

Chimie d'interface du couple fer/alliage Al-Si (13,5 % Si) : aspects théoriques et appliqués

S. Pontevichi¹, F. Bosselet¹, O. Dezellus¹, M. Peronnet¹ et D. Rouby²
et J.C. Viala¹

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

² *Groupe d'Études de Métallurgie Physique et de Physique des Matériaux, GEMPPM, UMR 5510, INSA de Lyon, 69621 Villeurbanne Cedex, France*

Abstract. The interface chemistry of the Fe/Al-13,5 wt% Si couple has been investigated at temperatures ranging from 600 to 800 °C. New data have been acquired on the phase equilibria in the Al-Fe-Si ternary system and on the kinetics of the interface reactions. A push out test has been developed to examine the relationships between the extent, thickness or composition of the insert/alloy reaction zone and the mechanical properties of the Fe/Al-Si joint.

1. INTRODUCTION

Le moulage de pièces en alliages d'aluminium localement renforcées par des inserts en fonte ou en acier est une voie actuellement explorée dans le but de réduire le poids des véhicules de transport [1-4]. Pour obtenir des assemblages mécaniquement performants, il est nécessaire qu'une liaison métallurgique continue s'établisse à l'interface entre l'acier et l'alliage d'aluminium, donc que des interactions chimiques se développent. Si ces interactions sont trop limitées, on risque d'obtenir une liaison discontinue ; d'un autre côté, si elles sont trop fortes, les modifications qui vont en résulter peuvent être néfastes à la tenue mécanique de l'ensemble. On voit ainsi clairement apparaître, pour ces assemblages, la double nécessité de maîtriser parfaitement leur chimie d'interface et de comprendre les relations existant entre cette chimie d'interface et leur comportement mécanique. Dans ce travail, nous étudions la liaison entre le fer et un alliage Al-Si quasi-eutectique (13,5% Si). Pour cela, nous avons utilisé les mêmes techniques que celles décrites dans [1, 5-6].

2. INTERACTIONS ENTRE FER SOLIDE ET ALLIAGE LIQUIDE Al-13,5 % Si

2.1 Aspect thermodynamique

Pour décrire l'aspect thermodynamique de telles interactions, il était nécessaire de bien connaître le système ternaire Al-Fe-Si aux températures inférieures ou égales à 730 °C (730 °C étant la température maximale à laquelle sont moulés les alliages Al-Si). Une première étude a donc été entreprise afin de compléter et d'affiner les données de la littérature sur les équilibres entre phases condensées dans ce système à 727 °C (1000 K). Nous ne détaillerons pas cette première approche qui

fait l'objet d'un autre article de ce recueil. Nous en rappellerons simplement deux résultats importants concernant plus spécifiquement les équilibres solide-liquide. D'une part, nous avons confirmé que la solubilité du fer dans un alliage Al-Si quasi-eutectique est loin d'être négligeable : $6,95 \pm 0,20$ % en masse de fer à 727 °C ; d'autre part, nous avons montré que la phase solide conjuguée à 727 °C avec ces alliages quasi-eutectiques lorsqu'ils sont saturés en fer est le composé γ Al_3FeSi (Fig. 1a).

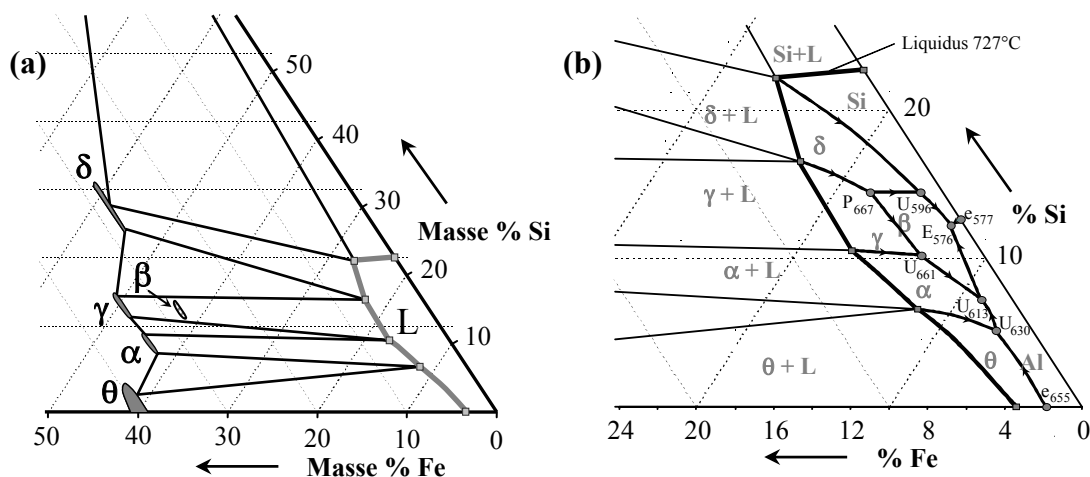


Figure 1. (a) Isotherme L-S à 727 °C [5] ; (b) Projection polythermique du liquidus à $T < 727$ °C [6]. A noter que β n'est stable qu'en dessous de 667 °C.

