



HAL
open science

SUPERPLASTICITÉ A L'AMBIANTE DE L'ALUMINIUM A GRAIN FIN, EN LIAISON AVEC L'EXISTENCE D'UN FILM INTERGRANULAIRE DE SOLUTION SOLIDE RICHE EN GALLIUM

S. Marya, G. Wyon

► **To cite this version:**

S. Marya, G. Wyon. SUPERPLASTICITÉ A L'AMBIANTE DE L'ALUMINIUM A GRAIN FIN, EN LIAISON AVEC L'EXISTENCE D'UN FILM INTERGRANULAIRE DE SOLUTION SOLIDE RICHE EN GALLIUM. *Journal de Physique Colloques*, 1975, 36 (C4), pp.C4-309-C4-313. 10.1051/jphyscol:1975430 . jpa-00216336

HAL Id: jpa-00216336

<https://hal.science/jpa-00216336>

Submitted on 4 Feb 2008

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

SUPERPLASTICITÉ A L'AMBIANTE DE L'ALUMINIUM A GRAIN FIN, EN LIAISON AVEC L'EXISTENCE D'UN FILM INTERGRANULAIRE DE SOLUTION SOLIDE RICHE EN GALLIUM

S. K. MARYA et G. WYON

Laboratoire de Métallurgie, Centre de mise en forme
Ecole des Mines de Paris,
75272 Paris Cedex 06, France

Résumé. — La fragilisation intergranulaire de l'aluminium par le gallium liquide, comme la faible ductilité de l'aluminium écroui par laminage sont bien connues. Le laminage contrôlé à la température ambiante permet d'obtenir avec un alliage Al-Ti à 0,26 % Ti, des cristallites équiaxes de 1 à 3 microns. Dans cet état une imprégnation par du gallium liquide provoque une fragilisation transitoire puisque la ductilité reparaît par maintien à 50 °C. Pour des quantités de gallium de 6 à 18 % en poids, et après 125 à 225 h à 50 °C, le matériau devient superplastique à l'ambiante, la valeur du coefficient de sensibilité m de la relation $\sigma = K\dot{\epsilon}^m$ étant comprise entre 0,3 et 0,5 pour $\dot{\epsilon} = 0,02$ par minute. La déformation est alors essentiellement intergranulaire et la superplasticité est attribuée à l'existence d'un film de solution solide intergranulaire riche en gallium, donc à bas point de fusion. La taille et la morphologie des cristallites, la quantité de gallium introduite et le temps de maintien avant déformation, sont des paramètres qui conditionnent la ductilité finale.

Abstract. — The intergranular embrittlement of aluminium by gallium liquid as well as the low plasticity of the cold rolled aluminium are well known. The present study, relevant to the penetration of the gallium at 50 °C in 1 to 3 μm size grains obtained by the controlled cold rolling of Al-0.26 % Ti, shows that the embrittlement of aluminium after the penetration of gallium at 50 °C is transitory. After the absorption of 6 to 18 weight per cent gallium by cold rolled Al-0.26 % Ti, followed by a maintenance at 50 °C between 125 to 225 h, the material becomes superplastic at room temperature. At this stage, the strain rate sensitive parameter m of the relation $\sigma = K\dot{\epsilon}^m$ is between 0.3 to 0.5 for $\dot{\epsilon} = 0.02 \text{ min}^{-1}$. The deformation of the material is essentially intergranular and is attributed to the presence of a thin gallium rich solid solution of aluminium having a low melting point. The size and morphology of the crystals, the quantity of gallium absorbed and the maintenance time at 50 °C are the important factors which influence the final ductile behaviour of this material.

1. Introduction. — Lorsqu'un polycristal d'aluminium recuit, débarrassé localement de sa couche d'oxyde thermique superficielle, est mis en présence d'une faible quantité de gallium à des températures comprises entre 30 °C et 150 °C, on constate :

- une pénétration du gallium à l'interface métal-oxyde, à partir de la région superficielle libre d'alumine [1] ;
- une pénétration intergranulaire du gallium [2-3].

