

D. MIROUD, M. ZIDANI, S. AKLOUCHE, M. TATA

Effet de la formation d'agglomérats de W/Ni au cours du chauffage sur la densification du composite W-15Ni infiltré par le bronze industriel Cu-9Ni-6Sn.

D. MIROUD¹, M. ZIDANI², S. AKLOUCHE³, M. TATA¹

- ¹. Laboratoire des Sciences et de Génie des Matériaux (LSGM), Faculté de Génie Mécanique et Génie des Procédés, USTHB, BP 32, Bab Ezzouar 16111, Alger, Algérie. dmiroud@usthb.dz
- ². Laboratoire de Génie Énergétique et matériaux (LGEM), Département de Génie Mécanique. Université de Biskra, B.P.145 R.P. 07000, Biskra, Algérie.
- ³. Laboratoire des Transferts Polyphasiques et des Milieux Poreux (LTPMP), Faculté de Génie Mécanique et Génie des Procédés, USTHB, BP 32, Bab Ezzouar 16111, Alger, Algérie.

Résumé

Nous nous sommes dans ce travail à étudier la consolidation des poudres libres Ni, W, et le mélange W-15%Ni en phase solide puis en phase liquide par le biais d'un liant métallique. La caractérisation physico-chimique des consolidés est réalisée par microscopie électronique couplé à l'EDS. Le phénomène de diffusion de Ni à l'état solide conduit à la formation d'agglomérats de particules réfractaires de W/ Ni confirmant ainsi le rôle du nickel dans l'activation de la consolidation du mélange de poudres W-15Ni. Ce réarrangement asymétrique conditionne le comportement des particules de W et Ni avec l'arrivée du métal liquide. La densification dans le sens de l'infiltration spontanée engendre une dureté croissante de la phase liante dont l'écart peut atteindre 100 HV0.1.

Mots clés : Infiltration spontanée, formation d'agglomérats, frittage en phase solide.

1. Introduction

Le frittage en phase liquide par infiltration est un procédé important dans la production d'une large gamme de matériaux multi-constitués combinant les meilleures propriétés d'éléments métalliques et non métalliques. Les techniques utilisées offrent d'énormes possibilités liées à la rapidité de réalisation et l'obtention de formes très complexes en une seule

D. MIROUD, M. ZIDANI, S. AKLOUCHE, M. TATA

étape sans compromettre les propriétés mécaniques et l'état de surface [1, 2]. Elles font intervenir le processus de fusion et d'infiltration spontanée d'un liant métallique à bas point de fusion [3-8] ou d'infiltration sous pression [9, 1]. La technique non conventionnel d'infiltration spontanée est très attractive et plus économique pour les outils diamantés résistant à l'érosion et aux abrasions destinés au forage pétrolier et minier.

Peu de travaux ont été consacrés à l'infiltration de poudres libres, alors que, l'infiltration spontanée de corps poreux (compactés et/ou pré-frittés) à fait l'objet de plusieurs études [7, 8]. Sous l'effet des forces capillaires, le métal liquide est introduit pour remplir le système de pores interconnectés des poudres libres de W-Ni et/ou WC-Ni [3, 4, 10, 11, 12,]. La structure des composites obtenues, pour le même alliage, est semblable à celle consolidée par frittage en phase liquide selon les trois stades décrits par les modèles de Kingery [13-15] ou de Lee- Kang ([16-17]).

Le réarrangement du système de pores des poudres libres lors du chauffage en phase solide ou en contact de l'infiltrant au cours du premier stade de frittage en phase liquide peut avoir des conséquences considérables sur la densification. Le réarrangement peut débuter avant l'arrivée (apparition) de la phase liquide. L'écoulement du liant par diffusion vers la surface des grains de W sous forme de monocouches favorise la formation de réseau d'agglomérats [18, 20, 21]. La progression des réactions en phase solide dépend du taux de Ni et de son état physico-chimique [21-26].

L'arrivée du métal liquide peut accentuer la formation d'agglomérats durant le premier stade du frittage en phase liquide. La croissance de ces agglomérats peut engendrer une ségrégation (sédimentation) significative [25, 27, 28, 29, 30, 31]. La description des phénomènes devient compliquée par l'influence des phases dispersées dans le consolidé et au nombre important d'interactions locales, comme la mouillabilité, l'inter-dissolution, les réactions chimiques au niveau du contact des particules ou les différentes réactions avec l'atmosphère [32].