Partant de ces résultats obtenus à 727 °C, nous avons précisé quelles transformations étaient susceptibles de se produire dans le système Al-Fe-Si lorsque la température diminuait. Nous avons ainsi mis en évidence deux transformations invariantes [6] :

- une péritexie ternaire à 667 ± 5 °C s'écrivant



- une péritexie transitoire à 661 ± 5 °C s'écrivant :



L désignant le liquide et α , β , δ trois composés ternaires conjugués avec ce liquide. Ces deux transformations notées U_{661} et P_{667} ont été intégrées dans la projection représentée sur la Fig. 1b.

Nous avons enfin mesuré à différentes températures la solubilité du fer dans un alliage de rapport Si/Si+Al constant et égal à $13,5$ % en masse. En tenant compte des transformations (1) et (2) ainsi que de certaines autres données bien établies sur le système Al-Fe-Si [7], nous avons tracé l'isoplethe représentée sur la Fig. 2. Pour ce qui est de la branche de liquidus, nous avons reporté sur cette figure nos points expérimentaux ainsi que des résultats obtenus par d'autres auteurs soit par l'expérience [8], soit par calcul de minimisation d'enthalpie libre [9,10]. La bonne auto cohérence que l'on peut constater entre ces données de différentes sources est le signe que l'on est parvenu à une connaissance très satisfaisante du système Al-Fe-Si dans les domaines de température et de composition étudiés.

Toutefois, un affinement de la base de donnée thermochimique reste encore à faire à basse température pour retrouver précisément, par calcul de minimisation, la nature des nappes de liquidus et les températures de transformation invariante déterminées expérimentalement.

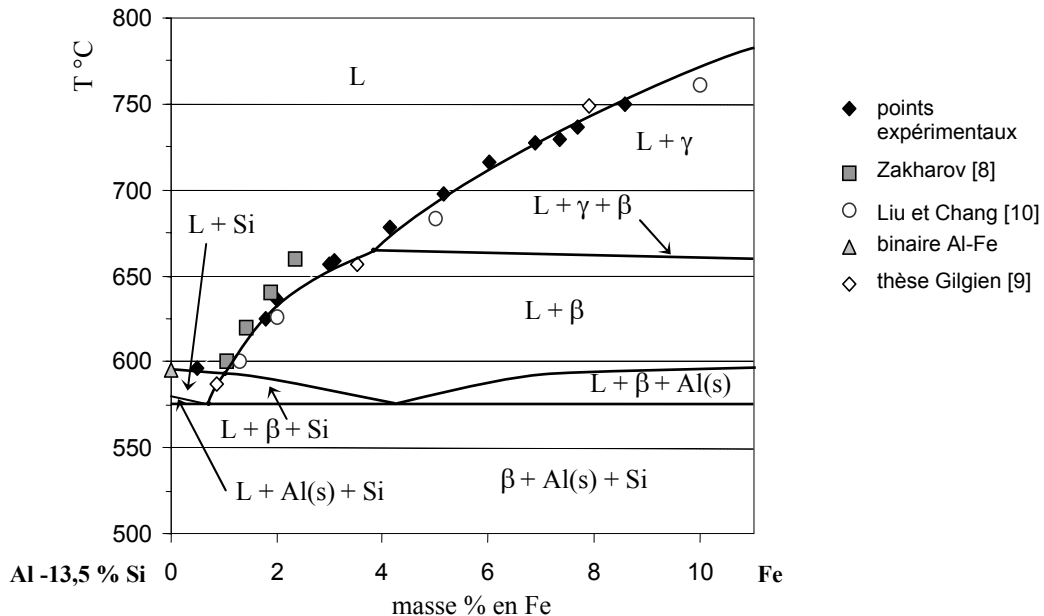


Figure 2. Isoplethe (Al-13,5 % Si) - Fe établie expérimentalement.

2.2 Cinétique et mécanisme d'interaction

En ce qui concerne la cinétique et les mécanismes d'interaction entre le fer solide et l'alliage Al-13,5 % Si à l'état liquide, il s'est avéré important de bien distinguer deux cas extrêmes : le premier est celui d'un bain fortement agité et exempt de fer ; le second, celui d'un bain calme saturé en fer.

