

**Mécanisme de branchement et précipitation lamellaire dans l'alliage
Cu-7, 5 at. % In
Branching mechanism and lamellar precipitation in the
Cu-7, 5 at. % In alloy**

S. BENSAADA, M.T.BOUZIANE, M.BENMACHICHE,F.MOHAMMEDI

Laboratoire LARHYSS

Université de BISKRA BP 145 - 07000 BISKRA (ALGERIE)

Corresponding author: bensaada52@yahoo.fr

Tel/Fax: 213 (33) 74 10 87

RESUME- L'intérêt de ce travail est la mise en évidence d'une part de l'effet de la déformation plastique sur les mécanismes gouvernant la précipitation discontinue et d'autre part la morphologie du précipité lamellaire dans l'alliage Cu-7,5 at.% In. Différentes techniques d'analyses ont été utilisées à cet égard tels que: la microscopie optique, l'analyse thermique différentielle et la microscopie électronique à transmission (MET). Les résultats obtenus lors du vieillissement de l'alliage Cu-7,5 at.% In à 400 °C, sont cohérents entre eux et confirment plusieurs travaux consacrés à ce domaine, tels que le développement des précipités lamellaires à partir d'un joint de grain, différentes orientations des lamelles dans la même cellule ont été aussi observées. La réaction discontinue peut se développer aussi dans les joints de d'interphases et dont le mode favorable de multiplication des lamelles est le mécanisme de branchement.

Mots clés : Alliage Cu-In; précipitation discontinue; lamellaire; joint de grain; interphase; mécanisme de branchement.

ABSTRACT- The aim of this work is to make the evidence on the one hand the effect of the plastic deformation on the mechanism of the discontinuous precipitation and the lamellar precipitate morphology in the Cu-7, 5 at. % In alloy. Different techniques of analysis have been used in this respect such as the optical microscopy, the differential thermal analysis and electron and transmission microscopy. The obtained results during aging of the alloy Cu-7, at 5.% In at 400 ° C confirm various works achieved in this field, it was observed that the lamellar precipitates develop starting from a grain boundary and deferent lamellar orientations in the same cell were observed. The discontinuous reaction can also develop in the interphase boundaries and the branching mechanism is the favourable mode of the precipitate lamellas multiplication.

Keywords: Cu-In alloy; discontinuous precipitation; lamellar; grain boundary; interphase, branching mechanism.

1. INTRODUCTION

Les phénomènes de précipitation prennent une place considérable dans les solutions métalliques, car elle modifie profondément les propriétés des alliages, parfois dans un sens favorable conduisant à des élévations de la charge de la rupture et de la dureté. Dans le processus de précipitation l'état final est à plusieurs phases.

Généralement la réaction de précipitation consiste en la décomposition d'une solution solide sursaturée α_0 (phase mère) en un mélange de deux phases de compositions différentes [1], selon la réaction suivante : $\alpha_0 \longrightarrow \alpha + \delta$ où α c'est la phase fille, appauvrit en élément d'alliage et ayant le même réseau de structure que la phase mère α_0 et δ c'est la phase précipitée riche en élément d'alliage et peut-être :

- un cristal mixte avec la même structure, le cas de la précipitation discontinue dans le système d'alliages Au-Ni [2].
- Un cristal mixte avec une structure différente, le cas du système d'alliages Pb-Sn [3].
- Une phase intermétallique, le cas du système d'alliage Cu-Zn [4].
- Une phase liquide, le cas du système d'alliage Pb-Bi [5].

La précipitation discontinue dans le système d'alliage Cu-In a fait l'objet de plusieurs travaux de recherche [6, 7, 8] et les solutions solides sursaturées de ce système d'alliage se décomposent suivant les modes continus et discontinus, intervenant respectivement à haute et à basse température. Les places préférentielles favorisant l'apparition du précipité cellulaire sont les joints de grains à forte désorientation [9,10], la taille moyenne des grains initiaux possède aussi une influence considérable sur la morphologie du précipité.