Nous nous intéressons dans ce travail à l'étude de l'effet de la consolidation au cours du chauffage (en phase solide) sur la configuration du composite W-15Ni après infiltration d'un liant métallique (Cu-9Ni-6Sn). La caractérisation des microstructures issues des cycles de frittage en phase solide nous permet de mettre en évidence le rôle des particules du Ni sur l'évolution du consolidé en présence du liquide. Des profils de microdureté HV0.1 sont établit dans le sens de

l'infiltration et discutés par rapport à l'évolution des structures des poudres de base (Ni et W) obtenues dans les mêmes conditions d'infiltration.

2. Procédure expérimentale

Les poudres de W et Ni utilisées dans cette étude présentent des puretés respectives de 99.7%, et 99.5 %. La répartition granulométrique de Ni varie dans l'intervalle 38 - 106 μ m alors que celle de W varie dans l'intervalle 63-150 μ m. Les densités apparentes avant et après tassement de W sont nettement supérieures à celles correspondant au Ni et sont respectivement 6.6 et 7.8 g/cm³ contre 4.5 t 5.1 g/cm³. Le mélange homogène W-15% pds de Ni est réalisé par malaxage dans un Tarbula sa densité après tassement correspond à 7.33 g/cm³. Les consolidés sont réalisés dans des moules en graphite sous une atmosphère d'hydrogène (Fig. 1). Pour un temps de maintien de 20 min, les températures en phase solide sont progressivement 980°, 1030° et 1130°C, alors que l'infiltration est effectuée à 1180°C. Afin d'améliorer la mouillabilité, la solubilité solide/liquide, et réduire la tension surfacique de l'interface S/L/V [4-33], nous avons ajouté au liant une quantité suffisante de flux (agent réducteur ; Sodium Tetraborate Decahydrate).

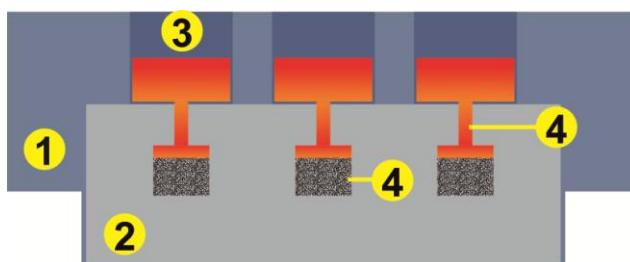


Fig.1 : Dispositif d'infiltration en graphite ; (1) réservoir des granulés du liant (2) moule (3) cavité contenant les granulés du liant et le flux (4) empreinte contenant le mélange de poudre (5) canal servant à acheminer le métal liquide vers les poudres (attaque).

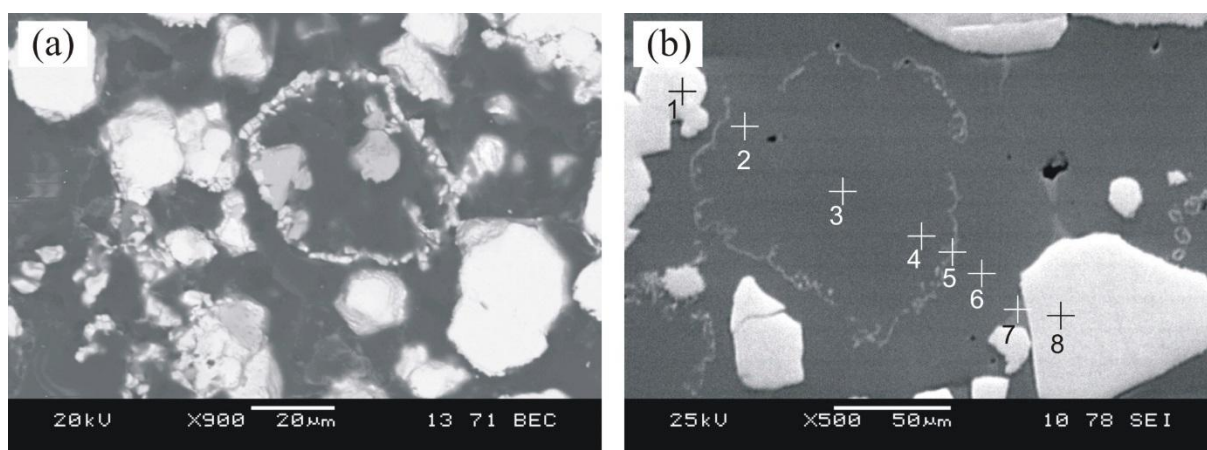
Les échantillons issus de la consolidation en phase solide et après infiltration sont préparés par polissage jusqu'à finition au feutre à 1 μ m. Ils sont examinés en suite à fine échelle à l'aide d'un microscope électronique à balayage de marque JEOL JSM 68-63 couplé à l'EDS. Des profils d'affiliation de microdureté HV0.1 sont établis dans le sens de l'infiltration.

