

ETUDE THERMOSTRUCTURALE DU NANOCOMPOSITE AL+1%NTCM

T. DORBANI¹, M. SAHLI¹, A. ZAHAF², S. REVO³, BOUBERTAKH², S. HAMAMDA²

¹ Laboratoire de Physique Energétique, Université des Frères Mentouri, Constantine 1.

² Laboratoire TTSM Université des Frères Mentouri, Constantine 1, Algérie.

³ Laboratory of Metal and Ceramics Physics, Taras Shevchenko National University of Kyiv, Ukraine

Reçu le 03/05/2014 – Accepté le 19/12/2015

Résumé

Le but de ce travail est l'influence de l'ajout de nanotubes de carbone multiparois (NTCM) dans l'aluminium. Plusieurs techniques ont été utilisées. L'investigation par la calorimétrie différentielle à balayage pour la détermination des séquences de précipitation montrent que le rôle des NTCM ne devient perceptible qu'au-delà de la température $T=430^{\circ}\text{C}$. Donc, à basse température, leur contribution est réduite à une impureté incontrôlable dans l'aluminium. La thermogravimétrie diminue sur un large domaine de température. La spectroscopie Raman confirme l'augmentation des défauts. Nos résultats sont en accord avec ceux de la littérature. Notre étude confirme l'impact de la concentration des NTCM sur les caractéristiques physico-chimique du nanocomposite Al - NTCM.

Mots clés : Aluminium, NTCM, Thermogravimétrie, Raman, Calorimétrie, Nanocomposite.

Abstract

The purpose of this work is the influence of the addition of multiwall carbon nanotubes (NCTM) in aluminum. Several techniques have been used. The investigation by the differential scanning calorimetry for the determination of precipitation sequences show that the role of NTCM becomes perceptible only above the temperature $T = 430^{\circ}\text{C}$. Therefore, at low temperature, their contribution is reduced to uncontrollable impurity in aluminum. Thermogravimetry decreases over a wide temperature range. Raman spectroscopy confirms the increase of defects. Our results are in agreement with those of literature. Our study confirms the impact of the concentration of NCTM on physicochemical characteristics of nanocomposite Al - NCTM.

Keywords: Aluminum, NCTM, Thermogravimetry, Raman, calorimetry, nanocomposite..

ملخص

في الألومنيوم. وقد استخدمت العديد من (NCTM) والغرض من هذا العمل هو تأثير إضافة أنابيب الكربون النانوية متعدد الطبقات يصبح محسوسا فقط أعلى من NTCM التقنيات. التحقيق من قبل الكالوري التفاضلية المسح لتحديد تسلسل هطول تظهر أن دور درجة مئوية. لذلك، في درجة حرارة منخفضة، وانخفاض مساهمتها في النجاسة لا يمكن السيطرة $T = 430^{\circ}\text{C}$ درجة الحرارة النقصان على نطاق واسع درجة الحرارة. رaman الطيفي يؤكد زيادة العيوب. وتتفق Thermogravimetry. عليها في الألومنيوم - نتانجنا مع تلك الموجودة في الأدب. دراستنا تؤكد تأثير تركيز نكتم على الخصائص الفيزيائية للمركب متناهي في الصغر آل NCTM.

الكلمات المفتاحية: الألومنيوم، NCTM، Thermogravimetry، رaman، الكالوري، بمركب متناهي في الصغر.

Introduction:

L'objectif de ce travail est l'étude d'un nanocomposite à base d'aluminium contenant 1% de nanotubes de carbone multiparois. Le choix de l'aluminium est lié à son abondance et sa présence dans la vie de tous les jours et surtout dans l'industrie du transport. Différentes études ont été réalisées par plusieurs équipes de part le monde. Dans les différents travaux [1], l'addition de NTC dans l'aluminium augmente le coefficient d'amortissement, renforce les propriétés mécaniques telles que la microdureté, la résistance à la traction, la limite élastique et diminue le coefficient de dilatation thermique. Les utilisations de composites à matrice métallique dans le domaine spatiale exigent des propriétés particulières, un faible coefficient de dilatation thermique, une bonne conductivité électrique et thermique. Les nanotubes de carbone répondent à ces besoins [2]. Plusieurs travaux ont montré que leur intégration dans une matrice d'aluminium améliorent nettement les propriétés dilatométriques, thermiques et électriques, sachant que les NTC ont un CTE=0 et des conductivités thermiques et électriques élevées [3,4].

