

Stabilité thermique de la phase $\beta\text{Al}_3\text{FeSi}$ dans le système ternaire Al-Fe-Si

S. Pontevischi, F. Bosselet, M. Peronnet et J.C. Viala

Laboratoire des Multimatériaux et Interfaces, UMR CNRS 5615, Université Lyon I, 69622 Villeurbanne Cedex, France

Abstract : DTA and isothermal diffusion experiments have been carried out at temperatures up to 727 °C in the Fe-Al-Si ternary system. In these experiments, we have observed the thermal decomposition of the solid ternary compound $\beta\text{Al}_3\text{FeSi}$ (τ_6) into another ternary compound, $\gamma\text{Al}_3\text{Fe}_2\text{Si}_2$ (τ_2), and a liquid. Under the atmospheric pressure, that decomposition of $\beta\text{Al}_3\text{FeSi}$ occurs at temperatures ranging from 661 ± 5 °C to 667 ± 5 °C. A polythermal projection combining these new results with previously published data is given to describe the crystallisation of ternary Al-Fe-Si liquid alloys upon slow cooling from 727 °C.

1. INTRODUCTION

De nombreux alliages d'aluminium de fonderie (série AS) contiennent du silicium comme premier élément d'addition (de 5 à 22% en masse) et du fer comme principale impureté [1]. Pour maîtriser l'élaboration, l'affinage ou le recyclage de ces alliages ainsi que leur mise en forme par moulage, il est donc important de bien connaître les équilibres liquide-solide dans le coin riche en aluminium du système ternaire Al-Fe-Si. Avec plus de 15 composés binaires et ternaires répertoriés, ce système apparaît cependant comme très complexe [2-7]. Par suite, il reste encore de nombreux points à élucider concernant la structure, le domaine d'existence et la stabilité de certaines phases ainsi que les équilibres impliquant ces phases, même si des mesures d'enthalpie ont été faites récemment [8, 9].

Après avoir précisé les limites du domaine liquide à 727 °C (Fig. 1) [10], nous présentons et discutons dans ce travail les résultats obtenus sur la stabilité thermique sous pression atmosphérique de la phase solide $\beta\text{Al}_3\text{FeSi}$, dernier composé ternaire à cristalliser avec l'aluminium et le silicium lors de la solidification d'alliages liquides Al-Fe-Si [2-7]. Cette phase est encore notée τ_6 ou $\tau_6\text{-Al}_3\text{Fe}_2\text{Si}_2$ dans les références [3, 4, 8, 9].

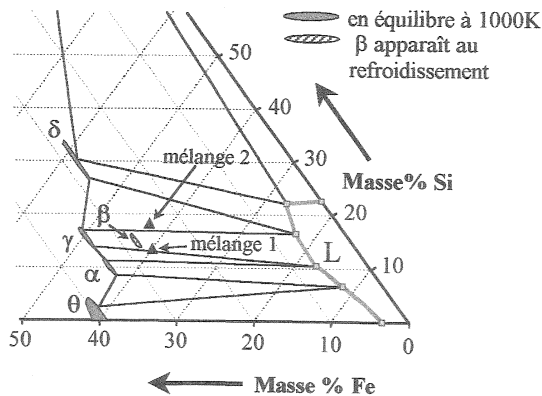


Figure 1 : Equilibres solide-liquide dans le système Al-Fe-Si à 1000 K, tels que déterminés expérimentalement dans [10] :

$\alpha = \alpha\text{Al}_{7,4}\text{Fe}_2\text{Si}$ (τ_5)
 $\beta = \beta\text{Al}_3\text{FeSi}$ (τ_6)
 $\gamma = \gamma\text{Al}_3\text{Fe}_2\text{Si}_2$ (τ_2)
 $\delta = \delta\text{Al}_3\text{FeSi}_3$ (τ_4)
 $\theta = \theta\text{Al}_3\text{Fe}$

2. PROCEDURE EXPERIMENTALE

Dans une première étape, nous avons préparé de petits barreaux frittés ($4 \times 6 \times 30 \text{ mm}^3$) majoritairement constitués du composé $\beta\text{Al}_3\text{FeSi}$, ceci en chauffant à 640 °C pendant 420 h sous 1 atm d'argon des mélanges de poudre des éléments préalablement compactés à froid sous 240 MPa.