Les mécanismes d'initiation de la précipitation discontinue proposés par Fournelle et Clark [11], puis par Tu et Turnbull [9] sont les plus plausibles dans ce système d'alliage, c'est-à-dire c'est une transformation liée à la dynamique du joint de grain. Le modèle de croissance le plus rencontré dans ce système d'alliage est celui proposé par Frebel et Schenk [12] et dont la vitesse de croissance des lamelles précipitées dépend essentiellement de la vitesse du recuit de vieillissement et de la teneur du soluté dans ce système d'alliage,[13].

Deux types de réactions cellulaires ont été observés par Spenger et Mack [14] dans ce système d'alliage, l'une fine et l'autre grossière et dans les deux cas les lamelles sont réparties uniformément. Predel et Gust [15] ont aussi fait les mêmes observations, dont la formation des lamelles grossières se déroule principalement entre deux lamelles fines très proches et dans les deux cas le processus est contrôlé par la diffusion aux joints de grains. Les lamelles fines sont réparties uniformément, par contre la répartition des lamelles épaisses est désordonnée, donc il y'a compétition entre la réaction primaire de précipitation et la coalescence des lamelles.

Dans les anciens travaux on n'a pas pu observer les lamelles grossières, car vraisemblablement elles apparaissent seulement après de longues durées de recuit. Ce même phénomène a été observé dans plusieurs alliages tels que (Al-Ag [16], Al-Cu [17], Au-Fe [18], Cu-Ag [19,20], Fe-Zn [21], Fe-Ni-Ti [22], Ni-Sn [23], Pb-Na [24], Cu-Ga [25], Cu-In [26] et Zn-Al[27]. Les types de précipité dans ce système d'alliage possèdent les formes d'ourlet [28], quadratique et fissurée [29]. Expérimentalement il a été démontré qu'une prédéformation au recuit de vieillissement influe considérablement sur le mécanisme et la cinétique de la précipitation [30]. D.B.Williams [31] affirma que sous l'influence de la déformation, la vitesse de précipitation continue augmente par conséquent, le degré de sursaturation en atome de soluté diminue, ce qui implique une diminution de la force motrice de la réaction cellulaire.

Cependant, beaucoup de questions importantes la concernant sont encore ambiguës, par exemple, il est impossible de prédire dans quel système d'alliage la précipitation discontinue peut avoir lieu, ou quelles sont les forces motrices réelles de la réaction, ou quel est le mécanisme de germination et de croissance le plus probable pour chaque système d'alliage. Par conséquent l'objectif de notre travail est d'éclaircir certains points relatifs à cette réaction dans l'alliage Cu-7,5 at. % In lors du vieillissement à 400 °C.

2. METHODES EXPERIMENTALES

L'alliage en question est l'alliage Cu-4,5 at. % In préparé par fusion sous atmosphère inerte à partir des composants de haute pureté. Les lingots obtenus ont été homogénéisés à 600 °C et trempés dans l'eau. Les conditions de vieillissement sont obtenues simultanément à partir de la littérature et du diagramme d'équilibre du système Cu-In [32-36], donc les traitements de vieillissement sont effectués à une température de 400°C, suffisante pour provoquer uniquement la précipitation discontinue. Pour la mise en évidence de l'effet de la déformation sur les mécanismes de la précipitation discontinue on a utilisé différents échantillons déformés par laminage à froid en une seule passe. Différentes techniques d'analyse ont été utilisées à cet égard, à savoir la microscopie optique, l'analyse thermique différentielle et la microscopie électronique à transmission (MET) pour le suivi de l'évolution microstructurale lors du vieillissement.

3. RESULTATS ET DISCUSSION

Les études sur la précipitation discontinue sont souvent faites lors d'un traitement isotherme, généralement après une courte période d'incubation, des cellules de précipité sont observées. La microstructure observée à travers la microscopie optique et électronique à transmission a révélé que la solution sursaturée α_0 de l'alliage en question se décompose à 400 °C en deux phases α et δ (Cu₁₁In₉) [37]. La température de vieillissement de 400°C a favorisé uniquement la précipitation discontinue (lamellaire) et pas d'autre précipité à autre morphologie et quelque soit le taux de la déformation des échantillons, les précipités sont du type à double ourlets figure 1b, figure 1d et figure 1f avec des fronts de réaction possédant une allure ondulée.

