

Affinement expérimental de l'isotherme Al-Fe-Si à 1000 K

F. Bosselet, S. Pontevichi, M. Sacerdote-Peronnet et J.C. Viala

Laboratoire des Multimatériaux et Interfaces, LMI, UMR CNRS 5615, Université Claude Bernard Lyon 1, 69622 Villeurbanne Cedex, France

Abstract. With more than fifteen reported stable binary and ternary compounds, the Al-Fe-Si phase diagram is rather complex. To get a better insight into that diagram, experiments were carried out by isothermal diffusion and thermal analysis. The results of these experiments have been combined with previous data to provide a refined Al-Fe-Si section at 1000 K.

1 INTRODUCTION

Le système ternaire Al-Fe-Si est un des systèmes clés auxquels on se trouve confronté lorsque l'on cherche à développer des matériaux métalliques performants intégrant des alliages d'aluminium. Ceci concerne en premier lieu l'élaboration de pièces moulées en alliages aluminium-silicium mais également l'aluminage de tôles d'acier ou encore la réalisation d'assemblages acier/aluminium par insertion à la coulée ou soudo-brasage.

Avec plus de quinze composés binaires et ternaires stables répertoriés, ce système apparaît toutefois comme relativement complexe. Un premier ensemble de travaux a été consacré à la détermination de la structure cristalline des différents composés ainsi que de leurs domaines d'existence en température et composition. Les équilibres entre phases solides ainsi que les équilibres liquide-solide ont également été largement étudiés. Les résultats de ces premiers travaux essentiellement basés sur l'expérimentation ont été rassemblés dans des revues bibliographiques bien documentées [1-3]. La Fig. 1 résume en partie ces premières données. Plus récemment, des évaluations par minimisation de l'enthalpie libre de Gibbs du système ont été tentées [4-6] et des mesures thermochimiques ont été effectuées [7-9]. Ces différentes approches ont permis d'acquérir des bases sur la thermodynamique du système Al-Fe-Si. A cet égard, il est intéressant de noter l'excellente cohérence à haute température entre la modélisation de la nappe de liquidus par calcul thermodynamique publiée par Liu et Chang en 1999 [6] et le travail expérimental de pionnier publié en 1940 par Takeda et Mutusaky [10].

Cette cohérence entre données de différentes sources n'est cependant pas toujours aussi bonne. Il suffit d'un examen critique détaillé pour s'apercevoir que subsistent certaines imprécisions, voire même quelques contradictions. En raison de ces imprécisions ou contradictions, nous avons rencontré des difficultés pour interpréter, d'un point de vue thermodynamique, des résultats obtenus à des interfaces Fe/Al-Si après insertion à la coulée [11]. Ceci nous a amenés à reprendre l'étude expérimentale des

et microanalyse par sonde électronique. Il est à noter que ces techniques de caractérisation ont été successivement mises en œuvre sur la même section de chaque échantillon. La composition chimique de chaque phase solide présente a été déterminée par MASE avec une erreur de l'ordre de $\pm 0,5$ at% pour Al, Si et ± 1 at% pour Fe (moyenne de 10 points d'analyse distincts).

Il a par ailleurs été fait appel à l'analyse thermique et à l'analyse chimique de prélèvements de liquide pour préciser les limites du domaine de ce liquide [12]. L'analyse thermique d'alliages ternaires Al-Fe-Si a été effectuée sur des charges de 40-60 g contenues dans des creusets en terre réfractaire poteyés à l'alumine. Le chauffage a été réalisé par induction de courant de haute fréquence avec couplage direct de la charge : En provoquant un brassage énergétique au sein du liquide, ce mode de chauffage assure une bonne homogénéité de température et de composition. Les températures, mesurées à l'aide d'un couple Pt/Pt-10%Rh gainé inox et alumine plongeant dans l'alliage, ont été enregistrées en fonction du temps pour des vitesses de chauffe et de refroidissement allant de 60 à 5 K.min⁻¹. Des expériences de contrôle ont été effectuées par analyse thermique différentielle (ATD) à l'aide d'un appareil SETARAM TG-DTA 92-12 (masse d'échantillon : environ 50 mg).

3 RÉSULTATS ET DISCUSSION

Plus de 60 mélanges différents ont été préparés, traités par diffusion isotherme à 1000 K et caractérisés. Pour fixer la composition des premiers mélanges, nous nous sommes basés sur la coupe isotherme proposée par Ghosh à environ 873 K [3] reproduite sur la Fig. 1. Cette coupe correspondait en effet à la synthèse la plus complète des différentes études expérimentales publiées jusque là.