Nous avons choisi pour ces barreaux deux compositions initiales différentes, telles qu'une fois l'équilibre atteint dans l'isotherme Al-Fe-Si à 640 °C, on se trouve à l'intérieur des triangles triphasés $\alpha\text{Al}_{7,4}\text{Fe}_2\text{Si}$ - $\beta\text{Al}_3\text{FeSi}$ - L_1 pour les barreaux de type 1 (Al:Si:Fe = 59,8:13,4:26,8 % en masse) et $\delta\text{Al}_3\text{FeSi}_3$ - $\beta\text{Al}_3\text{FeSi}$ - L_2 pour ceux de type 2 (Al:Si:Fe = 57:18:25 % en masse), L_1 et L_2 désignant des liquides Al-Si hypo- et hyper-eutectiques contenant de l'ordre de 2% en masse de fer [3-6].

Après solidification du liquide et retour à l'ambiante, nous avons contrôlé la composition des barreaux frittés par diffraction de rayons X (DRX, Philips, radiation $\text{CuK}\alpha$) et analyse par sonde électronique (MASE, Cameca), puis étudié leur comportement thermique entre 550 et 750 °C par deux techniques complémentaires : l'analyse thermique différentielle (ATD, Setaram) et le recuit isotherme par paliers successifs.

Les enregistrements d'ATD ont été réalisés sur de petits cylindres (2 mm de diamètre, 4 mm de hauteur) prélevés dans des barreaux de chaque type. Après deux cycles à vitesse de chauffe et refroidissement rapide ($5\text{ °C}\cdot\text{min}^{-1}$), une analyse plus fine a été reprise sur un prélèvement neuf à $1\text{ °C}\cdot\text{min}^{-1}$. Des pesées de contrôle ont systématiquement été effectuées en début et fin de cycle.

Dans les expériences de recuit isotherme, deux barreaux (un de chaque type) ont été placés côte à côte dans la même nacelle d'alumine et chauffés simultanément sous pression atmosphérique d'argon à des températures croissantes entre 652 ± 2 et $688 \pm 2\text{ °C}$, ceci par paliers successifs d'une durée de 60 h. Après chaque palier, les barreaux ont été ramenés à température ambiante, pesés et caractérisés par diffraction de rayons X avant d'être replacés dans l'enceinte de traitement pour subir le recuit suivant. Des analyses par MASE ont été réalisées en début et fin de traitement.

3. RESULTATS

3.1 Analyse thermique différentielle.

Entre l'ambiante et 640 °C, nous avons enregistré à la chauffe (à 5 comme à $1\text{ °C}\cdot\text{min}^{-1}$) des thermogrammes conformes à ce que l'on pouvait attendre d'après les données sur le système Al-Fe-Si [2-6]. On peut ainsi voir sur la Fig. 2a les deux accidents endothermiques vers 577 et 613 °C caractéristiques de la fusion d'un alliage Al-Si hypo-eutectique saturé en fer provenant de la solidification du liquide L_1 . Pour l'alliage hyper-eutectique provenant de L_2 , ces accidents se situent vers 577 et 596 °C (Fig. 2b).

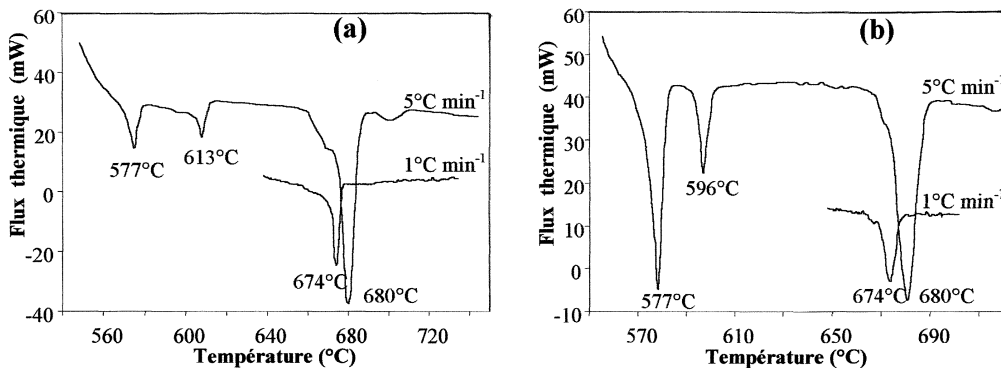


Figure 2 : Comportement thermique par ATD à la première chauffe des barreaux de type 1 (a) et 2 (b) ; vitesse de chauffe : $5\text{ °C}\cdot\text{min}^{-1}$ (diagramme général) et $1\text{ °C}\cdot\text{min}^{-1}$ (détail en surimpression)

Au dessus de 640°C, en revanche, nous avons obtenu par ATD à la première chauffe des signaux qui ne pouvaient plus s'interpréter sur la base des données bibliographiques les plus récentes [4-5]. D'après ces données, aucun accident thermique n'était en effet attendu entre 640 et 730 °C, alors que nos enregistrements d'ATD ont révélé un accident majeur sous la forme d'un pic endothermique précédé d'un épaulement. Pour les deux types de barreaux, le maximum du pic a été observé à 680 °C pour une vitesse de chauffe de $5\text{ °C}\cdot\text{min}^{-1}$ et à 674 °C à $1\text{ °C}\cdot\text{min}^{-1}$ (Fig. 2). La

position en température de l'épaulement dépend aussi de la vitesse de chauffe : à $1\text{ }^{\circ}\text{C}\cdot\text{min}^{-1}$, nous avons trouvé cet épaulement à 662 et 668 $^{\circ}\text{C}$ respectivement pour les barreaux de type 1 (Fig. 2a) et de type 2 (Fig. 2b).