Dans le premier cas, bain fortement agité exempt de fer, le substrat se recouvre d'une zone de réaction dont l'épaisseur, toujours très faible (1-3 μm), n'évolue pas en fonction du temps. Cette zone est essentiellement constituée de la phase d'équilibre avec le liquide à la température considérée, donc de β ($T < 660^\circ\text{C}$) ou de γ ($T > 670^\circ\text{C}$) pour un alliage Al-13,5 % Si. Mais si la zone de réaction reste très mince, l'épaisseur de substrat attaqué augmente rapidement. Ainsi, le fer du substrat est transformé en phase d'équilibre avec L puis cette phase est rapidement mise en solution dans le bain.

Dans le second cas, bain non agité et saturé en fer, il n'y a plus de dissolution dans le bain. Tout le fer pris au substrat est utilisé pour la croissance d'une zone de réaction dont l'épaisseur augmente rapidement. Cette augmentation d'épaisseur suit généralement en fonction du temps une loi quasi-parabolique, ce qui est cohérent avec une croissance par diffusion en phase solide.

Nous nous sommes placés dans ce deuxième cas, bain calme saturé, pour étudier plus en détail la croissance de la zone de réaction à l'interface Fe/Al-13,5 % Si. La caractérisation des couches de produits de réaction formés dans cette zone à différentes températures une fois le régime stationnaire atteint a permis d'identifier quatre séquences ou chemins réactionnels types. Ces séquences, ainsi que

les chemins de diffusion pouvant leur être associés [11, 12], sont détaillés dans le Tableau 1. La Fig. 3 illustre la correspondance entre séquence interfaciale et chemin de diffusion.

Tableau 1. Séquences réactionnelles observées et chemins de diffusion possibles pour le couple Fe/Al-13,5 % Si entre 600 et 800 °C.

Domaine de température (°C)	Séquence réactionnelle (chemin de réaction) en régime stationnaire	Chemin de diffusion associé le plus plausible dans le diagramme ternaire Al-Fe-Si	Phases manquantes dans le chemin de réaction
600-650 °C	Fe/ η + τ 1-9/ θ / τ 10/ β /L	Fe/ α 2/ η + τ 1-9/ θ / τ 11/ τ 10/ γ / β / L	α 2, τ 11, γ
690-760 °C	Fe/ η + τ 1-9/ θ / τ 10/ γ /L Fe/ η + τ 1-9/ θ / γ /L	Fe/ α 2/ η + τ 1-9/ θ / τ 11/ τ 10/ γ /L Fe/ α 2/ η + τ 1-9/ θ / γ /L	α 2, τ 11 α 2
780-800 °C	Fe/ η + τ 1-9/ θ /L	Fe/ α 2/ η + τ 1-9/ θ /L	α 2

A basse température (entre 600 et 650 °C), c'est toujours la même séquence interfaciale Fe/ η + τ 1-9/ θ / τ 10/ β /L qui est observée. Cependant, il manque au moins trois phases pour que cette séquence puisse correspondre à un chemin de diffusion. On est donc encore loin des conditions de quasi-équilibre local qui sont généralement réalisées aux interfaces d'un couple de diffusion idéal.

A haute température (780 ou 800 °C), une seule séquence, plus simple qu'à basse température, est observée et il ne manque plus qu'une phase pour qu'elle corresponde à un chemin de diffusion. Une élévation de température permet donc aux phases à croissance lente d'apparaître et de se développer. Ceci est favorable à l'établissement d'un plus grand nombre de quasi-équilibres locaux. On peut toutefois remarquer que τ 11, phase très stable mais à croissance très lente, est encore manquante.

A température intermédiaire (entre 690 et 760 °C), deux chemins de réactions différents ont été observés (Tableau 1), sans qu'il soit possible de distinguer de facteur particulier favorisant tel ou tel de ces chemins. On passe d'une séquence à l'autre en se déplaçant le long de l'interface Fe/Al-Si. Dans ce domaine de température intermédiaire, le couple Fe/Al-13,5 % Si est donc instable : il oscille entre deux chemins de réaction différents qui s'affirment l'un à plus haute température, l'autre à plus basse.