3. Résultats et discussions

Effet du chauffage sur la densification en phase liquide par infiltration.

La consolidation en phase solide pour les températures 980°, 1030° et 1130°C est gérée par le mécanisme de diffusion du nickel par étalement sur les particules réfractaires de W. La Fig.2 montre l'effet de la formation d'agglomérats lors du chauffage en phase solide sur la configuration de la microstructure issue de l'infiltration du mélange W-15%Ni. En l'absence du liant liquide il y'a formation d'agglomérats autour des particules de Ni induisant une porosité importante de Ni (en forme d'anneau). L'examen du même mélange consolidé en phase liquide montre la persistance de la forme en anneaux du Ni après infiltration. La diminution de l'épaisseur, due à la dissolution en présence du liquide est fonction de temps de maintien. Une dissolution totale du nickel pour le même mélange peut avoir lieu pour une infiltration après une durée de maintien de 30min. à 1180°C [34].

Le profil de concentration chimique établi par EDS dans la zone de l'ex-agglomérat (Fig2-b) est résumé dans le tableau 2. Le Ni servant d'activant de frittage dans le cas du mélange W-15Ni à l'état solide, semble orienter la solidification de la nouvelle phase liante constituée d'un alliage regroupant ; le liant métallique en bronze et le Ni provenant des poudres dissoutes.. La dissolution de Ni qui enrobait les particules de W dans la zone d'agglomérats, semble favoriser la formation d'une phase ternaire Cu-Ni-Sn riche en étain au voisinage de W.



D. MIROUD, M. ZIDANI, S. AKLOUCHE, M. TATA

Fig. 2: Micrographies du mélange W-15%Ni montrant l'effet de la formation d'agglomérats lors du chauffage en phase solide (a) à 1130°C/20min. sur la densification en phase liquide par infiltration. (b) à 1180°C/20min.

Tableau 1. : Analyse ponctuelle EDS d'une zone de la zone d'agglomérat (Fig.2-b)

Zone	Composition (pds%)				
	Sn	Mn	Ni	Cu	W
1	0	0	0	0	100
2	4.87	3.83	14.57	76.73	0
3	3.8	4.76	17.36	74.09	0
4	5.58	5.22	15.56	73.64	0
5	5.07	4.08	12.02	60.02	18.81
6	7.04	4.79	12.63	75.04	0
7	37.55	8.54	27.95	22.50	3.44
8	0	0	0	0	100

Dans le même intervalle de température (1030°-1130°C), deux phénomènes progressent simultanément ; d'un côté, la diffusion de Ni sur les particules de W en phase solide, de l'autre côté, le passage progressif des granulés du liant dans le réservoir du moule à l'état liquide enclenchant le processus d'infiltration spontanée. La progression de l'étalement de Ni sur les particules de W à l'état solide est stoppée par l'arrivée du métal liquide à une température supérieure à 1130°C. Le métal en fusion se dirige à travers le système de pores interconnectés par capillarité et va entamer le processus de dissolution du nickel détruisant ainsi les zones d'agrégats formées au cours du chauffage. Les grains de W auront alors une mobilité totale et se réarrangeront individuellement [35-37].