3.2 Recuit isotherme par paliers successifs

On rappellera que la composition initiale des deux mélanges de poudres soumis à ces recuits a été choisie de manière que dans les barreaux frittés à 640 $^{\circ}\text{C}$, les équilibres triphasés β - α - L_1 (barreau de type 1) ou β - δ - L_2 (barreau de type 2) soient réalisés. Les résultats obtenus par DRX après recuit sur les barreaux de type 1 et 2 sont résumés schématiquement sur la Fig. 3.

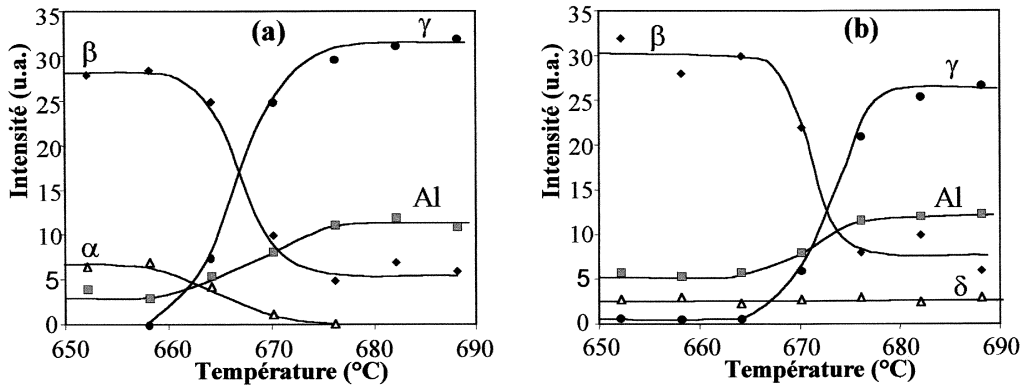


Figure 3 : Abondance relative des phases solides après recuit par paliers successifs des barreaux de types 1 (a) et 2 (b).

Pour le barreau de type 1 il est clair qu'au delà de 658 $^{\circ}\text{C}$, la phase solide ternaire $\beta\text{Al}_5\text{FeSi}$ se décompose en $\gamma\text{Al}_5\text{Fe}_2\text{Si}_2$ et liquide en même temps que la phase $\alpha\text{Al}_{7,4}\text{Fe}_2\text{Si}$ disparaît ; à 676 $^{\circ}\text{C}$, la réaction est terminée. La même décomposition de β en γ et liquide, mais cette fois sans disparition notable du troisième composé ternaire (ici $\delta\text{Al}_3\text{FeSi}_3$), a été observée pour le barreau de type 2 avec comme températures respectives de début et fin de décomposition 664 et 682 $^{\circ}\text{C}$. Les résultats d'analyses faites par EPMA avant et après recuit sont reportés dans le Tableau 1.

Tableau 1 : Composition déterminée par MASE (en % massique) pour les composés ternaires présents dans les barreaux de types 1 et 2 à l'état brut d'élaboration (à 640 $^{\circ}\text{C}$) et après le dernier recuit (à 688 $^{\circ}\text{C}$)

Echantillon	Phase caractérisée	Barreau de type 1			Barreau de type 2		
		Al	Fe	Si	Al	Fe	Si
barreau brut d'élaboration à 640 $^{\circ}\text{C}$	$\beta\text{Al}_5\text{FeSi}$ (τ_6)	57	27.8	15.2	55.9	27.2	16.9
	$\delta\text{Al}_3\text{FeSi}_3$ (τ_4)	-	-	-	44.6	28.9	26.5
	$\alpha\text{Al}_{7,4}\text{Fe}_2\text{Si}$ (τ_5)	56.4	33.5	10.1	-	-	-
barreau après dernier recuit à 688 $^{\circ}\text{C}$	$\gamma\text{Al}_5\text{Fe}_2\text{Si}_2$ (τ_2)	51.7	34.3	14	50.7	34.2	15.1
	$\delta\text{Al}_3\text{FeSi}_3$ (τ_4)	-	-	-	45.5	28.4	26.1
	$\alpha\text{Al}_{7,4}\text{Fe}_2\text{Si}$ (τ_5)	-	-	-	-	-	-