Nous avons ainsi pu préparer un certain nombre de composés purs et retrouver à 1000 K quelques-uns des domaines d'équilibre entre deux ou trois phases déjà reportés par Ghosh à 873 K. Pour certaines compositions cependant, des divergences par rapport aux données de Ghosh sont apparues. Dans ce cas, de nouveaux mélanges ont été préparés en cherchant à atteindre deux objectifs :

- d'une part obtenir des phases pures facilement caractérisables ;
- d'autre part se placer à l'intérieur de domaines d'équilibre à trois phases de manière à déterminer par microanalyse la composition des phases aux pointes des triangles.

En cas de contradiction avec les données reportées par Ghosh, ce n'est que lorsque deux expériences distinctes nous ont donné le même résultat relativement à la nature cristalline et la composition des phases en équilibre que nous avons validé ce résultat. La coupe isotherme présentée sur la Fig. 2 fait la synthèse de l'ensemble des expériences que nous avons réalisées à 1000 K. Par rapport à la coupe reproduite sur la Fig. 1, on peut faire les commentaires suivants.

En ce qui concerne les composés ternaires du système Al-Fe-Si, nous avons retrouvé à 1000 K les dix phases solides représentés par Ghosh à 873 K et notés de τ_1 à τ_{10} , à l'exception de τ_6 mais cela est tout à fait logique puisque nous avons démontré que τ_6 se décompose au dessus de 940 K [13]. Le Tableau I précise les domaines d'existence en composition que nous avons trouvés pour les différentes phases ternaires du système. Il se confirme que ces phases ternaires ont un domaine d'existence en forme de ligne le plus souvent parallèle au segment de base Al-Si (τ_2 tendant à déroger légèrement à la règle). Dans chaque composé ternaire, le titre en fer reste donc quasi-constant alors que le rapport Al/Si varie dans des proportions parfois importantes. Pour certains de ces composés, les domaines d'existence sont analogues à ceux représentés par Ghosh. C'est le cas pour τ_2 et τ_4 ainsi que τ_5 et τ_{10} , même si pour ces deux dernières phases, la coïncidence n'est pas parfaite. Pour d'autres composés ternaires, nous avons trouvé à 1000 K des domaines d'existence assez ou très nettement différents de ceux représentés sur la Fig. 1. Ainsi, pour τ_3 et τ_7 , des décalages importants

commencent à apparaître. Pour le composé τ_8 , le décalage en ce qui concerne la composition en silicium devient très important. Enfin le cas des composés τ_1 et τ_9 est particulier. En effet, Ghosh fait figurer dans l'isotherme Al-Fe-Si à 873 K deux composés distincts contenant environ 37 at% de fer.