La formation d'un film liquide de composition approximativement eutectique, contenant 4 à 5 % d'aluminium, supprime l'adhérence de la couche d'oxyde superficielle et détruit la cohésion entre les cristaux. Cette décohésion au niveau des joints de grains est bien mise en évidence sur des échantillons recristallisés à cristaux de 4 à 5 mm² ayant subi un écrouissage de 30 % par laminage. De fines rayures faites sur la surface permettent de mettre en évidence le déplacement relatif des cristaux par relaxation des contraintes intergranulaires, dès la pénétration du gallium liquide (Fig. 1). On constate

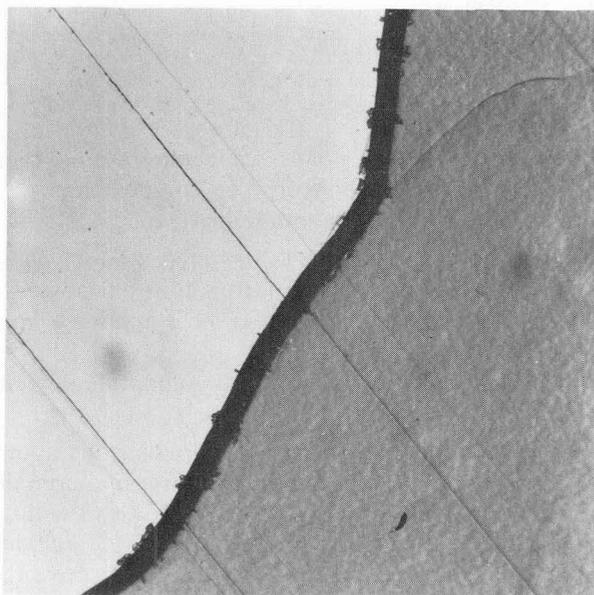


FIG. 1. — Déplacement relatif des gros cristaux après la pénétration intergranulaire du gallium liquide dans l'aluminium recristallisé à gros grains et laminé de 30 % — $\times 300$.

également que la vitesse de pénétration du gallium liquide est plus élevée dans le cas d'un échantillon écroui.

Quand le film liquide intergranulaire est constitué dans une éprouvette d'aluminium recristallisé à gros grain, un traitement de diffusion volumique entre 200 °C et 400 °C permet de supprimer la fragilisation par suite de l'élimination du film liquide et de la formation d'une solution solide Al-Ga [4-5]. Lors de ce traitement de diffusion volumique on constate d'ailleurs la formation de cavités intergranulaires dues à la ségrégation d'un grand nombre de lacunes créées par effet Kirkendall (Fig. 2) [1] puisqu'aucune sursaturation en lacunes thermiques n'existe avant le traitement de diffusion.

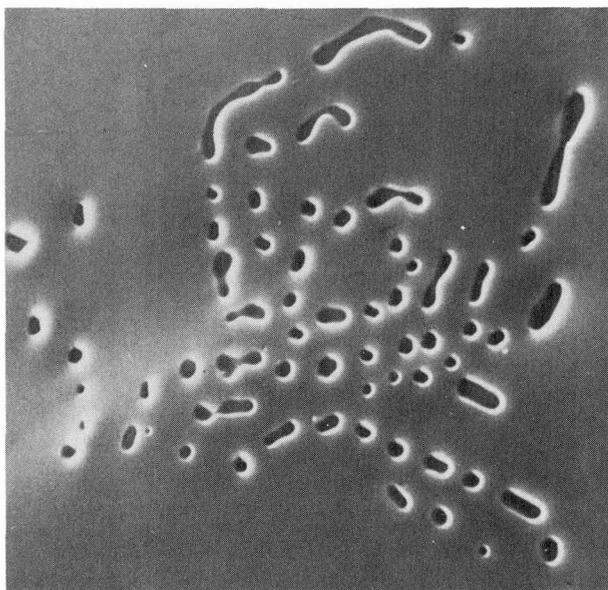


FIG. 2. — Cavités intergranulaires qui se forment après un traitement de recuit aux températures supérieures ou égales à 200 °C sur l'aluminium raffiné à gros grains préalablement imprégné avec du gallium à 50 °C (microscope à balayage) — surface d'un joint $\times 1\,100$.