D'après [5], le nanocomposite Al-NTC présente une résistance à la rupture en traction comparable à celle de l'aluminium pur, mais celle-ci ne se dégrade pas avec le chauffage contrairement à celle du métal pur, qui chute avec l'augmentation de la durée du traitement thermique. Les études sur le renforcement des matrices à base d'aluminium par des NTC montrent une grande amélioration des propriétés mécaniques, ainsi, Deng et al. [6] ont rapporté une augmentation de 129% de la résistance à la traction pour une inclusion de 5% en volume de NTC. Laha et al. [7] ont rapporté aussi une amélioration de dureté de 72 %, et de 79% pour le module d'élasticité avec une diminution de ductilité de 46% pour une inclusion de 10% en masse de NTC. Des résultats semblables ont été rapportés concernant des matrices en cuivre. Une augmentation de 200% de la limite d'élasticité avec une amélioration du module d'élasticité de 70% a été rapportée par Cha et al. [8] pour une inclusion de 10% en volume de NTC.

I. EXPERIMENTATION

La préparation des échantillons a été faite à partir de la poudre d'aluminium A999. Les nanotubes de carbone multiparois ont été préparés par le procédé CVD dans un réacteur tournant [9].

Al_2O_3 - MoO_3 - Fe_2O_3 a été utilisé comme un catalyseur. La source de carbone utilisée est le

propylène [9]. Le frittage du mélange des composants a été fait dans l'atmosphère d'argon à la température $T = 380 \text{ } ^\circ\text{C} \pm 5 \text{ } ^\circ\text{C}$ pendant 10 min puis la pièce a été laminée. La concentration en nanotubes de carbone multiparois dans le mélange est de 1%. Le frittage des échantillons a été effectué dans un moule à une pression de 45 MPa et le laminage a été fait à la température ambiante de telle sorte que la déformation relative après le premier passage à travers les rouleaux soit de l'ordre de 20% à 30% [4]. La taille moyenne des nanotubes de carbone est de 10 à 20 nm. La surface spécifique de 200 à 400 m^2/g a été calculée par la désorption de l'argon. Leur densité apparente est de 20 à 40 g/dm^3 [10].

Pour la caractérisation des échantillons prélevés des deux rubans nanométriques Al et Al + 1%NTCM, nous avons utilisé les techniques expérimentales suivantes : la calorimétrie différentielle à balayage (DSC), la thermogravimétrie (TG), la spectroscopie Raman et la spectroscopie infrarouge.

II. RESULTAT ET DISCUSSION

La figure 1 représente les variations calorimétriques du nanocomposite Al+1%NTCM et de l'aluminium pur sous forme de ruban obtenus dans les mêmes conditions. Nous remarquons que le comportement de la calorimétrie différentielle à balayage des deux nanomatériaux change d'un domaine de température à un autre.

De l'ambiante à 400°C, les allures des deux courbes sont les mêmes.

De 25°C à 150°C, elles sont confondues.

A partir de 160°C, la DSC du nanocomposite Al+1%NTCM devient inférieure à celle de l'aluminium pur.

Au delà de 520°C, les rôles s'inversent et la DSC de AL+1%NTCM devient supérieure à celle de Al+0%NTCM. La différence entre les valeurs des intensités des deux courbes augmente avec l'augmentation de la température.