La déformation n'a aucun effet sur le croissances du précipité, mais cependant on a pu observer deux réactions cellulaires, l'une donnant des lamelles fines et l'autre coalescées, ce qui implique une compétition entre la réaction primaire de précipitation et la coalescence des lamelles. La formation des lamelles coalescées s'effectue principalement entre deux lamelles fines très proches, ce grossissement commence vraisemblablement lorsque la totalité ou plus moins la grande partie de la structure est précipitée. Pour les lamelles coalescées il s'agit toujours de la même phase comme celle de la précipitation discontinue. Les lamelles conservent au cours de leur croissance leur anisotropie de morphologie, la croissance des lamelles est plus remarquable dans les échantillons déformés que dans l'échantillon non déformé, c'est une croissance en largeur aboutissant à des ourlets étroits.

Contrairement à la figure 2a, la figure 2b montre une cellule idéale de précipité lamellaire équidistant, parallèle et alignés au plan de migration du front de réaction dans la matrice sursaturée. L'irrégularité de la distance interlamellaire observée dans la figure 2a est due probablement à l'existence de dislocations dans la matrice.

Les observations microstructurales par microscopie électronique (figure 3) montrent l'un des modes de multiplication des lamelles δ , ou on a constaté la formation d'une nouvelle lamelle δ sur le front de réaction par le mécanisme de branchement, (zone indiquée par une flèche). Ce mécanisme favorise le maintien de la distance interlamellaire constante. La régularité de la distance interlamellaire a été observée seulement après un certain stade de croissance. Dans d'autres alliages tels que Fe-Zn [38], il a été observé le mécanisme de germination de nouvelles phases au front de réaction. En accord avec Williams et Butler [39], il y a plusieurs expériences qui confirment le mécanisme de branchement pour expliquer la multiplication des lamelles durant la croissance cellulaire. Nes et Billdal [40], Fournelle et Clark [41] ont observé le phénomène de branchement par microscopie électronique. Tu et Turnbull [42] l'ont aussi observé

dans le système d'alliage Pb-Sn. Il est apparu que le branchement est le mécanisme principal qui fait que la distance interlamellaire reste constante durant le maintien à une température de revenu constante.

La figure 4 illustre le mécanisme de branchement [41] d'une nouvelle lamelle δ dans le but de maintenir la même distance interlamellaire durant le prolongement de la durée du vieillissement, ce qui confirme nos observations.

Cependant le problème de la précipitation à partir des joints d'interphase a fait l'objet de nombreuses investigations théoriques. L'idée qu'un joint d'interphase immobile peut fournir des sites favorables pour la germination des particules d'une nouvelle phase à basse température est bien acceptée [38]. La figure 5 met en évidence la localisation de la précipitation discontinue à partir des zones de formation de colonies d'eutectique formées lors de la fusion de l'alliage en question, c'est-à-dire à partir du joint d'interphase (α_0 /colonie d'eutectique). On note aussi que la transformation eutectique est du type discontinu, le joint entre la colonie d'eutectique et α_0 peut-être considéré comme un joint à grand angle capable de développer une réaction discontinue.

L'analyse thermique différentielle (fig.6), dont la courbe est caractérisée par une variation de l'énergie lors de l'élévation de la température et dont le pic exothermique confirme la précipitation d'une nouvelle phase et qui correspond à la phase intermétallique Cu_9In_4 .