Il existe donc 2 zones de températures bien distinctes en ce qui concerne le comportement du gallium vis-à-vis de l'aluminium [1] :

— entre 30 °C et 200 °C, l'étalement superficiel et la pénétration intergranulaire sont importants jusqu'à 150 °C puis diminuent et s'annulent vers 200 °C,

— à partir de 200 °C la diffusion volumique devient relativement rapide.

En partant de ces données générales nous avons étudié, après la pénétration intergranulaire du gallium liquide, l'influence de la taille des cristaux et celle du temps de maintien à 50 °C sur les propriétés mécaniques en traction d'éprouvettes plates obtenues par laminage à l'ambiante (dimensions utiles 19 \times 3 \times 2 mm). Deux alliages d'aluminium ont été utilisés pour ces essais, l'un avec 300 $\times 10^{-6}$ de fer, l'autre contenant 0,26 % de

titane [5-6-7]. La vitesse de traction a été fixée à 2 % par minute et la température de déformation est comprise entre l'ambiante et 50 °C.

2. Résultats obtenus. — 2.1 RÔLE DE LA TAILLE DES CRISTAUX. — Nous avons constaté que la quantité de gallium liquide pouvant être introduite à 50 °C par pénétration intergranulaire est d'autant plus importante que la taille des grains est plus réduite. Corrélativement on peut dire que le film liquide intergranulaire, pour une quantité de gallium donnée, doit être d'autant plus mince que la taille des cristaux est plus faible.

On observe toujours une fragilisation des échantillons immédiatement après l'imprégnation par le gallium, mais, dans le cas des échantillons à grain fin de dimension inférieure à 100 μm , la fragilisation n'est que transitoire. Celle-ci disparaît en effet après un temps de maintien à 50 °C d'autant plus long que la taille des cristallites est plus importante (pour une quantité de gallium donnée) ou que la quantité de gallium est plus grande (pour une taille de cristallites donnée). Les résultats suivants ont été obtenus (Tableau I).

TABLEAU I

Taille des cristallites	Quantité de gallium % en poids	Durée de la période de fragilité transitoire à 50 °C
5 à 12 μm (Al à 0,26 % Ti laminé de 42 % à 20 °C)	1 %	40 à 50 h
3 à 7 μm (Al à 300 $\times 10^{-6}$ Fe laminé de 85 % à 20 °C)	0,1 %	8 à 12 h
	1 %	35 à 40 h
	3 %	85 à 100 h
	5 %	130 à 150 h
1 à 3 μm (Al à 0,26 % Ti laminé de 35 % à 20 °C)	1 %	10 à 15 h
	3 %	40 à 50 h
	5 %	60 à 75 h
	10 %	175 à 200 h

Les valeurs indiquées dans le tableau montrent bien que la durée de la fragilisation transitoire, pour une quantité de gallium donnée, est plus réduite si la taille des cristallites diminue.

2.2 RÔLE DE LA DURÉE DE MAINTIEN À 50 °C. — Après la période de fragilisation transitoire, on constate que la ductilité du matériau commence par croître avec le temps de maintien puis décroît pour des séjours très prolongés à 50 °C. Corrélativement, la limite élastique augmente régulièrement avec le temps de maintien. A titre d'exemple, avec l'alliage Al-Ti à 0,26 % Ti laminé de 85 % les caractéristiques mécaniques en fonction du temps de maintien figurent au tableau II.

En fonction de la teneur en gallium, la ductilité maximale est trouvée d'autant plus importante que la quantité de gallium est plus élevée (Fig. 3).

