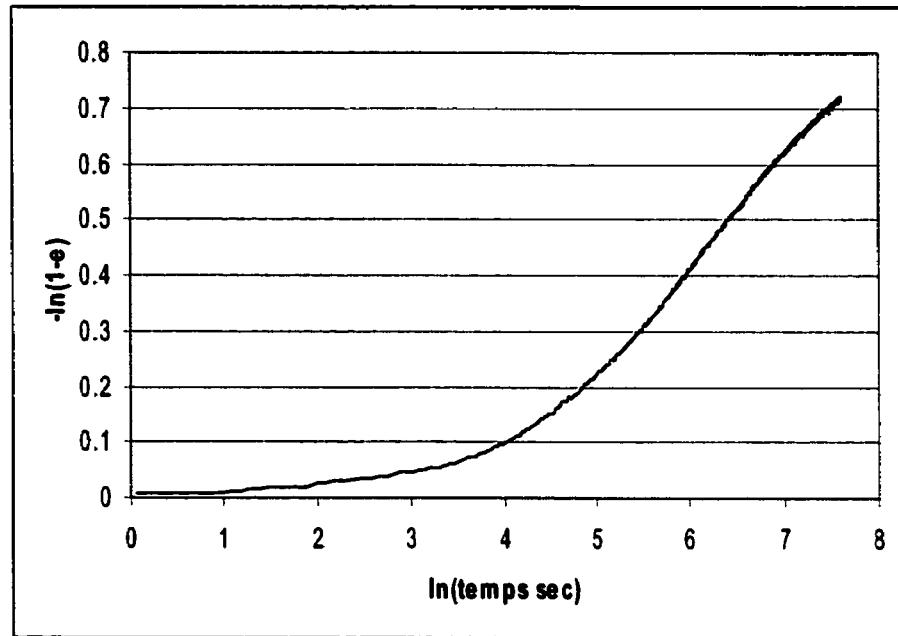


**Figure 3.61 : Exemple de profil de vitesse de cisaillement au cours d'un essai de compression ( $P_0=60 \text{ kPa}$ ,  $T=575^\circ\text{C}$ ,  $\phi(\text{totale})=0.42$ )**

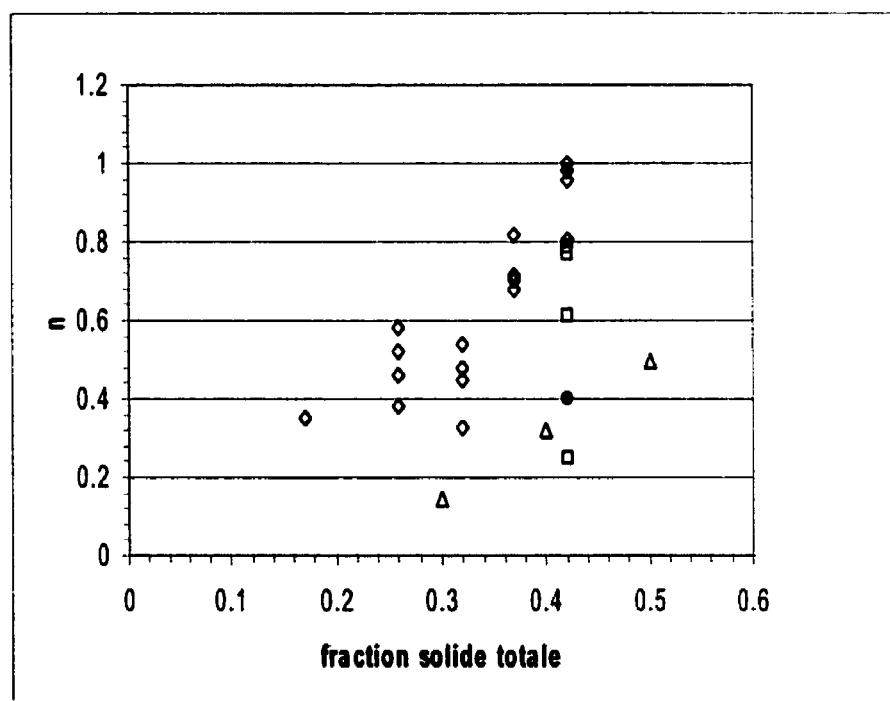


**Figure 3.62 : Évolution de la viscosité en fonction de la vitesse de cisaillement (modèle newtonien)**

◊ :  $\phi(\text{totale})=0.42$ , ♦ :  $\phi(\text{totale})=0.32$ , ● :  $\phi(\text{totale})=0.26$  (éprouvettes dendritiques)  
□ :  $\phi(\text{totale})=0.42$  (éprouvettes rhéocoulées)



**Figure 3. 63 : Exemple de dépouillement des résultats à l'aide du modèle à loi de puissance ( $P_0=20\text{kPa}$ ,  $T=585^\circ\text{C}$ ,  $\phi(\text{totale})=0.32$ )**



**Figure 3.64 : Évolution du coefficient  $n$  en fonction de la fraction solide**

◊ : Composite 6S3G dendritique

□ : Composite 6S3G rhéocoulé

Δ: Alliage Sn-Pb [64] relation 2.54

● : Alliage A356 rhéocoulé

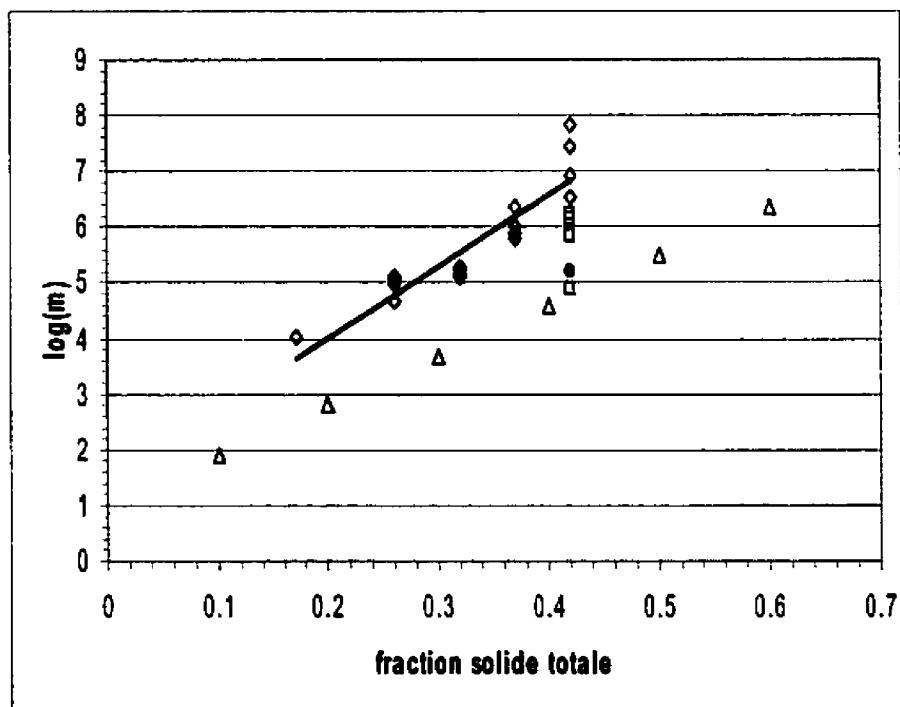


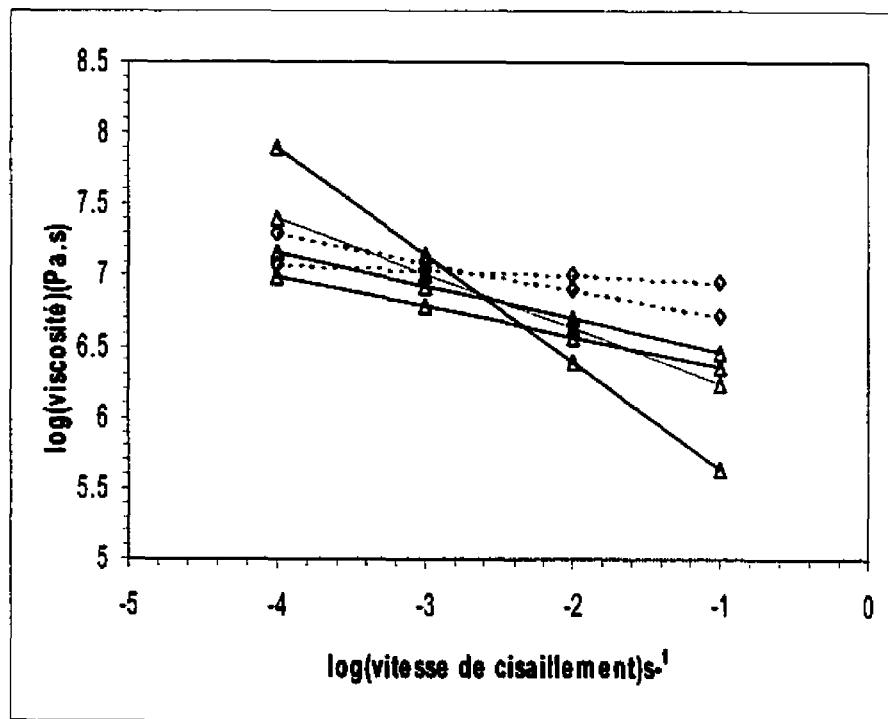
Figure 3.65 : Évolution du coefficient  $m$  en fonction de la fraction solide

◊ : Composite 6S3G dendritique

◻ : Composite 6S3G rhéocoulé

Δ: Alliage Sn-Pb rhéocoulé [64] relation 2.54

● : Alliage A356 rhéocoulé

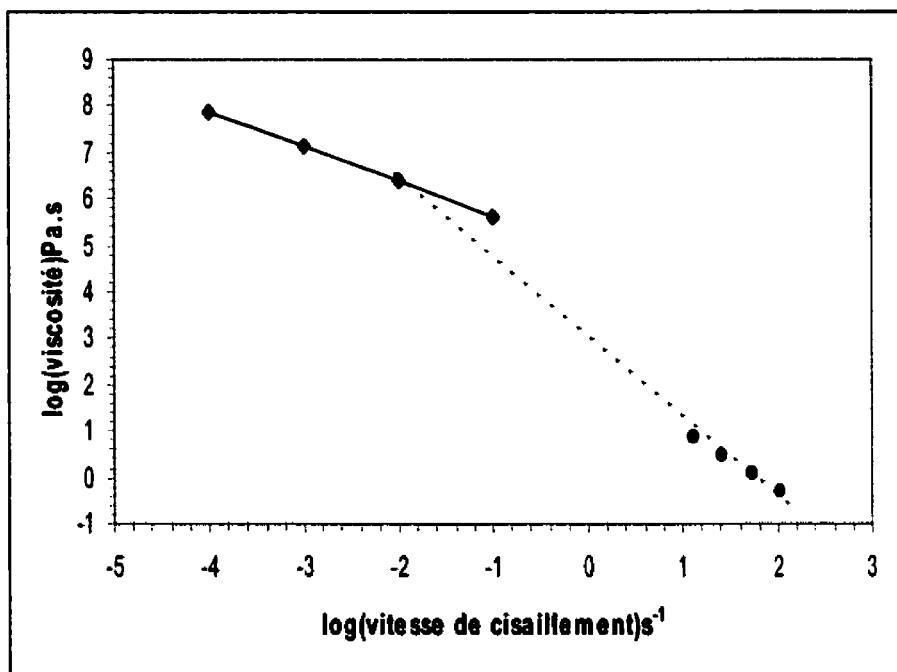


**Figure 3.66 : Évolution de la viscosité en fonction de la vitesse de cisaillement  
(modèle à loi de puissance :  $\eta = m\dot{\gamma}^{n-1}$ )**