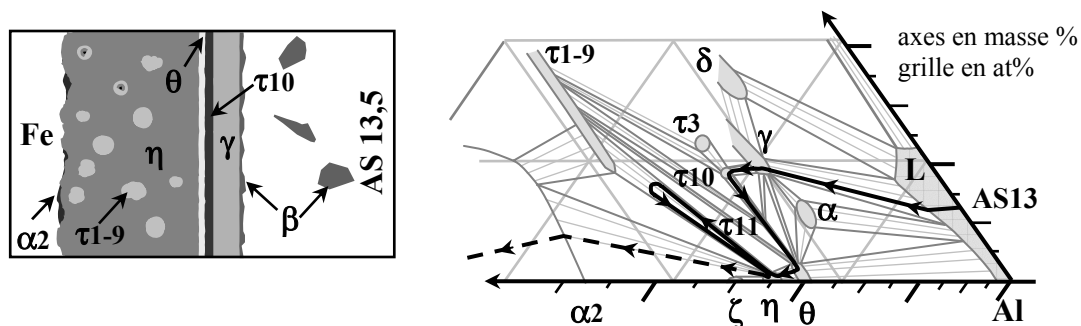


Figure 3. Zone de réaction la plus complexe formée à 727 °C en régime stationnaire à l'interface Fe/Al-13,5 % Si et chemin de diffusion correspondant dans l'isotherme Al-Fe-Si. On peut noter que la phase τ 11 est "manquante" dans la zone de réaction alors que β s'est formé par cristallisation au refroidissement de l'alliage.

3. CHIMIE D'INTERFACE ET PROPRIÉTÉS MÉCANIQUES DES JOINTS

Au cours du moulage de pièces localement renforcées par insert, les conditions expérimentales peuvent varier au niveau de l'interface solide-liquide (température, saturation en Fe, agitation...). Dans ce cas, l'étude réalisée en amont apporte les éléments nécessaires d'abord pour comprendre les étapes de formation de la zone interfaciale, puis pour agir sur l'épaisseur et la constitution de cette zone. Dans une certaine mesure, les paramètres d'élaboration peuvent ainsi être ajustés de manière à optimiser les propriétés mécaniques des pièces. Mais pour cela, il faut encore préciser les relations existant entre physico-chimie d'interface et caractéristiques mécaniques du joint. Pour étudier ces relations, nous avons cherché à développer un test mécanique relativement facile à mettre en œuvre et permettant d'explorer rapidement au laboratoire un large spectre de conditions d'élaboration : il s'agit d'un test en push out sur des joints modèles dont le principe est illustré sur la Fig. 4.

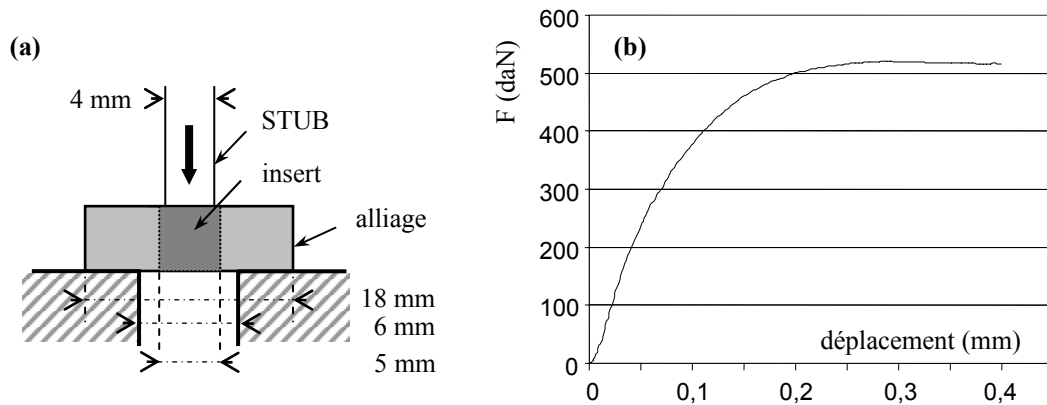


Figure 4. (a) Schéma de principe du test de push out ; (b) Type de courbe force-déplacement obtenu.

Sur la Fig. 5, nous avons porté la charge maximale enregistrée à la rupture du joint, F_{max} , en fonction de l'épaisseur de l'échantillon testé, ceci pour trois types de joints insert/alliage bien différents :

- pour le premier type de joint, une liaison métallurgique n'est établie qu'en quelques points de l'interface insert/alliage. Dans ce premier cas, les valeurs de résistance à rupture augmentent avec l'épaisseur de l'échantillon, mais restent basses ;
- pour le deuxième type de joint, les résistances à rupture sont plus élevées mais dispersées par rapport à la courbe moyenne. Dans ce deuxième cas, une liaison métallurgique continue avec zone de réaction de 10-15 μ m a effectivement été créée, mais cette liaison ne s'étend que sur une fraction de l'interface insert/alliage ; la fraction restante n'est liée que par points. La dispersion des valeurs d'un échantillon à l'autre caractérise les fluctuations de la fraction effectivement liée ;
- pour le troisième type de joint, la liaison interfaciale est de même nature que pour le deuxième (zone de réaction de 10-15 μ m) mais celle-ci est effective sur pratiquement toute l'étendue de l'interface insert/alliage. Dans ce cas, on obtient les valeurs de résistance à rupture de joint les plus élevées et la dispersion la plus faible.