Profil de microdureté HV0.1 dans le sens d'infiltration

La Fig.3 donne les profils de microdureté HV0.1 établi dans le sens de l'infiltration du mélange de poudres W-15Ni comparé aux poudres de base Ni et W obtenus dans les mêmes conditions d'infiltration (1180°C/20min.).

L'évolution de la microdureté au sein de la phase liante du mélange W-15Ni est croissante dans le sens de l'infiltration. Les valeurs de la microdureté sont en moyenne de 150 HV dans la partie supérieure de l'échantillon qui correspond au début de l'infiltration du liant liquide, Ces

D. MIROUD, M. ZIDANI, S. AKLOUCHE, M. TATA

valeurs augmentent progressivement dans le sens de l'infiltration pour atteindre une dureté moyenne proche de 300 HV. Ceci peut être expliqué par l'influence des mécanismes de dissolutions et précipitations progressives mis en jeu dans le processus de la densification en phase liquide.

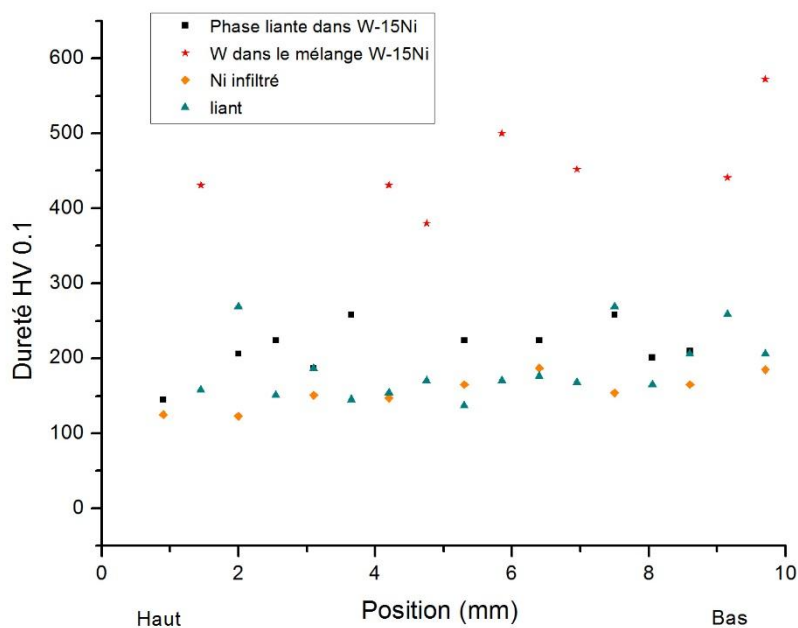


Fig.3 : Profils de microdureté HV0.1 établi dans le sens de l'infiltration du mélange W-15Ni obtenus dans les conditions d'infiltration (1180°C/20 min).

3. CONCLUSION

Les phénomènes de consolidation par infiltration du mélange de poudres W-15Ni sont étudiés. L'étape de chauffage dans le cycle de frittage par infiltration met en évidence le rôle du nickel dans l'activation de la consolidation et la formation d'agglomérats. Le réarrangement asymétrique des particules conditionne le comportement des particules de W et Ni à l'arrivée du liant liquide. La densification engendre une dureté croissante de la phase liante dans le sens de l'infiltration, l'écart peut atteindre 100 HV0.1.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] Varuzžan an M. Kevorkijan, , Composites Science and Technology 59 (1999), 683-686.
- [2] D. Uzunsoy, I.T.H. Chang, Materials Letters 59 (2005), 2812-2817.
- [3] Domsa S., Orban R., Proceedings, Euro PM 99, Italie, 199204, (nov. 1999).