◊ : Composite 6S3G dendritique ( $\phi(\text{totale})=0.42$ )

Δ : Composite 6S3G rhéocoulé ( $\phi(\text{totale})=0.42$ )

(notons que pour donner une idée de la dispersion nous avons reporté pour chaque fraction solide, toutes les valeurs de n et m trouvées)



**Figure 3. 67 : Comparaison entre les viscosités d'équilibre obtenues avec le viscosimètre à agitateur et les viscosités obtenues avec le viscosimètre à plateaux parallèles par le modèle à loi de puissance**

- : Composite 6S3G rhéocoulé ( $\phi_{\text{totale}}=0.42$ ) viscosimètre à plateaux parallèles
- : Composite 10S4G rhéocoulé ( $\phi_{\text{totale}}=0.44$ ) viscosimètre à agitateur (Figure 3.28)

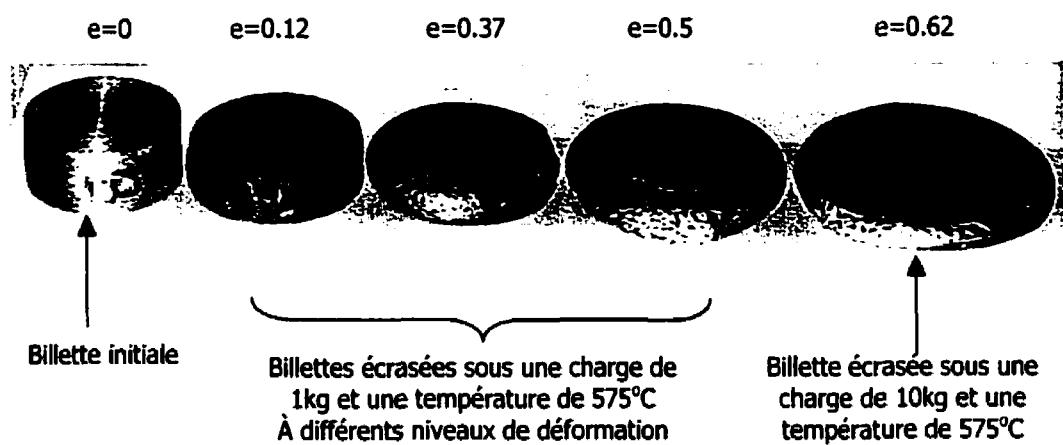
### 3.3.3 MICROSTRUCTURE DES ÉPROUVENTES DE COMPRESSION

Les microstructures des éprouvettes dendritiques et rhéocoulées ont été examinées à différents niveaux de déformation et pour différentes vitesses de cisaillement. La figure 3.68 montre l'évolution de la forme des éprouvettes dendritiques au cours d'un essai de compression. Malgré le caractère dendritique des éprouvettes, on peut voir que l'intégrité de la forme de celles-ci est maintenue tout au long de l'essai de compression. La figure 3.69 montre qu'à faible niveau de déformation, la microstructure des échantillons dendritiques est homogène. Lorsque la déformation augmente, on observe une ségrégation de la phase liquide sur les bords des échantillons. La figure 3.70 illustre ce phénomène pour une déformation de 37%. Lorsqu'on examine cette figure, il est clair que comparé à la microstructure obtenue pour une déformation de 12%, la phase solide a perdu de son intégrité. Par conséquent, le liquide peut s'écouler plus facilement dans le réseau solide et il s'en suit un phénomène de ségrégation. Ce résultat va dans le même sens que celui de Suéry et Flemings [26], qui ont montré qu'à faible vitesse de déformation et hautes fractions solides, un réseau dendritique perd son intégrité pour une déformation supérieure à 30%. À plus haute fraction solide, les liaisons solides étant faibles, ce phénomène est limité. Notons que, comme déjà indiqué, on rapporte que plus la friction entre l'échantillon et les plateaux de compression est importante, plus la ségrégation est importante. Dans la présente étude, les conditions de friction étaient optimum (voir mode opératoire).

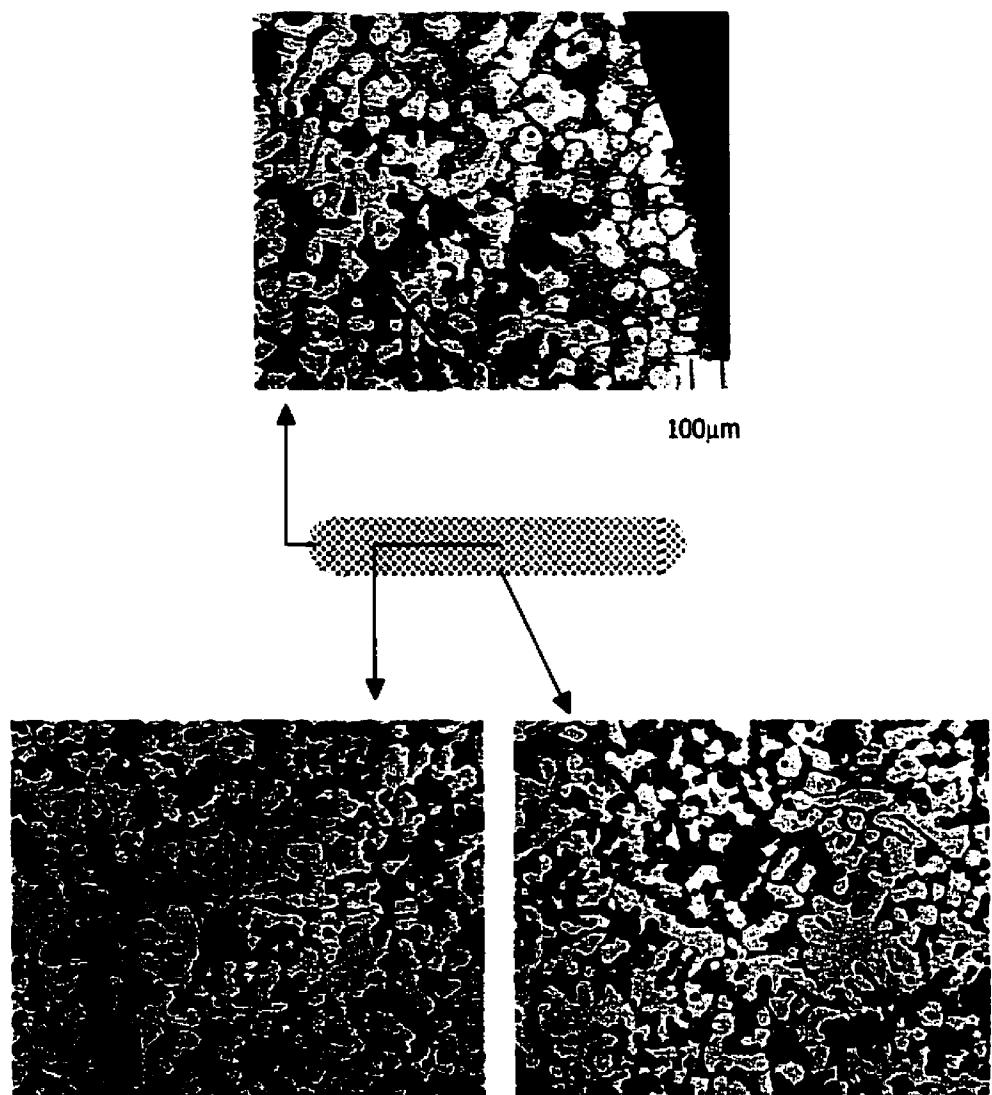
On peut voir sur les figures 3.71 et 3.72, que plus la déformation augmente, plus la ségrégation augmente. Dans le cas des éprouvettes dendritiques, nous avons observé une ségrégation totale pour une déformation de 50%. Cependant, contrairement aux alliages dendritiques, dans les composites, le liquide ne peut être expulsé totalement du centre des éprouvettes à cause de la présence des particules de renfort. Au-delà d'une déformation de

50%, on observe une densification du squelette solide au centre des éprouvettes. Par conséquent, les particules de renfort ne peuvent plus s'écouler avec le liquide et on observe une zone dépeuplée en particule de renfort sur les bords des éprouvettes. Occasionnellement, on peut encore trouver des particules de SiC à cause de leur petite taille. Ce phénomène a été observé pour toutes les fractions solides.

Dans le cas du composite 6S3G et de l'alliage A356 rhéocoulés, nous n'avons pas observé de ségrégation significative jusqu'à des niveaux de déformation de 60%. Les figures 3.73 et 3.74 montrent les microstructures du composite 6S3G et de l'alliage A356 après une déformation de 50%. Comme on peut le voir, aucune différence significative n'est observée entre le centre et le bord des échantillons. De plus, dans le cas du composite rhéocoulé, la ségrégation des particules de renfort est limitée à cause de la présence de la phase secondaire fine qui n'entrave pas le déplacement de celles-ci.