4. DISCUSSION

Pour passer des équilibres triphasés γ - α - L_1 et γ - δ - L_2 mis antérieurement en évidence à 727 $^{\circ}\text{C}$ (Fig. 1) aux équilibres β - α - L_1 et β - δ - L_2 observés dans ce travail dans les barreaux frittés à 640 $^{\circ}\text{C}$, deux transformations invariantes sont nécessaires d'après la règle des phases. En prenant en compte :

- la décomposition de β en γ et liquide mise en évidence par DRX,
- les résultats d'analyse par MASE des phases solides en équilibre avec le liquide avant et après cette décomposition,

- les compositions de liquide possibles d'après les références [2-5],
 les deux transformations invariantes impliquées par la règle des phases ne peuvent être qu'une
 péritexie transitoire (1) et une péritexie ternaire (2) s'écrivant respectivement au refroidissement :



Dans les expériences de recuit isotherme, la conversion de β en γ se produit entre 668 et 680 °C pour les deux types de barreaux frittés. Or c'est dans cet intervalle de température qu'apparaît un grand pic endothermique par ATD à 1 °C.min⁻¹. On peut donc conclure que le pic endothermique observé par ATD correspond à la transformation de β en γ . Si de plus on se reporte aux températures de début de réaction observées par recuit isotherme, la péritexie transitoire (1) peut être située à 661 ± 5 °C (début de réaction pour les barreaux de type 1) et la péritexie ternaire (2) à 667 ± 5 °C (début de réaction pour les barreaux de type 2). Ces deux températures de transformation invariante correspondent non pas au maximum des pics enregistrés par ATD à 1 °C.min⁻¹ mais aux épaulements situés à gauche de ces pics. Ces décalages s'expliquent par la lenteur de la transformation de β en γ et liquide, comme le fait que trois recuits isothermes successifs de 60 h chacun soient nécessaires pour observer une réaction complète dans les deux types de barreaux.

Il est à noter que Mondolfo [2] avait déjà envisagé l'existence des transformations (1) et (2), mais sans donner de précision sur leur position en température et cette hypothèse n'a pas été retenue par la suite [3, 4]. Elle permet pourtant d'expliquer simplement des observations reportées à la cristallisation d'alliages Al-Si-Fe dans [6]. En combinant les résultats de ce travail avec les données bibliographiques antérieures [2-6], on aboutit à la projection polythermique représentée sur la Fig. 4.

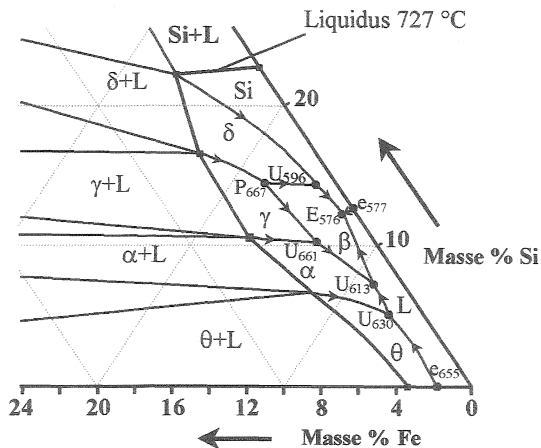


Figure 4 : Système ternaire Al-Fe-Si ; projection du liquidus aux températures inférieures à 727°C

Références

1. Fiche technique Pechiney (2000).
2. L.F. Mondolfo, *Aluminium and Alloys* (Butterworth, London, 1976) p. 282.
3. V.G. Rivlin and G.V. Raynor, *Int. Met. Rev.* **3**, 133 (1981).
4. G. Ghosh in G. Petzow and G. Effenberg, *Ternary Alloys* (VCH, Weinheim, vol. 5, 1993) p. 394.
5. A. M. Zhakharov, I. T. Gul'din and A. A. Arnol'd , *Russ. Metall.* **3**, 177 (1988).
6. V. Stefaniay, A. Griger and T. Turmezey, *J. Mater. Sci.* **22**, 539 (1987).
7. T. Turmezey, V. Stefaniay and A. Griger, *Key Eng. Mater.* **44-45**, 57 (1990).
8. M. Vybornov, P. Rogl, F. Sommer, *J. of Alloys and Compounds* **247**, 154 (1997).
9. Y. Li and B. Legendre, *J. of Alloys and Compounds* **302**, 187 (2000).
10. S. Pontevichi, M. Peronnet, F. Bosselet, J.C. Viala et J. Bouix dans *Compte-Rendus XXVIII JEEP* (20-21 Mars 2002, Agadir, Maroc) pp. 71-74.