TABLEAU II

Quantité de gallium	Temps de maintien à 50 °C	$\sigma_{0,2}$	σ_R	A %
1 %	15 h	4 hb	9 hb	15 ± 5
1 %	25 h	4,5 hb	11 hb	70 ± 5
1 %	50 h	5,2 hb	11 hb	75 ± 5
10 %	150 h	4 hb	5,5 hb	300 ± 20
10 %	600 h	6,3 hb	8 hb	190 ± 10

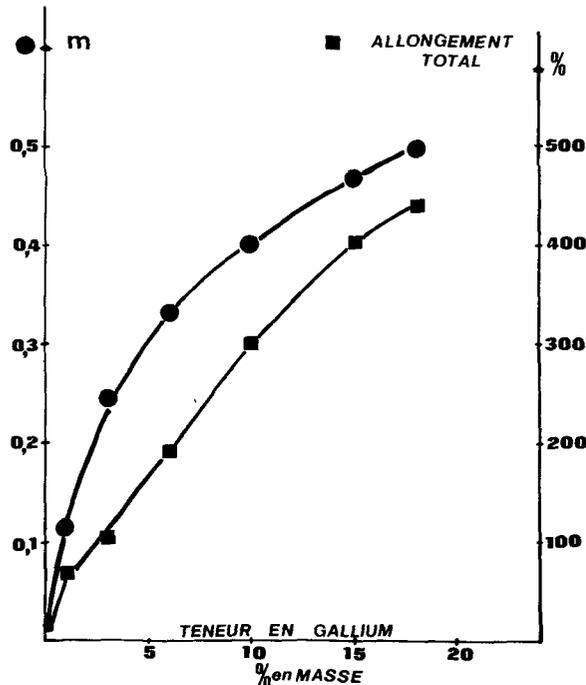


FIG. 3. — Influence de la teneur en gallium sur l'évolution de la ductilité et de la valeur de m .

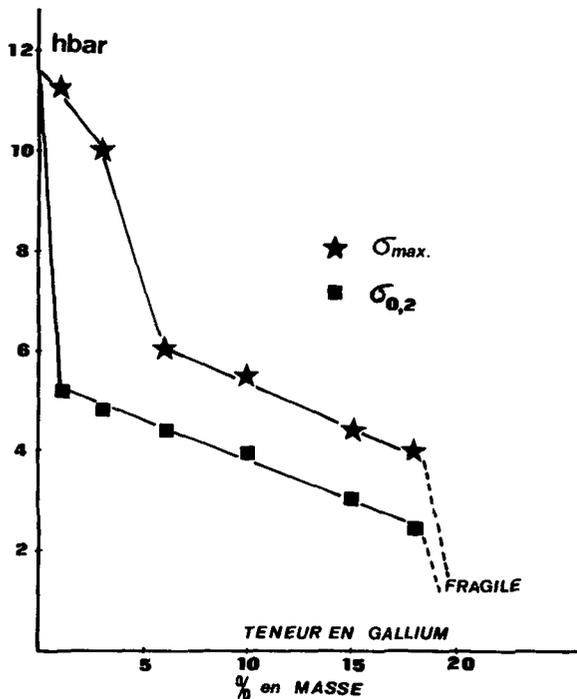


FIG. 4. — Evolution de $\sigma_{0,2}$ et σ_{max} en fonction de la teneur en gallium. Le temps de maintien à 50 °C correspond au maximum de ductilité.

D'après ces résultats on remarque qu'il est donc possible d'obtenir, grâce à l'imprégnation par le gallium à 50 °C, un état superplastique de l'aluminium à la température ambiante. Les valeurs du coefficient de sensibilité m de la relation $\sigma = K\dot{\epsilon}^m$ [8] confirment le caractère superplastique pour des quantités de gallium supérieures à 6 % environ (Fig. 3). Sur la figure 4 on remarque bien que la limite élastique et la charge maximale sont d'autant plus faibles que la quantité de gallium est plus importante.