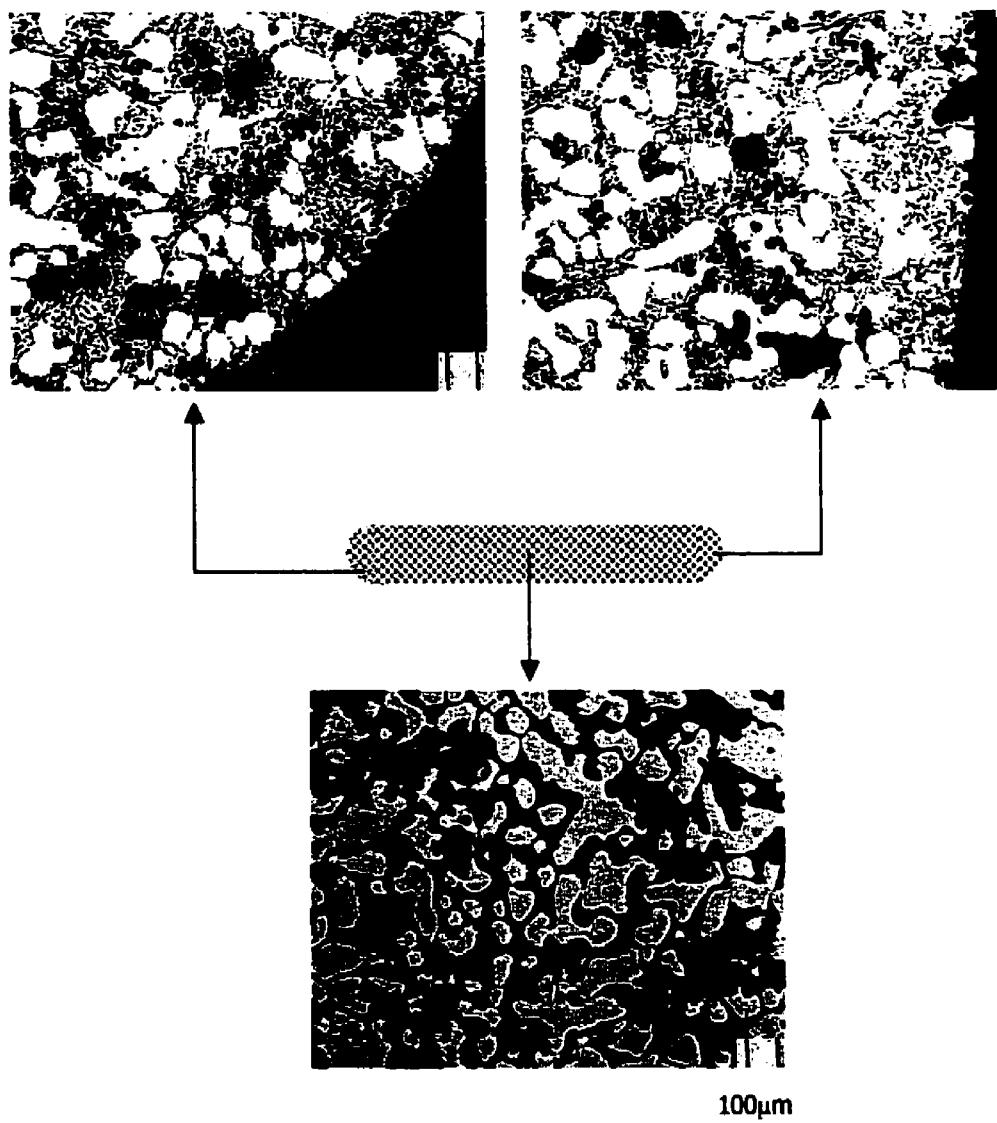


**Figure 3.68 : Évolution des éprouvettes dendritiques au cours d'un essai de compression**



**Figure 3.69 : Microstructure des éprouvettes 6S3G dendritiques en début de compression**

( $e=0.12$ ,  $\dot{\epsilon} = 3 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}$ ,  $T=575^\circ\text{C}$ ,  $P_0=20\text{kPa}$ )



**Figure 3.70 : Microstructure des éprouvettes 6S3G dendritiques ( $e=0.37$ )**

( $e=0.37$  ,  $\dot{\varepsilon} = 310^{-4} \text{ s}^{-1}$  ,  $T=575^\circ\text{C}$ ,  $P_0=20\text{kPa}$ )

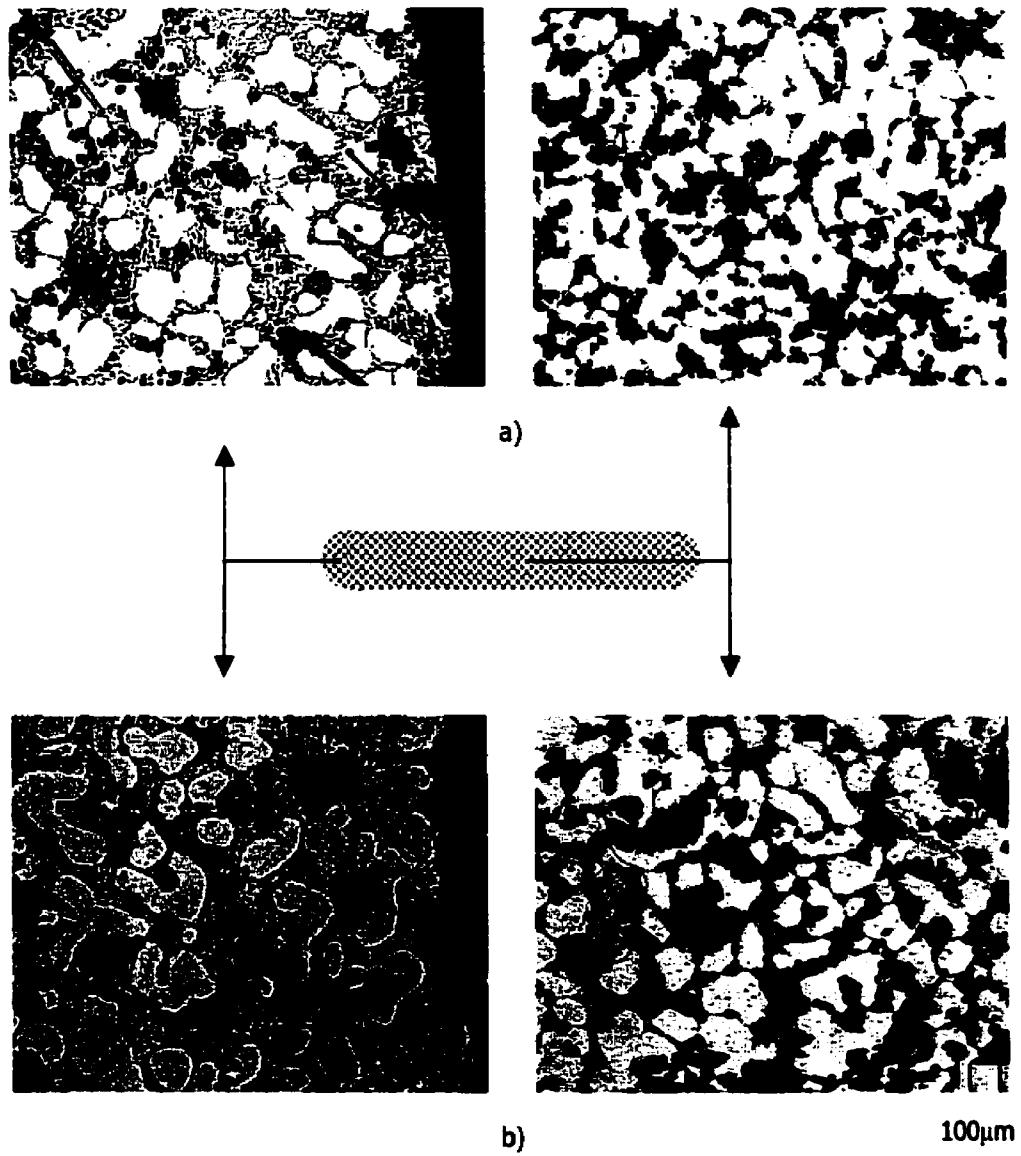
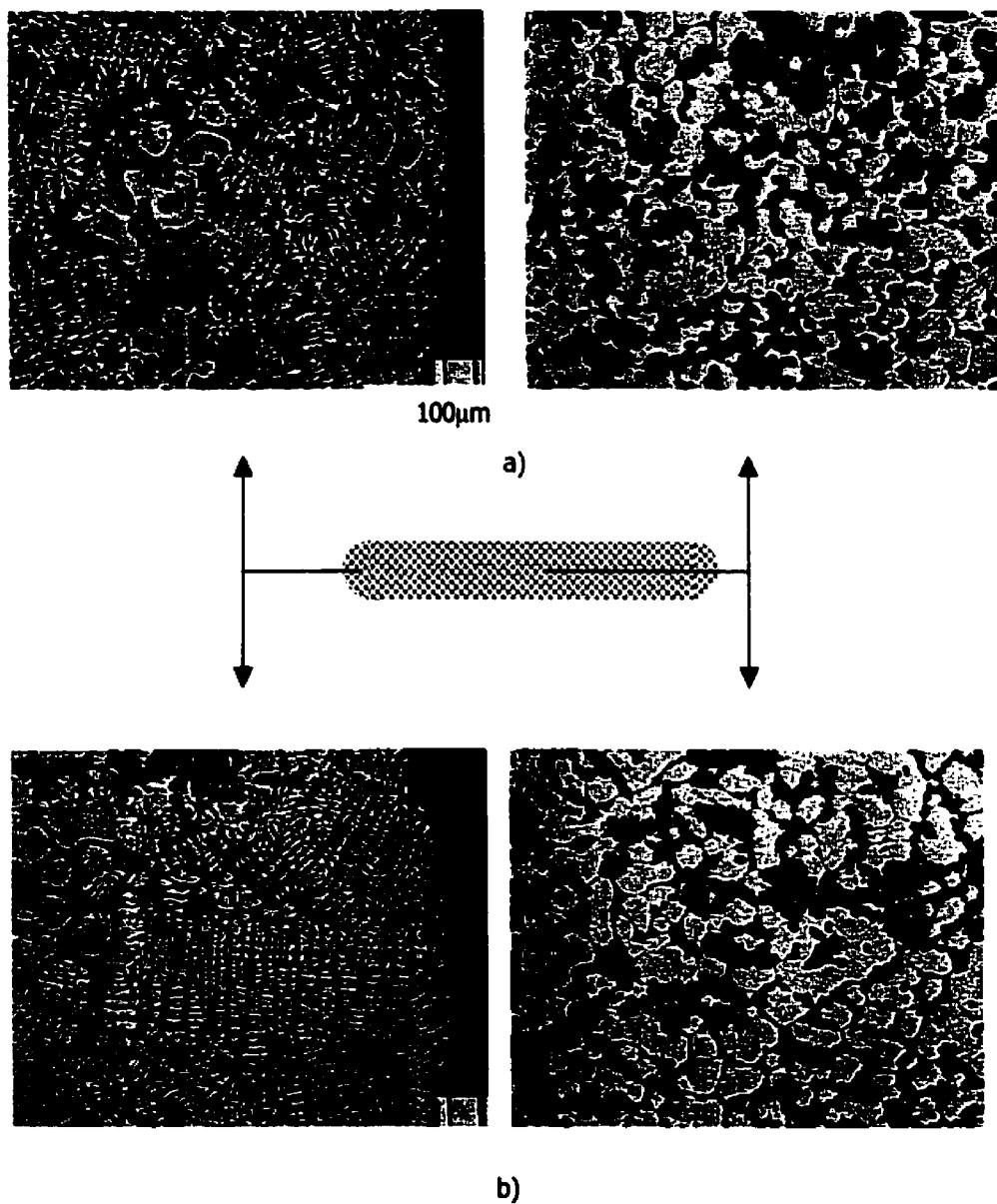