A 600°C, l'écart devient très significatif. Cela peut signifier que les NTCM jouent le rôle des impuretés incontrôlables. Nous constatons que l'anomalie présente dans l'aluminium pur à 400°C, change de forme et se déplace vers les hautes températures dans le cas de Al+1%NTCM. Probablement, l'agitation thermique favorise un mouvement aléatoire des NTCM. L'étude de notre échantillon avec deux autres nanocomposites Al+0,25%NTCM et Al+1,5%NTCM [11,12] élaborés dans les mêmes conditions montre que les comportements calorimétriques sont différents. La courbe DSC de AL+1%NTCM est intermédiaire. Les formes et les intensités des flux de chaleurs des

trois nanomatériaux dépendent fortement des concentrations en NTCM. Quand la quantité de nanotubes de carbone multiparois introduite dans la matrice d'aluminium est importante (la plus grande), l'intensité de la DSC est la plus faible sur l'ensemble du domaine de température étudié.

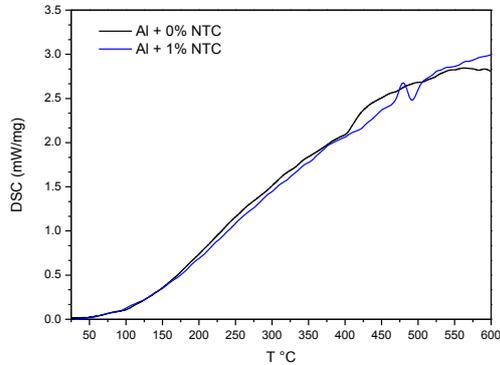


Figure 1: Calorimétrie différentielle à balayage de l'aluminium pur et du nanocomposite Al+1%NTCM.

Concernant les variations de la thermogravimétrie des échantillons étudiés la différence est nette (figure 2). L'aluminium pur présente une courbe thermogravimétrique uniforme. Elle est pratiquement une droite. Aux hautes températures, il y a apparition d'une pente très légère. Par contre, l'allure de la TG du nanocomposite Al+1%NTCM n'est pas uniforme. La pente augmente avec l'augmentation de la température. A 600°C, le ratio TG_{600}/TG_{25} est égale à 94%. Probablement cette différence peut être liée à l'oxydation.

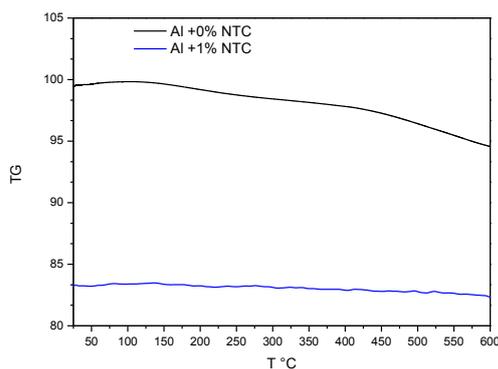


Figure 2: Thermogravimétrie de l'aluminium pur et du nanocomposite Al+1%NTCM.

La deuxième partie de ce travail a été réservée à l'étude spectroscopique des deux nanomatériaux. Le spectre Raman est représenté sur la figure 3. Les pics caractéristiques du carbone apparaissent clairement.

La bande D à 1300 cm^{-1} est reliée au désordre dû à la présence de défauts et/ou de carbone amorphe. Son intensité augmente avec le nombre de défauts.

La bande G à 1590 cm^{-1} représente la vibration des sites sp^2 , les doubles liaisons C=C des cycles aromatiques des NTCM [13].

Pour le nanocomposite Al+1%NTCM, la bande D est intense alors que la bande G est relativement moins intense. Le rapport I_D/I_G est égal à 1,15. Cet ordre de grandeur est assez élevé puisque dans la littérature [14-16] I_D/I_G est compris entre 0,5-3. Donc, l'introduction de 1%NTCM dans l'aluminium est à l'origine de l'augmentation de la concentration de défauts. L'étude comparative de notre échantillon avec ceux de Al+0,25%NTCM et Al+1,5%NTCM montre que la bande D est très intense pour la concentration 1%NTCM, puis vient celle de 1,5%NTCM. Quand la quantité introduite est 0,25%NTCM, l'intensité de la bande D est très faible devant les deux autres. Cet ordre de grandeur est aussi valable pour la bande G ($I_G^{1\%} > I_G^{1,5\%} \gg I_G^{0,25\%NTCM}$). Cela signifie que le nanomatériau Al+1%NTCM contient plus de défauts par rapport aux deux autres nanocomposites. Ce comportement (résultat) est confirmé lorsqu'on calcule le rapport I_D/I_G . Nous constatons que le ratio I_D/I_G pour 1%NTCM est supérieur aux autres rapports $I_D^{1,5}/I_G$ et $I_D^{0,25}/I_G$.