3. **Interprétation des résultats.** — La période de fragilisation transitoire peut être associée à la présence d'un film liquide d'alliage Al-Ga très riche en gallium. Cette interprétation est en accord avec le fait qu'à partir de 20 % de gallium en poids environ, la fragilité subsiste, quel que soit le temps de maintien à 50 °C. Cette valeur correspond en effet à la limite de solubilité du gallium dans l'aluminium à cette température [4].

La disparition de la fragilisation est liée à l'élimination du film liquide et à sa transformation en un film intergranulaire très mince de solution solide Al-Ga. Par suite de la très faible diffusion volumique à 50 °C, le gradient de concentration entre la couche intergranulaire et la matrice des cristaux demeure très accusé. C'est ce que confirment les micrographies électroniques sur lames minces où la présence de franges de moiré de translation est extrêmement fréquente (Fig. 5). Des réseaux de dislocations d'interface sont également souvent visibles (Fig. 6). En ce qui concerne l'épaisseur du film intergranulaire de solution solide Al-Ga, le calcul montre qu'elle doit être de l'ordre de 150 Å (pour 1 % de Ga) à 3 000 Å (pour 18 % de Ga). La teneur en gallium de cette couche, compatible avec l'espacement des franges de moiré, doit être de l'ordre de 15 %, d'après les mesures de paramètre effectuées sur des alliages témoins homogènes.

Compte tenu de ces observations, le passage de la solution liquide intergranulaire à la solution solide localisée aux frontières entre les cristallites, doit être d'autant plus rapide que le film liquide initial est plus mince (donc la teneur en gallium plus faible ou la taille des cristallites plus réduite). C'est bien ce que l'on constate en ce qui concerne l'influence de ces paramètres sur le temps de fragilisation transitoire.

La forte ductilité, qui va jusqu'à la superplasticité à l'ambiante, de l'aluminium à grain très fin imprégné par du gallium à 50 °C, est due à la présence du film intergranulaire de solution solide Al-Ga à bas point de fusion (210 °C pour 15 % de Ga). L'existence d'une telle couche permet en effet un déplacement relatif des cristaux sous l'effet des contraintes à la température ambiante. La déformation par glissement intracristallin est alors d'autant plus limitée que les cristallites (microcristaux ou

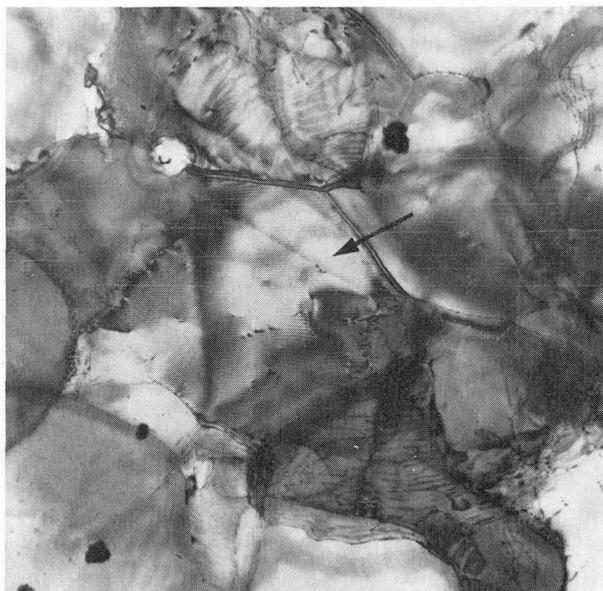
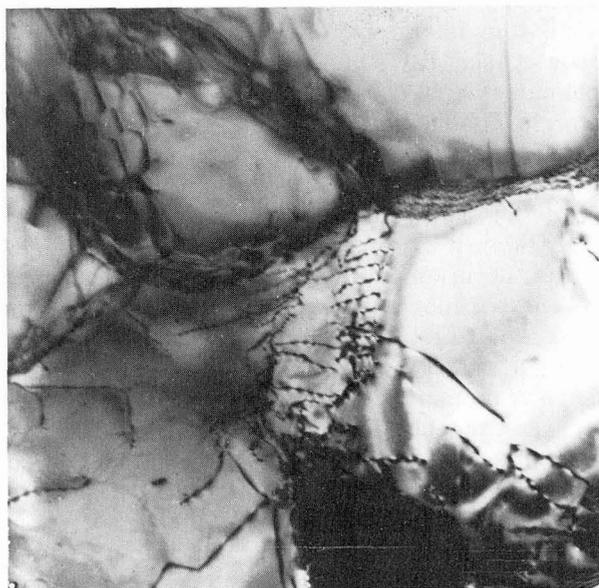
FIG. 5. — Aspect structural et franges de moiré — $\times 35\ 000$.FIG. 6. — Dislocations d'interface — $\times 40\ 000$.