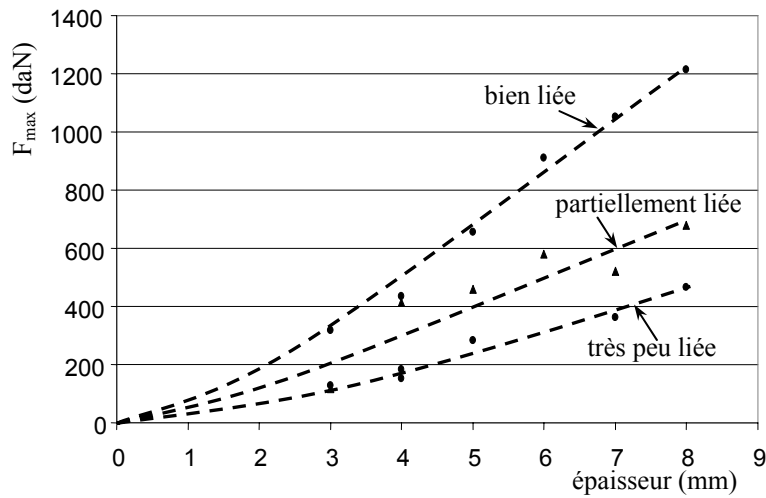


Figure 5. Charge maximale à rupture, F_{\max} , en fonction de l'épaisseur d'éprouvette pour trois joints bien différents : (a) liaison interfaciale quasi-inexistante ; (b) liaison forte mais discontinue ; (c) liaison forte continue.

4. CONCLUSION

Dans une première étape, des données scientifiques de base ont été acquises sur la thermodynamique, la cinétique et le mécanisme des interactions entre du fer solide et un alliage liquide Al-Si quasi-eutectique. Grâce à ces données, il a été possible de réaliser par insertion à la coulée des joints modèles associant un insert en acier doux et l'alliage Al-Si quasi-eutectique. Des tests mécaniques en push out ont été mis en œuvre sur ces joints. Les premiers résultats montrent une forte dépendance de la résistance à rupture avec la fraction d'interface insert/alliage métallurgiquement liée. Ces résultats sont encourageants pour entreprendre l'étude de l'influence d'autres paramètres tels que la nature et l'épaisseur de la zone de réaction interfaciale.

Références

- [1] Viala J.C., Peronnet M., Barbeau F., Bosselet F., Bouix J., *Composites* **A33** (2002) 1417.
- [2] Stucky M., *Fonderie, fondeur d'aujourd'hui* **123** (1993) 37.
- [3] Vaillant P., Petitot J.P., *J. Mater. Sci.* **30** (1995) 4659.
- [4] Durrant G., Gallerneault M., Cantor B., *J. Mater. Sci.* **31** (1996) 589.
- [5] Pontevichi S., Peronnet M., Bosselet F., Viala J.C., Bouix J., "Equilibres solide-liquide dans le système Al-Fe-Si", 28 JEEP, Agadir, 20-21 Mars 2002, M. El Hadek et al. Eds. (Université Ibn Zohr Pub., Agadir, 2002) pp. 71-74.
- [6] Pontevichi S., Bosselet F., Peronnet M., Viala J.C., *J. Phys. IV France* **113** (2004) 81.
- [7] Ghosh G. in Ternary Alloys, G. Petzow and G. Effenberg Eds. (VCH, Weinheim, 1988) Vol. 5, pp. 394-438.
- [8] Zhakharov A.M., Gul'din I.T., Arnol'd A.A., *Russ. Metall.* **3** (1988) 177.
- [9] Gilgien P., "Calcul de cartes de microstructures de solidification pour le système Al-Fe-Si", Thèse de Doctorat, EPFL Lausanne, 1996.
- [10] Liu Z.K., Chang Y.A., *Metall. Mater. Trans.* **30A** (1999) 1081.
- [11] Kirkaldy J.S., Brown L.C., *Canadian Metallurgical Quarterly* **2** (1963) 13.
- [12] Van Loo F.J.J., *Prog. Solid State Chem.* **47** (1990) 20.