Figure 3.71 : Microstructure des éprouvettes 6S3G dendritiques ( $e=0.5$ )

a): $e=0.5, \dot{\varepsilon} = 3 \cdot 10^{-4} \text{ s}^{-1}, T=575^\circ\text{C}, P_0=20\text{kPa}$

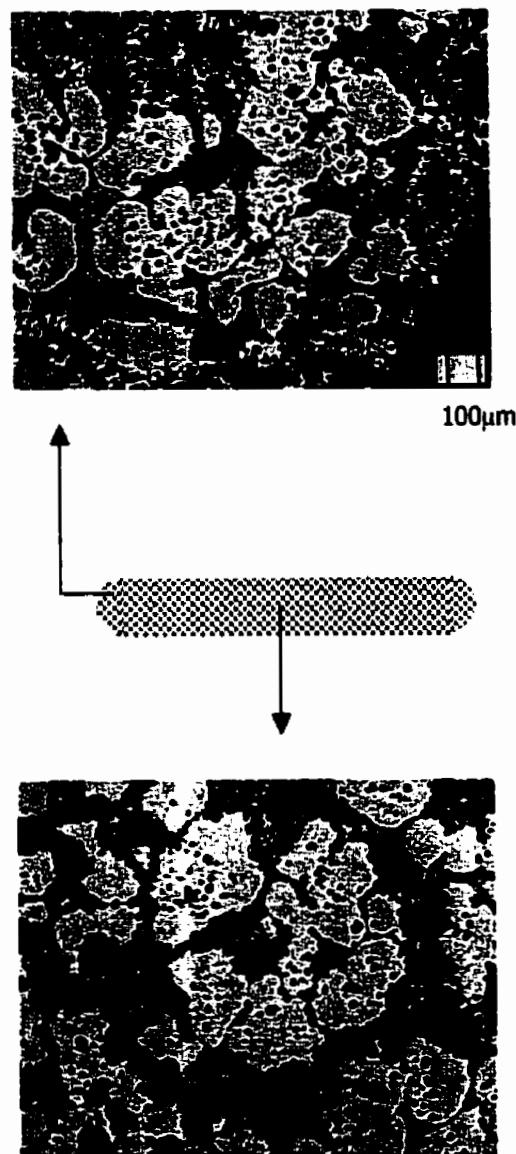
b)  $e=0.5, \dot{\varepsilon} = 2 \cdot 10^{-3} \text{ s}^{-1}, T=575^\circ\text{C}, F=60\text{kPa}$



**Figure 3.72 : Microstructure des éprouvettes 6S3G dendritiques ( $e=0.62$ )**

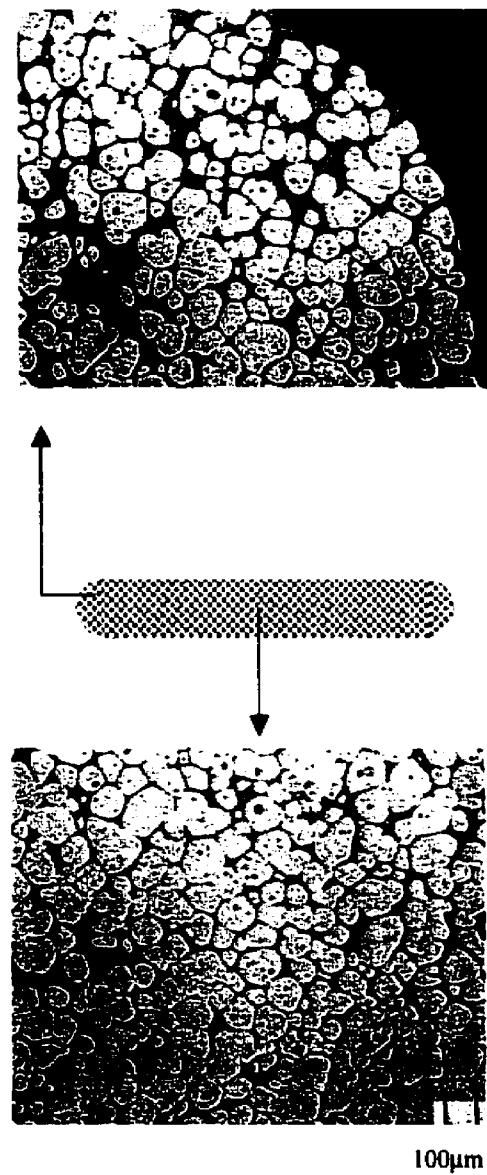
a): $e=0.62, \dot{\varepsilon} = 210^{-3} \text{ s}^{-1}, T=575^\circ\text{C}, P_0=200\text{kPa}$

b)  $e=0.62, \dot{\varepsilon} = 210^{-3} \text{ s}^{-1}, T=585^\circ\text{C}, P_0=20\text{kPa}$



**Figure 3. 73 : Microstructure des éprouvettes 6S3G rhéocoulées ( $e=0.5$ )**

$e=0.5, \dot{\varepsilon} = 10^{-3} \text{ s}^{-1}, T=575^\circ\text{C}, P_0=42\text{kPa}$



**Figure 3. 74 : Microstructure des éprouvettes A356 rhéocoulées ( $e=0.5$ )**

$e=0.5, \dot{\varepsilon}=10^{-3} s^{-1}, T=585^\circ C, P_0=42 kPa$

## CONCLUSION GÉNÉRALE ET RECOMMANDATIONS

Ce travail est une contribution à la meilleure compréhension des mécanismes impliqués lors de l'élaboration et la mise en forme des gelées semi-solides des alliages et particulièrement des composites. Deux techniques de viscosimétrie ont été utilisées pour mener à bien cet objectif. Une première technique de type viscosimètre de Couette, s'apparentant aux dispositifs d'élaboration des gelées semi-solides, nous a permis d'évaluer les propriétés rhéologiques, à l'état liquide et à l'état semi-solide des matériaux à l'étude. Dans la deuxième technique, qui s'apparente au thixoforgeage, le comportement rhéologique des alliages et des composites partiellement refondus a été évalué par compression entre plateaux parallèles.

À l'état liquide, la viscosité des composites a été mesurée pour différentes températures et vitesses de cisaillement à l'aide de viscosimètres à agitateurs. Deux types d'agitateurs ont été sélectionnés pour leur capacité à assurer et maintenir une bonne qualité de suspension des particules de renfort dans le liquide. Les résultats ont montré que la viscosité varie selon deux régimes de vitesse de cisaillement. À basse vitesse de cisaillement, la viscosité diminue lorsque la vitesse de cisaillement augmente. Dans cette région de cisaillement, la viscosité peut être décrite par une loi de puissance. À vitesse de cisaillement plus élevée, la viscosité atteint un plateau newtonien. La valeur de ce dernier dépend de la nature ainsi que de la fraction des particules de renfort. Les résultats ont montré que la viscosité de la suspension bimodale correspondant aux composites GrA-Ni<sup>3</sup> est plus faible que celle de la suspension unimodale A356-15%SiC contenant le même pourcentage volumique de renfort. Nous avons été en mesure d'expliquer ce résultat en combinant l'approche de Filderis aux relations de Thomas et de Mori-Ototake.

Les expériences en refroidissement continu ont montré que dans l'état semi-solide, la viscosité des composites et des alliages est contrôlée par la phase primaire. Le caractère thixotropique des gelées semi-solides a été mis en évidence en faisant varier la vitesse de cisaillement et la vitesse de refroidissement. Les résultats ont montré qu'à fraction solide totale égale (particules primaires + renforts), les composites ont une viscosité sensiblement semblable. Comme bon nombre d'auteurs, nous avons mesuré une viscosité plus faible pour les composites que pour les alliages pour une fraction solide égale. Cet effet fluidifiant a été attribué au fait que dans les composites, le degré d'agglomération de la phase primaire est plus faible à cause de la présence des particules de renfort dans le liquide. Comme dans bon nombre de travaux, la viscosité en refroidissement continu a été décrite avec succès par la relation de Thomas.

Les expériences en condition isotherme et stationnaire ont permis de mettre en évidence la chute de viscosité associée à la dégradation des gelées semi-solides sous l'action du cisaillement. La chute de viscosité a été décrite avec succès à l'aide du modèle cinétique de Mada et Ajersch. Pour toutes les fractions solides étudiées, les résultats ont montré que la constante cinétique de dégradation augmente avec la vitesse de cisaillement. Une variation linéaire avec la vitesse de cisaillement décrit assez bien nos résultats expérimentaux. Pour des fractions solides primaires supérieures à 20%, la pente de la droite  $K_D = f(\dot{\gamma})$  est relativement constante. Pour des fractions solides inférieures, la pente est beaucoup plus importante indiquant une cinétique beaucoup plus rapide. Ce résultat met en relief la relation entre la cinétique de dégradation et le degré d'agglomération des gelées semi-solides. Dans le régime de vitesse de cisaillement étudié, les viscosités d'équilibre peuvent être décrites par une loi de puissance dont le coefficient de sensibilité à la vitesse de cisaillement est de l'ordre -1.2. Ce résultat apparemment contradictoire a été enregistré par de nombreux auteurs dans le même régime de vitesse de cisaillement. Celui-ci a été attribué à une dégradation rapide de la

structure à basse vitesse de cisaillement. Cette hypothèse a été confirmée par les essais de "Step change" où un coefficient de sensibilité à la vitesse de cisaillement de ~0.7 a été trouvé. Ce résultat montre qu'à structure constante, les gelées semi-solides ont un comportement pseudoplastique. Nous pensons que celui-ci est d'autant plus prononcé que la fraction solide et le degré d'agglomération sont importants. À haute vitesse de cisaillement, donc pour des structures dans un état dégradé, on peut anticiper un comportement newtonien.