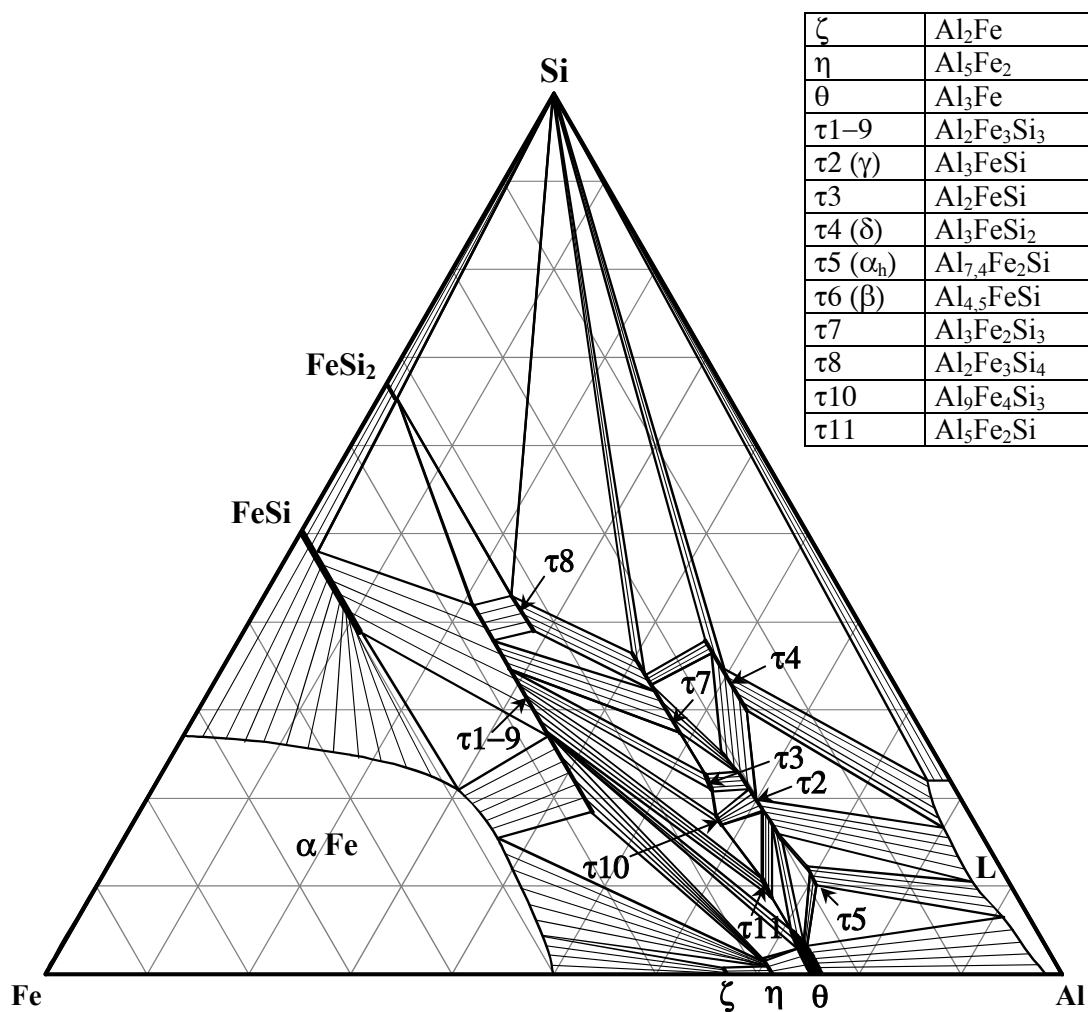


Figure 2. Isotherme Al-Fe-Si déterminée expérimentalement à 1000 K dans ce travail, axes gradués en at%.

Or d'après nos expériences à 1000 K ces deux composés appartiennent à un même domaine de solution solide s'étendant, à titre en fer constant (37 at%), de 18,5 à 41,5 at% Si.

Par cohérence avec les données antérieures, nous avons noté τ_1-9 cette phase à très large domaine d'existence en silicium. Enfin, entre les composés $\theta\text{-Al}_3\text{Fe}(\text{Si})$ et τ_{10} , nous avons mis en évidence l'existence d'une nouvelle phase non reportée jusque là. Cette phase que nous avons notée τ_{11} se forme lentement mais est stable au moins jusqu'à 1150 K. Concernant les équilibres à 1000 K entre ces composés ternaires et les autres phases solides du système Al-Fe-Si ou le liquide, on peut noter par rapport à la représentation de Ghosh plusieurs différences. Ainsi, nous avons mis en évidence l'existence à 1000 K d'une conode Si- τ_8 (au lieu de FeSi₂- τ_7 à 873K).

Tableau 1. Phases ternaires stables dans le système Al-Fe-Si. Domaines d'existence précisés dans ce travail à 1000 K et données structurales d'après [1, 3] et quelques autres références plus spécifiques.

Composé et formule approchée	Domaine d'existence à 1000 K (at%)	Symétrie, structure, paramètres de maille (nm)	Température de décomposition (K)	Références, commentaires
τ_{1-9} $Al_2Fe_3Si_3$	Fe: 36,5-37,5 Si: 18,5-41,5	Triclinique, $P-1$, $a = 0,465$; $b = 0,633$; $c = 0,750$, $\alpha = 101,4^\circ$; $\beta = 105,9^\circ$; $\gamma = 101,2^\circ$	1323	[14]
$\tau_2 = \gamma$ Al_3FeSi	Fe: 19,5-20,5 Si: 15,2-25,6	Monoclinique, $a = 1,78$; $b = 1,025$; $c = 0,890$; $\beta = 132^\circ$	1213	[15]
τ_3 Al_2FeSi	Fe: 23,5-24,5 Si: 20,5-22,5	Orthorhombique, $Cmma$ $a = 0,799$; $b = 1,516$; $c = 1,522$	1208	[16]
$\tau_4 = \delta$ Al_3FeSi_2	Fe: 15,5-16,5 Si: 30,5-38	Quadratique, $I4/mcm$ $a = 0,6061$; $c = 0,9525$ Orthorhombic, $Pbcn$ $a = 0,6061$; $b = 0,6061$; $c = 0,9525$	1138	[17] Surstructure [17]
$\tau_5 = \alpha = \alpha_h$ $Al_{7,4}Fe_2Si$	Fe: 18-19,5 Si: 10-12,5	Hexagonal, $P63/mmc$ $a = 1,2404$; $c = 2,6234$	1128	[18]
$\tau_6 = \beta$ $Al_{4,3}FeSi$	Fe: 15,5-16,5 Si: 17-19 (vers 873K)	Monoclinique, $A2/a$ $a = 0,616$; $b = 0,617$; $c = 2,081$; $\beta = 90,4^\circ$	940±5	[15, 19]
τ_7 $Al_3Fe_2Si_3$	Fe: 23,5-24,5 Si: 27,8-36,3	Monoclinique, $P2_1/n$, $a = 0,718$; $b = 0,835$; $c = 1,445$; $\beta = 93,8^\circ$	-	[20]
τ_8 $Al_2Fe_3Si_4$	Fe: 31,9-32,9 Si: 39,5-43	Orthorhombique, $Cmcm$ $a = 0,367$; $b = 1,238$; $c = 1,015$	-	[14]
τ_{10} $Al_9Fe_4Si_3$	Fe: 24-25 Si: 17-18	Orthorhombique	1050	(présent travail)
τ_{11} Al_3Fe_2Si	Fe: 24-25 Si: 9,5-11	Hexagonal, $P6_3/mmc$ $a = 0,751$; $c = 0,755$	Td > 1150	confondu avec τ_{10} dans [21]