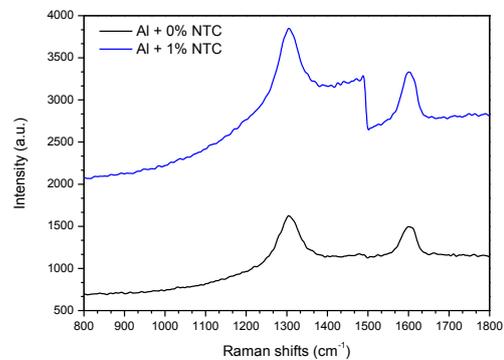


Figure 3: Spectre Raman de l'aluminium pur et du nanocomposite Al+1%NTCM.

L'étude spectroscopique infrarouge présentée sur la figure 4 révèle la présence de trois domaines. A basse fréquence, le spectre du nanocomposite Al+1%NTCM est intense devant celui de l'aluminium pur.

A partir de 2000 cm^{-1} , les deux spectres se chevauchent.

Au-delà de 3500 cm^{-1} , on retrouve la situation qui dominait à basse fréquence. Les deux spectres ont la même forme.

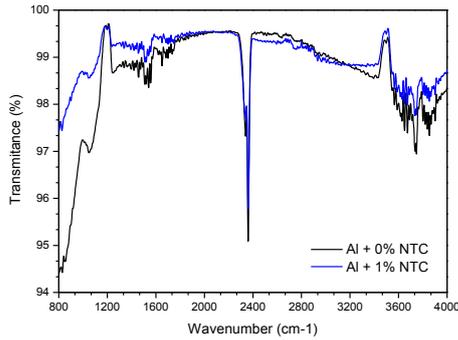


Figure 4: Spectre infrarouge de l'aluminium pur et du nanocomposite Al+1%NTCM.

III. CONCLUSION

Les propriétés thermodynamiques, la thermogravimétrie et la calorimétrie différentielle à balayage montrent que les interactions des nanotubes de carbone multiparois avec la matrice d'aluminium dépendent fortement de la concentration en nanotubes de carbone multiparois.

L'étude calorimétrique montre que les NTCM agissent comme des impuretés incontrôlables dans l'aluminium pur sur un large domaine de températures. Aux hautes températures, leur effet devient non négligeable. Quant à la thermogravimétrie, le nanocomposite étudié a tendance à perdre du poids. Cette perte devient significative à haute température. L'étude spectroscopique montre que l'introduction de 1% de nanotubes de carbone multiparois est à l'origine de changement structural. Le spectre Raman révèle une augmentation de nombre de défauts. L'infrarouge de la matrice pure et du nanomatériau sont pratiquement les mêmes dans le domaine de fréquences 1600-3000 cm^{-1} . De part et d'autre de cet intervalle, les deux spectres sont différents et non confondus. L'étude comparative de notre échantillon avec les deux autres nanocomposites (Al+0,25%NTCM et Al+1,5%NTCM) contenant deux concentrations différentes, élaborés et obtenus tous les trois dans les mêmes conditions, révèle que les propriétés thermodynamiques et structurales sont nettement différentes. Le notre contient le plus de défauts, ce qui rend les propriétés mécaniques relativement moins bonnes que ceux des deux autres nanocomposites.

Les différentes techniques d'investigation utilisées pour la réalisation de ce travail montrent que le nanocomposite Al+1%NTCM possède des propriétés mécaniques moins bonnes que celles des nanomatériaux Al+1,5%NTCM et Al+0,25%NTCM. On peut conclure que la quantité de nanotubes de carbone introduite dans la matrice d'aluminium joue un rôle prédominant sur les caractéristiques physiques du nanocomposite. La concentration est un facteur très important.