Le caractère thixotropique des gelées semi-solides a également été mis en évidence par l'intermédiaire d'expériences en condition isotherme et pour une variation continue et en boucle de la vitesse de cisaillement. Les résultats ont montré que : lorsqu'on fait subir un cycle de cisaillement aux gelées semi-solides, on enregistre un comportement réversible lorsque la structure de celles-ci est dégradée avant la mise sous cisaillement. La dégradation de la structure peut être le résultat d'un cisaillement initial élevé, d'un cisaillement stationnaire (temps de maintien) ou d'un grand nombre de cycle. D'un autre côté, lorsque la structure est dans un état aggloméré, on enregistre un comportement thixotropique d'autant plus élevé que le degré d'agglomération est important. L'agglomération de la structure est favorisée pour un long temps de repos où une faible vitesse initiale de cisaillement. Un modèle basé sur les hypothèses du modèle thixotropique de Moore a été développé pour décrire nos résultats expérimentaux. Celui-ci prend en compte toutes les variables qui influencent la forme des boucles d'hystérésis, c'est à dire : le temps de montée, la vitesse de cisaillement maximale, l'état de référence (au travers de la valeur initiale de la variable interne de structure) et le nombre de cycles. Les résultats des simulations ont montré qu'à partir d'un seul ensemble de constantes déterminées expérimentalement, nous sommes en mesure de reproduire les résultats expérimentaux dans différentes conditions en ne jouant que sur la valeur initiale de la variable de structure.

Les résultats de compression ont montré que contrairement aux alliages, les composites solidifiés conventionnellement se déforment sans formation de fissure. Ce résultat a été attribué au fait que le caractère dendritique de la phase primaire des composites est atténué par la présence des particules de renfort. Après réchauffage, celui-ci peut même être éliminé par un temps de maintien à une température comprise dans l'intervalle de solidification. Nous avons cependant observé que les éprouvettes rhéocoulées s'écoulent plus rapidement que les éprouvettes dendritiques dans les mêmes conditions de pression et de température. Le comportement rhéologique, dans la gamme de vitesse de cisaillement étudiée, a été évalué avec succès par un modèle à loi de puissance. Pour les alliages rhéocoulés, les coefficients de cette dernière sont de l'ordre de ceux trouvés dans la littérature. Dans le cas des alliages dendritiques les coefficients sont plus importants indiquant une viscosité plus importante. Les résultats ont également permis de mettre en évidence l'effet de l'histoire thermomécanique des gelées semi-solides sur leur viscosité. Celle-ci étant plus importante lorsque les microstructures rhéocoulées sont évaluées après refusion partielle. Les analyses microstructurales ont montré que, tout comme pour les alliages, l'homogénéité de la microstructure des composites évalués en compression dépend fortement du niveau de déformation. Pour des déformations importantes, nous avons observé une dégradation du réseau dendritique et une ségrégation importante du liquide sur les bords des échantillons. Cette ségrégation s'accompagne d'une ségrégation des particules de renforts. Dans le cas des alliages rhéocoulés, ce phénomène de ségrégation apparaît pour des niveaux de déformations plus importants.

Tous les résultats obtenus dans ce travail sont présentés sous la forme de relations analytiques simples pouvant être intégrées à des logiciels de modélisation de la mise en forme à l'état semi-solide. Ces relations ont été utilisées pour modéliser le remplissage de moules de géométries complexes lors du moulage sous pression semi-solide de l'alliage A356 [112].

Afin de poursuivre ce travail, nous recommandons :

- 1) D'étendre le modèle développé pour décrire le comportement des gelées semi-solides soumis à une variation de vitesse de cisaillement, à d'autres alliages afin de vérifier la validité de l'approche considérée dans la présente étude. Une méthode expérimentale, basée sur des observations microstructurales, devraient être mise au point afin d'évaluer la valeur initiale du paramètre de structure pour différentes conditions de cisaillement et de temps de repos.
- 2) D'étudier l'effet d'un brassage dans l'intervalle de solidification sur la répartition des particules de renfort dans les composites. Une étude plus précise de l'interface entre les particules de renforts et la matrice devrait être réalisée à cet effet. Compte tenu du peu de données sur ce problème et de son importance sur le plan industriel, nous pensons que cette étude est primordiale.
- 3) D'évaluer le comportement rhéologique des alliages et des composites à des vitesses de cisaillement plus proche des conditions industrielles de mise en forme des gelées semi-solides. Il serait intéressant de montrer dans quelle mesure les effets de structures influencent le comportement rhéologique des gelées semi-solides à hautes vitesses de cisaillement. Compte tenu de l'importance industrielle du thixoforgeage, il serait utile de réaliser des essais de compression à hautes vitesses de cisaillement. D'un point de vue pratique, ceux-ci auraient l'avantage de s'appliquer aussi bien sur les alliages que sur les composites contrairement aux essais de type viscosimètre de Couette ou capillaire où la présence de particules de renforts peut être problématique.

## BIBLIOGRAPHIE

- [1] SPENCER, D.B (1971), PhD Thesis, Massachusetts Institute of Technology, Cambridge, MA.
- [2] BELL, J.A.E, STEPHENSON, T.F, WARNER, A. (1995). "Physical properties of graphitic silicon carbide aluminum metal matrix composites", INCO Limited Report 970788.
- [3] BELL, J.A.E, WARNER, A.E.M, STEPHENSON, T.F (1996). "Some automotive applications for cast graphitic aluminium nickel silicon carbide MMC", Proceedings of materials week, TMS/ASM conference, Cincinnati, Ohio, October 8-10.
- [4] YARANDI, F.M, ROHATGI, P.K and RAYS, S (1992). "Two phase flow behavior and microstructure in aluminium alloys-SiC particulate reinforced composites", Proceedings of the second international Conference on the Semi-solid alloys and composites TMS, p 447.
- [5] FLEMINGS, M.C (1974). "Solidification processing", Mc Graw Hill, New York.
- [6] MORTENSEN, A (1989). "On the influence of coarsening on microsegregation", Met Trans vol20 A, p 247.
- [7] KATTAMIS, T.Z, COUGHLIN, J.C and FLEMINGS, M.C (1966). "Influence of coarsening on dendritic arm spacing of Al-Cu alloys", Trans TMS-AIME, 239, p 1504.
- [8] OSTWALD, W (1900), Z.Phys.Chem 34, p 495.

- [9] WAGNER, C (1961), Z. Elektrochem. 65, p 581.
- [10] LIFSHITZ, I.M and SLYOZOV, V.V (1961). "The kinetic of precipitation from supersaturated solid solution", J.Phys.chem solids, 19, p 35.
- [11] MARSH, S.P, GLICKSMAN, M.E.,MELORO ,L and TSUTSUMI, K (1988). "Modelling of casting and welding processes", TMS, Warrendale, PA.
- [12]KURZ,W and FISHER,D.J (1984). "Fundamentals of solidification", Trans Tech Publ, Aedermannsdorf, Suisse.
- [13] YOUNG, K.P AND KIRKWOOD, D.H (1975). "The dendrite arm spacing of aluminium-copper alloys solidified under steady state conditions", Metall.Trans.A, 6A, p 197.
- [14] CHIEN, K.H and KATTAMIS, T.Z (1970). "Role of dendrite coarsening and coalescence in the establishment of cast microstructure", Z.für Metallkunde, 61, p 475.
- [15] MILLIÈRE, C, SECONDÉ, J.F, SUERY,M (1983). "Structure, propriété et mise en forme des alliages brassés à l'état semi-solide", Mémoire et études scientifiques, Revue de Métallurgie, p 277.
- [16] BIRAT, J.P,CHAUNE,J (1982). "Electromagnetic stirring on billet, bloom and slab continuous casters, state of the art ", Iron Steel Making, 10.

- [17] ROBERT, M.H, KIRKWOOD, P.H (1987). "Alloy slurry formation by partial melting", Proceedings of solidification processing conference, Sheffield,U.K, p 373.
- [18] DAMASCO,A, ROBERT, D.H (1990). "Globularisation of Al-8%Cu dendritic structures for rheocast slurries productions" 29<sup>th</sup> Annual conference of metallurgists, Hamilton, Canada 1990, p 274.
- [19] EDWARDS, C PALMER, S.B HORNSBY, M.J (1992). "Ultrasonic monitoring of partial melting of Al-Si alloys" Proceedings of the second international conference of the processing of semi-solid alloys and composites, TMS, p 22.
- [20] VOGEL, A, DOHERTY, RD, CANTOR, B (1977). "Stir-cast microstructure and slow crack growth", Int Conference in Solidification and Casting- Sheffield, U.K, p 518.
- [21] DOHERTHY, R.D, LEE, H.O-IN and FEEST, E.A (1984). "Microstructure of stir cast metals", Mater Sci and Eng, 65, p 181.
- [22] MOLENAAR, J.M.N, SMEULDERS, R.J and KATGERMAN,L (1986). "On the formation of the stircast structure", J.Mater.Sci, 21, p 389.
- [23] SPENCER, D.B, MEHRABIAN, R and FLEMINGS, M.C (1972). "Rheological behavior of Sn-15 Pct Pb in the Crystallisation Range", Metall Trans, 3, p 1925.
- [24] Rosenberg, R.A, Flemings, M.C and Taylor, H.F (1960). "Nonferrous binary alloys hot tearing", Trans-Am Foundrymen's Soc, 28, p 5518.

- [25] CIYNE, TW and DAVIES, G.J (1979). "Solidification and casting of metals", The metals Society. London, p 275.
- [26] SUERY, M and FLEMINGS, M.C (1982). "Effect of Stain on deformation behavior of semi-solid dendritic alloys" Metall Trans, 13A, p 1809.
- [27] PINSKY, D.A, CHARREYRON, P.O and FLEMINGS, M.C (1984). "Compression of semi-solid dendritic Sn-Pb alloys at low strain rates", Metall Trans, 15B, p 173.
- [28] MATSUMIYA, T and FLEMINGS, M.C (1981). "Modelling of continuous strip production by rheocasting", Metall Trans, Vol 12B, p 17.
- [29] TANAKA,S, TAKEUCHI, H, NAKASHIMA, H, SASAKI, K, YAMAMOTO, K (1994). "Current development in thin slip casting for stainless steel", The 3<sup>rd</sup> international conference on semi-solid processing of alloys and composites,TMS, p 327.
- [30] LAPLANTE, S,LEGROS, N, AJERSCH, F, CLEMENT, B, TURENNE, S (1996). "Extrusion of thixocast semi-solid A356-15 SiCp cylindrical sections", Proceeding of the 4<sup>th</sup> international conference on semi-solid processing of alloys and composites,TMS, Shefield, p 301.
- [31] KIUCHI, M, SUGIYAMA, S, ARAI, K (1971). "Study of metal forming in the mashy state. 1<sup>st</sup> Report", Proceedings of the 20<sup>th</sup> Int. NTDR conference , p 1.
- [32] ZVALIANGOS, A,LAWLEY, A (1995). "Numerical simulation of thixoforming", Journal of Materials Engineering and Performance, 4, p 40.