Par ailleurs, avec une enthalpie de formation $\Delta_f H^0(298K)$ de l'ordre de -36 kJ/mole d'atome, la phase notée τ_{1-9} est d'après [6, 8] la plus stable des phases solides ternaires du système Al-Fe-Si. Il est de ce fait logique que de nombreuses conodes convergent vers elle dans l'isotherme à 1000 K. C'est notamment le cas pour les conodes issues de θ , τ_3 , τ_7 et $FeSi_2$ qui ne figurent pas dans l'isotherme à 873 K proposée par Ghosh. Enfin, on rappelle que nos expériences à 1000 K ont montré que la phase τ_2 se conjugue à cette température avec un liquide contenant 10,5 à 16,5 at% de silicium et 3,5 à 3,2 at% de fer.

4 CONCLUSION

Cette étude expérimentale a permis de proposer une coupe isotherme Al-Fe-Si à 1000 K affinée par rapport aux données antérieures. Si certaines divergences sont apparues, de nombreux points de convergence subsistent avec ces données qui ont constitué une base précieuse sans laquelle il n'aurait pas été possible de progresser plus avant dans la connaissance du système.

Références

- [1] Mondolfo L.F.: Aluminium and Alloys, Structure and Properties (Butterworth, London, 1976) pp. 534-537.
- [2] Rivlin V.G., Raynor G.V., *Int. Metals Review* **3** (1981) 133
- [3] Ghosh G. in Ternary Alloys, G. Petzow and G. Effenberg Eds. (VCH, Weinheim, 1988) Vol. 5, pp. 394-438
- [4] Anglezio J.C., Servant C., Ansara I., *Calphad* **18** (1994) 273
- [5] Gilgien P., "Calcul de cartes de microstructures de solidification pour le système Al-Fe-Si", Thèse de Doctorat, EPFL Lausanne, 1996
- [6] Liu Z.K., Chang Y.A., *Metall. Mater. Trans.* **30 A** (1999) 1081
- [7] Vybornov M., Rogl P. and Sommer F., *J. Alloys and Compounds* **247** (1997) 154-157
- [8] Li Y., Ochin P., Quivy A., Telolahy P., Legendre B., *J. Alloys and Compounds.* **298** (2000) 198
- [9] Li Y., Legendre B., *J. Alloys Compd.* **302** (2000) 187
- [10] Takeda H.P. and Mutusaki K., *Tetsu to Hagane* **26** (1940) 335
- [11] Viala J.C., Peronnet M., Barbeau F., Bosselet F., Bouix J., *Composites* **A33** (2002) 1417
- [12] Pontevecchi S., Peronnet M., Bosselet F., Viala J.C., Bouix J., 28JEEP, Agadir, (2002) pp.71
- [13] Pontevecchi S., Bosselet F., Peronnet M., Viala J.C., *J. Phys. IV France* **113** (2004) 81
- [14] Yanson T.I., Manyako M.B., Bodak O.I., German N.V., Zarechnyuk O.S., Cerny R., Pacheco J.V. and Yvon K., *Acta Cryst.* **C52** (1996) 2964
- [15] Stefaniay V., Griger A. and Turmezey T., *J. Mater. Sci.* **22** (1987) 539
- [16] German N.V., Zavodnik V.E., Yanson T.I. and Zarechnyuk O.S., *Krystallografiya* **34** (1989) 738
- [17] Gueneau C., Servant C., d'Yvoire F. and Rodier N., *Acta Cryst.* **C51** (1995) 177
- [18] Corby R.N. and Black P.J., *Acta Cryst.* **B33** (1977) 3468
- [19] Roemming C., Hansen V. and Gjonnes J., *Acta Cryst.* **B50** (1994) 307
- [20] Gueneau C., Servant C., d'Yvoire F. and Rodier N., *Acta Cryst.* **C51** (1995) 2461
- [21] German N.V., Bel'skii V.K., Yanson T.I. and Zarechnyuk O.S., *Krystallografiya* **34** (1989) 735