4. CONCLUSION

La température de vieillissement de 400°C de l'alliage Cu-7,5 at.% In, a favorisé uniquement la précipitation discontinue (lamellaire) et pas d'autre précipité à autre morphologie et quelque soit le taux de la déformation des échantillons. Cependant la déformation n'a aucun effet sur le croissancement du précipité, mais on a pu observer deux réactions cellulaires, l'une donnant des lamelles fines et l'autre coalescées, ce qui implique une compétition entre la réaction primaire de précipitation et la coalescence des lamelles. Les précipités lamellaires sont plus développés à partir d'un joint d'interphase, qu'à partir d'un joint de grain de la matrice sursaturée. Les observations microstructurales par microscopie électronique ont montré l'un des modes de multiplication des lamelles δ , ou on a constaté la formation d'une nouvelle lamelle δ sur le front de réaction par le mécanisme de branchement. Donc le mécanisme de branchement est le mode favorable de multiplication des lamelles de précipité dans ce type d'alliage. On a mis en évidence la localisation de la précipitation discontinue à partir des zones de formation de colonies d'eutectique formées lors de la fusion de l'alliage en question,

Acknowledgements

The author gratefully acknowledge the financial support by the M.E.S.R.S Ministry for the Higher Education and the Requiring scientist of Algeria under research laboratory LARHYSS, University of Biskra.

REFERENCES

- [1] I.G.Solarzano and W.Gust, Materials science forum, 1992, pp659-664.
- [2] W.Gust, B.Prebel et I.Nguyen, Z.Metalk., 1976, pp.124-129.
- [3] Y.C.Liu et H.I.Aaronson, Acta.Met., 1968, pp.421-432.
- [4] B.Prebel et W.Gust, Mater. Sci.Eng, 1975, pp.754-755.
- [5] Y.S.Kouchavenko, Phys. Met. Metall, 1975, pp.289-294.

- [6] R.A.Fournelle, J.B.Clark, *Met. Trans*, 1972, pp.312-318.
- [7] H.Bohm, *Z.Metallk*, 1959, pp. 544-549.
- [8] R.D.Doherty, in *Physical Metallurgy*, edited by R. W. Cahn and P. Hansen (North-Holland Physics, Amsterdam), 1983, pp.1002-1008.
- [9] K.N.Tu et D.Turnbull, *Acta.met*, 1972, pp.1784-1786.
- [10] Y.C.Liu et H.I.Aaronson, *Acta.met*, 1971, pp.16.
- [11] J.B.Clark, *High temperature, High resolution metallography*, Gordon and Beach, New York, 1976, pp.89-93.
- [12] M.Frebel et J.Schenk, *Z.Metallk.*, 1997, pp.2178-2182.
- [13] B.Predel, M.Frebel et W.Gust, *untersuchungen zur DP in metallischen systemen*, west deutscher verlag, Opladen, 1977, pp.987-989.
- [14] C.W.Spenger et D.J.Mack, *J.Inst.Metals*, 8, 1981, pp. 153-154.
- [15] B.Predel et W.Gust, *Mater.Sci.Eng.*, 1974, pp.239.
- [16] B.Predel et W.Gust, *Mater.Sci.Eng.*, 1972, 2111-2114.
- [17] P.Barrand, C.R.Tottle, D.Driver et A.B.Michelle, *Acta.Met.*, 1967, pp.1553.
- [18] M.Frebel et B.Prebel, *Z.Metallk.* , 1971, pp.654-658.
- [19] H.Borchers, W.Scharfenberg et R.Zurstege, *Acta.Met.*, 1968, pp.405-407.
- [20] W.Leo, *Z.Metallk.*, 1967, pp.456-458.
- [21] B.Predel et M.Frebel, *Acta.Met*, 1972, pp.1259-1261.
- [22] G.R.Speich, *Trans.Aime*, 1963, pp.227-754.
- [23] M.Frebel, B.Predel et W.Klisa, *Z.Metallk*, 1974 ,pp. 1244-1247.
- [24] J.Petermann et E.Hornbogen, *Z.Metallk.*, 1968, pp.1574-1576.
- [25] C.W.Spenger et D.J.Mack, , *J.Inst.Metals*, 1972, pp.2184.
- [26] C.W.Spenger et D.J.Mack, , *J.Inst.Metals*, 1972, pp. 1181-1184.
- [27] D.Chethaum et N.Ridley, *J.Inst.Metals*, 1971, pp. 994-997
- [28] W.Gust, M.B.Hintz, B.Predel et V.Roll, *Acta.Met.* , 1980, pp.1235-1236.
- [29] W.Gust, B.Predel et V.Roll, *Acta.Met*, 1980, pp.1395-1398.
- [30] H.I.Subakino, *Metallography*, 1984, pp. 2214-2216.
- [31] D.B.Williams et E.P.Buthler, *Int.Met.Rev.*,1981, pp. 1142-1145.
- [32] I. Manna, S. K. Pabi and W. Gust, *journal of mater.Sci*, 1991, 26, pp.4888-4892.
- [33] J. M. Schapiro, J. S. Kirkaldy, *Acta Met.*, 16, 1968, pp.1239-1233.
- [34] R. A. Fournelle, J. B. Clark, *Met. Trans.*, 1977, pp. 2757-2759.
- [35] W. Gust, M. B. Hintz, U. Roll, *Acta Metal.*, 1980, pp.1235-1238.
- [36] S. P. Gupta, *Mat. Scien. Eng.*, 1975, pp.211-214.
- [37] W. Kim, G. Meyrick, P. G. Schewmon, *Scripta Met.*, 1983, pp.1435-1439.
- [38] S.V.Kucharenko, *Phys.Met.Metallogr.*,39 (4), 1984, pp.1218-1222.
- [39] D. B. Williams, E. P. Butler, *Int. Met. Rev.*, 26, 1981, pp. 153-183.
- [40] E.Nes, H.Billdal, *Acta. Met.*, 25, 1977, pp.1039-1041.
- [41] R.A.Fournelle, J.B.Clark, *Met. Trans.*, A3, 1991, pp.1489.
- [42] K.N.Tu, D.Turnbull, *Acta. Met.*, 15, 1967, pp.361-365.