- [33] PLUCHON, C, LOUÉ, W, GARAT, M (1997). "Production of thixotropic aluminium alloy billets", The Minerals, Metals and Materials Society, p 215.
- [34] GIROT, F.A, ALBINGRE, L, QUENISSET, J.M and NASLAIN, R (1987). "Rheocasting Al Matrix Composites", Journal of metals, p 18.
- [35] BADIA, F.A, ROHATGI, P.K (1969). "Dispersion of graphite particles in aluminium castings trough injection of the melt", AFS TRANSACTIONS, p 402.
- [36] KRISHNAN, B.P and ROHATGI, P.K (1979). "Development of aluminium graphite cast composites", 28<sup>th</sup> Annual Convention (The Indian Institute of Foundrymen,Bangalore), p 17.
- [37] A . EINSTEIN (1905), Ann der Physik,17, p 549.
- [38] BRINKMAN, HC (1952). " The viscosity of concentrated suspensions and solutions", J chem. Phys, 20 , p 571.
- [39] SHIMA, R , J (1949), J Res NB542, p 409.
- [40] VAND, V, J (1948). " Viscosity of solutions and suspensions: I Theory", Phys et colloid chem. 52, p 277.
- [41] RUTGERS, R , (1962). "Viscosity and concentration", Rheol Acta, 2, p 202.

- [42] FRANKEL, NA et ACRIVOS, A (1967). "On the viscosity of a concentrated suspension of solid spheres", Chem . Eng. Sci, 22, p 847.
- [43] KRIEGER, I.M and DOUGHERTY, T.J (1959). "A mechanism for non-newtonian flow in suspension of rigid spheres" Trans.Soc.Rheol, p 137.
- [44] MOONEY, M (1951). "the viscosity of a concentrated suspension of spherical particles", J colloid Sci, 6, p 162.
- [45] MORI, Y and OTOTAKE, N (1956). "Viscosity of suspensions", chem.Eng. Japan, 20, p 488.
- [46] THOMAS, D.G (1965)."Transport characteristics of suspension: VIII. A note on the viscosity of Newtonian suspensions of uniform spherical particles" J colloid Sci, 20, p 267.
- [47] METZNER, A.B. (1985). "Rheology of suspensions in polymeric liquids", J. Rheol, 29, p 739.
- [48] MARON, S.H ad PIERCE, P.E (1956). "Application of Ree-Eyring generalized flow theory to suspension of spherical particles", J. Colloid Sci, 11, p 80.
- [49] CARREAU, P.J (1972). "Rheological equations from molecular network theories", Trans.Soc.Rheol, 16, p 99.
- [50] ROGER, I.T (1985). "Engineering rheology", Oxford science publications, Great Britain.

- [51] BARNES, H.A (1989). "Shear thickening in suspensions of nonaggregating solid particles in Newtonian liquids", *J.Rheol.*, 33, p 329.
- [52] ROHATGI, P.K, ASTHANA, R, DAS, A, (1986). "Solidification, Structure, and properties of cast metal-ceramic particle composites", *International Metal Review*, 31, p 115.
- [53] KRISHNAN, B.P, SURAPPA, M.K, ROHATGI, P.K (1981). "The UPAL process: a direct method of preparing cast aluminium alloy-graphite particle composites", *Journal of Materials Science*, p 1209.
- [54] MEHRABIAN, R, RIEK, P.G, FLEMINGS, M.C (1974). "Preparation and casting of Metal-Particulate Non-Metal Composites" *Metallurgical Transactions*, 5A, p 1899.
- [55] MYSELS, KJ (1959). "Introduction to Colloid Chemistry", Interscience, New York, Chapter 5.
- [56] DARCOVICH, K, GIERER, C, CAPES, C.E (1996). "The application of dynamic clustering data to the sedimentation rates of concentrated suspensions", *Advanced Powder Technol.*, 7, p 1.
- [57] BATCHELOR, G,K (1972). "Sedimentation in a dilute dispersion", *J. Fluid Mech.*, 52, p 245.
- [58] ZWIETERING, TH.N (1958). "Suspending of solid particles in liquid by agitators", *Chem. Eng. Sci.*, 8, p 244.
- [59] JOLY, P.A, MEHRABIAN, R (1976). "Rheology of partially solid alloy" *J. Mater.Sci*, 11, p 1393.

[60] ITO, Y, Flemings, M.C, Cornie, JA. (1992)."Rheological behaviour of al-6.5Wt% alloys", Nature and properties of Semi-Solid Materials (Eds J.A Sekhar and J.A Dantzig), Annual Meeting, p 3.

[61] MCLELLAND, A.R.A, HENDERSON, N.G, ATKINSON, H.V, KIRKWOOD, D.H (1992). "The evaluation of rheological measurements on semi-solid metal slurries", Proceedings of the second international conference on the processing of semi-solid alloys and composites, TMS, p 290.

[62] MCLELLAND, A.R.A, HENDERSON, N.G, ATKINSON, H.V, KIRKWOOD, D.H (1997)."Anomalous rheological behavior of semi-solid alloy slurries at low shear rates", mater Sci Engrg, 232A, p 110.

[63] LAXMANAN, V, FLEMINGS, MC (1980). "Deformation of semi-solid Sn-15 Pct Alloy", Metall.Trans, 11 A, p 1927.

[64] QUEMADA, D. (1986). "Rheology of heterogeneous fluids', 21<sup>st</sup> Ann. Colloq. Groupe Francais de rhéologie, Strasbourg, p 1.

[65] KUMAR, P, MARTIN, C, BROWN, S.B (1992). "Flow behavior of semi-solid materials", Proceedings of the second international conference on the semi-solid alloys and composites, TMS, p 248.

- [66] ALBERS, W, OVERBEEK, TH.G (1960)." Stability of emulsions of water in oil iii. Flocculation and redispersion of water droplets covered by amphipolar monolayers", *Journal of colloidal Science*, 15, p 489.
- [67] BROWN, S.B, KUMAR, P, MARTIN, CL (1992). "Constitutive response of semi-solid slurries", *Nature and Properties of Semi-solid Materials*, p 231.
- [68] KATTAMIS, T.Z and PICCONE, T.J (1991). "Rheology of semi-solid Al-4.5%Cu-1.5%Mg alloy", *Mater Sci and Eng*, 131 A, p 265.
- [69] LAPASIN, R (1983). "The phenomenological description of the thixotropic behaviour of fresh cement pastes", *Rheol . Acta*, 22, p 410.
- [70] MADA, M, AJERSCH, F (1996). "Rheological model of semi-solid A356-SiC composite alloys...", *Mater.Sci and Eng*, 212 A, p 157.
- [71] MOON, H-K, CORNIE,J.A, Flemmings, MC (1991), "Rheological behaviour of SiC particulate composite..." *Mater.Sci and Eng*, 144 A, p 253.
- [72] QUAAK, C.J, HORSTEN, M.G and Kool, W.H (1994). "Rheological behaviour of partially solidified aluminium matrix composites", *Mater. Sci. Eng*, 183 A, p 247.
- [73] MADA, M, AJERSCH, F (1990). *Metal and ceramic matrix composites: Processing, Modelling and Mechanical behaviour*. The minerals, Metals and materials society, Warrendale, Pennsylvania, p 337.

- [74] STEPHANESCU, D.M, MOITRA, A, KACAR, A.S, DHINDAW, B.K (1990). " The influence of buoyant forces and volume fraction of particles on the particle pushing...", Met Trans, 21 A, p 231.
- [75] LOUÉ,W (1992), Thèse de Doctorat, Institut National Polytechnique De Grenoble, France.
- [76] SIGWORTH, G.K (1996). "Rheological properties of metal alloys in the semi-solid state", Canadian Metallurgical Quaterly , 35, p 101-122.
- [77] DABAK,T, YUCEL, O (1987). "Modeling of the concentration and particle size distribution effects on the rheology of highly concentrated suspensions" , Powder Technology, 52, p 193.
- [78] CHARREYRON, P.O, FLEMINGS, M.C (1985). "Rheology of semi-solid dendritic Sn-Pb alloys at low strain rates: Application to forming process", Int. J. Mech. Sci, 27, p 781.
- [79] GUNASEKERA, J.S (1992). "Development of a constitutive Model for mushy materials", Proc. 2<sup>nd</sup> Int. Conf on semi-solid alloys and composites, TMS, p 211.
- [80] Nguyen, T.G (1991), Thèse de Doctorat, Institut National Polytechnique De Grenoble, France.
- [81] ZAVALIANGOS, A, TZIMAS, E (1998). "A two phase model of the mechanical behavior of semi-solid metallic at high volume fractions of solid", Proc. 5<sup>th</sup> Int. Conf on semi-solid alloys and composites, TMS, p 705.

- [82] PRASAD, S.V and MCCONNELL, B.D (1991). "Tribology of aluminum metal matrix composites:lubrication by graphite" *Wear*, 149, p 241.
- [83] STEPHENSON, T.F WARNER, A.E.M WILSON, S (1995). "Aluminium hyrid composites containing nickel-coates graphite particulate" rapport interne, INCO Limited.
- [84] MURRAY, J.L, MCALISTER, A.J (1884). "The Al-Si system", Bulletin of alloy phase diagram, 5, p 74.
- [85] MONOLFO, L.F (1976). "Aluminium alloys: Structure and Properties", Butterworths, Londres, Royaume-Uni.
- [86] PHILLIPS, H (1959). "Annotated equilibrium diagram of some aluminium alloy systems", Institute of Metals monograph and report series, p 84.
- [87] FUSS, V. (1934). "Merallography of aluminium and its alloys", Springer Verlag, Berlin, p 143.
- [88] PRATT, J, RAYNOR, G (1951). "The intermetallic compounds in the alloys of aluminium and silicon with Chromium, Manganese, Iron, Cobalt and Nickel" , *J.Inst.Met*,79, p 211.
- [89] PHILLIPS, H (1942). "The constitution pf the aluminium-Rich alloys of the Aluminium-Nickel-Iron and Aluminium-Nickel-Silicon Systems", *J.Inst.Met*,68, p 27.

- [90] WEISSE, E (1939). "The Al Corner of the ternary Al-Ni-Si System", Aluminium Archiv, 26, p 5.
- [91] TRESPAILLE, P, SUERY, M (1994). "Microstructural and ... of aluminium matrix composites reinforced with Ni and NiP coated SiC particles via liquid processing" Materials Science and Technology, 10, p 497.
- [92] MARTYNOVA, N, RADIONOVA, E.K, TISHURA, T.A, CHERNEEVA, L.I (1984). "Enthalpy of melting of metallic eutectics" Russ. J. Phys. Chem , 58, p 616.
- [93] GUARD, R, SMITH, E (1959). "Constitution of nickel-base ternary alloys. III: Ni-Al-Si", J.Inst.Met., 88, p 369.
- [94] GEORG,B, BATZNER, C and HANS,L.L "Ternary Alloys: A comprehensive Compendium of evaluated constitutional data and phase diagrams" Edited by G.Petzow and G.Effenberg Volume 7 Al-Mg-Se to Al-Ni-Ta, p467.
- [95] DINSDALE, A.T (1991) Calphad, 15, p 317.
- [96] PELTON, A.D, BALE, C.W, THOMPSON, W.T, F\*A\*C\*T, École polytechnique de Montréal, 2000, [http :www.CRCT.polymtl.ca](http://www.CRCT.polymtl.ca).
- [97] PELTON, A.D (1991). "Chapter 1: Thermodynamics and phase diagrams of materials", Materials science and technology, 5 VCH, Weinheim, Germany, p 1-76.