FIG. 5 et 6. — Microscopie électronique de lames minces préparées à partir de tôles de 1,5 mm d'épaisseur d'Al-0,26 % Ti maintenues pendant 75 h avec 3 % de gallium à 50 °C.

cellules d'écroutissage assez parfaites) sont plus fins et plus équiaxes. Des observations au microscope optique ont d'ailleurs bien montré que la déformation est essentiellement localisée au niveau des joints de grains (Fig. 7). Enfin l'absence de texture, même après une déformation de 200 % par traction confirme la prédominance de la déformation intergranulaire.

Dans ces conditions la loi de Hall-Petch ne doit pas être valable. C'est ce qu'on constate effective-

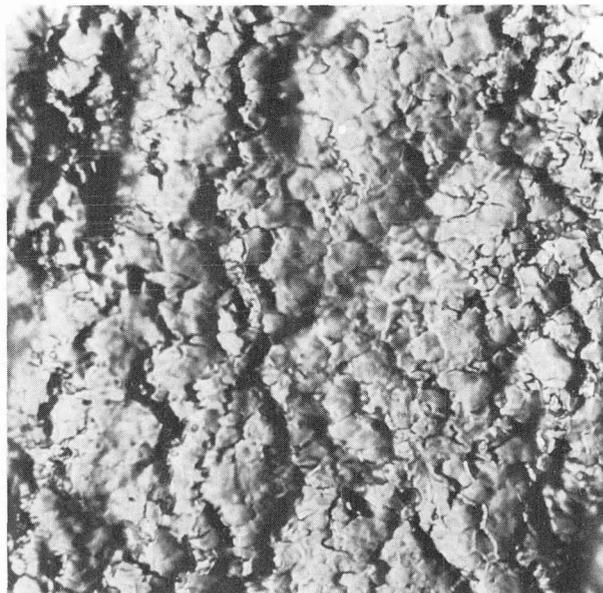


FIG. 7. — Microscopie optique montrant la taille et la morphologie des cristaux après une déformation de 60 % sur Al-0,26 % Ti, laminé de 85 % et imprégné ensuite par 3 % de gallium. Traction effectuée après 50 h de séjour à 50 °C — $\times 1\ 500$.

ment en comparant les valeurs des limites élastiques obtenues après l'imprégnation par le gallium à 50 °C avec des éprouvettes à tailles de grains différentes (Tableau III). La limite élastique est en effet trouvée plus faible pour le grain le plus fin.