D. MIROUD, M. ZIDANI, S. AKLOUCHE, M. TATA

- [4] Orban R., Domsa S., Proceedings, Euro PM 99, Italie, 65-70, (nov. 1999).
- [5] Yi Pan, Ming Xia Gao, Filipe J. Oliveira, Joaquim Manuel Vieira, João Lopes Baptista, *Materials and Engineering A359* (2003), 343-349.
- [6] H.C. Park , T.Y. Yang, S.Y. Yoon, R. Stevens, *Materials Science and Engineering A 405* (2005) 233–238.
- [7] H.S.L. Sithebe, D. McLachlan, I. Sigalas, M. Herrmann, *Ceramics International* 2008, Vol.34(6):1367-1371.
- [8] S.P. Taguchi, S. Ribeiro, R.M. Balestra, Infiltration of Al₂O₃/Y₂O₃ mix into SiC ceramic performs, *Ceramics International*, 2008, Vol.34 (3):625-629
- [9] R. Subramanian, J. H. Schneibel, *Intermetallics* 5, (1997), 401-408.
- [10] P.C. Caceras, *Materials characterization*, 49, 1-9, (2002).
- [11] Ashurst A. N., *Powder Metallurgy*, Vol. 139, 163-182, (1983).
- [12] [Kumar S., Kruth J.-P., *Mat. and Design*, 28, 400 –407, (2007)
- [13] German R. M., Plenum Press, 5-10, 119-122,160-162, (1985)
- [14] Lassner E., Schubert W. D., Plenum Publishes, P 215-263, 1999.
- [15] Goetzel C.G. Infiltration, *ASTM Handbook*, VOL. 3, 1996
- [16] Lee S.-M, Kang L. S.-J., *Acta Mater.* Vol. 46, N°9, 3191-3202, 1998.
- [17] Suk-Joong L.Kang, Elsevier Butterworth-Heinemann, 2005, 199-203.
- [18] In-Hyung Moon, Ki-Youl Kim, Sung-Tag Oh and Myung-Jin Suk, *Journal of Alloys and Compounds*, 201 (1993) 129-137
- [20] Lee J.S., W. A. Kaysser, G. Petzow, *Modern developments in powder metallurgy* 1985, 489-506.
- [21] Vivek K. Gupta, Dang-Hyok Yoon, Harry M. Meyer III, Jian Luo, *Acta Materialia* 55 (2007) 3131–3142.
- [22] I.H. Moon, Y.H. Su And Y.L. Kim, *Scripta Metallurgica* Vol. 21, pp. 749-751, 1987.
- [23] In-Hyung Moon, Young-Hwan Kim and Myung-Jin Suk, *Journd of the Less-Common Metals*, 170 (1991) 15-25.
- [24] Y.J. Park, D-Y. Kim and D.Y. Yoon, *Scripta mater.* 42 (2000) 421–425.
- [25] K.S. Hwang *, H.S. Huang, *Acta Materialia* 51 (2003) 3915–3926.
- [26] I. H. Moon and y. S. Kwon, *Scripta Metallurgica* vol. 16, pp. 1397-1400, 1982.
- [27] Lars B Ekbom, Anders Eliasson, *Moderne Developpments in Powder Metallurgy*, Vol. 19, 1988, 63-73.
- [28] Tewari A., Gokhlae A. M. et German, R. M., *Acta mater*, vol. 47, N°13, 3721-3734, (1999).
- [29] Olevsky, E. A. et German, R. M., *Acta mater*, 48, 1153-1166, (2000).
- [30] Olevsky, E. A., German, R. M. Upadhyaya A., *Acta mater*, 48, 1167-1180, (2000).
- [31] Peizhen Lu, German, R. M. et Iacocca R. G., *Metallurgical and Materials Transactions A*, Vol.32A, 2097-2107, (2001).
- [32] J.-M. Missiaen, *Solid-state spreading and sintering of multiphase materials*, *Science and Engineering A 475*: 2-11, 2008.
- [33] H. M. Zhu, L. Lu, J. Y. H. Fuh, C. C. Wu, *Materials and Design* 27 (2007), 166-170.
- [34] Miroud D., Lebaili S., Hamart-Thibault S., *Proceedings, Euro PM, European conference on advances in hard materials production, Nice*, 67-75, (2001).
- [35] Yoon D. N. et Huppmann W. J., *Acta Metallurgica*, Vol. 27, Issue 4, 693-698(1979).
- [36] Bollina R. et German R. M., *International Journal of Refractory Metals &Hard Materials*, 22, 117-127, (2004).
- [37] Delannay F., Pardoën D., Colin C., *Acta Materialia*, 53, 1655 –1664, (2005).

D. MIROUD, M. ZIDANI, S. AKLOUCHE, M. TATA