IV. REFERENCES

- [1] R.Deaquino-Lara, E.Gutiérrez-Castañeda, I.Estrada-Guel, G.Hinojosa-Ruiz, E.García-Sánchez, J.Herrera-Ramírez, R.Pérez-Bustamante, R.Martínez-Sánchez, Structural characterization of aluminium alloy 7075-graphite composites fabricated by mechanical alloying and hot extrusion, *Materials and Design* 2014, 53, 1104.
- [2] Manjula Sharma, Hemant Pal and Vimal Sharma, Electrical Conductivity and Thermal Expansion Measurement of Nanocrystalline Aluminum Reinforced with Functionalized Multiwall Carbon Nanotubes, *International Journal of ChemTech Research*, 2014, Vol.6, 2057.
- [3] S. Bellucci, C. Balasubramanian, F. Micciulla, G. Rinaldi, *Journal of Experimental Nanoscience*, CNT composites for aerospace applications, 2007, 2(3), 193.
- [4] R.S. Rouff, D.C. Lorents, Mechanical and thermal properties of carbon nanotubes, *Carbon*, 1995, 33(7), 925.
- [5] S.Revo, Yu.I.Sementsov, F.V.Lofovii, E.A.Ivanenko, L.Druga, Structure and resistance of Al-C nanocomposite material. *Heat Treatment Surf. Eng.* 2008, VIII:3.
- [6] C.F. Deng, Preparation and characterization of carbon nanotubes/aluminium matrix composites / C.F.Deng, X.X.Zhang, D.Wang [et al.]// *Mater. Lett.*, 2007, 61, 1725.
- [7] T. Laha Synthesis and characterization of plasma spray formed carbon nanotubes reinforced aluminum composite / T.Laha, A.Agarwal // *Mater. Sci. Eng. A.*, 2008, 480, 323.
- [8] S.I. Cha, K.T. Kin, S.N. Arshad, C.B. Mo et S.H. Hong, Extraordinary strengthening effect of carbon nanotubes in metal-matrix nanocomposites processed by molecular-level mixing, *Advanced Materials*, 2005, 17, 1377.
- [9] S.Saadallah, T.Dorbani, S.Hamamda, S.Boubertakhet S.Revo, Coefficient de dilatation thermique du nanocomposite Al +0,1%NTC/ *Récents Progrès en Génie des Procédés*, 2015, 107(3), 15.
- [10] S.Revo, S.Hamamda, K.Ivanenko, O.Boshko, A.Djarri and A.Boubertakh, Thermal analysis of Al + 0.1% CNT ribbon, *Nanoscale Res. Lett.*, 2015, 10, 170.
- [11] Ati Imane, Influence des nanotubes de carbone multiparois sur les propriétés de l'aluminium, Master en Physique soutenu le 16/06/2015, Université Frères MENTOURI Constantine 1, Faculté des sciences exactes, Département de Physique.
- [12] Zemamouche Wissem, Effet des nanotubes de carbone sur propriétés de l'aluminium pur, Master en Physique soutenu le 16/06/2015, Université Frères MENTOURI Constantine 1, Faculté des sciences exactes, Département de Physique.

- [13] Keszler A.M., Nemes.L, Ahmad S.R., Fang X. Characterisation of carbon nanotube materials by raman spectroscopy and microscopy- A case study of multiwalled and singlewalled samples, J. Optoelec. Adv. Mater., 2004, 6, 1269.
- [14] B.L. Crossley, N.E. Glauvitz, B.T. Quinton, R.A. Coutu, P.J. Collins Carbon nanotubes Applications on Electron Devices, Prof. Jose Mauricio Marulanda (Ed.), 2011, ISBN: 978-953-307-496-2, In Tech.
- [15] P. Delhaes, M. Couzi, M. Trinquocoste, J. Dentzer, H. Hamidou, C. Vix-Guterl, Carbon, 2006, 44, 3005.
- [16] B. Frank, A. Rinaldi, R. Bulme, R. Schlogl, D.S. Su, Chem. Mater., 2010,22, 4462.