CAPTIONS

Figure 1. Evolution structurale de l'alliage Cu-7.5 at.%In , homogénéisé pendant 27 jours à 600°C , trempé dans l'eau (a), déformé de 20% (c) et de 70% (e), ensuite vieilli à 400°C pendant 97 heures (b), pendant 67 heures (d) et pendant 53 heures (f)

Figure 1. Structural evolution of Cu-7.5 at.% In alloy, after homogenization during 27 days at 600°C, quenched in water (a), deformed of 20% (c) and of 70% (e) and annealing at 400°C during 97h (b), 67h (d) and 53h (f).

Figure 2. Deux types de cellules: (a) cellules caractérisées par une distance interlamellaire irrégulière (b) colonie idéale de précipité discontinu lors du vieillissement isotherme de l'alliage Cu-7,5 at. % In a 400°C pendant 12 heures.

Figure 2. Two types of cells: (a) cell characterized by irregular lamellar spacing, (b) ideal D colony in an isothermally aged Cu-7,5 at.% In alloy at 400°C during 12 hours.

Figure 3. Mécanisme de branchement typique observé par MET lors du vieillissement isotherme de l'alliage Cu-7,5 at. % In a 400°C pendant 42 heures.

Figure 3. Typical branching mechanism observed by MET in an isothermally aged Cu-7, 5 at. % In alloy at 400 °C during 42 hours.

Figure 4. Illustration du mécanisme de branchement observé lors du vieillissement isotherme de l'alliage Cu-7,5 at. % In [41].

Figure 4. Illustration of branching mechanism observed in an isothermally aged Cu-7, 5 at.% In alloy, [41].

Figure 5. Développement préférentiel de la précipitation cellulaire à partir de colonies d'eutectique lors du vieillissement isotherme de l'alliage Cu-7,5 at. % In à 400°C pendant 12 heures.

Figure 5. Development of cellular precipitation from a eutectic colony in an isothermally aged Cu-7,5 at.% In alloy at 400°C during 12 hours.

Figure 6. Courbes de l'analyse thermique différentielle de l'alliage Cu-7,5at.-%In, homogénéisé pendant 27 jours à T=600°C, trempé dans l'eau.

Figure 6. Curves of differential thermal analysis of the Cu-7, 5 at.-% In, homogenized for 27 n days at T = 600 °C.