[98] REDLICH, O KISTER, A (1948), Ind. Eng. Chem, 40, p 345.

[99] COST European Cooperation in the field of Scientific and Technical Research (1994), COST 507, Concerted action on materials sciences, 'Thermochemical database for light metal alloys'.

[100] ASM HANDBOOK (1992), Alloy phase diagrams, Vol 3.

[101] ANSARA, I, DUPIN, N (1997). "Thermodynamic assessment of the Al-Ni system", Journal of alloys and compounds, 247, p 20.

[102] MEY, S (1986). "A thermodynamic evaluation of the Ni-Si System", Z.Metallkde, p 805.

[103] LINDHOLM, M, SUNDMAN, B (1996). "A thermodynamic evaluation of the nickel-silicon system", Metallurgical and materials transactions ,27 A, p 2897.

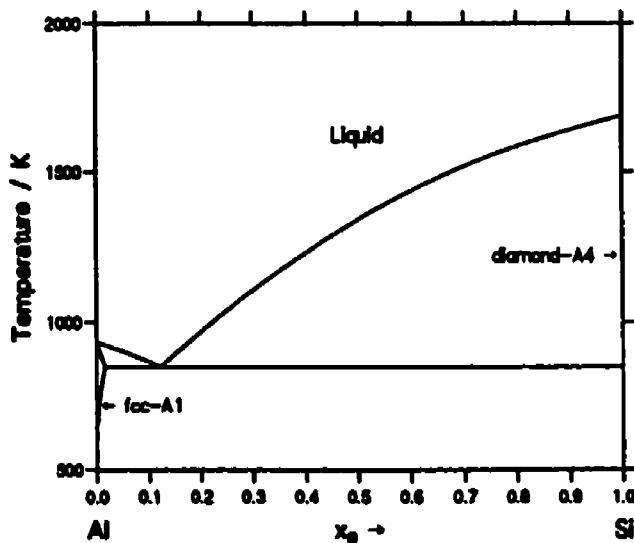
[104] SCHEIL, E, Z Metallk, 34, p 70, 1942.

[105] METZNER, A.B and OTTO, R.E (1957). "Agitation of Non-Newtonian Fluids", AIChE J., 3, p 3.

[106] SHAMLOU, P and EDUARDS, M.F (1985) "Power Consumption of Helical Ribbon Mixers in Viscous Newtonian and Non-Newtonian Fluids", Chem. Eng. Sci., 40, p 1773.

[107] MADA, M (1992), Thèse de Doctorat, École Polytechnique De Montréal.

- [108] CHANG, C and POWELL, R (1994). "Effect of particle size distributions on the rheology of concentrated bimodal suspensions", J.Rheol, 38, p 85.
- [109] FILDERIS ET WHITMORE,R.N, Rheol.Acta,Vol.1,4-6 (1961).
- [110] CHENG, D.C-H and EVANS, F (1965). "Phenomenological characterization of the rheological behaviour of inelastic reversible thixotropic and antithixotropic fluids", Brit. J Appl. Phys, 16, p 1599.
- [111] MOORE, F (1959). "The rheology of ceramic slips and bodies", Trans. Brit. Ceramic Soc, 58, p 470.
- [112] BEAULIEU, A, AZZI, L, AJERSCH, F, TURENNE, S, PINEAU, F, LOONG, C.A (2000)."Numerical modeling and experimental analysis of die cast semi-solid A356 alloy" MERTON C.FLEMINGS SYMPOSIUM,TMS, June 28-30, 2000-Cambridge, MA, Edited by BRODY, H and URAM, S.Z.

**ANNEXE A****Les diagrammes binaires optimisés du système Al-Si-Ni****Diagramme de phase optimisé du système Al-Si**

D'après [99]

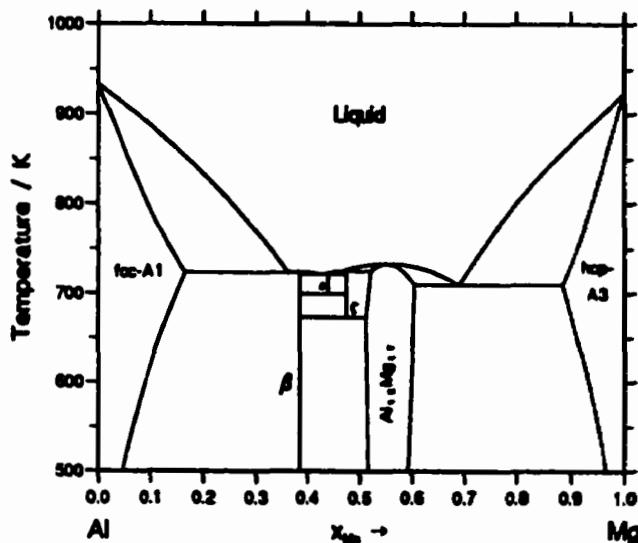
**Modélisation**

Phase liquide : Substitutionnelle , Redlich-Kister

Phase Diamond-A4: Substitutionnelle , Redlich-Kister

Phase fcc-A1 : Substitutionnelle , Redlich-Kister

Diagramme de phase optimisé du système Al-Mg



D'après [99]

### Modélisation

Phase liquide : Substitutionnelle , Redlich-Kister

Phase fcc-A1 : Substitutionnelle , Redlich-Kister

Phase hcp-A3 : Substitutionnelle , Redlich-Kister

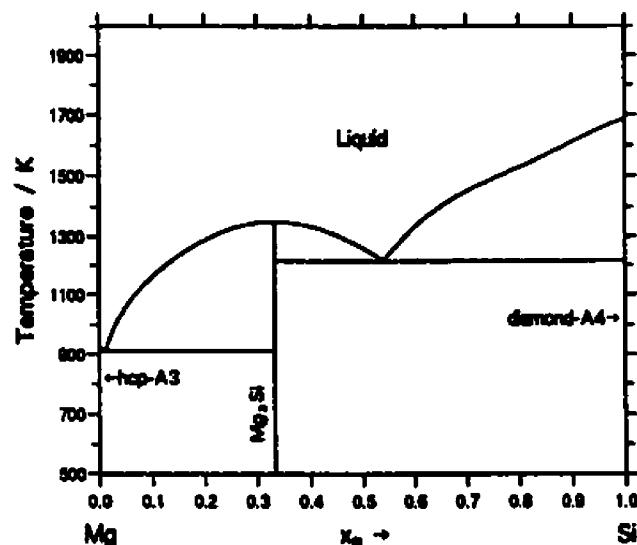
Al<sub>12</sub>Mg<sub>17</sub> : Modèle des sous réseaux, Mg<sub>24</sub>(Al,Mg)<sub>10</sub>(Al,Mg)<sub>24</sub>

Al-Mg-β : Composé Stochiométrique, Al<sub>0.615</sub>Mg<sub>0.385</sub>

Al-Mg-ε : Composé Stochiométrique, Al<sub>0.56</sub>Mg<sub>0.44</sub>

Al-Mg-γ : Composé Stochiométrique, Al<sub>0.525</sub>Mg<sub>0.475</sub>

Diagramme de phase optimisé du système Mg-Si



D'après [99]

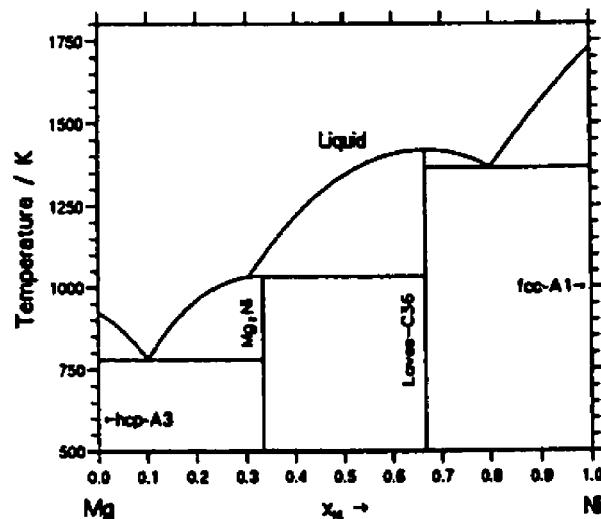
### Modélisation

Phase liquide : Substitutionnelle , Redlich-Kister

Phase hcp-A3 : Substitutionnelle , Redlich-Kister

Mg<sub>2</sub>Si: Composé Stochiométrique, Mg<sub>2</sub>Si

Diagramme de phase optimisé du système Mg-Ni



D'après [99]

### Modélisation

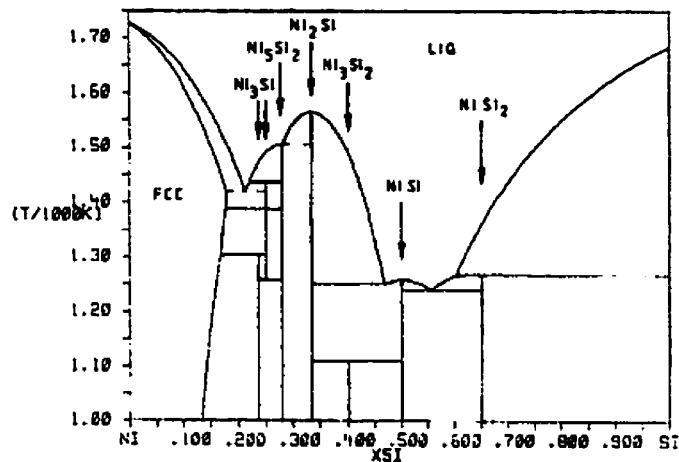
Phase liquide : Substitutionnelle , Redlich-Kister

Phase fcc-A1 : Substitutionnelle , Redlich-Kister

Mg<sub>2</sub>Ni : Composé Stochiométrique, Mg<sub>2</sub>Ni

Laves-C36 : Composé Stochiométrique, MgNi<sub>2</sub>

Diagramme de phase optimisé du système Ni-Si



D'après [102]