TABLEAU III

Taille des cristallites	Quantité de Ga	Temps à 50 °C	$\sigma_{0,2}$
5 à 12 μm (Al à 0,26 % Ti laminé de 42 % à 20 °C)	1 %	50 h	7,2 hb
1 à 3 μm (Al à 0,26 % Ti laminé de 85 % à 20 °C)	1 %	25 h	4,5 hb
	1 %	50 h	5,2 hb

4. **Conclusions.** — Cette étude sur la pénétration intergranulaire du gallium dans des alliages d'aluminium à grain très fin montre qu'il est possible d'y introduire des quantités relativement fortes de gallium sans risquer une fragilisation définitive au niveau des joints. Par ailleurs, l'examen de la structure après un temps de maintien assez prolongé à 50 °C montre que le caractère superplastique à l'ambiante doit être attribué à l'existence d'un film intergranulaire de solution solide Al-Ga à bas point de fusion formé *in situ* à partir du gallium liquide, ayant pénétré dans les joints.

Remerciements. — Nous tenons à remercier la société ALUSUISSE pour l'aide matérielle qu'elle nous a apportée en vue de la réalisation de ces travaux.

Bibliographie

- [1] MARYA, S. K. et WYON, G., *Metallography*, sous presse.
- [2] ELBAUM, C. E., *Trans. AIME* **242** (1968) 1343.
- [3] ROCQUES-CARMES, C., AUCOUTURIER, M. et LACOMBE, P., *Rev. Met.* **LXVII** (1970) 367.
- [4] ZOLLER, H., *Metall. Dtsch.* **II** (1957) 378.
- [5] MARYA, S. K. et WYON, G., *C. R. Hebd. Séan. Acad. Sci.* **280** (1975) série C., 1077.
- [6] MARYA, S. K. et WYON, G., *Script. Met.*, Oct. 1975.
- [7] MARYA, S. K. et WYON, G., *C. R. Hebd. Séan. Acad. Sci.* **281** (1975) série C., 11.
- [8] BACKOFEN, I. R., TURNER, I. R. et AVERY, D. H., *Trans. ASM* **57** (1964) 980.

DISCUSSION

B. BAUDELET : Vos résultats évoquent la loi de Glen observés dans le fluage de la glace. Dans les deux cas des composés à point de fusion faible se forment au niveau des joints de grain. La différence observée entre la valeur de m égale à 0,3 dans la loi de Glen et vos valeurs expérimentales pourrait être imputée à votre méthode de détermination de ce coefficient.

S. K. MARYA : La loi de Glen à laquelle vous faites allusion a été établie par Jones et Glen (*Com. Snow and Ice Bern* p. 326). Elle exprime la relation existant entre la vitesse des dislocations v et la contrainte dans le cas des monocristaux de glace.

Selon Glen on a $v \propto \left(\frac{\tau}{\tau_0}\right)^n$ voir $n = 3$.

Dans le cas des polycristaux de glace des études en cours montrent qu'effectivement, la solubilité des sels dans la glace étant très faible, les impuretés se concentrent aux joints des grains et y abaissent le point de fusion jusqu'à -10 °C environ. Les cristaux de glace étant cependant d'assez grandes dimensions (de 1 mm à 1 cm environ) la déforma-

tion de la glace ne peut être essentiellement intergranulaire sauf pour des contraintes très faibles. Dans ce dernier cas on $\sigma = K\dot{\epsilon}^m$ voir m voisin de 1. Il s'agit dans le fluage d'un processus diffusionnel aux joints et l'on ne peut pas parler de superplasticité de la glace. Des études de Langdon en 1972 (*Int. col. Phys. Ice, Ottawa*) et de Weertman en 1972 (*idem*) ont par ailleurs montré que par fluage on avait une loi de comportement $\sigma = K\dot{\epsilon}^m$ avec m variant entre 0,3 et 0,62.

S'il existe quelques similitudes entre notre matériau à joints enrichis en gallium et les polycristaux de glace *impure*, nous ne pensons pas que les propriétés soient identiques à cause notamment de la taille des cristaux très différente dans les deux cas.

En ce qui concerne les valeurs du coefficient m que nous constatons il convient de préciser que, même si elles sont entachées d'erreur dans l'absolu, on observe, avec la même méthode de détermination, une variation en fonction de la quantité de gallium introduite, en étant d'autant plus élevé que cette quantité est plus forte.