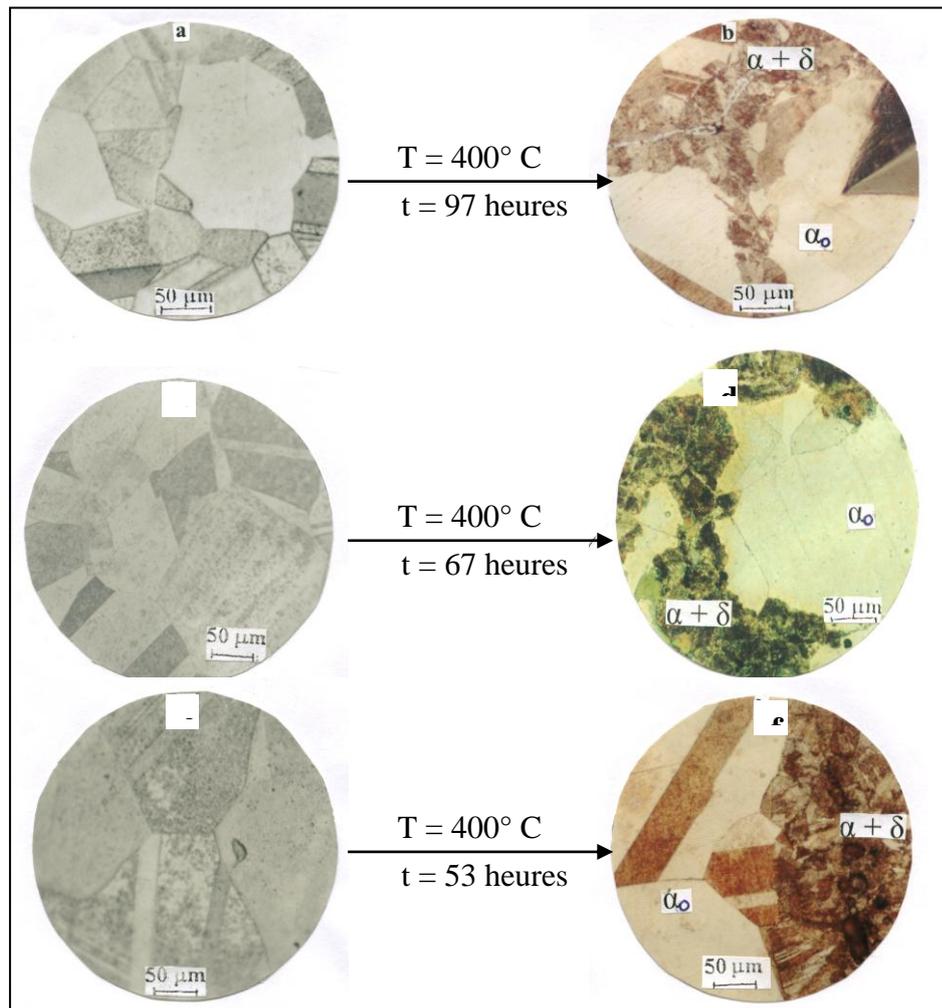


Fig.1. Evolution structurale de l'alliage Cu-7.5 at.%In , homogénéisé pendant 27 jours à 600°C , trempé dans l'eau (a), déformé de 20% (c) et de 70% (e), ensuite vieilli à 400°C pendant 97 heures (b), pendant 67 heures (d) et pendant 53 heures (f)