### Modélisation

Phase Ni-Liquide : Substitutionnelle , Redlich-Kister

Phase Ni-fcc : Substitutionnelle , Redlich-Kister

Ni<sub>3</sub>Si : Composé Stochiométrique

Ni<sub>5</sub>Si<sub>2</sub> : Composé Stochiométrique

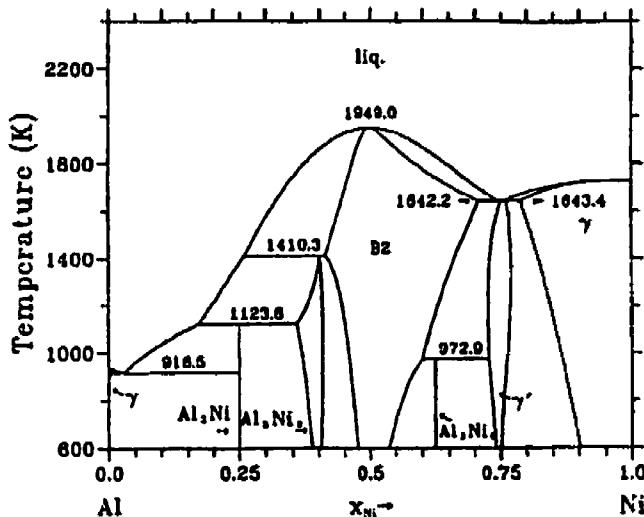
Ni<sub>2</sub>Si : Composé Stochiométrique

Ni<sub>3</sub>Si<sub>2</sub> : Composé Stochiométrique

NiSi : Composé Stochiométrique

NiSi<sub>2</sub> : Composé Stochiométrique

Diagramme de phase optimisé du système Al-Ni



D'après [101]

**Modélisation :**

Phase liquide : Substitutionnelle , Redlich-Kister

Phase fcc-A1(γ) : Substitutionnelle , Redlich-Kister

Phase Al<sub>3</sub>Ni : Composé stochiométrique ,Al<sub>0.75</sub>Ni<sub>0.25</sub>Phase Al<sub>3</sub>Ni<sub>5</sub> : Composé stochiométrique ,Al<sub>0.375</sub>Ni<sub>0.625</sub>

Phase b.c.c-B2 : Modèle des sous réseaux, (Al,Ni)(Ni, ),

Phase L1<sub>2</sub>(γ') : Modèle des sous réseaux, (Al,Ni)<sub>0.75</sub>(Al,Ni)<sub>0.25</sub>Phase Al<sub>3</sub>Ni<sub>2</sub> : Modèle des sous réseaux, (Al)<sub>3</sub>(Al,Ni)<sub>2</sub>(Ni, )

=lacune

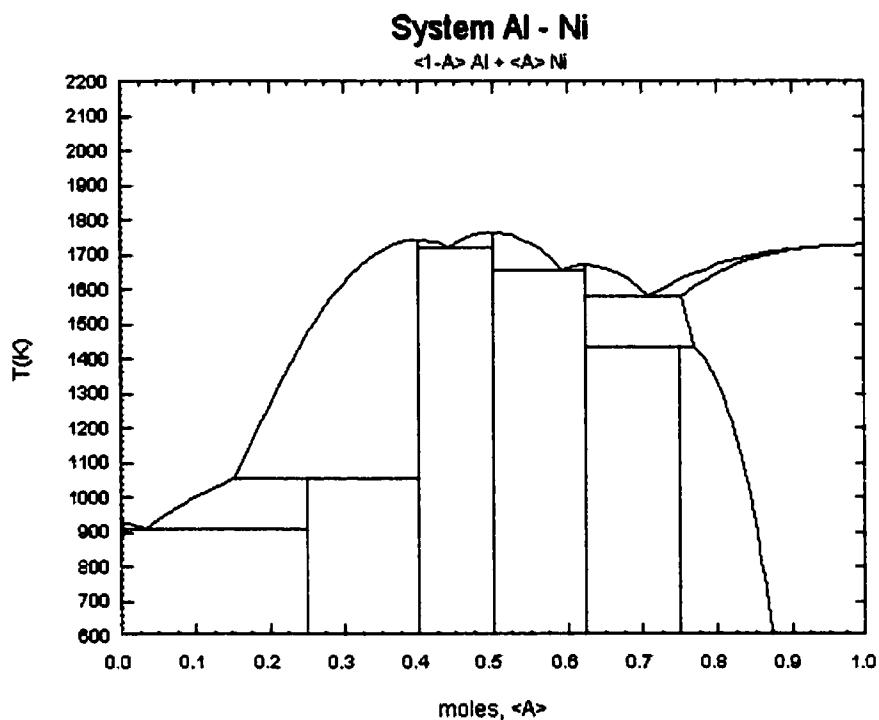


Diagramme Al-Ni optimisé en supposant tous les composés comme stoechiométrique (cas de la présente étude)

**ANNEXE B****DÉTAIL DE LA RÉSOLUTION DE LA RELATION 3.13**

$$\text{Pour } t \in [0, t_u] K_D(t) = a + b \frac{\dot{y}_{\max}}{t_u} t \rightarrow \int_0^t K_D(t) dt = \frac{b \dot{y}_{\max}}{2t_u} \left[ \frac{2at_u}{b \dot{y}_{\max}} t + t^2 \right] = \beta [(t + \theta)^2 - \theta^2]$$

Avec :

$$\theta = \frac{2at_u}{b \dot{y}_{\max}} \text{ et } \beta = \frac{b \dot{y}_{\max}}{2t_u}$$

d'où

$$\lambda(t) = \exp(-\beta(t + \theta)^2 - \beta\theta^2) \left[ \int_0^t K \exp(\beta(t + \theta)^2 - \beta\theta^2) dt + \lambda_0 \right]$$

soit

$$\lambda(t) = K \exp(-\beta(t + \theta)^2) \int_0^t \exp(\beta(t + \theta)^2) dt + \lambda_0 \exp(\beta\theta^2) \exp(-\beta(t + \theta)^2)$$

en posant :  $\beta\theta^2 = \xi$

Et en effectuant le changement de variable :  $u = \beta^{0.5}(t + \theta) \rightarrow \beta^{-0.5}du = dt$

Il vient :

$$\lambda(t) = \beta^{-0.5} K \exp(-u^2) \int_{\beta^{0.5}\theta}^u \exp(u^2) du + \lambda_0 \exp(\xi) \exp(-u^2)$$

$$\lambda(t) = \beta^{-0.5} K \exp(-u^2) \left[ \int_{\beta^{0.5}\theta}^0 \exp(u^2) du + \int_0^u \exp(u^2) du \right] + \lambda_0 \exp(\xi) \exp(-u^2)$$

en posant :  $y(u) = \exp(-u^2) \int_0^u \exp(t^2) dt = \text{Intégrale de Dawson}$

$$\lambda(t) = \beta^{-0.5} Ky(u) - \beta^{-0.5} K \exp(-u^2) \frac{\exp(-(\beta^{0.5}\theta)^2)}{\exp(-(\beta^{0.5}\theta)^2)} \int_0^{\beta^{0.5}\theta} \exp(u^2) du + \lambda_0 \exp(\xi) \exp(-u^2)$$

D'où :

$$\lambda(t) = \beta^{-0.5} Ky(u) - \beta^{-0.5} K \exp(-u^2) \exp(\xi) y(\xi^{0.5}) + \lambda_0 \exp(\xi) \exp(-u^2)$$

$$\lambda_m(t) = \beta^{-0.5} Ky(u) + \exp(\xi) \exp(-u^2) [\lambda_0 - K \beta^{-0.5} y(\xi^{0.5})]$$

pour  $t \in [t_u, 2t_u]$   $K_D(t) = a + b \left[ 2\dot{\gamma}_{max} - \frac{\dot{\gamma}_{max}}{t_u} t \right] \rightarrow \int_{t_u}^t K_D(t) dt = \left[ at + 2b\dot{\gamma}_{max}t - \frac{b\dot{\gamma}_{max}}{2t_u} t^2 \right]_{t_u}^t$

$$\begin{aligned} \int_{t_u}^t K_D(t) dt &= -\frac{b\dot{\gamma}_{max}}{2t_u} \left[ t^2 - \frac{2at_u t}{b\dot{\gamma}_{max}} - 4t_u t \right] + \frac{b\dot{\gamma}_{max}}{2t_u} \left[ t_u^2 - \frac{2at_u t_u}{b\dot{\gamma}_{max}} - 4t_u t_u \right] = \\ &= -\beta [t^2 - 2t(\theta + 2t_u)] + \beta [t_u^2 - 2t_u(\theta + 2t_u)] = -\beta(t - x)^2 + \beta(t_u - x)^2 \end{aligned}$$

Avec :  $x = \theta + 2t_u$

Donc :

$$\exp \int_{t_u}^t -K_D(t) dt = \exp(\beta(t - x)^2) \exp(-\beta(t_u - x)^2)$$

D'où :

$$\lambda(t) = \exp(\beta(t - x)^2) \exp(-\beta(t_u - x)^2) \left[ \int_{t_u}^t K \exp(-\beta(t - x)^2) \exp(\beta(t_u - x)^2) dt + \lambda_{0D} \right]$$

Avec :  $\lambda_{0D} = \lambda_m(t_u)$

en effectuant le changement de variable :  $V = \beta^{0.5}(t - x) \rightarrow dt = \beta^{-0.5} dV$

Il vient :

$$\lambda(t) = \lambda_{0D} \exp(V^2) \exp(-\beta(t_u - x)^2) + K \exp(V^2) \beta^{-0.5} \int_{\beta^{0.5}(t_u - x)}^t \exp(-V^2) dV$$

$$\lambda(t) = \lambda_{0D} \exp(V^2) \exp(-\beta(t_u - x)^2) + K \exp(V^2) \beta^{-0.5} \left[ \int_0^V \exp(-V^2) dV - \int_0^{\beta^{0.5}(t_u - x)} \exp(-V^2) dV \right]$$

D'où :

$$\lambda_D(t) = \lambda_{0D} \exp(V^2) \exp(-\beta(t_u - x)^2) + K \exp(V^2) \beta^{-0.5} \left[ \frac{\sqrt{\pi}}{2} \operatorname{erf}(V) - \frac{\sqrt{\pi}}{2} \operatorname{erf}(\beta^{0.5}(t_u - x)) \right]$$

$$\lambda_D(t) = \lambda_{0D} \exp(-V^2) \exp(-V_u^2) - \frac{\sqrt{\pi}}{2} K \exp(-V^2) \beta^{-0.5} [\text{erf}(V_u) - \text{erf}(V)]$$

$$\text{Avec : } \text{erf}(x) = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^x \exp(-t^2) dt \text{ et : } V_u = V(t_u) = \beta^{0.5} (t_u - x)$$