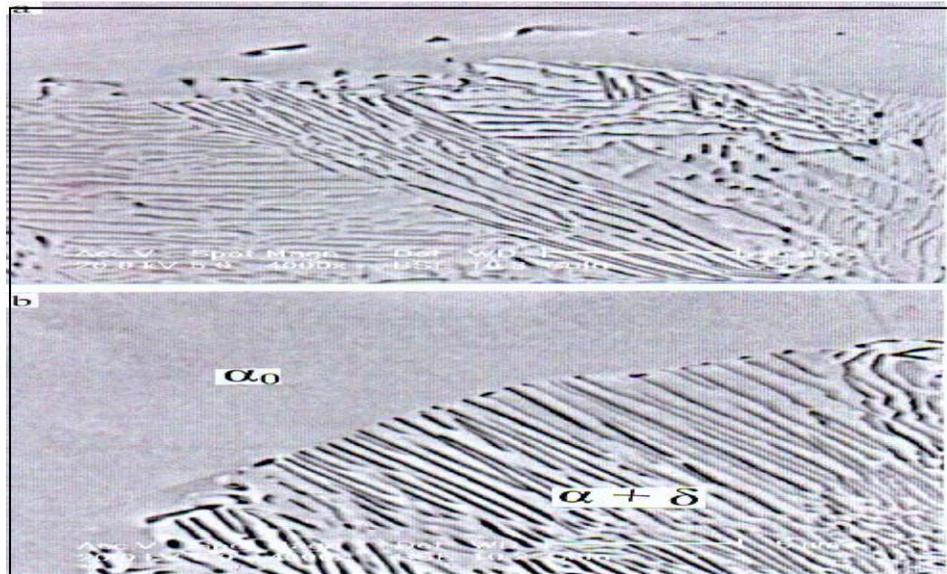


Figure 2. Deux types de cellules: (a) cellules caractérisées par une distance interlamellaire irrégulière (b) colonie idéale de précipité discontinu lors du vieillissement isotherme de l'alliage Cu-7,5 at. % In a 400°C pendant 12 heures.

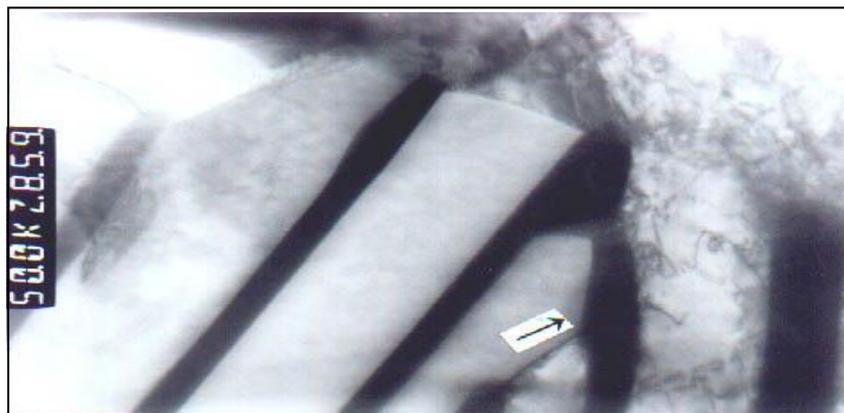


Figure 3. Mécanisme de branchement typique observé par MET lors du vieillissement isotherme de l'alliage Cu-7,5 at. % In a 400°C pendant 42 heures.

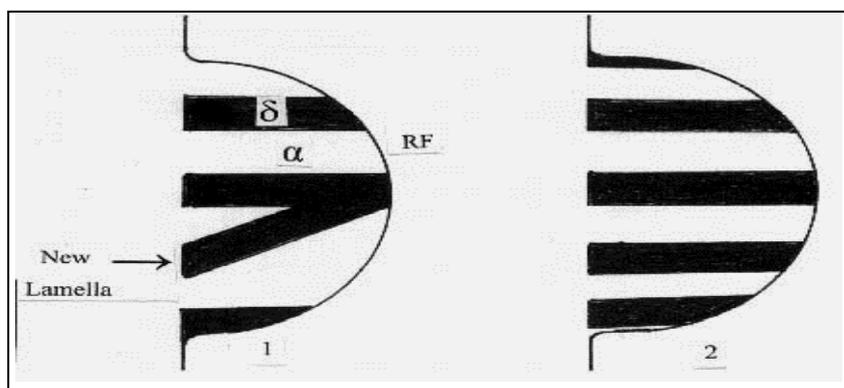


Figure 4. Illustration du mécanisme de branchement observé lors du vieillissement isotherme de l'alliage Cu-7,5 at. % In [41].

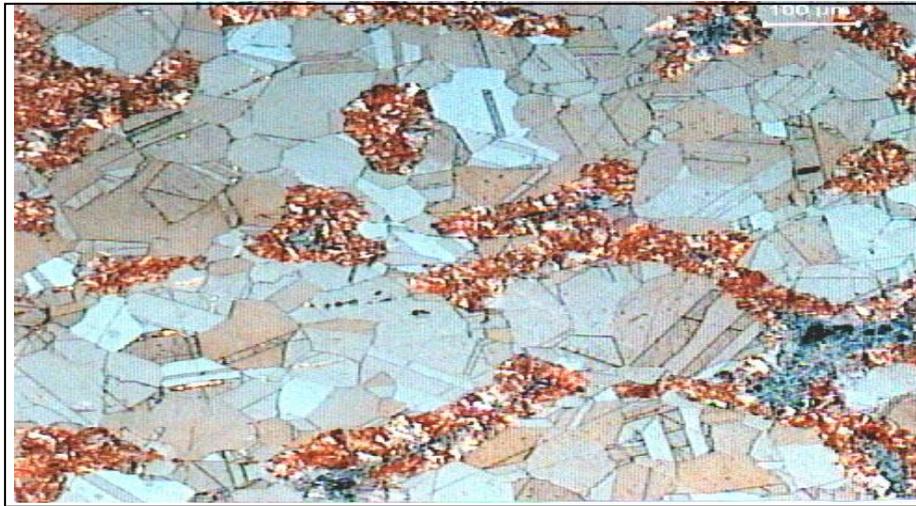


Figure 5. Développement préférentiel de la précipitation cellulaire à partir de colonies d'eutectique lors du vieillissement isotherme de l'alliage Cu-7,5 at. % In à 400°C pendant 12 heures.

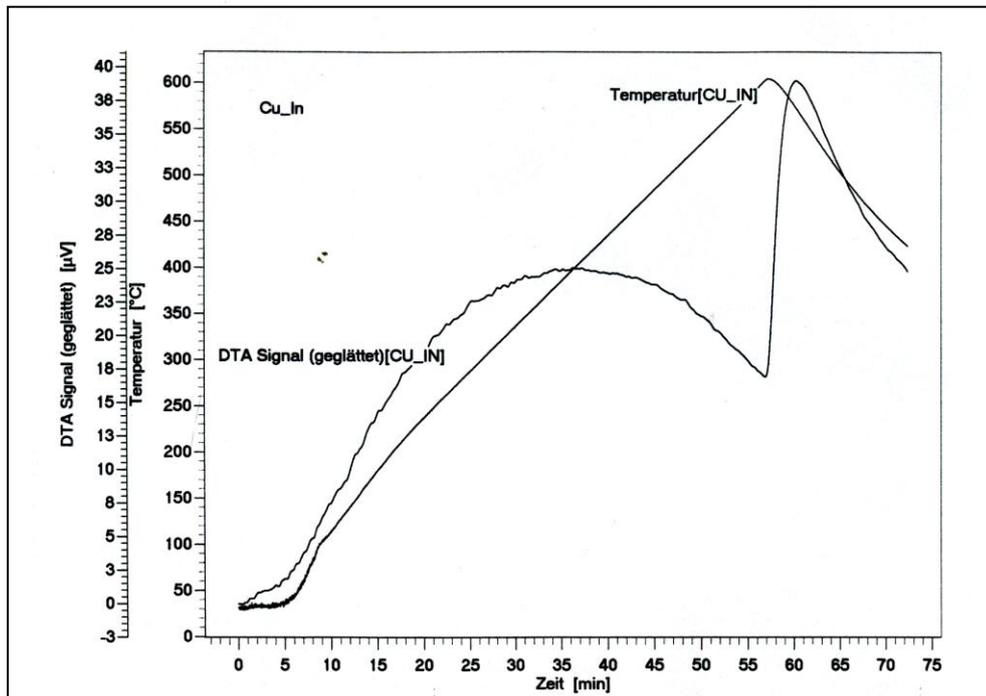


Figure 6. Courbes de l'analyse thermique différentielle de l'alliage Cu-7,5 at.-%In, homogénéisé pendant 27 jours à T=600°C, trempé dans l'eau.